



19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 366 331**

51 Int. Cl.:
C07C 231/12 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **02807526 .5**

96 Fecha de presentación : **07.10.2002**

97 Número de publicación de la solicitud: **1513798**

97 Fecha de publicación de la solicitud: **16.03.2005**

54 Título: **Método para preparar hidrazodicarbonamida usando biuret como material de partida.**

30 Prioridad: **17.06.2002 KR 10-2002-0033814**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
19.10.2011

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
19.10.2011

73 Titular/es: **J & J CHEMICAL Co. Ltd.**
472-2 Gajwa-dong, Seo-gu
Incheon-city 404-250, KR

72 Inventor/es: **Lee, Chun-Hyuk y**
Han, Sang-Jin

74 Agente: **García-Cabrerizo y del Santo, Pedro**

ES 2 366 331 T3

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).

DESCRIPCIÓN

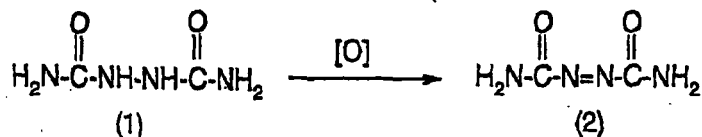
Método para preparar hidrazodicarbonamida usando biuret como material de partida.

CAMPO DE LA INVENCION

5 La presente invención se refiere a un método para preparar hidrazodicarbonamida (HDCA) usando biuret como material de partida, y más particularmente, a un método más económico y eficaz para preparar HDCA que el método descrito en el documento WO 0149652 de los inventores de la presente invención.

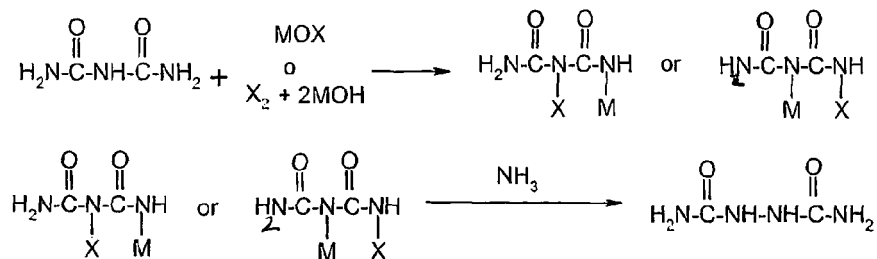
ANTECEDENTES DE LA INVENCION

10 La hidrazodicarbonamida (HDCA) es un compuesto útil como material de origen para producir azodicarbonamida que es uno de los agentes espumantes usados ampliamente a nivel mundial. Como se muestra en la siguiente Ecuación de reacción 1, la azodicarbonamida (2) puede obtenerse oxidando hidrazodicarbonamida (1) con un agente oxidante apropiado.

[Ecuación de reacción 1]

15 Los métodos convencionales para preparar HDCA incluyen (i) un método de hacer reaccionar 2 moles de urea con hidrazina que se produce mediante el proceso de Raschig o se obtiene de ketazina, (ii) un método de hacer reaccionar 2 moles de urea con hidrazina que se obtiene de urea (Proceso de Urea), (iii) un método de hacer reaccionar 1 mol de urea con semicarbazida que se produce haciendo reaccionar hipoclorito sódico, urea y amoniac, y (iv) un método de usar biuret como material de partida. Sin embargo, los métodos (i) y (iii) que usan hidrazina o semicarbazida y el método (ii) tienen desventajas tales como un proceso de reacción complicado, un bajo rendimiento, un alto coste en materia prima, y un tiempo de reacción largo. Además, los métodos descritos anteriormente no son deseables desde el punto de vista medioambiental, dadas las grandes cantidades de materias primas que se requieren para producir HDCA.

20 Para superar estas desventajas, los inventores de la presente invención han propuesto un método para sintetizar HDCA usando biuret como material de partida (véase el documento WO 0149652 y el método se muestra en la siguiente Ecuación de reacción 2.

[Ecuación de reacción 2]

25 En la que, M es un metal y X es un halógeno. Como se muestra en la ecuación de reacción 2, el documento WO 0149652 describe el método para preparar HDCA que comprende las etapas de (i) hacer reaccionar a biuret con un hipohalógeno o halógeno metálico/una base para obtener una sal metálica de monohalobiuret, y (ii) hacer reaccionar a la sal metálica de monohalobiuret obtenida con amoniac para producir HDCA. Sin embargo, para producir HDCA con un rendimiento preferible desde el punto de vista industrial con el método descrito anteriormente, un catalizador de compuesto metálico tal como sulfatos, cloruros, carbonatos o hidróxidos de metal anfótero o metal alcalino, o un catalizador de ácido inorgánico tal como ácido clorhídrico, ácido sulfúrico o ácido nítrico son necesarios en la cantidad de más de 0,05 moles con respecto a 1 mol de monohalobiuret. Por lo tanto, este método tiene desventajas en que requiere un alto coste en catalizador y el coste del post-tratamiento de la HDCA producida debido a la gran cantidad de catalizador residual, y el método tampoco es deseable desde el punto de vista medioambiental. Además, la velocidad y el rendimiento de la reacción no son suficientemente altos ni siquiera cuando se usan estos catalizadores.

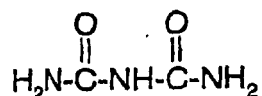
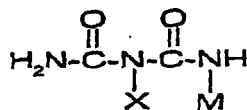
SUMARIO DE LA INVENCION

Es un objeto de la presente invención proporcionar el método para preparar hidrazodicarbonamida preferible en los aspectos económico y medioambiental.

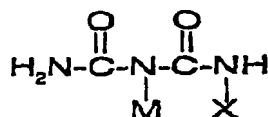
5 Es otro objeto de la presente invención proporcionar el método para preparar hidrazodicarbonamida, que pueda reducir el tiempo de reacción y aumentar el rendimiento de la reacción.

Es otro objeto de la presente invención proporcionar el método para preparar hidrazodicarbonamida, que pueda reducir las cantidades de materia prima tal como amoniaco y de catalizador.

10 Para conseguir estos objetos, la presente invención proporciona un método para preparar hidrazodicarbonamida, como se define en la reivindicación 1, en presencia de un catalizador que incluye un átomo de bromo o de yodo y generando un ión bromo o yodo durante la reacción,

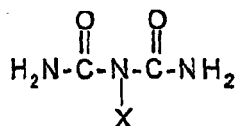
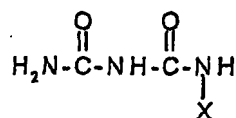
[Fórmula 1]**[Fórmula 2]**

15 **[Fórmula 3]**

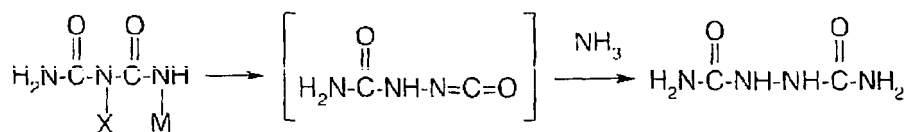


Preferentemente, la sal metálica de monoclorobiuret se produce haciendo reaccionar al biuret que tiene la fórmula 1 con un agente clorante para obtener un monoclorobiuret que tiene la fórmula 4 ó 5, y a continuación haciendo reaccionar al monoclorobiuret obtenido con una base.

20 **[Fórmula 4]**

**[Fórmula 5]**

[Reacción 8]

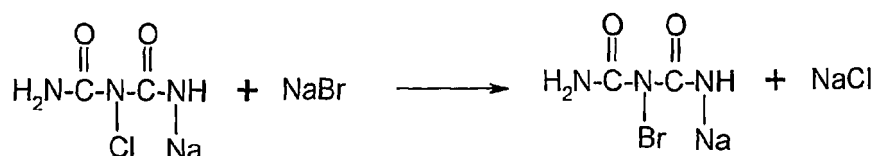


En referencia a la anterior Ecuación de reacción 7, mediante la reacción inter-molecular de un átomo de nitrógeno aniónico en sal metálica de monohalobiuret, un compuesto de halógeno metálico (MX) se elimina de la sal metálica de monohalobiuret, y se forma un enlace N-N para producir un derivado de diaziridinona inestable 9. El derivado de diaziridinona producido reacciona inmediatamente con amoniaco altamente reactivo para dar HDCA. En referencia a la anterior Ecuación de reacción 8, la sal metálica de monohalobiuret se convierte en un compuesto de isocianato, y el compuesto de isocianato convertido puede reaccionar con amoniaco altamente reactivo para producir HDCA.

De acuerdo con la presente invención, la HDCA se produce en presencia de un catalizador que incluye un átomo de bromo o de yodo y generando un ión bromo o yodo durante la reacción. Los ejemplos del catalizador incluyen un agente bromante o agente yodante tal como bromuro metálico o yoduro metálico (por ejemplo, NaBr, KBr, KI, CuBr₂, CuI), haluro de hidrógeno (por ejemplo, HBr, HI), un compuesto que genera un ión halógeno (por ejemplo, Br₂, I₂, PBr₃), y un compuesto orgánico halogenado (por ejemplo, N-bromosuccinimida: NBS). La cantidad preferible del catalizador es de 0,001 a 1 mol, y más preferentemente de 0,002 a 0,5 moles con respecto a 1 mol del monohalobiuret y/o la sal metálica de monohalobiuret. Si la cantidad del catalizador es menor de 0,001 moles, el rendimiento de la reacción y la velocidad de la reacción pueden disminuir, y si la cantidad del catalizador es mayor de 1 mol, no hay efectos preferibles adicionales y simplemente es desfavorable en el aspecto económico.

Usando el catalizador, el rendimiento de la reacción y la velocidad de la reacción pueden mejorarse y la cantidad requerida de amoniaco puede reducirse. Esto parece indicar que el catalizador acelera la formación de derivado de diaziridinona o la reacción de reordenamiento de Hoffmann. Como ejemplo específico, si se produce sal sódica de monoclorobiuret haciendo reaccionar hipoclorito sódico (NaOCl) y biuret, el ión cloro de la sal sódica de monoclorobiuret puede sustituirse por el ión bromo o yodo del catalizador para dar sal sódica de monobromobiuret o sal sódica de monoyodobiuret que es un intermedio más reactivo. Esta reacción se muestra en las siguientes ecuaciones de reacción 9 y 10.

[Ecuación de reacción 9]



[Ecuación de reacción 10]



Estos catalizadores no solamente aumentan el rendimiento de sal metálica de monohalobiuret inhibiendo reacciones secundarias, sino que también contribuyen significativamente a mejorar el rendimiento, a reducir el tiempo de reacción y a reducir la cantidad requerida de amoniaco acelerando la reacción de monohalobiuret y amoniaco. El catalizador puede añadirse para la reacción, antes, durante o después de la reacción de biuret con el compuesto hipohalógeno metálico o con un agente halogenante y una base, y más preferentemente añadirse para la reacción antes de la reacción de biuret con el compuesto hipohalógeno metálico o con un agente halogenante y una base.

Considerando la velocidad de la reacción y la eficacia de la reacción de la sal metálica de monohalobiuret y amoniaco, la temperatura de reacción preferible está en el intervalo de 0°C a 150°C, más preferentemente de 30°C a 150°C. Si la temperatura de reacción es menor de 0°C, ésta no es económica debido a una velocidad de reacción muy baja, y si la temperatura es superior a 150°C, se requiere un equipo costoso para soportar el aumento de la presión interna debido a la evaporación de amoniaco. El amoniaco puede usarse en forma de amoniaco gaseoso,

5 amoníaco líquido o hidrato de amonio. El amoníaco puede usarse en una cantidad en exceso para aumentar la velocidad de la reacción. Específicamente, la cantidad preferible de amoníaco es de 1 a 1000 moles, más preferentemente de 2 a 500 moles, y de la forma más preferente de 5 a 100 moles con respecto a 1 mol de sal metálica de monohalobiuret. El exceso de amoníaco que no reacciona con la sal metálica de monohalobiuret puede recuperarse y reutilizarse. Si se usa un exceso de amoníaco y la temperatura de reacción es alta, la reacción puede realizarse a presión para aumentar la velocidad y la eficacia de la reacción impidiendo la evaporación de amoníaco, y el intervalo preferible de la presión está entre 1 y 100 kgf/cm².

10 Como disolvente para biuret o el sistema de reacción, puede usarse agua. Como alternativa, un disolvente orgánico hidrófobo (el segundo disolvente) puede usarse como disolvente para la reacción, y una mezcla de disolvente orgánico hidrófobo y agua también puede usarse como disolvente. Los ejemplos del disolvente orgánico hidrófobo incluyen hidrocarburo clorado tal como cloruro de metilo, hidrocarburo alifático tal como hexano, hidrocarburo aromático tal como tolueno y benceno, acetato tal como acetato de etilo, y éter. Si el disolvente orgánico hidrófobo se usa junto con agua, el monohalobiuret producido mediante la reacción de biuret y un agente halogenante se disuelve en el disolvente orgánico hidrófobo. En este caso, el segundo disolvente puede separarse del agua mediante separación de fases para la posterior reacción con la base y/o amoníaco. Este proceso impide además reacciones secundarias, aumenta el rendimiento de HDCA y reduce la cantidad de agua residual.

15 Más de uno del disolvente orgánico hidrófobo puede mezclarse con agua, y la cantidad del disolvente orgánico hidrófobo no está limitada, sino que es preferentemente de 0,1 a 50 veces, y más preferentemente de 0,2 a 3,0 veces el peso de agua. El disolvente orgánico puede añadirse al comienzo de la reacción como disolvente para biuret, o añadirse después de que se haya sintetizado el monohalobiuret.

20 En lo sucesivo en este documento, se proporcionan ejemplos preferibles y ejemplos de fabricación para una mejor comprensión de la presente invención. Sin embargo, la presente invención no debe restringirse a los siguientes Ejemplos. Todos los siguientes ejemplos y ejemplos de fabricación se realizan mediante un proceso discontinuo, pero también puede emplearse un proceso continuo.

25 **[Ejemplo de fabricación 1]** Síntesis de sal sódica de clorobiuret

423,1 g (0,287 moles) de solución de suspensión de biuret al 7% se añadieron a un reactor de vidrio de 2 l, y la temperatura del sistema de reacción se mantuvo a 5°C o menos. 0,3 g (0,0029 moles) de NaBr como catalizador se añadieron al reactor, se añadieron 170 g (0,287 moles) de una solución acuosa al 12% de hipoclorito sódico, y la temperatura del sistema de reacción se mantuvo a 5°C o menos. Una vez completada la adición, la solución de reacción se analizó mediante yodometría y cromatografía de líquidos. El cloro disponible de la solución de reacción era el 3,40% y el rendimiento era del 99%.

30 **[Ejemplo de fabricación 2]** Síntesis de sal sódica de clorobiuret

423,1 g (0,287 moles) de una solución de suspensión de biuret al 7% se añadieron a un reactor de vidrio de 2 l, y la temperatura del sistema de reacción se mantuvo a 5°C o menos. 0,3 g (0,0029 moles) de NaBr como catalizador se añadieron al reactor, se añadieron 223 g (0,575 moles) de una solución acuosa al 10,3% de hidróxido sódico, y se añadieron 20,3 g (0,287 moles) de cloro gaseoso mientras se mantenía la temperatura del sistema de reacción a 10°C o menos. Una vez completada la adición, la solución de reacción se analizó mediante yodometría y cromatografía de líquidos. El cloro disponible de la solución de reacción era el 3,01% y el rendimiento era del 99%.

35 **[Ejemplo de fabricación 3]** Síntesis de sal sódica de clorobiuret

423,1 g (0,287 moles) de una solución de suspensión de biuret al 7% se añadieron a un reactor de vidrio de 2 l, y la temperatura del sistema de reacción se mantuvo a 5°C o menos. 0,3 g (0,0029 moles) de NaBr como catalizador se añadieron al reactor, se añadieron 20,3 g (0,287 moles) de cloro gaseoso mientras se mantenía la temperatura del sistema de reacción a 10°C o menos. Después de la adición del cloro gaseoso, se añadieron 223 g (0,575 moles) de una solución acuosa al 10,3% de hidróxido sódico mientras reagitaba vigorosamente, y la temperatura de reacción se mantuvo a 5°C o menos. Una vez completada la adición, la solución de reacción se analizó mediante yodometría y cromatografía de líquidos. El cloro disponible de la solución de reacción era el 3,01% y el rendimiento era del 99%.

40 **[Ejemplos 1-9]** Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

593,1 g de la sal sódica de clorobiuret preparada de acuerdo con el ejemplo de fabricación 1 se añadieron a un autoclave de 2 l, y se enfriaron a 10°C mientras se agitaba. Después de añadir 600 g (8,8 moles) de solución acuosa de amoníaco al 25% mientras se mantenía la temperatura de la solución de reacción a 10°C o menos, las reacciones se realizaron modificando las temperaturas del reactor y los tiempos de reacción mientras se agitaba vigorosamente la solución de reacción. Una vez completada la reacción, el amoníaco que no reaccionó se retiró y la solución de reacción se filtró. El rendimiento de HDCA insoluble en agua se calculó y se muestra en la siguiente Tabla 1.

[Tabla 1]

Ejemplo	Condiciones de la reacción (temperatura, tiempo)	Rendimiento (%)
1	30°C, 1 hora	91
2	30°C, 2 horas	98
3	30°C, 3 horas	98
4	60°C, 30 minutos	98
5	60°C, 1 hora	97
6	60°C, 2 horas	97
7	90°C, 30 minutos	95
8	90°C, 1 hora	94
9	90°C, 2 horas	94

[Ejemplos 10-16] Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

5 Excepto que 0,0029 moles de cada uno de los catalizadores mostrados en la siguiente Tabla 2 se usaron en lugar de NaBr, las reacciones se realizaron de acuerdo con el mismo método del Ejemplo 4. Una vez completada la reacción, el amoniaco que no reaccionó se retiró y la solución de reacción se filtró. El rendimiento de HDCA insoluble en agua se calculó y se muestra en la siguiente Tabla 2.

[Tabla 2]

Ejemplo	El catalizador usado	Rendimiento (%)
10	KBr	95
11	KI	94
12	N-bromosuccinimida (NBS)	95
13	HBr	97
14	PBr ₃	97
15	ZnBr ₂	97
16	CuBr ₂	95

[Ejemplos 17-25] Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

10 666,7 g de la sal sódica de clorobiuret preparada de acuerdo con el ejemplo de fabricación 2 se añadieron a un autoclave de 2 l, y se enfriaron a 10°C mientras se agitaba. Después de añadir 600 g (8,8 moles) de solución acuosa de amoniaco al 25% mientras se mantenía la temperatura de la solución de reacción a 10°C o menos, las reacciones se realizaron modificando las temperaturas del reactor y los tiempos de reacción mientras se agitaba vigorosamente la solución de reacción. Una vez completada la reacción, el amoniaco que no reaccionó se retiró y la solución de
15 reacción se filtró. El rendimiento de HDCA insoluble en agua se calculó y se muestra en la siguiente Tabla 3.

[Tabla 3]

Ejemplo	Condiciones de la reacción (temperatura, tiempo)	Rendimiento (%)
17	30°C, 1 hora	89
18	30°C, 2 horas	95
19	30°C, 3 horas	95
20	60°C, 30 minutos	96

21	60°C, 1 hora	97
22	60°C, 2 horas	97
23	90°C, 30 minutos	94
24	90°C, 1 hora	93
25	90°C, 2 horas	92

[Ejemplos 26-32] Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

5 Excepto que 0,0029 moles de cada uno de los catalizadores mostrados en la siguiente Tabla 4 se usaron en lugar de NaBr, las reacciones se realizaron de acuerdo con el mismo método del Ejemplo 20. Una vez completada la reacción, el amoniaco que no reaccionó se retiró y la solución de reacción se filtró. El rendimiento de HDCA insoluble en agua se calculó y se muestra en la siguiente Tabla 4.

[Tabla 4]

Ejemplo	El catalizador usado	Rendimiento (%)
26	KBr	93
27	KI	94
28	N-bromosuccinimida (NBS)	94
29	HBr	96
30	PBr ₃	97
31	ZnBr ₂	95
32	CuBr ₂	95

[Ejemplos 33-41] Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

10 666,7 g de la sal sódica de clorobiuret preparada de acuerdo con el ejemplo de fabricación 3 se añadieron a un autoclave de 2 l, y se enfriaron a 10°C mientras se agitaba. Después de añadir 600 g (8,8 moles) de solución acuosa de amoniaco al 25% mientras se mantenía la temperatura de la solución de reacción a 10°C o menos, las reacciones se realizaron modificando las temperaturas del reactor y los tiempos de reacción mientras se agitaban vigorosamente las soluciones de reacción. Una vez completadas las reacciones, el amoniaco que no reaccionó se retiró y las soluciones de reacción se filtraron. Los rendimientos de HDCA insoluble en agua se calcularon y se muestran en la siguiente Tabla 5.

15

[Tabla 5]

Ejemplo	Condiciones de la reacción (temperatura, tiempo)	Rendimiento (%)
33	30°C, 1 hora	88
34	30°C, 2 horas	95
35	30°C, 3 horas	96
36	60°C, 30 minutos	96
37	60°C, 1 hora	95
38	60°C, 2 horas	96
39	90°C, 30 minutos	95
40	90°C, 1 hora	93

41	90°C, 2 horas	92
----	---------------	----

[Ejemplos 42-48] Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

5 Excepto que 0,0029 moles de cada uno de los catalizadores mostrados en la siguiente Tabla 6 se usaron en lugar de NaBr, las reacciones se realizaron de acuerdo con el mismo método del Ejemplo 36. Una vez completadas las reacciones, el amoníaco que no reaccionó se retiró y las soluciones de reacción se filtraron. Los rendimientos de HDCA insoluble en agua se calcularon y se muestran en la siguiente Tabla 6.

[Tabla 6]

Ejemplo	El catalizador usado	Rendimiento (%)
42	KBr	94
43	KI	94
44	N-bromosuccinimida (NBS)	95
45	HBr	95
46	PBr ₃	96
47	ZnBr ₂	96
48	CuBr ₂	95

[Ejemplos 49-53] Síntesis de hidrazodicarbonamida (HDCA)

10 593,1 g de la sal sódica de clorobiuret preparada de acuerdo con el ejemplo de fabricación 1 se añadieron a un autoclave de 2 l, y se enfriaron a 10°C mientras se agitaba. Después de añadir solución acuosa de amoníaco al 25% mientras se modificaban las cantidades de la misma como se muestra en la siguiente Tabla 7 y manteniendo la temperatura de la solución de reacción a 10°C o menos, las reacciones se realizaron a 60°C durante 30 minutos mientras se agitaban vigorosamente las soluciones de reacción. Una vez completadas las reacciones, el amoníaco que no reaccionó se retiró y las soluciones de reacción se filtraron. Los rendimientos de HDCA insoluble en agua se mostraron en la siguiente Tabla 7.

15

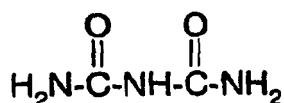
[Tabla 7]

Ejemplo	La cantidad de amoníaco usada, amoníaco/sal sódica de clorobiuret (proporción molar)	Rendimiento (%)
49	15	88
50	20	97
51	30	98
52	60	95
53	90	94

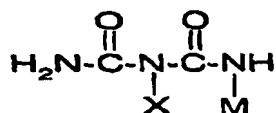
REIVINDICACIONES

1. Un método para preparar hidrazodicarbonamida que comprende las etapas de;
- 5 obtener una sal metálica de monoclorobiuret que tiene la fórmula 2 ó 3 haciendo reaccionar a un biuret que tiene la fórmula 1 con un hipoclorito metálico, o haciendo reaccionar al biuret que tiene la fórmula 1 con un agente clorante y una base; y
- hacer reaccionar a la sal metálica de monoclorobiuret obtenida con amoníaco,
- en el que la hidrazodicarbonamida se produce en presencia de un catalizador que incluye un átomo de bromo o de yodo y generando un ión bromo o yodo durante la reacción.

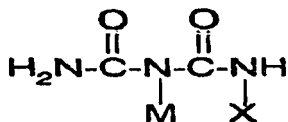
10 **[Fórmula 1]**



[Fórmula 2]



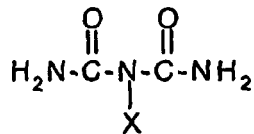
[Fórmula 3]



- 15 En las anteriores fórmulas 2 y 3, M es un metal, y X es cloro (Cl).
2. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el catalizador se selecciona entre el grupo constituido por bromuro metálico, yoduro metálico, compuesto orgánico bromado, compuesto orgánico yodado y sus mezclas.
- 20 3. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el catalizador se selecciona entre el grupo constituido por NaBr, KBr, KI, CuBr₂, CuI, HBr, HI, PBr₃, Br₂, I₂, N-bromosuccinimida y sus mezclas.
4. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el catalizador se añade para la reacción, antes, durante o después de la reacción de biuret con el compuesto hipoclorito metálico o con un agente clorante y una base
- 25 5. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que la cantidad del catalizador es de 0,001 a 1 mol con respecto a 1 mol de monoclorobiuret y/o la sal metálica de monoclorobiuret.
6. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que los procesos de obtención de la sal metálica de monoclorobiuret y la hidrazodicarbonamida se realizan mediante un proceso discontinuo o un proceso continuo.
7. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el disolvente de reacción para preparar hidrazodicarbonamida a partir de biuret es una mezcla de agua y un disolvente orgánico hidrófobo.
- 30 8. El método de acuerdo con la reivindicación 7, en el que el disolvente orgánico hidrófobo se selecciona entre el grupo constituido por un hidrocarburo clorado, hidrocarburo alifático, hidrocarburo aromático, acetato, éter y sus mezclas.

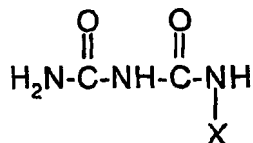
9. El método de acuerdo con la reivindicación 7, en el que la sal metálica de monoclorobiuret se produce haciendo reaccionar al biuret que tiene la fórmula 1 con un agente clorante para obtener un monoclorobiuret que tiene la fórmula 4 ó 5, y haciendo reaccionar al monoclorobiuret obtenido con una base.

[Fórmula 4]



5

[Fórmula 5]



en las anteriores fórmulas 4 y 5, X es cloro (Cl).

10. El método de acuerdo con la reivindicación 9, en el que la reacción del monoclorobiuret y una base se realiza en el disolvente orgánico hidrófobo separado del agua.

10

REFERENCIAS CITADAS EN LA DESCRIPCIÓN

Esta lista de referencias citadas por el solicitante únicamente es para comodidad del lector. Dicha lista no forma parte del documento de patente Europea. Aunque se ha tenido gran cuidado en la recopilación de las referencias, no se pueden excluir errores u omisiones y la EPO rechaza toda responsabilidad a este respecto.

Documentos de patentes citados en la descripción

- WO 0149652 A [0001] [0004]