



FEDERÁLNÍ ÚŘAD  
PRO VYNÁLEZY

# POPIS VYNÁLEZU K AUTORSKÉMU OSVĚDČENÍ

(21) PV 4168-85  
(22) Přihlášeno 11 06 85

(40) Zveřejněno 15 02 88  
(45) Vydáno 04.10.90.  
(89) 1119310, 15 02 83, SU

(11) 266472

(13) B1

(51) Int. Cl.<sup>4</sup>

C 07 C 127/19

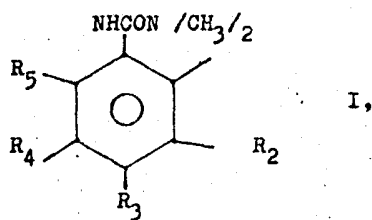
(75)  
Autor vynálezu

ŠAMSUTDINOV TALGAT MAVLJUTOVIČ,  
POLUEKTOVA ZOJA MAXIMOVNA,  
VALITOV RAIL BAKIROVIČ,  
SKLJAR SEMEN JAKOVLEVIČ,  
SIMONOV VADIM DMITRIJEVIČ,  
STARKOV ANATOLIJ VASILJEV, UFA, (SU)

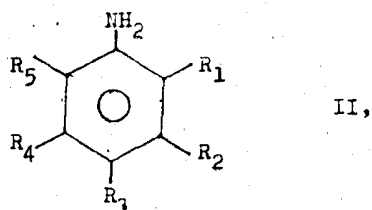
(54)

Způsob výroby N-arylderivátů N', N'-dimethylmočoviny

(57) Způsob výroby N-arylderivátů N',  
N'-dimethylmočoviny obecného vzorce I



kde  $R_1, R_2, R_3 = H, CH_3, C_2H_5$ ;  $R_4 = H, Cl, CF_3$ ;  
 $R_5 = H, Cl, OCH_3, CH_3$  spočívá ve vzá-  
jemném působení dimethylaminu se sulfi-  
dem karbonylu při jejich molovém poměru  
2,75 až 4:1 a teplotě 5 až 20 °C v tet-  
rachlorethylenu s následujícím zpracová-  
ním produktu reakce derivátem anilinu  
obecného vzorce II



kde  $R_1 - R_5$  má výše uvedené významy.

# ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К АВТОРСКОМУ СВИДЕТЕЛЬСТВУ

Заявлено: 15.02.83

Заявка: № 3552426/23-04

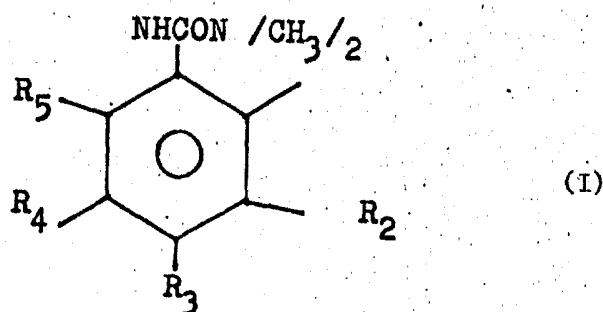
МКИ<sup>3</sup>: С 07 С 127/19; С 07 С 127/15

Авторы: Т.М.Шамсутдинов, З.М.Полуэктова, Р.Б.Валитов, С.Я.Скляр, В.Д.Симонов  
А.В.Старков

Заявитель: п/я В-8771

Название изобретения: СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ N-АРИЛПРОИЗВОДНЫХ N',N'-ДИМЕТИЛМОЧЕВИНЫ

Изобретение относится к усовершенствованному способу получения N-арил-производных N',N'-диметилмочевины общей формулы



Где,  $R_1, R_4, R_5 = H, CH_3, C_2H_5$ ;  $R_2 = H, Cl, CF_3$ ;  $R_3 = H, Cl, OCH_3, CH_3$ .

Соединения формулы (I) применяются в сельском хозяйстве как гербициды для борьбы с сорняками.

Известен способ получения соединения формулы I

( $R_1 \neq R_2 = R_5 = H, R_3 = OCH_3, R_4 = Cl, Br$ )

взаимодействием эквимольных количеств диметиламина и 3-хлор-(или -бром)-4-метоксифенилизотиоцианатов в водном растворе при 5-10°C (СН, А, 466943).

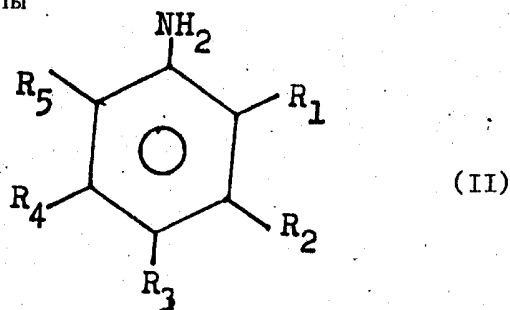
Способ обеспечивает высокие выходы целевых продуктов (90-95%).

Способ характеризуется использованием дорогих и труднодоступных изотиоцианатов, в процессе синтеза которых используется высокотоксичный фосген.

Наиболее близким к настоящему по технической сущности и достигаемому результату является способ получения соединений формулы I взаимодействием сероокиси углерода с диметиламином в толуоле при соотношении названных реагентов 1:1:7 и комнатной температуре с последующей обработкой эквиполярным по отношению к сероокиси углерода количеством соответствующего замещенного анилина при температуре 80-98°C (US, A, 2655534). Приведенный в (2) экспериментальный пример процесса с участием в качестве замещенного анилина, *p*-хлоранилина показывает, что соединение I ( $R_1 = R_2 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_3 = Cl$ ) получается с выходом 72,5%. Способ характеризуется низким выходом целевого продукта.

Целью изобретения является повышение выхода целевого продукта.

Поставленная цель достигается способом получения *N*-арилпроизводных *N,N'*-диметилмочевины формулы I, где  $R_1, R_4, R_5 = H, CH_3, C_2H_5$ ;  $R_2 = H, Cl, CF_3$ ;  $R_3 = H, Cl, OCH_3, CH_3$ , путем взаимодействия диметиламина с сероокисью углерода в среде тетрахлорэтилена при температуре 5-20°C и мольном соотношении диметиламина и сероокиси углерода 2,75 - 4 : 1 с последующей обработкой производным анилина формулы



где  $R_1 - R_5$  имеют вышеуказанные значения, при температуре 90-92°C.

Отличительными признаками изобретения являются температура взаимодействия диметиламина с сероокисью углерода 5 - 20°C, мольное соотношение диметиламина к сероокиси углерода 2,75-4:1, использование в качестве органического растворителя тетрахлорэтилена.

Использование избытка диметиламина по отношению к сероокиси углерода свыше 4:1 нецелесообразно, так как приводит к неоправданно большому расходу амина. Проведение реакции при температурах ниже 5°C нецелесообразно, так как приводит к усложнению технологии процесса в связи с необходимостью поддержания низкой температуры.

Изобретение иллюстрируется примерами 1-14.

Сравнительный пример 15 показывает нецелесообразность приведения процесса при соотношении диметиламина к сероокиси углерода менее 2,7-1. Сравнительный пример 16 показывает нецелесообразность проведения процесса при температурах выше 20°C.

#### Пример 1.

В колбу, содержащую 100 мл тетрахлорэтилена, при температуре 10-15°C пропускают в течение 1,5 часа 8,4 г (0,14 моля) сероокиси углерода и 25,4 (0,56 молей) диметиламина, мольное соотношение 1:4. Затем добавляют 20 г (0,127 моля) II ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = Cl$ ,  $R_3 = OCH_3$ ) поднимают температуру до 92°C и выдерживают в течение 12 ч. Отгоняют избыток диметиламина, разбавляют остаток горячей водой, охлаждают до комнатной температуры, выпавший осадок отфильтровывают, промывают холодной водой и сушат. Получают 28,5 г ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = Cl$ ,  $R_3 = OCH_3$ ). Температура плавления 126-127°C. Выход 98,2%, содержание основного вещества 99,85%.

## Пример 2.

Процесс ведут как в примере 1, но количество диметиламина составляет 18,86 г (0,42 моля), соотношение диметиламина и сероокиси углерода 3:1. Получают 28,3 г ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = Cl$ ,  $R_3 = OCH_3$ ) выход 97,5%.

## Пример 3.

Процесс ведут как в примере 1, но количество сероокиси углерода составляет 13,44 г (0,22 моля), диметиламина 40,32 г (0,89 молей), в качестве производного анилина используют II ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = R_3 = Cl$ ) в количестве 33 г (0,2 моля). Получают 46,5 г (97,9%) I ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = R_3 = Cl$ ), температура плавления 158-9°C, содержание основного вещества 99,5%.

## Пример 4.

Процесс ведут как в примере 1, но количество сероокиси углерода составляет 15,53 г (0,25 молей) диметиламина 34,9 г (0,77 молей), молярное соотношение диметиламина к сероокиси углерода 3,1:1. В качестве производного анилина используют II ( $R_1 = R_2 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_3 = Cl$ ) в количестве 30 г (0,23 моля). Получают 45,8 г (98,2%) I ( $R_1 = R_2 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_3 = Cl$ ) температура плавления 174-5°C, содержание основного вещества 99,6%.

## Пример 5.

В колбу по 100 мл тетрахлорэтилена при температуре 10-15°C пропускают 14,19 г (0,22 моля) сероокиси углерода и 31,9 г (0,7 моля) диметиламина, соотношение диметиламина к сероокиси углерода 3,2:1. Затем добавляют 20 г (0,2 моля) производного анилина II ( $R_1 = R_5 = H$ ). Температуру поднимают до 90°C, смесь перемешивают в течение 2 часов, обрабатывают как в примере 1. Получают 34,2 г (97%) I ( $R_1 = R_5 = H$ ) температура плавления 135-6°C, содержание основного вещества 99,7%.

## Пример 6.

Процесс ведут как в примере 1, но температура первой стадии составляет 15°C, количество сероокиси углерода (15,53) (0,25 моля), диметиламина 39,7 г (0,875 моля) соотношение диметиламина к сероокиси углерода 3,5 : 1, в качестве производного анилина используют 36,7 г (0,228 молей) II ( $R_1 = R_3 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = CF_3$ ). Получают 52,4 г (98,4%) I ( $R_1 = R_3 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = CF_3$ ), температура плавления 163-4°C, содержание основного вещества 99,3%.

## Пример 7.

Процесс ведут как в примере 1, но температура первой стадии 10°C, количество сероокиси углерода 12,3 г (0,2 моля), диметиламина 27 г (0,6 моля), а в качестве производного анилина используют II ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = Cl$ ,  $R_3 = CF_3$ ) в количестве 25,47 г (0,18 моля). Получают 37,52 г (98,1%) I ( $R_1 = R_4 = R_5 = H$ ,  $R_2 = Cl$ ,  $R_3 = CH_3$ ), температура плавления 147-8°C, содержание основного вещества 98,9%.

## Пример 8.

Процесс ведут как в примере 1, но температура первой стадии 20°C, количество сероокиси углерода 13,2 г (0,22 моля) диметиламина 27 г (0,6 моля), соотношение диметиламина к сероокиси 2,75:1, в качестве производного анилина используют II ( $R_1 = R_5 = C_2H_5$ ,  $R_2 = R_4 = H$ ) в количестве 30 г (0,2 моля). Получают 43,34 г (98,5%) I ( $R_1 = R_5 = C_2H_5$ ,  $R_2 = R_4 = H$ ), температура плавления 184-5°C содержание основного вещества 99,4%.

## Пример 9.

Процесс ведут, как в примерах 1, 6, но количество сероокиси углерода 13,2 г (0,22 моля), диметиламина 31,5 г (0,7 моля), соотношение диметиламина к сероокиси углерода 3,2 : 1, в качестве производного анилина используют II ( $R_1 = CH_3$ ,  $R_5 = C_2H_5$ ,  $R_2 = R_4 = H$ ) в количестве 27,2 г (0,2 моля). Получают 40,5 г (98,4%) I ( $R_1 = CH_3$ ,  $R_5 = C_2H_5$ ,  $R_2 = R_4 = H$ ), температура плавления 147-8°C, содержание основного вещества 99,4%.

## Пример 10.

Процесс ведут, как в примерах 1, 9, но температура первой стадии  $10^{\circ}\text{C}$ , в качестве производного анилина используют 24,4 г (0,2 моля) II ( $R_1 = R_2 = \text{CH}_3$ ,  $R_3 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ). Получают 37,78 (98,4%) I ( $R_1 = R_3 = \text{CH}_3$ ,  $R_2 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ), температура плавления  $135-6^{\circ}\text{C}$ , содержание основного вещества 99,5%.

## Пример 11.

Процесс ведут, как в примерах 1, 9, но температура первой стадии  $20^{\circ}\text{C}$  в качестве производного анилина используют 24,4 г (0,2 моля) II ( $R_1 = R_4 = \text{CH}_3$ ,  $R_2 = R_3 = R_5 = \text{H}$ ). Получают 37,8 г (98,5%) I ( $R_1 = R_4 = \text{CH}_3$ ,  $R_2 = R_3 = R_5 = \text{H}$ ), температура плавления  $138-9^{\circ}\text{C}$ , содержание основного вещества 99,3%.

## Пример 12.

Процесс ведут, как в примерах 1, 9, но температура первой стадии  $15^{\circ}\text{C}$ , в качестве производного анилина используют 20,8 г (0,2 моля) II ( $R_2 = \text{CH}_3$ ,  $R_1 = R_3 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ). Получают г (98,4%) I ( $R_2 = \text{CH}_3$ ,  $R_1 = R_3 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ), температура плавления  $144-5^{\circ}\text{C}$ , содержание основного вещества 99,4%.

## Пример 13.

Процесс ведут, как в примере 1, но температура первой стадии (взаимодействия сероокиси углерода с диметиламином)  $5^{\circ}\text{C}$ . Выход I ( $R_1 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ,  $R_2 = \text{Cl}$ ,  $R_3 = \text{OCH}_3$ ) 98,1%, содержание основного вещества 99,8%.

## Пример 14.

Процесс ведут, как в примере 1, но температура первой стадии  $20^{\circ}\text{C}$ . Выход I ( $R_1 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ,  $R_2 = \text{Cl}$ ,  $R_3 = \text{OCH}_3$ ) 98,04%, содержание основного вещества 98,8%.

## Пример 15 (сравнительный).

Процесс ведут, как в примере 1, но количество диметиламина 12,5 г (0,27 моля), соотношение диметиламина и сероокиси углерода 1,9 : 1. Выход I ( $R_1 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ,  $R_2 = \text{Cl}$ ,  $R_3 = \text{OCH}_3$ ), 88,9%, температура плавления  $121-4^{\circ}\text{C}$ , содержание основного вещества 92,7%.

Сравнение результатов с полученными в примере 1 показывает, что уменьшение соотношения диметиламина и сероокиси углерода вызывает падение выхода и чистоты целевого продукта.

## Пример 16 (сравнительный).

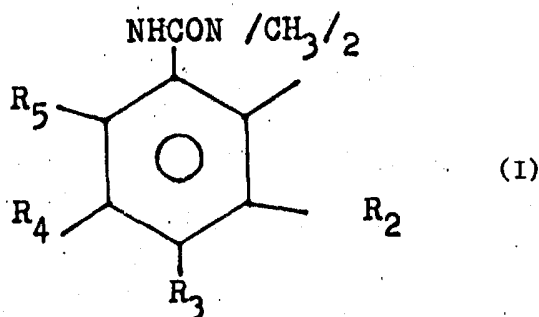
Процесс ведут, как в примере 4, но температура первой стадии  $25^{\circ}\text{C}$ . Выход I ( $R_1 = R_2 = R_4 = R_5 = \text{H}$ ,  $R_3 = \text{Cl}$ ) 90,0%, содержание основного вещества 90,8%.

Сравнение результатов с полученными в примере 4 показывает, что увеличение температуры взаимодействия диметиламина с сероокисью углерода приводит к понижению выхода и чистоты целевого продукта.

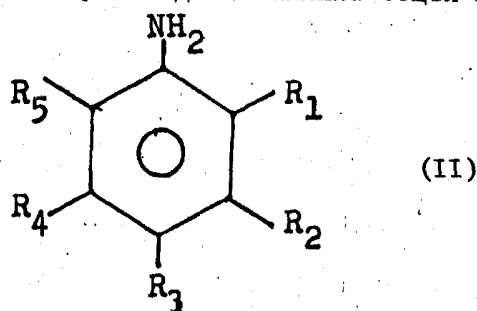
Примеры 1-14 показывают, что способ получения соединений I в соответствии с изобретением позволяет повысить выход целевых продуктов и обеспечивает их высокую чистоту.

## ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

Способ получения N-арилпроизводных N',N'-диметилмочевины общей формулы:



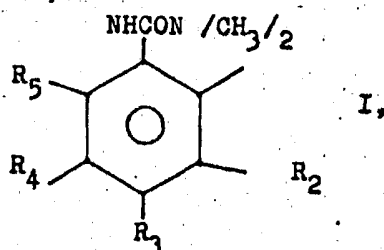
где  $R_1, R_4, R_5 = H, CH_3, C_2H_5$ ;  $R_2 = H, Cl, CF_3$ ;  $R_3 = H, Cl, OCH_3, CH_3$  взаимодействием диметиламина с сероокисью углерода в органическом растворителе с последующей обработкой производным анилина общей формулы:



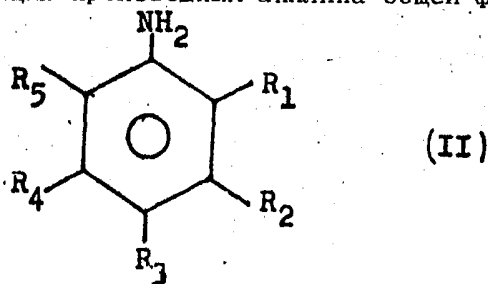
где  $R_1 - R_5$  имеют вышеуказанные значения, при температуре  $90-92^\circ C$ , отличающийся тем, что, с целью повышения выхода целевого продукта, взаимодействие диметиламина с сероокисью углерода проводят при температуре  $5-20^\circ C$  и мольном соотношении диметиламина и сероокиси углерода  $2,75-4:1$ , а в качестве органического растворителя используют тетрахлорэтилен.

#### РЕФЕРАТ

Способ получения N-арилпроизводных N',N'-диметилмочевины общей формулы:



где  $R_1, R_4, R_5 = H, CH_3, C_2H_5$ ;  $R_2 = H, Cl, CF_3$ ;  $R_3 = H, Cl, OCH_3, CH_3$  заключается во взаимодействии диметиламина с сероокисью углерода при их мольном соотношении  $2,75-4:1$  и температуре  $5-20^\circ C$  в тетрахлорэтилене с последующей обработкой продукта реакции производным анилина общей формулы:

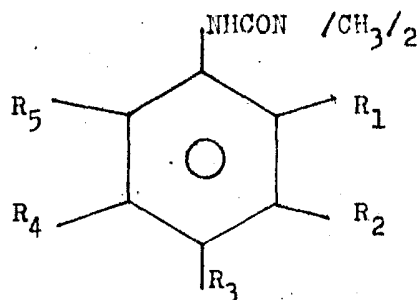


где  $R_1 - R_5$  имеют вышеуказанные значения.

Признано изобретением по результатам экспертизы, осуществленной Государственным Комитетом СССР по делам изобретений и открытий.

## PŘEDMĚT VYNÁLEZU

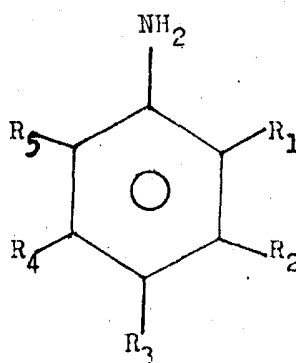
Způsob výroby N-arylderivátů N', N' - dimethylmočoviny  
obecného vzorce I



/I/

kde  $R_1, R_4, R_5 = H, CH_3, C_2H_5$ ;  $R_2 = H, Cl, CF_3$ ;  
 $R_3 = H, Cl, OCH_3, CH_3$

reakcí dimethylaminu se sulfidem karbonylu v organickém  
rozpouštědle a následujícím zpracováním produktu derivá-  
tem anilinu obecného vzorce II



/II/

kde  $R_1-R_5$  mají výše uvedené významy, při teplotě 90 až  
92 °C, vyznačující se tím, že se reakce dimethylaminu  
se sulfidem karbonylu provádí při teplotě 5 až 20 °C a  
molovém poměru dimethylaminu a sulfidu karbonylu 2,75 až  
4 : 1 a jako organické rozpouštědlo se používá tetrachlor-  
ethylen.