



Государственный комитет
СССР
по делам изобретений
и открытий

О П И С А Н И Е ИЗОБРЕТЕНИЯ

К АВТОРСКОМУ СВИДЕТЕЛЬСТВУ

(11) 945154

(89) 205592 (ЧССР)

(61) Дополнительное к авт. свид-ву -

(22) Заявлено 29.08.79 (21) 7770783/23-04

(23) Приоритет - (32) 27.11.78

(31) PV 7747-78 (33) ЧССР

Опубликовано 23.07.82. Бюллетень № 27

Дата опубликования описания 23.07.82

(51) М. Кл.³

C 07 D 237/14

(53) УДК 547.852.
.2.07(088.8)

(72) Авторы
изобретения

Иностранцы
Соглер Эрвин, Рапош Павел, Трухлик Штефан, Сеидлер Людовит
и Янчина Отокар
(ЧССР)

(71) Заявитель

Иностранное предприятие
"Вызкумны устав агрохемицкей технологии"
(ЧССР)

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ 2-ФЕНИЛ-4,5-ДИХЛОРПИРИДАЗИН-
-3-ОНА

1

Изобретение относится к способам получения 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она.

Известен способ получения 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она, DAS I 086 238, из мукохлористой кислоты и фенилгидразина в среде органического растворителя, причем вода, образующаяся в результате реакции, непрерывно удаляется из реакционной среды в форме азеотропной смеси.

Известен также способ получения 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она путем взаимодействия мукохлористой кислоты с фенилгидразин-гидрохлоридом в воде. Согласно патенту США № 2 628 181, взаимодействие мукохлористой кислоты и фенилгидразин-гидрохлорида протекает в воде в присутствии карбоната натрия, причем образующийся продукт фенилгидразин мукохлористой кислоты выделяют и путем кипячения в ледяной уксусной кислоте

2

превращают в 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-2-он.

Известен еще способ получения путем взаимодействия мукохлористой кислоты с фенилгидразином в разбавленной соляной кислоте (патент Великобритании № 881 616; патент Франции № 1 261 605). Непрерывный способ получения в каскаде нескольких котлов является предметом патента ФРГ № 1 545 595.

Непрерывный способ получения 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она путем взаимодействия водного раствора мукохлористой кислоты с фенилгидразин-гидрохлоридом в среде инертного неполярного растворителя и воды является предметом чехословацкого авторского свидетельства № 197 194.

Установлено, что 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-он можно получать при выгодных условиях, а именно путем взаимодействия мукохлористой кислоты с фенилгидразином в соотношении 0,8-

1,2:1 в водной среде в присутствии инертного неполярного растворителя из группы ароматических углеводородов, галоидированных ароматических углеводородов, галоидированных алифатических углеводородов с 1-3 атомами углерода, а именно бензола, толуола, ксилола, хлорбензола, хлороформа, тетрахлорметана, дихлорэтана, дихлорпропана или же в присутствии соляной кислоты.

Сущность предлагаемого способа заключается в том, что фенилгидразин вступает в реакцию в виде раствора в инертном неполярном растворителе и в случае, если реакция протекает в присутствии соляной кислоты, молярное соотношение хлористый водород - фенилгидразин менее чем 1.

Из преимуществ предлагаемого способа нужно упомянуть высшую реакционную скорость.

Короткое время реакции позволяет проводить реакцию загрузочным, т.е. прерывным, а также непрерывным способами, например, в каскаде котлов или вертикальной колонне, или же трубчатом реакторе.

Пример 1. К раствору 22,3 г (0,206 М) фенилгидразина с 275 мл ксилола температурой 92°C в колбе, снабженной мешалкой, термометром, обратным холодильником, дозировочным и выпускным отверстиями добавляют водный раствор мукохлористой кислоты 33,6 (0,2 М) температурой 80°C (400 мл воды). Реакционную смесь перемешивают при температуре орошения в течение 10 мин. После отключения мешалки реакционная смесь расслоится и водный слой выпускают. После отгонки ксилола получают 46,6 г технического продукта 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она со степенью чистоты 96%, т.е. 92,8% теоретических.

Пример 2. К смеси 33,6 г (0,2 М) мукохлористой кислоты, 135 мл воды и 275 мл ксилола с температурой 90-92°C добавляют нагретый до 85°C раствор 22,3 г (0,206 М) фенилгидразина в 276 г 0,74%-ной соляной кислоты (0,056 М). Реакционную смесь выдерживают при температуре орошения в течение 10 мин. Затем повторяют процесс, описанный в примере 1. Получают 45,7 г технического продукта 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она со степенью чистоты 96,2%.

Пример 3. В водный раствор 353 г фенилгидразин-дисульфоната натрия 9%-ного, нагретый до 80-90°C, в течение 1 ч, прибавляют 64,0 г 32%-ной соляной кислоты. Реакционную смесь выдерживают при приведенной температуре при перемешивании в течение 2 ч. По окончании времени реакции смесь нейтрализуют NaOH в щелочную реакцию. Фенилгидразин экстрагируют с 275 мл ксилола при 50°C. После отделения фенилгидразина и нагрева до 88-90°C прибавляют к раствору (температурой 90°C) 33,6 г мукохлористой кислоты в 400 мл воды. После орошения (10 мин) повторяют процесс, описанный в примере 1. Получают 42,8 г технического 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она со степенью чистоты 96,1%.

Пример 4. В ходе проведения данных экспериментов повторяют процесс, описанный в примере 1, заменяя ксилол хлорбензолом (275 мл). Получают 45 г 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она со степенью чистоты 97,1%, т.е. 90,65% теоретических.

Пример 5. Повторяют процесс описанный в примере 3, заменяя ксилол 1,2-дихлорэтаном (200 мл) с целью экстрагирования фенилгидразина. К раствору фенилгидразина в дихлорэтаноле добавляют 33,6 г мукохлористой кислоты в 400 мл воды с температурой 50°C. После орошения (10 мин) повторяют процесс, описанный в примере 1. Получают 43 г технического 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она со степенью чистоты 97,1%.

Пример 6. 353 г водного раствора фенилгидразин-дисульфоната натрия 9%-ного нагревают до 80-90°C. В течение 1 ч прибавляют к нему 64 г 32%-ной соляной кислоты. Реакционную смесь выдерживают при приведенной температуре при перемешивании в течение 2 ч. По истечении времени взаимодействия смесь нейтрализуют аммиачной водой до pH 7. Фенилгидразин экстрагируют 300 мл толуола при 45°C. После этого прибавляют фенилгидразин к раствору (60°C) 33,6 г мукохлористой кислоты в 400 мл воды. После орошения (10 мин) повторяют процесс, описанный в примере 1. Получают 42,5 г технического 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она со степенью чистоты 96,6%.

Формула изобретения

Способ получения 2-фенил-4,5-дихлорпиридазин-3-она путем взаимодействия водного раствора мукохлористой кислоты с фенилгидразином в соотношении 0,8-1,2:1, в присутствии инертного неполярного растворителя, выбранного из группы ароматических углеводородов, галогенированных ароматических углеводородов и галогенированных алифатических углеводородов с 1-3 атомами углерода, например бензола, толуола, ксилола, хлорбензола, хлорофор-

ма, тетрахлорметана, дихлорэтана, дихлорпропана, или в присутствии соляной кислоты, отличающийся тем, что в реакцию вступают фенилгидразин в виде раствора в инертном неполярном растворителе и в случае, если реакция протекает в присутствии соляной кислоты, молярное соотношение хлористый водород - фенилгидразин составляет менее чем 1.

Признано изобретением по результатам экспертизы, осуществленной ведомством по изобретательству Чехословацкой Социалистической Республики.

Составитель Т. Якунина

Редактор Л. Лукач Техред А.Бабинец

Корректор В. Бутяга

Заказ 5255/33

Тираж 445

Подписное

ВНИИПИ Государственного комитета СССР
по делам изобретений и открытий

113035, Москва, Ж-35, Раушская наб., д. 4/5

Филиал ППП "Патент", г. Ужгород, ул. Проектная, 4