



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

⑪ CH 685762 A5

⑤① Int. Cl.⁶: C 09 B 62/245
C 09 B 62/085
C 09 B 67/22
C 09 B 43/136

Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein

Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978

⑫ PATENTSCHRIFT A5

⑳ Gesuchsnummer: 2748/93

⑦③ Inhaber:
Sandoz AG, Basel

㉔ Anmeldungsdatum: 14.09.1993

③① Priorität(en): 17.09.1992 DE 4231143
09.01.1993 DE 4300404

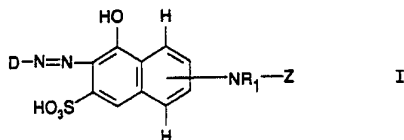
㉔ Patent erteilt: 29.09.1995

④⑤ Patentschrift
veröffentlicht: 29.09.1995

⑦② Erfinder:
Nusser, Rainer, Dr., Müllheim (DE)
Wald, Roland, Huningue (FR)

⑤④ Faserreaktive Monoazofarbstoffe.

⑤⑦ Faserreaktive Monoazoverbindungen entsprechen der Formel I,

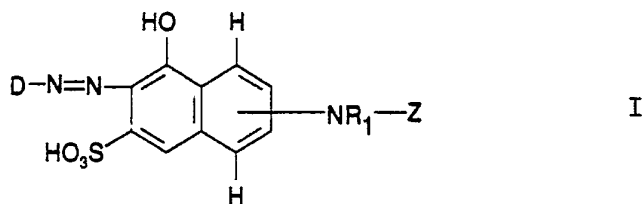


worin die einzelnen Symbole wie in Anspruch 1 definiert sind, und liegen als freie Säure oder in Salzform vor. Sie finden Verwendung als Reaktivfarbstoffe zum Färben oder Bedrucken von hydroxygruppen- oder stickstoffhaltigen organischen Substraten, insbesondere von Leder oder von Fasermaterial, das aus natürlichen oder synthetischen Polyamiden oder aus natürlicher oder regenerierter Cellulose besteht oder diese enthält. Meist bevorzugtes Substrat ist Textilmaterial, das aus Baumwolle besteht oder diese enthält.

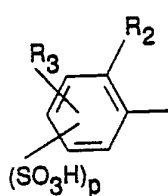


Beschreibung

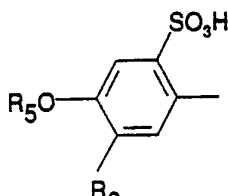
Die Erfindung betrifft faserreaktive Monoazoverbindungen und Verfahren zu ihrer Herstellung. Diese Verbindungen werden als Reaktivfarbstoffe in herkömmlichen Färbe- und Druckverfahren eingesetzt. Gegenstand der Erfindung sind Verbindungen der Formel I



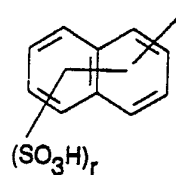
und deren Salze, worin
jedes R_1 unabhängig voneinander für Wasserstoff, C_{1-4} Alkyl oder substituiertes C_{1-4} Alkyl,
D für einen der Reste (a) bis (f) steht,



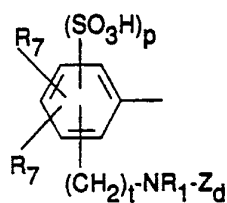
(a)



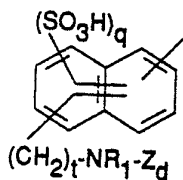
(b)



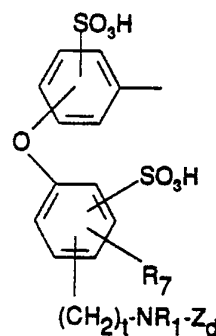
(c)



(d)



(e)



(f)

worin

R_2 Wasserstoff, C_{1-4} Alkyl oder C_{1-4} Alkoxy,

R_3 Wasserstoff, C_{1-4} Alkyl, Carboxy oder $-O-A_1-OR_4$,

A_1 C_{2-4} Alkylen,

R_4 Wasserstoff, Sulfo, C_{1-4} Alkyl oder C_{2-4} Hydroxyalkyl,

R_5 C_{2-4} Alkyl,

R_6 Wasserstoff oder Sulfo, und

jedes R_7 unabhängig voneinander Wasserstoff, C_{1-4} Alkyl, C_{1-4} Alkoxy oder Carboxy bedeuten;

jedes p für 0, 1 oder 2,

q für 1 oder 2,

r für 1, 2 oder 3, und

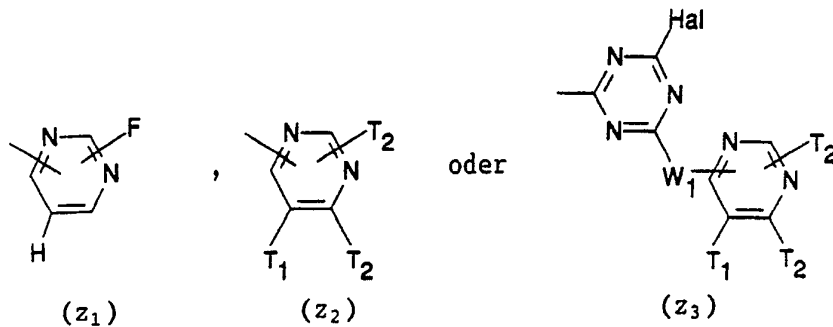
t für 0 oder 1;

jedes Z und Z_d unabhängig voneinander für (z₁), (z₂) oder (z₃)

5

10

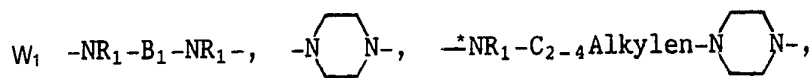
15



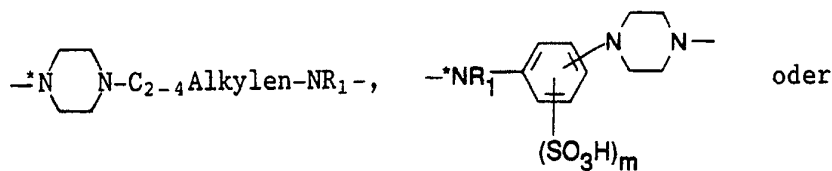
stehen, worin

T₁ Wasserstoff, Chlor oder Cyan bedeutet,
beide Reste T₂ die gleiche Bedeutung haben und jedes T₂ für Fluor oder Chlor steht,
Hal Fluor oder Chlor, und

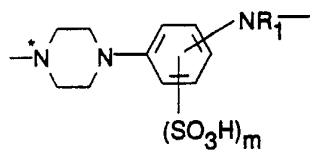
20



25



30

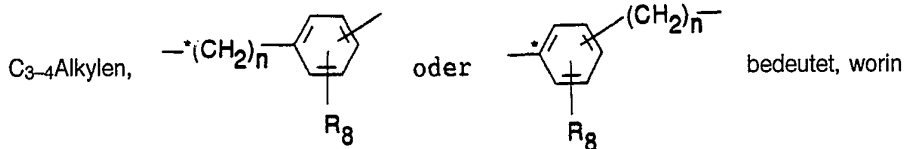


35

bedeuten, worin

jedes m unabhängig voneinander für 0 oder 1 steht und das mit * markierte N-Atom am C-Atom des
Triazinringes gebunden ist,
B₁ C₂₋₄Alkylen; -C₂₋₃Alkylen-Q-C₂₋₃Alkylen-, worin Q für -O- oder -NR₁- steht; durch Hydroxy mono-
substituiertes

40



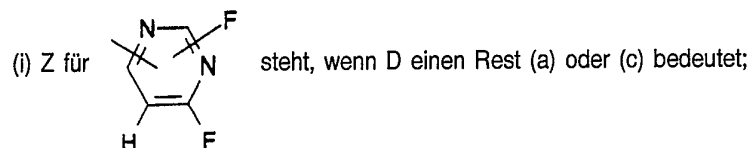
45

50

n für 0 oder eine Zahl 1 bis 4 und

R₈ für Wasserstoff, C₁₋₄Alkyl, C₁₋₄Alkoxy, Carboxy oder Sulfo stehen und das mit * markierte C-Atom
an die NR₁-Gruppe gebunden ist, welche am C-Atom des Triazinringes gebunden ist;
mit der Massgabe, dass

55



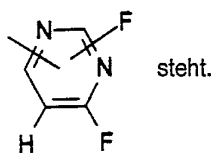
60

(ii) Z für (z₁) oder (z₂) steht, wenn D einen Rest (b) bedeutet; und

(iii) jedes Z und Z_d, wenn D einen Rest (d), (e) oder (f) bedeutet, unabhängig voneinander für (z₂)

65

oder (z₃) steht, und mindestens eines von Z und Z_d für



steht.

5

Gegenstand der Erfindung sind auch Gemische von Verbindungen der Formel I und deren Salzen.

10 Sofern nichts anderes angegeben ist, kann in einer Verbindung der Formel I jede Alkyl-, Alkoxy- oder Alkylengruppe linear oder verzweigt sein. In einer hydroxysubstituierten Alkyl- oder Alkylengruppe, die an Stickstoff gebunden ist, befindet sich die Hydroxygruppe vorzugsweise an einem C-Atom, das nicht direkt an Stickstoff gebunden ist. In einer durch Q unterbrochenen Alkylkette, die an Stickstoff gebunden ist, ist Q vorzugsweise an ein C-Atom gebunden, das nicht direkt mit dem Stickstoff verknüpft ist.

15 R₁ als substituiertes Alkyl ist vorzugsweise monosubstituiert durch Hydroxy, Cyan oder Chlor.

Jedes R₁ steht bevorzugt für R_{1a}, das unabhängig voneinander Wasserstoff, Methyl, Äthyl oder 2-Hydroxyäthyl bedeutet; mehr bevorzugt für R_{1b} als Wasserstoff oder Methyl; insbesondere bevorzugt bedeutet R₁ Wasserstoff.

R₂ steht bevorzugt für R_{2a} als Wasserstoff, Methyl oder Methoxy.

20 A₁ steht bevorzugt für A_{1'} als C₂₋₃Alkyl.

R₄ bedeutet bevorzugt R_{4a} als Wasserstoff, Sulfo, Methyl, Äthyl oder C₂₋₃Hydroxyalkyl; mehr bevorzugt R_{4b} als Wasserstoff, Sulfo oder 2-Hydroxyäthyl.

R₃ bedeutet bevorzugt R_{3a} als Wasserstoff, Methyl, Carboxy oder -O-A₁-OR_{4a}; mehr bevorzugt R_{3b} als Wasserstoff, Methyl oder -O-A₁-R_{4b}.

25 R₅ bedeutet vorzugsweise R_{5a} als C₂₋₃Alkyl; insbesondere bevorzugt ist R₅ als Äthyl.

R₆ steht vorzugsweise für Wasserstoff.

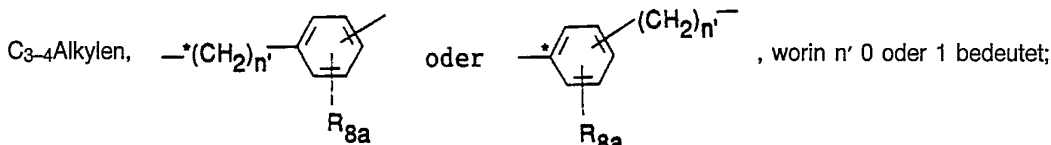
Jedes R₇ steht vorzugsweise für R_{7a}, das unabhängig voneinander Wasserstoff, Methyl oder Methoxy bedeutet.

Hal steht vorzugsweise für Chlor.

30 R₈ bedeutet bevorzugt R_{8a} als Wasserstoff, Methyl, Methoxy, Carboxy oder Sulfo; mehr bevorzugt R_{8b} als Wasserstoff oder Sulfo.

B₁ bedeutet bevorzugt B_{1a} als C₂₋₃Alkyl, -CH₂CH₂-O-CH₂CH₂-, -CH₂CH₂-NR_{1a}-CH₂CH₂-, monohydroxy-substituiertes

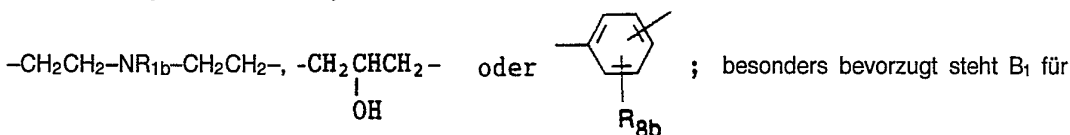
35



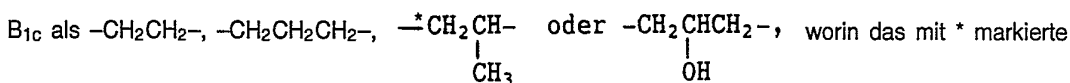
40

mehr bevorzugt B_{1b} als C₂₋₃Alkyl,

45



50



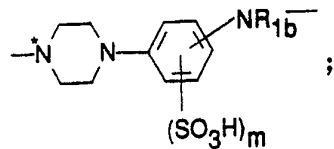
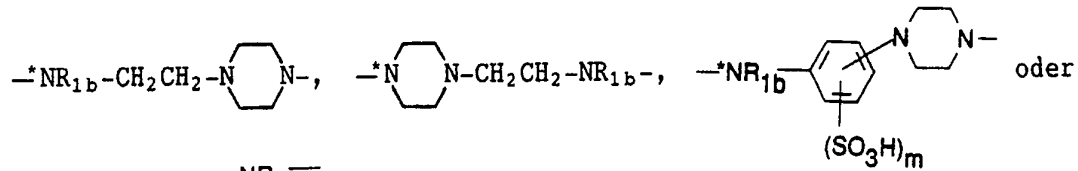
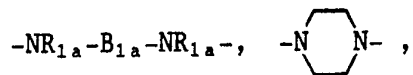
C-Atom an die NR₁-Gruppe gebunden ist, die an ein C-Atom des Triazinringes gebunden ist.

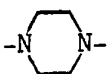
55

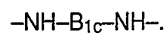
60

65

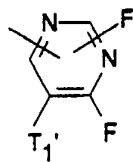
W_1 steht bevorzugt für W_{1a} als



mehr bevorzugt für W_{1b} als $-NR_{1b}-B_{1b}-NR_{1b}-$ oder ; insbesondere für W_{1c} als

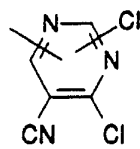


(z_2) ist bevorzugt (z_2') oder (z_2'') der Formeln



(z_2')

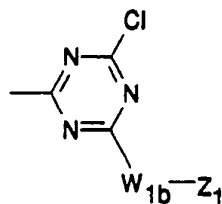
oder



(z_2'')

worin T_1' für Wasserstoff oder Chlor steht.

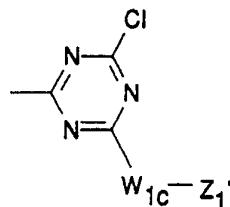
(z_3) steht bevorzugt für (z_3') der Formel



(z_3')

, worin z_1 den Rest (z_2) bedeutet;

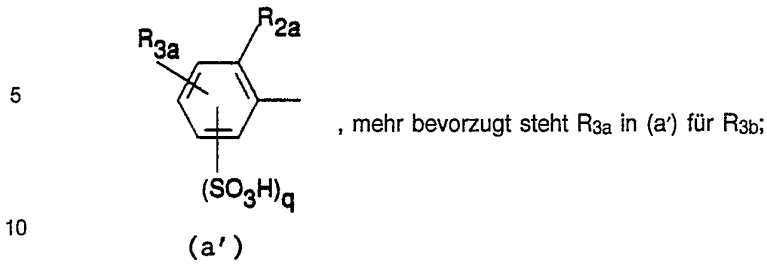
(z_3') mehr bevorzugt (z_3'') der Formel



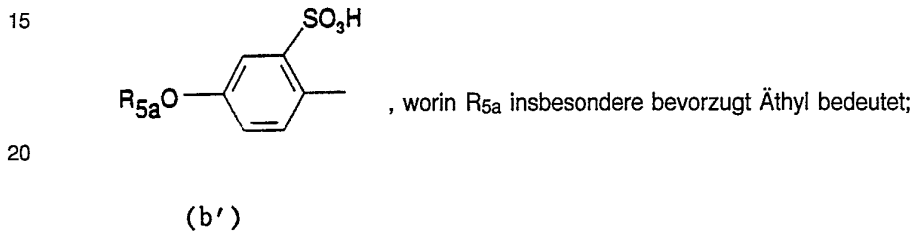
(z_3'')

worin z_1' für einen Rest (z_2') oder (z_2'') steht.

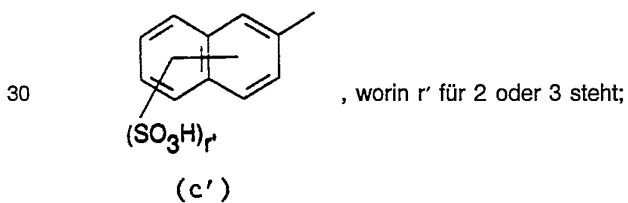
(a) bedeutet bevorzugt (a') der Formel



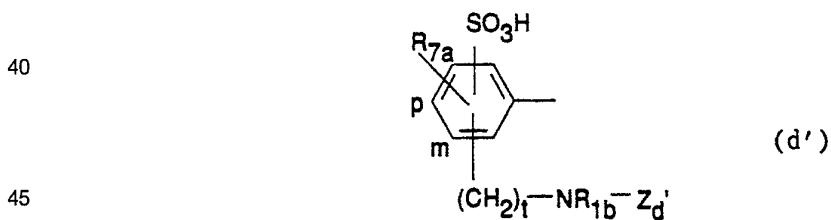
(b) bedeutet bevorzugt (b') der Formel



(c) bedeutet bevorzugt (c') der Formel

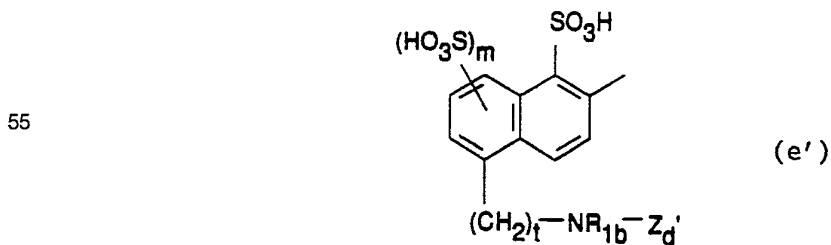


(d) bedeutet bevorzugt (d') der Formel



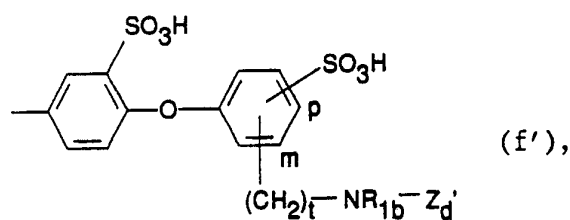
worin der Rest -(CH₂)_t-NR_{1b}-Z_d' sich in m- oder p-Position zur Azogruppe befindet;

(e) bedeutet bevorzugt (e') der Formel



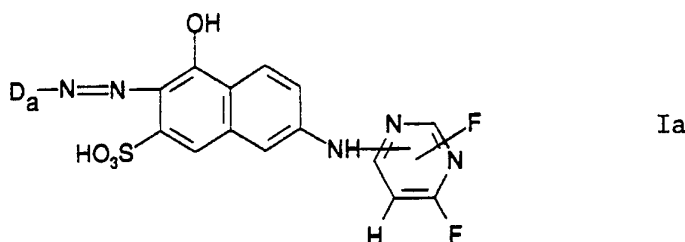
und (f) bedeutet bevorzugt (f') der Formel

65

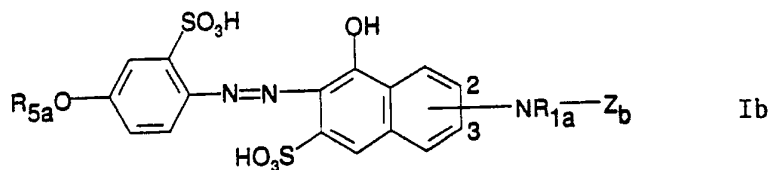


10 worin der Rest -(CH₂)_l-NR_{1b}-Z_{d'} sich in m- oder p-Position zu -O- befindet,
wobei in den Resten (d') bis (f') Z_{d'} für einen Rest (z₂) oder (z₃') steht. Meist bevorzugt steht in den
Resten (d'), (e') und (f') Z_{d'} für Z_{d''} als ein Rest (z₂''), (z₂') oder (z₃'').

15 Bevorzugte Verbindungen der Formel I entsprechen den Formeln Ia, Ib und Ic, und Salzen davon,



25 worin D_a einen Rest (a') oder (c') bedeutet. Mehr bevorzugt sind Verbindungen der Formel Ia, worin in
(a') R_{3a} für R_{3b} steht;



40 worin Z_b einen Rest (z₁) oder (z₂) bedeutet, und der Rest -NR_{1a}-Z_b sich in 2- oder 3-Stellung des Na-
phthylringes befindet. Mehr bevorzugt sind Verbindungen der Formel Ib, worin

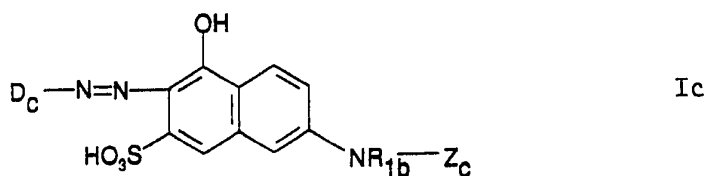
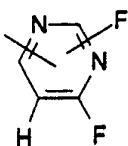
(1) R_{1a} für R_{1b} steht;

(2) solche von (1), worin R_{1b} für Wasserstoff steht;

(3) R_{5a} für Äthyl steht;

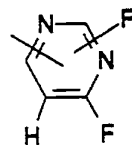
(4) solche von (1) bis (3), worin der Rest -NR_{1a}-Z_b sich in 3-Stellung des Naphthylringes befindet;

45 (5) solche von (1) bis (4), worin Z_b für



worin D_c für einen Rest (d'), (e') oder (f'), und Z_c für (z₂) oder (z₃') stehen;

mit der Massgabe, dass mindestens einer der Reste Z_d' und Z_c für

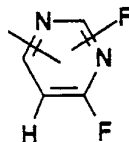


steht.

Mehr bevorzugt sind Verbindungen der Formel Ic, worin

- (1) R_{1b} für Wasserstoff steht;
- (2) Z_c für Z_c' als Rest (z_2'), (z_2'') oder (z_3'') steht;
- (3) Z_d' in (d'), (e') und (f') für Z_d'' steht;

(4) einer der Reste Z_d' und Z_c für



, und der andere für (z_3') stehen;

(5) solche von (4), worin (z_3') für (z_3'') steht.

Die Beschaffenheit des Kations der Sulfogruppen und gegebenenfalls zusätzlich vorhandener Carboxygruppen in Verbindungen der Formel I, wenn diese in Salzform vorliegen, stellt keinen kritischen Faktor dar, sondern es kann sich um ein beliebiges, in der Chemie von Reaktivfarbstoffen übliches nicht-chromophores Kation handeln. Voraussetzung ist dabei, dass die entsprechenden Salze die Bedingung der Wasserlöslichkeit erfüllen. Beispiele für geeignete Kationen sind Alkalimetallionen oder unsubstituierte oder substituierte Ammoniumionen, wie beispielsweise Lithium, Natrium, Kalium, Ammonium, Mono-, Di-, Tri- und Tetramethylammonium, Triäthylammonium und Mono-, Di- und Triäthanolammonium.

Bevorzugte Kationen sind die Alkalimetallionen und Ammonium, davon besonders bevorzugt ist Natrium.

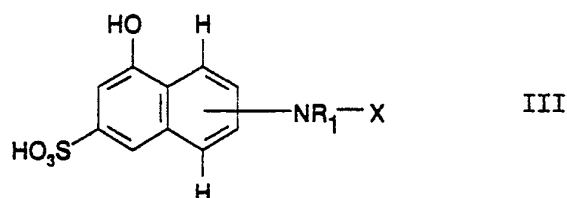
Im allgemeinen können in einer Verbindung der Formel I die Kationen der Sulfogruppen und gegebenenfalls Carboxygruppen gleich oder verschieden sein und eine Mischung aus den obenerwähnten Kationen darstellen, d.h. die Verbindung kann auch in gemischter Salzform vorliegen.

Die Erfindung umfasst weiterhin Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der Formel I.

Die Verbindungen der Formel I werden erfindungsgemäss erhalten, indem man das Diazoniumsalz eines Amins der Formel II,

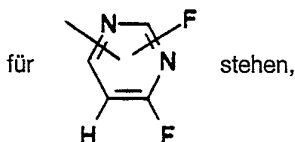


worin D wie oben definiert ist, auf eine Verbindung der Formel III,

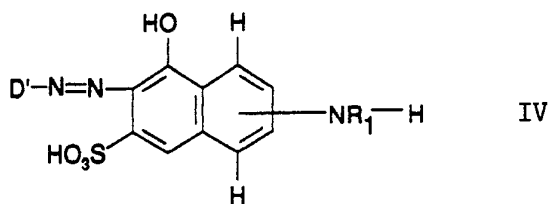


worin R_1 wie oben definiert ist, und X Wasserstoff oder einen Rest Z bedeutet, kuppelt, und im Falle, dass X für Wasserstoff steht, anschliessend das erhaltene Kupplungsprodukt mit einer Verbindung der Formel Z-Hal, worin Hal für Fluor oder Chlor steht, umsetzt.

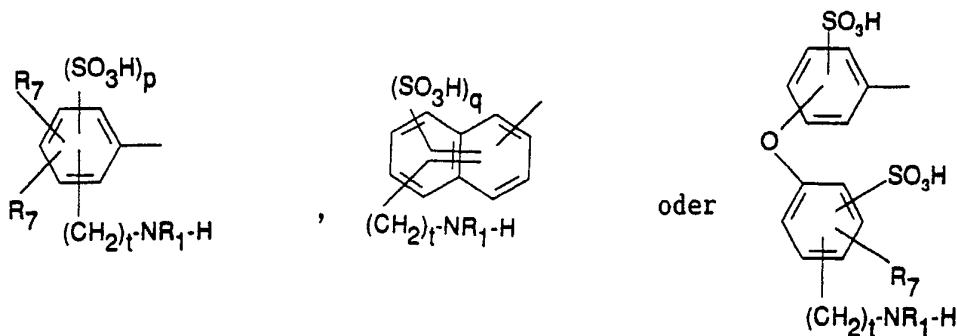
Verbindungen der Formel I, worin D für einen Rest (d), (e) oder (f) und Z und Z_d beide



können auch hergestellt werden, indem man 1 Mol einer Verbindung der Formel IV,



worin R_1 wie oben definiert ist und D' für einen Rest



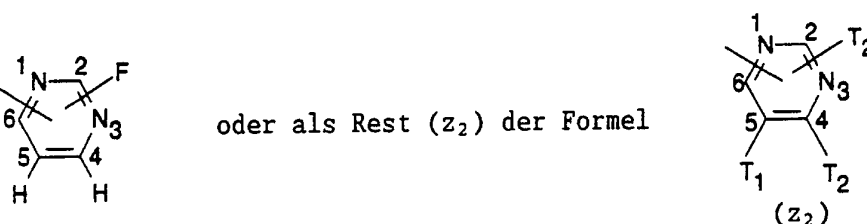
steht und die einzelnen Variablen wie oben definiert sind, mit mindestens 2 Mol 2,4,6-Trifluorpyrimidin kondensiert.

Dabei werden Diazotierung und Kupplung nach an sich üblicher Methode durchgeführt; die Kupplung erfolgt bevorzugt in einem pH-Bereich von 6,5–8,5, insbesondere bei pH 7–8.

Die Kondensation der Aminogruppe mit einer Verbindung der Formel Z-Hal (2,4,6-Trifluorpyrimidin eingeschlossen) wird vorzugsweise bei leicht erhöhter Temperatur im Bereich 35–60°C, und bei pH 4–6 durchgeführt.

Die Isolierung der Verbindungen der Formel I kann in an sich bekannter Weise erfolgen; z.B. können die Verbindungen durch übliches Aussalzen mit Alkalimetallsalzen aus dem Reaktionsgemisch abgeschieden, abfiltriert und (im Vakuum) bei leicht erhöhter Temperatur getrocknet werden. In Abhängigkeit von den Reaktions- und Isolierungsbedingungen wird eine Verbindung der Formel I als freie Säure oder bevorzugt in Salzform oder als gemischtes Salz erhalten und enthält dann beispielsweise eines oder mehrere der oben genannten Kationen. Salze oder gemischte Salze können aber auch ausgehend von der freien Säure auf an sich übliche Weise hergestellt werden und umgekehrt oder es kann auch eine an sich übliche Umsalzung vorgenommen werden.

Jeder Rest Z oder Z_d als Monofluorpyrimidinylrest der Formel



kann in zwei isomeren Formen vorliegen, wobei der nicht-fixierte Fluor- oder Chlorsubstituent sich entweder in Stellung 2 oder in Stellung 6 befindet. Im allgemeinen ist es bevorzugt, die resultierenden Farbstoffgemische als solche zu verwenden, ohne dass eine Auftrennung in die einzelnen Isomere vorgenommen wird. Sollte jedoch eine Isomerenauftrennung erwünscht sein, so kann diese nach an sich üblichen Methoden erfolgen.

Die Ausgangsverbindungen der Formeln II, III und IV und auch Z-Hal sind entweder bekannt oder können analog zu bekannten Methoden aus entsprechenden bekannten Ausgangsverbindungen durch an sich übliche Reaktionen wie Diazotierung, Kupplung und/oder Kondensationsreaktionen erhalten werden.

Die Verbindungen der Formel I und Gemische davon stellen Reaktivfarbstoffe dar; sie eignen sich zum Färben oder Bedrucken von hydroxygruppen- oder stickstoffhaltigen organischen Substraten. Als bevorzugte Substrate sind zu nennen Leder und Fasermaterialien, die aus natürlichen oder synthetischen Polyamiden und insbesondere aus natürlicher oder regenerierter Cellulose, wie Baumwolle, Vis-

kose oder Zellwolle bestehen oder diese enthalten. Meist bevorzugtes Substrat ist Textilmaterial, das aus Baumwolle besteht oder diese enthält.

Die Verbindungen der Formel I können in Färbeflotten oder in Druckpasten nach allen für Reaktivfarbstoffe gebräuchlichen Färbe- oder Druckverfahren eingesetzt werden. Bevorzugt wird nach dem Ausziehverfahren im Temperaturbereich von 30–80°C, insbesondere bei 50–60°C gefärbt, wobei ein Flottenverhältnis (Substrat zu Flotte) von 1:6 bis 1:30, mehr bevorzugt von 1:10 bis 1:20 angewendet wird.

Die Verbindungen gemäss der Erfindung können als Einzelfarbstoff oder wegen ihrer guten Kombinierbarkeit auch als Kombinationselement mit anderen Reaktivfarbstoffen derselben Klasse, die vergleichbare färberische Eigenschaften z.B. betreffend allgemeine Echtheiten, Ausziehwert etc. besitzen, verwendet werden. Die erhaltenen Kombinationsfärbungen zeigen ebenso gute Echtheiten wie die Färbungen mit Einzelfarbstoff.

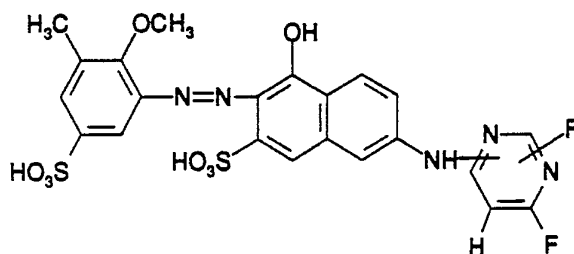
Mit den Verbindungen der Formel I werden gute Auszieh- und Fixierwerte erhalten. Der nicht fixierte Farbstoffanteil lässt sich leicht auswaschen. Die erhaltenen Färbungen und Drucke zeigen gute Lichtechtheit wie auch Nasslichtechtheit. Sie weisen zusätzlich gute Nassechtheitseigenschaften z.B. hinsichtlich Wasch-, Wasser-, Seewasser- und Schweißsechtheit auf und haben gute Beständigkeit gegenüber oxidativen Einflüssen wie gegenüber chlorhaltigem Wasser, Hypochloritbleiche, Peroxidbleiche sowie gegenüber perborathaltigen Waschmitteln.

Die nachfolgenden Beispiele dienen der Illustration der Erfindung. Sofern nichts anderes angegeben ist, bedeuten in den Beispielen Teile Gewichtsteile und Prozente Gewichtsprozente; die Temperaturen sind in Celsiusgraden angegeben.

Beispiel 1

47,8 Teile 2-Amino-5-hydroxynaphthalin-7-Sulfonsäure werden in 500 Teilen Wasser von 25° suspendiert und unter Zugabe von 30%iger Natriumhydroxidlösung gelöst. Die Lösung wird dann mit 19,4 Teilen 2,4,6-Trifluorpyrimidin versetzt. Durch kontinuierliche Zugabe von 20%iger Natriumcarbonatlösung wird der pH bei 4,4–4,8 gehalten, gleichzeitig wird die Reaktionstemperatur auf 40–45° erhöht. Es wird bis zum Reaktionsende gerührt, wobei der Reaktionsverlauf von Zeit zu Zeit mittels Dünnschichtchromatographie überprüft wird.

Die so erhaltene Suspension wird dann bei 0–5° zu einer auf üblichem Wege aus 43,4 Teilen 3-Amino-4-methoxy-5-methylbenzolsulfonsäure hergestellten Diazoniumsalzlösung gestürzt. Der pH des Reaktionsgemisches wird durch Zusatz von 20%iger Natriumcarbonatlösung bei 7,2–7,5 gehalten. Nach beendeter Kupplung wird der Farbstoff mit Natriumchlorid ausgesalzen, abfiltriert und bei 50° im Vakuum getrocknet; er hat die Formel (angeführt als freie Säure)



und ergibt auf Baumwolle orange Färbungen, die gute Licht- und Nassechtheiten aufweisen und beständig sind gegen oxidative Einflüsse.

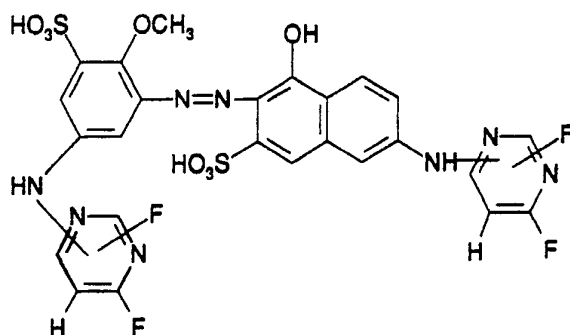
Beispiel 2

28,1 Teile 2-Acetylamino-5-hydroxynaphthalin-7-Sulfonsäure werden in 200 Teilen Wasser bei 25° gelöst und bei 0–5° mit einer auf üblichem Wege aus 26,0 Teilen 1-Acetylamino-3-amino-4-methoxybenzol-5-Sulfonsäure hergestellten Diazoniumsalzlösung versetzt. Der pH der Kupplungsmischung wird durch Zufügen von 20%iger Natriumcarbonatlösung bei 8,0–8,5 gehalten. Nach beendeter Reaktion wird der erhaltene Azofarbstoff mit Natriumchlorid ausgesalzen und abgesaugt. Der feuchte Rückstand wird in 300 Volumteilen 4%iger Natronlauge gelöst und so lange bei 90–100° am Rückfluss gekocht, bis die Verseifung der Acetylgruppen vollständig ist (Kontrolle durch Dünnschichtchromatographie). Nach Abkühlung auf 20° wird die Lösung durch Zugabe von 30%iger Salzsäure auf pH 4,3–4,8 gestellt und mit 26,8 Teilen 2,4,6-Trifluorpyrimidin versetzt. Der pH des Reaktionsgemisches wird durch kontinuierliche Zugabe von 20%iger Natriumcarbonatlösung bei 4,3–4,8 gehalten, gleichzeitig wird die Temperatur auf 40–45° erhöht. Nach beendeter Reaktion wird der Farbstoff mit Natriumchlorid ausgesalzen, abfiltriert und im Vakuum bei 50° getrocknet. Er entspricht der Formel (angeführt als freie Säure)

5

10

15



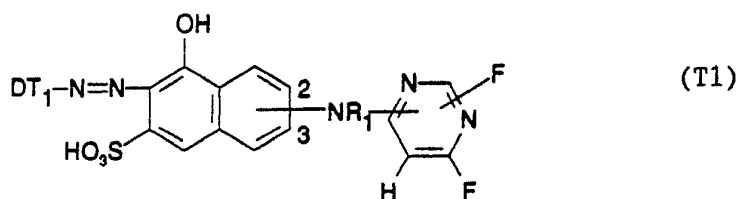
und ergibt auf Baumwolle scharlachrote Färbungen und Drucke, die in hohem Masse lichtecht sowie nassecht und beständig gegen oxidative Einflüsse sind.

20 Beispiele 3–96

Analog der in Beispiel 1 oder 2 beschriebenen Methode können unter Einsatz der entsprechenden Ausgangsverbindungen weitere Verbindungen der Formel I hergestellt werden, die in den folgenden Tabellen 1 bis 4 aufgelistet sind. Die Verbindungen entsprechen den Formeln (T1), (T2), (T3) und (T4) wie folgt:

25

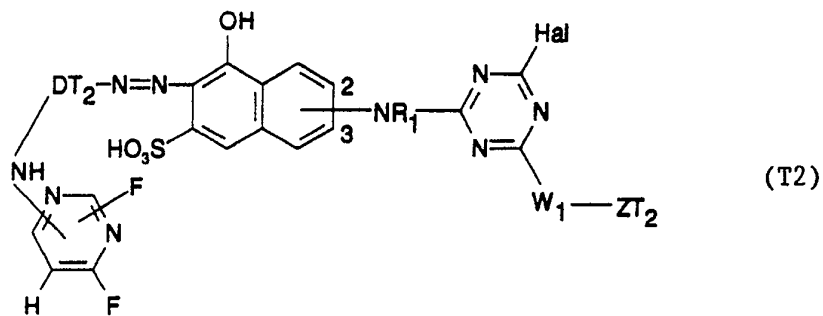
30



35

für Tabelle 1;

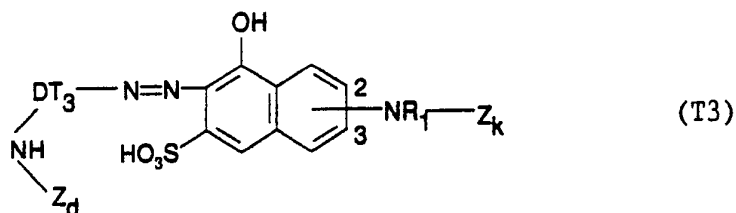
40



50

für Tabelle 2;

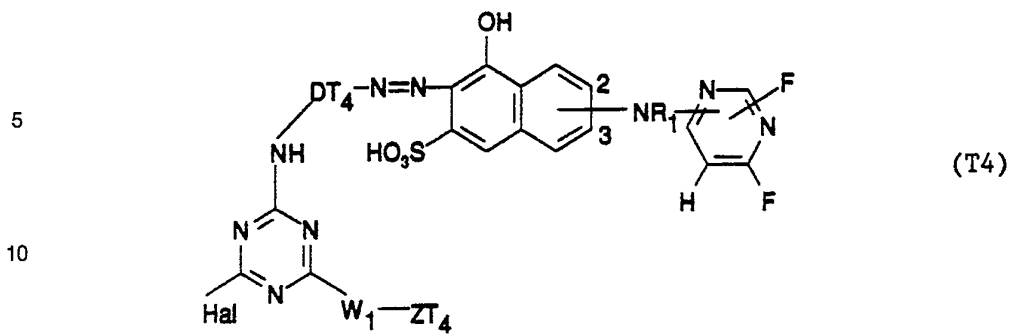
55



60

für Tabelle 3; und

65



für Tabelle 4;

worin die einzelnen Symbole die in den Tabellen 1–4 angeführten Bedeutungen haben.

Mit den Farbstoffen der Beispiele 3–96 können Substrate, welche aus Cellulosefasern bestehen oder diese enthalten, und insbesondere Textilmaterial aus Baumwolle in orangen bis scharlachroten Tönen nach üblichen Auszieh- und Druckverfahren gefärbt oder bedruckt werden. Die erhaltenen Färbungen und Drucke auf Baumwolle sind gut licht- und nassecht und beständig gegenüber oxidativen Einflüssen.

TABELLE 1 / Verbindungen der Formel (T1)

Beispiele 3-27

Bsp.Nr.	DT ₁	Stellung -NR ₁ -	R ₁
3		3	H
4		3	CH ₃
5		3	H
6	do.	2	H
7		3	H
8	do.	3	CH ₃
9		3	H
10	do.	2	H
11		2	H
12	do.	3	H
13	do.	3	-CH ₂ CH ₃

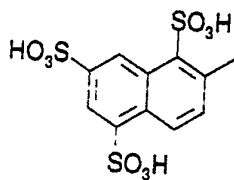
TABELLE 1 / Fortsetzung

Bsp.Nr. DT₁ Stellung -NR₁- R₁

5

10

14



3

H

15

15

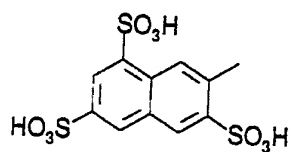
do.

2

H

20

16



3

H

25

17

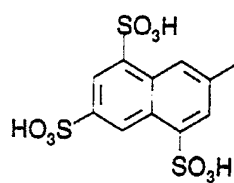
do.

3

CH₃

30

18



3

do.

35

19

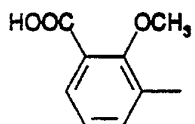
do.

2

H

40

20



3

H

45

21

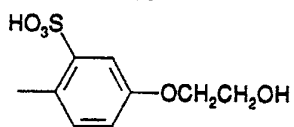
do.

2

H

50

22



3

H

23

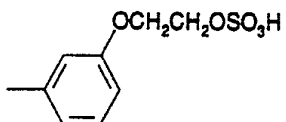
do.

3

CH₃

55

24



3

H

60

25

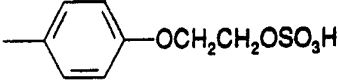
do.

3

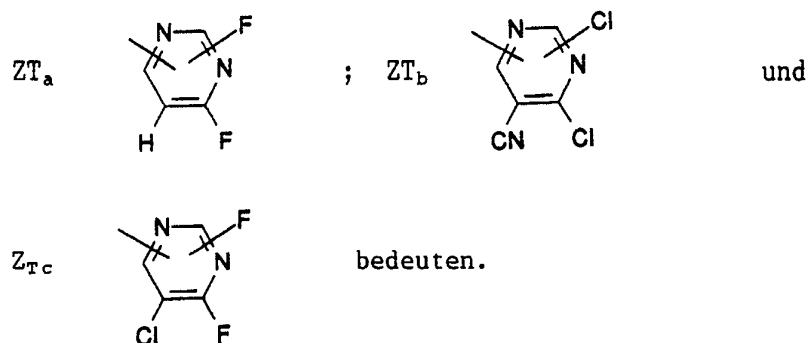
CH₃

65

TABELLE 1 / Fortsetzung

Bsp.Nr.	DT ₁	Stellung -NR ₁ -	R ₁
26		3	H
27	do.	2	H

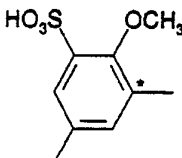
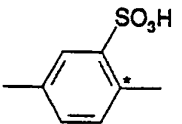
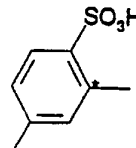
In den folgenden Tabellen 2-4 werden für ZT₂, Z_d und Z_k sowie für ZT₄ die Symbole ZT_a, ZT_b und ZT_c verwendet, wobei



Weiterhin ist in der folgenden Tabelle 2 jedes mit * markierte C-Atom in der Kolonne unter DT₂ mit der Azogruppe in Formel (T2) verknüpft; und jedes mit * markierte N-Atom in der Kolonne unter -W₁- ist an ein C-Atom des Triazinringes in Formel (T2) gebunden.

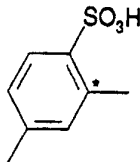
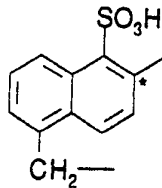
TABELLE 2 / Verbindungen der Formel (T2)

Beispiele 28-53

5	Bsp.Nr.	DT ₂	Stellung -NR ₁ -	R ₁	Hal	-W ₁ -	ZT ₂
10	28		3	H	Cl	-NHCH ₂ CH ₂ CH ₂ NH-	ZT _a
15	29	do.	3	H	F	do.	do.
	30	do.	3	H	Cl	do.	ZT _b
20	31	do.	3	H	Cl	-NHCH ₂ CHCH ₂ NH- OH	ZT _a
	32	do.	3	H	Cl	-*NHCH ₂ CHNH- CH ₃	do.
25	33	do.	2	H	Cl	do.	ZT _b
	34	do.	3	CH ₃	Cl	-*NHCH ₂ CH ₂ CH ₂ N- CH ₃	ZT _a
30	35		3	H	Cl	do.	do.
35	36	do.	3	H	F	-NHCH ₂ CH ₂ CH ₂ NH-	do.
	37	do.	2	H	Cl	do.	ZT _c
	38	do.	3	H	Cl	-NHCH ₂ CHCH ₂ NH- OH	ZT _a
40	39	do.	3	H	Cl	do.	ZT _b
	40	do.	3	H	Cl	-*NHCH ₂ CHNH- CH ₃	ZT _a
45	41		3	H	Cl	do.	do.
50	42	do.	2	CH ₃	Cl		do.
	43	do.	3	H	Cl	do.	ZT _b
55	44	do.	3	H	Cl	-NHCH ₂ CHCH ₂ NH- OH	ZT _a
	45	do.	3	H	Cl	-NHCH ₂ CH ₂ CH ₂ NH-	do.
60	46	do.	2	H	Cl	do.	ZT _c

65

TABELLE 2 / Fortsetzung

Bsp.Nr.	DT ₂	Stellung -NR ₁ -	R ₁	Hal	-W ₁ -	ZT ₂
5						
47		3	H	Cl	$\text{---}^*\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{N---}$ CH ₃	ZT _a
48	do.	3	CH ₃	Cl	do.	ZT _c
49		3	H	Cl	$\text{---NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH---}$	ZT _a
50	do.	3	H	F	do.	ZT _b
51	do.	3	H	Cl	$\text{---}^*\text{NHCH}_2\text{CHNH---}$ CH ₃	ZT _a
52	do.	2	H	Cl	do.	do.
53	do.	3	H	Cl	$\text{---NHCH}_2\text{CHCH}_2\text{NH---}$ OH	ZT _c

In der folgenden Tabelle 3 ist jedes mit * markierte C-Atom in der Kolonne unter DT₃ mit der Azogruppe in Formel (T3) verknüpft.

TABELLE 3 / Verbindungen der Formel (T3)

Beispiele 54-73

	Bsp.Nr.	Z _d	DT ₃	Stellung -NR ₁ -	R ₁	Z _k
45						
50						
	54	ZT _a		2	H	ZT _a
55						
	55	ZT _b	do.	3	H	do.
	56	ZT _a	do.	3	CH ₃	ZT _c
60	57	do.	do.	3	do.	ZT _a

TABELLE 3 / Fortsetzung

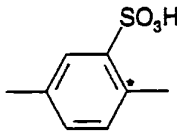
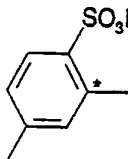
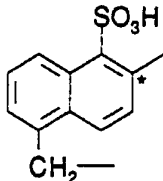
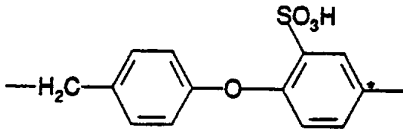
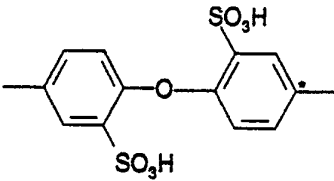
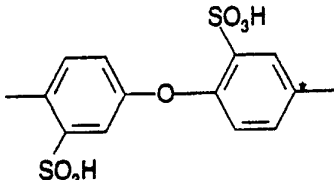
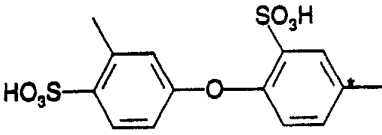
Bsp.Nr.	Z _d	DT ₃	Stellung -NR ₁ -	R ₁	Z _k	
5						
10	58	ZT _a		3	H	ZT _a
15	59	do.	do.	3	CH ₃	do.
	60	do.	do.	3	H	ZT _b
	61	ZT _b	do.	2	H	ZT _a
20						
	62	ZT _a		3	H	do.
25	63	ZT _b	do.	3	CH ₃	do.
	64	ZT _c	do.	2	H	do.
30						
	65	ZT _a		3	H	do.
35						
40	66	do.		2	H	do.
45	67	do.	do.	3	H	ZT _b
50	68	ZT _a		3	H	ZT _a
55	69	ZT _b	do.	3	CH ₃	do.
60						
65						

TABELLE 3 / Fortsetzung

Bsp.Nr.	Z _d	DT ₃	Stellung -NR ₁ -	R ₁	Z _k
70	ZT _a		3	H	ZT _a
71	do.	do.	3	CH ₃	do.
72	do.		2	H	do.
73	do.	do.	3	H	ZT _c

In der folgenden Tabelle 4 ist jedes mit * markierte C-Atom in der Kolonne unter DT₄ an die Azo-
gruppe in Formel (T4) geknüpft; und jedes mit * markierte N-Atom in der Kolonne unter -W₁- ist an ein
C-Atom des Triazinringes in Formel (T4) gebunden.

TABELLE 4 / Verbindungen der Formel (T4)

Beispiele 74-96

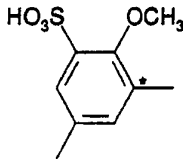
Bsp.Nr.	DT ₄	Hal	-W ₁ -	ZT ₄	Stellung -NR ₁ -	R ₁
74		Cl	$\text{--}^*\text{NHCH}_2\underset{\text{CH}_3}{\text{CHNH}}\text{--}$	ZT _a	3	H
75	do.	Cl	do.	ZT _b	2	H
76	do.	Cl	$\text{--NHCH}_2\underset{\text{OH}}{\text{CHCH}_2}\text{NH--}$	ZT _a	3	CH ₃
77	do.	Cl	$\text{--}^*\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\underset{\text{CH}_3}{\text{N--}}$	do.	3	H

TABELLE 4 / Fortsetzung

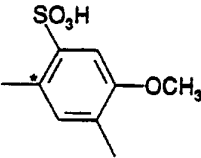
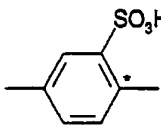
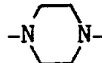
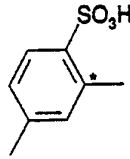
Bsp.Nr.	DT ₄	Hal	-W ₁ -	ZT ₄	Stellung -NR ₁ -	R ₁
5						
10						
78		Cl	$\text{--}^*\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{N--}$ CH ₃	ZT _a	3	CH ₃
79	do.	F	do.	ZT _c	3	H
20						
80		Cl	$\text{--NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH--}$	ZT _a	3	H
81	do.	Cl	do.	ZT _b	2	H
25						
82	do.	Cl		ZT _c	3	H
30						
83	do.	Cl	do.	ZT _a	3	H
35						
84	do.	Cl	$\text{--}^*\text{NHCH}_2\text{CHNH--}$ CH ₃	do.	3	H
85	do.	F	do.	do.	3	H
40						
86	do.	Cl	$\text{--NHCH}_2\text{CHCH}_2\text{NH--}$ OH	do.	3	H
45						
87	do.	Cl	do.	ZT _b	3	H
50						
88		Cl	$\text{--NHCH}_2\text{CHCH}_2\text{NH--}$ OH	ZT _a	3	H
89	do.	Cl	$\text{--}^*\text{NHCH}_2\text{CHNH--}$ CH ₃	do.	3	CH ₃
55						
90	do.	Cl	do.	do.	2	H
91	do.	Cl	$\text{--}^*\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{N--}$ CH ₃	ZT _c	3	H
60						
92	do.	Cl	do.	ZT _b	2	H

TABELLE 4 / Fortsetzung

Bsp.Nr.	DT ₄	Hal	-W ₁ -	ZT ₄	Stellung -NR ₁ -	R ₁
---------	-----------------	-----	-------------------	-----------------	--------------------------------	----------------

5

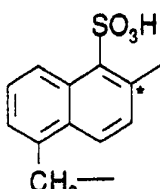
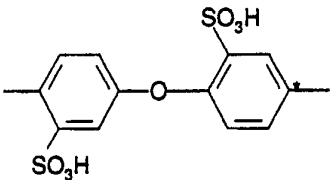
10

15

20

25

30

93		Cl	$\text{---}^*\text{NHCH}_2\underset{\text{CH}_3}{\text{CHNH}}\text{---}$	ZT _a	3	H
94	do.	Cl	$\text{---NHCH}_2\underset{\text{OH}}{\text{CHCH}_2\text{NH}}\text{---}$	ZT _b	3	H
95		Cl	do.	ZT _a	3	H
96	do.	Cl	$\text{---}^*\text{NHCH}_2\underset{\text{CH}_3}{\text{CHNH}}\text{---}$	ZT _c	2	H

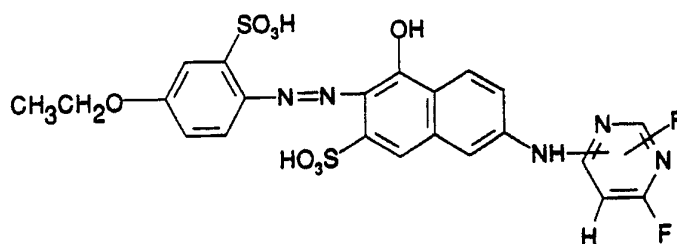
Beispiel 97

47,8 Teile 2-Amino-5-hydroxynaphthalin-7-Sulfonsäure werden mit 19,4 Teilen 2,4,6-Trifluorpyrimidin gemäß der in Stufe 1 von Beispiel 1 beschriebenen Methode umgesetzt.

Die so erhaltene Suspension wird bei 0-5° zu einer auf üblichem Wege aus 43,4 Teilen 2-Amino-5-Äthoxybenzolsulfonsäure hergestellten Diazoniumsalzlösung gestürzt. Der pH des Reaktionsgemisches wird durch Zusatz von 15%iger Natriumcarbonatlösung bei 7,0-7,5 gehalten. Nach beendeter Kupplung wird der Farbstoff mit Natriumchlorid ausgesalzen, abfiltriert und bei 50° im Vakuum getrocknet. Der Farbstoff hat die Formel (angeführt als freie Säure)

45

50



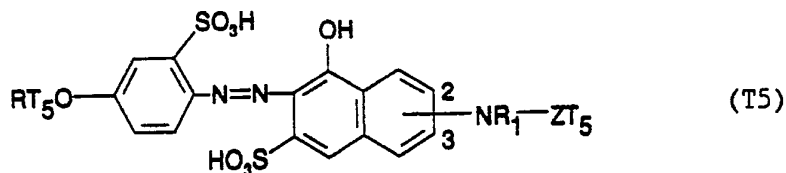
55

und ergibt auf Baumwolle scharlachrote Färbungen, die gute Licht- und Nassechtheiten aufweisen und beständig sind gegen oxidative Einflüsse.

Beispiele 98-108

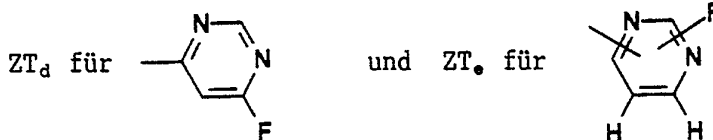
Analog der in Beispiel 97 beschriebenen Methode können unter Einsatz der entsprechenden Ausgangsmaterialien weitere Verbindungen der Formel I hergestellt werden, die in der folgenden Tabelle 5 aufgelistet sind. Die Verbindungen entsprechen der Formel (T5),

65



worin die einzelnen Symbole die in der Tabelle 5 angeführten Bedeutungen haben.

10 In Tabelle 5 werden zusätzlich zu ZT_a, das wie oben definiert ist, die folgenden Symbole ZT_d und ZT_e verwendet, wobei



20 stehen.

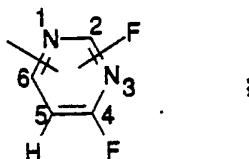
Mit den Farbstoffen der Beispiele 98–108 können Substrate, welche aus Cellulosefasern bestehen oder diese enthalten, und insbesondere Textilmaterial aus Baumwolle in orangen bis scharlachroten Tönen nach üblichen Auszieh- und Druckverfahren gefärbt oder bedruckt werden. Die erhaltenen Färbungen und Drucke auf Baumwolle zeigen gute Lichtechtheit und gute Nassechtheiten und sind beständig gegen oxidative Einflüsse.

TABELLE 5
Verbindungen der Formel (T5) Beispiele 98–108

Bsp. Nr.	RT ₅	R ₁	Stellung -NR ₁ -	ZT ₅
98	-CH ₂ CH ₃	CH ₃	3	ZT _a
99	-CH ₂ CH ₃	H	2	ZT _a
100	-CH ₂ CH ₃	H	3	ZT _d
101	-CH ₂ CH ₃	CH ₃	2	ZT _a
102	-CH ₂ CH ₃	CH ₃	3	ZT _d
103	-CH ₂ CH ₃	H	3	ZT _e
104	-CH ₂ CH ₂ OH	H	2	ZT _a
105	-CH ₂ CH ₂ OSO ₃ H	CH ₃	3	ZT _a
106	-CH ₂ CH ₂ OSO ₃ H	H	2	ZT _a
107	-CH ₂ CH ₂ OCH ₂ CH ₂ OH	H	3	ZT _a
108	-CH ₂ CH ₂ OCH ₂ CH ₂ OH	H	2	ZT _a

50 Gemäss der in den Beispielen 1, 2 und 97 beschriebenen Methode werden die Farbstoffe der Beispiele 1 bis 108 als Natriumsalze erhalten. Sie können in Abhängigkeit von den gewählten Umsetzungs- und Isolierungsbedingungen oder auch durch nachträgliche Massnahmen in an sich bekannter Weise in Form der freien Säure oder in einer anderen Salzform oder auch gemischten Salzform hergestellt werden und dann beispielsweise eines oder mehrere der in der Beschreibung weiter aufgeführten Kationen enthalten.

55 Wie bereits in der Beschreibungseinleitung erwähnt, enthalten die Farbstoffe der vorstehenden Beispiele zwei isomere Verbindungen betreffend den Rest der Formel



65 eine Verbindung, in welcher der nicht-fixierte Fluorsubstituent im Pyrimidinring sich in 2-Stellung befindet.

det, und die entsprechende Verbindung, in welcher sich dieser Fluorsubstituent in 6-Stellung befindet. Analoges gilt auch für die Reste ZT_b , ZT_d und ZT_e , welche in zwei entsprechenden isomeren Formen vorliegen hinsichtlich des nicht-fixierten Fluor- bzw. Chlorsubstituenten. Das herstellungsbedingt anfallende Gemisch isomerer Farbstoffe kann als solches in üblichen Färbe- und Druckverfahren verwendet werden. Eine Auftrennung in die einzelnen Isomere ist normalerweise nicht erforderlich. Nachstehend sind Anwendungsmöglichkeiten der beschriebenen Farbstoffe illustriert.

Anwendungsvorschrift A

In ein Färbebad, das in 100 Teilen entmineralisiertem Wasser 0,3 Teile des Farbstoffes aus Beispiel 1 und 8 Teile Glaubersalz (kalziniert) enthält, werden bei 50° 10 Teile Baumwollgewebe (gebleicht) eingetragen. Nach 30 Minuten bei 50° erfolgt der Zusatz von 0,4 Teilen Soda (kalziniert), wobei die Temperatur bei 50° gehalten wird. Man erhöht dann die Temperatur auf 60° und lässt während einer Stunde bei 60° weiterfärben. Anschliessend wird das gefärbte Material 3 Minuten in fliessendem kaltem Wasser, dann 3 Minuten in fliessendem heissem Wasser gespült. Die Färbung wird während 15 Minuten in 500 Teilen entmineralisiertem Wasser in Gegenwart von 0,25 Teilen Marseiller Seife kochend gewaschen. Nach dem Spülen in fliessendem Wasser (3 Minuten heiss) wird zentrifugiert und die Färbung im Trockenschrank bei ca. 70° getrocknet. Man erhält eine tieforange Baumwollfärbung von guten Echtheiten, die insbesondere gut licht- und nassecht sowie stabil ist gegenüber oxidativen Einflüssen.

Anwendungsvorschrift B

Einem Färbebad, das 10 Teile Glaubersalz (kalziniert) in 100 Teilen entmineralisiertem Wasser enthält, werden 10 Teile Baumwollmaterial (gebleicht) zugesetzt. Das Bad wird innerhalb von 10 Minuten auf 50° aufgeheizt, sodann werden 0,5 Teile des Farbstoffes aus Beispiel 1 zugefügt. Nach weiteren 30 Minuten bei 50° wird 1 Teil Soda (kalziniert) zugegeben, anschliessend wird die Temperatur auf 60° erhöht und noch 45 Minuten lang bei 60° weitergefärbt.

Das gefärbte Material wird mit fliessendem kaltem Wasser, dann mit heissem Wasser gespült und analog wie für Vorschrift A angeführt kochend gewaschen. Nach dem Spülen und Trocknen wird eine tieforange Baumwollfärbung erhalten, welche die in Vorschrift A angeführten Eigenschaften besitzt.

Auf analoge Weise wie in den Vorschriften A und B beschrieben können auch die Farbstoffe der Beispiele 2–108 oder Farbstoffgemische der Beispiele 1–108 zum Färben verwendet werden. Die erhaltenen orange- bis scharlachroten Färbungen besitzen gute Echtheitseigenschaften.

Anwendungsvorschrift C

Eine Druckpaste mit den Bestandteilen

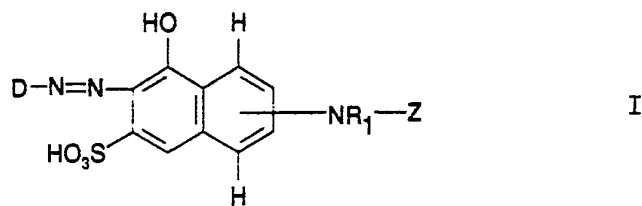
40	Teile des Farbstoffes aus Beispiel 1
100	Teile Harnstoff
350	Teile Wasser
500	Teile einer 4%igen Natriumalginatverdickung
10	Teile Natriumbicarbonat
1000	Teile insgesamt

wird auf Baumwollmaterial nach den üblichen Druckverfahren aufgebracht. Das bedruckte Material wird 4–8 Minuten bei 102–104° gedämpft und dann kalt und heiss gespült. Anschliessend wird das fixierte Baumwollmaterial kochend gewaschen (analog Vorschrift A) und getrocknet. Der erhaltene orange Druck zeigt gute Allgemeinechtheiten.

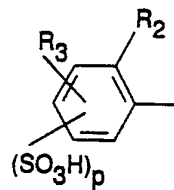
Analog der Vorschrift C können auch die Farbstoffe der Beispiele 2–108 oder Farbstoffmischungen der Beispiele 1–108 für das Bedrucken von Baumwolle eingesetzt werden. In allen Fällen werden orange- bis scharlachrote Drucke mit guten Echtheitseigenschaften erhalten.

Patentansprüche

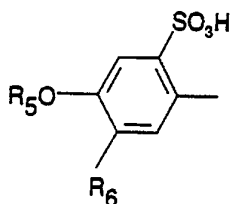
1. Verbindungen der Formel I



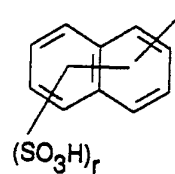
10 und deren Salze, worin
jedes R₁ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁₋₄Alkyl oder substituiertes C₁₋₄Alkyl,
D für einen der Reste (a) bis (f) steht,



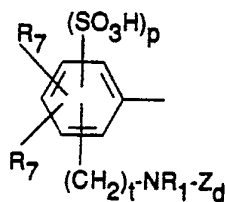
(a)



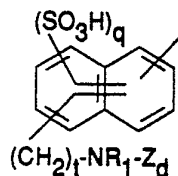
(b)



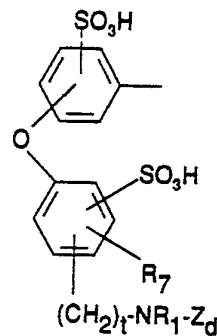
(c)



(d)



(e)



(f)

55 worin

R₂ Wasserstoff, C₁₋₄Alkyl oder C₁₋₄Alkoxy,

R₃ Wasserstoff, C₁₋₄Alkyl, Carboxy oder -O-A₁-OR₄,

A₁ C₂₋₄Alkylen,

R₄ Wasserstoff, Sulfo, C₁₋₄Alkyl oder C₂₋₄Hydroxyalkyl,

R₅ C₂₋₄Alkyl,

R₆ Wasserstoff oder Sulfo, und

jedes R₇ unabhängig voneinander Wasserstoff, C₁₋₄Alkyl, C₁₋₄Alkoxy oder Carboxy bedeuten;

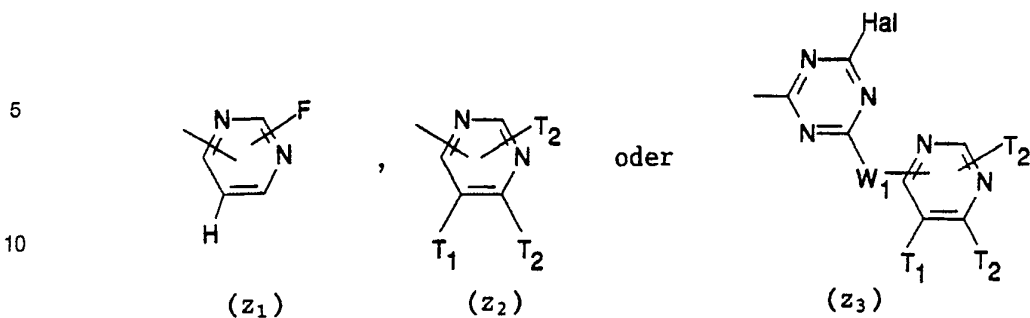
jedes p für 0, 1 oder 2,

q für 1 oder 2,

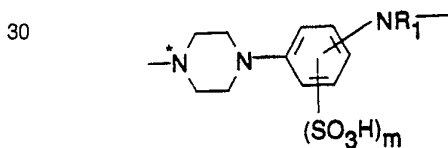
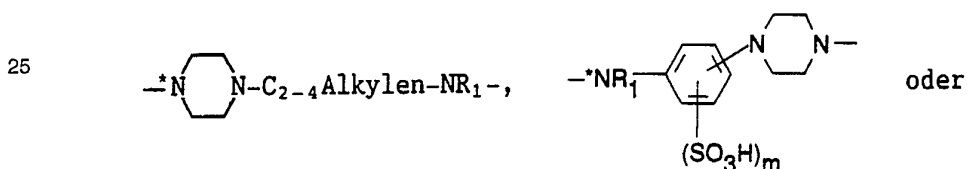
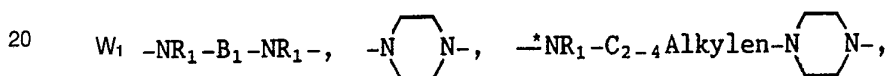
r für 1, 2 oder 3, und

t für 0 oder 1;

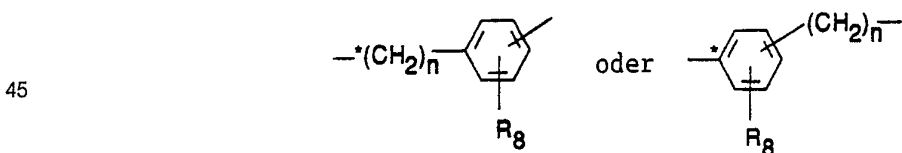
jedes Z und Z_d unabhängig voneinander für (z₁), (z₂) oder (z₃)



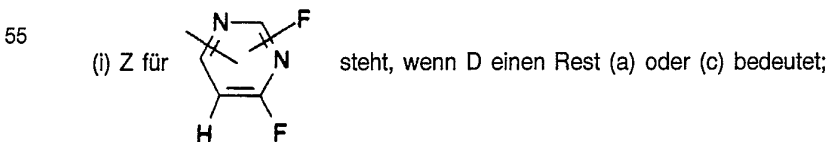
15 stehen, worin
 T₁ Wasserstoff, Chlor oder Cyan bedeutet,
 beide Reste T₂ die gleiche Bedeutung haben und jedes T₂ für Fluor oder Chlor steht,
 Hal Fluor oder Chlor, und



35 jedes m unabhängig voneinander für 0 oder 1 steht und das mit * markierte N-Atom am C-Atom des
 Triazinringes gebunden ist,
 B₁ C₂₋₄Alkylen; -C₂₋₃Alkylen-Q-C₂₋₃Alkylen-, worin Q für -O- oder -NR₁- steht; durch Hydroxy mono-
 40 substituiertes C₃₋₄Alkylen,

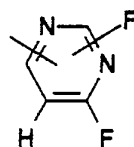


bedeutet, worin
 50 n für 0 oder eine Zahl 1 bis 4 und
 R₈ für Wasserstoff, C₁₋₄Alkyl, C₁₋₄Alkoxy, Carboxy oder Sulfo stehen und das mit * markierte C-Atom
 an die NR₁-Gruppe gebunden ist, welche am C-Atom des Triazinringes gebunden ist;
 mit der Massgabe, dass



60 (ii) Z für (z₁) oder (z₂) steht, wenn D einen Rest (b) bedeutet; und
 (iii) jedes Z und Z_d, wenn D einen Rest (d), (e) oder (f) bedeutet, unabhängig voneinander für (z₂)

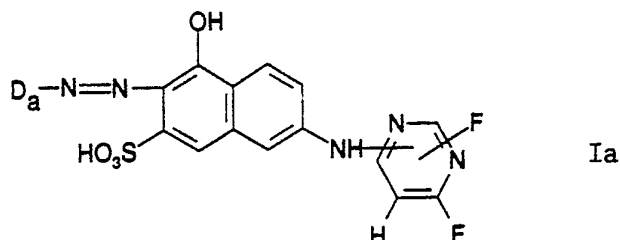
oder (z₃) steht, und mindestens eines von Z und Z_d für



steht.

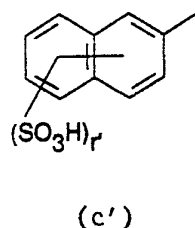
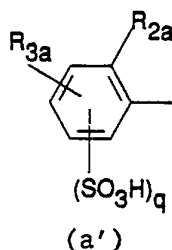
2. Gemische von Verbindungen der Formel I nach Anspruch 1.

3. Verbindungen nach Anspruch 1, die der Formel Ia entsprechen,



Ia

und Salze davon, worin
D_a einen Rest (a') oder (c') bedeutet,



in welchem

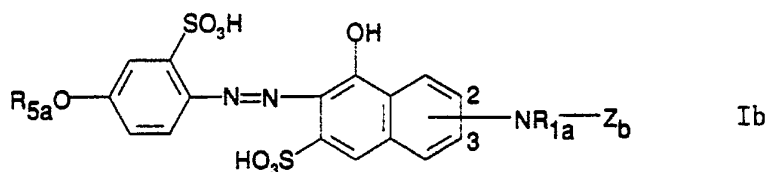
R_{2a} für Wasserstoff, Methyl oder Methoxy,

R_{3a} für Wasserstoff, Methyl, Carboxy oder -OA₁-OR_{4a}, worin A₁ C₂₋₃Alkylen und R_{4a} Wasserstoff, Sulfo, Methyl, Äthyl oder C₂₋₃Hydroxyalkyl bedeuten;

q für 1 oder 2, und

r' für 2 oder 3 stehen.

4. Verbindungen nach Anspruch 1, die der Formel Ib entsprechen,



Ib

und Salze davon, worin

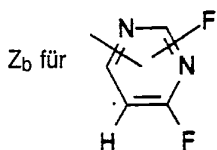
R_{1a} für Wasserstoff, Methyl, Äthyl oder 2-Hydroxyäthyl,

R_{5a} für C₂₋₃Alkyl, und

Z_b für einen Rest (z₁) oder (z₂) stehen, der wie in Anspruch 1 definiert ist,

und der Rest -NR_{1a}-Z_b in Stellung 2 oder 3 des Naphthylrings gebunden ist.

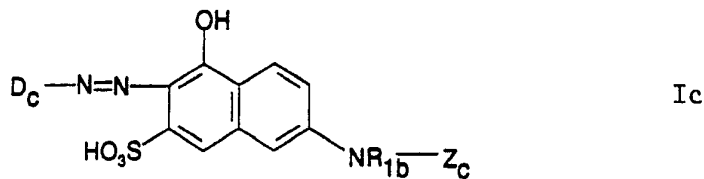
5. Verbindungen nach Anspruch 4, worin R_{1a} für Wasserstoff oder Methyl, R_{5a} für Äthyl und



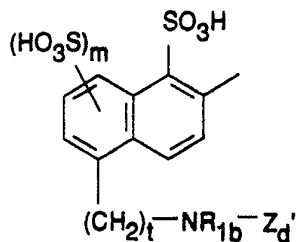
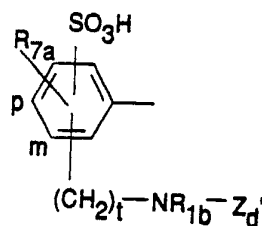
Z_b für

stehen, und der Rest -NR_{1a}-Z_b in 3-Stellung des Naphthylrings gebunden ist.

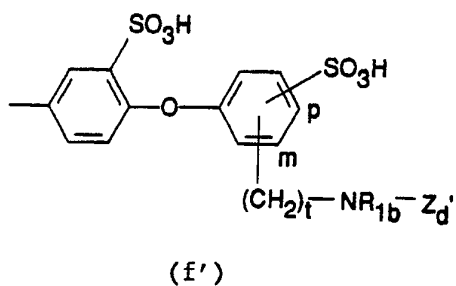
6. Verbindungen nach Anspruch 1, die der Formel Ic entsprechen,



10 und Salze davon, worin
Dc für einen Rest (d'), (e') oder (f') steht,

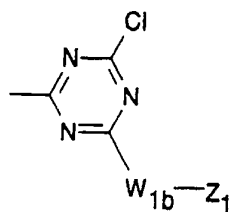


oder



30 worin
R7a für Wasserstoff, Methyl oder Methoxy,
m für 0 oder 1, und
t für 0 oder 1 stehen,
und der Rest $-(CH_2)_t-NR_{1b}-Z_{d'}$ in (d') sich in m- oder p-Position zur Azogruppe, und derjenige in (f')
35 sich in m- oder p-Position zu $-O-$ befinden;
jedes R1b unabhängig voneinander Wasserstoff oder Methyl,
jedes Zc und Zd' unabhängig voneinander einen Rest (z2) oder (z3'), wobei (z2) wie in Anspruch 1 defi-

niert ist und (z3') die Formel

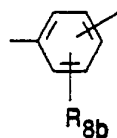


hat, worin

55 Z1 einen Rest (z2), und

60 W1b $-NR_{1b}-B_{1b}-NR_{1b}-$ oder $-N$  $-N-$ bedeuten, in welchem B1b für

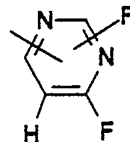
C₂-3-Alkylen, -CH₂CH₂-NR_{1b}-CH₂CH₂-, -CH₂CH(OH)CH₂- oder



und R_{8b} für Wasser-

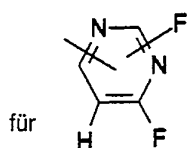
stoff oder Sulfo stehen;

mit der Massgabe, dass mindestens einer der Reste Z_c und Z_d' für



steht.

7. Verbindungen nach Anspruch 6, worin einer der Reste Z_c und Z_d'

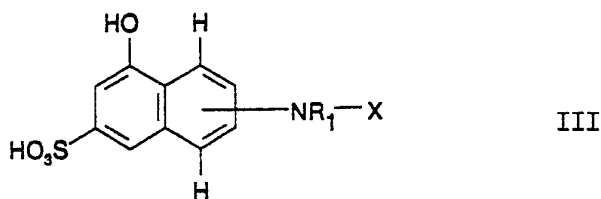


für , und der andere für den Rest (Z₃') stehen.

8. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel I, definiert in Anspruch 1, oder Gemischen davon, dadurch gekennzeichnet, dass man das Diazoniumsalz eines Amins der Formel II

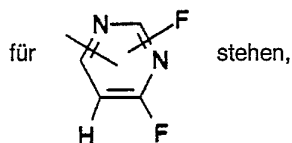
D-NH₂ II

worin D wie in Anspruch 1 definiert ist, auf eine Verbindung der Formel III,



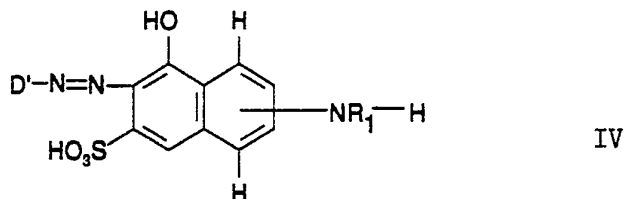
worin R₁ wie in Anspruch 1 definiert ist, und X Wasserstoff oder einen Rest Z, der wie in Anspruch 1 definiert ist, kuppelt, und im Falle, dass X Wasserstoff bedeutet, anschliessend das erhaltene Kupplungsprodukt mit einer Verbindung der Formel Z-Hal, worin Hal für Fluor oder Chlor steht, umsetzt.

9. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel I, definiert in Anspruch 1, worin D für einen Rest (d), (e) oder (f), definiert in Anspruch 1, und Z und Z_d beide



für stehen,

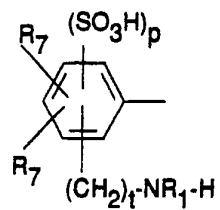
dadurch gekennzeichnet, dass man 1 Mol einer Verbindung der Formel IV,



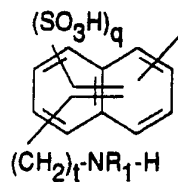
worin R₁ wie in Anspruch 1 definiert ist und D' für einen Rest

5

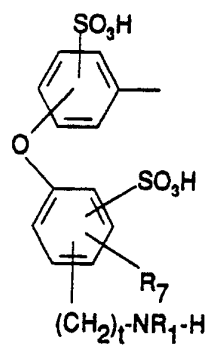
10



,



oder



15

steht, R_1 , jedes R_7 , p , q und t wie in Anspruch 1 definiert sind, mit mindestens 2 Mol 2,4,6-Trifluorpyrimidin kondensiert.

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65