



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 18 605 T2 2005.09.15**

(12)

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 0 957 096 B1

(51) Int Cl.⁷: **C07D 251/20**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **699 18 605.6**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **99 303 577.3**

(96) Europäischer Anmeldetag: **07.05.1999**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **17.11.1999**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **14.07.2004**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **15.09.2005**

(30) Unionspriorität:
12748798 11.05.1998 JP

(84) Benannte Vertragsstaaten:
DE, ES, FR, GB, IT

(73) Patentinhaber:
Sumitomo Chemical Co. Ltd., Tokio/Tokyo, JP;
Taiho Pharmaceutical Co. Ltd., Tokio/Tokyo, JP

(72) Erfinder:
Sugi, Mitsuyo, Osaka-shi, Osaka, JP; Igi, Masami, Osaka-shi, Osaka, JP

(74) Vertreter:
Vossius & Partner, 81675 München

(54) Bezeichnung: **Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelebt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

Hintergrund der Erfindung

Fachgebiet der Erfindung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat. Insbesondere betrifft sie ein Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat ohne Verwendung von Verbindungen, die nachteilige Wirkung auf die Umwelt aufweisen.

Stand der Technik

[0002] Kaliumoxonat ist eine Verbindung, die zur Milderung von Nebenwirkungen, die sich aus der Verwendung eines Antikrebsmittels des 5-Fluoruraciltyps ergeben, und Erkrankungen des Verdauungstrakts, wie Diarröe und Stomatitis, geeignet ist und die als Formulierungsbestandteil des Antikrebsmittels des 5-Fluoruraciltyps wirksam ist.

[0003] Kaliumoxonat wurde herkömmlich auf folgende Weise hergestellt: Allantoin oder Harnsäure wird in einer wässrigen Kaliumhydroxidlösung gelöst, dann wird eine oxidative Zersetzung mit Oxidationsmitteln, wie Kaliumpermanganat, Mangandioxid und Wasserstoffperoxid, durchgeführt, gefolgt von Entfernen der unlöslichen Substanz und Durchführen einer Behandlung, wie Ausfällen mit Säure [JP-A-60-36463, Journal of American Chemical Society [J. Am. Chem. Soc.] 77, 1051–1052 (1955)].

[0004] Jedoch kann ein solches herkömmliches Verfahren, das Kaliumpermanganat und Mangandioxid als Oxidationsmittel verwendet, die Umwelt nachteilig beeinflussen. Demgemäß war die Entwicklung eines Herstellungsverfahrens für Kaliumoxonat, das diese Verbindungen nicht verwendet, in den letzten Jahren erwünscht. Herkömmliche Verfahren, die Wasserstoffperoxid als Oxidationsmittel verwenden, weisen ebenfalls einen Nachteil insofern auf, als die Ausbeute des erhaltenen Kaliumoxonats extrem niedrig ist.

[0005] Als Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat ohne Verwendung von Manganverbindungen wurde ein Verfahren vorgeschlagen, in dem Biuret und Kaliummethyloxalat eine Kondensation und Cyclisierung in Gegenwart des Kaliummethoxid-Katalysators in Ethanol eingehen [Nucleic Acid Chemistry [Nucl. Acid Chem.] 1, 93–95, (1978)].

[0006] Jedoch erfordert das Verfahren die Verwendung der teuren Verbindung, Biuret und Kaliummethyloxalat, als Ausgangssubstanzen. So ist das kein bevorzugtes Verfahren in Bezug auf die Kosteneffizienz.

[0007] Die vorliegende Erfindung wurde im Hinblick auf die Lösung der vorstehenden Probleme erlangt.

Zusammenfassung der Erfindung

[0008] Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist, ein Verfahren bereitzustellen, das in der Lage ist, Kaliumoxonat mit hoher Kosteneffizienz im industriellen Maßstab ohne nachteilige Beeinflussung der Umwelt bereitzustellen.

[0009] Demgemäß stellt die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat bereit, das das Oxidieren von Allantoin, das in einer wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder einer wässrigen Kaliumcarbonatlösung gelöst ist, mit einem Alkalimetallhypohalogenit in der Gegenwart von Kaliumiodid umfasst.

[0010] Detaillierte Beschreibung der bevorzugten Ausführungsformen Gemäß dem Verfahren der vorliegenden Erfindung wird Kaliumoxonat vorzugsweise auf folgende Weise hergestellt. Zuerst wird Allantoin in einer wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder einer wässrigen Kaliumcarbonatlösung gelöst und dann wird das Allantoin durch eine wässrige Lösung von Alkalimetallhypohalogenit in der Gegenwart von Kaliumiodid oxidiert.

[0011] Wie vorstehend angegeben wird in der vorliegenden Erfindung zuerst Allantoin in einer wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder einer wässrigen Kaliumcarbonatlösung gelöst.

[0012] Allantoin kann zu einer wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder einer wässrigen Kaliumcarbonatlösung gegeben werden. In einer anderen Ausführungsform können Allantoin und Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat zugegeben und in Wasser gleichzeitig gelöst werden, oder Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat können

zu einer wässrigen Dispersion von Allantoin gegeben werden, um das Allantoin zu lösen, sofern die Temperatur so gesteuert wird, dass keine Zersetzung des Allantoins bewirkt wird.

[0013] Im Allgemeinen liegt die Konzentration von Kaliumhydroxid in der wässrigen Kaliumhydroxidlösung vorzugsweise im Bereich von etwa 1 bis 50%. Ebenfalls liegt im Allgemeinen die Konzentration des Kaliumcarbonats in der wässrigen Kaliumcarbonatlösung vorzugsweise im Bereich von etwa 1 bis 50%.

[0014] Im Allgemeinen kann Allantoin geeignet in einer Menge im Bereich von etwa 1 bis 400 Gew.-Teilen, bezogen auf 100 Gew.-Teile Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat, verwendet werden, obwohl das Verhältnis von Allantoin zu Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat keine besondere Einschränkung aufweist.

[0015] Wenn die Temperatur der wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder der wässrigen Kaliumcarbonatlösung, in der Allantoin zu lösen ist, zu gering ist, sind längere Zeiträume zum Lösen des Allantoins erforderlich. Daher sollten die Temperaturen der Lösungen vorzugsweise etwa 0°C oder höher sein. Andererseits wird, wenn die Temperaturen dieser Lösungen zu hoch sind, eine Zersetzung des in der alkalischen wässrigen Lösung gelösten Allantoins beobachtet. Daher sollten die Temperaturen dieser Lösungen vorzugsweise etwa 10°C oder geringer sein.

[0016] In der vorliegenden Erfindung wird Kaliumiodid ebenfalls zur wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder wässrigen Kaliumcarbonatlösung gegeben, in der das Allantoin gelöst wurde oder zu lösen ist. Das Kaliumiodid kann zur Lösung gleichzeitig mit der Zugabe des Allantoins gegeben werden. Allantoin, Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat und das Kaliumiodid können in jeder Reihenfolge oder gleichzeitig zugegeben und in Wasser gelöst werden, sofern die Temperatur so gesteuert wird, dass keine Zersetzung des Allantoins bewirkt wird.

[0017] Eine der Haupteigenschaften der vorliegenden Erfindung liegt in der Verwendung von Kaliumiodid. D.h. die Verwendung von Kaliumiodid ergibt eine ausgezeichnete Wirkung einer verbesserten Reaktionsgeschwindigkeit durch Ionenaustausch und Verstärkung der Oxidationskraft.

[0018] Im Allgemeinen wird Kaliumiodid vorzugsweise in einer Menge von etwa 0,01 mol oder mehr, pro Mol Allantoin, im Hinblick auf die Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit verwendet, während es vorzugsweise in einer Menge von etwa 0,1 mol oder weniger, pro Mol des Allantoins im Hinblick auf die Kosteneffizienz und Steuerbarkeit der Reaktion verwendet wird.

[0019] Vor Durchführen der anschließenden Oxidationsreaktion beträgt die Temperatur der erhaltenen wässrigen Lösung, die Allantoin, Kaliumiodid und Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat enthält, vorzugsweise etwa 0°C oder mehr im Hinblick auf die Löslichkeit des Allantoins und des Kaliumiodids, während sie vorzugsweise etwa 10°C oder weniger im Hinblick auf die Stabilität des Allantoins in der alkalischen wässrigen Lösung beträgt.

[0020] Nach Zugabe von Kaliumiodid zur Lösung wird das Allantoin durch ein Alkalimetallhypohalogenit in der Lösung oxidiert.

[0021] Zum Durchführen der Oxidation von Allantoin mit einem Alkalimetallhypohalogenid wird zum Beispiel ein Alkalimetallhypohalogenit zur wässrigen Lösung gegeben, in der Allantoin, Kaliumiodid und Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat gelöst sind (nachstehend als „Verfahren A“ bezeichnet); oder es wird ein Halogen in die wässrige Lösung eingebracht, in der Allantoin, Kaliumiodid und Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat gelöst sind (nachstehend als „Verfahren B“ bezeichnet). Wenn ein Halogen in die wässrige Lösung eingebracht wird, wird ein Alkalimetallhypohalogenit in der Lösung erzeugt.

[0022] Beispiele des im Verfahren A zu verwendenden Alkalimetallhypohalogenits schließen Kaliumhypochlorit, Natriumhypochlorit, Kaliumhypobromit, Natriumhypobromit, Kaliumhypoiodit und Natriumhypoiodit ein. Unter diesen Verbindungen werden Kaliumhypochlorit, Kaliumhypobromit und Natriumhypochlorit in der vorliegenden Erfindung vorzugsweise verwendet. Das Alkalimetallhypohalogenit wird vorzugsweise als eine wässrige Lösung davon zugegeben. Wenn das Alkalimetallhypohalogenit als eine wässrige Lösung davon zugegeben wird, liegt im Allgemeinen die Konzentration des Alkalimetallhypohalogenits in der wässrigen Lösung vorzugsweise im Bereich von etwa 5 bis 20 Gew.-%.

[0023] Im Allgemeinen ist die zu verwendende Menge an Alkalimetallhypohalogenit vorzugsweise die stöchiometrische Menge, d.h. 1 mol oder mehr, pro Mol Allantoin. Ebenfalls beträgt sie vorzugsweise 4 mol oder weniger im Hinblick auf die Förderung der Oxidationsreaktion von Allantoin mit dem Alkalimetallhypohalogenit in

der alkalischen wässrigen Lösung und Reduktion der Menge der Abfallflüssigkeit nach Beendigung der Reaktion.

[0024] Wenn die wässrige Lösung von Alkalimetallhypohalogenit zugegeben wird, beträgt die Temperatur der Lösung vorzugsweise etwa 0°C oder mehr im Hinblick auf die Erhöhung der Reaktivität. Ebenfalls beträgt sie vorzugsweise etwa 10°C oder weniger im Hinblick auf die Stabilität von Allantoin in der alkalischen wässrigen Lösung und die Steuerbarkeit der exothermen Wärme bei der Oxidation von Allantoin in der Lösung.

[0025] Beispiele des im Verfahren B zu verwendenden Halogens schließen Chlor, Brom und Iod ein. Unter diesen Halogenen werden in der vorliegenden Erfindung Chlor und Brom vorzugsweise verwendet.

[0026] Wenn das Halogen ein Gas ist, kann das Halogen in die Lösung eingeblasen werden. Wenn das Halogen eine Flüssigkeit ist, kann das Halogen geeignet zur Lösung getropft werden. Wenn das Halogen ein Feststoff ist, kann das Halogen geeignet zugegeben und in der Lösung gelöst werden.

[0027] Im Allgemeinen ist die zu verwendende Menge des Halogens vorzugsweise die stöchiometrische Menge der Oxidationsreaktion, d.h. etwa 2 mol oder mehr, pro Mol Allantoin. Ebenfalls beträgt sie vorzugsweise etwa 8 mol oder weniger im Hinblick auf die Erleichterung der Behandlung nach vollständiger Umsetzung und Kosteneffizienz. Wenn das Halogen in die Lösung im Verfahren B eingebracht wird, beträgt die Temperatur vorzugsweise etwa 0°C oder mehr im Hinblick auf die Erhöhung der Reaktivität und vorzugsweise etwa 5°C oder weniger im Hinblick auf die Erhöhung der Stabilität von Allantoin in der alkalischen wässrigen Lösung und die Stabilität des Alkalimetallhypohalogenits, das durch Einbringen des Halogens erzeugt wird.

[0028] Nach der Zugabe eines Alkalimetallhypohalogenits im Verfahren A oder dem Einbringen eines Halogens im Verfahren A beträgt die Temperatur der erhaltenen Lösung vorzugsweise etwa 15°C oder mehr im Hinblick auf die Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit, während sie vorzugsweise etwa 30°C oder weniger im Hinblick auf die Erleichterung der Steuerung der Reaktion beträgt.

[0029] Danach wird die erhaltene Reaktionslösung neutralisiert und gekühlt, wobei Kaliumoxonat als kristalline Substanz erhalten wird. Beispiele der Verbindung, die zur Neutralisation der Reaktionslösung verwendet werden kann, schließen organische Säuren, wie Ameisensäure, Essigsäure, Propionsäure und Oxalsäure; und Mineralsäuren, wie Salzsäure und Schwefelsäure, ein. Im Allgemeinen liegt der pH-Wert nach der Neutralisation vorzugsweise im Bereich von etwa 5 bis 6.

[0030] Das erhaltene kristalline Kaliumoxonat wird vorzugsweise, falls erforderlich, mit kaltem Wasser, kaltem Aceton oder dgl. gewaschen, gefolgt von Trocknen.

[0031] Wie vorstehend beschrieben, kann gemäß dem Herstellungsverfahren der vorliegenden Erfindung Kaliumoxonat effizient hergestellt werden, ohne dass eine Manganverbindung erforderlich ist, die Umweltverschmutzung mit sich bringen kann.

[0032] Die vorliegende Erfindung wird im Einzelnen durch die Beispiele beschrieben, die nicht als Einschränkung des Bereichs der vorliegenden Erfindung aufgefaßt werden sollten.

Beispiel 1

[0033] In einen Kolben mit einem Volumen von 500 ml wurden 271 g 16,6%ige wässrige Kaliumhydroxidlösung gegeben. Dann wurden 15,8 g Allantoin und 0,79 g Kaliumiodid zugegeben und gelöst, während die Innentemperatur im Bereich von 0 bis 10°C gehalten wurde. Danach wurden 32,0 g Brom während etwa 2,5 Stunden mit einer solchen Geschwindigkeit zugetropft, dass die Innentemperatur auf 2 bis 5°C gehalten wurde.

[0034] Nach vollständiger Zugabe von Brom wurde die Innentemperatur auf 20°C erhöht, gefolgt von Rühren für etwa 22 Stunden. Dann wurde die Reaktionslösung mit 21,5 g Essigsäure auf einen pH-Wert von etwa 6 neutralisiert, um Kristalle auszufallen.

[0035] Anschließend wurde die Reaktionslösung auf etwa 5°C abgekühlt, gefolgt von 2 Stunden Rühren. Danach wurden die Kristalle abfiltriert und die erhaltenen Kristalle mit 66 ml kaltem Wasser und 22 ml kaltem Aceton nacheinander gewaschen.

[0036] Dann wurden die Kristalle getrocknet, wobei 13,7 g Kaliumoxonat erhalten wurden. Die Ausbeute des

erhaltenen Kaliumoxonats aus Allantoin betrug 70%.

[0037] Die physikalischen Eigenschaften des erhaltenen Kaliumoxonats sind nachstehend gezeigt.

IR (KBr) ν (cm⁻¹): 3170, 1750, 1720, 1655, 1622, 1490, 1395, 780

¹³C-NMR (100 MHz, schweres Wasser) δ (ppm): 160,06, 164,35, 158,63

Elementaranalyse:

theoretische Werte
beobachtete Werte

C 24,62%, H 1,03%, N 21,53%
C 24,73%, H 1,15%, N 21,83%

Beispiel 2

[0038] In einen Kolben mit einem Volumen von 500 ml wurden 15,8 g Allantoin, 118,5 ml Wasser, 13,9 g 85%iges Kaliumhydroxid und 0,79 g Kaliumiodid gegeben, gefolgt von Mischen und Lösen unter Halten der Innentemperatur auf 0 bis 5°C. Dann wurden 181,1 g einer im Handel erhältlichen wässrigen Lösung von Kaliumhypochlorit (Chlorgehalt in der Lösung: 5 bis 7%) während etwa 2,5 Stunden zugetropft, während die Innentemperatur auf 2 bis 5°C gehalten wurde.

[0039] Nach vollständiger Zugabe der wässrigen Lösung von Kaliumhypochlorit wurde die Innentemperatur auf 25°C erhöht, gefolgt von etwa 18,5 Stunden Rühren. Dann wurde die Reaktionslösung mit 9,17 g Essigsäure auf einen pH-Wert von etwa 6 neutralisiert, um Kristalle auszufällen. Anschließend wurde die Reaktionslösung auf etwa 5°C abgekühlt, gefolgt von 2 Stunden Rühren. Danach wurden die Kristalle abfiltriert und die erhaltenen Kristalle mit 66 ml kaltem Wasser und 22 ml kaltem Aceton nacheinander gewaschen und getrocknet, wobei 8,6 g Kaliumoxonat erhalten wurden. Die Ausbeute des erhaltenen Kaliumoxonats aus Allantoin betrug 44%. Ferner wurde festgestellt, dass die IR-Daten des erhaltenen Kaliumoxonats die gleichen wie in Beispiel 1 waren.

Beispiel 3

[0040] In einen Kolben mit einem Volumen von 500 ml wurden 15,8 g Allantoin, 118,5 ml Wasser, 13,9 g 85%iges Kaliumhydroxid und 0,79 g Kaliumiodid gegeben, gefolgt von Mischen und Lösen, während die Innentemperatur auf 0 bis 5°C gehalten wurde. Dann wurden 132,9 g einer im Handel erhältlichen wässrigen Lösung von Natriumhypochlorit (Chlorgehalt in der Lösung: etwa 5%) innerhalb etwa 2,5 Stunden zugetropft, während die Innentemperatur auf 2 bis 5°C gehalten wurde.

[0041] Nach vollständiger Zugabe der wässrigen Lösung von Natriumhypochlorit wurde die Innentemperatur auf 25°C erhöht, gefolgt von etwa 23 Stunden Rühren. Dann wurde die Reaktionslösung mit 11,28 g Essigsäure auf einen pH-Wert von etwa 6 neutralisiert, um Kristalle auszufällen. Anschließend wurde die Reaktionslösung auf etwa 5°C abgekühlt, gefolgt von 1 Stunde Rühren. Danach wurden die Kristalle abfiltriert und die erhaltenen Kristalle mit 66 ml kaltem Wasser und 22 ml kaltem Aceton nacheinander gewaschen und getrocknet, wobei 7,8 g Kaliumoxonat erhalten wurden. Die Ausbeute des erhaltenen Kaliumoxonats aus Allantoin betrug 40%. Es wurde festgestellt, dass die IR-Daten des erhaltenen Kaliumoxonats die gleichen wie in Beispiel 1 waren.

Beispiel 4

[0042] In einen Kolben mit einem Volumen von 500 ml wurden 271 g 16,6%ige wässrige Lösung von Kaliumhydroxid gegeben, die dann auf 0 bis 10°C abgekühlt wurde. Dann wurden 15,8 g Allantoin und 0,79 g Kaliumiodid zugegeben, gefolgt von Auflösen, während die Innentemperatur auf 0 bis 5°C gehalten wurde. Danach wurden 14,2 g Chlorgas in die alkalische Lösung von Allantoin während etwa 2,5 Stunden geblasen, während die Innentemperatur auf 2 bis 5°C gehalten wurde.

[0043] Nach vollständigem Einblasen von Chlorgas wurde die Innentemperatur auf 20°C erhöht, gefolgt von etwa 22 Stunden Rühren. Dann wurde die Reaktionslösung mit 21,5 g Essigsäure auf einen pH-Wert von etwa 6 neutralisiert, um Kristalle auszufällen.

[0044] Nach Eiskühlen wurde die Lösung 2 Stunden gerührt. Danach wurden die Kristalle abfiltriert und die erhaltenen Kristalle mit 66 ml kaltem Wasser und 22 ml kaltem Aceton nacheinander gewaschen und getrocknet, wobei 13,5 g Kaliumoxonat erhalten wurden. Die Ausbeute des erhaltenen Kaliumoxonats aus Allantoin

betrug 69%. Es wurde festgestellt, dass die IR-Daten des erhaltenen Kaliumoxonats die gleichen wie in Beispiel 1 waren.

Beispiel 5

[0045] In einen Kolben mit einem Volumen von 500 ml wurden 15,8 g Allantoin, 118,5 ml Wasser, 13,9 g 85%iges Kaliumhydroxid und 0,79 g Kaliumiodid gegeben, gefolgt von Mischen und Auflösen, während die Innentemperatur auf 0 bis 5°C gehalten wurde. Dann wurden 132,9 g 10%ige wässrige Lösung von Kaliumhypobromit, die vorher durch Zutropfen von Brom zu kalter Kaliumhydroxidlösung hergestellt worden war, während etwa 2,5 Stunden zugetropft, während die Innentemperatur auf 2 bis 5°C gehalten wurde.

[0046] Nach vollständiger Zugabe der wässrigen Lösung von Kaliumhypobromit wurde die Innentemperatur auf 25°C erhöht, gefolgt von etwa 23 Stunden Rühren. Dann wurde die erhaltene Reaktionslösung mit 11,28 g Essigsäure auf einen pH-Wert von etwa 6 neutralisiert, um Kristalle auszufällen.

[0047] Die Lösung, in der eine Kristallisation auftrat, wurde auf etwa 5°C abgekühlt, gefolgt von 1 Stunde Rühren. Danach wurden die erhaltenen Kristalle abfiltriert, mit 66 ml kaltem Wasser und 22 ml kaltem Aceton nacheinander gewaschen und getrocknet, wobei 12,7 g Kaliumoxonat erhalten wurden. Die Ausbeute des erhaltenen Kaliumoxonats aus Allantoin betrug 65%. Es wurde festgestellt, dass die IR-Daten des erhaltenen Kaliumoxonats die gleichen wie in Beispiel 1 waren.

Vergleichsbeispiel 1

[0048] In einen Kolben mit einem Volumen von 500 ml wurden 15,8 g Allantoin, 118,5 ml Wasser, 13,9 g 85%iges Kaliumhydroxid, 0,79 g Kaliumiodid und 11,9 g Kaliumbromid gegeben, gefolgt von Mischen und Auflösen, während die Innentemperatur auf 0 bis 5°C gehalten wurde. Dann wurden 9,7 g 35 %ige wässrige Wasserstoffperoxidlösung während etwa 2 Stunden dazu getropft, während die Innentemperatur auf 2 bis 5°C gehalten wurde.

[0049] Nach vollständiger Zugabe der wässrigen Wasserstoffperoxidlösung wurde die Innentemperatur auf 25°C erhöht. Die erhaltene Lösung wurde etwa 23 Stunden gerührt und weiter etwa 2,5 Stunden bei 35°C gerührt. Dann wurden 0,83 g Eisen(II)-sulfat-Heptahydrat bei 25°C zugegeben, gefolgt von 3 Stunden Rühren bei der gleichen Temperatur. Ferner wurden 9,7 g 35 %ige wässrige Wasserstoffperoxidlösung zur Reaktionslösung gegeben, gefolgt von etwa 25 Stunden Rühren. Dann wurde die erhaltene Reaktionslösung mit 6,85 g Essigsäure auf einen pH-Wert von etwa 6 neutralisiert, um Kristalle auszufällen. Danach wurden die erhaltenen Kristalle auf etwa 5°C abgekühlt, gefolgt von 1 Stunde Rühren. Dann wurden die Kristalle abfiltriert und die erhaltenen Kristalle mit 10 ml kaltem Wasser und 10 ml kaltem Aceton nacheinander gewaschen und getrocknet, wobei 0,39 g Kaliumoxonat erhalten wurden. Die Ausbeute des erhaltenen Kaliumoxonats aus Allantoin betrug 2%.

[0050] Gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat kann Kaliumoxonat im industriellen Maßstab mit wirtschaftlicher Effizienz ohne Verwendung von Verbindungen hergestellt werden, die die Umwelt nachteilig beeinflussen könnten.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Kaliumoxonat, das das Oxidieren von Allantoin, das in einer wässrigen Kaliumhydroxidlösung oder einer wässrigen Kaliumcarbonatlösung gelöst ist, mit einem Alkalimetallhypohalogenit in der Gegenwart von Kaliumiodid, umfasst.
2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei ein Alkalimetallhypohalogenit zu der wässrigen Lösung zugegeben wird, in der Allantoin, Kaliumiodid und Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat gelöst sind.
3. Verfahren nach Anspruch 1, wobei ein Halogen in die wässrige Lösung eingebracht wird, in der Allantoin, Kaliumiodid und Kaliumhydroxid oder Kaliumcarbonat gelöst sind.
4. Verfahren nach Anspruch 2, wobei das Alkalimetallhypohalogenit Kaliumhypochlorit, Kaliumhypobromit oder Natriumhypochlorit ist.
5. Verfahren nach Anspruch 3, wobei das Halogen Chlor, Brom oder Iod ist.

6. Verfahren nach Anspruch 2 oder 4, wobei das Alkalimetallhypohalogenit bei einer Temperatur von 0°C bis 10°C zugegeben wird und die Oxidation des Allantoins bei einer Temperatur von 15°C bis 30°C durchgeführt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 3 oder 5, wobei das Halogen bei einer Temperatur von 0°C bis 5°C eingebracht wird und die Oxidation des Allantoins bei einer Temperatur von 15°C bis 30°C durchgeführt wird.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen