



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY
A OBJEVY

POPIS VYNÁLEZU K AUTORSKÉMU OSVEDČENIU

227907

(11) (B1)

(51) Int. Cl.³

C 07 C 111/00

(22) Prihlásené 05 06 80
(21) (PV 3982-80)

(40) Zverejnené 27 02 81

(45) Vydané 15 05 86

(75)

Autor vynálezu

ZEMAN SVATOPLUK ing., MICHALOVCE, DIMUN MILAN ing., PRIEVIDZA

(54) Spôsob výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu

Vynález s názvom "Spôsob výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu" rieši výrobu titulnej zlúčeniny za Bachmannových podmienok v prostredí acetaldehydu a za prítomnosti močovino-formaldehydového kondenzátu, pričom sa v podstatnej miere ovplyvňuje výťažok a bezpečnosť procesu.

Vynález sa týka spôsobu výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu nitračným štiepením 1,5-*endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu* v prostredí acetanhydridu, pričom podmienky sú volené tak, že v značnej miere zvyšujú výťažok a bezpečnosť procesu.

Nitračné štiepenie 1,5-*endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu*, označovaného kódom DPT, na 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán, nazývaný tiež oktogén a bežne označovaný kódom HMX, je možné realizovať 99 %-nou kyselinou dusičnou, roztokom dusičnanu amónneho v dymavej kyseline dusičnej a naopak roztokom dusičnanu amónneho v dymavej kyseline dusičnej v prostredí acetanhydridu (E. Ju. Orlova a kol.: Oktogen - termostojkoje vzryvčatoje veščestvo; Izdat. Nedra. 1975).

Podobne ako pri nitrolýze hexametyléntetramínu i tu prítomnosť amóniových solí v reakčnej zmesi pôsobí priaznivo na vznik cyklických nitramínov, teda oktogénu. Takisto v tomto prípade nie je jednotnosť názorov na mechanizmus vplyvu amóniových solí pri nitrolýze (viď čs. autorské osvedčenie č. 227 903, č. 206 382, č. 227 905 a č. 227 906, E. Ju. Orlova a kol.: Oktogen - termostojkoje vzryvčatoje veščestvo. Izdat. Nedra, 1975).

Podľa najnovších poznatkov na vznik cyklických nitramínov pri nitrolýze hexametyléntetramínu priaznivo vplyva prítomnosť močoviny a/alebo močovinoformaldehydových kondenzátov, resp. aj iných amidov kyselín a ich derivátov (čs. autorské osvedčenie č. 227 903, č. 206 382, č. 227 905 a č. 227 906).

Močovina bola aplikovaná pri nitrolýze 1,5-diacetyl-3,7-*endometylén-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu* v prostredí kyseliny sírovej na 1,5-diacetyl-3,7-*dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán* (USA pat. spis č. 3 926 953), pri výrobe 1,5-*endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu* (čs. autorské osvedčenie č. 206 382) a pri výrobe 1,3,5-*trinitro-1,3,5-triazacyklohexánu* (čs. autorské osvedčenie č. 227 905), iné amidy kyselín, resp. ich deriváty, boli aplikované pri výrobe 1,3,5-*trinitro-1,3,5-triazacyklohexánu* nitrolýzou hexametyléntetramínu (čs. autorské osvedčenie č. 227 906).

Močovinoformaldehydové kondenzáty zvyšujú výťažnosť nitrolýzy hexametyléntetramínu na 1,3,5-*trinitro-1,3,5-triazacyklohexánu* (čs. autorské osvedčenie č. 227 903 a č. 227 905). Mechanizmus pôsobenia týchto aditív v procese nitračného štiepenia hexametyléntetramínu bol formou hypotézy naznačený v dvoch prácach (čs. autorské osvedčenie č. 227 903 a č. 227 905).

Ako vyplýva z publikovaných údajov (čs. patentový spis č. 97 100 a čs. autorské osvedčenie č. 227 903) prítomnosť močoviny a/alebo močovinoformaldehydových kondenzátov v nitrolýzačnej zmesi zvyšuje ich stálosť a teda aj bezpečnosť práce.

Podstatou spôsobu výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu nitračným štiepením 1,5-*endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu* v prostredí acetanhydridu podľa vynálezu je, že proces nitrolýzy sa uskutočňuje v prítomnosti močovinoformaldehydového kondenzátu pridaného v množstve 0,01 až 15,00 % hmot., s výhodou 1 až 10 % hmot., počítané na navážku 1,5-*endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu*.

Výhodou tohto vynálezu je zvýšenie výťažnosti procesu dostupným a bezpečným nitrolýzou zvyšujúcim aditívom, okrem toho za prítomnosti močovinoformaldehydového kondenzátu vzniká čistejší produkt, ako pri nitrolýze bez prídavku tohto aditíva. Uvedený nový a vyšší účinok v procese výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu nitrolýzou 1,5-*endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu* nebol doposiaľ v literatúre popísaný a dokumentujú ho nasledujúce príklady.

P r í k l a d 1

Do suspenzie 10 hmot. dielov 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu (0,046 kmol) v 46,2 objemových dieloch acetanhydridu (0,394 kmol), predloženej a miešanej v nitračnom aparáte, sa dávkuje roztok 11,3 hmot. dielov dusičnanu amónneho (0,138 kmol) v 13,4 objemových dieloch kyseliny dusičnej 99,19 %-nej (0,318 kmol) obsahujúcej 0,19 % hmot. analytickej kyseliny dusitej. Roztok dusičnanu amónneho sa dávkuje tak, aby teplota reakčnej zmesi neklesla pod 66 °C a nevystúpila nad 71 °C (to je 11 min).

Po dávkovaní sa realizuje 15-minútové doreagovanie. Reakčná zmes sa potom schladí na 25 °C a sfiltruje. Kyslý produkt na filtri sa rozmieša v 20 objemových dieloch cca 5 % vodného amoniaku a po 10-minútach miešania sa sfiltruje, premyje vodou a nakoniec 20 objemovými dielami metylalkoholu. Rezultuje 9,9 hmot. dielu 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu (oktogénu), u ktorého pri špecifikácii teploty topenia bolo zistené, že malá časť kryštálov sa topí v rozmedzí 254 až 269 °C, zvyšok potom pri 282,5 až 283,5 °C za rozkladu. Výťažok surového produktu odpovedá 72,9 % oproti teórii.

P r í k l a d 2

Postupuje sa podľa príkladu 1, len s tým rozdielom, že pred dávkovaním roztoku dusičnanu amónneho bolo k suspenzii pridaných 0,1 hmot. diela močovinoformaldehydového kondenzátu pripraveného v zmysle čs. autorského osvedčenia č. 227 901) s merným povrchom 11,4 m².g⁻¹. Rezultuje 10,8 hmot. dielov oktogénu, s teplotou topenia 282,5 až 283,5 °C za rozkladu. Výťažok produktu odpovedá 79,6 % oproti teórii.

P r í k l a d 3

Postupuje sa ako v príklade 1, len s tým rozdielom, že pred dávkovaním roztoku dusičnanu amónneho sa k suspenzii pridá 0,2 hmot. diela močovinoformaldehydového kondenzátu, ako v príklade 2. Rezultuje 12,7 hmot. dielov oktogénu s teplotou topenia 282 až 283 °C za rozkladu. Výťažok produktu odpovedá 93,6 % oproti teórii.

P r í k l a d 4

Postupuje sa ako v príklade 1, len s tým rozdielom, že pred dávkovaním roztoku dusičnanu amónneho sa k suspenzii pridá močovinoformaldehydový kondenzát, kvalitou a pôvodom totožný s kondenzátom v príklade 2, v množstve 1 hmot. diel. Vznikne 10,9 hmot. dielov oktogénu s teplotou topenia 281,5 °C až 281,5 °C za rozkladu. Výťažok produktu odpovedá 80,3 % oproti teórii.

P r í k l a d 5

Postupuje sa ako v príklade 1, len s tým rozdielom, že k nitrolýze sa predloží 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán, získaný nitrolýzou hexametyléttetramínu za prítomnosti močovinoformaldehydového kondenzátu v reakčnej zmesi, (čs. autorské osvedčenie č. 206 382), tento 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán obsahuje 1,6 % hmot. uvedeného aditíva. Vznikne 11,9 hmot. dielov oktogénu o teplotu topenia 282 až 293,5 °C za rozkladu. Výťažok produktu odpovedá 89,1 % oproti teórii, počítané na čistý, do reakcie braný 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán.

P r í k l a d 6

Postupuje sa ako v príklade 1, len s tým rozdielom, že pred dávkovaním roztoku dusičnanu amónneho sa k predloženej suspenzii pridá močovinoformaldehydový kondenzát v množstve 0,15 hmot. diela. Kondenzát sa získa vytvrdením predkondenzátu 2,2 mol formaldehydu a 1 mol močoviny (vytvrdenie za katalýzy dusičnanu amónneho pri 100 °C). Vznikne 12,6 hmot. dielov oktogénu o teplote topenia 232 až 233 °C. Výťažok produktu odpovedá 92,8 % teorii.

P R E D M E T V Y N Á L E Z U

Spôsob výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu nitračným štiepením 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu v prostredí acetanhydridu, vyznačujúci sa tým, že proces nitrolýzy sa uskutočňuje v prítomnosti močovinoformaldehydového kondenzátu pridaného v množstve 0,01 až 15,00 % hmot., s výhodou 1 až 10 % hmot., počítané na navážku 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu.