



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY
A OBJEVY

POPIS VYNÁLEZU

K AUTORSKÉMU OSVEDČENÍU

261661
(11) (B1)

(51) Int. Cl.⁴
C 07 D 239/54

(22) Prihlášené 18.06.87

(21) (PV 4484-87.Z)

(40) Zverejnené 15.07.88

(45) Vydané 15.05.89

(75)

Autor vynálezu

ŠTIBRÁNYI LADISLAV ing. CSc., VEVERKA MIROSLAV ing. CSc.,
BRATISLAVA, JENDRICHOVSKÝ JÁN ing. CSc., MODRA

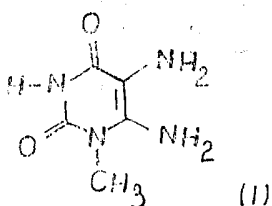
(54) Spôsob prípravy 1-metyl-5,6-diamínouracilu

1

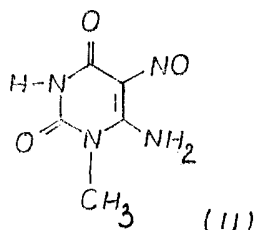
Predmetom riešenia je spôsob prípravy 1-metyl-5,6-diamínouracilu katalytickou hydrogenáciou 1-metyl-6-amíno-5-nitrózouracilu vo vodnom alkalickom prostredí. 1-metyl-5,6-diamínouracil sa používa ako medzi-produkt na prípravu purínových báz.

2

Predmetom vynálezu je spôsob prípravy 1-metyl-5,6-diamínouracilu vzorca I



ktorý je medziproduktom pre prípravu purínových báz. Predmetná zlúčenina sa doposiaľ pripravovala redukciou 1-metyl-5-nitrózo-6-amínouracilu vzorca II



ditioničitanom sodným [Polonovski BI 1946 80—83] za prítomnosti amoniaku [Timnis J. Chem. Soc. 1958 804], zinkom v kyseline sírovej [Ukai J. Pharm. Soc. Japan 74 674 1959], elektrochemickou redukciou [Andosov Chim. Farm. Ž. 15 147 62—3], sírovodíkom [Jap. patent 59.210 896], alebo katalyticky vodíkom na Raney nikli vo vodnom roztoku [Kudriasov SSSR pat. 490 802 CA 34 P 74305j].

Postupom podľa vynálezu sa predmetný diamínouracil vzorca I pripravuje katalytickou hydrogenáciou nitrózoderivátu vzorca II v zásaditom prostredí, kde nitrózoderivát vzorca II podľa množstva zásady reaguje s jedným alebo dvomi ekvivalentami zásady. Prakticky vo vode nerozpustný nitrózoderivát vzorca II sa v zásaditom prostredí dobre rozpúšťa a počas hydrogenácie nenastáva obaľovanie katalyzátora nitrózoderivátom vzorca II, prípadne vznikajúcim diamínom vzorca I. Tým sa zabráni znižovanie aktívneho povrchu katalyzáto-

ra a hydrogenácie prebieha rýchlejšie s dobrým výťažkom.

Ako zásady sa používajú hydroxid sodný alebo draselný, prípadne vodný roztok amoniaku. Hydrogenácie prebiehajú pri teplotách 10 až 60 °C, s výhodou pri 20 až 30 °C. Ako katalyzátor sa môžu použiť bežne používané hydrogenačné katalyzátory, napr. paládium, platina, nikel, kobalt, prípadne tieto zakotvené na nosiči ako je aktívne uhlie, kysličník kremičitý alebo iný materiál s veľkým povrchom, ďalej Raney nikel alebo kobalt. Hydrogenácia sa dá uskutočniť v závislosti od použitého katalyzátora pri atmosférickom tlaku, alebo tlaku do 12,0 MPa.

Výhodou postupu podľa vynálezu je to, že sa hydrogenácia nezastaví obalením katalyzátora nitrózoderivátom vzorca II alebo diamínom vzorca I, nakoľko tieto sú počas celej hydrogenácie rozpustené v zásaditom prostredí. Diamín vzorca I sa získava vo vysokej čistote a výťažku s minimálnym odpadom a s veľkou objemovou účinnosťou.

V ďalšom je predmet vynálezu objasnený na príkladoch bez toho, aby sa na tieto výlučne obmedzoval.

Štruktúra produktov hydrogenácie bola potvrdená elementárnou analýzou a zrovnaním s produktom získaným nezávislým postupom analýzou kvapalinovým chromatografom.

Príklad 1

1-metyl-5,6-diamínouracil

15 g 1-metyl-6-amino-5-nitrózouracilu sa rozpustí za chladenia v roztoku 100 ml vody a 3,6 g NaOH. K roztoku sa pridá 1,5 g Raney niklu a v hydrogenačnom autokláve sa suspenzia za miešania hydrogenuje pri tlaku 4,0 MPa a teplote 25 °C 2,5 h. Po ukončení hydrogenácie sa katalyzátor odfiltruje a filtrát sa okyslí kyselinou soľnou na pH 6,5—7,0. Vylúčený produkt sa odsaje, premyje studenou vodou, etanolom a získa sa 12,7 g 1-metyl-5,6-diamínouracilu (92 %), t. t. nad 340 °C za rozkladu.

Príklad 2 — 10

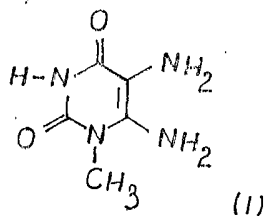
	g. zlúč. vzorca II	g NaOH	tlak MPa	teplota	čas	katalyzátor	Výťažok
2	5,7 g	2 g	4,0	25 °C	1,5 h	0,5 g Pd/C 5 %	53 %
3	8,5 g	3,5 g	0,3	25 °C	6 h	1,5 g Ni (Raney)	65 %
4	8,5 g	4 g	3,0	30 °C	2 h	0,3 g Pt/C 5 %	93 %
5	8,5 g	4 g	2,0	30 °C	2 h	0,3 g Pd/C 10 %	92 %
6	8,5 g	2 g	4,0	60 °C	2 h	1 g Pd/C 10 %	82 %
7	8,5 g	2 g	4,0	50 °C	2 h	1 g Pd/SiO ₂ 5 %	75 %
8	8,5 g	4 g	4,0	20 °C	3 h	0,5 g paládiová čern	85 %
9	8,5 g	A	0,3	50 °C	6 h	2 g Ni (Raney)	83 %
10	8,5 g	B	3,0	20 °C	2 h	0,3 g Pd/C 10 %	85 %

A = 1-metyl-6-amíno-5-nitrózouracil sa suspendoval v 50 ml koncentrovaného amoniaku

B = Namiesto NaOH bolo použité 5,6 g KOH

PREDMET VYNÁLEZU

1. Spôsob prípravy 1-metyl-5,6-diamínouracilu vzorca I,



katalytickou hydrogenáciou vo vodnom roztoku, vyznačený tým, že hydrogenácia prebieha v zásaditom prostredí, pričom molárny pomer nitrózoderivátu k zásade je 1 : 0,8 až 1 : 2,1.

2. Spôsob podľa bodu 1 vyznačený tým, že ako zásada sa použije hydroxid sodný, hydroxid draselný alebo vodný roztok amoniaku.

3. Spôsob podľa bodu 1 vyznačený tým, že reakcia prebieha pri teplote od 10 °C do 60 °C.

z 1-metyl-5-nitrózo-6-amínouracilu vzorca II

