



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY
A OBJEVY

POPIS VYNÁLEZU

219190

(11)

(B1)

K AUTORSKÉMU OSVEDČENIU

(22) Prihlášené 31 07 81
(21) (PV 5847-81)

(40) Zverejnené 30 07 82

(45) Vydané 01 06 85

(51) Int. Cl.³
C 07 D 257/02

(75)

Autor vynálezu

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

(54) Spôsob výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu s obsahom
1,4-dinitrotetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu

Vynález sa týka výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu s obsahom 1,4-dinitro-tetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu nitračným štiepením, 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu.

Podstatou vynálezu je priaznivé ovplyvnenie výťažnosti a kvality produktu, čoho sa dosahuje aplikáciou v procese nitrolýzy tetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu v množstve 0,001 až 0,100 mólu na 1 mól 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu.

Vynález sa týka výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu s obsahom 1,4-dinitrotetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu nitračným štiepením 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu v prostredí vytvorenom acetanhydridom, pričom podmienky reakcie sú modifikované tak, že priaznivo ovplyvňujú ekonomiku procesu.

1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán, nazývaný tiež oktogén a označovaný kódom HMX, sa bežne vyrába nitrolýzou hexametyléntetramínu (HMT) alebo štruktúrnych analógov ako sú 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán (DPT), 1,5-diacetyl-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán (DADN) a 1,5-dialkanoyl-3,7-endometylén-1,3,5,7-tetraazacyklooktány.

Ako je známe (viď napr. bibliografiu E. Ju. Orlova a kol.: Oktogen – termostojkoe vzryvčatoe veščestvo, Izdat. Nedra, 1975), syntéza 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu z hexametyléntetramínu prebieha cez 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán ako medziprodukt. Z hľadiska zabezpečenia maximálneho výťažku oktogénu je vhodné nitrolýzu hexametyléntetramínu realizovať tak, že najprv sa syntetizuje 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktán a ten sa v ďalšom stupni nitrolýzuje na HMX. Všeobecne nitrolýzu 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu je možné realizovať 99%-nou kyselinou dusičnou, roztokom dusičnanu amónneho v dýmavej kyseline dusičnej a naopak roztokom dusičnanu amónneho v dýmavej kyseline dusičnej v prostredí acetanhydridu.

Podľa najnovších poznatkov na vznik oktogénu pri nitrolýze 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu priaznivo vplýva prítomnosť močovinoformaldehýdového kondenzátu (čs. autorské osvedčenie č. 2 2 7 9 0 7). Vplyv močovinoformaldehýdového kondenzátu spočíva pravdepodobne v tom, že vzhľadom na prítomnosť elektronegatívnych karbonylových skupín v molekule týchto kondenzátov sú v danom reakčnom prostredí generované karbamóniové ióny. Karbamóniové ióny sa potom môžu zúčastňovať v nitrolýzačnej zmesi a predchádzať tak nežiadúcim štiepeniam 1,3,5,7-tetraazacyklooktanového skeletu.

Podobného priaznivého účinku sa dosahuje týmto vynálezom, podľa ktorého spôsob výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu s obsahom 1,4-dinitrotetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu nitrolýzou, 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu v prostredí acetanhydridu uskutočňuje sa tak, že proces nitrolýzy sa robí v prítomnosti tetrahydro-

imidazo[4,5-d]-imidazol-2,5-(1H,3H)-diónu do reakčného systému pridávaného v množstve 0,001 až 0,100 molu na 1 mol do procesu braného 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu.

Výhodou postupu podľa vynálezu je zvýšenie výťažnosti procesu, teda zvýšenie využitia metylénovej bázy východiskového 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu.

Z reakcie v zmysle vynálezu rezultuje zmes 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu s 1,4-dinitrotetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5-(1H,3H)-dionom (DINGU). Prítomnosť DINGU v oktogéne je vítané, čoho dokladom je Belgický patentový spis č. 863 738, v ktorom sa popisuje jeho zámerné pridávanie k cyklickým nitramínom za účelom výroby cyklotolov respektíve oktolov.

Ako vyplýva z príkladovej časti tohto vynálezu je výhodné použiť minimálne 0,0078 mólu tetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5-(1H,3H)-diónu na 1 mol do reakcie braného DPT. Horná hranica sa pohybuje okolo 0,1 molu a len výnimočne je potrebné aplikovať väčšie množstvo.

Účinok, dosahovaný v zmysle tohto vynálezu nebol v literatúre doposiaľ popísaný a dokumentuje ho nasledujúci príklad.

Príklad 1

9,8 g (0,045 mol) 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu sa suspenduje v 46 ml 96,8%-ného acetanhydridu (0,472 mol). K rezultujúcej suspenzii sa v priebehu 5 až 6 minút za miešania dávkuje roztok 11,3 g dusičnanu amónneho, obsahujúceho 0,67 % vlhkosti (0,140 mol dusičnanu amónneho) v 13,4 ml 98,1%-nej kyseliny dusičnej (0,313 mol kyseliny dusičnej). Pri nátoky kyseliny dusičnej sa teplota reakčnej zmesi chladením udržiava v rozmedzí 60 až 64 °C. Po skončení nátoky kyseliny sa realizuje 10-minútové doreagovanie pri teplote 58 až 62 °C. Potom sa pridá do reakčnej zmesi 200 g 75 až 85 °C teplej vody. Vzniklá suspenzia sa 30 minút refluxuje a po pridaní cca 0,1 g tenzidu – Slovaponu N (vodný roztok penivého neiónového biologicky odbúrateľného tenzidu na báze zmesi oxyetylovaných mastných alkoholov s 15 % hmot. vody) sa za horúca filtruje. Po premytí produktu do vymiznutia kyslej reakcie filtrátu sa realizuje jeho sušenie pri teplote 80 až 85 °C.

Postup je 7-krát opakovaný vždy s obsahom určitého množstva tetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu v reakčnom systéme. Výsledky prezentuje nasledujúca tabuľka číslo 1:

Tabuľka 1

Množstvo pridaného glykolurilu		Výťažok produktu (g)	Obsah DINGU v produkte (% hmot)	Výťažky oproti teórii (% hmot)	
(g)	moly na 1 mol DPT			HMX	DINGU
0,00	0,0000	6,90	0,00	51,86	—
0,05	0,0078	7,90	1,01	58,77	97,9
0,10	0,0156	8,30	1,91	61,40	97,0
0,20	0,0313	8,80	3,41	63,88	91,8
0,30	0,0470	8,85	4,32	63,50	78,0
0,40	0,0625	8,45	4,44	60,62	57,4
0,55	0,0860	7,60	1,97	56,37	16,7
0,64	0,1000	7,30	0,68	54,40	4,7

PREDMET VYNÁLEZU

Spôsob výroby 1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu s obsahom 1,4-dinitrotetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu nitrolýzou, 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu v prostredí acetanhydridu vyznačujúci sa tým, že proces nitrolýzy sa uskutočňuje

v prítomnosti tetrahydroimidazo[4,5-d]-imidazol-2,5(1H,3H)-diónu do reakčného systému pridávaného v množstve 0,001 až 0,100 molu na 1 mol do procesu braného 1,5-endometylén-3,7-dinitro-1,3,5,7-tetraazacyklooktánu.