

# I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Frankfurt a. Main

J/F. 1313 <sup>Akt. Z. 7 7 3 6 5 8 12 c/120</sup>  
<sup>Eingev. 19. 11. 42</sup>

Arefeld-Urdingen, den 18. 11. 1942

BAG Target

3474 30/4.17

Verfahren zur Herstellung von Kondensationsprodukten.

Es wurde gefunden, dass man am Stickstoff substituierte Sulfonamide<sup>de</sup> einfach und in guter Ausbeute dadurch herstellen kann, dass man Sulfondiamid mit Aminen, die am Stickstoff mindestens ein substituierbares Wasserstoffatom aufweisen, umsetzt.

Die unter Abspaltung von Ammoniak verlaufende Umsetzung wird vorzugsweise bei erhöhter Temperatur, z.B. bei 90-150° durchgeführt. In manchen Fällen, insb. bei Verwendung niedrig siedender Reaktionskomponenten ist die Anwendung von erhöhtem Druck zweckmässig. Lösungsmittel, wie Wasser oder Alkohole, z.B. Methyl- oder Äthylalkohol, können mitverwendet werden.

Je nach der Art des angewandten Amins und den gewählten Reaktionsbedingungen werden sämtliche oder einzelne Wasserstoffatome entweder einer oder beider Aminogruppen des Sulfondiamids substituiert. So ergibt z.B. die Anwendung eines Überschusses an Sulfondiamid, kurze Reaktionszeit und niedrige Reaktionstemperatur zumeist vorwiegend einseitig substituierte Sulfondiamide.

Als primäre oder sekundäre Amine der aliphatischen Reihe seien z.B. genannt: Methyl-, Äthyl-, i-Butyl-, i-Hexyl-, i-Heptyl-, Dodecyl-, Stearyl-, Dimethyl-, Diäthyl-, Methyl-äthyl-, Dibutyl-, Di-i-hexylamin, Äthylendiamin und Hexamethylendiamin, ferner können cycloaliphatische Amine, wie Cyclohexyl- oder Dicyclohexylamin oder aromatische Amine, wie Anilin, o-, m-, oder p-Chloranilin,  $\alpha$ -, oder  $\beta$ -Naphthylamin, Phenylendiamin verwendet werden. Auch heterocyclische sekundäre Amine, wie Pyrrolidin, Piperidin, Morpholin, sowie Amino-derivate von Heterocyclen, wie z.B. Amino-thiazol und Amino-piperidin<sup>piperidin</sup>, lassen sich in der beschriebenen Weise umsetzen.

Die anfallenden substituierten Sulfondiamide können z.B. als Zwischenprodukte für die Herstellung von Farbstoffen dienen.

Beispiel 1.

146 Gewichtsteile n-Butylamin und 230 Gewichtsteile Sulfondiamid werden mit 400 T. Wasser 5 Stunden am Rückfluss zum Sieden erhitzt. Nach dieser Zeit ist die Ammoniakentwicklung beendet. Das Reaktionsprodukt wird mit verdünnter Salzsäure angesäuert und das beim Abkühlen sich abscheidende Öl mit Äther aufgenommen. Nach dem Trocknen und Abdampfen des Äthers hinterbleiben 210 Gewichtsteile (Ausbeute 70%) Mono-n-butylsulfondiamid, die nach dem Umkristallisieren aus Wasser als weisse Blättchen vom Schmelzpunkt  $52^{\circ}$  anfallen.

Berechnet für :  $C_4H_{12}O_2N_2S$  (152) C=31,6% H=7,9% N=18,4% S=21,1%  
 Gefunden: C=31,6% H=8,0% N=18,9% S=22,1%

Beispiel 2.

129 Gewichtsteile Di-n-butylamin werden mit 125 Gewichtsteilen Sulfondiamid in einer Stunde von  $90^{\circ}$  auf  $120^{\circ}$  erhitzt und 4 Stunden bei dieser Temperatur gehalten. Nach dieser Zeit ist die Ammoniakentwicklung beendet. Das Rohprodukt (203 Gewichtsteile) wird mit 100 Gewichtsteilen Salzsäure (1:1) verrührt und ausgeäthert. Nach dem Trocknen und Abdampfen des Wassers werden 170 Gewichtsteile (=82% Ausbeute) eines dickflüssigen gelben Öles erhalten, das langsam zu nadelförmigen, wachsartigen Kristallen vom Schmelzpunkt  $38-40^{\circ}$  erstarrt. Es handelt sich um N,N-Di-n-butylsulfondiamid.

Berechnet für:  $C_8H_{20}O_2N_2S$  (208) C=46,2% H=9,6% N=13,5% S=15,4%  
 Gefunden: C=45,7% H=9,5% N=13,1% S=15,2%

Beispiel 3.

100 Gewichtsteile Cyclohexylamin und 96 Gewichtsteile Sulfondiamid werden, wie in Beispiel 2 beschrieben, umgesetzt. Das Rohprodukt (173 Gewichtsteile) erstarrt kristallin und wird mit 100 Gewichtsteilen Salzsäure (1:1) verrührt, der Niederschlag abfiltriert und getrocknet. Es werden <sup>erhalten</sup> 140 Gewichtsteile (=80% Ausbeute) Mono-cyclohexyl-sulfondiamid, die nach dem Umkristallisieren aus Wasser Blättchen vom Schmelzpunkt  $87^{\circ}$  ergeben.

Berechnet für:  $C_6H_{14}O_2N_2S$  (178) C=40,4% H=7,9% N=15,7%  
 Gefunden: C=40,0% H=7,5% N=16,5%

Dasselbe Produkt entsteht, wenn Cyclohexylamin mit Sulfondiamid in wässeriger Lösung unter Kochen am Rückfluss umgesetzt wird.

Beispiel 4.

100 Gewichtsteile Cyclohexylamin und 96 Gewichtsteile Sulfondiamid werden im Laufe einer Stunde von 90° auf 150-160° erhitzt und 2-3 Stunden auf dieser Temperatur gehalten. Die Aufarbeitung erfolgt wie im Beispiel 3 beschrieben ist. Man erhält 100 g T (=79% Ausbeute) N,N'-Di-cyclohexylsulfondiamid, die nach dem Umkristallisieren aus Alkohol Blättchen vom Schmelzpunkt 152-153° ergeben.

Berechnet für:  $C_{12}N_4O_2S$  (260)    C=55,4%    H=9,2%    N=10,8%  
Gefunden:                            C=55,3%    H=9,4%    N=11,2%

Beispiel 5.

86 Gewichtsteile Piperidin und 140 Gewichtsteile Sulfondiamid werden, wie in Beispiel 2 beschrieben, umgesetzt. Der beim Erkalten kristallisierende Ansatz wird mit verdünnter Salzsäure aufgearbeitet, der anfallende Niederschlag abfiltriert und getrocknet. (Ausbeute 128 Gewichtsteile =75%) Das ~~Cyclopiperidylsulfondiamid~~<sup>Morpholyl-sulfondiamid</sup> wird nach dem Umkristallisieren aus Wasser in weissen Blättchen vom Schmelzpunkt 121-122° erhalten.

Berechnet für:  $C_5H_{12}O_2N_2S$  (164)    C=36,6%    H=7,3%    N=17,1%  
Gefunden:                            C=36,6%    H=7,4%    N=17,5%

Beispiel 6.

87 Gewichtsteile Morpholin werden mit 120 Gewichtsteilen Sulfondiamid, wie in Beispiel 2 beschrieben, umgesetzt und aufgearbeitet. Man erhält 130 Gewichtsteile (=78% Ausbeute) ~~Morpholylsulfondiamid~~<sup>Morpholyl-sulfondiamid</sup>, das nach dem Umkristallisieren aus Essigsäureäthylester oder Butanol in langen Nadeln vom Schmelzpunkt 158-159° erhalten wird.

Berechnet für:  $C_4H_{10}O_3N_2S$  (166)    C=28,9%    H=6,0%  
Gefunden:                            C=28,9%    H=6,1%

Beispiel 7.

184 Gewichtsteile Anilin und 192 Gewichtsteile Sulfondiamid werden unter Rühren 6 Stunden auf 150° erhitzt. Das mit verdünnter Salzsäure aufgenommene Reaktionsprodukt scheidet 50 Gewichtsteile (=70% Ausbeute des Umsatzes) eines festen Produktes ab, das nach dem Umfällen aus Alkali bei 111-112° schmilzt und sich als identisch erweist mit N,N'-Diphenylsulfondiamid (s. Ber. 43, 3295). Aus der wässrigen sauren Lösung lässt sich das nicht umgesetzte Anilin zurückgewinnen.

Patentanspruch.

Verfahren zur Herstellung von substituierten Sulfondiamiden, dadurch gekennzeichnet, dass man Sulfondiamid mit Aminen, die am Stickstoff mindestens ein substituierbares Wasserstoffatom aufweisen, umsetzt.