

REF: X-3779 SPAIN

419450



F.E. 29-1-76

Int. Cl.: C07D/A01N

Nº 419.450

MEMORIA DESCRIPTIVA

correspondiente a la solicitud de concesión de una

PATENTE DE INVENCION

SOLICITANTE: ELI LILLY AND COMPANY

RESIDENCIA: 307 East McCarty Street, INDIANAPOLIS,
Indiana, USA.

ENUNCIADO: " UN PROCEDIMIENTO MEJORADO DE
AMINACION CON INTERCAMBIO PARA LA
PREPARACION DE 2-HIDRAZINOBENZOTIAZOLES "

Prioridad: Patente estadounidense n.º 296.381 del 10-10-72

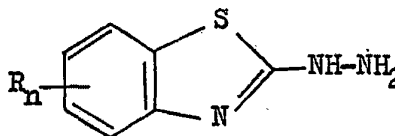


1 Esta invención se refiere a un procedimiento mejorado
de aminación con intercambio para la preparación de 2-hidra-
zinobenzotiazoles, que comprende la reacción de los 2-amino-
benzotiazoles correspondientes con hidrazina en presencia de
5 un ácido, preferiblemente en un disolvente seleccionado.

El término "aminación con intercambio" se utiliza aquí
para referirse al intercambio de un grupo amino por otro,
incluido el intercambio de un grupo hidrazino por un grupo
amino. Véase Houben-Weyl, Methoden Der Organischen Chemie,
10 Band 10/2, 278 (Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1967); Ann.
686, 134 (1965); J. Amer. Chem. Soc. 74, 1648 (1952); J. Amer.
Chem. Soc. 82, 3971 (1960); y J. Gen. Chem. U.R.S.S. (trad.
inglesa) 29, 2036 (1959).

15 La última de estas referencias describe la preparación
y el intento de preparación de numerosos 2-hidrazinobenzotiazoles
por reacción de hidrazina con 2-aminobenzotiazol y
diversos 2-aminobenzotiazoles sustituidos en el núcleo. Sin
embargo, los resultados no han sido totalmente satisfactorios.
20 Algunas de las reacciones no dan ningún producto hidrazino-
benzotiazólico. El 2-aminobenzotiazol no sustituido dio el
producto deseado pero acompañado de una importante cantidad
de o-aminotiofenol, formado por apertura del anillo y aisla-
do como disulfuro. Solamente los aminobenzotiazoles sustitui-
dos con un grupo carboxi dieron buenos rendimientos.

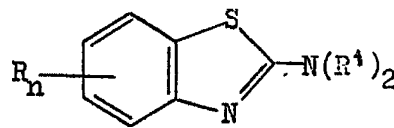
25 Esta invención es un procedimiento para la preparación
de un compuesto de fórmula:



419450

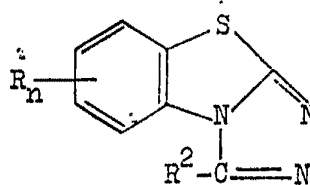


1 donde cada radical R representa independientemente hidrógeno,
 2 no, halógeno, alquilo inferior C_1-C_3 , alcoxi inferior C_1-C_3
 3 o alquil(inferior)tio C_1-C_3 y n es 0, 1 ó 2; cuyo procedi-
 4 miento consiste en hacer reaccionar el correspondiente com-
 5 puesto de 2-aminobenzotiazol de fórmula:



10 donde cada R^1 representa independientemente hidrógeno o me-
 11 tilo, con hidrazina en presencia de por lo menos una canti-
 12 dad catalítica de un ácido. El término "halo" se emplea en
 13 esta memoria y en las reivindicaciones para referirse al clo-
 14 ro, bromo y flúor.

15 Los productos 2-hidrazinobenzotiazoles resultan-
 16 tes son útiles como materiales de partida para la prepara-
 17 ción de compuestos de s-triazolo (3,4-b)benzotiazol de fór-
 18 mula:



20 donde R^2 es, entre otros hidrógeno o uno cualquiera entre di-
 21 versos radicales. Estos compuestos son útiles como agentes
 22 para el control de los organismos patógenos de las plantas.
 23 El uso de un ácido es crítico para esta invención. Sin em-
 24 bargo la identidad del ácido no es crítica. Lo más convenien-
 25 te es utilizar un ácido mineral como ácido clorhídrico, brom-
 26 hídrico o sulfúrico. Sin embargo también son satisfactorios en
 27
 28
 29
 30

419450



1 este procedimiento los ácidos orgánicos como el acético, ben-
zoico, fórmico, malónico, oxálico, p-toluensulfónico, fenil-
acético y cítrico. El ácido puede ser proporcionado a la mez-
5 cla de reacción por cualquier método. Puede ser agregado in-
dependientemente o puede ser proporcionado en forma de sal
del compuesto de 2-aminobenzotiazol o de la hidrazina.

La cantidad de ácido utilizada no es crítica; una pe-
queña cantidad catalítica aumenta considerablemente el rendi-
miento de producto sobre el obtenido cuando no se utiliza na-
10 da de ácido en absoluto. Sin embargo, las cantidades mayores
no son perjudiciales. En general, este procedimiento funcio-
na cuando se emplea el ácido en la proporción de 0,1 a 1,0
moles de ácido por cada mol de hidrazina. Una proporción pre-
ferida es de 0,33 a 0,5 moles de ácido por cada mol de hidra-
15 zina.

Aunque la técnica anterior ha empleado frecuentemente
un exceso de hidrazina para actuar en parte como disolvente,
se ha encontrado que es preferible el uso de un disolvente
inerte frente a la reacción. El disolvente debe ser miscible
20 con la hidrazina y, en combinación con los reactivos, debe
refluir a una temperatura de por lo menos unos 100°C y prefe-
riblemente a temperaturas más altas, como 120-150°C. Los di-
solventes preferidos son los alquilendiolos C₂-C₄, como eti-
lenglicol, propilenglicol, 1,4-butanodiol y 2,3-butanodiol;
25 di- y tri-(etilen y propilen)glicoles, incluidos el dietilen-
glicol, trietilenglicol, dipropilenglicol y tripropilenglicol;
éteres monoalquíflicos C₁-C₄ de etilenglicol y propilenglicol,
como éter monometílico de etilenglicol, éter monoetilico de
etilenglicol, éter mono- n -butílico de etilenglicol y éter
30 monometílico de propilenglicol; éteres monoalquíflicos C₁-C₄

419450



1 de di- y tri-(etilen y propilen)glicoles, como éter monometí-
lico de dietilenglicol, éter monoetílico de dietilenglicol y
éter mono-n-butílico de dietilenglicol; trietanolamina, sul-
folano y dimetilsulfóxido. En el sentido utilizado aquí, el
5 término alquilendíoles C_2-C_4 se refiere solamente a los dí-
oles no gem. Aunque el agua no es un disolvente preferido, las
cantidades pequeñas de la misma no son perjudiciales para la
reacción. Por lo tanto, es aceptable utilizar la hidrazina
en cualquiera de las diversas formas comerciales que contie-
10 nen agua.

No es crítico que el 2-aminobenzotiazol y la hidrazina
se empleen en alguna relación mutua específica. Frecuentemen-
te se ha empleado en la técnica anterior un gran exceso de
hidrazina. Sin embargo, ahora se ha encontrado que, en el
15 caso de algunos de los compuestos de 2-aminobenzotiazol, la
formación de productos secundarios es favorecida por las con-
centraciones más altas de hidrazina. Asimismo, como la reac-
ción consume las sustancias reaccionantes solamente en propor-
ciones equimoleculares, el uso de un exceso de hidrazina no
20 es eficaz. En la práctica de esta invención se han consegui-
do buenos resultados empleando de 1 a no más de unos 10 mo-
les de hidrazina por mol del 2-aminobenzotiazol. Se obtienen
mejores resultados empleando alrededor de 3 a 5 moles de hi-
drazina por mol del 2-aminobenzotiazol.

25 La temperatura a la que se lleva a cabo la reacción no
es crítica. En general, la reacción transcurre a temperaturas
de $100^{\circ}C$ y más altas. Típicamente, se ha encontrado que se
obtienen buenos resultados con temperaturas de 100 a $150^{\circ}C$;
generalmente se obtienen mejores resultados a temperaturas de
30 $120-150^{\circ}C$.



1 Normalmente el producto deseado precipita en la mezcla
de reacción y se separa por filtración. Sin embargo, pueden
emplearse otras técnicas de separación convencionales. El pro-
ducto obtenido mediante este procedimiento es generalmente
5 de gran pureza, en algunos casos incluso del 98 %; pero cuan-
do se desea, el producto separado puede ser purificado por
procedimientos convencionales.

Los siguientes ejemplos ilustran esta invención y per-
mitirán a los expertos en la técnica ponerla en práctica.

10

EJEMPLO 1

2-Hidrazinobenzotiazol

15

A una suspensión de 30 g (0,2 moles) de 2-aminobenzotiazol en 150 ml de etilenglicol se añaden 23,7 g (0,4 moles) de hidrato de hidrazina al 85 % y 13,7 g (0,2 moles) de monohidrocloruro de hidrazina. La mezcla se agita en atmósfera de nitrógeno y se calienta a una temperatura de 140°C durante 2 horas. El producto cristaliza al enfriar. Después de añadir 50 ml de agua y agitar, el material se filtra, se lava con 100 ml de agua en tres porciones y se seca a vacío a 60°C.
20 Se obtienen 29,9 g (90,6 % del rendimiento teórico) de 2-hidrazinobenzotiazol, p.f. 194-198°, determinación (valoración) 97,0 %. Por recristalización de etanol se obtienen 20 g, p.f. 198-199°C [bibliografía: p.f. 199-200°C, I.A. Solov'eva y A.G. Guseva, J. Gen. Chem. U.R.S.S. 29, 2036 (1959)]. Se obtienen otros 4 g, p.f. 196,5-198,5°C, de la segunda masa cristalina.

20

25

EJEMPLO 2

5,6-Dimetil-2-hidrazinobenzotiazol

30

Se hacen reaccionar siguiendo el procedimiento del Ejemplo 1, 5,0 g (0,028 moles) de 5,6-dimetil-2-aminobenzotiazol,

419450-8



1 3,49 g (0,056 moles) de hidrato de hidrazina al 85 % y 1,99 g
 (0,028 moles) de monohidrocloreuro de hidrazina. Se obtiene
 5,6-dimetil-2-hidrazinobenzotiazol con un rendimiento del
 82 %, p.f. 223-228°C. Determinación (valoración): 97,2 %.

5 Por recristalización de etanol se obtiene un material que
 funde a 235-237°C (desc.).

Análisis para $C_9H_{11}N_3S$:

Calculado: C, 55,93; H, 5,74; N, 21,74; S, 16,59

Encontrado: C, 55,96; H, 5,78; N, 21,55; S, 16,72.

10

EJEMPLO 3

4-Cloro-2-Hidrazinobenzotiazol

15

Se hacen reaccionar, por el procedimiento del Ejem-
 plo 1, 10,09 g (0,0543 moles) de 4-cloro-2-aminobenzotiazol,
 6,45 g (0,109 moles) de hidrato de hidrazina al 85 % y 3,72 g
 (0,109 moles) de monohidrocloreuro de hidrazina. Se obtienen
 9,77 g (90 % del rendimiento teórico) de 4-cloro-2-hidrazino-
 benzotiazol, p.f. 226-229°C; determinación (valoración):
 96,2 %. Por recristalización de isopropanol se obtienen
 7,2 g, p.f. 239-241°C.

20

Análisis para $C_7H_6N_3ClS$:

Calculado: C, 42,11; H, 3,03; N, 21,05; S, 16,06;

Cl, 17,76

Encontrado: C, 42,07; H, 2,94; N, 20,82; S, 16,11;

Cl, 17,81

25

EJEMPLO 4

4-Metoxi-2-hidrazinobenzotiazol

30

Se hacen reaccionar, por el procedimiento del Ejemplo 1,
 5,0 g (0,028 moles) de 4-metoxi-2-aminobenzotiazol, 3,3 g
 (0,057 moles) de hidrato de hidrazina al 85 % y 1,9 g (0,028
 moles) de monohidrocloreuro de hidrazina. Se obtienen 4,85 g de

- 8 -
419450



1 4-metoxi-2-hidrazinobenzotiazol, p.f. 215-220°C; determina-
ción (valoración): 97,1 %. La muestra analítica tiene un pun-
to de fusión de 224-226,5°C (recristalizado de metanol).

Análisis para $C_8H_9N_3OS$:

5 Calculado: C, 49,21; H, 4,65; N, 21,52; S, 16,42

Encontrado: C, 49,25; H, 4,54; N, 21,67; S, 16,40

EJEMPLO 5

4-Metil-2-hidrazinobenzotiazol

10 Se calienta bajo nitrógeno durante 2 horas, a una tempe-
ratura de 140°C, una mezcla de 11,95 g (0,049 moles) de hi-
drobromuro de 4-metil-2-aminobenzotiazol y 8,60 g (0,15 mo-
les) de hidrato de hidrazina al 85 % en 40 ml de etilengli-
col. La mezcla se enfría a la temperatura ambiente y se aña-
den 40 ml de agua. El producto, que comienza a precipitar
15 durante el periodo de enfriamiento, se filtra, se lava con
agua y se seca a vacío a 60°C. Se obtienen 8,30 g (93 % del
rendimiento teórico) de 4-metil-2-hidrazinobenzotiazol, p.f.
165-168°C. La cromatografía en capa fina del producto crudo
indica que está exento de material de partida y es práctica-
mente puro. La muestra analítica funde a 167-169°C (de eta-
20 nol).

Análisis para $C_8H_9N_3S$:

Calculado: C, 53,61; H, 5,06; N, 23,44; S, 17,89

Encontrado: C, 53,84; H, 4,98; N, 23,44; S, 17,68.

25

EJEMPLO 6

6-Metoxi-2-hidrazinobenzotiazol

30 Se hacen reaccionar, por el procedimiento del Ejemplo 1,
2,70 g (0,015 moles) de 6-metoxi-2-aminobenzotiazol, 1,77 g
(0,03 moles) de hidrato de hidrazina al 85 % y 1,03 g (0,015
moles) de monohidrocloreuro de hidrazina, dando 2,63 g (90 %



419450

1 del rendimiento teórico) de 6-metoxi-2-hidrazinobenzotiazol,
p.f. 172-175°C. Determinación (valoración): 97,0 % (biblio-
5 graffa: p.f. 168-169°C, O. Bayer, E. Herdieckerhoff y H.
Schindhelm (para I.G. Farbenind. A.G.) patente estadounidense
se 2.073.600 de 16 de Marzo, 1937).

EJEMPLO 7

6-Metiltio-2-hidrazinobenzotiazol

Se hacen reaccionar, por el procedimiento del Ejemplo 1,
10,0 g (0,05 moles) de 6-metiltio-2-aminobenzotiazol, 6,05 g
10 (0,10 moles) de hidrato de hidrazina al 85 % y 3,5 g (0,05
moles) de monohidrocloreuro de hidrazina, dando 9,95 g (92,5 %
del rendimiento teórico) de 6-metiltio-2-hidrazinobenzotia-
zol, p.f. 173-176°C. Determinación (valoración): 98,0 %. La
muestra analítica funde a 178-180°C (recristalizada de eta-
15 nol).

Análisis para $C_8H_9N_3S_2$:

Calculado: C, 45,47; H, 4,29; N, 19,89; S, 30,30

Encontrado: C, 45,69; H, 4,30; N, 19,67; S, 30,63.

EJEMPLOS 8-14

20 Se efectuaron numerosas reacciones de hidrobromuro de
4-metil-2-aminobenzotiazol con hidrato de hidrazina, de
acuerdo con esta invención, variando el disolvente. Los di-
solventes empleados, junto con los tiempos de reacción, tem-
peraturas de reacción y rendimientos de los productos, fue-
25 ron los siguientes:



419450

1	<u>Disolvente</u>	<u>Periodo de reacción</u>	<u>Temperatura de reacción</u>	<u>Rendimiento de producto</u>
	Dietilenglicol	80 minutos	140°C	91 %
	Propilenglicol	2 horas	140°C	93 %
	2,3-Butanodiol	3 horas	125°C	88 %
5	Trietanolamina	3 horas	134-140°C	91 %
	Sulfolano	5½ horas	129°C	85 %
	Dimetilsulfóxido	4 horas	125°C	>95 %
	Eter monometílico de etilenglicol	5½ horas	110°C	85 %

EJEMPLO 15

4-Metil-2-hidrazinobenzotiazol

15 Se mezclan a la temperatura ambiente 10,95 g (0,04 moles) de hidrobromuro de 4-metil-2-dimetilaminobenzotiazol, hidrato de hidrazina al 85 % equivalente a 8,01 g (0,12 moles) y 33 ml de etilenglicol y la mezcla se calienta a 140°C en atmósfera de nitrógeno. La mezcla de reacción se mantiene a esta temperatura durante la noche. Después de un tiempo de reacción de 39 horas, la mezcla de reacción se enfría, se diluye con 33 ml de agua y se filtra para separar el compuesto 4-metil-2-hidrazinobenzotiazol deseado. Se lava con agua y se seca 2 horas a 65°C bajo vacío, obteniéndose 5,43 g, rendimiento: 79 %. El producto se somete a RMN, que indica la presencia de alrededor del 5-10 % de material de partida. El punto de fusión es de 161-166°C.

EJEMPLO 16

4-Metil-2-hidrazinobenzotiazol

25 Se mezclan 8,21 g (0,05 moles) de 4-metil-2-aminobenzotiazol, 1,14 g (0,017 moles) de monohidrocloreuro de hidrazina, 1,96 g de hidrato de hidrazina al 85 % (0,033 moles) y 41 ml de etilenglicol y la mezcla se calienta a 140°C en

30

419450



1 atmósfera de nitrógeno. Estas condiciones de reacción se man-
tienen durante 15 horas; después se deja enfriar lentamente
la mezcla de reacción hasta la temperatura ambiente y, solo
por comodidad, se mantiene durante la noche bajo atmósfera
5 de nitrógeno. Por la mañana se añaden 45 ml de agua a la mez-
cla de reacción para forzar la cristalización. Después se fil-
tra la mezcla de reacción para separar el compuesto 4-metil-
2-hidrazinobenzotiazol deseado. Se seca a vacío durante la
noche a 60°C. Se obtienen 8,00 g, rendimiento: 89 %, p.f.
10 143-151°C. La valoración no acuosa indica que el producto
tiene una pureza del 85,8 %.

EJEMPLO 17

4-Cloro-2-hidrazinobenzotiazol

15 Se disuelven 2,0 g (0,0108 moles) de 4-cloro-2-amino-
benzotiazol en 10 ml de éter monometílico de dietilenglicol
y se añaden con agitación 0,9 ml de HCl concentrado. Después
se añaden a la mezcla 1,92 g de hidrato de hidrazina al 85 %
y la mezcla de reacción se calienta a 110°C en atmósfera de
nitrógeno, sobre un baño de aceite. La reacción se prosigue
20 durante 22 horas, siendo la temperatura final de reacción
de 120°C. El producto 4-cloro-2-hidrazinobenzotiazol se ais-
la por adición de agua y se separa por filtración, 1,69 g
(rendimiento: 78 %), p.f. 232-235°C.

EJEMPLO 18

4-Metil-2-hidrazinobenzotiazol

25 A una suspensión de 5,0 g (0,03 moles) de 4-metil-2-
aminobenzotiazol en 20 ml de etilenglicol se añaden 5,4 g de
hidrato de hidrazina al 85 % (0,09 moles) y 2,75 g (0,046
moles) de ácido acético. La mezcla se calienta a 126°C en
30 atmósfera de nitrógeno durante 3 horas. Enfriando y diluyen-



419450

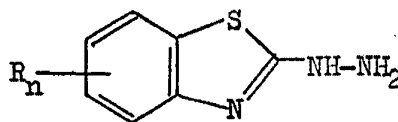
1 do con aproximadamente medio volumen de agua, cristaliza el
producto. Se obtienen 4,73 g (87 % del rendimiento teórico)
de 4-metil-2-hidrazinobenzotiazol. El producto se identifica
por cromatografía en capa fina y se encuentra que es prácti-
5 camente puro.

EJEMPLO 19

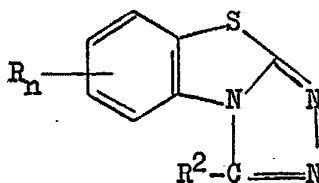
4-Metil-2-hidrazinobenzotiazol

Se añaden con agitación 443 g (1,71 moles) de hidrobromuro de 4-metil-2-metilaminobenzotiazol a 1,7 litros de etilenglicol. Se añaden en varias veces 400 g (6,75 moles) de hidrato de hidrazina al 85 %. La mezcla de reacción se calienta a 130-135°C bajo atmósfera de nitrógeno y se mantiene durante unas 4 horas, enfriando después lentamente con agitación. El producto se aísla por adición de agua y se separa por filtración. Después se seca durante la noche en una estufa de vacío, dando 275,5 g (rendimiento: 90 %) de 4-metil-2-hidrazinobenzotiazol. El espectro RMN concuerda con un espectro de referencia y no presenta ningún indicio de material de partida ni de ninguna otra impureza. La valoración no acusa indica que el producto tiene una pureza del 97,5 %.

Los productos de este procedimiento:



son útiles como materiales de partida para la preparación de compuestos de s-triazolo(3,4-b)benzotiazol de fórmula:



419450



1 donde R^2 es, entre otros, hidrógeno o alquilo inferior como
metilo. La conversión de los 2-hidrazinobenzotiazoles en los
s-triazolo(3,4-b)benzotiazoles puede realizarse por uno cual-
5 quiera de varios procedimientos. En uno de ellos, el 2-hidra-
zinobenzotiazol se convierte directamente por reacción con
un ortoéster ($R^2-C(O\text{-alquilo})_3$); en otro procedimiento, el
2-hidrazinobenzotiazol es acilado y el 2-(2-acilhidrazino)-
benzotiazol resultante es ciclado calentando a reflujo con
10 fenol. En un tercer procedimiento, el 2-hidrazinobenzotiazol
es análogamente convertido directamente por reacción con un
ácido (R^2COOH).

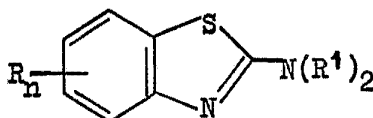
Por cualquier vía de síntesis, los productos s-triazolo-
lo(3,4-b)benzotiazoles son útiles como agentes para el con-
trol de los organismos patógenos de las plantas, especialmen-
15 te de los organismos fúngicos y en particular del organismo
causante del añublo del arroz (Piricularia oryzae). Empleando
estos productos para este control, son eficaces cuando se
aplican por cualquiera de los diversos métodos conocidos: al
follaje de las plantas que han de ser protegidas, a las semi-
20 llas, a la superficie del terreno o del agua en el que se es-
tán cultivando las plantas que han de ser tratadas, como re-
mojo de las raíces de las plantas transplantadas, etc. Los
productos son aplicados más cómodamente si se formulan con
los coadyuvantes convencionales como agentes tensoactivos,
25 etc. La cantidad de compuesto que es efectiva no es crítica
y depende en parte de la vía de aplicación y del organismo
que se desea controlar. Las proporciones representativas a
las que se obtiene un buen control del añublo del arroz son
las siguientes: en preparados líquidos adecuados para el tra-
30 tamiento de semillas, remojo de las raíces de los transplan-



419450

1 tes o aplicación por pulverización al follaje, alrededor de
0,001 a 0,2 % en peso y en la aplicación por superficie, por
ejemplo en la aplicación sobre el terreno, de 0,5 a 2,0 ó
más libras por acre (0,56 a 2,24 kg/Ha).

5 Los compuestos que se emplean como materiales de par-
tida en el procedimiento de esta invención:

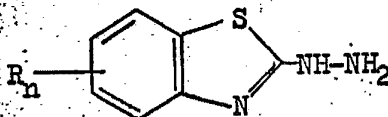


10 son compuestos conocidos, muchos de ellos se encuentran en
el mercado. Todos pueden ser sintetizados por procedimientos
de síntesis conocidos. Un método conveniente es la reacción
de Hegerschoff: véase Heterocyclic Compounds, Vol. 5, edita-
15 do por Elderfield (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1957)
pág. 506.

En resumen, la Patente de Invención que se solicita de-
berá recaer sobre las siguientes:

REIVINDICACIONES

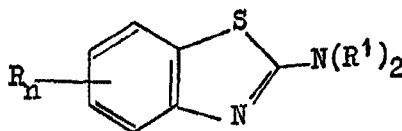
20 1. Un procedimiento mejorado de aminación con inter-
cambio para la preparación de 2-hidrazinobenzotiazoles de
fórmula:



25 donde cada grupo R representa independientemente hidrógeno,
halógeno,, alquilo inferior C₁-C₃, alcoxi inferior C₁-C₃ o
alquil(inferior)tio C₁-C₃ y n es 0, 1 ó 2; cuyo procedimien-
30 to se caracteriza por hacer reaccionar el correspondiente
compuesto de 2-aminobenzotiazol de fórmula:



419450



1
5 donde cada R¹ representa independientemente hidrógeno o metilo, con hidrazina en presencia de por lo menos una cantidad catalítica de un ácido.

10 2. Un procedimiento según la Reivindicación 1, caracterizado porque la reacción se efectúa en un disolvente seleccionado entre alquilendioles C₂-C₄; di- y tri-(etilen y propilen)glicoles; éteres monoalquílicos C₁-C₄ de etilenglicol y propilenglicol; éteres monoalquílicos C₁-C₄ de di- y tri-(etilen y propilen)glicoles; trietanolamina; sulfolano y dimetilsulfóxido.
15

3. Un procedimiento según las Reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado porque el compuesto de 2-aminobenzotiazol es 2-aminobenzotiazol.

20 4. Un procedimiento según las Reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado porque el compuesto de 2-aminobenzotiazol es 4-metil-2-aminobenzotiazol.

5. Un procedimiento según las Reivindicaciones 1 ó 2, caracterizado porque el compuesto de 2-aminobenzotiazol es 4-cloro-2-aminobenzotiazol.
25

6. Un procedimiento según cualquiera de las Reivindicaciones 2 a 5, caracterizado porque el disolvente es propilenglicol.

30 7. Un procedimiento según cualquiera de las Reivindicaciones 2 a 5, caracterizado porque el disolvente es etilenglicol.

419450

* S. D. I.



1

8. Se reivindica por último como objeto sobre el que ha de recaer la Patente de Invención que se solicita: " UN PROCEDIMIENTO MEJORADO DE AMINACION CON INTERCAMBIO PARA LA PREPARACION DE 2-HIDRAZINOBENZOTIAZOLES ".

5

Todo conforme queda descrito y reivindicado en la presente Memoria Descriptiva que consta de dieciseis páginas mecanografiadas.

Madrid, 8 de Octubre 1973

BERNARDO UNGRIA
P.P.

10

15

20

25

30