

1972/191

A

KÖZZÉTÉTELI
PÉLDÁNY

03007

58181--

DIBENZO-ALKIL-CIANO-HIDRAZINOKAT HATÓANYAGKÉNT ~~EZEKET~~
TARTALMAZÓ PESZTICID KÉSZÍTMÉNYEK, ÉS ELJÁRÁS ~~EZEN~~
HATÓANYAGOK
VEGYÜLETEK ELŐÁLLÍTÁSÁRA

ROHM AND HAAS COMPANY, Philadelphia, Pennsylvania,
Amerikai Egyesült Államok

Bejelentés napja: 1991. 06. 13.

Elsőbbsége: 1990. 06. 14. (538 297)

K I V O N A T

A találmány szerinti (I) általános képletű vegyületek
- a képletben
R jelentése terc-butil-, metil-neopentil- vagy
neopentilcsoport,
A¹ jelentése hidrogénatom, metil-, etil-, n-propil- vagy
izopropilcsoport,
ha A¹ jelentése hidrogénatom, akkor
A² és A³ jelentése egymástól függetlenül metil-, etil-,
metoxicsoport, bróm-, klór- vagy fluoratom,
ha A¹ jelentése hidrogénatomtól eltérő, akkor
A² és A³ jelentése hidrogénatom, és
D és E jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom,
metilcsoport, klór-, bróm- vagy fluoratom -
peszticid hatással rendelkeznek, fenti hatásuk következtében
peszticid szerek hatóanyagaként használhatók.

A fenti vegyületek előállítását és alkalmazását is is-
mertetik.

72606-5402

PK.

1972/91

25067

58181--

**ÖZZÉTÉTELI
PÉLDÁNY**

Képviselő:

DANUBIA SZABADALMI ÉS VÉDJEY IRODA KFT.

NS205

A01N 33/26

C07C243/38

DIBENZO-ALKIL-CIANO-HIDRAZINOKAT HATÓANYAGKÉNT ~~EZEKET~~
TARTALMAZÓ PESZTICID KÉSZÍTMÉNYEK, ÉS ELJÁRÁS ~~EZEN~~
HATÓANYAGOK.
VEGYÜLETEK ELŐÁLLÍTÁSÁRA

ROHM AND HAAS COMPANY, Philadelphia, Pennsylvania,
Amerikai Egyesült Államok

Feltalálók:

PHAT LE Dat, North Wales, Pennsylvania,
CARL³SON Glen Richard, North Wales, Pennsylvania
Amerikai Egyesült Államok

Bejelentés napja: 1991. 06. 13.

Elsőbbsége: 1990. 06. 14. (538 297)

Amerikai Egyesült Államok

A találmány peszticid hatású új dibenzo-alkil-ciano-hidrazinokra, hatóanyagként ezeket tartalmazó peszticid készítményekre, és e vegyületek előállítására szolgáló eljárásra vonatkozik.

A kiváló inszekticid aktivitással, és lényegében semmilyen más toxikus hatással nem rendelkező peszticidek kutatása állandóan folyamatban van, mivel olyan vegyületeket kívánnak előállítani, amelyek nagyobb aktivitással, jobb szelektivitással, minél kevesebb környezetkárosító hatással rendelkeznek, és az ismert inszekticidekkel szemben rezisztens rovarokra is hatnak.

Bizonyos dibenzoil-alkil-ciano-hidrazinok mint inszekticid hatású vegyületek ismertek. A 4 867 550 számú amerikai egyesült államokbeli szabadalmi leírásból ismertek az inszekticid hatású dibenzoil-(terc-butil)-karbazonitrilek, és az előállításukra szolgáló eljárások. Azonban a találmány szerinti vegyületek egyikét sem ismertetik a fenti szabadalmi leírásban.

Olyan új vegyületcsoportot sikerült találnunk, amely előre nem várt módon jobb tulajdonságokkal rendelkezik, mint a technika állásából ismert vegyületek.

A találmány közelebbről az (I) általános képletű vegyületekre - a képletben

R jelentése terc-butil-, metil-neopentil- vagy neopentilcsoport,

A¹ jelentése hidrogénatom, metil-, etil-, n-propil- vagy izopropilcsoport,

ha A¹ jelentése hidrogénatom, akkor

A² és A³ jelentése egymástól függetlenül metil-, etil-,
metoxicsoport, bróm-, klór- vagy fluoratom,

ha A¹ jelentése hidrogénatomtól eltérő, akkor

A² és A³ jelentése hidrogénatom, és

D és E jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom,
metilcsoport, klór-, bróm- vagy fluoratom.

A találmány szerinti vegyületek egyik csoportját az
(I-a) általános képletű vegyületek képezik, a képletben

R jelentése terc-butil-, metil-neopentil- vagy
neopentilcsoport,

A¹ jelentése metil-, etil-, n-propil- vagy
izopropilcsoport, és

D és E jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom, metil-
csoport, klór-, bróm- vagy fluoratom.

A fenti vegyületcsoportban előnyösek azok a vegyü-
letek, amelyek (I-a) általános képletében R jelentése terc-butil-
-csoport.

A fenti vegyületcsoport egyik osztályát azok a vegyü-
letek, képezik, amelyek (I-a) általános képletében A¹ je-
lentése metil-, etil-, n-propil- vagy izopropilcsoport, D je-
lentése metilcsoport és E jelentése hidrogénatom vagy metilcso-
port.

Előnyösebbek azok a vegyületek, amelyek (I-a) általános
képletében A¹ jelentése metil-, etil-, n-propil- vagy
izopropilcsoport, D jelentése metilcsoport és E jelentése
metilcsoport.

Legelőnyösebbek azok a vegyületek, amelyek (I-a)
általános képletében A¹ jelentése metil- vagy etilcsoport,

és D és E jelentése metilcsoport.

A fenti vegyületcsoport másik osztályát azok a vegyületek képezik, amelyek (I-a) általános képletében A^1 jelentése metil-, etil-, n-propil- vagy izopropilcsoport, és D és E jelentése hidrogénatom.

A fenti vegyületcsoporton belül újabb osztály képeznek azok a vegyületek, amelyek (I-a) általános képletében A^1 jelentése metil-, etil-, n-propil- vagy izopropilcsoport, és D és E jelentése egymástól függetlenül bróm- vagy klóratom. A^1 jelentése előnyösen metil- vagy etilcsoport és D és E jelentése azonosan klóratom.

A találmány szerinti vegyületek másik csoportját az (I-b) általános képletű vegyületek képezik, a képletben R jelentése terc-butil-, metil-neopentil- vagy neopentilcsoport,

A^2 és A^3 jelentése egymástól függetlenül metil-, etil-, metoxicssoport, klór-, bróm- vagy fluoratom, és D és E jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom, metilcsoport, klór-, bróm- vagy fluoratom.

A fenti vegyületcsoportban előnyösek azok a vegyületek, amelyek (I-b) általános képletében R jelentése terc-butilcsoport és D és E jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom vagy metilcsoport.

Legelőnyösebbek azok az (I-b) általános képletű vegyületek, amelyek képletében A^2 , A^3 és D jelentése metilcsoport és E jelentése hidrogénatom vagy metilcsoport.

A találmány szerinti vegyületek kultúrnövényeket, dísznövényeket és erdőket károsító rovarok elleni védelemre

használhatók.

Az (I) általános képletű vegyületeket a találmány szerinti eljárás értelmében úgy állíthatjuk elő, hogy egy (II) általános képletű N,N'-dibenzoil-N-alkil-hidrazint - a képletben

A¹, A², A³, D, E és R jelentése a fent megadott - alkálifém-hidriddel, például nátrium-hidriddel és ciano-halogeniddel, például bróm-ciánnal reagáltatunk. A reakciót általában vízmentes szerves oldószerben, például tetrahidrofuranban, dietil-éterben, metilén-kloridban vagy dioxánban, előnyösen tetrahidrofuranban játszadjuk le, mintegy 15 °C és 50 °C közötti hőmérsékleten.

A reakciót egy vízzel nem elegyedő szerves oldószerből és a bázikus vizes fázisból álló kétfázisú rendszerben is játszathatjuk, mintegy 5 °C és 95 °C közötti hőmérsékleten, előnyösen mintegy 15-50 °C-on. Szerves oldószerként előnyösen metilén-kloridot és kloroformot használhatunk. A vizes fázis előnyösen egy alkálifém-hidroxid, mint például 50 %-os nátrium-hidroxid-oldat. A kétfázisú reakciórendszerben egy fázistranszfer-katalizátornak, például tetrabutil-ammónium-hidrogén-szulfátnak vagy benzil-trimetil-ammónium-kloridnak is jelen kell lennie.

A kiindulási anyagként használt (II) általános képletű N,N'-dibenzoil-N-alkil-hidrazinokat többféle eljárással is előállíthatjuk.

Egyik eljárás szerint egy szubsztituált vagy szubsztituálatlan benzoil-halogenidet (A reaktáns) terc-butil-hidrazinnal, metil-neopentil-hidrazinnal vagy neopentil-hidra-

hidrogén-bromidját egy dikarbonáttal, például di(terc-butil)-dikarbonáttal, dietil-dikarbonáttal, difenil-dikarbonáttal vagy dibenzil-dikarbonáttal reagáltatjuk, bázis jelenlétében, inert vagy lényegében inert oldószerben vagy oldószerelegyben, a reakcióban köztiterméként N-(alkoxi-karbonil)-N'-alkil-hidrazint keletkezik. A kapott köztiterméket ezután benzoil-halogeniddel reagáltatjuk bázis jelenlétében, inert vagy lényegében inert oldószerben vagy oldószerelegyben, majd a kapott N-(alkoxi-karbonil)-N'-alkil-N'-benzoil-hidrazint savval reagáltatjuk, inert vagy lényegében inert oldószerben vagy oldószerelegyben, a reakció termékeként N'-alkil-N'-benzoil-hidrazint kapunk. A kapott vegyületet ezután benzoil-halogeniddel reagáltatjuk bázis jelenlétében, inert vagy lényegében inert oldószerben vagy oldószerelegyben, a reakció termékeként kapjuk a kívánt N,N'-dibenzoil-N'-alkil-hidrazint.

A fenti eljárás első, második és negyedik reakciólépésében oldószerként megfelelnek például a víz; tetrahidrofurán; dioxán; toluol; alkoholok, például metanol, etanol és izopropanol; hexán; acetonitril; piridin; és halogén-alkánok, például metilén-klorid; valamint a fenti oldószerkelegyei. Előnyös oldószerkelegyei a dioxán; toluol; tetrahidrofurán; piridin; metilén-klorid és víz. Legelőnyösebb oldószer a dioxán, a víz és a toluol.

Az első, második és negyedik reakciólépésben bázisként például terciér aminokat, mint például trietil-amint; piridint; kálium-karbonátot; nátrium-hidroxidot; és kálium-hidroxidot használhatunk. Előnyös bázisok a nátrium-hidroxid, kálium-hidroxid, piridin és trietil-amin.

A fenti eljárás harmadik reakciólépésében oldószerként megfelelnek például az alkoholok, mint például metanol, etanol és izopropanol; víz; tetrahidrofurán; dioxán; és acetonitril. Oldószerként előnyösen metanolt vagy etanolt használunk.

A fenti eljárásban savként például tömény sósavat vagy tömény kénsavat használhatunk.

A fenti eljárást mintegy 0 °C és mintegy 100 °C közötti hőmérséklettartományban, előnyösen mintegy 0 °C és mintegy 50 °C közötti hőmérsékleten hajtjuk végre.

A találmányt közelebbről - a korlátozás szándéka nélkül - az alábbi példák segítségével kívánjuk ismertetni. Az I. táblázatban foglaltuk össze a találmány szerinti vegyületek példáit. Ezt követően ismertetjük néhány vegyület jellegzetes előállítását is.

I. táblázat: (I-c) általános képletű vegyületek szerkezete

Vegyület száma	A ¹	A ²	A ³	D	E
1.	CH ₃	H	H	H	H
2.	CH ₃	H	H	CH ₃	H
3.	CH ₃	H	H	Cl	Cl
4.	CH ₃	H	H	Cl	H
5.	CH ₂ CH ₃	H	H	H	H
6.	CH ₂ CH ₃	H	H	CH ₃	H
7.	CH ₂ CH ₃	H	H	Br	H
8.	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	H	H
9.	CH ₂ CH ₃	H	H	CH ₂ CH ₃	H

I. táblázat (folytatás)

Vegyület száma	A ¹	A ²	A ³	D	E
10.	CH ₃	H	H	Br	H
11.	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃
12.	CH ₃	H	H	CH ₂ CH ₃	H
13.	CH ₂ CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃
14.	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	H
15.	CH(CH ₃) ₂	H	H	CH ₃	H
16.	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	CH ₃	H
17.	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃
18.	CH(CH ₃) ₂	H	H	CH ₃	CH ₃
19.	CH ₂ CH ₃	H	H	Cl	Cl
20.	CH ₂ CH ₃	H	H	F	F
21.	CH ₂ CH ₃	H	H	Br	Br
22.	CH ₂ CH ₃	H	H	Cl	H
23.	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H
24.	H	CH ₃	Cl	CH ₃	H
25.	H	CH ₃	Cl	H	H
26.	H	Cl	Cl	H	H
27.	H	Cl	Cl	CH ₃	H
28.	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃
29.	H	CH ₃	CH ₃	Cl	H
30.	H	CH ₃	Cl	CH ₃	CH ₃
31.	H	OCH ₃	OCH ₃	H	H
32.	H	CH ₃	Br	H	H

I. táblázat (folytatás)

Vegyület száma	A ¹	A ²	A ³	D	E
33.	H	CH ₃	Br	CH ₃	H
34.	H	CH ₃	F	H	H
35.	H	CH ₃	F	CH ₃	H
36.	H	Cl	Cl	CH ₃	CH ₃
37.	H	Cl	Cl	Cl	Cl
38.	H	Cl	Cl	Cl	H
39.	H	F	F	CH ₃	H
40.	H	F	F	CH ₃	CH ₃
41.	H	CH ₃	CH ₃	H	H
42.	H	Cl	CH ₃	H	H
43.	H	Cl	CH ₃	CH ₃	H
44.	H	Cl	CH ₃	CH ₃	CH ₃
45.	H	Cl	CH ₃	Cl	Cl
46.	H	Br	CH ₃	CH ₃	CH ₃
47.	H	Br	CH ₃	CH ₃	H
48.	H	Br	CH ₃	Cl	Cl
49.	H	CH ₃	CH ₃	Cl	Cl
50.	H	CH ₃	CH ₃	F	F
51.	H	CH ₃	Cl	F	F
52.	H	CH ₃	Cl	Cl	Cl
53.	H	Br	CH ₃	Cl	H
54.	H	Cl	CH ₃	Cl	H
55.	H	Br	CH ₃	H	H

I. táblázat (folytatás)

Vegyület száma	A ¹	A ²	A ³	D	E
56.	H	CH ₃	Cl	Cl	H
57.	H	CH ₃	Cl	F	H
58.	H	Cl	OCH ₃	CH ₃	CH ₃
59.	H	CH ₃	Cl	CH ₃	CH ₃
60.	H	F	F	H	H
61.	H	Cl	OCH ₃	CH ₃	H
62.	H	Cl	OCH ₃	H	H
63.	H	CH ₂ CH ₃	Cl	H	H
64.	H	F	CH ₃	H	H
65.	H	F	CH ₃	CH ₃	H
66.	H	F	CH ₃	Cl	H
67.	H	CH ₃	CH ₃	CH ₂ CH ₃	H
68.	H	F	CH ₃	CH ₃	CH ₃
69.	H	F	Cl	H	H
70.	H	F	Cl	CH ₃	CH ₃
71.	H	CH ₃	CH ₃	Br	Br
72.	H	CH ₃	CH ₃	Br	H
73.	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	Cl
74.	H	CH ₃	OCH ₃	CH ₃	CH ₃
75.	H	CH ₃	OCH ₃	H	CH ₃

1. példa

N'-(terc-Butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-
-(4-etil-benzoil)-hidrazin (13. vegyület) előállítása

(a) N'-(terc-Butil)-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-etil-
-benzoil)-hidrazin előállítása

1,24 g (10 mmól) terc-butil-hidrazin--hidrogén-klorid 30 ml toluollal készült szuszpenziójához szobahőmérsékleten cseppenként hozzáadjuk 0,8 g 50 %-os vizes nátrium-hidroxid oldatát (10 ml), és az elegyet 15 percen keresztül keverjük. A reakcióelegyet ezután 5 °C-ra hűtjük, és két külön választótölcsérből, egyidejűleg, cseppenként hozzáadjuk 1,69 g (10 mmól) 4-etil-benzoil-klorid 5 ml toluollal készült oldatát, és 0,8 g (10 mmól) 50 %-os vizes nátrium-hidroxidot, miközben a gondoskodunk arról, hogy a hőmérséklet a 10 °C-ot ne haladja meg. A beadagolás befejezése után a reakcióelegyet szobahőmérsékletre melegítjük és 1 órán keresztül keverjük. A reakcióelegyet toluollal hígítjuk és vízzel mossuk. A szerves fázist elválasztjuk, vízmentes magnézium-szulfát felett szárítjuk, és az oldószert vákuumban eltávolítjuk. Monobenzoilezett terméket kapunk.

2,19 g (10 mmól) monobenzoilezett termék 30 ml toluollal készült, kevert oldatához 5 °C-on két külön választótölcsérből, egyidejűleg, cseppenként hozzáadjuk 1,69 g (10 mmól) 3,5-dimetil-benzoil-klorid 5 ml toluollal készült oldatát, és 0,8 g 50 %-os vizes nátrium-hidroxid-oldatot, miközben gondoskodunk arról, hogy a hőmérséklet a 10 °C-ot ne haladja meg. A beadagolás befejezése után a reakcióelegyet szobahőmérsékletre melegítjük és 1 órán keresztül keverjük.

A reakcióelegyet ezután hexánnal hígítjuk és a csapadékként kivált terméket szűrőssel elválasztjuk. A terméket vízzel és hexánnal mossuk, majd szárítjuk. A nyersterméket dietil-éter és metanol elegyéből átkristályosítjuk.

Cím szerinti vegyületet kapunk fehér por formájában, olvadáspontja 181 °C.

(b) N'-(terc-Butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-etil-benzoil)-hidrazin (13. vegyület) előállítása

3,52 g (10 mmól) N'-(terc-butyl)-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-etil-benzoil)-hidrazin 150 ml metilén-kloriddal készült, vízfürdőn hűtött oldatához keverés közben 0,3 g (0,88 mmól) tetrabutyl-ammónium-hidrogén-szulfátot adunk. Ezután hozzáadunk 5,2 ml 50 %-os vizes nátrium-hidroxid-oldatot, majd 20-25 °C-on cseppenként hozzáadjuk 1,6 g (15 mmól) bróm-cián 50 ml metilén-kloriddal készült oldatát. A kapott elegyet 1 órán keresztül keverjük. Ezután hozzáadunk 200 ml jéghideg desztillált vizet, és a szerves fázist elválasztjuk, majd telített, vizes nátrium-klorid-oldattal és vízzel mossuk. A szerves fázist vízmentes nátrium-karbonát felett szárítjuk, szűrjük és vákuumban bepároljuk. A kapott sárga olajat hexánbók átkristályosítjuk.

1,0 g cím szerinti vegyületet kapunk, olvadáspontja 72-73 °C.

Lényegében az 1. példa (a) lépésében leírtak szerint eljárva, de 4-etil-benzoil-klorid helyett 4-metil-benzoil-kloridot, 4-izopropil-benzoil-kloridot, 4-(n-propil)-benzoil-kloridot, 2,3-diklór-benzoil-kloridot, 2,3-

-dimetil-benzoil-kloridot, 2-klór-3-metil-benzoil-kloridot, 2,3-dimetoxi-benzoil-kloridot, 3-bróm-2-metil-benzoil-kloridot, 2-metil-3-fluor-benzoil-kloridot, 2,3-difluor-benzoil-kloridot, 2-bróm-3-metil-benzoil-kloridot, 2-metil-3-klór-benzoil-kloridot, 2-klór-3-metoxi-benzoil-kloridot, 2-etil-3-klór-benzoil-kloridot, 2-fluor-3-metil-benzoil-kloridot, 2-metil-3-metoxi-benzoil-kloridot vagy 2-fluor-3-klór-benzoil-kloridot; és 2,3-dimetil-benzoil-klorid helyett benzoil-kloridot, 3-metil-benzoil-kloridot, 3,5-diklór-benzoil-kloridot, 3-klór-benzoil-kloridot, 3-bróm-benzoil-kloridot, 3-etil-benzoil-kloridot, 3,5-dimetil-benzoil-kloridot, 3,5-difluor-benzoli-kloridot, 3,5-dibróm-benzoil-kloridot vagy 3-klór-5-metil-benzoil-kloridot használva állítjuk elő az I. táblázatban összefoglalt 1-7., 9-20 és 26-75. vegyületek köztitermékeit is.

Az így kapott köztitermékeket az 1. példa (b) lépésében leírtak szerint bróm-ciánnal reagáltatva állítjuk elő az 1-7., 9-20. és 26-75. vegyületeket.

2. példa

N'-(terc-Butil)-N-ciano-N-(2,3-dimetil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin (23. vegyület) előállítása

(a) N'-(terc-Butil)-N-(2,3-dimetil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin előállítása

1. lépés

51 g terc-butil-hidrazin 150 ml 2:1 arányú dioxán-víz eleggyel készült, kevert szuszpenziójához 32 g 50 %-os vizes nátrium-hidroxid-oldatot adunk. Az oldatot 10 perc elteltével 50 °C-ra hűtjük, és a reakcióelegy hőmérsékletét 10 °C alatt

tartva cseppenként hozzáadunk 42 g di(terc-butil)-dikarbonátot. A reakcióelegyet szobahőmérsékletre melegítjük és 2 órán keresztül a fenti hőmérsékleten keverjük. A reakcióelegyet leszűrjük, vízzel mossuk és szárítjuk.

74 g N-(terc-butoxi-karbonil)-N'-(terc-butil)-hidrazint kapunk, fehér, kristályos anyag formájában, olvadáspontja 69-71 °C.

2. lépés

61 g N-(terc-butoxi-karbonil)-N'-(terc-butil)-hidrazin 120 ml toluollal készült, kevert oldatához két külön választótölcsérből, egyidejűleg, cseppenként 45 g 3-metil-benzoil-kloridot és 31 g 50 %-os vizes nátrium-hidroxid-oldatot adunk. A reakcióelegyet szobahőmérsékleten 1 órán keresztül keverjük, majd a szilárd N-(terc-butoxi-karbonil)-N'-(terc-butil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazint leszűrjük, vízzel és hexánnal mossuk, és szárítjuk.

3. lépés

0,18 g N-(terc-butoxi-karbonil)-N'-(terc-butil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazint metanolos hidrogén-klorid-oldatban szobahőmérsékleten 4 napon keresztül keverünk. A reakcióelegyet telített, vizes nátrium-hidrogén-karbonát-oldattal semlegesítjük, a kivált fehér csapadékot leszűrjük, vízzel mossuk és szárítjuk. N'-(terc-butil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazint kapunk.

4. lépés

1,0 g N'-(terc-butil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin 15 ml toluollal és 0,5 g 50 %-os vizes nátrium-hidroxid-oldattal készült, kevert elegyéhez 2,0 g 2,3-dimetil-benzoil-kloridot

adunk. A reakcióelegyet 2 órán keresztül keverjük, majd a terméket szűrőssel elválasztjuk. N'-(terc--butil)-N-(2,3-dimetil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazint kapunk.

(b) N'-(terc-Butil)-N-ciano-N-(2,3-dimetil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin előállítás

Lényegében az 1. példa (b) lépésében leírtak szerint eljárva állítjuk elő a cím szerinti vegyületet, olvadáspontja 190-191 °C.

A 2. példa (a) lépésében leírtak szerint eljárva, de 2,3-dimetil-benzoil-klorid helyett 4-(n-propil)-benzoil-kloridot vagy 2-metil-3-klór-benzoil-kloridot; és N'-(terc-butil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin helyett N'-(terc-butil)-N'-benzoil-hidrazint használva állítjuk elő a 8., 24. és 25. vegyületek köztitermékeit.

Ezután az 1. példa (b) lépésében leírtak szerint eljárva állítjuk elő a 8., 24. és 25. vegyületeket

A találmány szerinti vegyületek mind elfogyasztva, mind érintkezés útján kifejtik hatásukat a kártevők ellen. Ezenkívül meglepően hatásosak szisztémikusan is a kártevőt hordozó növényekben. A találmány szerinti vegyületek továbbá meglepően jól oldódnak szerves oldószerekben. Fenti oldhatóságuk következtében könnyebb belőlük cseppfolyós készítményeket előállítani, amelyek várhatóan hatásosabbak, amikor a készítményeket használjuk.

Erős peszticid hatásuk és kiváló maradék peszticid aktivitásuk következtében a találmány szerinti vegyületek

alacsony dózisban alkalmazhatók a kártevők elleni védelemre. A dózis nagysága számos faktortól függ, például az adott hatóanyagtól, a kártevő fajtajától, az alkalmazott készítmény formájától, a fertőzött növény állapotától, és az uralkodó időjárási viszonyoktól. Általában mezőgazdasági és kertészeti kártevők elleni védelemre a találmány szerinti vegyületek dózisa mintegy 0,01 g és mintegy 10 kg között lehet hektáranként, előnyösen 0,1 - 200 g hatóanyag/hektár dózisban alkalmazhatók. Az adott esetben alkalmazandó dózis nagysága - amely számos faktortól, például a kártevő fajtajától, az alkalmazott készítmény formájától, a fertőzött növény állapotától és az uralkodó időjárási viszonyoktól függ - rutinszerűen megállapítható.

Peszticid alatt minden olyan szert értünk, amely az adott kártevő létezését vagy szaporodását gátolja. A fenti szerek kifejthetnek teljes ölü hatást, kipusztítást, növekedésgátlást, gátlást, szaporodásgátlást, és ezek kombinációit. Kártevő elleni védelem alatt minden olyan eszköz értendő, amely alkalmas a növények kártevőire peszticid hatást kifejteni. Peszticid hatást kifejtő mennyiség alatt a hatóanyag azon dózisát értjük, amely a kártevő elleni kívánt védőhatást kifejti.

A találmány szerinti vegyületek készítmények formájában alkalmazhatók. A készítmények előállítása ismert például az American Chemical Society "Pesticidal Formulation Research" c. kiadványából [Wade Van Valkenburg: Advances in Chemistry Series, 86 (1969)] és a "Pesticide Formulations" c. könyvből (szerkesztő Wade Van Valkenburg, kiadó Marcel Dekker, Inc., 1973).

A fenti készítményekben a hatóanyagot szokásos, inert,

mezőgazdaságilag elfogadható (azaz a növényekkel összeférhető és/vagy peszticid szempontból inert) peszticid hígítóanyagokkal vagy töltőanyagokkal, például peszticid készítmények előállítására szokásosan használt szilárd hordozóanyagokkal vagy cseppfolyós vivőanyagokkal összekeverjük. Mezőgazdaságilag elfogadható hordozóanyag alatt olyan anyagokat értünk, amelyek alkalmasak a hatóanyag oldására, diszpergálására vagy elosztására a készítményben, a hatóanyag aktivitásának csökkentése nélkül, és amelyek önmaguk nem károsítják jelentősen a talajt, a készülékeket, a haszonnövényeket vagy a mezőgazdasági környezetet. Kívánt esetben adjuvánsokat, például felületaktív anyagokat, stabilizátorokat, habzásgátlókat és tapadást elősegítő anyagokat is tartalmazhatnak a készítmények.

A találmány szerinti készítmények például vizes oldatok és diszperziók, olajos oldatok és olajos diszperziók, paszták, porozószerkezetek, nedvesíthető porok, emulgeálható koncentrátumok, szabadon folyó készítmények, granulátumok, csalik, invert emulziók, aeroszol készítmények és füstölőgyertyák lehetnek. A nedvesíthető porok, paszták, szabadon folyó készítmények és emulgeálható koncentrátumok koncentrált készítmények, amelyeket a felhasználás előtt, vagy annak során hígítani kell. A csalik olyan készítmények, amelyek általában ennivalót, vagy egyéb, rovarokat vonzó anyagot és legalább egy találmány szerinti vegyületet tartalmaznak. Az invert emulziókat általában levegőből alkalmazzuk, amikor nagy területeket kezelünk viszonylag kis mennyiségű készítménnyel, ezeket a permetezőkészülékben készítjük el, közvetlenül a permetezés előtt, vagy az alatt, oly módon, hogy a hatóanyag olajos oldatát vagy diszperzióját

vízzel emulgeáljuk.

A készítményeket ismert módon, például úgy állíthatjuk elő, hogy a hatóanyagokat szokásosan alkalmazott diszpergálható cseppfolyós vivőanyagokkal és/vagy diszpergálható szilárd hordozóanyagokkal és kívánt esetben egyéb segédanyagokkal, például hagyományosan alkalmazható felületaktív szerekkel, így például emulgeátorokkal és/vagy diszpergálószerekkel elegyítjük, és ha hígítószerként vizet használunk, társoldószerként szerves oldószereket is alkalmazhatunk.

A találmány szerinti hatóanyagokat önállóan, vagy egymással alkotott keverékek formájában, és/vagy a fenti szilárd és/vagy cseppfolyós diszpergálható hordozóanyagokkal és/vagy egyéb ismert kompatibilis hatóanyagokkal, különösen növényvédőszer-hatóanyagokkal, mint például egyéb inszekticid, artropodacid, nematocid, fungicid, baktericid, rodenticid, herbicid, műtrágya, növényi növekedésszabályozó és hatásfokozó anyagokkal kombinálva is alkalmazhatjuk.

A találmány szerinti készítményekben a hatóanyag mennyisége általában 0,0001 és 99 tömeg% között lehet. A tárolásra és szállításra alkalmas készítményekben a hatóanyag mennyisége előnyösen 0,5 és 90 tömeg% között van, még előnyösebben mintegy 1 - 75 tömeg%. A közvetlen felhasználásra vagy mezőgazdasági alkalmazásra megfelelő készítmények általában 0,0001 - 95 tömeg%, előnyösen mintegy 0,0005 - 90 tömeg%, még előnyösebben mintegy 0,001 - 75 tömeg% hatóanyagot tartalmaznak.

A találmány szerinti hatóanyagokat inszekticid permetezőszerek formájában szokásos eljárásokkal alkalmazhat-

juk, például hagyományos nagytérfogató hidraulikus permetezőszerek, kistérfogató permetezőszerek, ultrakistérfogató permetezőszerek, levegőbefúvásos permetezőszerek, légi permetezőszerek és porok formájában.

A találmány a kártevők elpusztítására, illetve az ellenük való védekezésre is vonatkozik, oly módon, hogy a kártevőket legalább egy peszticid hatást kifejtő mennyiségű találmány szerinti vegyülettel hozzuk érintkezésbe, önmagában, vagy hordozóanyaggal kombinálva, készítmény formájában. Az érintkezésbe hozás alatt azt értjük, hogy legalább egy ilyen (a) kártevőre, és (b) annak előfordulási helyére (azaz a védendő területre, például a fejlődő növényre vagy a növény termesztési helyére) felviszünk egy találmány szerinti vegyületet, önmagában, vagy egy készítmény komponenseként.

A fenti komponenseken kívül a találmány szerinti készítmények egyéb olyan anyagokat is tartalmazhatnak, amelyeket az ilyen készítményekben szokásosan alkalmaznak. Így például a nedvesíthető porok vagy granulálható keverékek csúsztatóanyagokat, például kalcium-sztearátot vagy magnézium-sztearátot is tartalmazhatnak. Ezenkívül tapadást elősegítő anyagokat, például polivinilalkohol-cellulóz-származékokat vagy egyéb kolloid anyagokat, például kazeint is tartalmazhatnak a készítmények, ezáltal fokozható a peszticid tapadása a védendő felülethez.

A találmány szerinti készítmények ismert peszticid hatású anyagokat is tartalmazhatnak. Ezzel növelhető a találmány szerinti készítmények hatásspektruma, és hatásfokozódást is elérhetünk.

A találmány szerinti készítmények például az alábbi ismert inszekticid, fungicid és akaricid hatású vegyületeket tartalmazhatják a találmány szerinti hatóanyagon kívül.

Inszekticidek:

acefát, acetion, acetoxon, aldikarb, aldoxikarb, aldrin, alletrin, allixikarb, alfa-cipermetrin, amidition, amitraz, amlure, anetol, azetion, azinfosz-etil, azinfosz-metil, azociklotin, Bacillus thuringiensis, BCPE, bendiokarb, benszultap, benzoximát, benzil-acetát, BHC, bifentrin, binapakril, bomil, BPMC, brómfosz, brómfosz-etil, bróm-propilát, bufenkarb, buprofezin, butakarb, butokarboxim, butonát, butoxikarboxim, kalcium-arzenát, karbaril, karbofurán, karbofenotion, karboszulfan, kartap, klordán, klordekon, klordimeform, klorfenetol, klorfenzon, klorfenzulfid, klorfenvinfosz, klormefosz, klórbenzilát, klór-propilát, klorfoxim, klorpirifosz, klorpirifosz-metil, klortiofosz, klofentezin, CPCBS, CPMC, krotoxifosz, krufomát, kriolit, kufraneb, cianofenfosz, cianofosz, ciantoát, ciflutrin, cihexatin, cipermetrin, cifenotrin, ciromazin, DAEP, DDT, DDVP, deltametrin, demeton, demeton-S-metil, demeton-O-metil, demeton-S, demeton-S-metil-szulf-oxid, demefion-O, demefion-S, dialifor, diazinon, dikapton, dikofol, dikrotofosz, dieldrin, dienoklor, diflubenzuron, dihidrorotenon, dimefox, dimetan, dimetoát, dimetrin, dinex, dinitrofenol, dinobuton, dinokap, dioxabenzofosz, dioxakarb, dioxation, diszparlur, diszulfoton, DMCP, DNOC, d-transz-alletrin, endoszulfan, endotion, endrin, entic, EPBP, EPN, eszfenvalerát, etiofenkarb, etion, etoát-metil, etoprop,

etrimfosz, fenamifosz, fenazaflor, fenbutatin-oxid, fenitro-
tion, fenoxikarb, fenpropatrin, fenzon, fenszulfotion, fen-
tion, fenvalerát, flubenzimin, flucitrinát, fluenetil, flu-
fenoxuron, fluvalinát, fonofosz, formetanát-hidroklorid,
formotion, foszmetilan, fosztietan, furatiokarb, furetrin,
grandlur, heptaklor, HETP, hexitiazox, hidrametilnon, hidro-
prén, IPSP, izazofosz, izobenzan, izofenfosz, izoprokarb,
izoprotiolán, izotioát, izoxation, jódfenfosz, kinoprén,
ólom-arzenát, leptofosz, letán, lindán, litidation, malation,
mazidox, mekarbam, mekarfon, menazon, mefoszfolan,
metamidofosz, metidation, metiokarb, metomil, metoprén,
metoxiklor, metil-paration, metil-fenkapton, mevinfosz,
mexakarbát, MIPC, mirex, monokrotofosz, MTMC, naled, nikotin,
nonaklor, ometoát, ovex, oxamil, oxideprofosz, oxidiszulfoton,
oxitiokinox, paraoxon, paration, párizszöld, permetrin, pertán,
fenkapton, fentoát, forát, foszalone, foszfolán, foszmet,
foszniklor, foszfamidon, foxim, pirimikarb, pirimifosz-etil,
pinmifosz-metil, plifenát, profenofosz, promekarb, propargite,
propetamfosz, propoxur, protidation, protiofosz, protoát,
PTMD, piridaben, piridafention, kinalfosz, rezmetrin, ronnell,
rotenone, riania, s-bioalletrin, szalition, szkradan, nátrium-
-fluoszilikát, szofamid, szulfotepp, sulprofosz, teflutrin,
temefosz, TEPP, terbufosz, tetraklorvinfosz, tetradifon,
tetrametrin, tetraszul, tallium-szulfát, tiokarboxim, tio-
ciklam-hidrogén-oxalát, tiometon, tolklofosz-metil, toxafén,
triazofosz, triklorfon, trikloronát, triflumuron, trimetakarb,
vamidotion és xililkarb.

A találmány szerinti inszekticidekkel kombinálható

fungicidek például az alábbiak lehetnek:

(a) ditiokarbamát és származékai, például ferbam, ziram, maneb, mankozeb, zineb, propineb, metam, tiram, zineb és polietilén-tiuram-diszulfid komplexe, dazomet, és ezek rézsókkal alkotott elegyei;

(b) nitro-fenol-származékok, például dinokap, binapakril és 2-(szek-butil)-4,6-dinitro-fenil-izopropil-karbonát;

(c) heterociklusos vegyületek, például kaptan, folpet, gliodin, anilazin, ditalimfosz, 4-butil-1,2,4-triazol, 5-amino-1-[bis(dimetil-amino)-foszfinil]-3-fenil-1,2,4-triazol, etradiazol, ditianon, tiokinox, benomil, tiabendazol, 4-(2-klór-fenil-hidrazono)-3-metil-5-izoxazonon, vinklozolin, iprodion, procimidon, triadimenol, triadimefon, bitertanol, prokloraz, fenazimol, bisz(p-klór-fenil)-3-piridil-metanol, bisz(p-klór-fenil)-5-pirimidil-metanol, triarimol, flutriafol, fluzilazol, propikonazol, ektakonazol, miklobutanil, alfa-[2-(4-klór-fenil)-etil]-alfa-fenil-1H-1,2,4-triazol-1-propánnitril, hexakonazol, ciprokonazol, terbukonazol, dini-konazol, fluorimid, piridin-2-tiol-1-oxid, 8-hidroxi-kinolin-szulfát és fémsói, 2,3-dihidro-5-karboxanilido-6-metil-1,4-oxatiin-4,4-dioxid, 2,3-dihidro-5-karboxanilido-6-metil-1,4-oxatiin, cisz-N-[(1,1,2,2-tetra-klór-etil)-tiol]-4-ciklohexén-1,2-dikarboximid, cikloheximid, dehidroecetsav, kaptafol, etirimol, kinometionát, D,L-metil-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(2'-metoxi-acetil)-alanin-metil-észter, D,L-metil-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(klór-acetil)-D,L-2-amino-butiolakton, D,L-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(fenil-acetil)-alanin-metil-észter, 5-metil-5-vinil-3-(3,5-diklór-fenil)-

-2,4-dioxo-1,3-oxazolidin, 3-(3,5-diklór-fenil)-5-metil-5-(metoxi-metil)-1,3-oxazolidin-2,4-dion, 3-(3,5-diklór-fenil)-1-izopropil-karbamoil-hidantoin, 2-ciano-[N-(etil-amino-karbonil)-2-(metoxi-imino)]-acetamide, fenpropimorf, fenpropidin, 2,6-dimetil-N-tridecil-morfolin, dodemorf és triforine;

(d) különféle halogénezett fungicidek, mint például kloranil, diklon, klórneb, trikamba, TCPN, dikloran, 2-klór-1-nitro-propán, poliklór-nitrobenzolok, például pentaklór-nitrobenzol (PCNB), és tetrafluor, diklór-aceton;

(e) fungicid antibiotikumok, mint például grizeofulvin, kasugamicin, polioxin, validamicin és sztreptomicin;

(f) réz-bázisú fungicidek, mint például réz-hidroxid, réz(I)-oxid, bázikus réz(II)-klorid, bázikus réz-karbonát, réz-tereftalát, réz-naftenát és bordóilé; és

(g) különféle fungicidek, mint például dodin, fenil-higany(II)-acetát, N-etil-higany(II)-1,2,3,6-tetrahidro-3,6-endo-metano-3,4,5,6,7,7-hexaklór-ftálimid, fenil-higany(II)-monoetanol-ammónium-laktát, p-(dimetil-amino)-benzolszulfonát-nátriumsó, metil-izotiocianát, 1-tiociano-2,4-dinitro-benzol, 1-fenil-tioszemikarbazid, nikkeltartalmú vegyületek, kalcium-ciánamid, mészkő-kén, tiofanát-metil, flutolanil, edinofosz, izoprothiolán, propenazol és triciklazol.

A találmány szerinti vegyületek biológiai hatásának kiértékelése során azt tapasztaltuk, hogy e vegyületek peszticid aktivitással rendelkeznek, és a kártevők lárvaállapotú és kifejtett formájára egyaránt hatnak, különösen igaz ez a Lepi-

doptera és Diptera rendbe tartozó rovarok esetén, méginkább a Lepidoptera rendbe tartozó rovarokra. Szakember számára nyilvánvaló az, hogy hogyan kell meghatározni egy adott vegyület aktivitását egy adott rovar ellen, és hogy milyen dózisok szükségesek általános és szelektív peszticid hatás elérésére. A találmány szerinti vegyületek a rovarok normális kifejlődését befolyásolják, különösen a Lepidoptera rendbe tartozó rovarokét, az átváltozási folyamatok közvetlen és/vagy közvetett befolyásolása által.

Amint már említettük, a találmány szerinti vegyületek különösen a növénykárosító rovarok ellen alkalmazhatók haszonnövények, mint például rizs, gyapot, zöldségfélék, kukorica és egyéb gabonafélék, stb; erdők, mint például nyírfa-, lucfenyő-, fenyő-, erdei fenyőerdők és hasonlók; és dísznövények, mint például a virágok és fák kártevői ellen. A találmány szerinti vegyületek raktározott árúkat, mint például magvakat és hasonlókat; gyümölcsösöket, például gümölcs- és citromfát, málnabokrot és hasonlókat; és fűféléket, például pázsitokat, gyepeket károsító rovarok ellen különösen jól alkalmazhatók. Ezenkívül úgy tűnik, hogy a találmány szerinti vegyületek nem toxikusak a hasznos rovarokra, például méhekre és katicabogarakra.

A találmány szerinti vegyületek peszticid aktivitását az alábbi vizsgálatokkal határozzuk meg.

A vizsgálandó vegyületekből 600 ppm koncentrációjú oldatot készítünk, oly módon, hogy a vegyületet acetonitril és metanol 1:1 térfogatarányú elegyében oldjuk, víz hozzáadásával 5:5:90 aceton-metanol-víz elegyet állítunk elő, majd hozzáadjuk

a felületaktív szert. Felületaktív szerként egy alkil-aril-poliéter-alkohol (Triton^R X-155 márkanéven forgalmazva) és egy módosított ftálsav-glicerín-alkil-gyanta (Triton^R B-1956 márkanéven forgalmazva) 1:1 arányú elegyét használjuk, 28,35 g/4,543 liter vizsgálendő oldat mennyiségben.

Az első kiértékeléseket az alábbi rovaron végezzük:

Jele	Köznapi neve	Latin neve
SAW	sereghernyő	Spodoptera eridania

A levélzeten végzett vizsgálathoz Petri-csészébe megnedvesített szűrőpapírdarabra helyezzük a babnövény (*Phaseolus limensis* var. Woods' Profilic) egyes leveleit. A leveleket ezután bepermetezzük a vizsgálati oldattal, forgó asztalt használva, és száradni hagyjuk. A csészéket ezután 10 db 3. lárvaállapotban lévő *Spodoptera eridania*val fertőzzük, és a csészéket lefedjük.

A kezelés után 96 órával kiértékeljük a rovarok %-os pusztulását. Az kiértékelést 0-tól 100-ig terjedő skála segítségével végezzük, ahol 0 az aktivitás hiányát, míg 100 a teljes pusztulást jelenti.

A forgó asztal egy rögzített, folyamatosan működő permetezőfejet tartalmaz, amely alatt a céltárgyak állandó sebességgel és távolságban forognak. A permetezőfejtől mért távolság 38,1 cm. A permetezőfej a forgástengelytől 20,32 cm-re van elhelyezve. A különálló felületeken elhelyezett céltárgyak a tengely körül 1 fordulat/20 másodperc sebességgel forognak, de

eközben csak rövid időre kerülnek a permet útjába. A céltárgyak csak egyszer haladnak át a permetezőfej alatt, ezután szárító polcokra kerülnek.

Permetezőfejként 1/4 JCO Spraying Systems (Wheaton, Illionis) levegőporlasztó fejet használunk, amely No 2850 folyadéksapkával és No 70 levegősapkával van ellátva. A folyadéktartályból $6,897 \times 10^4$ Pa túlnyomással 1,88 liter/óra folyadékmennyiséget juttatunk ki, köralakban, 21° permetezési szögben. A céltárgyakat a permetcseppecskék olyan mértékben nedvesítik be, hogy a cseppek összefüggő vékony filmet képeznek, amiben a vizsgált rovarok még nem fulladnak meg.

A kezelt leveleket jó szellőzésű helyiségben, állandó fluorszcens fényben $24-27^\circ\text{C}$ -on tartjuk. A vegyületek peszticid hatásának kiértékelését a III. táblázatban ismertetjük.

III. táblázat: Peszticid hatás *Spodoptera eridania* ellen, 600 ppm koncentrációban

Vegyület száma	Pusztulás (%)
13.	100
23.	100

S z a b a d a l m i i g é n y p o n t o k

1. (I) általános képletű vegyületek, a z z a l
j e l l e m e z v e , h o g y a képletben
R jelentése terc-butil-, metil-neopentil- vagy
 neopentilcsoport,
A¹ jelentése hidrogénatom, metil-, etil-, n-propil- vagy
 izopropilcsoport,
ha A¹ jelentése hidrogénatom, akkor
A² és A³ jelentése egymástól függetlenül metil-, etil-,
 metoxicssoport, bróm-, klór- vagy fluoratom,
ha A¹ jelentése hidrogénatomtól eltérő, akkor
A² és A³ jelentése hidrogénatom, és
D és E jelentése egymástól függetlenül hidrogénatom,
 metilcsoport, klór-, bróm- vagy fluoratom.
2. Az 1. igénypont szerinti vegyületek, a z z a l
j e l l e m e z v e , h o g y
A¹ jelentése hidrogénatomtól eltérő.
3. A 2. igénypont szerinti vegyületek, a z z a l
j e l l e m e z v e , h o g y
R jelentése terc-butil-csoport.
4. Az 1. vagy 2. igénypont szerinti vegyületek, a z -
z a l j e l l e m e z v e , h o g y
D jelentése metilcsoport és
E jelentése hidrogénatom vagy metilcsoport.
5. A 4. igénypont szerinti vegyület, a z z a l
j e l l e m e z v e , h o g y a z

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-etil-benzoil)-hidrazin, vagy

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-metil-benzoil)-hidrazin.

6. A 3. igénypont szerinti vegyületek a z z a l j e l l e m e z v e , hogy

D és E jelentése azonosan hidrogénatom vagy klóratom.

7. A 6. igénypont szerinti vegyület, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy az

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-diklór-benzoil)-N-(4-metil-benzoil)-hidrazin, vagy

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-diklór-benzoil)-N-(4-etil-benzoil)-hidrazin.

8. A 3. igénypont szerinti vegyület, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy az

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(4-metila-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(4-metil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-diklór-benzoil)-N-(4-metil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-klór-benzoil)-N-(4-metil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(4-etil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(4-etil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(3-bróm-benzoil)-N'-(4-etil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-[4-(n-propil)-benzoil]-
-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(4-etil-benzoil)-N'-(3-etil-benzoil)-
-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-bróm-benzoil)-N-(4-metil-benzo-
il)-hidrazin,
N'-t-butil-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-metil-benzo-
il)-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-etil-benzoil)-N-(4-metil-benzo-
il)-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-etil-ben-
zoil)-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(4-izopropil-benzoil)-hid-
razin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-metil-benzoil)-N-[4-(n-propil)-
-benzoil]-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-[4-(n-pro-
pil)-benzoil]-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-izopro-
pil-benzoil)-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(4-izopro-
pil-benzoil)-hidrazin,
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-difluor-benzoil)-N-(4-etil-
-benzoil)-hidrazin, vagy
N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-difluor-benzoil)-N-(4-etil-ben-
zoil)-hidrazin.

9. Az 1. igénypont szerinti vegyületek a z z a l
j e l l e m e z v e , hogy

A¹ jelentése hidrogénatom.

10. A 9. igénypont szerinti vegyületek, a z z a l
j e l l e m e z v e , hogy

R jelentése terc-butil-csoport.

11. A 11. igénypont szerinti vegyületek, a z z a l
j e l l e m e z v e , hogy

A² és A³ jelentése azonosan metilcsoport,

E jelentése hidrogénatom vagy metilcsoport és

D jelentése hidrogénatom vagy metilcsoport, előnyösen
metilcsoport.

12. A 9. igénypont szerinti vegyület, a z z a l
j e l l e m e z v e , hogy az

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-dimetil-benzoil)-N'-(3-metil-
-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-metil-benzoil)-N-(2-metil-3-klór-
-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2-metil-3-klór-benzoil)-
-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2,3-diklór-benzoil)-
-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-klór-benzoil)-N'-(3-metil-benzo-
il)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-dimetil-benzoil)-N'-(3,5-dime-
til-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-klór-benzoil)-N-(2,3-dimetil-ben-
zoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(2-metil-3-
-klór-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2,3-dimetoxi-benzoil)-
 -hidrazine,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2-metil-3-bróm-benzoil)-
 - hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-metil-benzoil)-N-(2-metil-3-bróm-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2-metil-3-fluor-benzoil)-
 -hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(2-metil-3-
 -fluor-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-diklór-benzoil)-N'-(3,5-dimetil-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-diklór-benzoil)-N'-(3,5-diklór-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-klór-benzoil)-N-(2,3-diklór-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-difluor-benzoil)-N'-(3-metil-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2,3-difluor-benzoil)-N'-(3,5-dime-
 til-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2,3-dimetil-benzoil)-hid-
 razin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2-klór-3-metil-benzoil)-
 -hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-klór-3-metil-benzoil)-N'-(3-metil-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-klór-3-metil-benzoil)-N'-(3,5-di-
 metil-benzoil)-hidrazin,

N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-klór-3-metilbenzoil)-N'-(3,5-di-
 klór-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-bróm-3-metil-benzoil)-N'-(3,5-di-
 metil-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-bróm-3-metil-benzoil)-N'-(3-metil-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-bróm-3-metil-benzoil)-N'-(3,5-di-
 klór-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-diklór-benzoil)-N-(2,3-dimetil-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-difluor-benzoil)-N-(2,3-dime-
 til-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-difluorbenzoil)-N-(2-metil-3-
 -klór-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-diklór-benzoil)-N-(2-metil-3-
 -klór-benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(2-bróm-3-metil-benzoil)-N'-(3-klór-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(3-klór-benzoil)-N-(2-klór-3-metil-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-benzoil-N-(2-bróm-3-metil-benzoil)-
 -hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3-klór-benzoil)-N-(2-metil-3-klór-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N-(3-fluor-benzoil)-N-(2-metil-3-klór-
 -benzoil)-hidrazin,
 N'-(terc-butil)-N-ciano-N'-(3,5-dimetil-benzoil)-N-(3-metoxi-2-
 -metil-benzoil)-hidrazin vagy

N'-(terc-butyl)-N-ciano-N-(3-metoxi-2-metil-benzoil)-N'-(3-metil-benzoil)-hidrazin.

13. Inszekticid készítmények, a z z a l j e l - l e m e z v e , hogy egy, az 1-12. igénypont szerinti vegyületet tartalmaznak inszekticid hatást kifejtő mennyiségben, előnyösen 0,0001-95 tömeg%-ban, előnyösebben 0,0005-90 tömeg%-ban, legelőnyösebben 0,001-75 tömeg%-ban, mezőgazdaságilag elfogadható hordozóanyag mellett.

14. Eljárás rovarok irtására, a z z a l j e l - l e m e z v e , hogy a rovarokat vagy azok előfordulási helyét az 1-13. igénypontok bármelyike szerinti vegyület vagy készítmény inszekticid hatást kifejtő mennyiségével hozzuk érintkezésbe.

15. A 14. igénypont szerinti eljárás, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy a rovarok a Lepidoptera vagy Diptera, előnyösen a Lepidoptera rendbe tartoznak.

16. A 14. vagy 15. igénypont szerinti eljárás, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy a vegyületet vagy a készítményt 0,01-10 kg/ha, előnyösen 0,1-200 g/ha mennyiségben alkalmazzuk.

17. Eljárás az 1-12. igénypontok bármelyike szerinti vegyületek előállítására, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy

- (i) (a) egy szubsztituált vagy szubsztituálatlan benzoil-halogenidet egy alkil-hidrazinnal vagy annak savaddíciós sójával reagáltatunk, bázis jelenlétében, majd a kapott monobenzoilezett alkil-hidrazint másik benzoil-halogeniddel reagáltatjuk bázis jelenlétében, a reak-

ció termékeként N,N'-dibenzoil-N-alkil-hidrazint kapunk,
vagy

- (b) egy alkil-hidrazint vagy annak savaddíciós sóját egy
dikarbonáttal reagáltatjuk, bázis jelenlétében, a
kapott N-(alkoxi-karbonil)-N'-alkil-hidrazint szubsztit-
tuált vagy szubsztituálatlan benzoil-halogeniddel
reagáltatjuk bázis jelenlétében, majd a kapott N-
(alkoxi-karbonil)-N'-alkil-N'-benzoil-hidrazint savval
reagáltatjuk, és a kapott N'-alkil-N'-benzoil-hidrazint
másik szubsztituált vagy szubsztituálatlan benzoil-
halogeniddel reagáltatjuk bázis jelenlétében, a reakció
termékeként N,N'-dibenzoil-N'-alkil-hidrazint kapunk,
az összes fenti reakciót lényegében inert oldószerben
játsszatjuk le,
és

- (ii) a kapott N,N'-dibenzoil-N'-alkil-hidrazint alkálifém-
-hidriddel és halogén-ciánnal reagáltatjuk.

1 oldal szöveg
1991. 12. 12.
PK.

A meghatalmazott:

Aktaszámunk: 72606-5402

Ügyintézőnk: dr. Kiss Ildikó

DANUBIA
Szabadalmi és Védjegy Iroda Kft.

6.



1972/91

2507

1/1

8181

(1)

KÖZZÉTÉTELI
PÉLDÁNY

