

3180-90

KÖZZÉTÉTELI A
PÉLDÁNY

HATÓANYAGKÉNT ~~6-~~ 6-(PENT-3-IL)-1,2,4-TRIAZIN-5(4H)-ON-
SZÁRMAZÉKOKAT TARTALMAZÓ HERBICID ÉS NÖVÉNYI NÖVEKEDÉST
SZABÁLYOZÓ KÉSZÍTMÉNYEK ÉS ELJÁRÁS A HATÓANYAGOK ELŐ-
ÁLLÍTÁSÁRA

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT, Leverkusen,

NÉMET SZÖVETSÉGI KÖZTÁRSASÁG

-54283-

A bejelentés napja 1990. 05. 24.

Elsőbbsége: 1989. 05. 25. (P 39 17 044.6)

NÉMET SZÖVETSÉGI KÖZTÁRSASÁG

KIVONAT

A találmány ^{szerinti} ~~tárgya~~ herbicid és növényi növekedést
szabályozó készítmények ~~amelyek hogy~~ hatóanyagként legalább
egy (I) általános képletű 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-
on-származékot - a képletben

R¹ jelentése aminocsoport, és

R² jelentése egynél több szénatomos alkil-tio-csoport vagy
alkil-amino- vagy dialkil-amino-csoport, vagy

R¹ jelentése metil-amino-csoport, és

R² jelentése alkil-tio-csoport -

tartalmaznak, ~~szilárd hatóanyagokkal - célszerűen természe-~~
~~tes vagy mesterséges közetlisztekkel - és/vagy folyékony~~
~~hígítószerekkel - célszerűen szerves oldószerekkel, így adott~~
~~esetben halogénezett szénhidrogénekkel, rövid szénláncú di-~~
~~alkil-formamidokkal vagy dimetil-szulfoxiddal - és adott~~
~~esetben felületaktív anyagokkal - célszerűen emulgeálósze-~~
~~rekkel, így poli(oxi-etilén)-zsírsav-észterekkel, poli(oxi-~~
~~-etilén)-zsíralkohol-éterekkel, alkil-szulfonátokkal, alkil-~~

A találmány tárgya továbbá eljárás a hatóanyagok előál-
lítására.

3180-90

**KÖZZÉTÉTELI A
PÉLDÁNY**

-54283-

NSZÖ

Képviselő:

DANUBIA SZABADALMI ÉS

VÉDJEGY IRODA KFT.

Budapest

A 01 N 43/707
C 04 D 253/06

HATÓANYAGKÉNT ~~6-6~~ 6-(PENT-3-IL)-1,2,4-TRIAZIN-5(4H)-ON-
SZÁRMAZÉKOKAT TARTALMAZÓ HERBICID ÉS NÖVÉNYI NÖVEKEDÉST
SZABÁLYOZÓ KÉSZÍTMÉNYEK ÉS ELJÁRÁS A HATÓANYAGOK ELŐ-
ÁLLÍTÁSÁRA

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT, Leverkusen,

NÉMET SZÖVETSÉGI KÖZTÁRSASÁG

Feltalálók:

Dr. KRANZ Eckart,	Wuppertal
Dr. REUBKE Karl-Julius,	Köln
Dr. LÜRSSEN Klaus,	Bergisch-Gladbach
Dr. SANTEL Hans-Joachim,	Leverkusen
Dr. SCHMIDT R. Robert,	Bergisch-Gladbach
Dr. KRAUSKOPF Birgit,	Bergisch-Gladbach

A bejelentés napja: 1990. 05. 24.

Elsőbbsége: 1989. 05. 25. (P 39 17 044.6)

NÉMET SZÖVETSÉGI KÖZTÁRSASÁG

69715-1174-SZÖ/KmO

A találmány tárgya hatóanyagként új 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat tartalmazó herbicid és növényi növekedést szabályozó készítmények, valamint eljárás a hatóanyagok előállítására.

Ismert, hogy bizonyos 6-szek-pentil-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékok, így például a 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on herbicid tulajdonságú (33 39 859 számú német szövetségi köztársaságbeli közrebocsátási irat).

Ismertek ezen kívül különböző helyettesített 6-alkil-3,4-diamino-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékok, amelyek herbicid és inszekticid hatásúak (0 150 677 számú európai közrebocsátási irat).

Ismert ezen kívül, hogy a szimmetrikus triazin-származékok, így például a 2-klór-4-(etil-amino)-6-izopropil-amino-1,3,5-triazin (Atrazin) herbicid hatású (R. Wegler, Chemie der Pflanzenschutz- und Schädlingbekämpfungsmittel, 2. kötet, 368. oldal, Springer-Verlag, 1970).

Ezeknek az ismert vegyületeknek a herbicid hatásossága a nehezen leküzdhető gyomokkal szemben, valamint meghatározott kultúrnövényekkel szembeni elviselhetősége nem minden felhasználási területen teljesen kielégítő.

A találmányunk szerinti készítmények hatóanyagát az új 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékok alkotják, amelyeket az (I) általános képlet ábrázol. Ebben

R^1 jelentése aminocsoport, és

R^2 jelentése egynél több szénatomos alkil-tio-csoport vagy alkil-amino- vagy dialkil-amino-csoport, vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport, és

R^2 jelentése alkil-tio-csoport.

A találmány szerint az új (I) általános képletű 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat úgy állítjuk elő, hogy

- a) a (II) általános képletű 4-amino-3-merkaptó-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat lúgos oldatban alkil-halogeniddel, előnyösen alkil-jodiddal vagy -bromiddal reagáltatjuk, és adott esetben
- b) az a) eljárás szerint előállított (Ia) általános képletű 3-(alkil-tio)-4-amino-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat - a képletben

R^3 jelentése alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport -

metilezőszerrel reagáltatjuk fázisátvivő katalizátor jelenlétében kétfázisú rendszerben, vagy

- c) az a) eljárás szerint kapott (Ia) általános képletű 3-(alkil-tio)-4-amino-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat - a képletben

R^3 jelentése alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport -

a (III) általános képletű aminnal - a képletben

R^4 jelentése hidrogénatom vagy alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport és

R^5 jelentése alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport -

reagáltatjuk, adott esetben hígítószer és adott esetben rövid szénláncú alifás karbonsav jelenlétében.

A találmány szerint alkalmazott (I) általános képletű új 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékok herbicid, különösen szelektív herbicid és növényi növekedést szabályozó hatásúak.

Meglepő módon a találmány szerinti (I) általános képletű 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékok jobb herbicid hatásúak a fontos, nehezen leküzdhető gyomnövényekkel szemben, mint a 2-klór-4-(etil-amino)-6-(izopropil-amino)-1,3,5-triazin, amely kémiai és hatásirány szempontjából közelálló vegyület, emellett a találmány szerinti vegyületek ugyanolyan jól elviselhetők a fontos kultúrnövények számára, így például búzánál, árpanál, kukoricánál, szójánál és gyapotnál, mint az ismert vegyület.

Emellett a találmány szerint alkalmazott (I) általános képletű vegyületek növényi növekedést szabályozó hatásúak is.

A találmány szerint alkalmazott 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat az (I) általános képlet ábrázolja. Ebben a képletben a szubsztituensek jelentése előnyösen a következő:

R^1 jelentése aminocsoport, és

R^2 jelentése egyenes vagy elágazó szénláncú 2 - 4 szénatomos alkil-tio-csoport, egyenes vagy elágazó szénláncú 1 - 4 szénatomos alkil-amino-csoport, valamint egyenes vagy elágazó szénláncú, alkilrészenként 1 - 4 szénatomos dialkil-amino-csoport; vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport és

R^2 jelentése egyenes vagy elágazó szénláncú, 1 - 4 szénatomos alkil-tio-csoport.

Különösen előnyösek azok az (I) általános képletű vegyületek, amelyeknek képletében

R^1 jelentése aminocsoport és

R^2 jelentése etil- vagy propil-tio-csoport, metil-, etil-, propil- vagy butil-amino-csoport, valamint dimetil-, dietil- vagy etil-metil-amino-csoport; vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport és

R^2 jelentése metil-, etil- vagy propil-tio-csoport.

Ha a találmány szerinti a) eljárásban kiindulási vegyületként például 4-amino-3-merkaptó-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont és etil-jodidot alkalmazunk, a reakció az a) reakcióvázlat szerint megy végbe.

Ha a találmány szerinti b) eljárásban kiindulási vegyületként például 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont és metil-jodidot, fázisátvivő katalizátorként tetrabutil-ammónium-bromidot és kétfázisú rendszerként vizes nátrium-hidroxid-oldat/toluol rendszert alkalmazunk, a reakció a b) reakcióvázlat szerint megy végbe.

Ha a találmány szerinti c) eljárásban kiindulási vegyületként például 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont és metil-amint alkalmazunk, a reakció a c) reakcióvázlat szerint megy végbe.

A találmány szerinti a) eljárásban kiindulási vegyületként alkalmazott 4-amino-3-merkaptó-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékokat a (II) általános képlet ábrázolja, és a vegyületek ismert módon állíthatók elő (33 39 859 számú német szövetségi köztársaságbeli közrebocsátási irat, valamint az előállítási példák).

A találmány szerinti b) eljárásban metilezőszerként előnyösen metil-jodidot, metil-bromidot vagy dimetil-szulfátot alkalmazunk.

A találmány szerinti c) eljárásban kiindulási vegyületként alkalmazott aminokat a (III) általános képlet ábrázolja, és ezek ismert szerves kémiai vegyületek.

A találmány szerinti a) eljárást bázis jelenlétében folytatjuk le. Ilyenek előnyösen az alkálifém-hidroxidok, így a nátrium-hidroxid, vizes oldatban, vagy az alkálifém-alkoholátok, így a nátrium-metilát, ilyenkor oldószerként feleslegben alkalmazunk alkoholt.

A találmány szerinti a) eljárásban a reakcióhőmérséklet széles határok között változhat. Általában 0°C és 100°C , előnyösen 0°C és 50°C közötti hőmérsékleten dolgozunk.

A találmány szerinti a) eljárásban 1 mól (II) általános képletű vegyületre számítva előnyösen 1 - 1,5 mól alkilezőszert használunk. A közbelső termékeket, illetve az (Ia) általános képletű végtermékeket ismert módon izoláljuk.

A találmány szerinti b) eljárást kétfázisú rendszerben folytatjuk le, előnyösen szerves, vízzel nem elegyedő oldószert, valamint erős bázisnak a vizes oldatát és fázisátvivő katalizátort alkalmazunk.

Szerves oldószerként előnyösen a következőket alkalmazzuk: alifás és aromás szénhidrogének, így például benzol, toluol, xilol, petroléter és ciklohexán; halogénezett szénhidrogének, így klór-benzol, metilén-klorid, kloroform és szén-tetraklorid; éterek, így dietil-éter és diizopropil-éter; valamint ezek elegye.

Erős bázisként a következőket alkalmazzuk: alkálifém-hidroxidok, így nátrium- vagy kálium-hidroxid, valamint alkálifém- vagy alkáliföldfém-karbonátok.

Fázisátvivő katalizátorként előnyösen a következőket alkalmazzuk: kvaterner ammóniumsók vagy -hidroxidok, valamint foszfóniumsók. Példaként megemlíjtjük a következőket: tetra-n-butil-ammónium-bromid, benzil-trietil-ammónium-klorid, tetra-n-butil-ammónium-hidroxid, benzil-trimetil-ammónium-klorid, tributil-hexadecil-foszfónium-bromid, etil-trifenil-foszfónium-bromid, tetrafenil-foszfónium-klorid, benzil-trifenil-foszfónium-jodid és tetrabutil-foszfónium-klorid.

A találmány szerinti b) eljárásban a reakcióhőmérséklet széles határok között változhat. Általában 10°C és 50°C , előnyösen 20°C és 30°C közötti hőmérsékleten dolgozunk.

A találmány szerinti b) eljárásban 1 mól (Ia) általános képletű vegyületre számítva előnyösen 1 - 3 mól metilezőszert használunk. A közbenső termékeket, illetve az (Ib) általános képletű végtermékeket ismert módon izoláljuk.

A találmány szerinti c) eljárásban hígítószerként inert szerves oldószereket alkalmazunk. Ilyenek a szénhidrogének, így a toluol és a xilol; a klórozott aromás szénhidrogének, így a klór-benzol, az 1,2-diklór-benzol, az 1,2,4-triklór-benzol; az éterek, így a tetrahidrofurán és a dioxán; az alkoholok, így a metanol, az etanol, a propanol, az izopropanol; az amidok, így az N,N-dimetil-formamid, a tetrametil-karbamid és a szulfoxidok, így a dimetil-szulfoxid.

A reakciót előnyösen izopropanolban folytatjuk le.

A találmány szerinti c) eljárásban a reakcióhőmérséklet

széles határok között változhat. Általában 20 °C és 170 °C, előnyösen 60 °C és 90 °C közötti hőmérsékleten dolgozunk.

A találmány szerinti c) eljárást különösen előnyösen úgy folytatjuk le, hogy legalább ekvimoláris mennyiségű rövid-szénláncú alifás karbonsav jelenlétében dolgozunk. Előnyösen ecetsavat használunk. Az eljárásban viszonylag alacsony amin-felesleggel dolgozhatunk. Ennek a kiviteli módnak a során a reakció sebességét katalitikus mennyiségű szerves szulfonsav adagolásával növelhetjük. Előnyösen p-toluolszulfonsavat alkalmazunk.

A találmány szerinti c) eljárásban 1 mól (Ia) általános képletű 3-(alkil-tio)-triazinonra számítva célszerűen 1 - 3 mól rövidszénláncú alifás karbonsavat, és adott esetben 0,01 - 0,05 mól szerves szulfonsavat, valamint 1 - 7 mól (III) általános képletű amint alkalmazunk, a reakcióelegyet a merkaptán lehasadásának befejezéséig melegítjük, és ezt követően a reakcióelegyet ismert módon feldolgozzuk.

A találmány szerinti hatóanyagok alkalmazhatók defóliánsokként, deszikkánsokként és különösen gyomirtószerekként. Gyomok alatt minden olyan növényt értünk, amelyek olyan helyeken nőnek, ahol jelenlétük nem kívánatos. A találmány szerinti hatóanyagok lehetnek teljes vagy szelektív herbicid hatásúak, ez a hatásuk lényegében az alkalmazott mennyiségtől függ.

A találmány szerint alkalmazott hatóanyagokat például a következő növényeknél használhatjuk:

A következő fajokba tartozó kétszikű gyomnövények:

Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea.

A következő fajokba tartozó kétszikű kultúrnövények:

Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

A következő fajokba tartozó egyszikű gyomnövények:

Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Fetuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

A következő fajokba tartozó egyszikű kultúrnövények:

Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

A találmány szerinti hatóanyagok alkalmazása nincs azonban ezekre a fajokra korlátozva, más növényeknél is alkalmazhatók.

A hatóanyagok az alkalmazott koncentrációtól függően alkalmazhatók a gyomnövények teljes irtására, például ipari és vasúti létesítményeknél, utakon és tereken. Ugyancsak alkalmazhatók a vegyületek tartós kultúráknál gyomirtásra, például erdőben, díszcserjéknél, gyümölcs-, szőlő-, citrus-, dió-,

banán-, kávé-, tea-, kaucsuk-, olajpálma-, kakaó-, bogyós-
gyümölcs- és komlóültetvényeken és egyéves kultúráknál
szelektív gyomirtásra.

A találmány szerinti hatóanyagok különösen egyszikű és
kétszikű kultúrnövényeknél - így például árpánál, kukoricá-
nál, szójánál és gyapotnál alkalmazhatók egyszikű és kétszikű
gyomok szelektív irtására.

Ezért a találmány szerinti készítmények hatóanyagai
beavatkoznak a növények metabolizmusába és így növekedéssza-
bályozó hatásúak.

A növényi növekedés hatásmechanizmusa az eddigi ismere-
tek szerint abban áll, hogy a hatóanyag a növényben több kü-
lönböző hatást fejt ki. Az anyagok hatásai lényegében attól
függenek, hogy a növény fejlődési fokozatai közül mely idő-
pontban történik a hatóanyag alkalmazása, függenek továbbá a
növényre vagy annak környezetébe kivitt hatóanyag mennyiségé-
től és az alkalmazás módjától. Minden esetben a növekedéssza-
bályozó anyagok a kultúrnövényeket egy meghatározott kedvező
módon befolyásolják.

A növekedést szabályozó anyagok hatása megnyilvánulhat
például abban, hogy a növények levélállományát oly mértékben
növelik, hogy egy kívánt időpontban érik el a levelek lehul-
lását. Egy ilyen levélelvesztés a gyapot mechanikus betakarí-
tásánál nagy jelentőségű, de jelentős más kultúrnövényeknél
is, például a szőlőgazdálkodásban a termés betakarításának
megkönnyítésében. A növények levelének az elvesztése akkor is
fontos, ha a növényeket elültetés céljából más helyre szál-
lítjuk.

A hatóanyagokat a szokásos készítményekké formálhatjuk. Ilyenek az oldatok, az emulziók, a szórható porok, a szuszpenziók, a porok, a porozószerke, a paszták, az oldható porok, a granulátumok, a szuszpenziós-emulziós koncentrátumok, hatóanyaggal impregnált természetes és szintetikus anyagok, valamint polimer anyagokba ágyazott kapszulázott készítmények.

A készítményeket ismert módon állítjuk elő, például úgy, hogy a hatóanyagokat kötőanyagokkal, azaz folyékony oldószerekkel és/vagy szilárd hordozóanyagokkal keverjük össze adott esetben felületaktív anyagok, azaz emulgeálószerke és/vagy diszpergálószerke és/vagy habképzőszerke egyidejű alkalmazásával.

Ha kötőanyagként vizet használunk, segédoldószerként például szerves oldószereket alkalmazunk.

A folyékony oldószereke a következők lehetnek: aromás szénhidrogének - így xilol, toluol vagy alkil-naftalinok -, klórozott aromás vagy alifás szénhidrogének - így klórbenzol, klór-etilén, metilén-klorid -, alifás szénhidrogének - így ciklohexán vagy paraffinok, például ásványi olaj frakciók, ásványi vagy növényi olajok -, alkoholok - így butanol vagy glikol -, valamint ezek étereie és észtereie, ketonok - így acetón, metil-etil-keton, metil-izobutil-keton vagy ciklohexanon -, erősen poláros oldószereke - így dimetil-formamid vagy dimetil-szulfoxid -, valamint viz.

A szilárd hordozóanyagok például a következők lehetnek: természetes kőzetlisztek - így kaolin, agyag, talkum, kréta,

kvarc, attalpulgit, montmorillonit vagy diatomaföld -, szintetikus lisztfinomságúra őrölt anyagok - így nagydiszperzitásfoku kovásv, aluminium-oxid és szilikátok. Granulátumoknál alkalmazott szilárd hordozóanyagok lehetnek a következők: őrölt és osztályozott természetes anyagokból készült lisztek - így kalcit, márvány, horzsakő, szepiolit, dolomit -, valamint szervetlen és szerves lisztfinomságúra őrölt anyagokból készített szintetikus granulátumok, valamint szerves anyagokból - így kukoricaszárból, kókuszdióhéjból vagy dohányszárból - készített granulátumok.

Az emulgeálószeres és/vagy habképzőszeres a következők lehetnek: nem-ionos és anionos emulgeátorok - így poli(oxi-etilén)-zsírsav-észterek, poli(oxi-etilén)-zsíralkohol-éterek, például alkil-aril-poliglikol-éterek, alkil-szulfonátok, aril-szulfonátok, valamint fehérje-hidrolizátumok.

A diszpergálószer például lignin-szulfid-szennylug és metil-cellulóz lehet.

A készítmények tartalmazhatnak tapadást fokozó szert is, így például karboxi-metil-cellulózt, természetes vagy szintetikus poralaku, szemcsés vagy latex-formájú polimereket, például gumiarábikumot, poli(vinil-alkohol)-t, poli(vinil-acetát)-ot, valamint természetes foszfolipideket, így például kefalint, lecitint és szintetikus foszfolipideket.

További adalékanyagok lehetnek az ásványi vagy növényi olajok.

Ugyancsak alkalmazhatunk színezékeket, így szervetlen

pigmenteket - például vas-oxidot, titán-oxidot, vas-cián-kéket - és szerves színezékeket - így alizarint, azo- vagy fém-ftalocianin-színezékeket - és nyomokban jelenlévő tápanyagokat - így vas-, mangán-, bór-, réz-, kobalt-, molibdén- vagy cinksókat.

A készítmények általában 0,1 - 95 tömeg%, előnyösen 0,5 - 90 tömeg% hatóanyagot tartalmaznak.

A találmány szerinti hatóanyagokat herbicidként való alkalmazás esetén készítményeikben ismert herbicidekkel együtt alkalmazhatjuk gyomirtásra, alkalmazhatunk felhasználásra kész készítményeket vagy tankkeveréseket.

A keverékekben a következő herbicideket alkalmazhatjuk például: gabonáknál gyomirtásra az 1-amino-6-(etil-tio)-3-(2,2-dimetil-propil)-1,3,5-triazin-2,4(1H,3H)-diont (Amethydone) vagy N-(2-benzotiazolil)-N,N'-dimetil-karbamidot (Metabenzotiazuron), cukorrépánál a 4-amino-3-metil-6-fenil-1,2,4-triazin-5(4H)-ont (Metamitron); szójababnál a 4-amino-6-(1,1-dimetil-etil)-3-(metil-tio)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont (Metribuzin).

A készítményekben a hatóanyagokat a következő vegyületekkel is kombinálhatjuk: 2,4-diklór-fenoxi-ecetsav (2,4-D); 4-(2,4-diklór-fenoxi)-vajsav (2,4-DB); 2,4-diklór-fenoxi-propionsav (2,4-DP); 5-(2-klór-4-/trifluor-metil/-fenoxi)-2-nitro-benzo-sav (Acifluorfen); klór-ecetsav-N-(metoxi-metil)-2,6-dietil-anilid (Alachlor); metil-6,6-dimetil-2,4-dioxo-3-[1-(2-propenil-oxi-amino)-butilidén]-ciklohexán-karbonsav (Alloxydim); 2-klór-4-(etil-amino)-6-(izopropil-amino)-1,3,5-triazin (Atrazin); 3-izopropil-2,1,3-benzo-

tiadiazin-4-on-2,2-dioxid (Bentazon); metil-5-(2,4-diklór-fenoxi)-2-nitro-benzoát (Bifenox), 3,5-dibrom-4-hidroxi-benzonitril (Bromoxynil); N-(butoxi-metil)-2-klór-N-(2,6-dietil-fenil)-acetamid(Butachlor); etil-2-[[(4-klór-6-metoxi-2-pirimidinil)-amino-karbonil]-amino-szulfonil]-benzoát (Chlorimuron); 2-klór-N-[[(4-metoxi-6-metil-1,3,5-triazin-2-il)-amino]-karbonil]-benzol-szulfonamid (Chlorsulfuron); N,N-dimetil-N'-(3-klór-4-metil-fenil)-karbamid (Chlortoluron); exo-1-metil-4-(1-metil-etil)-2-(2-metil-fenil-metoxi)-7-oxa-biciklo-(2,2,1)-heptán (Cinmethylin); 3,6-diklór-2-piridin-karbonsav (Clopyralid); 2-klór-4-(etil-amino)-6-(3-ciano-propil-amino)-1,3,5-triazin (Cyanazin); 2-[4-(2,4-diklór-fenoxi)-fenoxi]-propionsav, ennek metil- vagy etil-észtere (Diclofop); 2-[(2-klór-fenil)-metil]-4,4-dimetil-izoxazolidin-3-on (Dimethazone); N,N-di-n-propil-tio-karbamidsav-S-etil-észter (Eptame); 4-amino-6-terc-butil-3-(etil-tio)-1,2,4-triazin-5(4H)-on (Ethiozin); 2-{4-[(6-klór-2-benzoxazolil)-oxi]-fenoxi}-propánsav, ennek metil- vagy etil-észtere (Fenoxaprop); 2-[4-(5-/trifluor-metil/-2-piridil-oxi)-fenoxi]-propánsav vagy ennek butil-észtere (Fluazifop); N,N-dimetil-N'-(3-/trifluor-metil/-fenil)-karbamid (Fluometuron); [(4-amino-3,5-diklór-6-fluor-2-piridinil)-oxi]-ecetsav illetve ennek 1-metil-heptil-észtere (Fluroxypyr); 5-(2-klór-4-/trifluor-metil/-fenoxi)-N-metilszulfonil-2-nitro-benzamid (Fomesafen); 2-{4-[(3-klór-5-(trifluor-metil)-2-piridinil)-oxi]-fenoxi}-propánsav illetve ennek etil-észtere (Haloxifop); 2-[5-metil-5-(1-metil-etil)-4-oxo-2-imidazolin-2-il]-3-kinolin-karbonsav (Imazaquin); 2-[4,5-dihidro-4-metil-4-izo-

propil-5-oxo-(1H)-imidazol-2-il]-5-etil-piridin-3-karbonsav
(Imazethapyr); 3,5-dijód-4-hidroxi-benzonitril (Ioxynil);
N,N-dimetil-N'-(4-izopropil-fenil)-karbamid (Isoproturon);
(2-etoxi-1-metil-2-oxo-etil)-5-[2-klór-4-(trifluor-metil)-
-fenoxi]-2-nitro-benzoát (Lactofen); (2-metil-4-klór-fenoxi)-
-ecetsav (MCPA); (4-klór-2-metil-fenoxi)-propionsav (MCPP);
N-metil-2-(1,3-benzotiazol-2-il-oxi)-acetanilid (Mefenacet);
2-klór-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-[(1H)-pirazol-1-il-metil]-
-acetamid (Metazachlor); 2-etil-6-metil-N-(1-metil-2-metoxi-
-etil)-klór-acetanilid (Metalochlor); 2-[[[(4-metoxi-6-me-
til-1,3,5-triazin-2-il)-amino)-karbonil]-amino]-szulfonil]-
-benzoesav vagy ennek metil-észtere (Metsulfuron); 4-(Di-n-
-propil-amino)-3,5-dinitro-benzulszulfonamid (Oryzalin);
(2-klór-4-/trifluor-metil/-fenil)-(3-etoxi-4-nitro-fenil)-
-éter (Oxyfluorfen); N-(1-etil-propil)-3,4-dimetil-2,6-di-
nitro-anilin (Pendimethalin); O-(6-klór-3-fenil-piridazin-
-4-il)-S-oktil-tiokarbonát (Pyridate); 2-[4-(6-klór-kinoxa-
lin-2-il-oxi)-fenoxi]-propionsav-etil-észter (Quizalofop-
-ethyl); 2-[1-(etoxamino)-butilidén]-5-(2-/etil-tio-propil)-
-1,3-ciklohexadion (Sethoxydim); 2-klór-4,6-bisz(etil-amino)-
-1,3,5-triazin (Simazin); 2,4-bisz-[N-etil-amino]-6-(metil-
-tio)-1,3,5-triazin (Simetryne); 4-(etil-amino)-2-(terc-bu-
til-amino)-6-(metil-tio)-s-triazin (Terbutryne); 3-<{[(/4-
-metoxi-6-metil-1,3,5-triazin-2-il/-amino)-karbonil]-amino)-szul-
fonil>-tiofen-2-karbonsav-metil-észter (Thiameturon); S-[(4-
-klór-fenil)-metil]-N,N-dietil-tiokarbamát (Thiobencarb);
N,N-diizopropil-S-(2,3,3-triklór-allil)-tiolkarbamát
(Triallate) és 2,6-dinitro-4-(trifluor-metil)-N,N-dipropil-

-anilin (Trifluralin).

A találmány szerinti hatóanyagokat kombinálhatjuk más ismert hatóanyagokkal is, így például fungicid, inszekticid, akaricid, nematicid hatóanyagokkal, madarak elleni védőanyagokkal, növényi tápanyagokkal és a talaj szerkezetét javító anyagokkal.

A hatóanyagokat alkalmazhatjuk készítményeikként, vagy az ezekből hígítással készített felhasználásra kész formákként. Ilyenek a felhasználásra kész oldatok, szuszpenziók, emulziók, porok, paszták és granulátumok. A készítményeket ismert módon, például öntéssel, szórással vagy permetezéssel alkalmazhatjuk.

A találmány szerinti hatóanyagokat kivihetjük a növényre mind kikelés előtt, mind kikelés után.

A hatóanyagok bedolgozhatók a talajba vetés előtt is.

Az alkalmazott hatóanyag mennyisége széles határok között változhat. Lényegében az elérni kívánt hatástól függ. A felhasználási mennyiség általában 0,01 - 10 kg hatóanyag/hektár talajfelület, előnyösen 0,05 - 5 kg/hektár.

Ha a hatóanyagokat növényi növekedésszabályozóként alkalmazzuk a készítményekben szintén előfordulhatnak azok ismert hatóanyagokkal való keverékben, ilyen hatóanyagok a fungicid, az inszekticid, az akaricid és a herbicid hatóanyagok, valamint kombinálhatjuk a hatóanyagokat trágyákkal és egyéb növényi növekedésszabályozó hatóanyagokkal is.

A készítményeket alkalmazhatjuk készítményekként vagy pedig az ezekből előállított felhasználási formákként. Ilyen felhasználási formák a felhasználásra kész oldatok, az emul-

ziós koncentrátumok, az emulziók, a habok, a szuszpenziók, a porozószeresek, a paszták, az oldható porok, a granulátumok. A készítményeket a szokásos módon, például öntéssel, szórással, permetezéssel, habosítással, bekenéssel alkalmazzuk. A hatóanyagokat alkalmazhatjuk az Ultra-Low-Volume eljárásban is, vagy pedig a hatóanyag-készítményt vagy pedig magát a hatóanyagot a talajba injektálhatjuk. A készítményekkel kezelhetjük a növények vetőmagvait is.

A felhasználási mennyiség széles határok között változhat. Általában 0,01 - 50 kg, előnyösen 0,05 - 10 kg hatóanyagot alkalmazunk a talajfelület hektárjaira számítva.

A készítményeket egy célszerű időpontban alkalmazzuk, ezt a klimatikus és a vegetatív lehetőségek szabják meg.

A találmány szerinti hatóanyagok előállítását és alkalmazását a következő példákban mutatjuk be.

Előállítási példák

1. példa

(1) képletű vegyület előállítása

[b eljárás]

4,2 g (0,018 mól) 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont szobahőmérsékleten beviszünk 7,5 ml 45 %-os nátrium-hidroxid-oldat és 7,5 ml toluol elegyébe. A reakcióelegyhez szobahőmérsékleten hozzáadunk ezután 7,1 g (0,05 mól) metil-jodidot és 0,6 g tetrabutil-ammonium-bromidot egyszerre. A reakcióelegyet erélyesen keverjük, ekkor a hőmérséklet 21 °C-ról 31 °C-ra emelkedik. A kapott reakcióelegyet 1 órán át keverjük, a szerves felső fázist elválasztótöltcsérben elválasztjuk és összekeverjük ezt a fázist 100

ml vízzel. Metilén-kloriddal való extrahálás (3 x 70 ml) után és ezt követően kovasavgélen való szűréssel és bepárlással 3,8 g (87 %) 4-(metil-amino)-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont kapunk szintelen olajként, törésmutatója: $n_D^{20} = 1,553$.

A kiindulási vegyületek előállítása

(a) (5) képletű vegyület előállítása

[a] eljárás]

51 g (0,23 mól) 4-amino-3-merkaptó-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazon-5(4H)-ont 260 ml 1 n nátrium-hidroxid-oldatban oldunk, és az oldhatatlan anyagoktól megszűrünk. A szűrletet szobahőmérsékleten 36,9 g (0,26 mól) metil-jodiddal elegyítjük és 16 órán át ezen a hőmérsékleten keverjük. A kiváló szilárd anyagot leszivatjuk, többször vízzel mossuk és vákuumban szobahőmérsékleten szárítjuk.

Kovasavgélen metilén-kloridban való szűrés után 41,5 g (79 %) 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont kapunk, op.: 50 - 56 °C.

(b) (6) képletű vegyület előállítása

51,6 g (0,25 mól) 3,3-dietil-piroszölősav-nitrilt 183,8 g 33 %-os, jégcetben készített hidrogén-bromid-oldatban 1 órán át 15 - 20 °C hőmérsékleten keverünk. A kapott reakcióelegyhez keverés és jégűtés közben hozzácsepegtetünk 4,5 g vizet úgy, hogy a reakcióelegy hőmérséklete ne emelkedjen 20 °C fölé. Az így kapott reakcióelegyet 1 órán át keverjük szobahőmérsékleten. Ezután hozzácsepegtetjük 15 - 20 °C hőmérsékleten 29,2 g (0,275 mól) tio-karbohidrazidnak 275 ml 1 n sósav-oldatban készített oldatát jégűtés közben. Az adagolás

befejezése után a reakcióelegyet 15 órán át keverjük. A kiváló kristályos terméket leszivatjuk és vízzel semlegesre mossuk.

50 °C hőmérsékleten vákuumban való szárítás után 40,1 g (75 %) 4-amino-3-merkaptó-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont kapunk, op. 162 - 164 °C.

(c) (7) képletű vegyület előállítása

92,9 g (0,69 mól) pentán-3-karbonsav-kloridot 120 °C hőmérsékletre melegítünk. Ezen a hőmérsékleten hozzácsepegtetünk 2 óra alatt 68,3 g (0,69 mól) trimetil-szilil-cianidot. A reakcióelegyet 6 órán át 120 °C fürdőhőmérsékleten keverjük, majd a keletkező trimetil-szilil-kloridot normál nyomáson ledesztilláljuk. A kapott terméket 60 cm-es tükör-vigreux-kolonnán rektifikációs feltétellel (visszafolyás: 5:1) frakcionáljuk.

Igy 69,9 g (81 %) 3,3-dietil-piroszölősav-nitrilt kapunk, forráspont: 48 - 56 °C/20 mbar.

2. példa

(2) képletű vegyület előállítása

[c] eljárás]

12 g (0,2 mól) jégacetnek 150 ml izopropanolban készített oldatába bevezetünk 5 - 10 °C hőmérsékleten 6,2 g (0,2 mól) monometil-amint. A reakcióelegyet ezután 11,4 g (0,05 mól) 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-onnal elegyítjük. A reakcióelegyet hagyjuk szobahőmérsékletre felmelegedni, és ezután 24 órán át visszafolyatás közben forraljuk. A kapott reakcióelegyet bepároljuk, és a visszamaradó olajos anyagot bekeverjük vízbe. A kapott

reakcióelegyet diklór-metánnal extraháljuk, vízzel mossuk, magnézium-szulfát felett szárítjuk és bepároljuk. A visszamaradó anyagot kovasavgél szűrőn jégeccel tisztítjuk.

Igy 6,8 g (64 %) 4-amino-3-(metil-amino)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont kapunk, op.: 119 - 120 °C.

3 példa

(3) képletű vegyület előállítása

[c] eljárás]

12 g (0,2 mól) jégecnek 150 ml izopropanolban készített oldatába 5 - 10 °C hőmérsékleten bevezetünk 9,0 g (0,2 mól) dimetil-amint. A kapott reakcióelegyet ezután 11,4 g (0,05 mól) 4-amino-3-(metil-tio)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-onnal elegyítjük. A reakcióelegyet hagyjuk szobahőmérsékletre felmelegedni, és ezután 24 órán át visszafolyatás közben forraljuk. A kapott reakcióelegyet bepároljuk, és a visszamaradó anyagot felvesszük diklór-metánban. Az így kapott reakcióelegyet háromszor vízzel mossuk, magnézium-szulfát felett szárítjuk és bepároljuk. A visszamaradó olajos anyagot kovasavgélen oszlopkromatográfián tisztítjuk, futtatószerként etil-acetátot alkalmazva. Így 8,1 g (72 %) 4-amino-3-(dimetil-amino)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont kapunk, törésmutató $n_D^{20} = 1,545$.

A leírtakkal analóg módon, és a találmány szerinti eljárásnak megfelelően állítjuk elő a következő táblázatban felsorolt (I) általános képletű vegyületet.

Példa

Fizikai

száma	R^1	R^2	állandó
4	$-\text{NH}_2$	$-\text{N}(\text{CH}_3)\text{C}_2\text{H}_5$	$n_D^{20} = 1,541$

Alkalmazástechnikai példák

A következő alkalmazástechnikai példákban összehasonlí-
tó vegyületként az (A) képletű atrazint (R. Wegler, Chemie
der Pflanzenschutz- und Schädlingsbekämpfungsmittel, 2. kö-
tet, 368. oldal, Springer-Verlag, 1970) alkalmazzuk.

A példa

Kikelés előtti vizsgálat

Oldószer: 5 tömegrész aceton

Emulgeátor: 1 tömegrész alkil-aril-poliglikol-éter

Célszerű hatóanyag-készítmény előállításához összekeve-
rünk 1 tömegrész hatóanyagot a megadott mennyiségű oldószer-
rel, hozzáadjuk a megadott mennyiségű emulgeátort, és a
koncentrátumot vízzel a kívánt koncentrációra hígítjuk.

A vizsgálati növények magvait normál talajba vetjük ki,
és 24 óra elteltével leöntjük a hatóanyag-készítménnyel.
Ennek során a felületegységre jutó vízmennyiséget célszerűen
állandó értéken tartjuk. A készítmény hatóanyag-koncentrá-
ciója nem játszik szerepet, döntő a felületegységre jutó
hatóanyag mennyisége. 3 hét elteltével meghatározzuk a növé-
nyek károsodási fokát a kezeletlen kontroll fejlődéséhez vi-
szonyítva százalékban. A következő jelöléseket alkalmazzuk:

0 % = nincs hatás (a hatás azonos a kezeletlen kontrollnál
elért hatással)

100 % = teljes megsemmisítés.

Ebben a vizsgálatban lényegesen jobb hatású, és ugyanak-
kor a haszonnövényekkel szemben azonos szelektivitást mutat a
technika állásához viszonyítva az 1., 3. és 4. példa szerinti
vegyület.

B példa**Kikelés utáni vizsgálat**

Oldószer: 5 tömegrész aceton

Emulgeátor: 1 tömegrész alkil-aril-poliglikol-éter

Célszerű hatóanyag-készítmény előállításához összekeverünk 1 tömegrész hatóanyagot a megadott mennyiségű oldószerrel, hozzáadjuk a megadott mennyiségű emulgeátort, és a koncentrátumot vízzel a kívánt koncentrációra hígítjuk.

A hatóanyag-készítménnyel bepermetezzük az 5 - 15 cm magas vizsgálati növényeket úgy, hogy felületegységre mindig a kívánt hatóanyag mennyiséget visszük ki.

A permetlé koncentrációját úgy választjuk meg, hogy 1000 l víz/ha mennyiség mindig a kívánt hatóanyagmennyiséget tartalmazza. 3 hét elteltével meghatározzuk a növények károsodási fokát a kezeletlen kontroll fejlődéséhez viszonyítva százalékban. A következő jelöléseket alkalmazzuk:

0 % = nincs hatás (a hatás azonos a kezeletlen kontrollnál elért hatással)

100 % = teljes megsemmisítés.

Ebben a vizsgálatban lényegesen jobb hatású, és ugyanakkor a haszonnövényekkel szemben azonos szelektivitást mutat a technika állásához viszonyítva a 2., 3. és 4. példa szerinti vegyület.

C példa**A gyapot lombtalanítása és a levelek kiszárítása**

Oldószer: 30 tömegrész dimetil-formamid

Emulgeátor: 1 tömegrész polioxi-etilén-szorbitán-monolaurát

Célszerű hatóanyag-készítmény előállításához összekeve-

rünk 1 tömegrész hatóanyagot a megadott mennyiségű oldószerrel, hozzáadjuk a megadott mennyiségű emulgeátort, és a koncentrátumot vízzel a kívánt koncentrációra hígítjuk.

Gyapot növényeket üvegházban az 5. levelek teljes megjelenéséig nevelünk. Ebben az állapotban a növényeket a hatóanyag-készítménnyel csuromvizesre permetezzük. 1 hét elteltével meghatározzuk a kontroll növényekhez viszonyítva a levelek lehullását, illetve kiszáradását.

Ebben a vizsgálatban a kezeletlen kontrollhoz viszonyítva lényegesen jobb hatású a 2. és 3. példa szerinti vegyület.

SZABADALMI IGÉNYPONTOK

1. Herbicid és növényi növekedést szabályozó készítmények, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy hatóanyagként legalább egy (I) általános képletű 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékot - a képletben

R^1 jelentése aminocsoport, és

R^2 jelentése egynél több szénatomos alkil-tio-csoport vagy alkil-amino- vagy dialkil-amino-csoport, vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport, és

R^2 jelentése alkil-tio-csoport -

tartalmaznak szilárd hordozóanyagokkal - célszerűen természetes vagy mesterséges közetlisztekkel - és/vagy folyékony hígítószerekkel - célszerűen szerves oldószerekkel, így adott esetben halogénezett szénhidrogénekkel, rövid szénláncú dialkil-formamidokkal vagy dimetil-szulfoxiddal - és adott esetben felületaktív anyagokkal - célszerűen emulgeálószerekkel, így poli(oxi-etilén)-zsírsav-észterekkel, poli(oxi-etilén)-zsíralkohol-éterekkel, alkil-szulfonátokkal, alkil-szulfátokkal, aril-szulfonátokkal, valamint fehérje-hidroli-zátumokkal és/vagy diszpergálószerekkel, így ligninnel, szulfitszennylúggal vagy metil-cellulózzal - összekeverve.

2. Az 1. igénypont szerinti készítmények, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy hatóanyagként olyan (I) általános képletű vegyületet tartalmaznak, amelyeknek képletében

R^1 jelentése aminocsoport, és

R^2 jelentése egyenes vagy elágazó szénláncú 2 - 4 szénatomos alkil-tio-csoport, egyenes vagy elágazó szénláncú

1 - 4 szénatomos alkil-amino-csoport, valamint egyenes vagy elágazó szénláncú, alkilrészenként 1 - 4 szénatomos dialkil-amino-csoport; vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport és

R^2 jelentése egyenes vagy elágazó szénláncú, 1 - 4 szénatomos alkil-tio-csoport.

3. Az 1. igénypont szerinti készítmények, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy hatóanyagként olyan (I) általános képletű vegyületet tartalmaznak, amelyeknek képletében

R^1 jelentése aminocsoport és

R^2 jelentése etil- vagy propil-tio-csoport, metil-, etil-, propil- vagy butil-amino-csoport, valamint dimetil-, dietil- vagy etil-metil-amino-csoport; vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport és

R^2 jelentése metil-, etil- vagy propil-tio-csoport.

4. Az 1. igénypont szerinti herbicid készítmények, a z - z a l j e l l e m e z v e , hogy hatóanyagként (1) képletű -4-(metil-amino)-3-(metil-tio)-6-(pent-3--il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont, vagy (2) képletű 4-amino-3-(metil-amino)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont vagy (3) képletű 4-amino-3-(dimetil-amino)-6--(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont vagy (4) képletű 4-amino-3-(etil-metil-amino)-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-ont tartalmaznak.

5. Eljárás az (I) általános képletű 6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékok - a képletben

R^1 jelentése aminocsoport, és

R^2 jelentése egynél több szénatomos alkil-tio-csoport vagy alkil-amino- vagy dialkil-amino-csoport, vagy

R^1 jelentése metil-amino-csoport, és

R^2 jelentése alkil-tio-csoport -

előállítására, a z z a l j e l l e m e z v e , hogy

- a) a (II) általános képletű 4-amino-3-merkaptó-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékot lúgos oldatban alkil-halogeniddel, előnyösen alkil-jodiddal vagy -bromiddal reagáltatjuk, és adott esetben
- b) az a) eljárás szerint előállított (Ia) általános képletű 3-(alkil-tio)-4-amino-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékot - a képletben

R^3 jelentése alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport -

metilezőszerrel reagáltatjuk fázisátvivő katalizátor jelenlétében kétfázisú rendszerben, vagy

- c) az a) eljárás szerint kapott (Ia) általános képletű 3-(alkil-tio)-4-amino-6-(pent-3-il)-1,2,4-triazin-5(4H)-on-származékot - a képletben

R^3 jelentése alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport -

a (III) általános képletű aminnal - a képletben

R^4 jelentése hidrogénatom vagy alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport és

R^5 jelentése alkilcsoport, előnyösen 1 - 4 szénatomos alkilcsoport -

reagáltatjuk, adott esetben hígítószer és adott esetben rövid szénláncú alifás karbonsav jelenlétében.

+ 4 rajz

A meghatalmazott:

DANUBIA
Szabadalmi és Védjegy Iroda Kft.
4.

3180-90

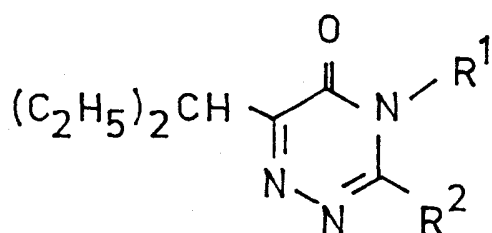
KÖZZÉTÉTELI
PÉLDÁNY

A

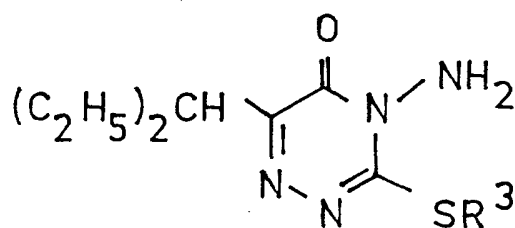
33479

4/1

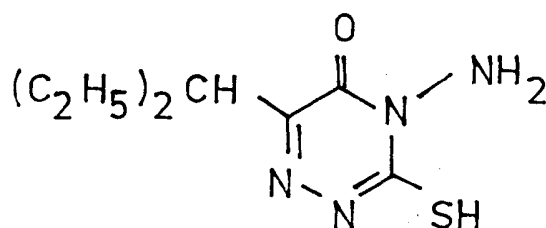
-54283-



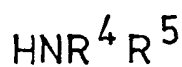
(I)



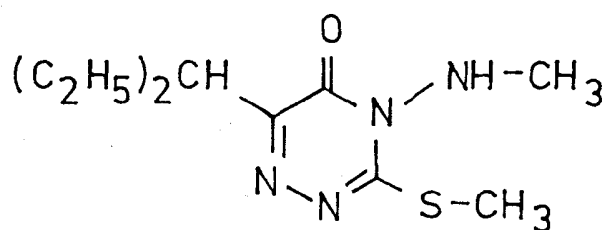
(Ia)



(II)



(III)



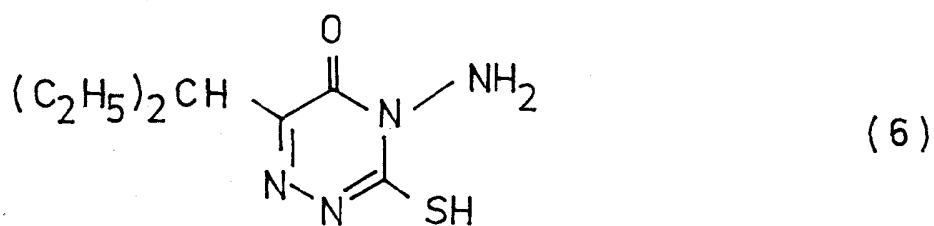
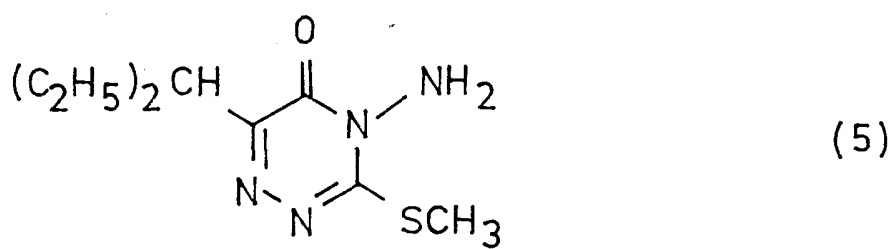
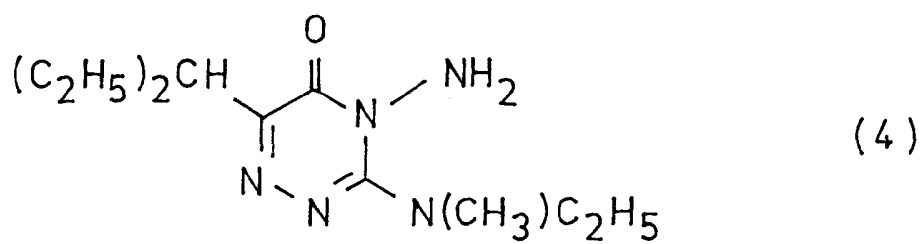
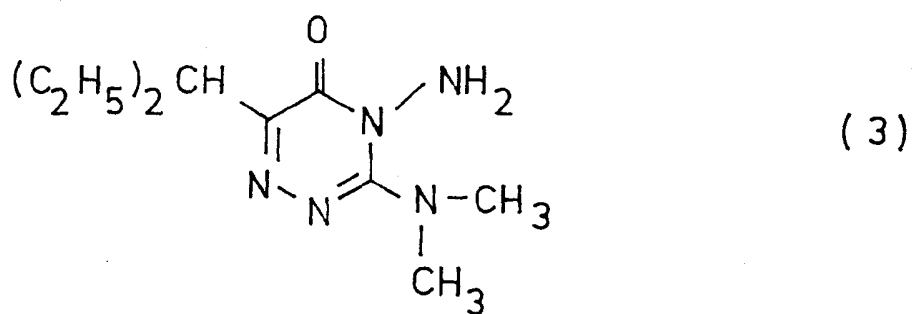
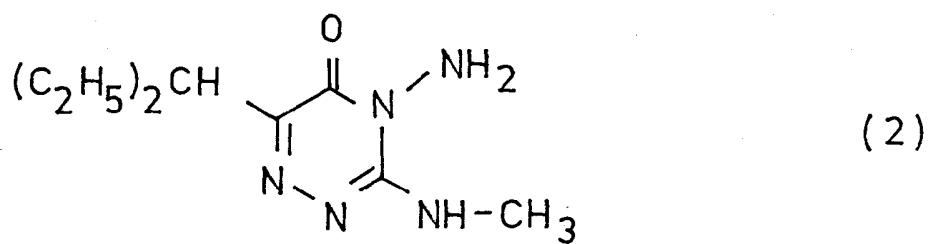
(1)

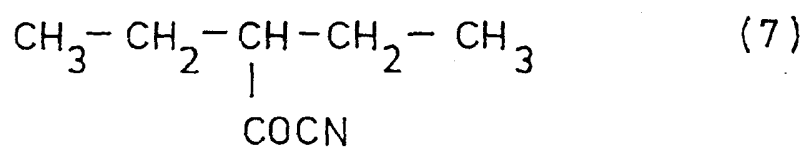
[Signature]

DANUBIA
Szabadalmi és Védjegy Iroda K.

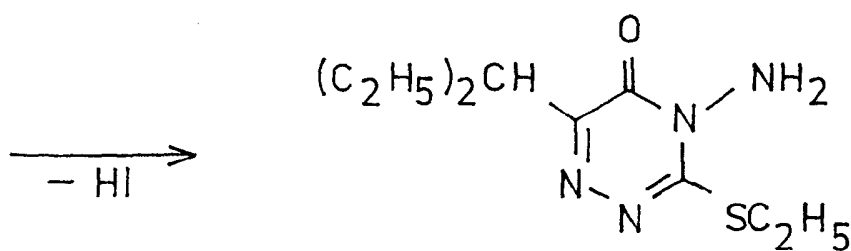
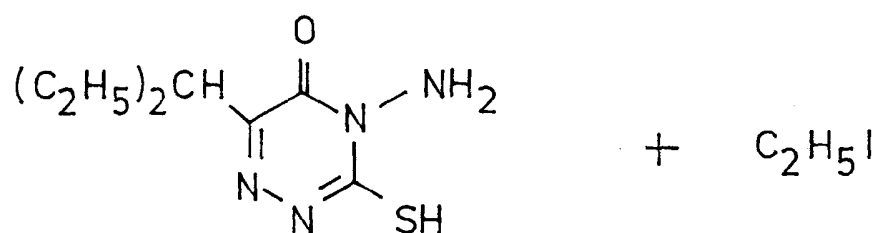
4.

[Signature]

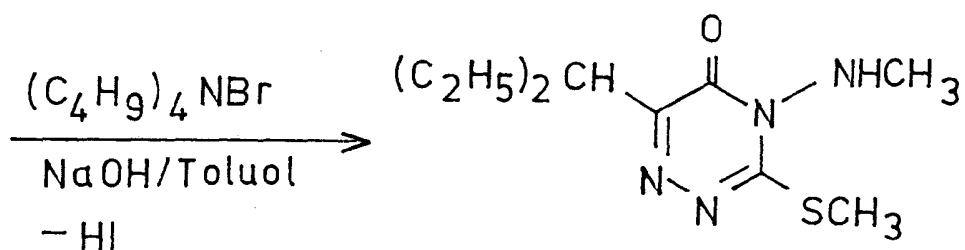
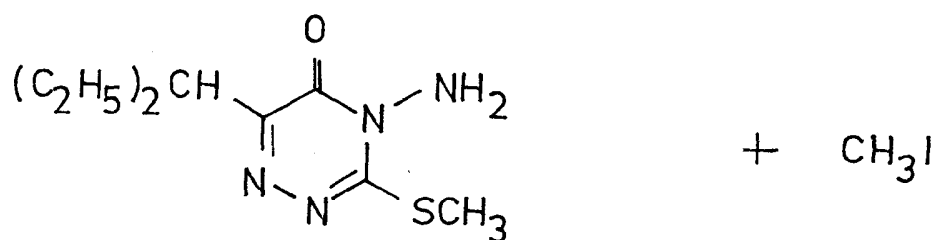




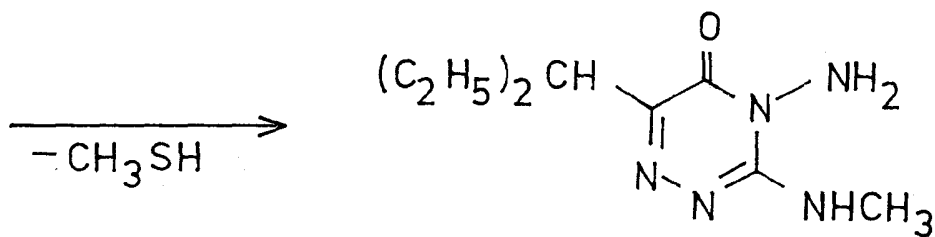
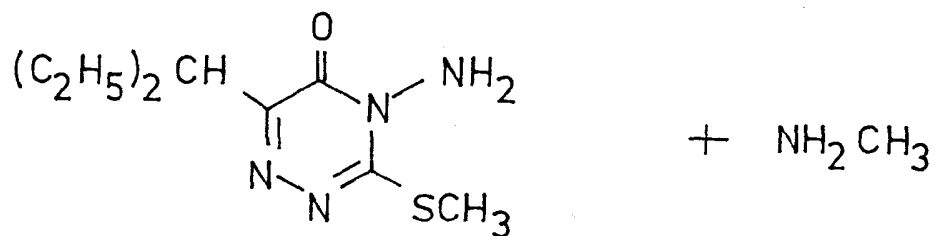
a) reakcióvázlat



b) reakcióvázlat



c) reakcióvázlat




T-82