

(12) **Ausschließungspatent**

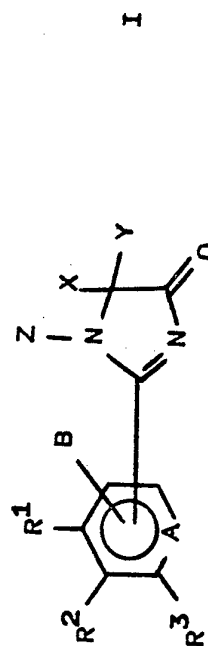
Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

(19) **DD** (11) **233 923 A5**4(51) **A 01 N 43/50****A 01 N 43/40****A 01 N 37/18****A 01 N 37/02****AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN**

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

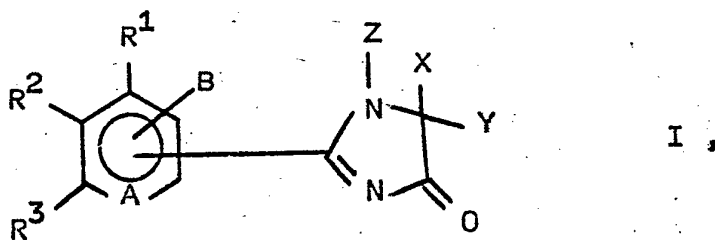
(21) **AP A 01 N / 271 035 1**(31) **P3345901.0**(22) **18.12.84**(32) **20.12.83**(44) **19.03.86**(33) **DE**(71) **siehe (73)**(72) **Schmierer, Roland, Dr.; Handte, Reinhard, Dr.; Mildenerger, Hilmar, Dr.; Bauer, Klaus, Dr.; Bieringer, Hermann, Dr.; Büstell, Helmut, Dr., DE**(73) **Hoechst AG, 6230 Frankfurt (Main) 80, DE**(54) **Herbizide und wachstumsregulierende Mittel**

(57) Die Erfindung betrifft Herbizide und wachstumsregulierende Mittel, die als Wirkstoff eine Verbindung der allgemeinen Formel (I) neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln enthalten. Die erfindungsgemäßen Mittel weisen eine ausgezeichnete herbizide Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum wirtschaftlich wichtiger mono- und dikotylar Schadpflanzen auf. Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Mittel wachstumsregulatorische Eigenschaften bei Kulturpflanzen auf. Sie greifen regulierend in den pflanzeigenen Stoffwechsel ein und können damit zur Ernteerleichterung eingesetzt werden.



Erfindungsanspruch:

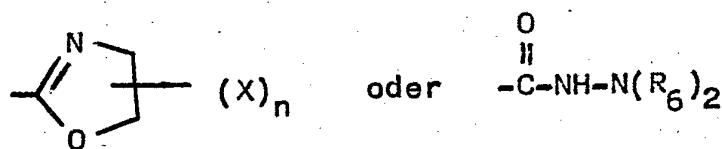
1. Herbizide und wachstumsregulierende Mittel, gekennzeichnet dadurch, daß sie als Wirkstoff ein 1-Acylimidazolinon der allgemeinen Formel I



in welcher

A N oder C-R⁴;

B $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{OR}^5, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{NR}^6\text{R}^7, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{SR}^8, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{NHR}^9, \end{matrix}$



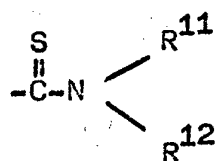
X C₁- bis C₄-Alkyl;

Y C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₂-C₄-Alkenyl, C₂-C₄-Alkynyl, Phenyl oder Benzyl;

X und Y zusammen mit dem Kohlenstoffatom, an dem sie gebunden sind, eine gegebenenfalls durch -CH₃ substituierte C₃-C₆-Spirocycloalkylgruppe;

Z $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{OR}^{10}, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{COOR}^6, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{SR}^8, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{S} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{SR}^8, \end{matrix}$ $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ -\text{C}-\text{N} \begin{matrix} \text{R}^{11} \\ \text{R}^{12} \end{matrix}, \end{matrix}$

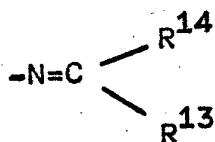
oder



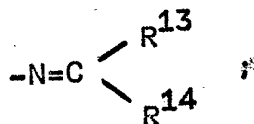
n 0, 1, 2

R¹, R², R³ und R⁴ unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkoxy-carbonyl, C₁- und C₂-Halogenalkyl, Nitro, Cyano, Phenoxy und Phenyl, das gegebenenfalls mit C₁-C₄-Alkoxy oder Halogen substituiert sein kann, wobei jeweils zwei 0-ständige Reste R¹, R², R³ oder R⁴ auch gemeinsam die Gruppierung -CH=CH-CH=CH- bilden können;

R⁵ Wasserstoff, C₁-C₁₂-Alkyl, welches gegebenenfalls bis zu zweimal mit C₁-C₄-Alkoxy, (C₁-C₄)-Alkoxyethoxy, C₃-C₆-Cycloalkyl, Benzyloxy, Phenyl, Halogen, Cyano, Hydroxyl, Oxiranyl, Tetrahydrofuryl, (C₁-C₄)-Alkylamino, (C₁-C₄)-Dialkylamino, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, Triazolyl oder Imidazolyl substituiert ist; C₃-C₆-Alkenyl, C₃-C₆-Halogenalkenyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₅- + C₆-Cycloalkenyl, C₃-C₆-Alkynyl, Benzyl, welches gegebenenfalls im Benzolkern durch Chlor oder Methyl substituiert sein kann, Phenyl, welches gegebenenfalls mit bis zu zwei C₁-C₄-Alkyl-, Nitro-, Halogen- oder Methoxygruppen substituiert sein kann, die Gruppe



	oder ein Kation einer anorganischen oder organischen Base;
R ⁶	Wasserstoff, C ₁ –C ₄ -Alkyl oder Phenyl;
R ⁷	Wasserstoff, C ₁ –C ₆ -Alkyl, welches gegebenenfalls mit einer Hydroxygruppe oder einer C ₁ –C ₃ -Alkoxygruppe substituiert ist; C ₁ –C ₄ -Alkylsulfonyl, Halogen–C ₁ –C ₄ -alkylsulfonyl, C ₃ -Alkenyl oder C ₃ -Alkynyl;
R ⁶ und R ⁷	gemeinsam mit dem Stickstoffatom einen 5- oder 6gliedrigen Ring, in dem ein Kohlenstoffatom durch Sauerstoff oder Stickstoff ersetzt sein kann und der gegebenenfalls mit bis zu zwei Methylgruppen substituiert ist;
R ⁸	Wasserstoff, C ₁ –C ₆ -Alkyl, Phenyl, Methylphenyl, Halogenphenyl oder ein Kation einer anorganischen oder organischen Base;
R ⁹	Wasserstoff oder C ₁ –C ₆ -Alkyl;
R ¹⁰	einen Rest der für R ⁵ angegebenen Bedeutung, ausgenommen Wasserstoff, Alkylaminoalkyl oder



R ¹¹	Wasserstoff, C ₁ –C ₁₂ -, vorzugsweise C ₁ –C ₆ -Alkyl, welches gegebenenfalls mit bis zu drei Halogenen, mit einer C ₁ –C ₄ -Alkoxy-, einer Nitro-, einer Cyano-, oder einer Phenylgruppe substituiert sein kann, C ₃ –C ₆ -Cycloalkyl, C ₃ –C ₆ -Alkenyl, C ₃ –C ₆ -Alkynyl, Phenyl, das gegebenenfalls mit bis zu zwei Halogen-, C ₁ –C ₄ -Alkyl-, Trihalogenmethyl-, Nitro-, C ₁ –C ₄ -Alkoxy- oder Cyanogruppen substituiert sein kann, Amino, C ₁ –C ₄ -Alkylamino, Anilino, C ₁ –C ₄ -Dialkylamino, C ₁ –C ₆ -Alkylcarbonyl, Trihalogenacetyl, Benzoyl, Halogenbenzoyl, Methylbenzoyl, Phenylsulfonyl, Halogenphenylsulfonyl oder Alkylphenylsulfonyl;
R ¹²	einen Rest der für R ⁶ angegebenen Bedeutung;
R ¹¹ und R ¹²	gemeinsam mit dem Stickstoffatom einen 5- oder 6gliedrigen Ring, in dem ein Kohlenstoffatom durch Sauerstoff oder Stickstoff ersetzt sein kann und der gegebenenfalls mit bis zu zwei Methylgruppen substituiert ist;
R ¹³ und R ¹⁴	unabhängig voneinander Wasserstoff, C ₁ –C ₄ -Alkyl, C ₁ –C ₄ -Alkoxyalkyl, C ₃ –C ₆ -Cycloalkyl, oder Phenyl, oder gemeinsam mit dem Kohlenstoffatom, an dem sie gebunden sind, eine C ₅ - oder C ₆ -Cycloalkylgruppe bedeuten;

sowie deren optische Isomere (falls X ≠ Y), Säureadditionsverbindungen und N-Oxide (für den Fall, daß A für N steht), neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln enthalten.

2. Verwendung der Verbindungen der Formel I gemäß Punkt 1, **gekennzeichnet dadurch**, daß sie als Biozide, insbesondere Herbizide und Wachstumsregulatoren, eingesetzt werden.
3. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, **gekennzeichnet dadurch**, daß man auf die zu behandelnden Flächen eine wirksame Menge einer Verbindung der Formel I gemäß Punkt 1 aufbringt.

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft Herbizide und wachstumsregulierende Mittel, die als Wirkstoff ein 1-Acylimidazolinon der nachfolgend genannten allgemeinen Formel (I) neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln enthalten.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Es ist bereits bekannt geworden, daß Imidazolinone, wie sie beispielsweise in den Deutschen Offenlegungsschriften DE-OS 28 33 274 und DE-OS 31 21 736 beschrieben werden, über herbizide Eigenschaften verfügen. Häufig ist jedoch die Herbizidwirkung der vorgeschlagenen Verbindungen nicht ausreichend, beziehungsweise es treten bei entsprechender Herbizidwirkung Selektivitätsprobleme auf.

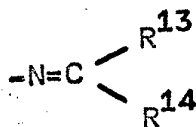
Ziel der Erfindung

Ziel der Erfindung ist die Bereitstellung neuer Imidazolinone mit starker herbizider Wirkung und breitem Wirkungsspektrum für die selektive Unkrautbekämpfung in landwirtschaftlichen Kulturen, bei denen die genannten Nachteile nicht auftreten.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, neue Herbizide und wachstumsregulierende Mittel zur Verfügung zu stellen. Gegenstand der Erfindung sind Herbizide und wachstumsregulierende Mittel, die als Wirkstoff eine Verbindung der allgemeinen Formel I,

- oder ein Kation einer anorganischen oder organischen Base;
- R⁶ Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl oder Phenyl;
- R⁷ Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, welches gegebenenfalls mit einer Hydroxygruppe oder einer C₁-C₃-Alkoxygruppe substituiert ist; C₁-C₄-Alkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkylsulfonyl; C₃-Alkenyl oder C₃-Alkynyl;
- R⁶ und R⁷ gemeinsam mit dem Stickstoffatom einen 5- oder 6gliedrigen Ring, in dem ein Kohlenstoffatom durch Sauerstoff oder Stickstoff ersetzt sein kann und der gegebenenfalls mit bis zu zwei Methylgruppen substituiert ist;
- R⁸ Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, Phenyl, Methylphenyl, Halogenphenyl oder ein Kation einer anorganischen oder organischen Base;
- R⁹ Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl;
- R¹⁰ einen Rest der für R⁵ angegebenen Bedeutung, ausgenommen Wasserstoff, Alkylaminoalkyl oder

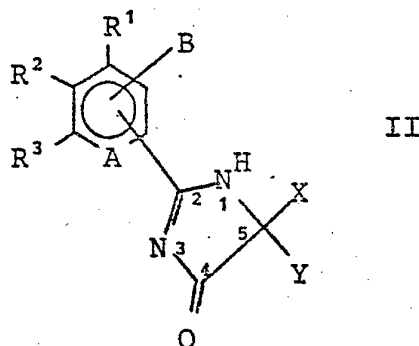


- R¹¹ Wasserstoff, C₁-C₁₂-, vorzugsweise C₁-C₆-Alkyl, welches gegebenenfalls mit bis zu drei Halogenen, mit einer C₁-C₄-Alkoxy, einer Nitro-, einer Cyano- oder einer Phenylgruppe substituiert sein kann, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₃-C₆-Alkenyl, C₃-C₆-Alkynyl, Phenyl, das gegebenenfalls mit bis zu zwei Halogen-, C₁-C₄-Alkyl-, Trihalogenmethyl-, Nitro-, C₁-C₄-Alkoxy- oder Cyanogruppen substituiert sein kann, Amino, C₁-C₄-Alkylamino, Anilino, C₁-C₄-Dialkylamino, C₁-C₆-Alkylcarbonyl, Trihalogenacetyl, Benzoyl, Halogenbenzoyl, Methylbenzoyl, Phenylsulfonyl, Halogenphenylsulfonyl, oder Alkylphenylsulfonyl;
- R¹² einen Rest der für R⁶ angegebenen Bedeutung;
- R¹¹ und R¹² gemeinsam mit dem Stickstoffatom einen 5- oder 6gliedrigen Ring, in dem ein Kohlenstoffatom durch Sauerstoff oder Stickstoff ersetzt sein kann und der gegebenenfalls mit bis zu zwei Methylgruppen substituiert ist;
- R¹³ und R¹⁴ unabhängig voneinander Wasserstoff, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxyalkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl oder Phenyl, oder gemeinsam mit dem Kohlenstoffatom, an dem sie gebunden sind, eine C₅- oder C₆-Cycloalkylgruppe;

bedeuten, sowie deren optische Isomere (falls X ≠ Y), Säureadditionsverbindungen und N-Oxide (für den Fall, daß A für N steht), neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln enthalten.

Für Kationen in R⁵- und/oder R⁸-Stellung kommen bevorzugt Na⁺, K⁺, 1/2 Mg²⁺, 1/2 Ca²⁺, 1/2 Cu²⁺, 1/2 Fe²⁺, 1/2 Zn²⁺, NH₄⁺ oder organisch substituiertes Ammonium wie ⁺NH(C₂H₅)₃, ⁺NH₃CH₂CH₂OH oder ⁺NH(CH₂CH₂OH)₃ in Betracht, Säureadditionsverbindungen (bei A = N) werden mit starken Säuren wie HCl oder H₂SO₄ gebildet.

Man erhält die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel I, indem man die Verbindungen der Formel II

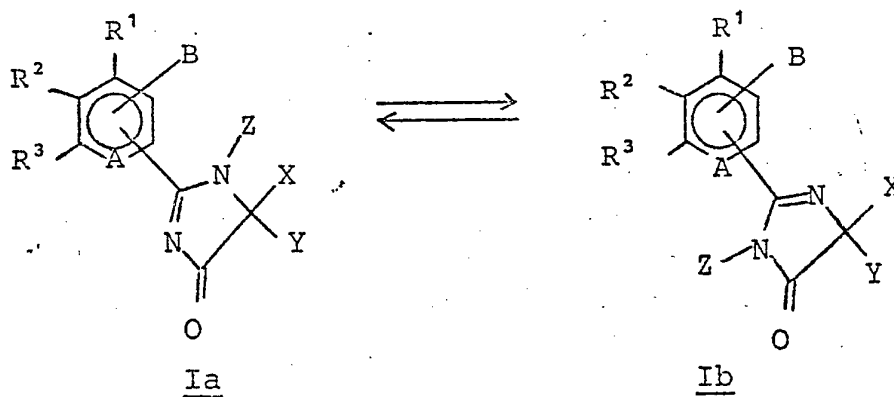


am Imidazolinring in 1-Stellung acyliert.

Die Verbindungen der Formel II sind an sich bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren, wie sie in DE-OS 28 33 274 und DE-OS 31 21 736 beschrieben werden, herstellen. Sind weitere acylierbare Gruppierungen im Molekül vorhanden, so können diese zuvor geschützt (z. B. als Ester oder Benzylether) und nach Acylierung mit geeigneten Methoden (z. B. Verseifung, Hydrierung, Umesterung) in die Verbindungen der Formel I umgewandelt werden.

Als Acylierungsmittel geeignet sind zum Beispiel Acylhalogenide in Gegenwart von Basen; Isocyanate oder Isothiocyanate. Auch können aus den Verbindungen II reaktive Zwischenprodukte (wie z. B. Xanthogenate, Chlorcarbonylverbindungen) hergestellt werden, die dann durch z. B. Alkylierung, Alkohololyse, Aminolyse, Hydrazinolyse zu den erfindungsgemäßen Verbindungen nach an sich bekannten Verfahren (Houben-Weyl IX S. 823ff.) weiter umgesetzt werden können. Die Reaktionstemperaturen für die Acylierungen sind unkritisch. Üblicherweise wird bei Temperaturen von -10°C bis +140°C, vorteilhaft bei 0°C bis 100°C in Gegenwart eines inerten Lösungsmittels gearbeitet. Als Basen für die Umsetzung der Acylhalogenide sind sowohl anorganische, wie Natriumcarbonat, als auch organische, wie z. B. Pyridin oder Triethylamin, geeignet. Bei den Umsetzungen der Isocyanate und Isothiocyanate wirkt sich im allgemeinen der Zusatz von katalytischen Mengen einer tertiären Base vorteilhaft aus.

Die Verbindungen der Formel II sind tautomer, so daß auch die erfindungsgemäßen Verbindungen in einer der beiden Formen Ia/Ib oder als Gemisch von Ia und Ib vorliegen können.



Werden für die Synthese der Phenylverbindungen ($A = CR^4$) unsymmetrisch substituierte Phthalsäurederivate eingesetzt, so sind für die Verbindungen der Formel II Isomerenmischungen möglich (vgl. DE-OS 2 833 274). Die erfindungsgemäßen Verbindungen können dann ebenfalls als Gemisch der beiden Stellungsisomeren vorliegen.

Die vorliegenden erfindungsgemäßen Verbindungen weisen eine ausgezeichnete herbizide Wirksamkeit gegen ein breites Spektrum wirtschaftlich wichtiger mono- und dikotyler Schädelpflanzen auf. Auch schwer bekämpfbare perennierende Wurzelunkräuter werden durch die Wirkstoffe gut erfaßt. Dabei ist es gleichgültig, ob die Substanzen in Vorsaats-, Voraufbau- oder Nachaufbauspritzung ausgebracht werden. Werden die erfindungsgemäßen Verbindungen vor dem Keimen auf die Erdoberfläche appliziert, so wird das Auflaufen der Keimlinge nicht vollständig verhindert. Die Unkräuter wachsen bis zum Keimblattstadium heran, stellen jedoch dann ihr Wachstum ein und sterben schließlich nach drei Wochen vollkommen ab.

Bei einigen Verbindungen tritt bei der Applikation auf die grünen Pflanzenteile im Nachaufbauverfahren ebenfalls sehr rasch nach der Behandlung ein Wachstumsstopp ein und die Unkrautpflanzen bleiben in dem zum Applikationszeitpunkt vorhandenen Wachstumsstadium stehen oder sterben nach einer gewissen Zeit ganz ab, so daß auf diese Weise eine für die Kulturpflanzen schädliche Unkrautkonkurrenz sehr früh und nachhaltig beseitigt werden kann. Obgleich die erfindungsgemäßen Verbindungen eine ausgezeichnete herbizide Aktivität gegenüber mono- und dikotylen Unkräutern aufweisen, werden Kulturpflanzen wirtschaftlich bedeutender Kulturen, wie z. B. Weizen, Gerste, Roggen, Reis, Mais, Zuckerrübe, Baumwolle und Soja teilweise nur unwesentlich oder gar nicht geschädigt. Einige der erfindungsgemäßen Substanzen besitzen deshalb gegenüber dem Stand der Technik eine wesentlich verbesserte Selektivität bei Kulturpflanzen. Sie eignen sich aus diesen Gründen sehr gut zur Bekämpfung von unerwünschtem Pflanzenwuchs in landwirtschaftlichen Nutzpflanzungen.

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen wachstumsregulatorische Eigenschaften bei Kulturpflanzen auf. Sie greifen regulierend in den pflanzeigenen Stoffwechsel ein und können damit zur Ernteerleichterung wie z. B. durch Auslösen von Desikation, Abszission und Wuchsstauchung eingesetzt werden. Des weiteren eignen sich auch zur generellen Steuerung und Hemmung von unerwünschtem vegetativen Wachstum, ohne dabei die Pflanzen abzutöten. Eine Hemmung des vegetativen Wachstums spielt bei vielen mono- und dikotylen Kulturen eine große Rolle, da das Lagern hierdurch verringert oder völlig verhindert werden kann.

Die erfindungsgemäßen Mittel können als Spritzpulver, emulgierbare Konzentrate, versprühbare Lösungen, Stäubemittel, Beizmittel, Dispersionen, Granulate oder Mikrogranulate in den üblichen Zubereitungen angewendet werden.

Spritzpulver sind in Wasser gleichmäßig dispergierbare Präparate, die neben dem Wirkstoff außer gegebenenfalls einem Verdünnungs- oder Inertstoff noch Netzmittel, z. B. polyoxethylierte Alkylphenole, polyoxethylierte Fettalkohole, Alkyl- oder Alkylphenylsulfonate und Dispergiermittel, z. B. ligninsulfonsaures Natrium, 2,2'-dinaphthylmethan-6,6'-disulfonsaures Natrium, dibutyl-naphthalinsulfonsaures Natrium oder auch oleoethylmethyltaurinsäures Natrium enthalten. Die Herstellung erfolgt in üblicher Weise, z. B. durch Mahlen und Vermischen der Komponenten.

Emulgierbare Konzentrate können z. B. durch Auflösen des Wirkstoffes in einem inerten organischen Lösungsmittel, z. B. Butanol, Cyclohexanon, Dimethylformamid, Xylol oder auch höhersiedenden Aromaten oder Kohlenwasserstoffen unter Zusatz von einem oder mehreren Emulgatoren hergestellt werden. Bei flüssigen Wirkstoffen kann der Lösungsmittelanteil auch ganz oder teilweise entfallen. Als Emulgatoren können beispielsweise verwendet werden: Alkyl-arylsulfonsaure Calciumsalze wie Ca-dodecylbenzolsulfonat oder nichtionische Emulgatoren wie Fettsäurepolyglykolester, Alkyl-aryl-polyglykolether, Fettalkoholpolyglykolether, Propylenoxid-Ethylenoxid-Kondensationsprodukte, Alkylpolyglykolether, Sorbitanfettsäureester, Polyoxethylensorbitanfettsäureester oder Polyoxethylensorbitester.

Stäubemittel kann man durch Vermahlen des Wirkstoffes mit feinverteilten, festen Stoffen, z.B. Talkum, natürlichen Tonen wie Kaolin, Bentonit, Pyrophillit oder Diatomeenerde erhalten.

Granulate können entweder durch Verdüsen des Wirkstoffes auf adsorptionsfähiges, granuliertes Intermaterial hergestellt werden oder durch Aufbringen von Wirkstoffkonzentrationen mittels Bindemitteln, z. B. Polyvinylalkohol, polycrylsaurem Natrium oder auch Mineralölen auf die Oberfläche von Trägerstoffen wie Sand, Kaolinite oder von granuliertem Intermaterial. Auch können geeignete Wirkstoffe in der für die Herstellung von Düngemittelgranulaten üblichen Weise, gewünschtenfalls in Mischung mit Düngemitteln, granuliert werden.

In Spritzpulvern beträgt die Wirkstoffkonzentration z. B. etwa 10 bis 90 Gew.-%, der Rest zu 100 Gew.-% besteht aus üblichen Formulierungsbestandteilen. Bei emulgierbaren Konzentraten kann die Wirkstoffkonzentration etwa 10 bis 80 Gew.-% betragen. Staubbörmige Formulierungen enthalten meistens 5 bis 20 Gew.-% an Wirkstoff, versprühbare Lösungen etwa 2 bis 20 Gew.-%. Bei Granulaten hängt der Wirkstoffgehalt zum Teil davon ab, ob die wirksame Verbindung flüssig oder fest vorliegt und welche Granulierhilfsmittel, Füllstoffe usw. verwendet werden.

Daneben enthalten die genannten Wirkstoffformulierungen gegebenenfalls die jeweils üblichen Haft-, Netz-, Dispergier-, Emulgier-, Penetrations-, Lösungsmittel, Füll- oder Trägerstoffe.

Zur Anwendung werden die in handelsüblicher Form vorliegenden Konzentrate gegebenenfalls in üblicher Weise verdünnt, z. B. bei Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, Dispersionen und teilweise auch bei Mikrogranulaten mittels Wasser. Staubbörmige und granuliert Zubereitungen sowie versprühbare Lösungen werden vor der Anwendung üblicherweise nicht mehr mit weiteren inerten Stoffen verdünnt.

Mit den äußeren Bedingungen wie Temperatur, Feuchtigkeit u. a. variiert die erforderliche Aufwandmenge. Sie kann innerhalb weiter Grenzen schwanken, z. B. zwischen 0,005 und 10,0 kg/ha oder mehr Aktivsubstanz, vorzugsweise liegt sie jedoch zwischen 0,05 und 5 kg/ha.

Auch Mischungen oder Mischformulierungen mit anderen Wirkstoffen, wie z. B. Insektiziden, Akariziden, Herbiziden, Düngemitteln, Wachstumsregulatoren oder Fungiziden sind gegebenenfalls möglich.

Nachstehend seien einige Formulierungsbeispiele aufgeführt:

Ein Stäubemittel wird erhalten, indem man 10 Gewichtsteile Wirkstoff und 90 Gewichtsteile Talkum oder Inertstoff mischt und in einer Schlagmühle zerkleinert.

Ein in Wasser leicht dispergierbares, benetzbares Pulver wird erhalten, indem man 25 Gewichtsteile Wirkstoff, 64 Gewichtsteile kaolinhaltigen Quarz als Inertstoff, 10 Gewichtsteile ligninsulfonsaures Kalium und 1 Gewichtsteil oleoylmethyltaurinsaures Natrium als Netz- und Dispergiemittel mischt und in einer Stiftmühle mahlt.

Ein in Wasser leicht dispergierbares Dispersionskonzentrat wird erhalten, indem man 20 Gewichtsteile Wirkstoff mit 6 Gewichtsteilen Alkylphenolpolyglykolether (Triton X 207), 3 Gewichtsteilen Isotridecanolpolyglykolether (8 AeO) und 71 Gewichtsteilen paraffinischem Mineralöl (Siedebereich z. B. etwa 255 bis über 377°C mischt und in einer Reibkugelmühle auf eine Feinheit von unter 5 Mikron vermahlt.

Ein emulgierbares Konzentrat wird erhalten aus 15 Gewichtsteilen Wirkstoff, 75 Gewichtsteilen Cyclohexanon als Lösungsmittel und 10 Gewichtsteilen oxethyliertes Nonylphenol (10 AeO) als Emulgator.

Ausführungsbeispiel

Die folgenden Beispiele dienen der weiteren Erläuterung der Erfindung:

A. Herstellungsbeispiele

Beispiel 1

2-(2-Ethoxycarbonylphenyl)-5-isopropyl-1-methoxycarbonyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin

8 g (0,028 mol) 2-(2-Ethoxycarbonylphenyl)-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin wurden in 30 ml abs. Pyridin gelöst und bei Raumtemperatur mit 5,3 g (0,56 mol) Chlorameisensäuremethylester versetzt. Nach 1 h gießt man auf Eis, extrahiert 2mal mit je 100 ml Toluol, wäscht die organische Phase 2mal mit Wasser, trocknet und dampft ein. Man erhält 8,7 g (90% d. Th.)

2-(2-Ethoxycarbonylphenyl)-5-isopropyl-1-methoxycarbonyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin, ein farbloses Öl.

$^1\text{H-NMR}$ (60 MHz, CDCl_3) δ = 0,98, 1,09 (2d, J = 7 Hz, $-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$, je 3H); 1,28 (t, J = 7 Hz, $-\text{OCH}_2\text{CH}_3$, 3H); 1,43 (s, $-\text{CH}_3$, 3H); 2,17 (h J = 7 Hz, $\text{CH}(\text{CH}_3)_2$, 1H); 3,63 (s, OCH_3 , 3H); 4,25 (q, J = 7 Hz, $\text{O}-\text{CH}_2-$, 2H); 7,3–8,0 ppm (m, 4H, Phenyl).

Beispiel 2

2-(2-Ethoxycarbonylphenyl)-1-N-ethylcarbomoyl-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin

9 g (0,031 mol) 2-(2-Ethoxycarbonylphenyl)-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin werden in 30 ml abs. Methylenchlorid gelöst und bei Raumtemperatur mit 2,7 g (0,038 mol) Ethylisocyanat und 0,5 ml DBU versetzt. Nach 1 h Reaktionszeit wird auf Eis gegeben, die organische Phase 2mal mit Wasser gewaschen, getrocknet und eingedampft. Man erhält 11,0 g (98% d. Th.)

2-(2-Ethoxycarbonylphenyl)-1-N-ethylcarbomoyl-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin, farblose Tafeln vom Fp 85–87°C.

Beispiel 3

2-(2-Butoxycarbonylphenyl)-1-N', N'-dimethylcarbazyol-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin

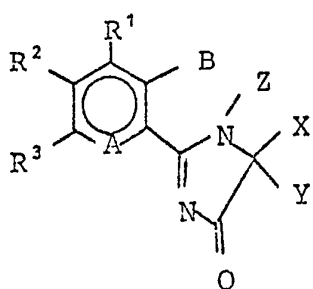
Zu einer Lösung von 3,85 g (0,039 mol) Phosgen in 25 ml Chlorbenzol tropft man bei Raumtemperatur ein Gemisch aus 10 g (0,032 mol) 2-(2-Butoxycarbonylphenyl)-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin, 3 g (0,038 mol) Pyridin und 30 ml Methylenchlorid zu. Man läßt 1 h bei Raumtemperatur rühren, kühlt auf 5°C ab und tropft bei dieser Temperatur 4,4 g (0,073 mol)

N,N-Dimethylhydrazin zu. Man läßt auf Raumtemperatur erwärmen, gießt auf Wasser, wäscht die organische Phase noch 2mal mit je 100 ml Wasser, trocknet und dampft ein. Nach chromatografischer Reinigung (Kieselgel, Laufmittel Petrolether-Essigester 7:3) erhält man 7,8 g (61% d. Th.) 2-(2-Butoxycarbonylphenylphenyl)-1-N', N'-dimethylcarbazyol-5-isopropyl-5-methyl-4-oxo-2-imidazolin, ein hellgelbes Öl.

$^1\text{H-NMR}$ (60 MHz, CDCl_3) δ = 0,97, 1,10 (2d, J = 7 Hz, je 3H, $-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$); 1,43 (s, 3H, CH_3); 0,85–2,3 (sh, 8H, $\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{CH}_3$, $-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$); 2,53 (s, 6H, $\text{N}(\text{CH}_3)_2$); 4,17 (t, J = 7 Hz, 2H, $-\text{OCH}_2$); 7,3–8,2 ppm (m, 4H, Phenyl); 8,90 ppm (s, 1H, NH).

In analoger Weise werden die Beispiele der Tabelle 1 hergestellt.

Tabelle 1 Verbindungen der allgemeinen Formel I



I

Bei- spiel Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	B	X	Y	Z	Fp [°C]
4	H	H	H	CH	CONH ₂	CH ₃	CH ₃		Oel
5	H	H	H	CH	COOH	CH ₃	CH ₃		Oel
6	H	H	H	N	COOCH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅		Oel
7	H	H	H	N	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
8	H	H	H	N	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		91-3
9	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Harz
10	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
11	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		
12	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		
13	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
14	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
15	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
16*	F	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
17*	F	H	Cl	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel

Fortsetzung Tabelle 1

Bei- spiel Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	B	X	Y	Z	Fp [°C]
18*	F	H	CH ₃	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Harz
19*	F	H	COOCH ₃	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
20	Cl	Cl	Cl	CCl	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
21	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Harz
22	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
23	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
24	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		Oel
25	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		
26	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂		
27	H	H	H	CH	COOC ₂ H ₅	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		90-2
28	H	H	H	CH	COOC ₂ H ₅	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		Oel
29	H	H	H	CH	COOC ₂ H ₅	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		Oel
30	H	H	H	CH	COOnC ₄ H ₉	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		73-5
31	H	H	H	CH	COOnC ₄ H ₉	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		Oel
32	H	H	H	CH	COOnC ₄ H ₉	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		Oel
33	H	H	H	CH	COOnC ₄ H ₉	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		Harz
34	H	H	H	CH		CH ₃			Oel
35	H	H	H	CH		CH ₃	-CH ₂ CH(CH ₃) ₂		Oel
36*	NO ₂	H	H	CH	COOnC ₄ H ₉	CH ₃	-CH ₂ CH(CH ₃) ₂		Oel

Fortsetzung Tabelle 1

Bei- spiel Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	B	X	Y	Z	Fp [°C]
37*	H	CH ₃	H	CH	-COO(CH ₂) ₂ -C ₂ H ₅ -OCH ₃		C ₂ H ₅		
38	H	CH ₃	H	CH	-COO(CH ₂) ₂ -C ₂ H ₅ -Cl		C ₂ H ₅		
39	H	-CH=CH- CH=CH-		CH	-COONa	CH ₃	-CH(CH ₃) ₂		
40	H	-CH=CH- CH=CH-		CH	-COO(CH ₂) ₂ -CH ₃ -N(C- H ₃) ₂		-CH(CH ₃) ₂		
41	H	-CH=CH- CH=CH-		N	-COOH	CH ₃	C ₂ H ₅		Hydro- chlorid
42	H	-CH=CH- CH=CH-		N	-COOCH ₂ CH ₂ C ₂ H ₅ =CH ₂		C ₂ H ₅		
43*	H	H	CN	CH	-COO-	C ₂ H ₅	CH(CH ₃) ₂		
44	H	H	H	CH	-CONHOCH ₃	-CHCH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ - CH ₃			
45	H	H	H	CH		-CHCH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ - CH ₃			
46	H	H	H	CH	COO-N=C(CH ₃) ₂				
47	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	-CONHCH ₃	97-101
48	H	H	H	CH	COOC ₂ H ₅	CH ₃	C ₂ H ₅	-CONHCH ₃	Öl
49	H	H	H	CH	COOC ₂ H ₅	CH ₃	C ₂ H ₅	-CONHC ₂ H ₅	Öl
50	H	H	H	N	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONHC ₂ H ₅	Öl
51	H	H	H	N	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-COOCH ₃	Öl
52	H	-CH=CH- CH=CH-		CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONHCH ₃	136-41
53	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH-CH(CH ₃) ₂	Öl
54	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CO-	90-5
55	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CO-N-	Öl
56	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CO-N-	Öl

Fortsetzung Tabelle 1

Bei- spiel Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	B	X	Y	Z	Fp [°C]
57	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH- 	Öl
58	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONHC(CH ₃)CH(CH ₃) ₂ CN	68-74
59	H	H	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-COCOOCH ₃	92-3
60	H	H	H	CH	COOC ₂ H ₅	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH-n-C ₄ H ₉	Öl
61	H	H	H	CH	COO-n- C ₄ H ₉	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH ₂	Öl
62*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONHCH ₃	Öl
63*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONHC ₂ H ₅	Öl
64*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-COCOOCH ₃	Öl
65*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-COOCH ₃	Öl
66*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-COO Phenyl	Öl
67*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-COS-n-C ₆ H ₁₃	Öl
68*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH-N(CH ₃) ₂	Öl
69*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH-CH(CH ₃) ₂	Öl
70*	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	-CONH- 	Öl
71	H	CH ₃	H	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃)C ₂ H ₅	CONHCH ₃	Öl
72	H	Cl	Cl	CH	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	CONHCH ₃	Öl
73*	H	H	H	CCH ₃	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	CONHCH ₃	Öl
74	H	H	H	N	COOCH ₂ - S-CH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	CONHCH ₃	Öl
75	H	-CH=CH- CH=CH-		N	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	CONHCH ₃	Öl
76	H	-CH=CH- CH=CH-		N	COOCH ₃	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	COOCH ₃	Öl
77	H	-CH=CH- CH=CH-		N	COOH	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	CONHCH ₃	Öl
78	H	H	H	N	COO ⁻ H ₃ N ⁺	CH ₃	CH(CH ₃) ₂	CONHCH ₃	Öl

* Im Gemisch mit der stellungsisomeren Verbindung

B. Biologische Beispiele

Prüfung auf herbizide Wirkung

Die Schädigung der Unkrautpflanzen bzw. die Kulturpflanzenverträglichkeit wurde in einem Schlüssel von 0–5 bonitiert.

Dabei bedeutet

0 = ohne Wirkung (Schaden)

1 = 0– 20% Wirkung

2 = 20– 40% Wirkung

3 = 40– 60% Wirkung

4 = 60– 80% Wirkung

5 = 80–100% Wirkung

1. Wirkung gegen Unkräuter

Samen bzw. Rhizomstücke mono- und dikotyle Unkräuter wurden in Lehmerde in Plastiktöpfen ($\varnothing$ 9 cm) ausgelegt und mit Erde abgedeckt. Die als benetzbare Pulver bzw. als Emulsionskonzentrate formulierten erfindungsgemäßen Verbindungen wurden in Form wässriger Suspensionen bzw. Emulsionen auf die Erdoberfläche appliziert. Die Wasseraufwandmenge pro Topf entsprach dabei umgerechnet 600 l/ha. Nach der Behandlung wurden die Versuchstöpfe im Gewächshaus aufgestellt und die Versuchspflanzen unter guten Wachstumsbedingungen (Temperatur: 23 ± 1 °C; rel. Luftfeuchte 60–80 %) kultiviert. Nach etwa 3 Wochen wurde die Pflanzenschädigung visuell bonitiert. Als Vergleich dienten dabei unbehandelte Kontrollen.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen wiesen eine zum Teil ausgezeichnete herbizide Wirksamkeit gegen wirtschaftlich bedeutende Mono- und dikotyle Schadpflanzen auf.

Tabelle 2

Beisp. Nr.	Wirksamkeit im Voraufbau gegen			
	ALM	POA	AMR	SIA
1	5/5	5/3	5/5/5	5/5
2	5/5	5	5/5/5	5/4
3	5/5	5	5/5/5	5/4
8	5/5/5	5/5/5	5/5/5	5/5/5
9	5/5/4	5/5	5/5/4	5/5/4
10	5/5	5/5	5/5/5	5/5
15	5	4	5	5
22	5/5	3/3	5/5	5/5
23	5/5	5/5	5/5/5	5/5
24	5/5/4	5/5	5/5/4	5/5
27	5/5	5	5/5/5	5/5
28	5/5	5	5/5/5	5/5
29	5/5	4/3	5/5/5	5/4
30	5	5	5/5	5/5
31	5/4	5	5/5	5/4
32	4		5	4
33	5	4	5/5	5/5
47	5/5	5/5	5/4	5/4
48	4	4	5/5	5/5
49	4/4	4	5/5	5/5
50	5/5/5	5/5/5	5/5/5	5/5/5
51	5/5/5	5/5/5	5/5/5	5/5/5
52	5		4/4	5/4
53	5/5	5/5	5/5/4	5/5/4
55	5	4	5	5
56	4	4	5/4	4
57	5/5	5/5	5/5/5	5/5/4
58	5/5	5/5/4	5/5	5/5
59	5/5	5/5	5/5	5/5
60	5/4	4	5/5/5	5/4
61	5/5	5/5	5/5/4	5/5
62	5/5/5	5/4	5/4	5/5/4
63	5/5/5	5	5/4	5/5
64	5/5/5	5/4	5/4	5/5/4
65	5/5/5	5/4	5/4	5/5
66	5/5/5	5/4	5	5/5
	LOM	ECG	STM	SIA
68	4	4	5	5
69	4		4	5
70	5	4	5	5

In ähnlicher Weise werden verschiedene Unkräuter in Töpfen im Gewächshaus bis zum 3-6-Blattstadium herangezogen und dann im Nachaufbauverfahren mit den erfindungsgemäßen Verbindungen (formuliert als Spritzpulver) behandelt. 4 Wochen später wurden die Versuchspflanzen im Vergleich zu unbehandelten Kontrollpflanzen visuell bonitiert, indem die Schädigung geschätzt wurde.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen erwiesen sich auch in diesem Versuch als gut wirksam:

Tabelle 3

Beisp. Nr.	Wirksamkeit im Nachauflauf gegen			
	ALM	POA	AMR	SIA
1	5			5/4
3			5	4
8	5/5	5/5/4	5/4	5/5
9	4	4	5	4
10				5/4
22				5
23				5/4
24				4
27	4			4
28			5	
29	4			4
47		3	5	4
50	5/5	5/5/4	5/5	5/5/4
51	5/5	5/5/5	5/5/4	5/5/5
57			5	5
58	4		5/4	5/5
59	5			5/5/4
62	5/4			5/4/4
63	5			5/5
64	5/4			5/5/4
65	5/4		4	5/5/4
66	4/4	3	3	5/4
68	5/4		4	5/5/4
69	5/4		4	5/5/4
70	5/4		4	5/5/4

Legende:

Testpflanzen: ALM = Alopecurus myosuroides
 POA = Poa annua
 AMR = Amaranthus retroflexus
 SIA = Sinapis alba
 LOM = Lolium multiflorum
 ECG = Echinochloa crus-galli
 STM = Stellaria media

1 Zahl = Dosierung 2,4 kg/ha z. B. 5
 2 Zahlen = Dosierungen 2,4–0,6 kg/ha z. B. 5/4
 3 Zahlen = Dosierungen 2,4–0,6–0,15 kg/ha z. B. 5/4/3