

POPIS VYNÁLEZU K PATENTU

231991

(11)

(B2)



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY
A OBJEVY

[22] Přihlášeno 19 02 82

[21] (PV 1170-82)

[32] [31] [33] Právo přednosti od 20 02 81
(56-23122) Japonsko

[40] Zveřejněno 13 01 84

[45] Vydáno 15 12 86

[51] Int. Cl.³
A 01 N 43/54
C 07 D 239/10

[72]

Autor vynálezu

AYA MASAHIRO, KODAIRA, SAITO JUNICHI, MITAKA,
YASUI KAZUOMI, TOKIO, SHIOKAWA KOZO, KAWASAKI (Japonsko)

[73]

Majitel patentu

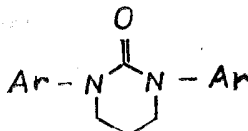
NIHON TOKUSHU NOYAKU SEIZO K. K., TOKIO (Japonsko)

[54] Herbicidní prostředek a způsob výroby účinných látek

1

Vynález se týká nových substituovaných tetrahydropyrimidinonových derivátů, způsobu jejich výroby a herbicidních prostředků obsahujících zmíněné deriváty jako účinné látky.

Vynález zejména popisuje v literatuře dosud nepopsané tetrahydropyrimidinonové deriváty obecného vzorce I



(I)

ve kterém

jednotlivé symboly Ar mohou být stejné nebo rozdílné a znamenají vždy α -naftylovou skupinu nebo zbytek vzorce



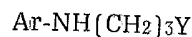
kde

X znamená atom halogenu, alkylovou skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku, alkoxy skupinu

2

s 1 až 4 atomy uhlíku, nitroskupinu, kyano skupinu, alkyldikarbonylovou skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku v alkylové části, alkoxykarbonylovou skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku v alkylové části, trifluormethylovou skupinu nebo fenoxy skupinu, přičemž jsou-li přítomny dva nebo tři substituenty ve významu symbolu X, mohou být stejné nebo rozdílné, a n je číslo o hodnotě 0, 1, 2 nebo 3.

Předmětem vynálezu je herbicidní prostředek, vyznačující se tím, že jako účinnou látku obsahuje shora definovaný tetrahydropyrimidinonový derivát obecného vzorce I, a dále způsob výroby těchto účinných látek, vyznačující se tím, že se sloučenina obecného vzorce IV

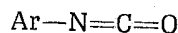


(IV)

ve kterém

Ar má shora uvedený význam a

Y představuje atom halogenu, nechá reagovat s isokyanátem obecného vzorce III



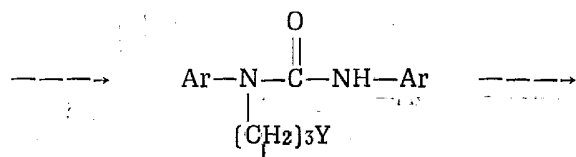
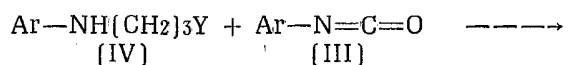
(III)

ve kterém

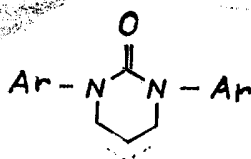
Ar má shora uvedený význam,

a na výsledný produkt se působí hydroxidem alkalického kovu.

Reakci podle vynálezu je možno popsat následujícím reakčním schématem:



hydroxid
alkalického kovu



(II)

Ve vzorcích uvedených v tomto reakčním schématu mají symboly Ar a Y shora uvedený význam.

Jako příklady konkrétních výchozích látek obecného vzorce IV, používaných při práci podle shora uvedeného reakčního schématu, se uvádějí

N-3-chlorpropyl-3-fluoranilin,
N-3-chlorpropyl-3-chloranilin,
N-3-chlorpropyl-3-bromanilin,
N-3-chlorpropyl-3-toluidin,
N-3-chlorpropyl-3-methoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-3-isopropoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-3-fenoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-3-nitroanilin,
N-3-chlorpropyl-3-kyanilanilin,
N-3-chlorpropyl-3-acetanilin,
N-3-chlorpropyl-3-ethoxykarbonylanilin,
N-3-chlorpropyl-3-fenoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-2,5-dichloranilin,
N-3-chlorpropyl-3,4-dichloranilin,
N-3-chlorpropyl-3,5-dichloranilin,
N-3-chlorpropyl-3,5-xylidin,
N-3-chlorpropyl-3,4-dimethoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-3-chlor-4-trifluormethylanilin,
N-3-chlorpropyl-3,5-bistrifluormethylanilin,
N-3-chlorpropyl-2,4,5-trichloranilin,
N-3-chlorpropyl-3,5-dimethoxyanilin,
N-3-chlorpropylanilin,
N-3-chlorpropyl- α -naftylanilin,
N-3-chlorpropyl-2-chloranilin,
N-3-chlorpropyl-4-chloranilin;

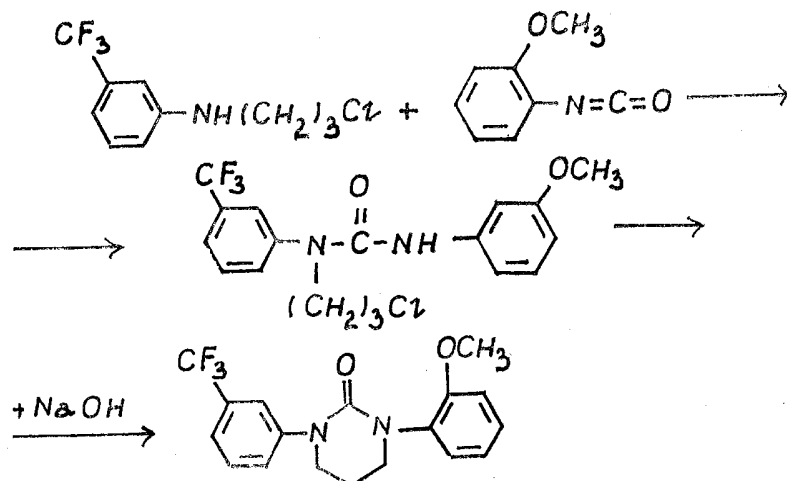
N-3-chlorpropyl-2-toluidin,
N-3-chlorpropyl-4-toluidin,
N-3-chlorpropyl-2-methoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-4-methoxyanilin,
N-3-chlorpropyl-2-trifluormethylanilin,
N-3-chlorpropyl-4-trifluormethylanilin,
N-3-chlorpropyl-4-isopropylanilin,
N-3-chlorpropyl-2,6-xylidin,
N-3-chlorpropyl-3,4-xylidin apod.,
jakož i jim analogické N-3-brompropyl-deriváty.

Jako příklady konkrétních isokyanátů obecného vzorce III, používaných jako další výchozí látky, se uvádějí:

fenylisokyanát,
 α -naftylisokyanát,
2-chlorfenylisokyanát,
3-chlorfenylisokyanát,
4-chlorfenylisokyanát,
2-tolylisokyanát,
3-tolylisokyanát,
4-tolylisokyanát,
2-methoxyfenylisokyanát,
3-methoxyfenylisokyanát,
4-methoxyfenylisokyanát,
3-nitrofenylisokyanát,
2-trifluormethylfenylisokyanát,
3-trifluormethylfenylisokyanát,
4-trifluormethylfenylisokyanát,
4-isopropylfenylisokyanát,
3,5-dichlorfenylisokyanát,
2,6-xylylisokyanát,
3,4-xylylisokyanát,
3-chlor-4-trifluormethylfenylisokyanát,
2,4,5-trichlorfenylisokyanát,
3-fluorfenylisokyanát,
3-bromfenylisokyanát,
3-isopropoxyfenylisokyanát,
3-fenoxyfenylisokyanát,
3-kyanfenylisokyanát,
3-acetylfenylisokyanát,
3-ethoxykarbonylfenylisokyanát,
2,5-dichlorfenylisokyanát,
3,4-dichlorfenylisokyanát,
3,5-xylylisokyanát,
3,4-dimethoxyfenylisokyanát,
3,5-bistrifluormethylisokyanát,
3,5-dimethoxyfenylisokyanát apod.

Jako příklady hydroxidů alkalických kovů, použitelných pro práci způsobem podle vynálezu, se uvádějí hydroxid sodný, hydroxid draselný a hydroxid lithný.

Jako reprezentativní příklad způsobu podle vynálezu je možno uvést následující reakci:



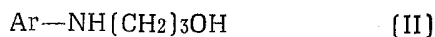
Způsob podle vynálezu se účelně provádí za použití rozpouštědla nebo ředidla. K danému účelu je možno používat libovolná inertní rozpouštědla nebo ředidla.

Jako příklady takovýchto ředidel a rozpouštědel lze uvést vodu, alifatické, alicyklické a aromatické uhlovodíky, které mohou být popřípadě chlorované, například hexan, cyklohexan, petrolether, ligroin, benzen, toluen, xylén, methylenchlorid, chloroform, tetrachlormethan, ethylenchlorid, trichlorethylen a chloroform, ethery, například diethylether, methylethylether, diisopropylether, dibutylether, propylenoxid, dioxan a tetrahydrofuran, ketony, např. aceton, methylethylketon, methylisobutylketon a methylisopropylketon, nitrily, například acetonitril, propionitril a akrylonitril, alkoholy, například methanol, ethanol, isopropanol, butanol a ethylenglykol, estery, například ethylacetát a amylacetát, amidy kyselin, například dimethylformamid a dimethylacetamid, sulfony a sulfoxidy, například dimethylsulfoxid a sulfonan, a báze, například pyridin.

Shora popsanou reakci podle vynálezu je možno provádět kontinuálně bez oddělování meziproduktů v průběhu reakce a touto reakcí je možno získat žádanou sloučeninu podle vynálezu ve vysoké čistotě a ve vysokém výtěžku.

Způsob podle vynálezu lze provádět v širokém rozmezí teplot. Obecně se pracuje při teplotě mezi -20°C a teplotou varu reakční směsi, s výhodou při teplotě mezi 0 a 100°C . Reakce se s výhodou provádí za normálního tlaku, lze ji však provádět i za zvýšeného nebo sníženého tlaku.

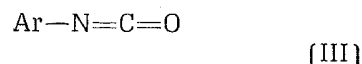
Účinné látky obecného vzorce I lze alternativně vyrábět rovněž tak, že se sloučenina obecného vzorce II



ve kterém

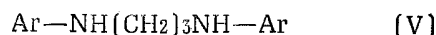
Ar má shora uvedený význam,

nechá reagovat s isokyanátem obecného vzorce III



ve kterém

Ar má shora uvedený význam, výsledný produkt se podrobí reakci s halogenačním činidlem a pak s hydroxidem alkalického kovu, nebo že se sloučenina obecného vzorce V



ve kterém

Ar má shora uvedený význam, nechá reagovat s fosgenem nebo trichlormethylchlorformiátem.

Obě tyto alternativní reakce se účelně provádějí v přítomnosti rozpouštědel a ředidel jako shora popsany způsob podle vynálezu, přičemž i reakční teploty jsou obdobné.

Autoři vynálezu provedli rozsáhlý výzkum s cílem nalézt nové sloučeniny s vynikající selektivní herbicidní účinností. Zpočátku věnovali pozornost mechanismu účinku v té době známých sloučenin s herbicidní účinností, zejména derivátů močoviny, a tímto směrem pak zaměřili výzkum. Toto snažení mělo za výsledek přípravu substituovaných tetrahydropyrimidinonových derivátů shora uvedeného obecného vzorce I, které dosud nebyly v literatuře popsány. Dále bylo nyní zjištěno, že sloučeniny obecného vzorce I mají neobyčejně dobrou selektivní herbicidní účinnost a vykazují přesný herbicidní efekt, zejména chlorosu jako následek zbrzdění syntézy chlorofylu apod.

V Chemical Abstract, sv. 57, 9860a, 1962, je popsána sloučenina, kterou je možno co do chemické struktury považovat v určité míře za příbuznou sloučeninám podle vynálezu. Jedná se o 1-methyl-3-fenylhexahydro-2-pyrimidinon. Ve shora uvedené publikaci není však žádná zmínka o použití této látky,

Autoři vynálezu zjistili, že zatímco známá sloučenina popsaná ve shora uvedených citacích nevykazuje téměř žádný herbicidní účinek (jak vyplývá z níže uvedeného srovnávacího pokusu), mají nové sloučeniny shora uvedeného obecného vzorce I vynikající selektivní herbicidní účinek.

Dále bylo zjištěno, že zvláště vynikající účinnost vykazují ty sloučeniny shora uvedeného obecného vzorce I, v nichž fenylový zbytek na dusíkovém atomu v poloze 1 nebo 3 nese alespoň jeden substituent, a je-li tento substituent v m-poloze.

Protože sloučeniny podle vynálezu jsou pro teplokrevné pouze nepatrně toxické, a jak již bylo uvedeno výše, vykazují dobrou selektivitu, lze je jednoduše a účelně používat k hubení plevelů. Sloučeniny podle vynálezu vykazují vynikající selektivní herbicidní účinnost zejména v případě, že se používají jako preemergentní nebo postemergentní herbicidní prostředky k potírání plevelů v kulturách rýže.

Sloučeniny podle vynálezu vykazují vynikající bezpečnost, výtečný herbicidní účinek a široké spektrum herbicidní účinnosti.

Popisované sloučeniny se například vyznačují tím, že působí jako herbicidy proti níže uvedeným plevelům na závlahových rýžových polích, aniž by přitom jakýmkoli způsobem poškozovaly rostliny rýže:

dvojděložné plevely:

Rotala indica Koehne
Lindernia procumbens Philcox
Ludwiga prostrata Roxburgh
Potamogeton distinctus A. Benn.
Elatine triandra Schk. apod.

jednoděložné plevely:

Echinochloa crus-galli Beauv. var.
Monochoria vaginalis Presl.
Eleocharis acicularis L.
Eleocharis Kuroguwai Ohwi
Cyperus difformis L.
Cyperus serotinus Rottboell
Sagittaria pygmaea Miq.
Alisma canaliculatum A. Br. et Bouche
Scirpus juncoides Roxburgh var. apod.

Popisované sloučeniny mimoto vykazují herbicidní účinnost proti níže uvedeným plevelům, aniž by měly nějaký škodlivý účinek na užitkové rostliny na normálních polích, včetně dvojděložných užitkových rostlin, jako je hořčice, bavlník,

Popisované sloučeniny mimoto vykazují herbicidní účinnost proti níže uvedeným plevelům, aniž by měly nějaký škodlivý účinek na užitkové rostliny na normálních polích, včetně dvojděložných užitkových rostlin, jako je hořčice, bavlník, mrkev, hrách, fazol či bob, brambory, řepa, šachor jedlý apod., a jednoděložných užitkových rostlin, jako je

kukuřice, rýže, oves, ječmen, pšenice, proso, cukrová třtina apod.:

dvojděložné plevely:

Polygonum sp. (rdesno)
Chenopodium album Linnaeus
 (merlík bílý)
Stellaria media Villars (ptačinec žabinec)
Portulaca oleracea Linnaeus
 (šrucha zelná) apod.

jednoděložné plevely:

Echinochloa crus-galli Beauv. var.
 (ježatka kuří noha)
Digitaria adscendens Henr. (rosička)
Cyperus iria L. (šachor) apod.

Shora uvedené názvy rostlin je ovšem třeba považovat pouze za reprezentanty rodů označovaných latinskými názvy.

Použitelnost účinných látek obecného vzorce I není nikterak omezena pouze na plevely na rýžových a obyčejných polích. Tyto sloučeniny jsou účinné i proti plevelům vyskytujícím se v sítinách, proti plevelům na úhořech apod. Používaný výraz „plevely“ zahrnuje v nejširším slova smyslu všechny rostliny rostoucí na místech, kde jsou nežádoucí.

Nasazují-li se sloučeniny podle vynálezu jako herbicidy, lze je používat jako takové po jednoduchém zředění vodou, nebo ve formě nejrůznějších preparátů, které se vyrábějí za použití pomocných látek obvyklých v zemědělství, a to běžnými způsoby výroby agrochemikálií.

Tyto preparáty nejrůznějšího druhu lze při praktickém upotřebení používat jako takové nebo je lze ředit vodou na žádanou koncentraci. Používaný výraz „pomocné látky obvyklé v zemědělství“ zahrnuje například ředidla (rozpouštědla, plnidla, nosiče apod.), povrchově aktivní činidla (látky usnadňující rozpouštění, emulgátory, dispergátory, smáčedla apod.), stabilizátory, adheziva, hnací plyny pro přípravu aerosolů, synergické přísady apod.

Jako příklady vhodných rozpouštědel lze uvést vodu, jakož i organická rozpouštědla, například uhlovodíky [jako n-hexan, petrol-ether, naftu, ropné frakce (parafiny, kerosen, lehký olej, střední olej, těžký olej apod.), benzen, toluen, xylen apod.], halogenované uhlovodíky [jako methylenchlorid, tetrachlormethan, trichlorethylen, ethylenchlorid, ethylendibromid, chlorbenzen, chloroform apod.], alkoholy [jako methylalkohol, ethylalkohol, propylalkohol a ethylenglykol], ethery [jako ethylether, ethylenoxid a dioxan], etheralkoholy [jako monomethylether ethylenglykolu], ketony [jako aceton a isoforon], estery [jako ethylacetát a amylacetát], amidy [jako dimethylformamid a dimethylacetamid], sulfoxidy [jako dimethylsulfoxid apod.] atd.

Jako příklady vhodných plnidel nebo nosičů se uvádějí anorganické práškové pevné látky, například síra, hašené vápno, hořečnaté vápno, sádra, uhlíčitán vápenatý, křemelina, perlit, pemza, kalcit, diatomit, amorfni kysličník křemičitý, kysličník hlinitý, zeolit, minerální hlinky (například pyrofylit, masstek, montmorillonit, beidellit, vermikulit, kaolinit a slída), rostlinné práškové pevné materiály, například obilní moučky, škrob, upravený škrob, cukr, glukóza, rozmělněné rostlinné stonky a podobně, práškové materiály sestávající ze syntetických pryskyřic, například z fenolové pryskyřice, močovinové pryskyřice a vinylchloridové pryskyřice.

Jako příklady vhodných povrchově aktivních činidel se uvádějí aniontová povrchově aktivní činidla, jako alkylsulfáty (například natriumlaurylsulfát), arylsulfonové kyseliny (například alkylarylsulfonát a natriumalkyl-naftalensulfonát), soli jantarové kyseliny, soli esterů kyseliny sírové s polyethylenglykol-alkylarylethery apod., kationtové tensidy, jako alkylamin, (např. laurylamin, stearyltrimethylamoniumchlorid a alkyldimethylbenzylamoniumchlorid), polyoxyethylenalkylaminy apod., neionogenní tensidy, jako polyoxyethylenglykolethery (například polyoxyethylen-alkylarylether a jeho kondenzační produkty), polyoxyethylenglykolestery (například polyoxyethylenestery mastných kyselin), estery polyolů (například polyoxyethylensorbitan-monolaurát), dále amfolytická povrchově aktivní činidla apod.

Jako příklady dalších pomocných látek se uvádějí stabilizátory, adheziva [například zemědělská mýdla, kaseinové vápno, alginát sodný, polyvinylalkohol, lepidla na bázi vinylacetátu, akrylová lepidla apod.], stabilizátory disperzí [například kasein, tragant, karboxymethylcelulóza a polyvinylalkohol] a synergické přísady.

Sloučeniny podle vynálezu je možno zpracovávat na účinné prostředky nejrůznějšího typu způsoby běžnými pro výrobu agrochemických prostředků. Jako příklady shora zmíněných preparátů je možno uvést emulze, olejové roztoky, smáčitelné prášky, vodné roztoky, suspenze, prášky, granuláty, práškové směsi, kapsle apod.

Herbicidní prostředky podle vynálezu mohou obsahovat shora zmíněné účinné látky v množství od 0,001 do 100 % hmotnostních, s výhodou od 0,005 do 95 % hmotnostních.

Při praktickém použití se obsah účinné látky v aplikovatelných prostředcích obecně pohybuje v rozmezí od 0,01 do 95 % hmotnostních, s výhodou od 0,05 do 60 % hmotnostních. Obsah účinné látky v aplikovaném preparátu se může měnit v závislosti na druhu preparátu, způsobu aplikace, účelu, době a místě aplikace, stupni zamoření plevelem apod.

Je-li to zapotřebí, lze sloučeniny podle vy-

nálezu používat v kombinaci s dalšími agrochemikáliemi, jako insekticidy, fungicidy, akaricidy, nematocidy, antivirovémi činidly, herbicidy, regulátory růstu rostlin, jakož i látkami zlepšujícími strukturu půdy [například s organickými fosfáty, karbamátovými deriváty, dithio(nebo thiol)karbamátovými deriváty, organickými chlorderiváty, dinitroderiváty, organickými sloučeninami síry nebo organokovovými sloučeninami, antibiotiky, substituovanými difenylethery, deriváty močoviny, triazinovými deriváty apod.], nebo/a se strojenými hnojivy apod.

Prostředky a přímo aplikovatelné preparáty obsahující shora uvedené účinné látky podle vynálezu je možno aplikovat metodami obecně používanými pro aplikace agrochemikálií, například postřikem, zamlžováním, poprašováním, rozhozem granulátu, ošetřováním vodních ploch, zálivkou apod., půdy, zkrápěním půdy apod.] atd. Popisované prostředky je možno aplikovat rovněž tzv. ULV-postupem (Ultra-Low-Volume), při němž může aplikovaný prostředek sestávat až ze 100 % účinné látky nebo látek.

Dávkování na jednotku plochy se pohybuje zhruba od 0,1 do 5 kg/ha, s výhodou od 0,2 do 4 kg/ha, počítáno na čistou účinnou látku. Ve zvláštních případech je ovšem možné nebo dokonce i nutné používat dávkování, které je vyšší nebo nižší než shora uvedené rozmezí.

Předmětem vynálezu je herbicidní prostředek obsahující shora uvedenou sloučeninu obecného vzorce I a ředidlo (rozpouštědlo nebo/a plnidlo nebo/a nosič) nebo/a povrchově aktivní činidlo, jakož i popřípadě například stabilizátor, adhezivum a synergist.

Vynález také popisuje způsob ničení plevelů, při němž se sloučenina obecného vzorce I buď samotná nebo v kombinaci s ředidlem (rozpouštědlem nebo/a plnidlem nebo/a nosičem) nebo/a povrchově aktivním činidlem a popřípadě například stabilizátorem, adhezivem a synergistem aplikuje na plevely nebo na jejich životní prostředí.

Účinné prostředky podle vynálezu blíže ilustrují následující příklady, jimiž se však rozsah vynálezu v žádném směru neomezuje.

Příklad 1

Smáčitelný prášek

15 dílů sloučeniny č. 6 podle vynálezu, 80 dílů směsi rozemletého diatomitu a rozemleté hlíny (1 : 5), 2 díly natriumalkylbenzensulfonátu a 3 díly kondenzačního produktu natriumalkylnaftalenusulfonátu a formalinu se rozemele a smísí za vzniku smáčitelného prášku. Tento prášek se ředí vodou a aplikuje se postřikem na plevely nebo/a na jejich životní prostředí.

Příklad 2

Emulze

30 dílů sloučeniny č. 10 podle vynálezu, 55 dílů xylenu, 8 dílů polyoxyethylen-alkyl-fenyletheru a 7 dílů kalcium-alkylbenzen-sulfonátu se za míchání smísí za vzniku emulze, která se ředí vodou a aplikuje se postřikem na plevely nebo/a na jejich životní prostředí.

Příklad 3

Popraš

2 díly sloučeniny č. 25 podle vynálezu se rozemelou a smísí s 98 díly práškové hlíny za vzniku práškového prostředku, který se aplikuje poprašováním na plevely nebo/a na jejich životní prostředí.

Příklad 4

Popraš

1,5 dílu sloučeniny č. 40 podle vynálezu, 0,5 dílu isopropyl-hydrogenfosfátu a 98 dílů práškové hlíny se rozemele a smísí za vzniku práškového prostředku, který se aplikuje poprašováním na plevely nebo/a na jejich životní prostředí.

Příklad 5

Granulát

Smísí se 10 dílů sloučeniny č. 1 podle vynálezu, 30 dílů bentonitu (montmorillonitu), 58 dílů mastku a 2 díly ligninsulfonátu, k směsi se přidá 20 dílů vody a vše se důkladně promísí. Ze vzniklé směsi se pomocí vytlačovacího granulátoru vyrobí granule o velikosti 0,42 až 2 mm, které se vysuší při teplotě 40 až 50 °C. Získaný granulát se aplikuje pohazováním na plevely nebo/a na jejich životní prostředí.

Příklad 6

Granulát

95 dílů granulované minerální hlínky o velikosti částic 0,2 až 2 mm se vnese do otočné míchačky, rovnoměrně se smočí postříkáním roztokem 5 dílů sloučeniny č. 2 podle vynálezu v organickém rozpouštědle a vysuší se při teplotě 40 až 50 °C. Získaný granulát se aplikuje pohazováním na plevely nebo/a na jejich životní prostředí.

V porovnání se známými účinnými látkami s analogickou strukturou se nové sloučeniny podle vynálezu vyznačují tím, že vykazují značně lepší účinek a pouze velice nízkou toxicitu pro teplokrevné. V důsledku

toho představují sloučeniny podle vynálezu velmi cenné látky.

Vynikající vlastnosti a významnou účinnost sloučenin podle vynálezu dokládají výsledky dosažené v následujících testech, v nichž byly sloučeniny podle vynálezu nasazovány proti různým plevelům.

Test 1

Tento test popisuje ošetřování stonků a listů, jakož i půdy v závlahových podmínkách proti ve vodě rostoucím plevelům v kulturách rýže (test v miskách).

Příprava preparátu obsahujícího účinnou látku

Preparát obsahující příslušnou účinnou látku se připraví smísením účinné látky (1 díl hmotnostní), 5 hmotnostních dílů acetonu jako nosiče a 1 hmotnostního dílu emulgátoru, za vzniku emulze. Určené množství tohoto preparátu se pak k aplikaci zředí vodou.

Provedení testu

Wagnerovy misky o ploše 2 dm² se naplní půdou pro pěstování rýže a přesází se do nich sazenice rýže (odrůda Kinmaze) ve stadiu 2 až 3 listů (výška rostlin cca 10 cm). Do každé misky se zasází 2 sazenice. Misky se pak inokulují semeny ježatky kuří nohy (*Echinochloa crus-galli* Beauv. var.), *Cyperus iria* L., *Monochoria vaginalis* Presl., *Scirpus juncoides* Roxburgh var., a širokolistých plevelů, jakož i odřezky *Eleocharis acicularis* L. a hlízkami *Cyperus serotinus* Rottboel a *Sagittaria pygmaea* Miq. a misky se udržují ve vlhku. Poté, kdy rostliny ježatky kuří nohy (*Echinochloa crus-galli* Beauv. var.) dorostou zhruba do stadia 2 listů (7 až 9 dnů po inokulaci), zaplaví se misky vodou (výška vodního sloupce cca 6 cm) a do této vody se odpipetuje předem určené množství každé z testovaných sloučenin podle vynálezu ve formě emulze. V průběhu 2 dnů po ošetření se voda opět stahuje rychlostí 2 až 3 cm vodního sloupce denně, načež se nadále udržuje v miskách výška vodního sloupce zhruba 3 cm. Za 4 týdny po chemickém ošetření se za pomoci dále uvedené stupnice 0 až 5 vyhodnotí herbicidní účinek a stupeň fytotoxicity.

Vyhodnocení účinku se provádí na základě stupně zničení plevelů v porovnání se stavem na neošetřené ploše, a to za pomoci následující stupnice:

- 5 95% nebo vyšší zničení (vyhubení)
- 4 80% až 95% zničení
- 3 50 až 80% zničení
- 2 30 až 50% zničení
- 1 10 až 30% zničení

0 nižší než 10% zničení
(bez účinku)

0 nižší než 10% zničení (bez účinku)

Fytotoxicita pro rostliny rýže se vyhodnocuje v porovnání se stavem rostlin na neošetřené ploše, a to za pomoci následující stupnice:

5 90 % nebo více (zničení)

4 50 až 90 %

3 30 až 50 %

2 10 až 30 %

1 méně než 10 %, ne však 0

0 0 % (žádná fytotoxicita)

Dosažené výsledky jsou uvedeny v následující tabulce 1:

Tabulka 1

sloučenina číslo	spotřeba účinné látky (kg/ha)	herbicidní účinek na plevely								fyto- toxicita rýže
		A	B	C	D	E	F	G	H	
1	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
2	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
3	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
4	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
5	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
6	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
7	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
8	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
9	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
10	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
12	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
15	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
16	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
17	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
18	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
19	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
20	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
21	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
22	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
23	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
24	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
25	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
26	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
27	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
28	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
30	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
31	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
32	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
33	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
34	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
35	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
36	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
37	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
38	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
39	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
40	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
41	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
43	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
44	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
45	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
46	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
47	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
50	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
51	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
52	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
53	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
54	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
55	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
56	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0
57	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0

sloučenina číslo	spotřeba účinné látky (kg/ha)	A	B	herbicidní účinek na plevely						H	fyto- toxická rýže
				C	D	E	F	G			
60	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0	
62	2,0	5	5	5	5	5	5	5	5	0	
srovnávací látko [a]	4,0	1	0	1	0	1	2	0	2	0	

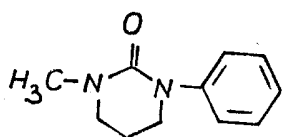
Poznámky:

1. Čísla sloučenin odpovídají číslům uvedeným v následující tabulce 2.

2. Symboly A, B, C, D, E, F, G a H označují následující plevely:

- A *Echinochloa crus-galli* Beauv. var.
- B *Eleocharis acicularis* L.
- C *Cyperus iria* L.
- D *Scirpus juncoides* Roxburgh var.
- E *Monochoria vaginalis* Presl.
- F širokolisté plevely (například *Lindernia procumbens* Philcox, *Rotala indica* Koehne, *Elatine triandra* Schk.)
- G *Cyperus serotinus* Rottboel
- H *Sagittaria pygmaea* Miq.

3. Srovnávací látkou [a] je sloučenina vzorce

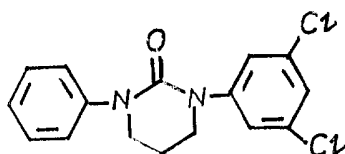


v Chemical Abstracts, sv. 57, 9860a, 1968.

Výsledky dalších pokusů, prováděných analogickým způsobem jako shora popsany test, potvrzují, že sloučeniny č. 11, 13, 14, 29, 42, 58, 59 a 61 vykazují vynikající herbicidní účinnost (100% zničení plevelů při aplikaci účinné látky v dávce 20 kg/ha), aniž by byly pro rýži v jakékoli míře fyto-toxické.

Způsob výroby sloučenin podle vynálezu ilustrují následující příklady provedení, jimiž se však rozsah vynálezu v žádném směru neomezuje.

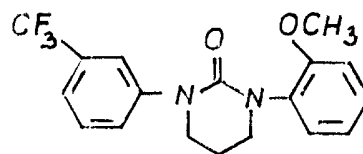
Příklad 1



(sloučenina č. 1)

15,1 g N-3-hydroxypropylanilinu se rozpustí v 8 ml chloroformu a k tomuto roztoku se při teplotě nejvýše 30 °C přidá roztok 18,8 g 3,5-dichlorofenylisokyanátu ve 30 ml chloroformu. Probíhající reakce je mírně exotermní, takže se reakční směs v případě potřeby chladí. Výsledná směs se nějakou dobu míchá při teplotě místnosti a pak se k ukončení tvorby močoviny 30 minut zahřívá k varu pod zpětným chladičem. Reakční směs se ochladí na teplotu 10 °C nebo na teplotu nižší a po přidání několika kapek pyridinu se k ní při teplotě nejvýše 10 °C přidá 14,3 g thionylchloridu. Reakční směs se nějakou dobu míchá při teplotě místnosti a po odeznění vývoje plynu se ještě další hodinu zahřívá k varu pod zpětným chladičem. Nadbytek thionylchloridu a chloroformu se odpaří za sníženého tlaku a surový chlorid, zbývající jako odparek, se rozpustí v 50 ml ethanolu. K tomuto roztoku se přidá roztok 11,2 g hydroxidu draselného ve 40 ml ethanolu a směs se za intenzivního míchání 2 hodiny zahřívá k varu pod zpětným chladičem. Po ukončení reakce se většina ethanolu odpaří za sníženého tlaku a zbytek se vnese do vody, přičemž se vysráží žádaný produkt ve formě krystalu. Po překrystalování z methanolu se získá 27,3 g 1-[3,5-dichlorofenyl]-3-fenyltetrahydro-2-pyrimidinonu o teplotě tání 128 až 129 °C.

Příklad 2

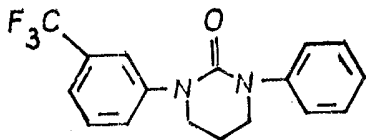


(sloučenina č. 2)

23,8 g N-3-chlorpropyl-3-trifluormethylanilinu se rozpustí ve 150 ml toluenu, k roztoku se přidá 14,9 g 2-methoxyfenylisokyanátu a směs se 3 hodiny zahřívá za míchání na 50 až 60 °C. Výsledná směs se ochladí na 30 °C, přidá se k ní katalytické množství tetrabutylamoniumbromidu a za intenzivního míchání se k ní pak přidá 25 g 50% vodného roztoku hydroxidu sodného. Po skončeném přidávání se reakční směs za míchání zahřeje na 50 stupňů Celsia, pak se nechá zchladnout na

teplotu místnosti, vodná vrstva se oddělí a toluenová vrstva se promyje vodou. Po odpaření toluenu za sníženého tlaku se získá 26,3 g žádaného 1-(2-methoxyfenyl)-3-(3-trifluormethyl)tetrahydro-2-pyrimidinonu ve formě bezbarvých krystalů o teplotě tání 97 až 98 °C.

Příklad 3

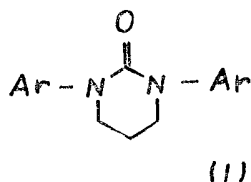


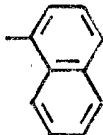
(sloučenina č. 3)

29,4 g 1-(3-trifluormethylanilino)-3-anilino-2-propionu se rozpustí ve 150 ml toluenu, přidá se 22,2 g triethylaminu, roztok se ochladí na 0 °C a při teplotě 0 až 5 °C se k němu přikape roztok 10,9 g trichlormethylchlorformiátu ve 20 ml toluenu. Po skončení přidávání se směs 3 hodiny míchá při teplotě místnosti, reakční směs se promyje 1% kyselinou chlorovodíkovou, 1% vodným roztokem hydroxidu sodného a vodou, vysuší se a toluen se odpaří za sníženého tlaku. Získá se 25,0 g žádaného 1-fenyl-3-(3-trifluormethylfenyl)tetrahydro-2-pyrimidinonu o teplotě tání 101 až 103 °C.

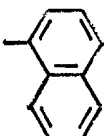
Analogickým způsobem jako v předcházejících příkladech se vyrobí rovněž sloučeniny shrnuté do následující tabulky II:

Tabulka 2



sloučenina číslo	Ar	teplota tání (°C)
4	3—F—Ph	Ph 116 — 118,5
5	3—Cl—Ph	Ph 116 — 117
6	3—Br—Ph	Ph 117 — 118
7	3—CH ₃ —Ph	Ph 78 — 79
8	3—CH ₃ O—Ph	Ph 110 — 111
9	3—iso—C ₃ H ₇ —Ph	Ph 92 — 93,5
10	3—Ph—O—Ph	Ph 101 — 104
11	3—NO ₂ —Ph	Ph 131,5 — 132,5
12	3—NC—Ph	Ph 133 — 135
13	$\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ 3\text{—CH}_3\text{C—Ph} \end{array}$	Ph 118 — 121
14	$\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ 3\text{—C}_2\text{H}_5\text{OC—Ph} \end{array}$	Ph 111 — 112
15	3—CF ₃ —Ph	 118,5 — 120
16	3—F—Ph	3—CH ₃ —Ph 115 — 117
17	3—Cl—Ph	2—Cl—Ph 122 — 123,5
18	3—Cl—Ph	3—Cl—Ph 170,5 — 171,5
19	3—Cl—Ph	4—Cl—Ph 162,5 — 163,5
20	3—Cl—Ph	2—CH ₃ —Ph 101 — 102
21	3—Cl—Ph	3—CH ₃ —Ph 145 — 147,5
22	3—Cl—Ph	4—CH ₃ —Ph 167 — 169,5
23	3—Cl—Ph	2—CH ₃ O—Ph 117 — 118
24	3—Cl—Ph	3—CH ₃ O—Ph 99 — 100
25	3—Cl—Ph	4—CH ₃ O—Ph 157 — 158
26	3—Cl—Ph	3—NO ₂ —Ph 137 — 138,5

tabulka 2 — pokračování

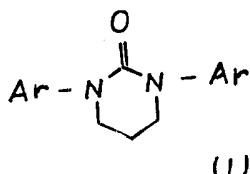
sloučenina číslo	Ar	teplota tání (°C)
27	3-Cl-Ph	2-CF ₃ -Ph 113 — 114
28	3-Cl-Ph	3-CF ₃ -Ph 143,5 — 145
29	3-Cl-Ph	4-CF ₃ -Ph 143,5 — 145
30	3-Br-Ph	3-CF ₃ -Ph 154 — 155
31	3-CH ₃ -Ph	3-CF ₃ -Ph 99,5 — 100,5
32	3-CH ₃ -Ph	4-CH ₃ -Ph 117 — 118,5
33	3-CH ₃ -Ph	4-CH ₃ -Ph 115,5 — 116,5
34	3-CH ₃ O-Ph	3-CH ₃ O-Ph 90 — 93
35	3-CH ₃ O-Ph	3-CF ₃ -Ph 123 — 124,5
36	3-NO ₂ -Ph	2-CH ₃ -Ph 127 — 130
37	3-NC-Ph	3-CF ₃ -Ph 140,5 — 143
38	3-CF ₃ -Ph	2-Cl-Ph 118 — 121
39	3-CF ₃ -Ph	4-Cl-Ph 126,5 — 127,5
40	3-CF ₃ -Ph	3-CH ₃ -Ph 119 — 120
41	3-CF ₃ -Ph	3-CH ₃ -Ph 157 — 160
42	3-CF ₃ -Ph	4-iso-C ₃ H ₇ -Ph 133 — 134
43	3-CF ₃ -Ph	4-CH ₃ O-Ph 128 — 130
44	3-CF ₃ -Ph	3-CF ₃ -Ph 143 — 146
45	2,5-Cl ₂ -Ph	Ph 127 — 128
46	3,4-Cl ₂ -Ph	Ph 132 — 133
47	3,5-(CH ₃) ₂ -Ph	Ph 115 — 117
48	3,4-(CH ₃ O) ₂ -Ph	Ph 120 — 122
49	3-Cl,4-CF ₃ -Ph	Ph 139 — 140,5
50	3,5-(CF ₃) ₂ -Ph	Ph 176 — 178
51	3-Cl-Ph	3,5-Cl ₂ -Ph 117 — 118
52	3-CF ₃ -Ph	3,5-Cl ₂ -Ph 94 — 95,5
53	3-CF ₃ -Ph	2,6-(CH ₃) ₂ -Ph 113 — 114
54	3-CF ₃ -Ph	3,4-(CH ₃) ₂ -Ph 165 — 166,5
55	3-CF ₃ -Ph	3-Cl,4-CF ₃ -Ph 124 — 125
56	3,4-Cl ₂ -Ph	2-CH ₃ -Ph 146 — 147,5
57	2,4,5-Cl ₃ -Ph	Ph 174 — 175
58	3-CF ₃ -Ph	2,4,5-Cl ₃ -Ph 147 — 150
59	3,5-(CH ₃ O) ₂ -Ph	Ph 95,5 — 96,5
60	3-Ph-O-Ph	3-CF ₃ -Ph 101 — 102
61	3,5-Cl ₂ -Ph	2-CH ₃ O-Ph 160 — 161
62		Ph 177 — 178

Legenda:

Symbol Ph označuje fenylovou skupinu

PŘEDMĚT VYNÁLEZU

1. Herbicidní prostředek, vyznačující se tím, že jako účinnou látku obsahuje alespoň jeden substituovaný tetrahydropyrimidinonový derivát obecného vzorce I



ve kterém

jednotlivé symboly Ar mohou být stejné nebo rozdílné a znamenají vždy α -naftylou skupinu nebo zbytek vzorce



kde

X znamená atom halogenu, alkylovou skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku, alkoxy skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku, nitroskupinu, kyano skupinu, alkylkarbonylovou skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku v alkylové části, alkoxykarbonylovou skupinu s 1 až 4 atomy uhlíku v alkoxylové části, trifluormethylovou skupinu nebo fenoxyskupinu, přičemž jsou-li přítom-

ny dva nebo tři substituenty ve významu symbolu X, mohou být stejné nebo rozdílné, a n je číslo o hodnotě 0, 1, 2 nebo 3.

2. Způsob výroby účinných látek obecného vzorce I podle bodu 1, vyznačující se tím, že se sloučenina obecného vzorce IV



ve kterém

Ar má shora uvedený význam, a Y představuje atom halogenu,

nechá reagovat s isokyanátem obecného vzorce III



ve kterém

Ar má shora uvedený význam, přičemž jednotlivé zbytky ve významu symbolů Ar mohou být stejné nebo rozdílné, a na výsledný produkt se působí hydroxidem alkalického kovu.