



(51) Internationale Patentklassifikation 6 :

C07D 249/12, 413/04, 405/04, A01N
43/653

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 96/18618

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum: 20. Juni 1996 (20.06.96)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP95/04759

(22) Internationales Anmeldedatum: 4. Dezember 1995 (04.12.95)

(30) Prioritätsdaten:

P 44 44 741.8	15. Dezember 1994 (15.12.94)	DE
195 31 152.3	24. August 1995 (24.08.95)	DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER
AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen
(DE). NIHON BAYER AGROCHEM K.K. [JP/JP]; 10-8,
Takanawa 4-chome, Minato-ku, Tokyo 108 (JP).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LINKER, Karl-Heinz
[DE/DE]; Albert-Schweitzer-Strasse 3, D-51377 Lev-
erkusen (DE). FINDEISEN, Kurt [DE/DE]; Dünfelder
Strasse 28, D-51375 Leverkusen (DE). SCHALLNER,
Otto [DE/DE]; Noldeweg 22, D-40789 Monheim (DE).
LENDER, Andreas [DE/DE]; Lüneburger Strasse 15,
D-21376 Salzhausen (DE). SANTEL, Hans-Joachim
[DE/DE]; Grünstrasse 9a, D-51371 Leverkusen (DE).
DOLLINGER, Markus [DE/DE]; Burscheider Strasse 154b,
D-51381 Leverkusen (DE). YANAGI, Akihiko [JP/JP];
214-1, Oyama, Oyamashi, Tochigi (JP). GOTO, Toshio
[JP/JP]; 214-18, Koganei, Kokubunji-machi, Tochigi (JP).(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).(81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ,
FI, HU, JP, KR, KZ, LK, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SK,
UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD,
TG).

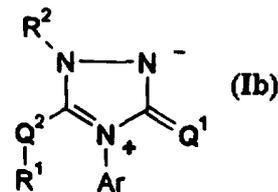
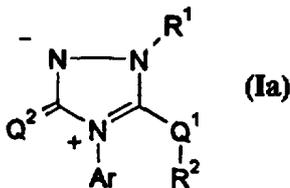
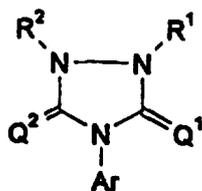
Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen
Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen
eintreffen.

(54) Title: 3-ARYL-1,2,4-TRIAZOLE DERIVATIVES WITH HERBICIDAL PROPERTIES

(54) Bezeichnung: 3-ARYL-1,2,4-TRIAZOLDERIVATE MIT HERBIZIDEN EIGENSCHAFTEN



(57) Abstract

The invention concerns novel substituted N-aryl nitrogenous heterocycles of general formula (I) and associated isomeric compounds of formulae (Ia) and (Ib), in which Q¹, Q², R¹, R² and Ar have the meanings indicated in the description. The invention also concerns methods for manufacturing said compounds and their use as herbicides.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft neue substituierte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (I) sowie die zu den substituierten N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der Formel (I) isomeren Verbindungen der Formeln (Ia) und (Ib), in welchen Q¹, Q², R¹, R² und Ar die in der Beschreibung genannten Bedeutungen haben, Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AT	Österreich	GA	Gabon	MR	Mauretanien
AU	Australien	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BB	Barbados	GE	Georgien	NE	Niger
BE	Belgien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BJ	Benin	IE	Irland	PL	Polen
BR	Brasilien	IT	Italien	PT	Portugal
BY	Belarus	JP	Japan	RO	Rumänien
CA	Kanada	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CG	Kongo	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KR	Republik Korea	SI	Slowenien
CI	Côte d'Ivoire	KZ	Kasachstan	SK	Slowakei
CM	Kamerun	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CN	China	LK	Sri Lanka	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
ES	Spanien	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	ML	Mali	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MN	Mongolei	VN	Vietnam

3-ARYL-1,2,4-TRIAZOLDERIVATE MIT HERBIZIDEN EIGENSCHAFTEN

5

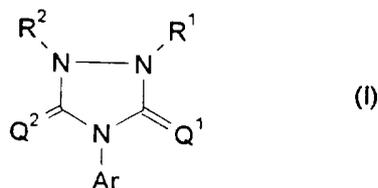
Die Erfindung betrifft neue substituierte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

10

Es ist bekannt, daß bestimmte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. EP 11693, DE 2952685, DE 3026739, US 4276420, US 4326878, WO 94/14817, EP 75267 und EP 210137). Die aus den angegebenen Patentanmeldungen bekannten Verbindungen haben jedoch keine nennenswerte Bedeutung erlangt.

15

Es wurden nun die neuen substituierten N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (I) gefunden,



20

in welcher

Q¹ für Sauerstoff oder Schwefel steht,

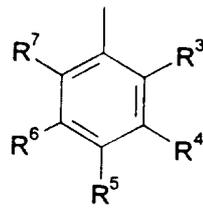
Q² für Sauerstoff oder Schwefel steht,

25

R¹ für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkinylthio, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl oder Alkinyloxycarbonyl substituiertes Alkyl steht,

- R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkynyl steht,
- 5 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl-carbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkynylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxy-carbonyl oder Alkinyloxy-carbonyl steht,
- 10 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano oder Carboxy substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylcarbonyl steht,
- 15 R² für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkynylthio, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxy-carbonyl oder Alkinyloxy-carbonyl substituiertes Alkyl steht,
- R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, substituiertes Alkenyl oder Alkynyl steht,
- 20 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl-carbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkynylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxy-carbonyl oder Alkinyloxy-carbonyl steht,
- 25 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano oder Carboxy substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylcarbonyl steht, und
- Ar für die nachstehend definierte substituierte, monocyclische oder bicyclische Aryl- oder Heteroaryl-Gruppierung steht,

3



worin

5 R³ für Wasserstoff oder Halogen steht,

R⁴ für Wasserstoff oder Halogen steht,

10 R⁵ für Cyano, Carboxy, Chlorcarbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Hydroxy, Halogen oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkoxy oder Alkoxy carbonyl steht,

R⁶ für die nachstehende Gruppierung steht,

15 -A¹-A²-A³

in welcher

20 A¹ für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Aryl, Alkylcarbonyl, Arylcarbonyl, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl steht,

25 A¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkandiyl, Alkendiyl, Azaalkendiyl, Alkendiyl, Cycloalkandiyl, Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,

4

- A² für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Alkyl, Alkoxy, Aryl, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl steht,
- 5 A² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkandiyl, Alkendiyl, Azaalkendiyl, Alkendiyl, Cycloalkandiyl, Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,
- 10 A³ für Wasserstoff steht mit der Maßgabe, daß in diesem Fall A¹ und/oder A² nicht für eine Einfachbindung stehen
- 15 A³ weiterhin für Hydroxy, Mercapto, Amino, Cyano, Isocyano, Thiocyanato, Nitro, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Sulfo, Chlorsulfonyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkoxy-carbonyl oder Dialkoxy(thio)phosphoryl steht,
- 20 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenylthio, Alkenylamino, Alkylidenamino, Alkenyloxy-carbonyl, Alkynyl, Alkinyloxy, Alkynylthio, Alkynylamino oder Alkinyloxy-carbonyl steht,
- 25 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Alkyl und/oder Alkoxy-carbonyl substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkyloxy, Cycloalkylalkyl, Cycloalkylalkoxy, Cycloalkylidenamino, Cycloalkyloxy-carbonyl oder Cycloalkylalkoxycarbonyl steht,
- 30 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Carboxy, Halogen, Alkyl, Halogenalkyl, Alkyloxy, Halogenalkyloxy und/oder Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl, Aryloxy, Aralkyl, Arylalkoxy, Aryloxy-carbonyl oder Arylalkoxycarbonyl steht,

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls ganz oder teilweise hydriertes Pyrrolyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Triazolyl, Furyl, Oxiranyl, Oxetanyl, Dioxolanyl, Thienyl, Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxa-

5 diazolyl, Thiadiazolyl, Pyridinyl, Pyrimidinyl, Triazinyl, Pyrazolylalkyl, Furylalkyl, Thienylalkyl, Oxazolylalkyl, Isoxazolylalkyl, Thiazolylalkyl, Pyridinylalkyl, Pyrimidinylalkyl, Pyrazolylalkoxy, Furylalkoxy, für Per-

hydropyranylalkoxy oder Pyridylalkoxy steht, und

R⁷ für Wasserstoff oder Halogen steht,

10 oder jeweils zwei benachbarte Reste - R³ und R⁴, R⁴ und R⁵, R⁵ und R⁶ oder R⁶ und R⁷ - zusammen für eine der nachstehenden Gruppierungen stehen

15 -Q³-CQ⁴-, -Q³-CQ⁴-Q⁵-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-, -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-, -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -Q³-C(R⁸)=C(R⁸)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-, -C(R⁸)=N-, -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-,
 20 -Q³-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -C(R⁸)=N-N(R¹⁰)-,
 25 -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-N(R¹⁰)-, Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-

wobei

30 Q³, Q⁴ und Q⁵ gleich oder verschieden sind und jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen,

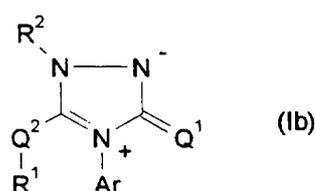
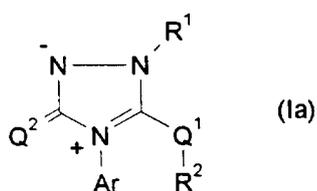
R⁸ und R⁹ gleich oder verschieden sind und einzeln für Wasserstoff, Halogen oder Alkyl stehen oder zusammen für Alkandiyl stehen, und

5 R^{10} für Wasserstoff, Hydroxy, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, Alkoxy, Alkyl-carbonyl oder Alkoxy-carbonyl substituiertes Alkyl, Alkyl-carbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylsulfonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkyl-alkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkoxy oder Alkenyloxy, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy oder Halogenalkoxy substituiertes Arylalkyl oder Arylalkoxy steht,

10

mit der Maßgabe, daß R^1 und R^2 nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen können und die vorbekannten Verbindungen 4-(3,4-Dichlor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on und 4-(4-Chlor-3-trifluormethyl-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on (vgl. DE 2952685 und DE 3026739) durch Disclaimer ausge-
 15 nommen sind.

Es wurden ferner auch die zu den substituierten N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der Formel (I) isomeren Verbindungen der Formeln (Ia) und (Ib) gefunden,



in welcher

25 Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar die oben angegebenen Bedeutungen haben.

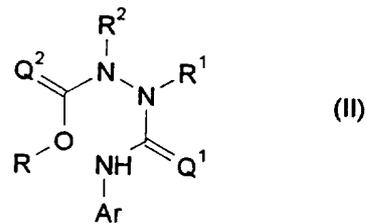
25

Man erhält die neuen substituierten N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (I) und gegebenenfalls die Verbindungen der Formeln (Ia) oder (Ib), wenn man

30

(a) (Thio)Semicarbazid-Derivate der allgemeinen Formel (II)

7



in welcher

5 Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar die oben angegebenen Bedeutungen haben und

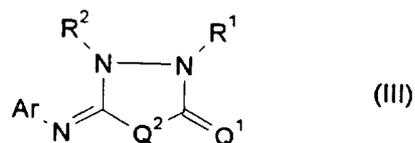
R für Alkyl steht,

10 gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels cyclisierend kondensiert und gegebenenfalls im Anschluß daran im Rahmen der Substituentendefinition auf übliche Weise elektrophile oder nucleophile Substitutionsreaktionen durchführt,

oder wenn man

15

(b) Aryliminoheterocyclen der allgemeinen Formel (III)



20 in welcher

Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar die oben angegebenen Bedeutungen haben,

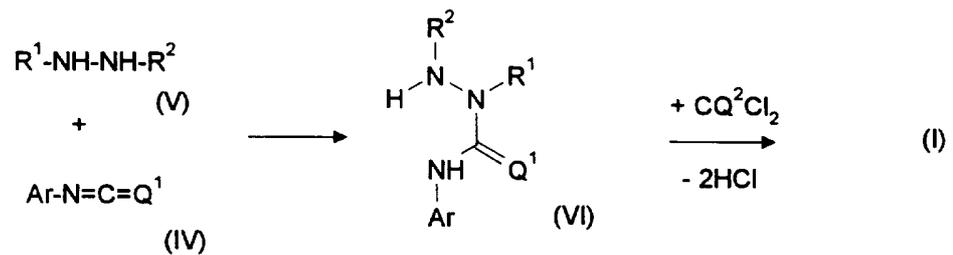
- oder Verbindungen der Formel (Ia) oder (Ib) - oben -

25

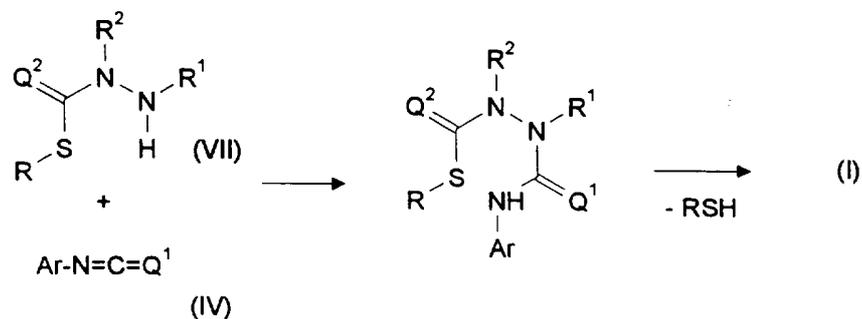
gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels thermisch ("pyrolytisch") isomerisiert.

Die Verbindungen der Formel (I) können prinzipiell auch wie im Folgenden schematisch dargestellt synthetisiert werden:

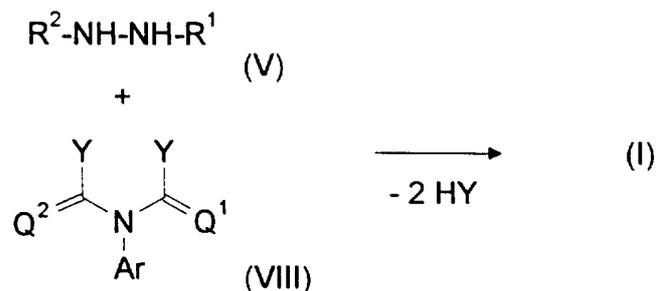
- 5 (c) Umsetzung von Aryliso(thio)cyanaten der Formel (IV) mit Hydrazinen der Formel (V) zu Aryl(thio)semicarbaziden der Formel (VI) und deren Umsetzung mit (Thio)Phosgen:



- 10 (d) Umsetzung von Aryliso(thio)cyanaten der Formel (IV) mit S-Alkyldithiocarbazaten der Formel (VII) und anschließende cyclisierende Kondensation:

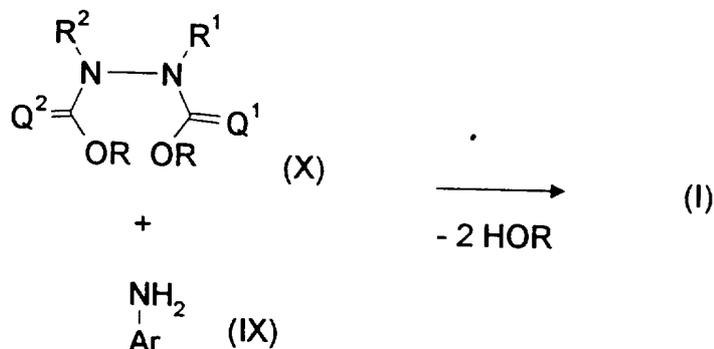


- 15 (e) Umsetzung von N,N-Bis-chlorcarbonyl- oder N,N-Bis-phenoxy-carbonyl-arylaminen der Formel (VIII) - Y: Cl oder OC₆H₅ - mit Hydrazinen der Formel (V):



9

(f) Umsetzung von Arylaminen der Formel (IX) mit Hydrazindicarbonsäureestern der Formel (X):



5

Die Verbindungen der allgemeinen Formel (I) können auch nach weiteren üblichen Methoden in andere Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß obiger Definition umgewandelt werden, beispielsweise durch übliche Umwandlungen von Carbonsäure-Gruppierungen oder deren Derivaten (z.B. R^5 : $\text{COOH} \rightarrow \text{COCl}$, $\text{COOH} \rightarrow \text{COOCH}_3$, $\text{COCl} \rightarrow \text{CONH}_2$, $\text{COOCH}_3 \rightarrow \text{CONH}_2$, $\text{CONH}_2 \rightarrow \text{CN}$, $\text{CN} \rightarrow \text{CSNH}_2$), durch Alkylierungsreaktionen (z.B. R^1 : $\text{H} \rightarrow \text{CH}_3$ oder CHF_2) oder durch Oxidation oder Schwefelung (z.B. Q^1 : $\text{O} \rightarrow \text{S}$ oder $\text{S} \rightarrow \text{O}$) - vgl. auch die Herstellungsbeispiele.

10

15

Die neuen substituierten N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (I) zeichnen sich durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

In den Definitionen sind die gesättigten oder ungesättigten Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl jeweils geradkettig oder verzweigt.

20

Halogen steht im allgemeinen für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Fluor oder Chlor.

25

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formeln (I), (Ia) und (Ib), in welchen

Q^1 für Sauerstoff oder Schwefel steht,

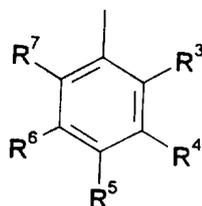
- Q² für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- 5 R¹ für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₃-C₄-Alkenyloxy, C₃-C₄-Alkinyloxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₃-C₄-Alkenylthio, C₃-C₄-Alkinylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₄-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₄-Alkinyloxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl steht,
- 10 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl steht,
- 15 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₆-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkinyl-carbonyl, C₁-C₆-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₆-Alkinyloxy-carbonyl steht,
- 20 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder Carboxy substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-carbonyl steht,
- 25 R² für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₃-C₄-Alkenyloxy, C₃-C₄-Alkinyloxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₃-C₄-Alkenylthio, C₃-C₄-Alkinylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₄-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₄-Alkinyloxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl steht,
- 30 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinyl steht,
- R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₆-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkinyl-carbonyl, C₁-

11

C₆-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₆-Alkinyloxy-carbonyl steht,

5 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder Carboxy substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-carbonyl steht, und

10 Ar für die nachstehend definierte substituierte, monocyclische oder bicyclische Aryl- oder Heteroaryl-Gruppierung steht,



worin

15 R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Brom steht,

R⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Brom steht,

20 R⁵ für Cyano, Carboxy, Chlorcarbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Hydroxy, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl, Alkoxy oder Alkoxy-carbonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen steht,

R⁶ für die nachstehende Gruppierung steht,

25 -A¹-A²-A³

in welcher

- 5 A¹ für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, C₃-C₄-Alkenyl, C₃-C₄-Alkinyl, C₁-C₄-Alkoxy, Phenyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, Phenylcarbonyl, C₁-C₄-Alkyl-sulfonyl oder Phenylsulfonyl steht,
- 10 A¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes C₁-C₆-Alkandiyl, C₂-C₆-Alkendiyl, C₂-C₆-Azaalkendiyl, C₂-C₆-Alkendiyl, C₃-C₆-Cycloalkandiyl, C₃-C₆-Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,
- 15 A² für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, Phenyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl oder Phenylsulfonyl steht,
- 20 A² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes C₁-C₆-Alkandiyl, C₂-C₆-Alkendiyl, C₂-C₆-Azaalkendiyl, C₂-C₆-Alkendiyl, C₃-C₆-Cycloalkandiyl, C₃-C₆-Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,
- 25 A³ für Wasserstoff steht, mit der Maßgabe, daß in diesem Fall A¹ und/oder A² nicht für eine Einfachbindung stehen,
- 30 A³ weiterhin für Hydroxy, Mercapto, Amino, Cyano, Isocyano, Thiocyanato, Nitro, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Sulfo, Chlorsulfonyl, Fluor, Chlor, Brom steht,
- A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkoxy-carbonyl oder Dialkoxy(thio)-phosphoryl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

- 5 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenylamino, Alkylidenamino, Alkenyloxycarbonyl, Alkynyl, Alkinyloxy, Alkynylamino oder Alkinyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl-, Alkyliden- oder Alkynylgruppen steht,
- 10 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkyloxy, Cycloalkylalkyl, Cycloalkylalkoxy, Cycloalkylidenamino, Cycloalkyloxycarbonyl oder Cycloalkylalkoxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,
- 15 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkyloxy, C₁-C₄-Halogenalkyloxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, Phenyl-oxycarbonyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkoxycarbonyl steht,
- 20 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls ganz oder teilweise hydriertes Pyrrolyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Triazolyl, Furyl, Oxiranyl, Oxetanyl, Dioxolanyl, Thienyl, Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl, Pyridinyl, Pyrimidinyl, Triazinyl, Pyrazolyl-C₁-C₄-alkyl, Furyl-C₁-C₄-alkyl, Thienyl-C₁-C₄-alkyl, Oxazolyl-C₁-C₄-alkyl, Isoxazolyl-C₁-C₄-alkyl, Thiazolyl-C₁-C₄-alkyl, Pyridinyl-C₁-C₄-alkyl, Pyrimidinyl-C₁-C₄-alkyl, Pyrazolylmethoxy, Furylmethoxy, für Perhydropyranyl-methoxy oder Pyridylmethoxy steht, und
- 25 R⁷ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,
- 30

oder jeweils zwei benachbarte Reste - R³ und R⁴, R⁴ und R⁵, R⁵ und R⁶ oder R⁶ und R⁷ - zusammen für eine der nachstehenden Gruppierungen stehen

$-Q^3-CQ^4-$, $-Q^3-CQ^4-Q^5-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-Q^5-$, $-C(R^8,R^9)-CQ^4-$,
 $-C(R^8,R^9)-Q^3-CQ^4-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-$,
 $Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-Q^5-$, $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-$,
5 $-Q^3-C(R^8)=C(R^8)-$, $-C(R^8)=C(R^8)-CQ^4-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-CQ^4-$,
 $-N(R^{10})-C(R^8,R^9)-CQ^4-$, $-C(R^8)=N-$, $-Q^3-CQ^4-C(R^8,R^9)-$,
 $-Q^3-CQ^4-N(R^{10})-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8,R^9)-Q^3-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8)=C(R^8)-N(R^{10})-$,
10 $-C(R^8)=C(R^8)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$,
 $-N(R^{10})-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8)=N-N(R^{10})-$,
 $-Q^3-CQ^4-C(R^8,R^9)-N(R^{10})-$, $Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$

wobei

15

Q^3 , Q^4 und Q^5 gleich oder verschieden sind und jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen,

20

R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind und einzeln für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder C_1 - C_4 -Alkyl stehen oder zusammen für C_2 - C_5 -Alkandiyl stehen, und

25

R^{10} für Wasserstoff, Hydroxy oder für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkyl-carbonyl oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

30

R^{10} weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Alkenyl oder Alkinyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R^{10} weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6

Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 3 Atomen in der Alkylgruppe steht,

5 R^{10} weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkoxy oder Alkenyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht,

10 R^{10} weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy oder C_1 - C_4 -Halogenalkoxy substituiertes Benzyl oder Benzyloxy steht,

15 mit der Maßgabe, daß R^1 und R^2 nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen können und die vorbekannten Verbindungen 4-(3,4-Dichlor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on und 4-(4-Chlor-3-trifluormethyl-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on (vgl. DE 2952685 und DE 3026739) durch Disclaimer ausgenommen sind.

Die Erfindung betrifft insbesondere Verbindungen der Formeln (I), (Ia) und (Ib), in welcher

20 Q^1 für Sauerstoff oder Schwefel steht,

Q^2 für Sauerstoff oder Schwefel steht,

25 R^1 für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht,

30 R^1 weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl steht,

R^1 weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht,

R¹ weiterhin für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Cyclopropyl steht,

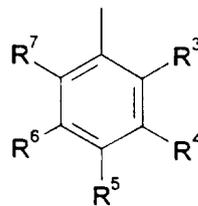
5 R² für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht,

10 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl steht,

R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht,

15 R² weiterhin für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Cyclopropyl steht, und

Ar für die nachstehend definierte substituierte, monocyclische oder bicyclische Aryl- oder Heteroaryl-Gruppierung steht,



20 worin

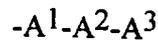
R³ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

25 R⁴ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor oder steht,

R⁵ für Cyano, Thiocarbamoyl, Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy steht,

17

R⁶ für die nachstehende Gruppierung steht,



5 in welcher

10 A¹ für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl steht,

15 A¹ weiterhin für Methylen, Ethan-1,1-diyl, Ethan-1,2-diyl, Propan-1,1-diyl, Propan-1,2-diyl, Propan-1,3-diyl, Ethen-1,2-diyl, Propen-1,2-diyl, Propen-1,3-diyl, Ethin-1,2-diyl, Propin-1,2-diyl oder Propin-1,3-diyl steht,

20 A² für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl oder Phenylsulfonyl steht,

25 A² weiterhin für Methylen, Ethan-1,1-diyl, Ethan-1,2-diyl, Propan-1,1-diyl, Propan-1,2-diyl, Propan-1,3-diyl, Ethen-1,2-diyl, Propen-1,2-diyl, Propen-1,3-diyl, Ethin-1,2-diyl, Propin-1,2-diyl oder Propin-1,3-diyl steht,

A³ für Wasserstoff steht, mit der Maßgabe, daß in diesem Fall A¹ und/oder A² nicht für eine Einfachbindung stehen,

30 A³ weiterhin für Hydroxy, Amino, Cyano, Nitro, Carboxy, Carbamoyl, Sulfo, Fluor, Chlor, Brom steht,

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-

- 5 Butyl, n-, i-, s- oder t-Pentyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, n-, i-, s- oder t-Pentyloxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Dimethoxyphosphoryl, Diethoxyphosphoryl, Dipropoxyphosphoryl oder Diisopropoxyphosphoryl steht,
- 10 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Propenyloxy, Butenyloxy, Propenylamino, Butenylamino, Propylidenamino, Butylidenamino, Propenyloxycarbonyl, Butenyloxycarbonyl, Propinyl, Butinyl, Propinyloxy, Butinyloxy, Propinylamino, Butinylamino, Propinyloxycarbonyl oder Butinyloxycarbonyl steht,
- 15 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropyloxy, Cyclobutyloxy, Cyclopentyloxy, Cyclohexyloxy, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropylmethoxy, Cyclobutylmethoxy, Cyclopentylmethoxy, Cyclohexylmethoxy, Cyclopentylidenamino, Cyclohexylidenamino, Cyclopentyloxycarbonyl, Cyclohexyloxycarbonyl, Cyclopentylmethoxycarbonyl oder Cyclohexylmethoxycarbonyl steht,
- 20
- 25 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methoxycarbonyl und/oder Ethoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Phenylloxy, Benzyl, Phenylethyl, Benzyloxy, Phenylloxycarbonyl, Benzyloxycarbonyl
- 30 steht,

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls ganz oder teilweise hydriertes Pyr-
 rolyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Triazolyl, Furyl, Thienyl, Oxazolyl, Isoxa-
 zolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl, Pyridinyl, Pyrimi-
 5 dinyl, Triazinyl, Pyrazolylmethyl, Furylmethyl, Thienylmethyl, Oxazolyl-
 methyl, Isoxazolylmethyl, Thiazolylmethyl, Pyridinylmethyl, Pyrimidinyl-
 methyl, Pyrazolylmethoxy, Furylmethoxy oder Pyridylmethoxy steht,

R⁷ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

10 oder jeweils zwei benachbarte Reste - R³ und R⁴, R⁴ und R⁵, R⁵ und R⁶ oder
 R⁶ und R⁷ - zusammen für eine der nachstehenden Gruppierungen stehen

15 -Q³-CQ⁴-, -Q³-CQ⁴-Q⁵-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-, -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-,
 -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸)=C(R⁸)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-, -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -C(R⁸)=N-, -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-, -Q³-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 20 -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-N(R¹⁰)-, -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸)=C(R⁸)-N(R¹⁰)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸)=N-N(R¹⁰)-, -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-N(R¹⁰)-,
 25 Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-

wobei

30 Q³, Q⁴ und Q⁵ gleich oder verschieden sind und jeweils für Sauerstoff oder
 Schwefel stehen,

R⁸ und R⁹ gleich oder verschieden sind und einzeln für Wasserstoff, Fluor,
 Chlor, Methyl oder Ethyl stehen oder zusammen für Ethan-1,2-
 diyl (Dimethylen) stehen, und

R¹⁰ für Wasserstoff, Hydroxy oder für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-,s oder t-Butyl steht,

5

R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl steht,

10

R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl steht,

15

R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i- oder s-Butoxy, Propenyloxy oder Butenyloxy steht,

20

R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Benzyl oder Benzyloxy steht,

mit der Maßgabe, daß R¹ und R² nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen können und die vorbekannten Verbindungen 4-(3,4-Dichlor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on und 4-(4-Chlor-3-trifluormethyl-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on (vgl. DE 2952685 und DE 3026739) durch Disclaimer ausgenommen sind.

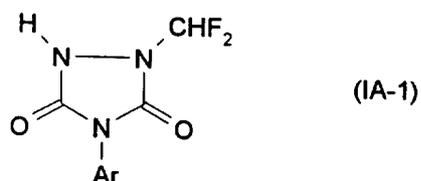
30

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen angegebenen Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zu Herstellung benötigten Ausgangsstoffe bzw. Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen Bereichen bevorzugter Verbindungen, beliebig kombiniert werden.

Beispiele für die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) sind in den nachstehenden Gruppen aufgeführt.

Gruppe 1

5



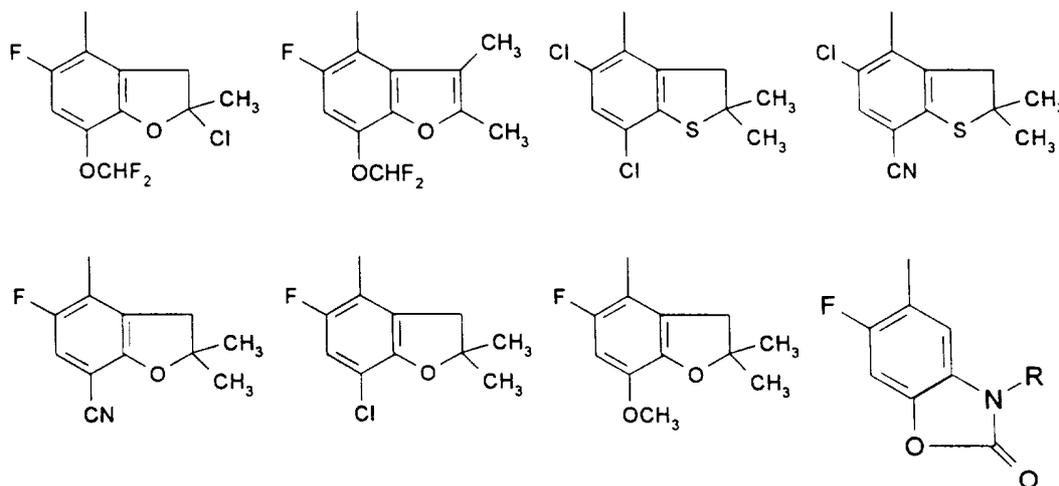
Ar hat hierbei beispielhaft die im Folgenden aufgeführten Bedeutungen:

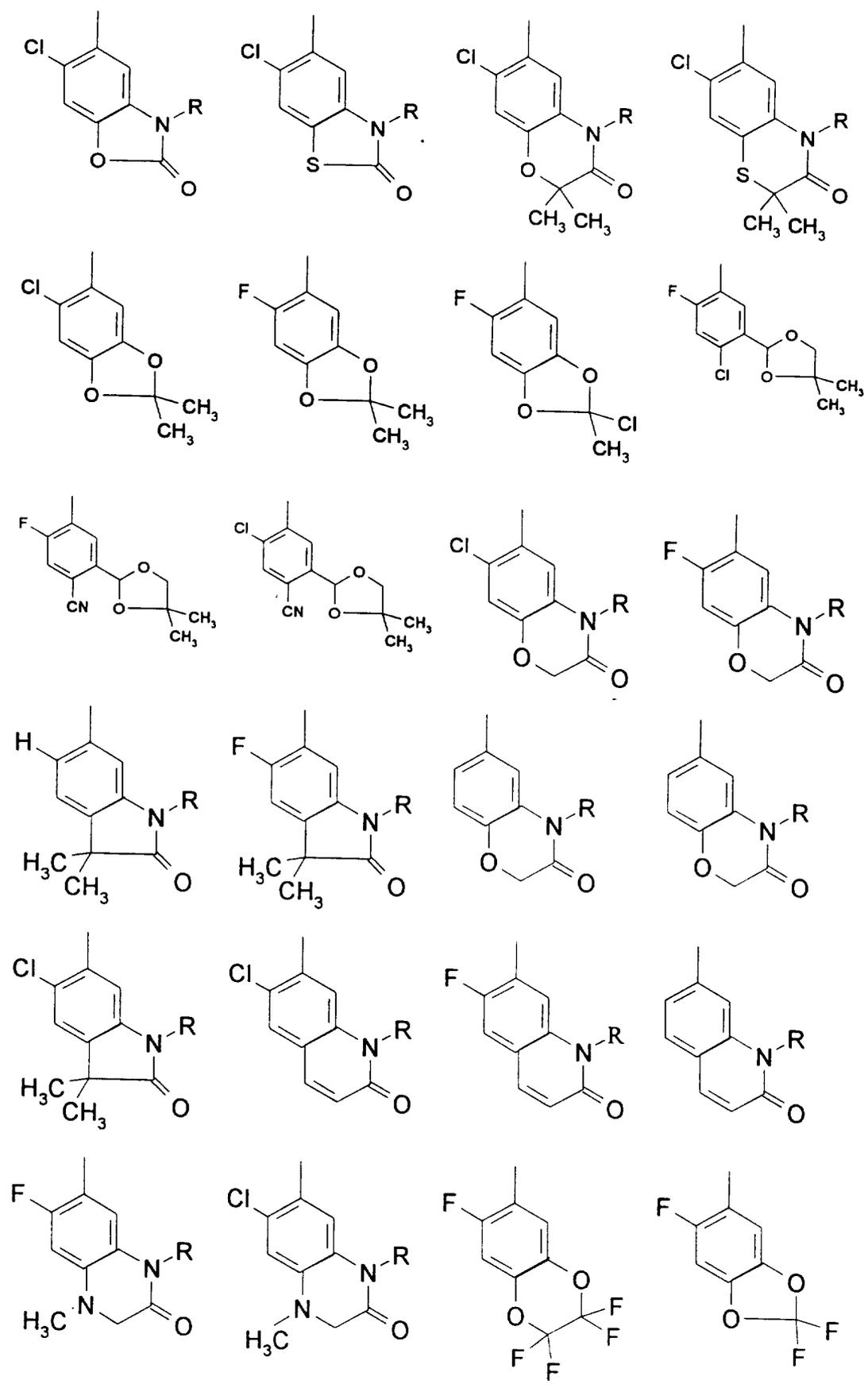
10 2,4-Dichlor-phenyl, 3-Chlor-4-fluor-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-phenyl, 4,5-Difluor-phenyl, 2,4,5-Trichlor-phenyl, 2,4-Dichlor-5-fluor-phenyl, 2-Chlor-4,5-difluor-phenyl, 4-Chlor-2,5-difluor-phenyl, 5-Chlor-2,4-difluor-phenyl, 2-Fluor-5-chlor-4-cyano-phenyl, 2,4,5-Trifluor-phenyl, 2,5-Dichlor-4-cyano-phenyl, 2-Chlor-5-fluor-4-cyano-phenyl, 2-Chlor-4,5-dicyano-phenyl, 2-Chlor-4-fluor-5-cyano-phenyl, 2,5-Difluor-4-cyano-phenyl, 4-Cyano-3-methyl-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-methyl-phenyl, 15 2,4-Dichlor-5-methoxy-phenyl, 2,4-Dichlor-5-ethoxy-phenyl, 2,4-Dichlor-5-n-propoxy-phenyl, 2,4-Dichlor-5-i-propoxy-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-methoxy-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-ethoxy-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-n-propoxy-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-i-propoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methyl-phenyl, 2,4-Dichlor-5-methyl-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-trifluormethyl-phenyl, 4-Fluor-3-trifluor-20 methyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-trifluormethyl-phenyl, 2-Chlor-4-methyl-5-trifluor-methyl-phenyl, 2-Chlor-5-fluor-4-methoxy-phenyl, 2-Fluor-4-methoxy-5-methyl-phenyl, 2,5-Difluor-4-thiocarbamoyl-phenyl, 2-Chlor-4-fluor-5-i-propoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-i-propoxy-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-(2-propinyloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-methyl-2-propinyloxy)-phenyl, 25 2-Fluor-4-chlor-5-(1-methyl-2-propinyloxy)-phenyl, 2-Chlor-4-thiocarbamoyl-5-i-propoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-propenyloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-propenyloxy)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-methylsulfonylamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-ethylsulfonylamino-phenyl, 2-Fluor-4-thiocarbamoyl-5-methylsulfonylamino-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-ethylsulfonylamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-cyclo-30 propylsulfonylamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-i-propylsulfonylamino-phenyl, 2-

Chlor-4-thiocarbamoyl-5-ethylsulfonylamino-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-cyanamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2,2-difluorethylsulfonylamino)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-phenylsulfonylamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-t-butylsulfonylamino-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-methoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-ethoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-ethoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-thiocarbamoyl-5-methoxycarbonyl-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-(N-cyclopropyl-ethylsulfonylamino)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-methyl-2-propinylthio)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methylamino-phenyl, 2-Chlor-4-thiocarbamoyl-5-methoxycarbonylmethyl-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-(N-methyl-ethylsulfonylamino)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-i-propoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-i-propoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(bis-ethylsulfonyl-amino)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(N-methylsulfonyl-ethylsulfonylamino)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-methoxycarbonyl-ethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-ethoxycarbonyl-ethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(1-methoxycarbonyl-ethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(1-ethoxycarbonyl-ethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-cyclopropyloxy-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-dimethylamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-tetrahydrofurylmethoxy-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-tetrahydrofurylmethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-amino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methylaminocarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methylsulfonyloxy-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-difluormethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-methoxycarbonylmethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-ethoxycarbonylmethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methoxycarbonylmethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-ethoxycarbonylmethoxy-phenyl, 4-Cyano-3-(1-methyl-2-propinyl-oxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-dimethylaminocarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-cyanomethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-propenyloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-hydroxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-nitro-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-diethoxyphosphorylamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-chlorosulfonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-formylamino-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-ethoxycarbonyloxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-diethoxyphosphorylmethoxy-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-diethoxyphosphorylmethoxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-diethoxyphosphoryl-ethoxy)-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-(1-diethoxyphosphoryl-ethoxy)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-hydroxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(N,N-diacetyl-amino)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-acetylamino-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-thiocyanato-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-diethylaminooxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-tetrahydrofuryloxy-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-ureido-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-dimethoxymethylenamino-phenyl, 2-Chlor-

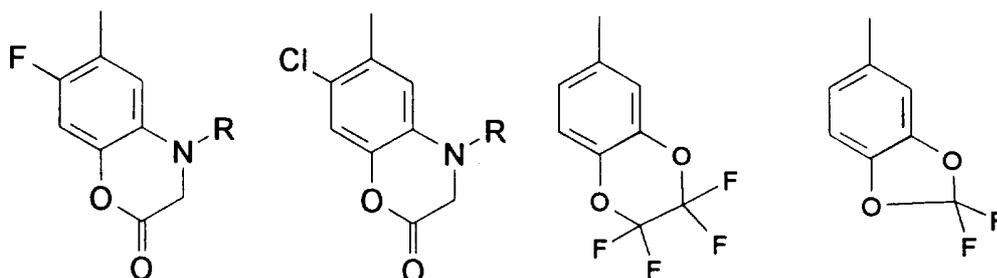
4-cyano-5-ethoxymethylenamino-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-ethoxycarbonyl-
oxy)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-dimethylaminomethylenamino-phenyl, 2-Chlor-4-
cyano-5-(perhydropyran-4-yloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-methoxycarbonyl-
ethyl)-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-(2-methoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-
5-(2-carboxy-2-chlor-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-methoxycarbonyl-
ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-chlor-2-methoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-
4-cyano-5-(2-chlor-2-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-chlor-2-
ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-brom-2-methoxycarbonyl-ethyl)-
phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-brom-2-methoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-
cyano-5-(2-brom-2-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-brom-2-
ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2,3-dibrom-2-methoxycarbonyl-
ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2,3-dibrom-2-methoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-
Fluor-4-cyano-5-(2,3-dibrom-2-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2,3-
dibrom-2-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-s-butoxy-
carbonyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-carbamoyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-
cyano-5-(2-chlor-2-methoxycarbonyl-1-methyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1,2-
dibrom-2-methoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-(2-chlor-2-i-propoxy-
carbonyl-ethyl)-phenyl, 2,4-Dichlor-5-(2-methoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-
cyano-5-(2-carboxy-2-chlor-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-ethylamino-
carbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-allylaminocarbonyl-2-chlor-ethyl)-
phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-methoxycarbonyl-ethenyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-
(2-methoxycarbonyl-ethenyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-ethoxycarbonyl-ethenyl)-
phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-ethoxycarbonyl-ethenyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-
chlor-2-methylaminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-ethyl-
aminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-cyclopropylamino-
carbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-chlor-2-methylaminocarbonyl-ethyl)-
phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-chlor-2-ethylaminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-
chlor-5-(2-chlor-2-cyclopropylaminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-
chlor-2-dimethylaminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-ethyl-
sulfonylaminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-chlor-2-ethylsulfonyl-
aminocarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-carboxy-ethenyl)-phenyl, 2-Fluor-
4-thiocarbamoyl-5-(2-ethylaminocarbonyl-ethenyl)-phenyl, 2,6-Difluor-4-cyano-5-i-
propoxy-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-6-fluor-3-i-propoxy-phenyl, 2-Chlor-6-fluor-3-i-

propoxy-4-trifluormethyl-phenyl, 2,6-Dichlor-4-cyano-3-fluor-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-(1-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-carboxy-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(1-ethoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(1-i-propoxycarbonyl-ethyl)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-i-butoxy-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-i-butoxy-phenyl, 2-Chlor-4-cyano-5-(2-methoxy-ethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(2-methoxy-ethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-i-butoxy-phenyl, 4-Hydroxy-4-ethoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-i-propoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-hydroxy-5-i-propoxycarbonyl-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-oxetanyloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-oxetanyloxy-carbonylmethoxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-oxetanyloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(2-chlor-2-propenyloxy)-phenyl, 4-Chlor-2-fluor-5-(2-chlor-2-propenyloxy)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-methoxycarbonylmethylthio-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-ethoxycarbonylmethylthio-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-methoxycarbonylmethylthio-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-ethoxycarbonylmethylthio-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(1-methoxycarbonyl-ethylthio)-phenyl, 2-Fluor-4-chlor-5-(1-ethoxycarbonyl-ethylthio)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-methoxycarbonyl-ethylthio)-phenyl, 2-Fluor-4-cyano-5-(1-ethoxycarbonyl-ethylthio)-phenyl,



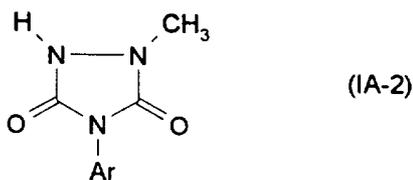


26



R steht hierbei beispielsweise für Wasserstoff, Hydroxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i- oder s-Butyl, Allyl, Propargyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Cyanomethyl, Carboxymethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl, Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl.

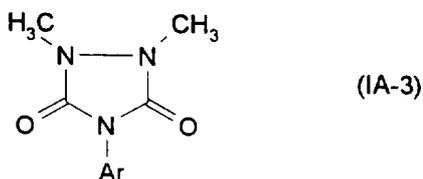
Gruppe 2



10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

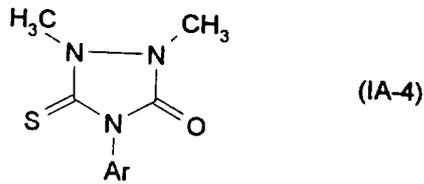
Gruppe 3



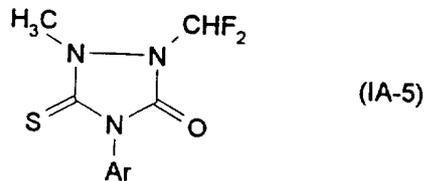
15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

27

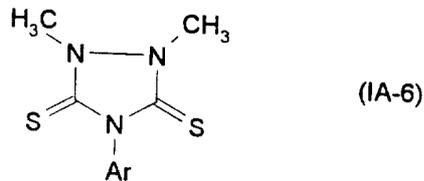
Gruppe 4

5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 5

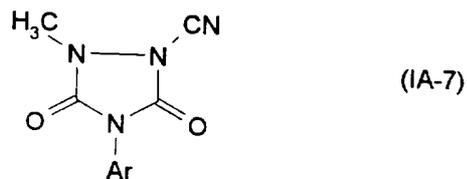
10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 6

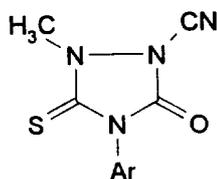
15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 7

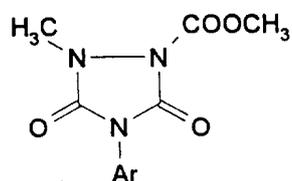
20

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 8

(IA-8)

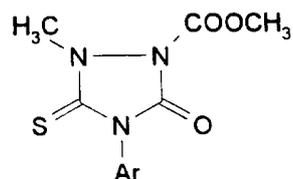
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 9

(IA-9)

10

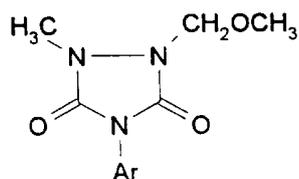
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 10

(IA-10)

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

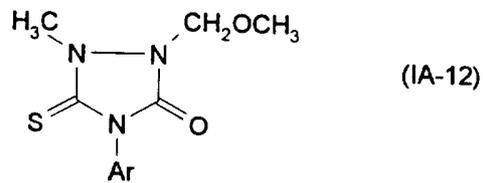
Gruppe 11

(IA-11)

20

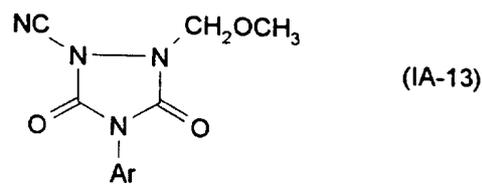
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 12



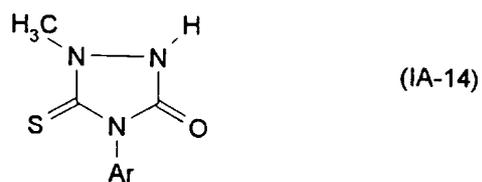
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 13

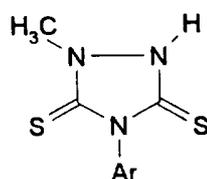


Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

15 Gruppe 14

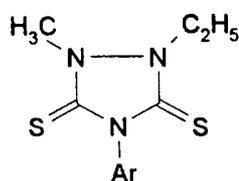


Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 15

(IA-15)

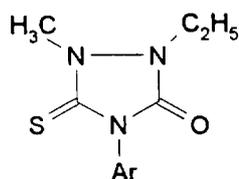
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 16

(IA-16)

10

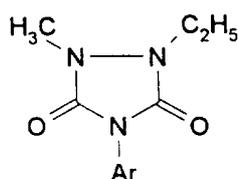
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 17

(IA-17)

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

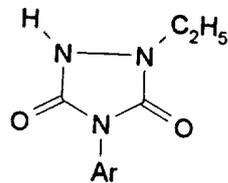
Gruppe 18

(IA-18)

20

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 19

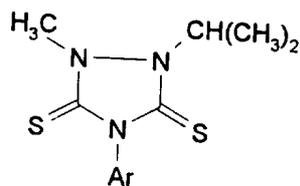


(IA-19)

5

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 20

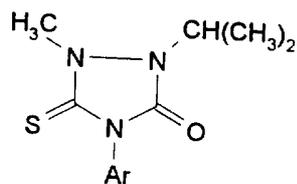


(IA-20)

10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

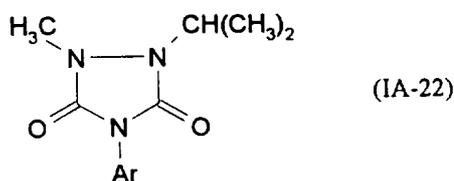
Gruppe 21



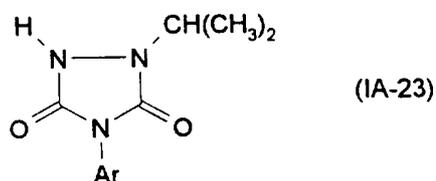
(IA-21)

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

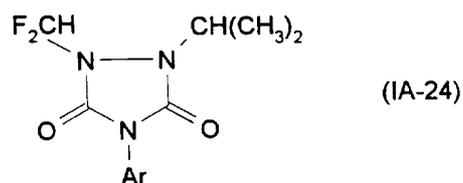
Gruppe 22

5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 23

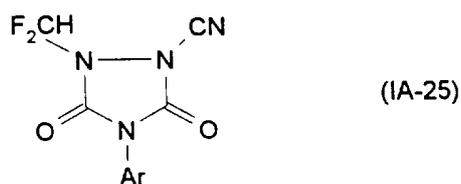
10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 24

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

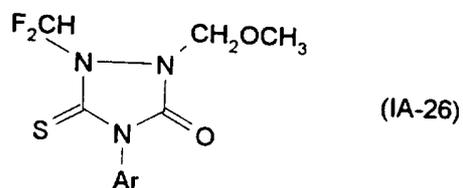
Gruppe 25

20

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 26

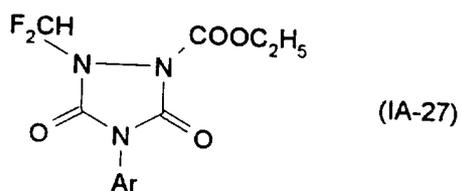
5



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 27

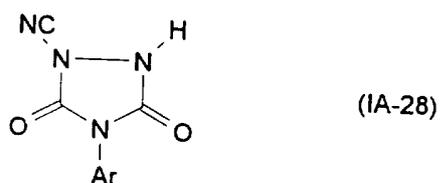
10



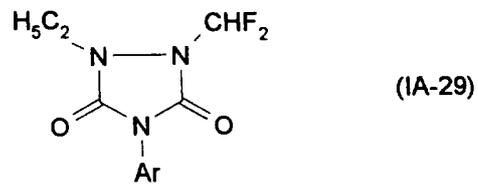
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

15

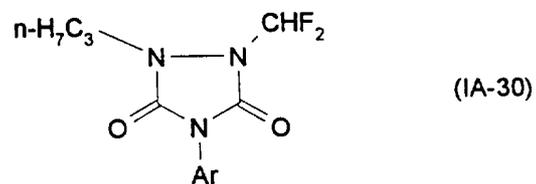
Gruppe 28



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

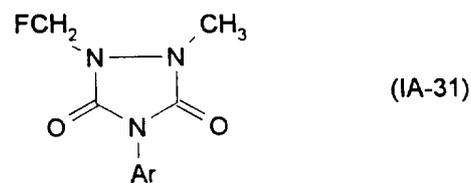
Gruppe 29

5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 30

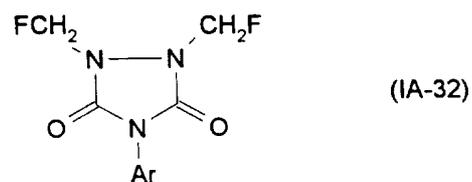
10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 31

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

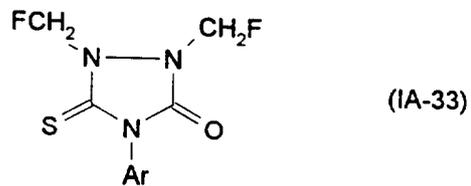
Gruppe 32

20

35

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

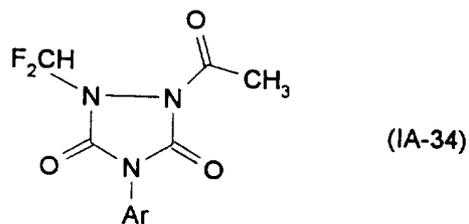
Gruppe 33



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 34

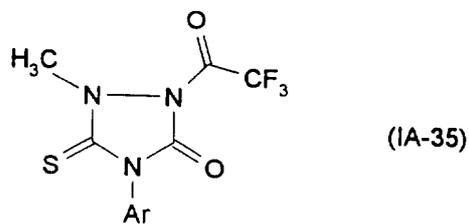
10



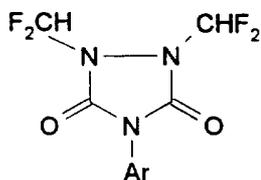
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

15

Gruppe 35

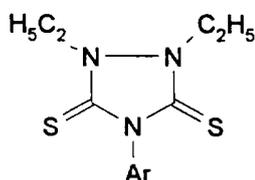


Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 36

(IA-36)

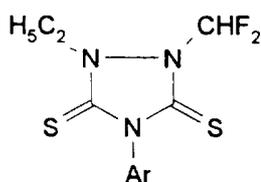
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 37

(IA-37)

10

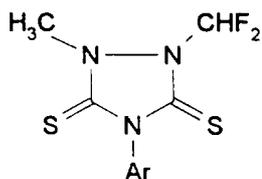
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 38

(IA-38)

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 39

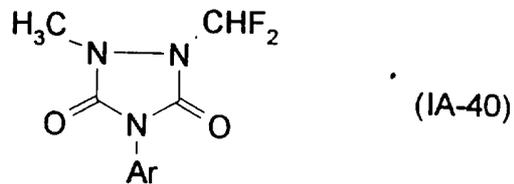
(IA-39)

20

37

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

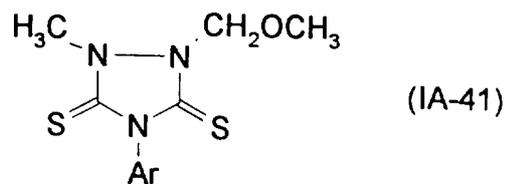
Gruppe 40



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 41

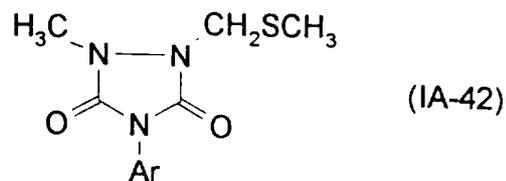
10



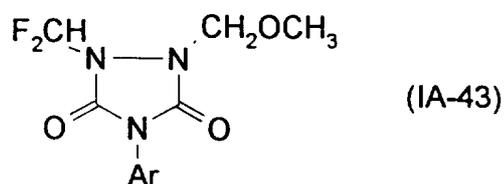
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

15

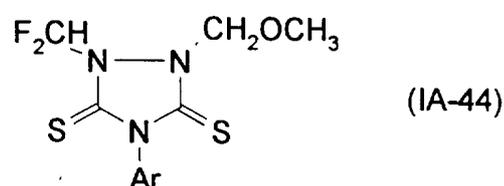
Gruppe 42



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

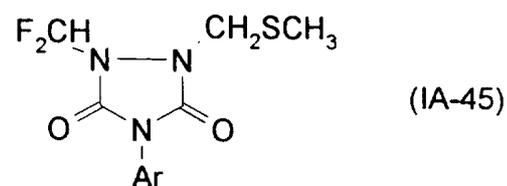
Gruppe 43

5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 44

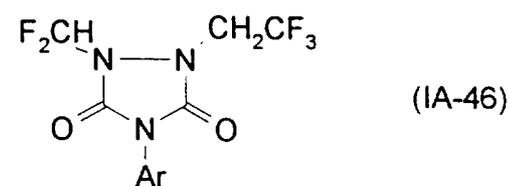
10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 45

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

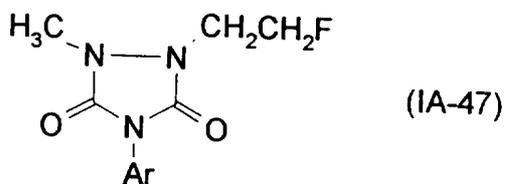
Gruppe 46

20

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 47

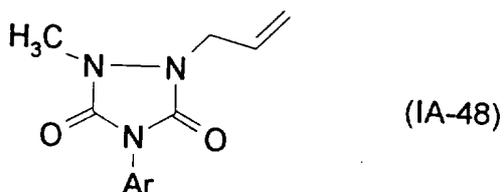
5



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

10

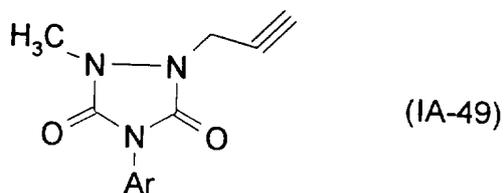
Gruppe 48



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

15

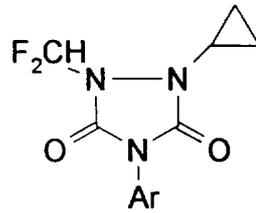
Gruppe 49



20

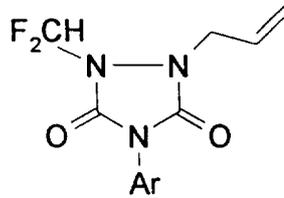
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

40

Gruppe 50

(IA-50)

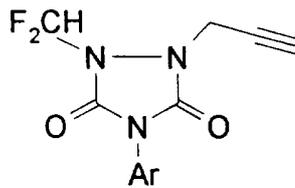
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 51

(IA-51)

10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 52

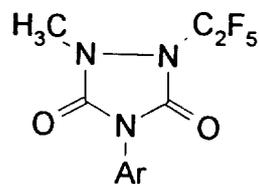
(IA-52)

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

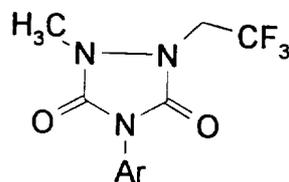
Gruppe 53

41



(IA-53)

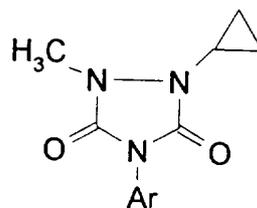
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 54

(IA-54)

10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

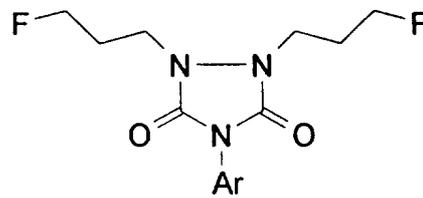
Gruppe 55

(IA-55)

15

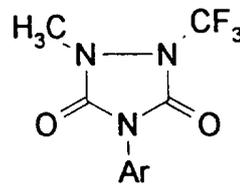
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

42

Gruppe 56

(IA-56)

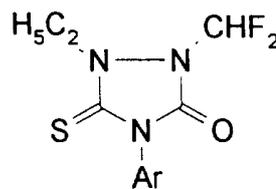
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 57

(IA-57)

10

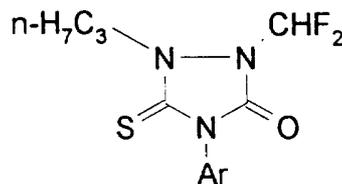
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 58

(IA-58)

15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 59

(IA-59)

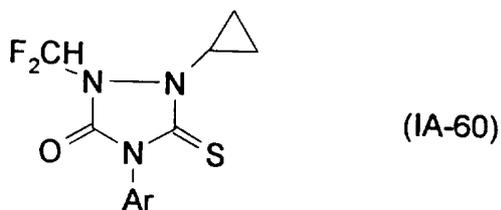
20

43

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 60

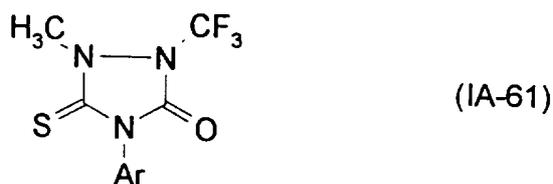
5



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

10

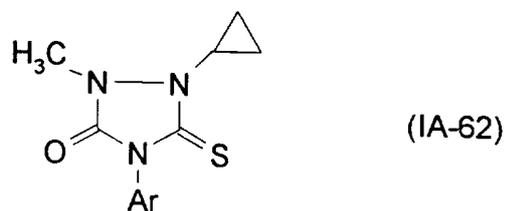
Gruppe 61



Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

15

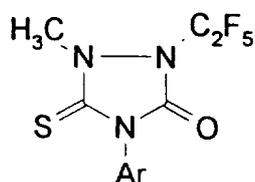
Gruppe 62



20

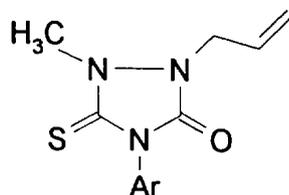
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

44

Gruppe 63

(IA-63)

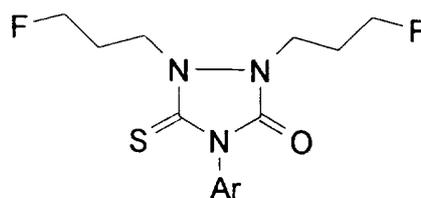
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 64

(IA-64)

10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

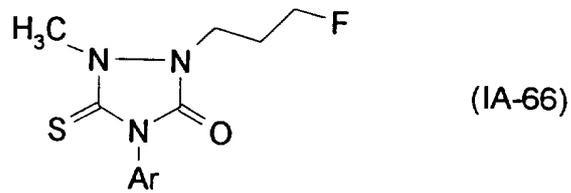
Gruppe 65

(IA-65)

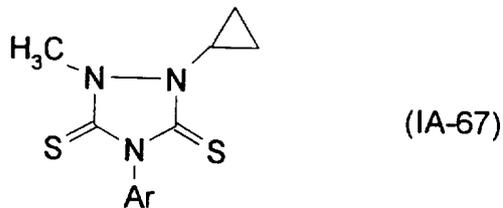
15

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

45

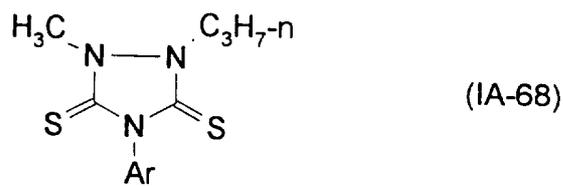
Gruppe 66

5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 67

10

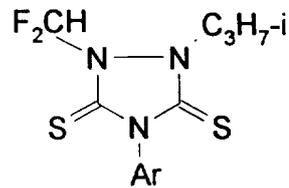
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 68

15

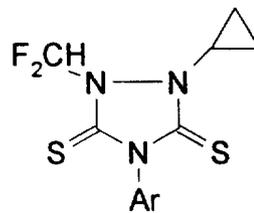
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

46

Gruppe 69

(IA-69)

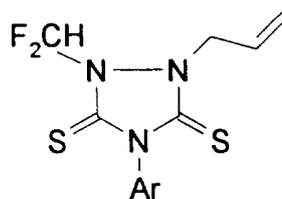
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 70

(IA-70)

10

Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

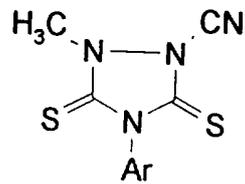
Gruppe 71

(IA-71)

15

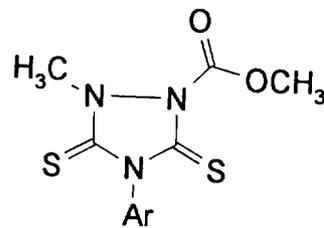
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

47

Gruppe 72

(IA-72)

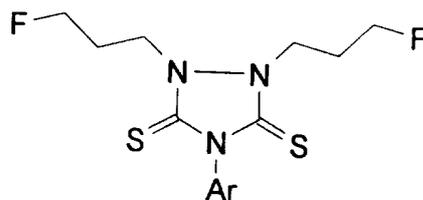
5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 73

(IA-73)

10

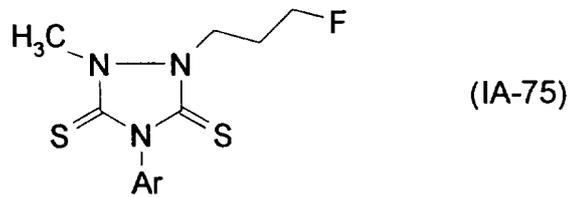
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 74

(IA-74)

15

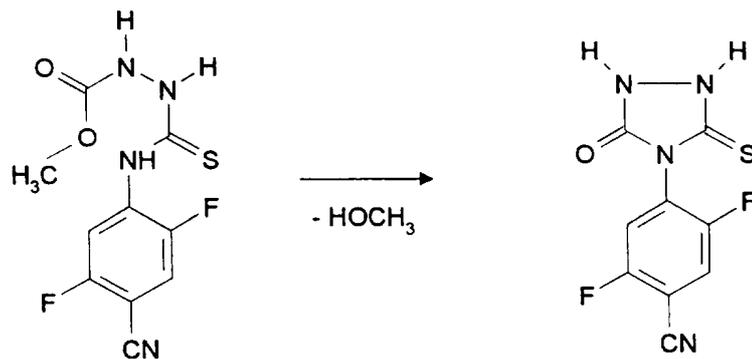
Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

Gruppe 75

5 Ar hat hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 aufgeführten Bedeutungen.

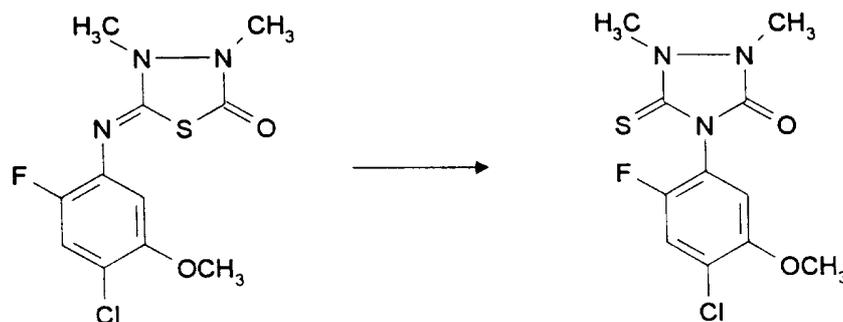
Verwendet man beispielsweise 4-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-1-methoxycarbonylthiosemicarbazid als Ausgangsstoff, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

10



Verwendet man beispielsweise 2-(4-Chlor-2-fluor-5-methoxy-phenylimino)-3,4-dimethyl-3,4-dihydro-5-oxo-1,3,4-thiadiazol als Ausgangsstoff, so kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) durch das folgende Formelschema skizziert werden:

15



Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden (Thio)Semicarbazid-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben Q¹, Q², R¹, R² und Ar vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Q¹, Q², R¹, R² und Ar angegeben wurden; R steht vorzugsweise für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

Die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. Synthesis 1982, 159-160; DE 1200824, DE 2952685 und DE 3026739).

Man erhält die (Thio)Semicarbazid-Derivate der Formel (II), wenn man

(α) Aryliso(thio)cyanate der allgemeinen Formel (IV)



in welcher

Ar und Q¹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Carbazaten der allgemeinen Formel (XI)



in welcher

Q², R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben und

R für Alkyl, vorzugsweise für C₁-C₆-Alkyl, insbesondere bevorzugt für Methyl oder Ethyl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Toluol, bei
5 Temperaturen zwischen 0°C und 150°C umsetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele),

oder wenn man

(β) Arylamine der allgemeinen Formel (XII)

10



in welcher

15 Ar die oben angegebene Bedeutung hat,

mit (Thio)Carbonyl-diimidazol der Formel (XIII)



20

in welcher

Q¹ die oben angegebene Bedeutung hat und

25 Im für Imidazolyl steht,

und mit Carbazaten der allgemeinen Formel (XI)



30

in welcher

Q^2 , R^1 und R^2 die oben angegebenen Bedeutungen haben und

R für Alkyl, vorzugsweise für C_1 - C_6 -Alkyl, insbesondere bevorzugt für Methyl oder Ethyl steht,

5

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels, wie z.B. Kaliumhydroxid, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Methanol, Ethanol und/oder Wasser, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umgesetzt.

10

Die als Vorprodukte benötigten Aryliso(thio)cyanate der Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. DE 4327743, DE 4335438 und DE 4343451).

15

Die weiter als Vorprodukte benötigten Carbazate der Formel (VIII) sind bekannte organische Chemikalien.

20

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird vorzugsweise in Gegenwart eines geeigneten Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören beispielsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall-hydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium- oder Kalium-amid, Natrium- oder Kalium-methylat, Natrium- oder Kalium-ethylat, Natrium- oder Kalium-propylat, Aluminium-isopropylat, Natrium- oder Kalium-tert-butylat, Natrium- oder Kalium-hydroxid, Ammoniumhydroxid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Ammoniumacetat, Natrium-, Kalium-, Rubidium-, Cäsium-, Magnesium- oder Calcium-carbonat, Ammoniumcarbonat, Natrium- oder Kalium-hydrogencarbonat, sowie basische organische Stickstoffverbindungen, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethylcyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl- und 4-Methyl-pyridin, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, N-Methyl-

30

piperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) kommen die üblichen organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Pentan, Hexan, Heptan, Petrolether, Ligroin, Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, t-Butyl-methylether, t-Pentyl-methylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, Ethylenglykol-dimethyl- oder -diethylether, Diethylenglykol-dimethylether oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäure-methylester, -ethylester, -n- oder -i-propylester, -n-, -i- oder -s-butylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, n-, i-, s- oder t-Butanol, Ethylenglykol-monomethylether oder -monoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether; deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und +150°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 10°C und 120°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - zu arbeiten.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) werden im allgemeinen die Ausgangsstoffe der Formel (II) in einem geeigneten Verdünnungsmittel vorgelegt und - gegebenenfalls nach Zugabe eines Reaktionshilfsmittels - bei der erforderlichen

Temperatur bis zum Ende der Umsetzung gerührt. Die Aufarbeitung kann auf übliche Weise erfolgen (vgl. die Herstellungsbeispiele).

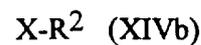
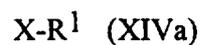
5 Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden Aryliminoheterocyclen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) haben Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar angegeben wurden.

10 Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bisher noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind jedoch Gegenstand einer vorgängigen, nicht vorveröffentlichten Anmeldung (vgl. DE 4424787).

15 Man erhält die Aryliminoheterocyclen der Formel (III), wenn man Aryl(thio)semicarbazide der allgemeinen Formel (VI) mit reaktiven Kohlendioxidderivaten, wie z.B. Phosgen oder Thiophosgen, gegebenenfalls in Gegenwart von Verdünnungsmitteln, wie z.B. Toluol und/oder Dichlormethan, bei Temperaturen zwischen 0°C und 100°C umsetzt.

20 Die beim erfindungsgemäßen Verfahren (b) zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gegebenenfalls als Ausgangsstoffe zu verwendenden Verbindungen sind durch die Formeln (Ia) und (Ib) allgemein definiert. In den Formeln (Ia) und (Ib) haben Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für Q^1 , Q^2 , R^1 , R^2 und Ar angegeben wurden.

25
30 Man erhält die Verbindungen der Formel (Ia) oder (Ib), wenn man N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (I) in welcher wenigstens eine der Gruppen R^1 oder R^2 für Wasserstoff steht, mit Alkylierungs- bzw. Acylierungsmitteln der Formeln (IXa) oder (IXb)



worin

5 R^1 und R^2 mit Ausnahme von Wasserstoff die oben angegebenen Bedeutungen haben
und

X für Halogen - vorzugsweise Chlor, Brom oder Iod - oder eine der
Gruppierungen $-\text{O}-\text{SO}_2-\text{O}-\text{R}^1$ oder $-\text{O}-\text{SO}_2-\text{O}-\text{R}^2$ steht,

10

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegen-
wart eines Reaktionshilfsmittels bei Temperaturen zwischen 0°C und 80°C umgesetzt
(vgl. die Herstellungsbeispiele).

15

Es kommen hierbei vorzugsweise die gleichen Verdünnungsmittel und Reaktionshilfs-
mittel wie bei beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) in Betracht.

20

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines
Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Es kommen hierbei die gleichen Reaktionshilfs-
mittel wie beim erfindungsgemäßen Verfahren (a), außerdem jedoch auch noch Alkali-
metallsulfide, wie z.B. Natrium- oder Kaliumsulfid, in Betracht.

25

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird vorzugsweise unter Verwendung eines
Verdünnungsmittels durchgeführt. Es kommen hierbei die gleichen Verdünnungsmittel
wie beim erfindungsgemäßen Verfahren (a) in Betracht.

30

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen
Verfahrens (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet
man bei Temperaturen zwischen 0°C und $+250^\circ\text{C}$, vorzugsweise bei Temperaturen
zwischen 20°C und 150°C .

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - zu arbeiten.

5 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) werden im allgemeinen die Ausgangsstoffe der Formel (III) - bzw. der Formeln (Ia) oder (Ib) - in einem geeigneten Verdünnungsmittel vorgelegt und bei der erforderlichen Temperatur bis zum Ende der Umsetzung gerührt. Die Aufarbeitung kann auf übliche Weise erfolgen.

10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolians, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewandten Menge ab.

15

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

20 Dikotyle Unkräuter der Gattungen: 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, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

25 Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

30 Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

5 Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

10 Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

15 Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen Kulturen sowohl im Vorauf- als auch im Nachauf-Verfahren.

20 Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

25 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumzeugenden Mitteln.

30 Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-

naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfractionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykoether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

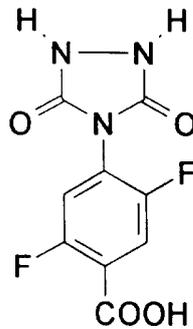
Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen
5 auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolin-säure, Dicamba und Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxyfop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azinone, wie z.B. Chloridazon und Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide,
15 wie z.B. Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenyl-ether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxydim,
20 Clethodim, Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazethapyr, Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiolcarbamate, wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallylate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate,
25 Bentazone, Cinmethylin, Clomazone, Clopyralid, Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate, Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

- 5 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.
- 10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.
- 15 Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.
- 20 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellungsbeispiele:Beispiel 1

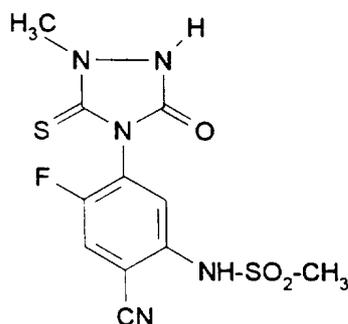
5

20,2 g (75 mMol) 4-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-1-ethoxycarbonyl-semicarbazid werden in 50 ml 25%iger wässriger Kaliumhydroxid-Lösung 2 Stunden bei 80°C gerührt. Nach Abkühlen auf 20°C wird mit konz. Salzsäure auf pH=4 eingestellt und das kristallin anfallende Produkt durch Abfiltrieren isoliert.

10

Man erhält 16,0 g (90% der Theorie) 4-(4-Carboxy-2,5-difluor-phenyl)-1,2,4-triazolin-2,5-dion vom Schmelzpunkt >250°C.

15

Beispiel 2

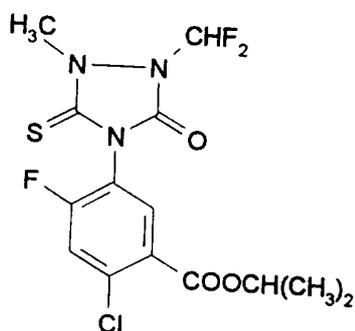
20

Eine Mischung aus 3,90 g (10 mMol) 4-(4-Cyano-2-fluor-5-methylsulfonylamino-phenyl)-2-methyl-1-ethoxycarbonyl-thiosemicarbazid, 8,10 g (80 mMol) Triethylamin und 100 ml Acetonitril wird 12 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt. das

Lösungsmittel im Vakuum entfernt, der Rückstand mit Wasser verrührt, mit konz. Salzsäure angesäuert und das kristallin anfallende Produkt durch Abfiltrieren isoliert.

5 Man erhält 1,20 g (35% der Theorie) 4-(4-Cyano-2-fluor-5-methylsulfonylamino-phenyl)-1-methyl-5-thioxo-1,2,4-triazolin-3-on vom Schmelzpunkt $>250^{\circ}\text{C}$.

Beispiel 3



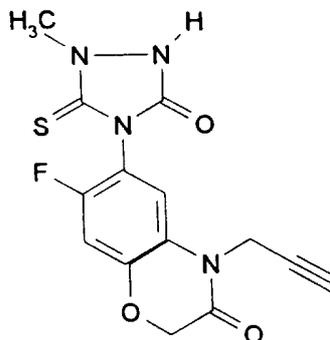
10

Eine Mischung aus 5,2 g (15 mMol) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-i-propoxycarbonyl-phenyl)-1-methyl-5-thioxo-1,2,4-triazolin-3-on, 5,2 g (37,5 mMol) Kaliumcarbonat und 50 ml Acetonitril wird 60 Minuten bei 60°C gerührt; dann wird bei 60°C 6 Stunden lang Frigen (CHClF_2) eingeleitet. Anschließend wird unter vermindertem Druck eingengt, der Rückstand in Wasser aufgenommen, mit konz. Salzsäure angesäuert, mit Dichlormethan extrahiert, die organische Phase über Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird eingengt und das im Rückstand erhaltene Rohprodukt durch Säulen-

15 chromatographie (Kieselgel, Hexan/Essigsäure-ethylester, Vol.: 7:1) gereinigt.

20

Man erhält 0,7 g (12% der Theorie) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-i-propoxycarbonyl-phenyl)-1-methyl-2-difluormethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolin-3-on vom Schmelzpunkt 51°C .

Beispiel 4

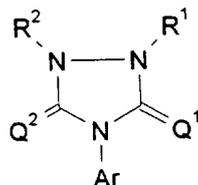
- 5 Eine Mischung aus 7,6 g (23 mMol) 2-(7-Fluor-3,4-dihydro-3-oxo-4-propargyl-(2H)-1,4-benzoxazin-6-yl-imino)-3-methyl-3,4-dihydro-5-oxo-(4H)-1,3,4-thiadiazol und 20 ml Dimethylsulfoxid wird 2 Stunden auf 50°C, weitere 2 Stunden bei 70°C und weitere 2 Stunden bei 80°C erwärmt. Dann wird unter vermindertem Druck eingengt, der Rückstand mit Wasser verrührt und das kristallin anfallende Produkt durch
- 10 Abfiltrieren isoliert.

Man erhält 6,6 g (85% der Theorie) 4-(7-Fluor-3,4-dihydro-3-oxo-4-propargyl-(2H)-1,4-benzoxazin-6-yl)-1-methyl-5-thioxo-1,2,4-triazolin-3-on vom Schmelzpunkt 190°C.

15

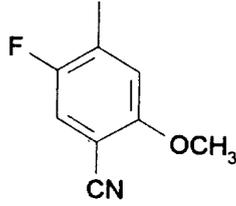
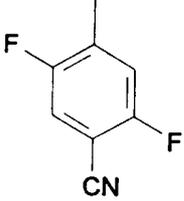
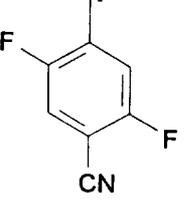
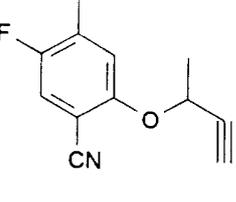
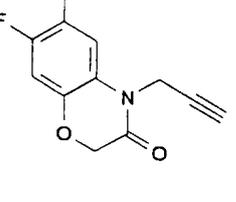
Analog zu den Beispielen 1 bis 4 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellungsverfahren können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt

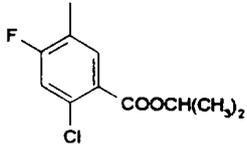
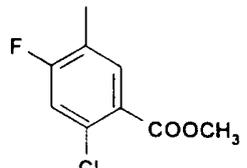
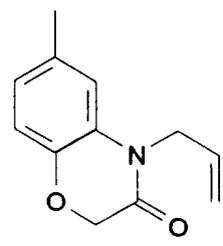
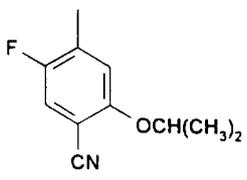
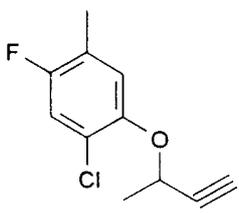
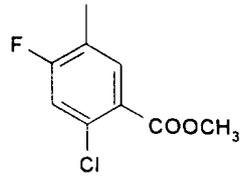
20 werden.



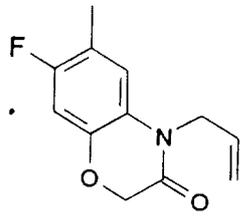
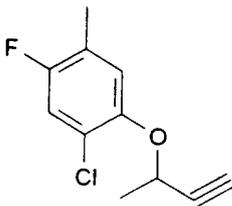
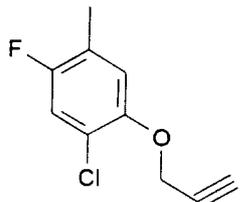
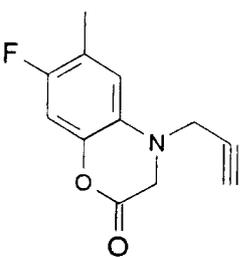
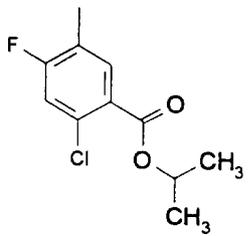
(I)

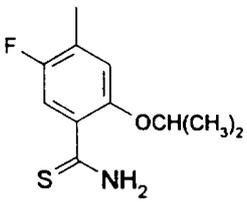
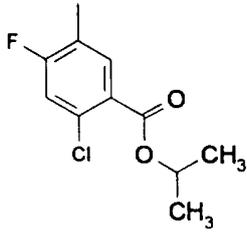
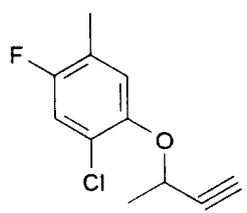
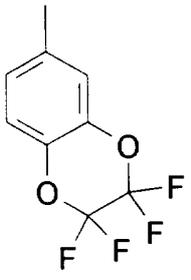
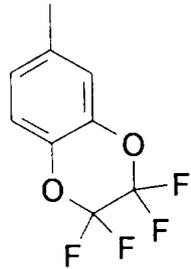
Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
5	O	O	H	CH ₃		Fp.: 234°C
6	S	O	CH ₃	H		Fp.: 224°C
7	S	O	CH ₃	CHO		Fp.: 95°C
8	O	S	H	CH ₃		Fp.: 172°C
9	S	O	CH ₃	CHF ₂		Fp.: 183°C

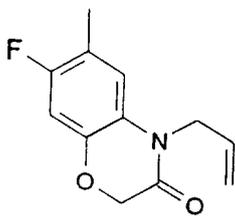
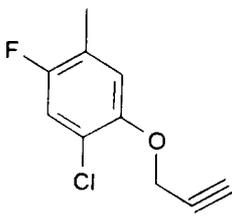
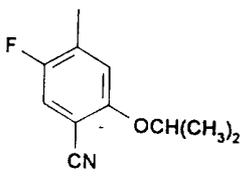
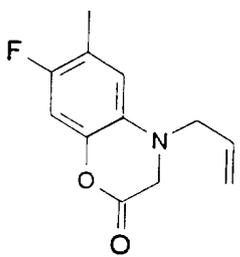
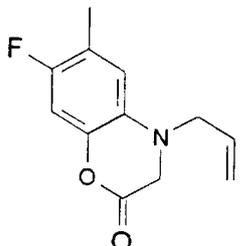
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
10	S	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 118°C
11	S	O	CH ₃	H		Fp.: 139°C
12	S	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 227°C
13	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 175°C
14	S	O	CH ₃	CHF ₂		Fp.: 122°C
15	S	O	CH ₃	CHF ₂		Fp.: 64°C

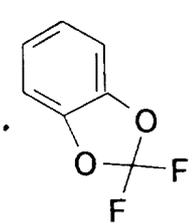
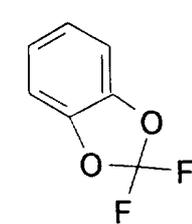
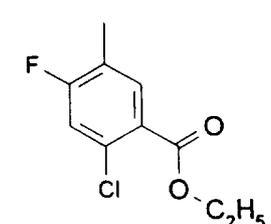
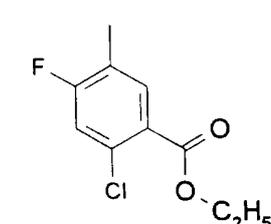
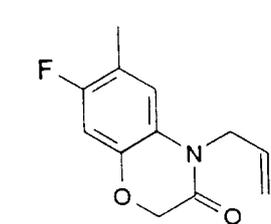
65

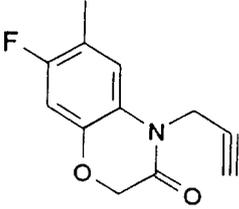
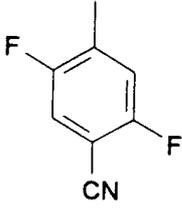
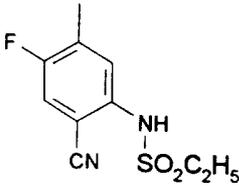
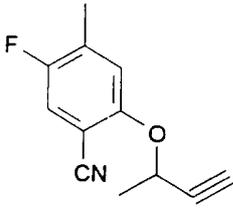
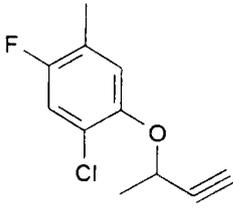
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
16	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 155°C
17	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 70°C
18	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 198°C
19	S	S	CH ₃	CH ₃		
20	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 120°C

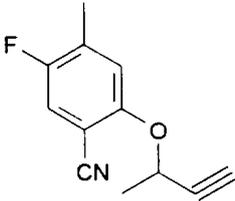
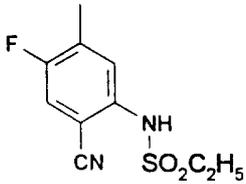
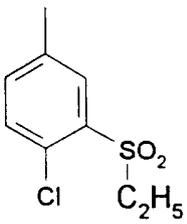
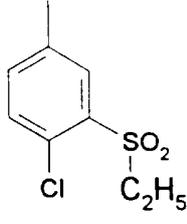
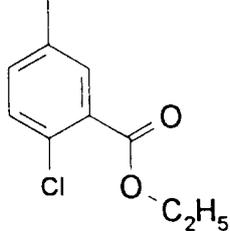
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
21	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 228°C
22	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 146°C
23	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 142°C
24	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 192°C
25	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 149°C

67

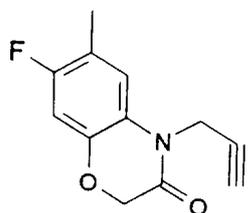
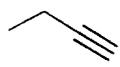
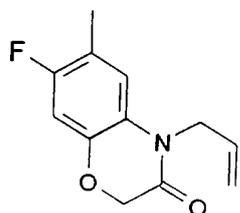
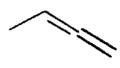
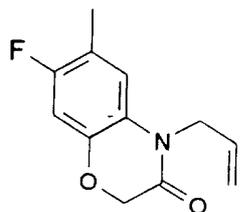
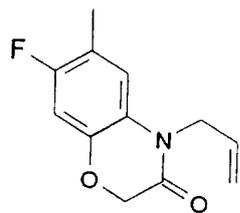
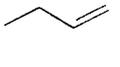
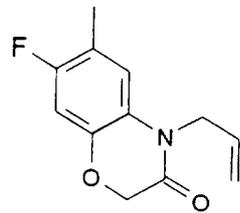
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
26	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 195°C
27	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 148°C
28	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 133°C
29	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		
30	S	S	CH ₃	CH ₃		

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
31	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 197°C
32	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 229°C
33	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 174°C
34	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 103°C
35	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 259°C

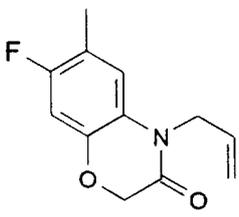
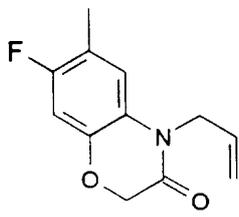
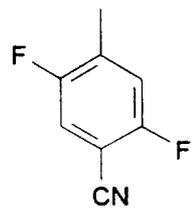
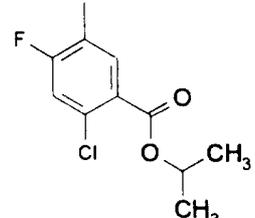
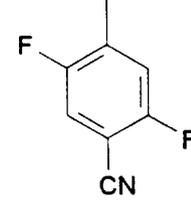
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
36	S	S	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		Fp.: 248°C
37	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 251°C
38	O	S	H	CH ₃		Fp.: 201°C
39	O	S	CHO	CH ₃		Fp.: 75°C
40	O	O	CHF ₂	CH ₃		Fp.: 70°C

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
41	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 157°C
42	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 250°C
43	O	S	CHF ₂	CH ₃		Fp.: 127°C
44	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 58°C
45	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 138°C

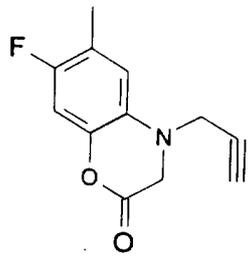
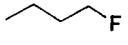
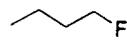
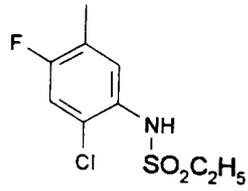
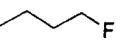
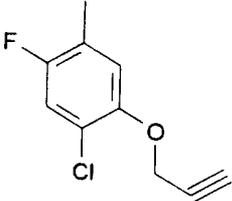
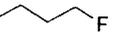
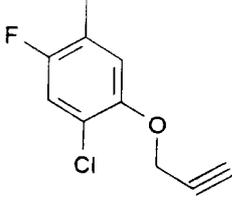
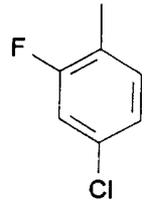
71

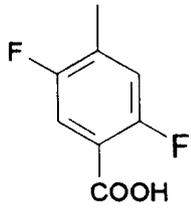
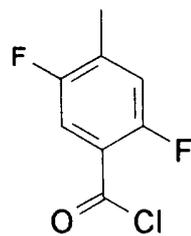
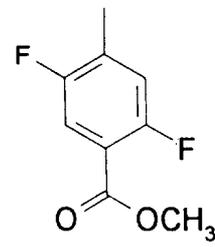
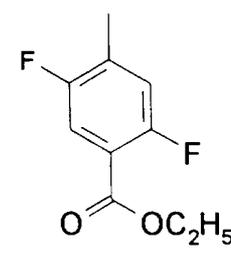
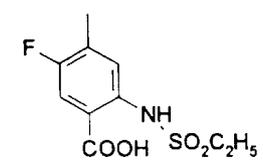
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
46	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 236°C
47	O	S		CH ₃		Fp.: 122°C
48	O	S		CH ₃		
49	O	S	-CH ₂ CF ₃	CH ₃		Fp.: 135°C
50	O	S		CH ₃		Fp.: 42°C

72

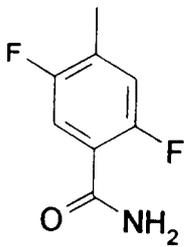
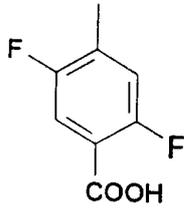
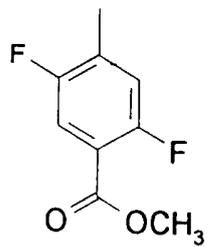
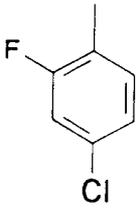
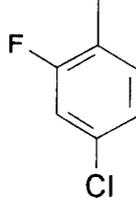
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
51	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 163°C
52	O	S	CHF ₂	CH ₃		Fp.: 176°C
53	O	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 150°C
54	O	S	H	CH ₃		Fp.: 67°C
55	O	S	H	H		Fp.: 250°C

73

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
56	O	S	H	CH ₃		
57	O	O				$n_d^{20} = 1,5442$
58	O	O				$n_d^{20} = 1,5349$
59	O	O		CH ₃		$n_d^{20} = 1,5600$
60	O	O				

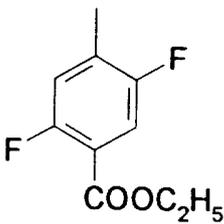
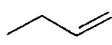
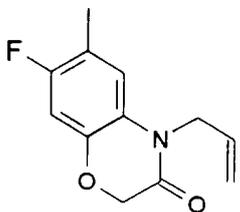
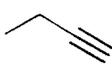
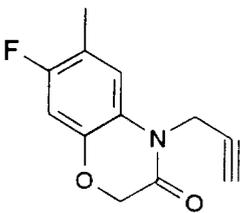
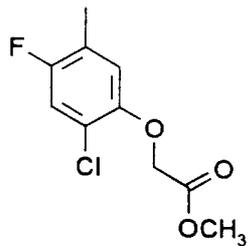
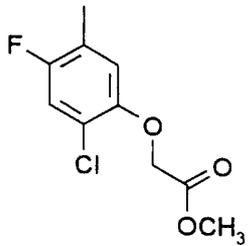
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
61	O	O	H	CH ₃		Fp.: 215°C
62	O	O	H	CH ₃		Fp.: 250°C
63	O	O	H	CH ₃		Fp.: 156°C
64	O	O	H	CH ₃		¹ H-NMR (CDCl ₃): 3,25, 4,40- 4,46, 7,22- 7,24 ppm.
65	O	S	H	CH ₃		Fp.: 210°C

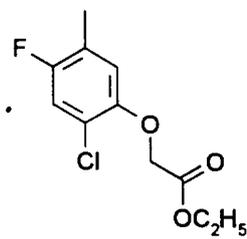
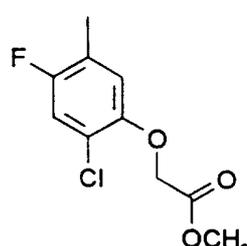
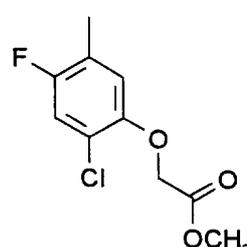
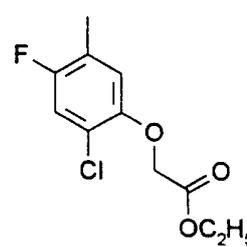
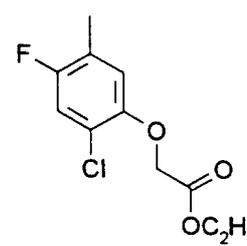
75

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
66	O	O	H	CH ₃		Fp.: 163°C
67	O	S	H	CH ₃		Fp.: 143°C
68	O	S	H	CH ₃		Fp.: 158°C
69	O	S	H	CH ₃		Fp.: 75°C
70	O	S	CH ₃	CH ₃		¹ H-NMR (CDCl ₃): 3,45, 3,73, 7,30-7,40 ppm.

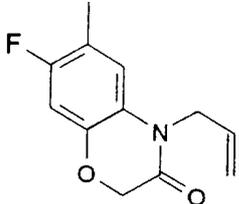
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
71	O	S	CH ₃	CH ₃	$ \begin{array}{c} \\ \text{C}_6\text{H}_2(\text{F})(\text{Cl})(\text{NO}_2) \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} $	Fp.: 146°C
72	O	S	CH ₃	CH ₃	$ \begin{array}{c} \\ \text{C}_6\text{H}_2(\text{F})(\text{Cl})(\text{NH}_2) \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} $	Fp.: 208°C
73	O	S	CH ₃	CH ₃	$ \begin{array}{c} \\ \text{C}_6\text{H}_2(\text{F})(\text{Cl})(\text{N}(\text{SO}_2\text{C}_2\text{H}_5)_2) \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} $	Fp.: 195°C
74	O	O	H	CH ₃	$ \begin{array}{c} \\ \text{C}_6\text{H}_3(\text{F})(\text{Cl}) \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} $	(amorph)
75	O	O	H	H	$ \begin{array}{c} \\ \text{C}_6\text{H}_2(\text{F})_2(\text{COOC}_2\text{H}_5) \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} $	Fp.: 150°C

77

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
76	O	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 101°C
77	O	S		CH ₃		Fp.: 172°C
78	O	S		CH ₃		Fp.: 199°C
79	O	S	H	CH ₃		amorph
80	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 160°C

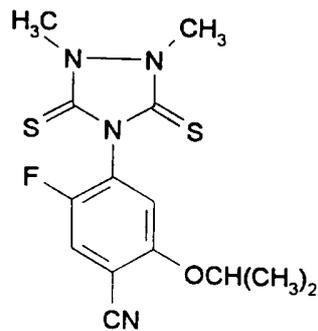
Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
81	O	S	H	CH ₃		amorph
82	O	S	CHF ₂	CH ₃		Fp.: 99°C
83	O	S	CH ₃	CH ₃		
84	S	S	CH ₃	CH ₃		Fp.: 131°C
85	O	S	CHF ₂	CH ₃		Fp.: 74°C

79

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
86	O	S	C ₂ H ₅	CH ₃		

Die in Tabelle 1 als Beispiel 13 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:

5



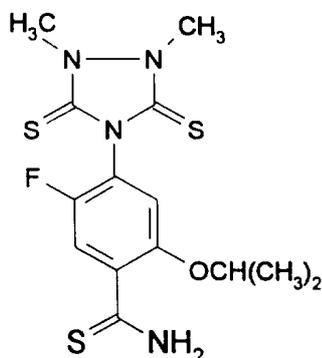
10

Eine Mischung aus 1,0 g (0,3 mMol) 2-(4-Cyano-2-fluor-4-i-propoxy-phenyl-imino)-3,4-dihydro-3,4-dimethyl-5-thioxo(4H)-1,3,4-thiadiazol, 0,1 g (0,1 mMol) Natriumsulfid und 20 ml Ethanol wird ca. 20 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Dann wird eingengt, der Rückstand in Dichlormethan aufgenommen, mit Wasser gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird eingengt, der Rückstand mit Diethylether digeriert und das kristallin anfallende Produkt durch Abfiltrieren isoliert.

15

Man erhält 0,25 g (25% der Theorie) 4-(4-Cyano-2-fluor-5-i-propoxy-phenyl)-1,2-dimethyl-1,2,4-triazolin-2,5-dithion vom Schmelzpunkt 175°C.

Die in Tabelle 1 als Beispiel 21 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



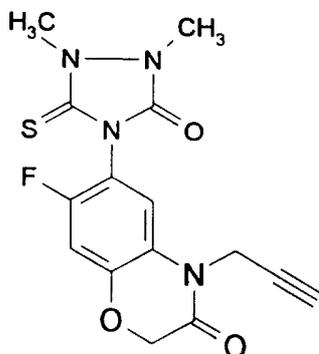
5

In eine Mischung aus 0,9 g (2,6 mMol) 4-(4-Cyano-2-fluor-5-i-propoxy-phenyl)-1,2-dimethyl-1,2,4-triazolin-2,5-dithion, 2 ml (14 mMol) Triethylamin und 20 ml Pyridin wird 9 Stunden bei 90°C Schwefelwasserstoff eingeleitet. Nach dem Abkühlen wird das Lösungsmittel am Rotationsverdampfer abgezogen und der Rückstand mit 2 normaler Salzsäure verrührt. Das Rohprodukt wird abgesaugt, mit Wasser gewaschen, getrocknet und durch Säulenchromatographie (Laufmittel: Hexan/Essigsäureethylester 4:1) gereinigt.

15

Man erhält 0,42 g (43 % der Theorie) 4-(2-Fluor-5-i-propoxy-4-thiocarbamoylphenyl)-1,2-dimethyl-1,2,4-triazolin-2,5-dithion vom Schmelzpunkt 228 °C.

Die in Tabelle 1 als Beispiel 46 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



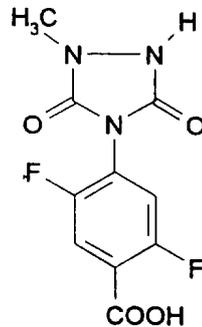
5

Eine Lösung von 2,1 g (6 mMol) 4-(7-Fluor-3,4-dihydro-3-oxo-4-propargyl-(2H)-1,4-benzoxazin-6-yl)-1-methyl-5-methylthio-1,2,4-triazolin-3-on in 20 ml Dimethylformamid wird 16 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Anschließend wird im Wasserstrahlvakuum eingengt und der Rückstand durch Säulenchromatographie gereinigt.

10

Man erhält 0,9 g (43% der Theorie) 4-(7-Fluor-3,4-dihydro-3-oxo-4-propargyl-(2H)-1,4-benzoxazin-6-yl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolin-3-on vom Schmelzpunkt 236°C.

Die in Tabelle 1 als Beispiel 61 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



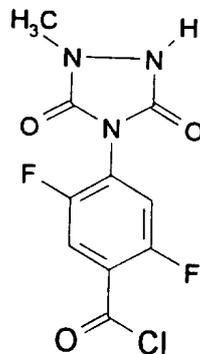
5

44,7 g (0,15 Mol) 4-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-1-ethoxycarbonyl-2-methyl-semi-carbazid werden in 200 ml 4-molarer wässriger Kaliumhydroxyd-Lösung 30 Minuten bei 80°C gerührt. Nach Abkühlen auf 20°C wird mit konz. Salzsäure auf pH=4 eingestellt und das kristallin angefallene Produkt durch Abfiltrieren isoliert.

10

Man erhält 36 g (95 % der Theorie) 4-(4-Carboxy-2,5-difluor-phenyl)-1-methyl-1,2,4-triazolin-3,5-dion vom Schmelzpunkt 215°C.

Die in Tabelle 1 als Beispiel 62 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



5

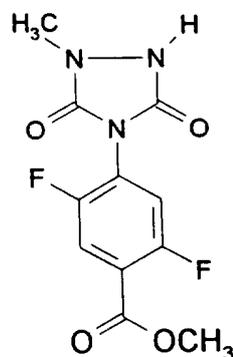
27,1 g (0,1 Mol) 4-(4-Carboxy-2,5-difluor-phenyl)-1-methyl-1,2,4-triazol-3,5-dion werden in 200 ml Toluol auf 80°C erwärmt. Bei dieser Temperatur tropft man innerhalb von 30 Minuten 14,3 g (0,12 Mol) Thionylchlorid zu, erwärmt auf Rückflußtemperatur und rührt ca. 2 Stunden bis zur Beendigung der Gasentwicklung. Nach dem Abkühlen auf 20°C wird das kristallin angefallene Produkt durch Abfiltrieren isoliert.

10

Man erhält 7,2 g (25 % der Theorie) 4-(4-Chlorcarbonyl-2,5-difluor-phenyl)-1-methyl-1,2,4-triazol-3,5-dion vom Schmelzpunkt >250°C.

15

Die in Tabelle 1 als Beispiel 63 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



5

6,5 g (0,024 Mol) 4-(4-Carboxy-2,5-difluor-phenyl)-1-methyl-1,2,4-triazol-3,5-dion werden mit 200 ml Methanol und 2 Tropfen Schwefelsäure 8 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt. Nach dem Abkühlen auf 20°C wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand in Dichlormethan gelöst, mit Wasser gewaschen, die organische Phase über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum sorgfältig vom Lösungsmittel befreit.

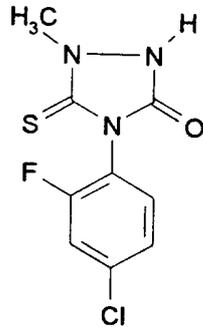
10

Man erhält 4,2 g (62 % der Theorie) an 4-(4-Methoxycarbonyl-2,5-difluor-phenyl)-1-methyl-1,2,4-triazol-3,5-dion vom Schmelzpunkt 156°C.

15

85

Die in Tabelle 1 als Beispiel 69 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



5

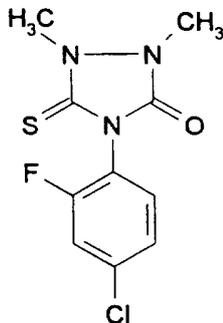
29,3 g (0,096 Mol) 4-(4-Chlor-2-fluor-phenyl)-2-methyl-1-ethoxycarbonyl-thiosemicarbazid werden in 400 ml Acetonitril mit 78 g (0,77 Mol) Triethylamin 8 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt und nach dem Abkühlen wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der Rückstand wird mit Wasser versetzt, mit konz. Salzsäure auf pH=4 eingestellt, mit Dichlormethan extrahiert, die organische Phase abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt.

10

Man erhält 22 g (88 % der Theorie) 4-(4-Chlor-2-fluor-phenyl)-1-methyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 75°C.

15

Die in Tabelle 1 als Beispiel 70 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



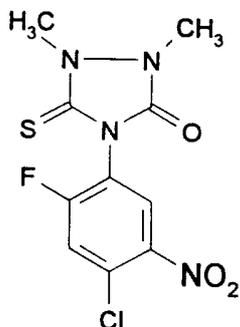
5

7,1 g (0,026 Mol) der mesoionischen Verbindung gemäß Beispiel (Ia-5) - unten - werden in 100 ml Dimethylformamid 18 Stunden unter Rückfluß gerührt und nach Abkühlen im Wasserstrahlvakuum eingeeengt.

10 Man erhält 5,9 g (83 % der Theorie) 4-(4-Chlor-2-fluor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on.

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): 3,45; 3,73; 7,30-7,40 ppm.

Die in Tabelle 1 als Beispiel 71 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



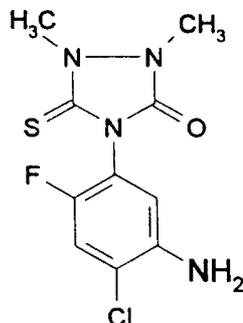
5

4,65 g (0,017 Mol) 4-(4-Chlor-2-fluor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on werden in 30 ml konz. Schwefelsäure vorgelegt und bei 0°C tropfenweise mit 3 ml 98 %iger Salpetersäure versetzt. Man rührt 8 Stunden bei Raumtemperatur nach, verrührt mit Eiswasser und filtriert das ausgefallene Produkt ab.

10

Man erhält 2,9 g (54 % der Theorie) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-nitro-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 146°C.

Die in Tabelle 1 als Beispiel 72 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



5

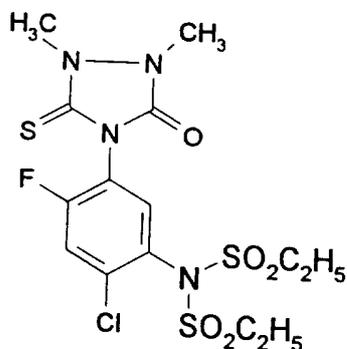
2,6 g (0,008 Mol) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-nitro-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on werden in 20 ml Essigsäure mit 10 ml Wasser und 10 ml Essigsäureethylester vorgelegt und portionsweise mit 4,6 g (0,0082 Mol) Eisenpulver versetzt, wobei die Temperatur mit einem Eisbad bei max. 45 °C gehalten wird. Nach beendeter Zugabe wird 2 Stunden bei 23 °C nachgerührt, abgesaugt und der Rückstand mit Wasser gewaschen. Das Filtrat extrahiert man mit Essigsäureethylester, die organische Phase wird mit Natriumhydrogencarbonat-Lösung gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeengt.

10

Man erhält 1,5 g (65 % der Theorie) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-amino-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 208°C.

15

Die in Tabelle 1 als Beispiel 73 aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



5

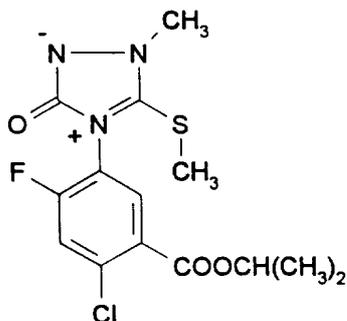
1,3 g (0,0045 Mol) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-amino-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on werden in 50 ml Dichlormethan bei -10°C mit 1,8 g (0,018 Mol) Triethylamin und anschließend mit 2,3 g (0,018 Mol) Ethansulfonsäurechlorid versetzt, 3 Stunden bei Raumtemperatur gerührt, mit Wasser versetzt, die organische Phase abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt.

10

Man erhält 2,0g (94 % der Theorie) 4-[4-Chlor-2-fluor-5-(diethylsulfonyl)-amino-phenyl]-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 195°C (Zers.).

Verbindungen der Formeln (Ia) oder (Ib):Beispiel (Ia-1)

5



10 Eine Mischung aus 4,2 g (12 mMol) 4-(4-Chlor-2-fluor-5-i-propoxycarbonyl-phenyl)-
 1-methyl-5-thioxo-1,2,4-triazolin-3-on, 3,5 g (25 mMol) Kaliumcarbonat, 2,2 g (15
 mMol) Methyljodid und 60 ml Acetonitril wird 12 Stunden bei 40°C gerührt. Dann
 wird eingeeengt, der Rückstand in Wasser aufgenommen, mit konz. Salzsäure ange-
 säuert, mit Dichlormethan extrahiert, die organische Phase mit Natriumsulfat ge-
 trocknet und filtriert. Das Filtrat wird eingeeengt und das als Rückstand erhaltene Roh-
 15 produkt durch Säulenchromatographie (Kieselgel, Dichlormethan/Methanol, Vol.:
 40:1) gereinigt.

20 Man erhält 1,0 g (24% der Theorie) der Verbindung der oben angegebenen Struktur-
 formel vom Schmelzpunkt 159°C.

Analog können beispielweise auch die in der nachstehenden Tabelle 2 aufgeführten
 Verbindungen der Formel (Ia) hergestellt werden.

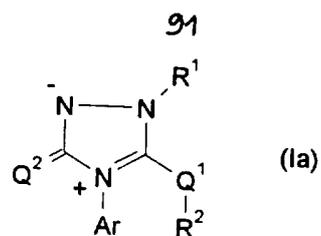
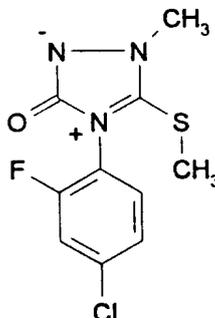


Tabelle 2: Beispiele für die Verbindungen der Formel (Ia)

5

Bsp.- Nr.	Q ¹	Q ²	R ¹	R ²	Ar	physikal. Daten
Ia-2	S	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 237°C
Ia-3	S	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 168°C
Ia-4	S	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 185°C
Ia-5	S	O	CH ₃	CH ₃		Fp.: 182°C

Die in Tabelle 2 als Beispiel (Ia-5) aufgeführte Verbindung kann beispielsweise wie folgt hergestellt werden:



5

20,7 g (0,08 Mol) 4-(4-Chlor-2-fluor-phenyl)-1-methyl-5-thioxo-1,2,4-triazol-3-on werden mit 150 ml Dimethylsulfoxid und 22 g (0,16 Mol) Kaliumcarbonat vorgelegt. Bei 0°C werden dann innerhalb 30 Minuten 23 g (0,16 Mol) Methyljodid tropfenweise dazu gegeben. Anschließend wird die Mischung 4 Stunden bei 23°C gerührt und dann

10

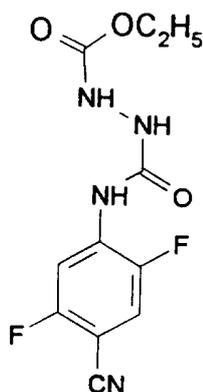
eingengt. Der Rückstand wird mit Wasser verrührt, mit konz. Salzsäure angesäuert, mit Dichlormethan extrahiert, die organische Phase über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingengt. Nach Verrühren des Rückstandes mit Isopropanol wird das kristallin angefallene Produkt durch Abfiltrieren isoliert.

15

Man erhält 7,8 g (36 % der Theorie) der mesoionischen Verbindung der oben angegebenen Struktur.

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel (II-1)

5

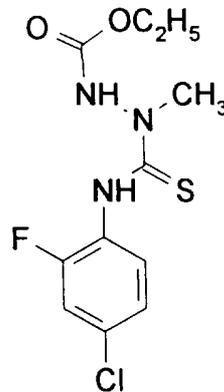


10

18,0 g (0,10 Mol) 4-Cyano-2,5-difluor-phenyl-isocyanat werden bei 10°C zu einer Lösung von 10,4 g (0,10 Mol) Ethylcarbazat in 100 ml Toluol gegeben und die Mischung wird 2 Stunden bei 20°C und dann weitere 2 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt. Das nach Abkühlen kristallin anfallende Produkt wird durch Abfiltrieren isoliert.

15

Man erhält 24,2 g (90% der Theorie) 4-(4-Cyano-2,5-difluor-phenyl)-1-ethoxy-carbonyl-semicarbazid vom Schmelzpunkt 245°C.

Beispiel (II-2)

5

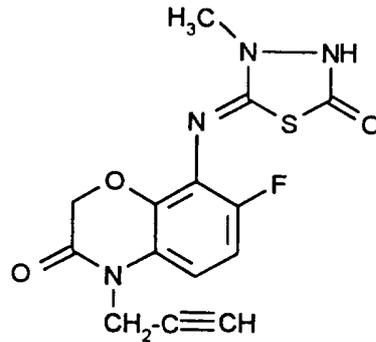
18,8 g (0,1 Mol) 4-Chlor-2-fluor-phenylisothiocyanat werden in 200 ml Acetonitril mit 11,8 g (0,1 Mol) 2-Methyl-1-ethoxycarbonyl-hydrazin und 9,24 g (0,11 Mol) Natriumhydrogencarbonat 8 Stunden bei Rückflußtemperatur gerührt. Nach Abkühlen wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Wasser verrührt, mit
10 Dichlormethan extrahiert, die organische Phase abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und im Wasserstrahlvakuum eingeeengt.

Man erhält 29 g (95 % der Theorie) 4-(4-Chlor-2-fluor-phenyl)-2-methyl-1-ethoxy-carbonyl-thiosemicarbazid vom Schmelzpunkt 151°C.

15

Ausgangsstoffe der Formel (III):Beispiel (III-1)

5

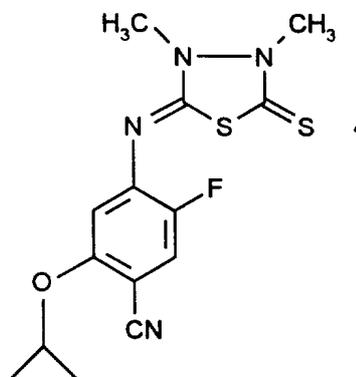


10

Zu einer Suspension von 3,1 g (10 mMol) 2-Methyl-4-(7-fluor-3,4-dihydro-3-oxo-4-propargyl-(2H)-1,4-benzoxazin-6-yl)-thiosemicarbazid in 50 ml Dichlormethan gibt man bei ca. 20°C 6 g (12 mMol) einer 20%igen Lösung von Phosgen in Toluol. Man erwärmt die Reaktionsmischung ca. 15 Stunden auf 40°C, entfernt das Lösungsmittel im Vakuum und nimmt den Rückstand in Wasser auf. Man neutralisiert mit Natriumbicarbonatlösung, filtriert den Feststoff, wäscht mit Wasser und trocknet im Vakuum bei 40-50°C.

15

Man erhält 2,8 g (84% der Theorie) 2-(7-Fluor-3,4-dihydro-3-oxo-4-propargyl-(2H)-1,4-benzoxazin-6-yl-imino)-3-methyl-3,4-dihydro-5-oxo-(4H)-1,3,4-thiadiazol. Schmelzpunkt: 214°C.

Beispiel (III-2)

5

Zu einer Lösung von 1,7 g (5,7 mMol) 4-(4-Cyano-2-fluor-5-i-propoxy-phenyl)-1,2-dimethylthiosemicarbazid in 30 ml trockenem Dichlormethan gibt man 0,66 g (5,7 mMol) Thiophosgen. Die Reaktion ist leicht exotherm. Man rührt das Reaktionsgemisch 4 Stunden bei Rückflußtemperatur, entfernt das Lösungsmittel im Vakuum und verrührt den Rückstand mit gesättigter Natriumcarbonatlösung. Der sich bildende Feststoff wird abfiltriert, mit Wasser gewaschen und auf Ton abgepreßt.

10

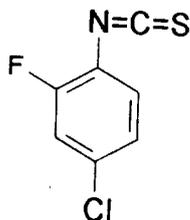
Man erhält 1,5 g (78% der Theorie) 2-(4-Cyano-2-fluor-5-i-propoxy-phenylimino)-3,4-dimethyl-5-thio-1,3,4-thiadiazol vom Schmelzpunkt 117°C.

15

Ausgangsstoffe der Formel (IV):

Beispiel (IV-1)

5



10 81 g (0,56 Mol) 4-Chlor-2-fluor-anilin werden in 500 ml Chlorbenzol bei 80°C bis 90°C innerhalb einer Stunde mit 129 g (1,12 Mol) Thiophosgen versetzt und anschließend bei Rückflußtemperatur 2 Stunden bis zur Beendigung der Gasentwicklung gerührt. Die klare Lösung wird im Wasserstrahlvakuum zur Trockene eingengt.

Man erhält 102 g (97 % der Theorie) 4-Chlor-2-fluor-phenylisothiocyanat.

15 ¹H-NMR (CDCl₃): 7,10 - 7,20 ppm; GC-MS: (M=187) 98,4%ig

Anwendungsbeispiele:Beispiel A

5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs
20 bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

25

In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß den Herstellungsbeispielen 3, 9, 10, 12, 13, 14 und 15 bei Aufwandmengen von 60 g/ha teilweise gute Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Gerste und Mais (10-70 %) und sehr starke Wirkung gegen Unkräuter wie Alopecurus (90-100 %), Cynodon (95 -100 %),
30 Setaria (70-100 %), Amaranthus (90-100 %), Chenopodium (100 %), Matricaria (95-100%), Polygonum (80-100 %), Portulaca (95-100 %) und Viola (90-100 %).

Beispiel B

Post-emergence-Test

- 5 Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton
 Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1
Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die an-
gegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die
gewünschte Konzentration.

15 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 -
15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit
ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen
bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten
Kontrolle.

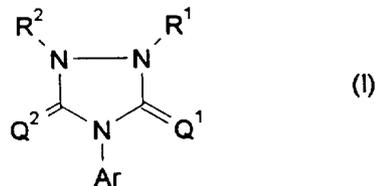
Es bedeuten:

- 20 0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)
 100 % = totale Vernichtung

25 In diesem Test zeigen beispielsweise die Verbindungen gemäß den Herstellungsbei-
spielen 3, 4, 9, 10, 12, 13, 14 und 15 sowie Ia-1 und Ia-2 bei Aufwandmengen
zwischen 15 und 250 g/ha starke Wirkung gegen Unkräuter wie Amaranthus (60-100
%), Chenopodium (90-100 %), Datura (80-100 %), Galium (90-100 %) und Veronica
(50-100 %).

Patentansprüche

1. Substituierte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (I)



5

in welcher

- Q¹ für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- 10 Q² für Sauerstoff oder Schwefel steht,
- R¹ für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkinylthio, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl oder Alkinyloxycarbonyl substituiertes Alkyl steht,
- 15 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinylnyl steht,
- 20 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkinylnylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl oder Alkinyloxycarbonyl steht,
- 25 R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano oder Carboxy substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylcarbonyl steht,
- R² für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio,

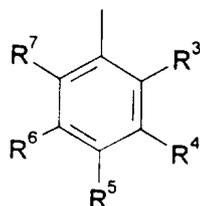
Alkenylthio, Alkinylthio, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl oder Alkinyloxycarbonyl substituiertes Alkyl steht,

5 R^2 weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, substituiertes Alkenyl oder Alkinyl steht,

10 R^2 weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkinylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl oder Alkinyloxycarbonyl steht,

R^2 weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano oder Carboxy substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylcarbonyl steht, und

15 Ar für die nachstehend definierte substituierte, monocyclische oder bicyclische Aryl- oder Heteroaryl-Gruppierung steht,



20 worin

R^3 für Wasserstoff oder Halogen steht,

R^4 für Wasserstoff oder Halogen steht,

25 R^5 für Cyano, Carboxy, Chlorcarbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Hydroxy, Halogen oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl, Alkoxy oder Alkoxy-carbonyl steht,

R^6 für die nachstehende Gruppierung steht,

-A¹-A²-A³

in welcher

5

A¹ für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Aryl, Alkylcarbonyl, Arylcarbonyl, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl steht,

10

A¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkandiyl, Alkendiyl, Azaalkendiyl, Alkendiyl, Cycloalkandiyl, Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,

15

A² für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Alkyl, Alkoxy, Aryl, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl steht,

20

A² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkandiyl, Alkendiyl, Azaalkendiyl, Alkendiyl, Cycloalkandiyl, Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,

25

A³ für Wasserstoff steht mit der Maßgabe, daß in diesem Fall A¹ und/oder A² nicht für eine Einfachbindung stehen

30

A³ weiterhin für Hydroxy, Mercapto, Amino, Cyano, Isocyano, Thiocyanato, Nitro, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Sulfo, Chlorsulfonyl, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen oder Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkoxy-carbonyl oder Dialkoxy-(thio)phosphoryl steht,

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenylthio, Alkenylamino, Alkylidenamino, Alkenyloxycarbonyl, Alkinyl, Alkinyloxy, Alkinylthio, Alkinylamino oder Alkinyloxycarbonyl steht,

5

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Carboxy, Alkyl und/oder Alkoxy-carbonyl substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkyloxy, Cycloalkylalkyl, Cycloalkylalkoxy, Cycloalkylidenamino, Cycloalkyloxycarbonyl oder Cycloalkylalkoxycarbonyl steht,

10

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Carboxy, Halogen, Alkyl, Halogenalkyl, Alkyloxy, Halogenalkyloxy und/oder Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl, Aryloxy, Aralkyl, Arylalkoxy, Aryloxycarbonyl oder Arylalkoxycarbonyl steht,

15

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls ganz oder teilweise hydriertes Pyrrolyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Triazolyl, Furyl, Oxiranyl, Oxetanyl, Dioxolanyl, Thienyl, Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl, Pyridinyl, Pyrimidinyl, Triazinyl, Pyrazolylalkyl, Furylalkyl, Thienylalkyl, Oxazolylalkyl, Isoxazolylalkyl, Thiazolylalkyl, Pyridinylalkyl, Pyrimidinylalkyl, Pyrazolylalkoxy, Furylalkoxy, für Perhydropyranylalkoxy oder Pyridylalkoxy steht, und

20

R⁷ für Wasserstoff oder Halogen steht,

25

oder jeweils zwei benachbarte Reste - R³ und R⁴, R⁴ und R⁵, R⁵ und R⁶ oder R⁶ und R⁷ - zusammen für eine der nachstehenden Gruppierungen stehen

-Q³-CQ⁴-, -Q³-CQ⁴-Q⁵-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-, -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-, -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -Q³-C(R⁸)=C(R⁸)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-, -C(R⁸)=N-, -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-,

30

$-Q^3-CQ^4-N(R^{10})-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8,R^9)-Q^3-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8)=C(R^8)-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8)=C(R^8)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$,
5 $-N(R^{10})-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8)=N-N(R^{10})-$,
 $-Q^3-CQ^4-C(R^8,R^9)-N(R^{10})-$, $Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$

wobei

10 Q^3 , Q^4 und Q^5 gleich oder verschieden sind und jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen,

R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind und einzeln für Wasserstoff, Halogen oder Alkyl stehen oder zusammen für Alkandiyl stehen, und

15

R^{10} für Wasserstoff, Hydroxy, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, Alkoxy, Alkyl-carbonyl oder Alkoxy-carbonyl substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylsulfonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl, für jeweils
20 gegebenenfalls durch Halogen oder Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkoxy oder Alkenyloxy, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, Alkyl, Halogenalkyl, Alkoxy oder Halogenalkoxy substituiertes Arylalkyl oder Arylalkoxy steht,

25

mit der Maßgabe, daß R^1 und R^2 nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen können und die Verbindungen 4-(3,4-Dichlor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on und 4-(4-Chlor-3-trifluormethyl-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on ausgenommen sind.

30

2. Substituierte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formel (Ia)

in welcher

Q¹, Q², R¹, R² und Ar in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben
und

5

R für Alkyl steht,

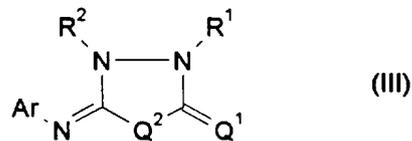
gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls
in Gegenwart eines Verdünnungsmittels cyclisierend kondensiert und gege-
benenfalls im Anschluß daran im Rahmen der Substituentendefinition auf
übliche Weise elektrophile oder nucleophile Substitutionsreaktionen durch-
führt,

10

oder daß man

15

(b) Aryliminoheterocyclen der allgemeinen Formel (III)



20

in welcher

Q¹, Q², R¹, R² und Ar die oben angegebenen Bedeutungen haben,

- oder Verbindungen der Formel (Ia) oder (Ib) - oben -

25

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels thermisch ("pyrolytisch") isomerisiert.

5. Substituierte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formeln (I), (Ia)
und (Ib) gemäß der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß

30

Q¹ für Sauerstoff oder Schwefel steht,

Q² für Sauerstoff oder Schwefel steht,

5

R¹ für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₃-C₄-Alkenyloxy, C₃-C₄-Alkinyloxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₃-C₄-Alkenylthio, C₃-C₄-Alkinylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₄-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₄-Alkinyloxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl steht,

10

R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinylnyl steht,

15

R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₆-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkinylnyl-carbonyl, C₁-C₆-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₆-Alkinyloxy-carbonyl steht,

20

R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder Carboxy substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-carbonyl steht,

25

R² für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₃-C₄-Alkenyloxy, C₃-C₄-Alkinyloxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₃-C₄-Alkenylthio, C₃-C₄-Alkinylthio, C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₄-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₄-Alkinyloxy-carbonyl substituiertes C₁-C₆-Alkyl steht,

30

R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₃-C₆-Alkenyl oder C₃-C₆-Alkinylnyl steht,

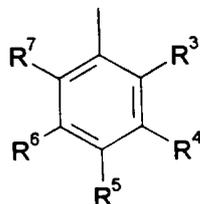
R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₆-Alkyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyl-carbonyl, C₃-C₆-Alkinylnyl-

108

carbonyl, C₁-C₆-Alkoxy-carbonyl, C₃-C₆-Alkenyloxy-carbonyl oder C₃-C₆-Alkinyloxy-carbonyl steht,

5 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Cyano oder Carboxy substituiertes C₃-C₆-Cycloalkyl oder C₃-C₆-Cycloalkyl-carbonyl steht, und

10 Ar für die nachstehend definierte substituierte, monocyclische oder bicyclische Aryl- oder Heteroaryl-Gruppierung steht,



worin

15 R³ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Brom steht,

R⁴ für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Brom steht,

20 R⁵ für Cyano, Carboxy, Chlorcarbonyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Hydroxy, Fluor, Chlor, Brom oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkyl, Alkoxy oder Alkoxy-carbonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen steht,

R⁶ für die nachstehende Gruppierung steht,

25 -A¹-A²-A³

in welcher

5 A¹ für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, C₃-C₄-Alkenyl, C₃-C₄-Alkinyl, C₁-C₄-Alkoxy, Phenyl, C₁-C₄-Alkyl-carbonyl, Phenylcarbonyl, C₁-C₄-Alkyl-sulfonyl oder Phenylsulfonyl steht,

10 A¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes C₁-C₆-Alkandiyl, C₂-C₆-Alkendiyl, C₂-C₆-Azaalkendiyl, C₂-C₆-Alkindiyl, C₃-C₆-Cycloalkandiyl, C₃-C₆-Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,

15 A² für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, Phenyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl oder Phenylsulfonyl steht,

20 A² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes C₁-C₆-Alkandiyl, C₂-C₆-Alkendiyl, C₂-C₆-Azaalkendiyl, C₂-C₆-Alkindiyl, C₃-C₆-Cycloalkandiyl, C₃-C₆-Cycloalkendiyl oder Phenylen steht,

25 A³ für Wasserstoff steht, mit der Maßgabe, daß in diesem Fall A¹ und/oder A² nicht für eine Einfachbindung stehen,

30 A³ weiterhin für Hydroxy, Mercapto, Amino, Cyano, Isocyano, Thiocyanato, Nitro, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Sulfo, Chlorsulfonyl, Fluor, Chlor, Brom steht,

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder C₁-C₄-Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl, Alkylamino, Dialkylamino, Alkoxy-carbonyl oder Dialkoxy(thio)-phosphoryl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

- A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Alkenyl, Alkenyloxy, Alkenylamino, Alkylidenamino, Alkenyloxycarbonyl, Alkinylyl, Alkinyloxy, Alkinylamino oder Alkinyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkenyl-, Alkyliden- oder Alkinylylgruppen steht,
- A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, C₁-C₄-Alkyl und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Cycloalkyl, Cycloalkyloxy, Cycloalkylalkyl, Cycloalkylalkoxy, Cycloalkylidenamino, Cycloalkyloxycarbonyl oder Cycloalkylalkoxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,
- A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkyloxy, C₁-C₄-Halogenalkyloxy und/oder C₁-C₄-Alkoxy-carbonyl substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, Phenyl-oxy-carbonyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkoxycarbonyl steht,
- A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls ganz oder teilweise hydriertes Pyrrolyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Triazolyl, Furyl, Oxiranyl, Oxetanyl, Dioxolanyl, Thienyl, Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl, Pyridinyl, Pyrimidinyl, Triazinyl, Pyrazolyl-C₁-C₄-alkyl, Furyl-C₁-C₄-alkyl, Thienyl-C₁-C₄-alkyl, Oxazolyl-C₁-C₄-alkyl, Isoxazolyl-C₁-C₄-alkyl, Thiazolyl-C₁-C₄-alkyl, Pyridinyl-C₁-C₄-alkyl, Pyrimidinyl-C₁-C₄-alkyl, Pyrazolylmethoxy, Furylmethoxy, für Perhydropyranylmethoxy oder Pyridylmethoxy steht, und
- R⁷ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,
- oder jeweils zwei benachbarte Reste - R³ und R⁴, R⁴ und R⁵, R⁵ und R⁶ oder R⁶ und R⁷ - zusammen für eine der nachstehenden Gruppierungen stehen

$-Q^3-CQ^4-$, $-Q^3-CQ^4-Q^5-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-Q^5-$, $-C(R^8,R^9)-CQ^4-$,
 $-C(R^8,R^9)-Q^3-CQ^4-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-$,
 $Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-Q^5-$, $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-$,
5 $-Q^3-C(R^8)=C(R^8)-$, $-C(R^8)=C(R^8)-CQ^4-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-CQ^4-$,
 $-N(R^{10})-C(R^8,R^9)-CQ^4-$, $-C(R^8)=N-$, $-Q^3-CQ^4-C(R^8,R^9)-$,
 $-Q^3-CQ^4-N(R^{10})-$, $-Q^3-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8,R^9)-Q^3-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-N(R^{10})-$,
10 $-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8)=C(R^8)-N(R^{10})-$,
 $-C(R^8)=C(R^8)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$,
 $-N(R^{10})-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$, $-C(R^8)=N-N(R^{10})-$,
 $-Q^3-CQ^4-C(R^8,R^9)-N(R^{10})-$, $Q^3-C(R^8,R^9)-C(R^8,R^9)-CQ^4-N(R^{10})-$

wobei

15 Q^3 , Q^4 und Q^5 gleich oder verschieden sind und jeweils für Sauerstoff oder Schwefel stehen,

20 R^8 und R^9 gleich oder verschieden sind und einzeln für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom oder C_1 - C_4 -Alkyl stehen oder zusammen für C_2 - C_5 -Alkandiyl stehen, und

25 R^{10} für Wasserstoff, Hydroxy oder für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkyl-carbonyl oder C_1 - C_4 -Alkoxy-carbonyl substituiertes Alkyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen steht,

30 R^{10} weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen steht,

R^{10} weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6

Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 3 Atomen in der Alkylgruppe steht,

5 R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Alkoxy oder Alkenyloxy mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen steht,

10 R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkoxy substituiertes Benzyl oder Benzyloxy steht,

15 mit der Maßgabe, daß R¹ und R² nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen können und die Verbindungen 4-(3,4-Dichlor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on und 4-(4-Chlor-3-trifluormethyl-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on ausgenommen sind.

6. Substituierte N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formeln (I), (Ia) und (Ib), gemäß der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß

20 Q¹ für Sauerstoff oder Schwefel steht,

Q² für Sauerstoff oder Schwefel steht,

25 R¹ für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht,

R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl steht,

30

R¹ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht,

R¹ weiterhin für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Cyclopropyl steht,

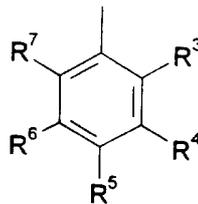
5 R² für Wasserstoff, Cyano, Formyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl steht,

10 R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl steht,

R² weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl steht,

15 R² weiterhin für gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Cyclopropyl steht, und

20 Ar für die nachstehend definierte substituierte, monocyclische oder bicyclische Aryl- oder Heteroaryl-Gruppierung steht,



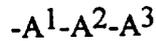
worin

25 R³ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

R⁴ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor oder steht,

R⁵ für Cyano, Thiocarbamoyl, Chlor, Brom, Methyl, Trifluormethyl, Methoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy steht,

R⁶ für die nachstehende Gruppierung steht,



in welcher

A¹ für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl steht,

A¹ weiterhin für Methylen, Ethan-1,1-diyl, Ethan-1,2-diyl, Propan-1,1-diyl, Propan-1,2-diyl, Propan-1,3-diyl, Ethen-1,2-diyl, Propen-1,2-diyl, Propen-1,3-diyl, Ethin-1,2-diyl, Propin-1,2-diyl oder Propin-1,3-diyl steht,

A² für eine Einfachbindung oder für Sauerstoff, Schwefel, -SO-, -SO₂-, -CO- oder die Gruppierung -N-A⁴- steht, worin A⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl oder Phenylsulfonyl steht,

A² weiterhin für Methylen, Ethan-1,1-diyl, Ethan-1,2-diyl, Propan-1,1-diyl, Propan-1,2-diyl, Propan-1,3-diyl, Ethen-1,2-diyl, Propen-1,2-diyl, Propen-1,3-diyl, Ethin-1,2-diyl, Propin-1,2-diyl oder Propin-1,3-diyl steht,

A³ für Wasserstoff steht, mit der Maßgabe, daß in diesem Fall A¹ und/oder A² nicht für eine Einfachbindung stehen,

A³ weiterhin für Hydroxy, Amino, Cyano, Nitro, Carboxy, Carbamoyl, Sulfo, Fluor, Chlor, Brom steht,

5 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, n-, i-, s- oder t-Pentyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, n-, i-, s- oder t-Pentyloxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Dimethoxyphosphoryl, Diethoxyphosphoryl oder Dipropoxyphosphoryl, Diisopropoxyphosphoryl steht,

10
15 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Propenyl, Butenyl, Propenyloxy, Butenyloxy, Propenylamino, Butenylamino, Propylidenamino, Butylidenamino, Propenyloxycarbonyl, Butenyloxycarbonyl, Propinyl, Butinyl, Propinyloxy, Butinyloxy, Propinylamino, Butinylamino, Propinyloxycarbonyl oder Butinyloxycarbonyl steht,

20
25 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Cyano, Carboxy, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxycarbonyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropyloxy, Cyclobutyloxy, Cyclopentyloxy, Cyclohexyloxy, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl, Cyclohexylmethyl, Cyclopropylmethoxy, Cyclobutylmethoxy, Cyclopentylmethoxy, Cyclohexylmethoxy, Cyclopentylidenamino, Cyclohexylidenamino, Cyclopentyloxycarbonyl, Cyclohexyloxycarbonyl, Cyclopentylmethoxycarbonyl oder Cyclohexylmethoxycarbonyl steht,

30 A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Carboxy, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methoxycarbonyl und/oder Ethoxycarbonyl substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Benzyl, Phenylethyl, Benzyloxy, Phenyloxycarbonyl, Benzyloxycarbonyl steht,

A³ weiterhin für jeweils gegebenenfalls ganz oder teilweise hydriertes Pyr-
 rolyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Triazolyl, Furyl, Thienyl, Oxazolyl, Isoxa-
 zolyl, Thiazolyl, Isothiazolyl, Oxadiazolyl, Thiadiazolyl, Pyridinyl, Pyrimi-
 5 dinyl, Triazinyl, Pyrazolylmethyl, Furylmethyl, Thienylmethyl, Oxazolyl-
 methyl, Isoxazolylmethyl, Thiazolylmethyl, Pyridinylmethyl, Pyrimidinyl-
 methyl, Pyrazolylmethoxy, Furylmethoxy oder Pyridylmethoxy steht,

R⁷ für Wasserstoff, Fluor oder Chlor steht,

10

oder jeweils zwei benachbarte Reste - R³ und R⁴, R⁴ und R⁵, R⁵ und R⁶ oder
 R⁶ und R⁷ - zusammen für eine der nachstehenden Gruppierungen stehen

15

-Q³-CQ⁴-, -Q³-CQ⁴-Q⁵-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-, -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-Q⁵-,
 -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-, -Q³-C(R⁸)=C(R⁸)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-,
 -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-, -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-,
 -C(R⁸)=N-, -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-, -Q³-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 20 -Q³-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -C(R⁸,R⁹)-Q³-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-N(R¹⁰)-, -C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸)=C(R⁸)-N(R¹⁰)-, -C(R⁸)=C(R⁸)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-, -N(R¹⁰)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-,
 -C(R⁸)=N-N(R¹⁰)-, -Q³-CQ⁴-C(R⁸,R⁹)-N(R¹⁰)-,
 25 Q³-C(R⁸,R⁹)-C(R⁸,R⁹)-CQ⁴-N(R¹⁰)-

wobei

30

Q³, Q⁴ und Q⁵ gleich oder verschieden sind und jeweils für Sauerstoff oder
 Schwefel stehen,

R⁸ und R⁹ gleich oder verschieden sind und einzeln für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl oder Ethyl stehen oder zusammen für Ethan-1,2-diyl (Dimethylen) stehen, und

5 R¹⁰ für Wasserstoff, Hydroxy oder für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxy-carbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-,s oder t-Butyl steht,

10 R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl steht,

15 R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl steht,

20 R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Fluor und/oder Chlor substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i- oder s-Butoxy, Propenyloxy oder Butenyloxy steht,

25 R¹⁰ weiterhin für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Benzyl oder Benzyloxy steht,

30 mit der Maßgabe, daß R¹ und R² nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen können und die Verbindungen 4-(3,4-Dichlor-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on und 4-(4-Chlor-3-trifluormethyl-phenyl)-1,2-dimethyl-5-thioxo-1,2,4-triazolidin-3-on ausgenommen sind.

7. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem N-Aryl-Stickstoffheterocyclus der allgemeinen Formel (I), (Ia) oder (Ib) gemäß den Ansprüchen 1 bis 6.

8. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formeln (I), (Ia) oder (Ib) gemäß den Ansprüchen 1 bis 6 auf unerwünschte Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
- 5
9. Verwendung von N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formeln (I), (Ia) oder (Ib) gemäß der Ansprüche 1 bis 6 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
- 10
10. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man N-Aryl-Stickstoffheterocyclen der allgemeinen Formeln (I), (Ia) oder (Ib) gemäß der Ansprüche 1 bis 6 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter. nal Application No
PCT/EP 95/04759

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 6 C07D249/12 C07D413/04 C07D405/04 A01N43/653

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>JOURNAL OF PHARMACEUTICAL SCIENCES, vol. 82, no. 4, April 1993 WASHINGTON DC, US, pages 408-15, R. SIMLOT ET AL. 'Synthesis and hypolipidemic activity of 4-substituted 1-acyl-1,2,4-triazolidine-3,5-diones in rodents' see Page 411, Compounds 15</p>	<p>1,4,5,7, 10</p>
X	<p>--- CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 89, no. 3, 17 July 1978 Columbus, Ohio, US; abstract no. 24319z, page 653; see abstract & JP,A,78 018 571 (MITSUBISHI CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD.) 20 February 1978 ---</p>	<p>1,4-7,10</p>
-/--		

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- * 'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- * 'E' earlier document but published on or after the international filing date
- * 'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- * 'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- * 'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- * 'T' later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- * 'X' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- * 'Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- * '&' document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

29 March 1996

Date of mailing of the international search report

17. 04. 96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Allard, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter. nal Application No
PCT/EP 95/04759

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X,Y	GB,A,2 055 826 (CHEVRON RESEARCH COMPANY) 11 March 1981 cited in the application see the whole document ---	1-10
X,Y	GB,A,2 041 353 (CHEVRON RESEARCH COMPANY) 10 September 1980 cited in the application see the whole document ---	1-10
X,Y	GB,A,2 063 855 (CHEVRON RESEARCH COMPANY) 10 June 1981 see the whole document, in particular Page 4, Compounds 3 and 6 ---	1-10
X,Y	EP,A,0 011 693 (CIBA-GEIGY AG) 11 June 1980 cited in the application see the whole document , in particular Pages 91, 92 in abstract with page 25 ---	1-10
Y	US,A,5 108 486 (K. KONDO ET AL.) 28 April 1992 see the whole document -----	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 95/04759

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB-A-2055826	11-03-81	US-A- 4326878	27-04-82
		CA-A- 1148550	21-06-83
		DE-A- 3026739	19-02-81
		FR-A- 2462430	13-02-81
		JP-A- 56020578	26-02-81

GB-A-2041353	10-09-80	US-A- 4276420	30-06-81
		CA-A- 1120039	16-03-82
		DE-A- 2952685	21-08-80
		FR-A- 2448537	05-09-80
		JP-A- 55105673	13-08-80
		US-A- 4326878	27-04-82

GB-A-2063855	10-06-81	NONE	

EP-A-11693	11-06-80	NONE	

US-A-5108486	28-04-92	US-A- 5310724	10-05-94

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 95/04759

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
 IPK 6 C07D249/12 C07D413/04 C07D405/04 A01N43/653

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
 IPK 6 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	JOURNAL OF PHARMACEUTICAL SCIENCES, Bd. 82, Nr. 4, April 1993 WASHINGTON DC, US, Seiten 408-15, R. SIMLOT ET AL. 'Synthesis and hypolipidemic activity of 4-substituted 1-acyl-1,2,4-triazolidine-3,5-diones in rodents' siehe Seite 411, Verbindung 15	1,4,5,7, 10
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 89, no. 3, 17. Juli 1978 Columbus, Ohio, US; abstract no. 24319z, Seite 653; siehe Zusammenfassung & JP,A,78 018 571 (MITSUBISHI CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD.) 20. Februar 1978 --- -/--	1,4-7,10

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

29. März 1996

Abenddatum des internationalen Recherchenberichts

17. 04. 96

Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde
 Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Allard, M

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 95/04759

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X,Y	GB,A,2 055 826 (CHEVRON RESEARCH COMPANY) 11.März 1981 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument ---	1-10
X,Y	GB,A,2 041 353 (CHEVRON RESEARCH COMPANY) 10.September 1980 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument ---	1-10
X,Y	GB,A,2 063 855 (CHEVRON RESEARCH COMPANY) 10.Juni 1981 siehe das ganze Dokument, insbesondere Seite 4, Verbindungen 3 und 6 ---	1-10
X,Y	EP,A,0 011 693 (CIBA-GEIGY AG) 11.Juni 1980 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument, insbesondere Seiten 91, 92 in Zusammenhang mit Seite 25 ---	1-10
Y	US,A,5 108 486 (K. KONDO ET AL.) 28.April 1992 siehe das ganze Dokument -----	1-10

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 95/04759

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
GB-A-2055826	11-03-81	US-A- 4326878	27-04-82
		CA-A- 1148550	21-06-83
		DE-A- 3026739	19-02-81
		FR-A- 2462430	13-02-81
		JP-A- 56020578	26-02-81

GB-A-2041353	10-09-80	US-A- 4276420	30-06-81
		CA-A- 1120039	16-03-82
		DE-A- 2952685	21-08-80
		FR-A- 2448537	05-09-80
		JP-A- 55105673	13-08-80
		US-A- 4326878	27-04-82

GB-A-2063855	10-06-81	KEINE	

EP-A-11693	11-06-80	KEINE	

US-A-5108486	28-04-92	US-A- 5310724	10-05-94
