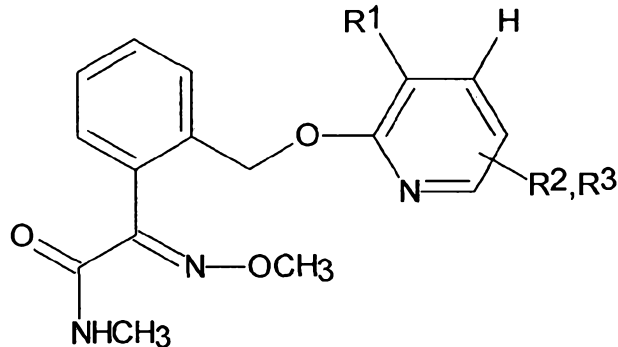


K I V O N A T

FUNGICID ÉS PESTICID HATÁSÚ

✓ **§§** Szubsztituált 2-(2-piridil-oxi)-fenil-acetamidok (mint fungicidek és peszticidek) előállításuk és alkalmazásuk

(~~A találmány tárgya~~) Az (I) általános-képletű szubsztituált 2-(2-piridil-oxi)-fenil-acetamidok (~~ahol~~) (I) általános képletében



(I)

R¹ F, Cl, metil- vagy halogén-metilcsoport;

R² F, Br, alkil- vagy halogén-metilcsoport;

R³ H vagy az R²-nél megnevezett csoportok egyike;

vagy

R² 6-Cl, ha R³ = H;

R³ 5-Cl, ha R² = F — vagy

(~~valamint azok az (I) általános képletű vegyületek képezik, amelyek képletében~~) R¹, R² és R³ mindegyike klóratomot jelent,

azzal a megszorítással, hogy R¹ ≠ Cl, ha R² = 5-CF₃ és R³ = H.

(~~A találmány tárgya továbbá eljárás az (I) általános képletű vegyületek előállítására és alkalmazásuk káros gombák és állati kártevők leküzdésére.~~)

jellemző ábra: (I)

del

01101125

P 0006739

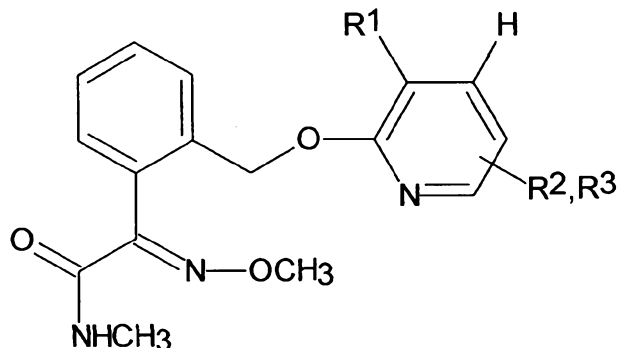
S.B.G. & K.
Nemzetközi
Szabadalmi Iroda
H-1062 Budapest, Andrásy út 113.
Telefon: 34-24-950, Fax: 34-24-323

70.067/BE
100

Fungicid és peszticid hatású

(Szubsztituált 2-(2-piridil-oxi)-fenil-acetamidok (mint fungicidek és peszticidek) előállításuk és alkalmazásuk)

A találmány tárgyát az



KÖZZÉTÉTELI
PÉLDÁNY A2

(I)

általános képletű szubsztituált 2-(2-piridil-oxi)-fenil-acetamidok — amelyek képletében

R^1 jelentése fluor-, klóratom, metil- vagy halogén-metilcsoport;

R^2 jelentése fluor-, brómatom, 1-4 szénatomos alkil- vagy halogén-metil-csoport;

R^3 jelentése hidrogénatom vagy az R^2 -nél megnevezett csoportok egyike;

vagy

R^2 jelentése 6-klóratom, ha R^3 hidrogénatomot jelent;

R^3 jelentése 5-klóratom, ha R^2 fluoratomot jelent —

valamint azok az (I) általános képletű vegyületek képezik, amelyek képletében R^1 , R^2 és R^3 mindegyike klóratomot jelent,

azzal a megszorítással, hogy R^1 jelentése klóratomtól eltérő, ha R^2 5-(trifluor-metil)-csoportot és R^3 hidrogénatomot jelent.

A találmány tárgya továbbá eljárás az (I) általános képletű vegyületek és az ezeket a vegyületeket hatóanyagként tartalmazó készítmények előállítására és az (I) általános képletű vegyületek alkalmazása káros gombák és állati kártevők leküzdésére.

Az orto-helyzetben heteroaril-oxi-csoportokat tartalmazó α -



-fenil- α -(alkoxi-imino)-acetamidokat már az alábbi szabadalmi iratok ismertetik: EP-A 398 692, EP-A 629 609 és EP-A 760 363. A megnevezett szabadalmi iratokban leírt vegyületek káros gombák elleni növényvédőszerként és részben baktericid hatóanyagokként használhatók.

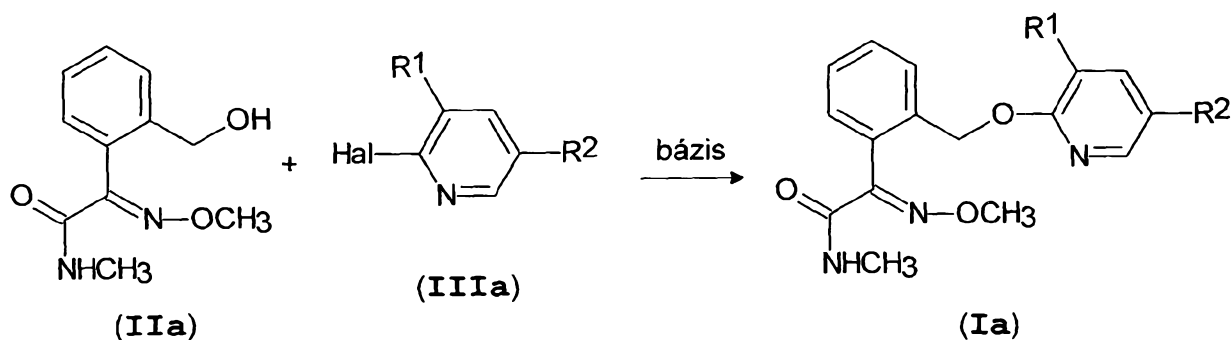
Ezek hatása azonban nem mindig teljesen kielégítő. A találmány célja ezért az volt, hogy az eddigieknél jobb hatású vegyületeket találjunk.

Ennek megfelelően találtuk az (I) általános képletű fenil-ecetsavszármazékokat. Továbbá eljárást találtunk az előállításhoz, valamint az (I) általános képletű vegyületek és az ezeket hatóanyagokként tartalmazó készítmények alkalmazását káros gombák és állati kártevők leküzdésére. Előnyös a fungicid hatás.

Az (I) általános képletű vegyületek a fenti szabadalmi iratokból ismert vegyületektől a (2-piridil-oxi)-csoport szubsztitúciójában különböznek, amely csoportot a 3-helyzetben a speciálisan kialakított R^1 csoport szubsztituálja, és amelynek a 4-helyzetben szubsztituálatlannak kell lennie. Az ismert vegyületekhez képest az (I) általános képletű vegyületek fokozott hatást mutatnak káros gombákkal és állati kártevőkkel szemben.

Az (I) általános képletű vegyületeket az EP-A 760 363 számú szabadalmi iratban leírt eljárásokkal önmagában analóg módon állíthatjuk elő.

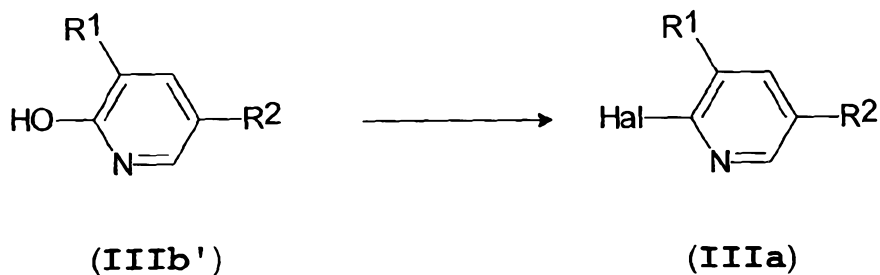
Az (Ia) általános képletű vegyületeket főleg az alábbi szintézisúton nyerjük:



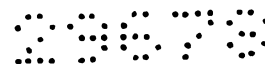
A (IIa) képletű benzil-alkohol-származéknak a (IIIa) általános képletű 2-halogén-piridinekkel — ahol Hal halogénatomot, így például klór- vagy brómatomot jelent — való kondenzációjára önmagában ismert reakciókörülmények között megy végbe (lásd az EP-A 760 363 és az EP-A 398 692 számú szabadalmi iratot).

A (IIIa) általános képletű 2-halogén-piridinek a kereskedelmi forgalomban kaphatók, vagy ezeket a szakirodalomból ismert módszerekkel állíthatjuk elő [lásd US 4,279,913; US 4,491,468; JP-A 58/206 563; J. Org. Chem., 1726 (1989)].

A (IIIa) általános képletű 2-halogén-piridineket halogénezéssel, például foszforil-trikloriddal való halogénezéssel nyerjük a megfelelő (IIIb') általános képletű 2-hidroxi-piridinekből. A halogénezési reakció ismert reakciókörülmények [lásd Houben-Weyl, „Methoden der Organischen Chemie”, 5/3 kötet, 4. kiadás, 924. oldaltól, Thieme Verlag, Stuttgart und New York (1962)] között megy végbe.

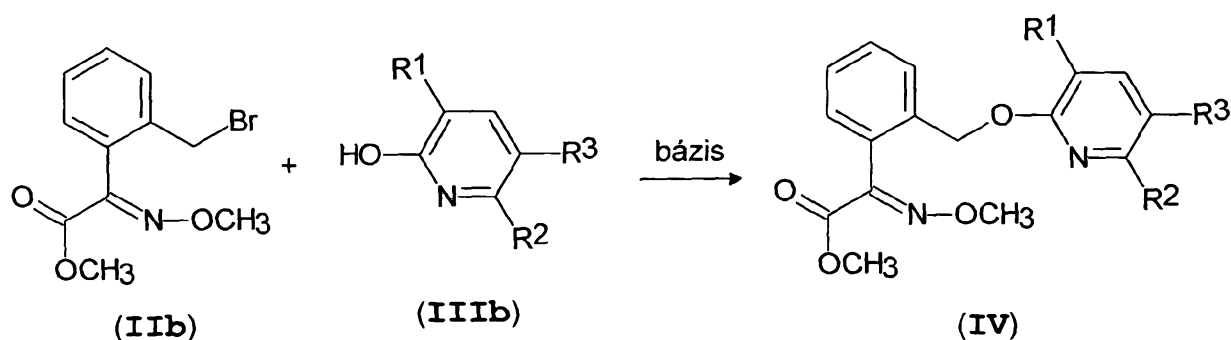


A (IIa) képletű benzil-alkohol-származék a szakirodalomból



szintén ismert vegyület, és ezt ismert reakciókörülmények között nyerhetjük (lásd EP-A 398 692).

Különösen előnyösen nyerjük az (Ib) általános képletű vegyületeket a megfelelő (IV) általános képletű észtereken keresztül, az alábbi szintézisúton:



A (IIb) képletű benzil-bromid-származéknak a (IIIb) általános képletű 2-hidroxi-piridinekkel való kondenzációja önmagában ismert reakciókörülmények között megy végbe (DE-A 38 35 028).

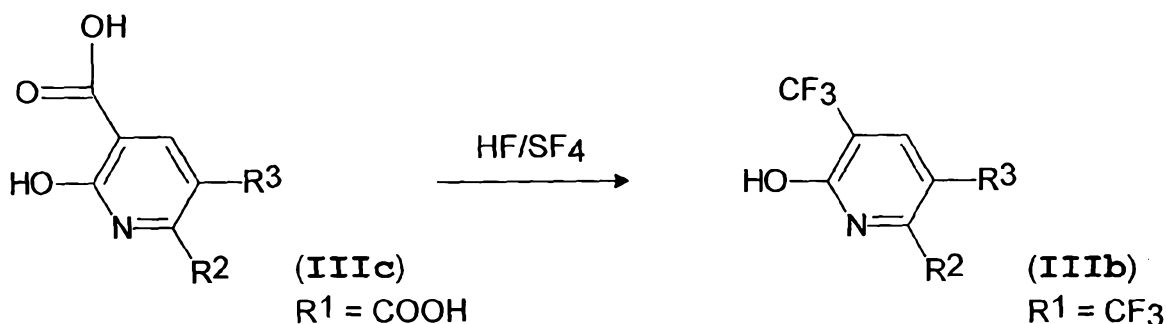
A (IIb) képletű benzil-bromid-származék a szakirodalomból szintén ismert vegyület, és ezt ismert reakciókörülmények között nyerhetjük (lásd EP-A 420 091; DE-A 39 17 351).

A (IIIb) általános képletű 2-hidroxi-piridinek a kereskedelmi forgalomban kaphatók, vagy ezeket a szakirodalomból ismert módszerekkel analóg módon állíthatjuk elő. Az olyan (IIIb) általános képletű 2-hidroxi-piridineket, amelyek képletében R^1 , R^2 vagy R^3 trifluor-metilcsoportot jelent előnyösen a kereskedelmi forgalomban kapható (IIIc) általános képletű 2-hidroxi-piridin-karbonsavakból nyerjük, hidrogén-fluoriddal és kén-tetrafluoriddal való reakcióval (lásd DE-A 3 620 064).

Például az olyan (IIIb) általános képletű vegyületeket, amelyek képletében R^1 jelentése trifluor-metilcsoport az alábbi reakcióvázlat szerint a megfelelő (IIIc) általános képletű 2-hid-

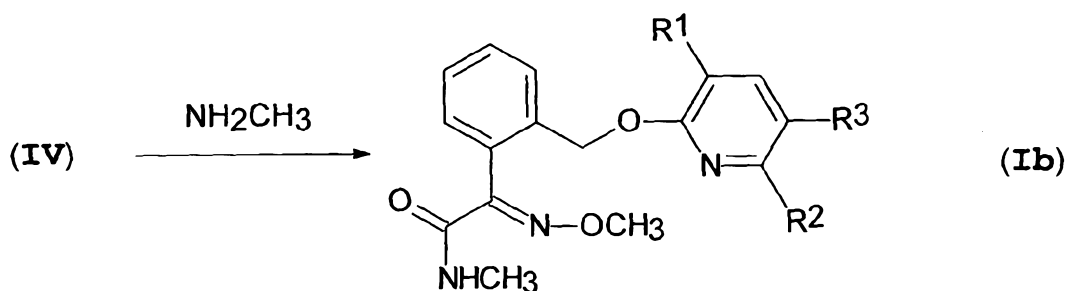


roxi-piridin-3-karbonsavakból nyerjük:



A (IIIc) általános képletű 2-hidroxi-piridinkarbonsavak a szakirodalomból szintén ismert vegyületek (lásd EP-A 225 172; US 4,960,896; US 5,034,531), vagy ezeket az idézett szakirodalmi forrásokban leírtakkal analóg módon állíthatjuk elő.

A (IV) általános képletű észterek amidálása előnyösen metil-aminnal történik, ismert reakciókörülmények között (lásd az EP-A 398 692 számú szabadalmi iratot):



Az előállítási reakcióikban az (I) általános képletű vegyületek, C=N-kettőskötésük alapján E/Z-izomerelegyekként keletkezhetnek, amiket például kristályosítással vagy kromatográfiával a szokásos módon nagyon tiszta komponenseiké választhatunk szét.

Amennyiben a szintézis során izomerelegyek keletkeznek, úgy ezeket általában nem feltétlenül szükséges szétválasztani, mivel az egyes izomerek az alkalmazás céljára való feldolgozás során vagy az alkalmazásnál (például fény, sav vagy bázis hatására) egymásba alakulhatnak át. A megfelelő átalakulások felléphetnek



az alkalmazás után is, például a növények kezelésénél a kezelt növényekben vagy a leküzdeni kívánt káros gombákban vagy állati kártevőkben.

A $C=N-OCH_3$ képletű kettőskötésük vonatkozásában hatásukat tekintve előnyösek az (I) általános képletű vegyületek E-izomerjei (az $-OCH_3$ képletű csoport konfigurációja a $-CONHCH_3$ képletű csoporthoz képest).

A szimbólumoknak a fenti képleteknél való definícióiban gyűjtőfogalmakat használunk, amik általában reprezentatíven az alábbi szubsztituenseket jelentik:

1-4 szénatomos alkilcsoportok: telített, egyenes vagy elágazó szénláncú 1-4 szénatomos szénhidrogénekből képzett csoportok, így a metil-, etil-, propil-, izopropil-, butil-, szek-butil-, izobutil- és a terc-butilcsoport;

halogén-metilcsoportok: olyan metilcsoportok, amelyekben a hidrogénatomokat részben vagy teljesen halogénatomok helyettesítik, például a klór-metil-, bróm-metil-, diklór-metil-, triklór-metil-, fluor-metil-, difluor-metil-, trifluor-metil-, klór-fluor-metil-, diklór-fluor-metil- és a klór-difluor-metilcsoport.

Az (I) általános képletű piridin-oxi-amidok találmány szerinti felhasználását tekintve különösen előnyösek azok az (I) általános képletű vegyületek, amelyek képletében a szubsztituensek jelentése magukban vagy kombinációban a következő:

Előnyösek azok az (Ia) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 metilcsoportot jelent.

Ugyanígy különösen előnyösek azok az (Ia) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^2 trifluor-metilcsoportot jelent.



Emellett különösen előnyösek azok az (Ia) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 fluor- vagy klóratomot jelent.

Főleg azok az (Ia) általános képletű vegyületek is előnyösek, amelyek képletében R^1 trifluor-metilcsoportot jelent.

Ezenkívül különösen előnyösek azok az (Ia) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 1-4 szénatomos alkilcsoportot jelent.

Főleg azok az (Ia) általános képletű vegyületek az előnyösek, amelyek képletében R^2 fluor- vagy brómatomot jelent.

Ezenkívül különösen előnyösek azok az (Ib) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 trifluor-metilcsoportot jelent.

Ezenkívül különösen előnyösek azok az (Ib) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 fluor- vagy klóratomot jelent.

Ugyanígy különösen előnyösek azok az (Ib) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^2 trifluor-metilcsoportot jelent.

Továbbá különösen előnyösek azok az (Ib) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^3 hidrogénatomot jelent.

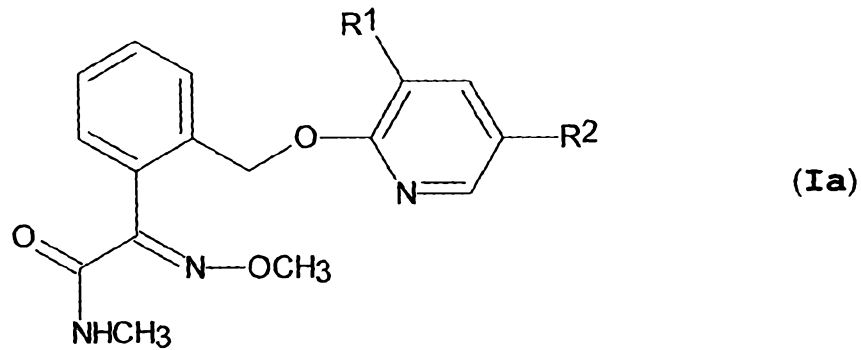
Emellett különösen előnyösek azok az (Ib) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^2 klóratomot és R^3 hidrogénatomot jelent.

Ezenkívül különösen előnyösek azok az (I) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 jelentése fluor-, klóratom, metil- vagy trifluor-metilcsoport; R^2 jelentése fluor-, brómatom, 1-4 szénatomos alkil- vagy trifluor-metilcsoport; R^3 jelentése hidrogénatom vagy az R^2 -nél megnevezett csoportok egyike.

Különösen előnyösek az (Ia) általános képletű 2-(2-piridil-oxi)-fenil-acetamidok, és ezek közül is főleg az alábbi A táb-



lázatban felsorolt



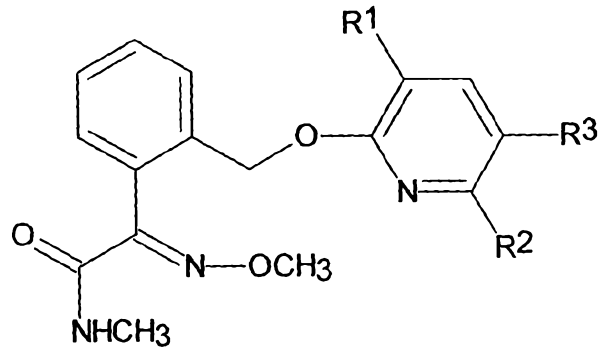
általános képletű vegyületek.

A táblázat

Szám	R ¹	R ²
A-1	metil	trifluor-metil
A-2	fluor	trifluor-metil
A-3	metil	difluor-metil
A-4	fluor	difluor-metil
A-5	klór	difluor-metil
A-6	metil	fluor
A-7	fluor	fluor
A-8	klór	fluor
A-9	metil	bróm
A-10	fluor	bróm
A-11	klór	bróm
A-12	trifluor-metil	trifluor-metil
A-13	trifluor-metil	fluor
A-14	trifluor-metil	bróm
A-15	trifluor-metil	metil
A-16	trifluor-metil	etil
A-17	trifluor-metil	propil
A-18	trifluor-metil	izopropil
A-19	trifluor-metil	butil
A-20	trifluor-metil	izobutil
A-21	trifluor-metil	terc-butil



Az

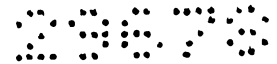


(Ib)

általános képletű vegyületek közül különösen előnyösek az alábbi B táblázatban felsorolt vegyületek.

B táblázat

Szám	R ¹	R ²	R ³
B-1	metil	trifluor-metil	H
B-2	metil	difluor-metil	H
B-3	metil	fluor	H
B-4	metil	bróm	H
B-5	metil	metil	H
B-6	metil	etil	H
B-7	metil	propil	H
B-8	metil	izopropil	H
B-9	metil	butil	H
B-10	metil	izobutil	H
B-11	metil	terc-butil	H
B-12	fluor	trifluor-metil	H
B-13	fluor	difluor-metil	H
B-14	fluor	fluor	H
B-15	fluor	bróm	H
B-16	fluor	metil	H
B-17	fluor	etil	H
B-18	fluor	propil	H
B-19	fluor	izopropil	H
B-20	fluor	butil	H
B-21	fluor	izobutil	H
B-22	fluor	terc-butil	H



B-23	klór	trifluor-metil	H
B-24	klór	difluor-metil	H
B-25	klór	fluor	H
B-26	klór	bróm	H
B-27	klór	metil	H
B-28	klór	etil	H
B-29	klór	propil	H
B-30	klór	izopropil	H
B-31	klór	butil	H
B-32	klór	izobutil	H
B-33	klór	terc-butil	H

Az (I) általános képletű vegyületek fungicid készítmények hatóanyagaiként alkalmazhatók. Ezek kitűnnek a fitopatogén gombák, főleg az Ascomycetes, Deuteromycetes, Phycomycetes és a Basidiomycetes osztályba tartozó fitopatogén gombák széles spektrumával szemben mutatott kiváló hatásukkal. Ezek részben szisztémás hatásúak, és ezért ezeket levél- és talajfungicid hatóanyagokként alkalmazhatjuk.

Különösen fontos a különböző haszonnövényeket valamint ezek magvait károsító számos gombafaj leküzdése; ilyen haszonnövény például a búza, rozs, árpa, zab, rizs, kukorica, gyep, banán, gyapot, szója, kávécseszeje, cukornád, szőlő, gyümölcsök, dísznövények és a zöldségek, így az uborka, bab, paradicsom, burgonya és a tök-félék.

Az (I) általános képletű vegyületek speciálisan alkalmasak a következő fitopatogén gombakártevők leküzdésére:

- *Alternaria*-fajok, a zöldségeken és a gyümölcsökön.
- *Botrytis cinerea*, a szamócán, zöldségeken, dísznövényeken és a szőlőn,
- *Cercospora arachidicola*, a földimogyorón,



- *Erysiphe cichoracearum* és *Sphaerotheca fuliginae*, a tökfélé-
ken,
- *Erysiphe graminis*, a gabonán,
- *Fusarium*- és *Verticillium*-fajok, különböző növényeken,
- *Helminthosporium*-fajok, a gabonán,
- *Mycosphaerella*-fajok, a banánon és a földimogyorón,
- *Phytophthora infestans*, a burgonyán és a paradicsomon,
- *Plasmopara viticola*, a szőlőn,
- *Podosphaera leucotricha*, az almán,
- *Pseudocercospora herpotrichoides*, a búzán és az árpán,
- *Pseudoperonospora*-fajok, a komlón és az uborkán,
- *Puccinia*-fajok, a gabonán,
- *Pyricularia oryzae*, a rizsen,
- *Rhizoctonia*-fajok, a gyapoton, rizsen és a gyepen,
- *Septoria nodorum*, a búzán,
- *Uncinula necator*, a szőlőn,
- *Ustilago*-fajok, a gabonán és a cukornádon, valamint a
- *Venturia*-fajok, az almán és a körtén.

Az (I) általános képletű vegyületek ezenkívül alkalmasak még a káros gombák, így a *Paecilomyces variotii* leküzdésére az anyagvédelemben (például a fa, papír, a diszperziós festékek, rostok illetve szövetek védelmében) és a készletek megóvásának a területén.

Az (I) általános képletű vegyületeket úgy alkalmazzuk, hogy a káros gombákat vagy a gombafertőzéstől megvédeni kívánt haszonnövényeket, vetőmagot, anyagokat vagy a talajt a hatóanyagok fungicidként hatásos mennyiségével kezeljük. A hatóanyagok al-



kalmazása az anyagok, a haszonnövények vagy magvaik gombafertőzöttsége előtt vagy után történhet.

A fungicid készítmények általában 0,1-95, előnyösen 0,5-90 tömegszázalék hatóanyagot tartalmaznak.

A növényvédelemben a felhasznált mennyiségek, a kívánt hatás fajtájától függően hektáronként 0,01 és 2,0 kg hatóanyag között vannak.

A vetőmagkezelésnél 1 kg vetőmaghoz általában 0,001-0,1 g, előnyösen 0,01-0,05 g hatóanyag szükséges.

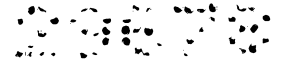
Az anyagvédelemben illetve a készletek megóvásának a területén a hatóanyagok felhasznált mennyisége az alkalmazási terület fajtájától és a kívánt hatástól függ. Az anyagvédelemben például 1 m³ kezelt anyaghoz a szokásos felhasználási mennyiségek 0,001 g és 2 kg, előnyösen 0,005 g és 1 kg hatóanyag között vannak.

Az (I) általános képletű vegyületek alkalmasak továbbá a rovarok, pókszabásúak és a fonálférgék osztályába tartozó állati kártevők leküzdésére is. Ezeket a vegyületeket alkalmazhatjuk a növényvédelemben valamint a higiénia, a készletek megóvása és az állatgyógyászat területén az állati kártevők leküzdésére. Ezek a vegyületek különösen alkalmasak az alábbi állati kártevők leküzdésére:

- rovarok, a lepkék (Lepidoptera) rendjéből például: az *Agrotis ypsilon*, *Agrotis segetum*, *Alabama argillacea*, *Anticarsia gemmatalis*, *Argyresthia conjugella*, *Autographa gamma*, *Bupalus piniarius*, *Cacoecia murinana*, *Capua reticulana*, *Cheimatobia brumata*, *Choristoneura fumiferana*, *Choristoneura occidentalis*, *Cirphis unipuncta*, *Cydia pomonella*, *Dendrolimus pini*, *Diaphania*

nitidalis, Diatraea grandiosella, Earias insulana, Elasmopalpus lignosellus, Eupoecilia ambiguella, Evetria bouliana, Feltia subterranea, Galleria mellonella, Grapholita funebrana, Grapholita molesta, Heliothis armigera, Heliothis virescens, Heliothis zea, Hellula undalis, Hibernia defoliaria, Hyphantria cunea, Hyponomeuta malinellus, Keiferia lycopersicella, Lambdina fiscellaria, Laphygma exigua, Leucoptera coffeella, Leucoptera scitella, Lithocolletis blancardella, Lobesia botrana, Loxostege sticticalis, Lymantria dispar, Lymantria monacha, Lyonetia clerkella, Malacosoma neustria, Mamestra brassicae, Orgyia pseudotsugata, Ostrinia nubilalis, Panolis flammea, Pectinophora gossypiella, Peridroma saucia, Phalera bucephala, Phthorimaea operculella, Phyllocnistis citrella, Pieris brassicae, Plathypena scabra, Plutella xylostella, Pseudoplusia includens, Phyacionia frustrana, Scrobipalpula absoluta, Sitotroga cerealella, Sparganothis pilleriana, Spodoptera frugiperda, Spodoptera littoralis, Spodoptera litura, Thaumtopoea pityocampa, Tortrix viridana, Trichoplusia ni és a Zeiraphera canadensis;

- a bogarak (Coleoptera) rendjéből például a következők: Agrilus sinuatus, Agriotes lineatus, Agriotes obscurus, Amphimallus solstitialis, Anisandrus dispar, Anthonomus grandis, Anthonomus pomorum, Atomaria linearis, Blastophagus piniperda, Blitophaga undata, Bruchus rufimanus, Bruchus pisorum, Bruchus lentis, Byctiscus betulae, Cassida nebulosa, Cerotoma trifurcata, Ceuthorrhynchus assimilis, Ceuthorrhynchus napi, Chaetocnema tibialis, Conoderus vespertinus, Crioceris asparagi,



Diabrotica longicornis, *Diabrotica 12-punctata*, *Diabrotica virgifera*, *Epilachna varivestis*, *Epitrix hirtipennis*, *Eutinobothrus brasiliensis*, *Hylobius abietis*, *Hypera brunneipennis*, *Hypera postica*, *Ips typographus*, *Lema bilineata*, *Lema melanopus*, *Leptinotarsa decemlineata*, *Limonius californicus*, *Lissorhoptrus oryzophilus*, *Melanotus communis*, *Meligethes aeneus*, *Melolontha hippocastani*, *Melolontha melolontha*, *Onlema oryzae*, *Ortiorrhynchus sulcatus*, *Ortiorrhynchus ovatus*, *Phaedon cochleariae*, *Phyllotreta chrysocephala*, *Phyllophaga* sp., *Phyllopertha horticola*, *Phyllotreta nemorum*, *Phyllotreta striolata*, *Popillia japonica*, *Sitona lineatus* és a *Sitophilus granaria*;

- a kétszárnyúak (Diptera) rendjéből például a következők: *Aedes aegypti*, *Aedes vexans*, *Anastrepha ludens*, *Anopheles maculipennis*, *Ceratitis capitata*, *Chrysomya bezziana*, *Chrysomya hominivorax*, *Chrysomya macellaria*, *Contarinia sorghicola*, *Cordylobia anthropophaga*, *Culex pipiens*, *Dacus cucurbitae*, *Dacus oleae*, *Dasineura brassicae*, *Fannia canicularis*, *Gasterophilus intestinalis*, *Glossia morsitans*, *Haematobia irritans*, *Haplodiplosis equestris*, *Hylemyia platura*, *Hypoderma lineata*, *Liriomyza sativae*, *Liriomyza trifolii*, *Lucilia caprina*, *Lucilia cuprina*, *Lucilia sericata*, *Lycoria pectoralis*, *Mayetiola destructor*, *Musca domestica*, *Muscina stabulans*, *Oestrus ovis*, *Oscinella frit*, *Pegomya hysocyani*, *Phorbia antiqua*, *Phorbia brassicae*, *Phorbia coarctata*, *Rhagoletis cerasi*, *Rhagoletis pomonella*, *Tabanus bovinus*, *Tipula oleracea* és a *Tipula paludosa*;

- a pillásszárnyúak (Thysanoptera) rendjéből például a követ-



kezők: *Frankliniella fusca*, *Frankliniella occidentalis*, *Frankliniella tritici*, *Scirtothrips citri*, *Thrips oryzae*, *Thrips palmi* és a *Thrips tabaci*;

- a hártyásszárnyúak (Hymenoptera) rendjéből például a következők: *Athalia rosae*, *Atta cephalotes*, *Atta sexdens*, *Atta texana*, *Hoplocampa minuta*, *Hoplocampa testudinea*, *Monomorium pharaonis*, *Solenopsis geminata* és a *Solenopsis invicta*;

- a poloskák (Heteroptera) rendjéből például a következők: *Arcosternum hilare*, *Blissus leucopterus*, *Cyrtopeltis notatus*, *Dysdercus cingulatus*, *Dysdercus intermedius*, *Eurygaster integriceps*, *Euchistus impictiventris*, *Leptoglossus phyllopus*, *Lygus lineolaris*, *Lygus pratensis*, *Nezara viridula*, *Piesma quadrata*, *Solubea insularis* és a *Thyanta perditor*;

- a kabócák (Homoptera) rendjéből például a következők: *Acyrtosiphon onobrychis*, *Adelges laricis*, *Aphidula nasturtii*, *Aphis fabae*, *Aphis pomi*, *Aphis sambuci*, *Brachycaudus cardui*, *Brevicoryne brassicae*, *Cerosipha gossypii*, *Dreyfusia nordmanniana*, *Dreyfusia piceae*, *Dysaphis radicola*, *Dysaulacorthum pseudosolani*, *Empoasca fabae*, *Macrosiphum avenae*, *Macrosiphum euphorbiae*, *Macrosiphon rosae*, *Megoura viciae*, *Metopolophium dirhodum*, *Myzodes persicae*, *Myzus cerasi*, *Nilaparvata lugens*, *Pemphigus bursarius*, *Perkinsiella saccharicida*, *Phorodon humuli*, *Psylla mali*, *Psylla piri*, *Rhopalomyzus ascalonicus*, *Rhopalosiphum maidis*, *Sappaphis mala*, *Sappaphis mali*, *Schizaphis graminum*, *Schizoneura lanuginosa*, *Trialeurodes vaporariorum* és a *Viteus vitifolii*;

- a termeszek (Isoptera) rendjéből például a következők: Calo-



termes flavicollis, Leucotermes flavipes, Reticulitermes lucifugus és a Termes natalensis;

- az egyenesszárnyúak (Orthoptera) rendjéből például a következők: Acheta domestica, Blatta orientalis, Blattella germanica, Forficula auricularia, Gryllotalpa gryllotalpa, Locusta migratoria, Melanoplus bivittatus, Melanoplus femur-rubrum, Melanoplus mexicanus, Melanoplus sanguinipes, Melanoplus spretus, Nomadacris septemfasciata, Periplaneta americana, Schistocerca americana, Schistocerca peregrina, Stauronotus maroccanus és a Tachycines asynamorus;

- a pókszabásúak (Arachnoidea) osztályából például az atkák (Acaridae), így az Amblyomma americanum, Amblyomma variegatum, Argas persicus, Boophilus annulatus, Boophilus decoloratus, Boophilus microplus, Brevipalpus phoenicis, Bryobia praetiosa, Dermacentor silvarum, Eotetranychus carpini, Eriophyes sheldoni, Hyalomma truncatum, Ixodes ricinus, Ixodes rubicundus, Ornithodoros moubata, Otobius megnini, Paratetranychus pilosus, Permanyssus gallinae, Phyllocoptura oleivora, Polyphagotarsonemus latus, Psoroptes ovis, Rhipicephalus appendiculatus, Rhipicephalus evertsi, Sarcoptes scabiei, Tetranychus cinnabarinus, Tetranychus kanzawai, Tetranychus pacificus, Tetranychus telarius és a Tetranychus urticae;

- a fonálféreg osztályából például a gyökérgubacsfonálféreg, így a Meloidogyne hapla, Meloidogyne incognita, Meloidogyne javanica, a cisztákat képző fonálféreg, például a Globodera rostochiensis, Heterodera avenae, Heterodera glycines, Heterodera schachtii, Heterodera trifolii, a húr- és lapos fonálfér-



gek, például a *Belonolaimus longicaudatus*, *Ditylenchus destructor*, *Ditylenchus dipsaci*, *Heliocotylenchus multicinctus*, *Longidorus elongatus*, *Radopholus similis*, *Rotylenchus robustus*, *Trichodorus primitivus*, *Tylenchorhynchus claytoni*, *Tylenchorhynchus dubius*, *Pratylenchus neglectus*, *Pratylenchus penetrans*, *Pratylenchus curvituratus* és a *Pratylenchus goodeyi*.

A nyílt terepen való körülmények között az állati kártevők leküzdésére a hatóanyagokból a hektáronként felhasznált mennyiség 0,1-2,0 kg, előnyösen 0,2-1,0 kg.

Az (I) általános képletű vegyületeket a szokásos készítményekké, például oldatokká, emulziókká, szuszpenziókká, porokká, pasztákká és granulátumokká dolgozhatjuk fel. Az alkalmazási forma a felhasználás céljához igazodik; ennek minden esetben a találmány szerinti hatóanyagok finom és egyenletes eloszlását kell biztosítani.

A készítményeket ismert módon állítjuk elő, például a hatóanyagok oldószerrel és/vagy hordozóanyagokkal való hígításával, kívánt esetben a készítményekben emulgeáló- és diszpergálószereket is alkalmazva, és ha hígítószerként vizet használunk, úgy segédoldószerként más szerves oldószerrel is alkalmazhatunk. Segédanyagokként lényegében a következők szerepelhetnek: oldószerrel, így az aromás vegyületek (például a xilol), a klórozott aromás vegyületek (például a klór-benzol), a paraffinok (például az ásványolajfrakciók), az alkoholok (például a metanol vagy a butanol), a ketonok (például a ciklohexanon), az aminok (például az etanol-amin), a dimetil-formamid és a víz; hordozóanyagok, így a természetes kőzetlisztek (például a kaolin, agyag,



talkum és a kréta) és a szintetikus kőporok (például a nagyon diszperz kovasav, a szilikátok); emulgeálószeresek, így a nem-ionos és az anionos emulgeátorok (például a polioxi-etilén-zsíralkohol-éterek, az alkil- és aril-szulfonátok) és a diszpergálószeresek, így a lignin-szulfitszennylúgok és a metil-cellulóz.

Felületaktív anyagokként szerepelhetnek a lignin-, fenol-, naftalin- és a dibutil-naftalinszulfonsav alkálifém-, alkáli-földfém- és ammóniumsói, az alkil-aril-szulfonátok, az alkil-szulfátok, alkil-szulfonátok, zsíralkoholszulfátok és zsírsavak valamint alkálifém- és alkáliföldfém-sóik, a szulfatált zsíralkohol-glikol-éterek sói, a szulfonált naftalinnak és a naftalin-származékoknak a formaldehiddel képzett kondenzációs termékei, a naftalinnak illetve a naftalinszulfonsavaknak a fenollal és a formaldehiddel képzett kondenzációs termékei, a polioxi-etilén-oktil-fenil-éter, az etoxilezett izooktil-, oktil- vagy nonil-fenol, az alkil-fenil- és a tributil-fenil-poliglikol-éterek, az alkil-aril-poliéter-alkoholok, izotridecilalkohol, a zsíralkoholoknak az etilén-oxiddal képzett kondenzációs termékei, az etoxilezett ricinusolaj, polioxi-etilén-alkil-éterek, etoxilezett polioxi-propilén, a laurilalkohol-poliglikol-éter-acetál, a szorbitészter, lignin-szulfitszennylúgok és a metil-cellulóz.

Közvetlenül permetezhető oldatok, emulziók, paszták vagy olajdiszperziók előállítására közepes-magas forráspontú ásványolajfrakciókat, így kerozint vagy dízelolajat, továbbá szénkátányolajokat valamint növényi vagy állati eredetű olajokat, alifás, gyűrűs és aromás szénhidrogéneket, például benzolt, toluolt, xilolt, paraffint, tetrahidronaftalint, alkilezett naftali-



nokat vagy ezek származékait, metanolt, etanolt, propanolt, butanolt, kloroformot, szén-tetrakloridot, ciklohexanolt, ciklohexanont, klór-benzolt, izoforont, erősen poláros oldószereket, például dimetil-formamidot, dimetil-szulfoxidot, N-metil-pirroolidont vagy vizet használhatunk.

Porokat, szóró- vagy porozószereket a hatóanyagoknak szilárd hordozóanyaggal való összekeverésével vagy összeörlésével állíthatunk elő.

Granulátumokat, például a bevont, impregnált és homogén-granulátumokat a hatóanyagoknak szilárd hordozóanyagokon való megkötésével állíthatunk elő. Szilárd hordozóanyagok például az ásványi termékek, így a szilikagél, kovasavak, kovasavgél, szilikátok, talkum, kaolin, attapulgit, mészkő, mész, kréta, bólusz, lösz, agyag, dolomit, diatomaföld, kalcium- és magnézium-szulfát, magnézium-oxid, őrölt műanyagok, műtrágyák, így például az ammónium-szulfát, -foszfát és -nitrát, karbamid és a növényi termékek, így a gabonaliszt, a faháncs-, fa- és csonthéj-örlemények, cellulózpor és más szilárd hordozóanyagok.

A készítmények hatóanyagtartalma általában 0,01 és 95, előnyösen 0,1 és 90 tömegszázalék közötti érték. A készítményekben a hatóanyagok tisztasága 90-100%-os, előnyösen 95-100%-os (NMR-spektrumuk alapján).

Példák a találmány szerinti készítményekre:

I. példa

5 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot 95 tömegrész finomszemcsés kaolinnal alaposan összekeverve 5 tömegszázalékos hatóanyagtartalmú porozószert nyerünk.

**II. példa**

30 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot alaposan összekeverünk olyan keverékkel, ami 92 tömegrész porformájú kovasavgél felületére ráporlasztott 8 tömegrésznyi paraffinolajból áll. Így olyan készítményt nyerünk, ami a hatóanyagok jó tapadóképessegét biztosít. (Hatóanyagtartalom: 23 tömegszázalék).

III. példa

10 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot feloldunk 90 tömegrész xilolból, 8-10 mól etilén-oxidnak és 1 mól olajsav-N-monoetanolamidnak 6 tömegrésznyi reakciótermékéből, 2 tömegrész dodecil-benzolszulfonsav kalciumsóból és 40 mól etilén-oxidnak és 1 mól ricinusolajnak 2 tömegrésznyi reakciótermékéből álló elegyben. (Hatóanyagtartalom: 9 tömegszázalék).

IV. példa

20 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot feloldunk 60 tömegrész ciklohexanonból, 30 tömegrész izobutanolból, 7 mól etilén-oxidnak és 1 mól izooktil-fenolnak 5 tömegrésznyi reakciótermékéből és 40 mól etilén-oxidnak és 1 mól ricinusolajnak 5 tömegrésznyi reakciótermékéből álló elegyben. (Hatóanyagtartalom: 16 tömegszázalék).

V. példa

80 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot alaposan összekeverünk és egy kalapácsos malomban összeőrölünk 3 tömegrész diizobutil-naftalin- α -szulfonsav nátriumsóval, szulfitszennylúgból származó 10 tömegrésznyi ligninszulfonsav nátriumsóval és 7 tömegrész porformájú kovasavgéllel. (Hatóanyagtartalom: 80 tömegszázalék).

**VI. példa**

90 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot 10 tömegrész N-metil- α -pirrolidonnal elkeverve olyan oldatot nyerünk, ami a legfinomabb cseppekre eloszlatva alkalmazható. (Hatóanyagtartalom: 90 tömegszázalék).

VII. példa

20 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot feloldunk 40 tömegrész ciklohexanonból, 30 tömegrész izobutanolból, 7 mól etilén-oxidnak és 1 mól izooktil-fenolnak 20 tömegrésznyi reakciótermékéből és 40 mól etilén-oxidnak és 1 mól ricinusolajnak 10 tömegrésznyi reakciótermékéből álló elegyben. A kapott oldatot 100 000 tömegrész vízbe öntve, és a vízben finoman eloszlatva 0,02 tömegszázalékos hatóanyagtartalmú vizes diszperziót nyerünk.

VIII. példa

20 tömegrész találmány szerinti hatóanyagot alaposan összekeverünk és egy kalapácsos malomban összeőrölünk 3 tömegrész diizobutil-naftalin- α -szulfonsav nátriumsóval, szulfitszennylúgból származó 17 tömegrésznyi ligninszulfonsav nátriumsóval és 60 tömegrész porformájú kovásvégellel. A kapott keveréket 20 000 tömegrész vízben finoman eloszlatva 0,1 tömegszázalékos hatóanyag-tartalmú permetlét nyerünk.

A hatóanyagokat magukban vagy készítményeik formájában vagy a belőlük elkészíthető, közvetlen felhasználásra kész formákban, például közvetlenül permetezhető oldatok, porok, szuszpenziók vagy diszperziók, emulziók, olajdiszperziók, paszták, porozó-, szórószeresek vagy granulátumok formájában alkalmazhatjuk, perme-



tezéssel, füstöléssel, porozással, szórással vagy locsolással. Az alkalmazási formák teljes mértékben a felhasználás céljához igazodnak; ezeknek minden esetben a találmány szerinti hatóanyagok lehető legfinomabb eloszlását kell biztosítaniuk.

Vizes készítményeket emulziókoncentrátumokból, pasztákból, nedvesíthető porokból (permetporokból) vagy olajdiszperziókból víz hozzáadásával készíthetünk. Emulziók, paszták vagy olajdiszperziók előállítására a hatóanyagokat magukban vagy olajban vagy oldószerben oldva, nedvesítő-, tapadást elősegítő, diszpergáló- vagy emulgeálószerrel segítségével a vízben homogenizálhatjuk. Előállíthatunk azonban vízzel hígítható koncentrátumokat is, amelyek hatóanyagból, nedvesítő-, tapadást elősegítő, diszpergáló- vagy emulgeálószerből és adott esetben oldószerből vagy olajból állnak.

A közvetlen felhasználásra alkalmas készítményekben a hatóanyagok koncentrációja széles határok között változhat; ezek értéke általában 0,0001 és 10%, előnyösen azonban 0,01 és 1% között van.

A hatóanyagokat sikerrel alkalmazhatjuk az „ultra kis térfogatú” eljárásban is (ULV= ultra low volume), amelynek során lehetséges több mint 95 tömegszázalékos hatóanyagtartalmú készítményt vagy akár adalékanyagok hozzáadása nélkül, magát a hatóanyagot kijuttatni.

A hatóanyagokhoz hozzákeverhetünk különböző típusú olajokat, herbicid, fungicid, baktericid és más kártevőirtószeret, adott esetben akár közvetlenül a felhasználás előtt (tankmix) is. Ezeket a szereket a találmány szerinti készítményekhez 1:10-től



10:1-ig terjedő tömegarányban keverhetjük hozzá.

A találmány szerinti hatóanyagokat, mint gombaölő hatóanyagokat még sok más hatóanyaggal, például gyomirtó, rovarölő, növényi fejlődést szabályzó hatóanyagokkal, más gombaölő hatóanyagokkal vagy akár műtrágyákkal is össze lehet keverni. Az (I) általános képletű vegyületeket illetve az ezeket tartalmazó készítményeket mint fungicideket más gombaölő hatóanyagokkal összekeverve sok esetben kiszélesedik a fungicid hatásspektrum.

A találmány szerinti hatóanyagokkal együtt alkalmazható fungicid hatóanyagok alábbi felsorolása a kombinációs lehetőségeket mint példákat ismerteti, anélkül azonban, hogy a találmány tárgyát a példák eseteire korlátoznánk:

- kén, ditiokarbamátok és származékaik, így ferri-dimetil-ditiokarbamát, cink-dimetil-ditiokarbamát, cink-etilén-bisz(ditiokarbamát), mangán-etilén-bisz(ditiokarbamát), mangán-cink-etiléndiamin-bisz(ditiokarbamát), tetrametil-tiurám-diszulfidok, a cink-N,N'-etilén-bisz(ditiokarbamát) ammóniakomplexe, a cink-N,N'-propilén-bisz(ditiokarbamát) ammóniakomplexe, cink-N,N'-propilén-bisz(ditiokarbamát), N,N'-polipropilén-bisz(tiókarbamoil)-diszulfid;
- nitrovegyületek, így dinitro-(1-metil-heptil)-fenil-krotonát, 2-(szek-butil)-4,6-dinitro-fenil-3,3-dimetil-akrilát, 2-(szek-butil)-4,6-dinitro-fenil-izopropil-karbonát, 5-nitro-izoftálsav-diizopropil-észter;
- heterociklusos vegyületek, így a 2-heptadecil-2-imidazolin-acetát, 2,4-diklór-6-(o-klór-anilino)-s-triazin, O,O-dietil-ftálimido-foszfotioát, 5-amino-1-{bisz(dimetil-amino)-foszfinil}-3-



-fenil-1,2,4-triazol, 2,3-diciano-1,4-ditio-antrakinon, 2-tio-
 -1,3-ditiolo [4,5-b] kinoxalin, 1-(butil-karbamoil)-2-benzimidazol-
 -karbaminsav-metil-észter, 2-(metoxi-karbonil-amino)-benzimidazol,
 2-(2-furil)-benzimidazol, 2-(4-tiazolil)-benzimidazol, N-(1,1,2,2-
 -tetraklór-etil-tio)-tetrahydroftálimid, N-(triklór-metil-tio)-
 -tetrahydroftálimid, N-(triklór-metil-tio)-ftálimid,
 - N-(diklór-fluor-metil-tio)-N',N'-dimetil-N-fenil-kénsavdiamid,
 5-etoxi-3-(triklór-metil)-1,2,3-tiadiazol, 2-(tiocianáto-metil-tio)-
 -benztiazol, 1,4-diklór-2,5-dimetoxi-benzol, 4-(2-klór-fenil-
 -hidrazono)-3-metil-5-izoxazonon, piridin-2-tio-1-oxid, 8-hidroxi-
 -kinolin illetve rézsója, 2,3-dihidro-5-karboxanilido-6-metil-
 -1,4-oxatiin, 2,3-dihidro-5-karboxanilido-6-metil-1,4-oxatiin-
 -4,4-dioxid, 2-metil-5,6-dihidro-4H-pirán-3-karbonsav-anilid, 2-
 -metil-furán-3-karbonsav-anilid, 2,5-dimetil-furán-3-karbonsav-
 -anilid, 2,4,5-trimetil-furán-3-karbonsav-anilid, 2,5-dimetil-
 -furán-3-karbonsav-ciklohexil-amid, N-ciklohexil-N-metoxi-2,5-
 -dimetil-furán-3-karbonsavamid, 2-metil-benzoészter-anilid, 2-jód-
 -benzoészter-anilid, N-formil-N-morfolino-2,2,2-triklór-etil-acetál,
 piperazin-1,4-diil--bisz[1-(2,2,2-triklór-etil)-formamid], 1-(3,4-
 -diklór-anilino)-1-(formil-amino)-2,2,2-triklór-etán, 2,6-dimetil-
 -N-tridecil-morfolin illetve sói, 2,6-dimetil-N-ciklododecil-
 -morfolin illetve sói, N-[3-(p-terc-butyl-fenil)-2-metil-propil]-
 -cisz-2,6-dimetil-morfolin, N-[3-(p-terc-butyl-fenil)-2-metil-
 -propil]-piperidin, 1-[2-(2,4-diklór-fenil)-4-etil-1,3-dioxolán-
 -2-il-etil]-1H-1,2,4-triazol, 1-[2-(2,4-diklór-fenil)-4-propil-
 -1,3-dioxolán-2-il-etil]-1H-1,2,4-triazol, N-propil-N-(2,4,6-triklór-
 -fenoxi-etil)-N'-imidazolil-karbamid, 1-(4-klór-fenil-oxi)-3,3-



-dimetil-1-(1H-1,2,4-triazol-1-il)-2-butanon, 1-(4-klór-fenoxi)-
 -3,3-dimetil-1-(1H-1,2,4-triazol-1-il)-2-butanol, (2RS,3RS)-1-
 -[3-(2-klór-fenil)-2-(4-fluor-fenil)-oxirán-2-il-metil]-1H-1,2,4-
 -triazol, α -(2-klór-fenil)- α -(4-klór-fenil)-5-pirimidin-metanol,
 5-butil-2-(dimetil-amino)-4-hidroxi-6-metil-pirimidin, bisz(p-
 -klór-fenil)-3-piridin-metanol, 1,2-bisz(3-etoxi-karbonil-2-
 -tioureido)-benzol, 1,2-bisz(3-metoxi-karbonil-2-tioureido)-benzol;
 - strobilurinok, így metil-(E)-metoxi-imino-[α -(o-tolil-oxi)-o-
 -tolil]-acetát, metil-(E)-2-[2-[6-(2-ciano-fenoxi)-4-pirimidi-
 nil-oxi]-fenil]-3-metoxi-akrilát, metil-(E)-metoxi-imino-[α -(2-
 -fenoxi-fenil)]-acetamid, metil-(E)-metoxi-imino-[α -(2,5-dimetil-
 -fenoxi)-o-tolil]-acetamid;

- anilino-pirimidinek, így N-(4,6-dimetil-2-pirimidinil)-anilin,
 N-[4-metil-6-(1-propinil)-2-pirimidinil]-anilin, N-(4-metil-6-
 -ciklopropil-2-pirimidinil)-anilin;

- fenil-pirrolok, így a 4-(2,2-difluor-1,3-benzodioxol-4-il)-
 -pirrol-3-karbonitril;

- fahéjsavamidok, így a 3-(4-klór-fenil)-3-(3,4-dimetoxi-fenil)-
 -akrilsav-morfolid;

- valamint különféle fungicid hatóanyagok, így dodecil-guanidin-
 -acetát, 3-[3-(3,5-dimetil-2-hidroxi-ciklohexil)-2-hidroxi-etil]-
 -glutárimid, hexaklór-benzol, D,L-metil-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-
 -(2-furoil)-alaninát, D,L-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(2-metoxi-acetil)-
 -alanin-metil-észter, N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(klór-acetil)-D,L-
 -2-amino-butirolakton, D,L-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(fenil-acetil)-
 -alanin-metil-észter, 5-metil-5-vinil-3-(3,5-diklór-fenil)-2,4-
 -dioxo-1,3-oxazolidin, 3-(3,5-diklór-fenil)-5-metil-5-(metoxi-



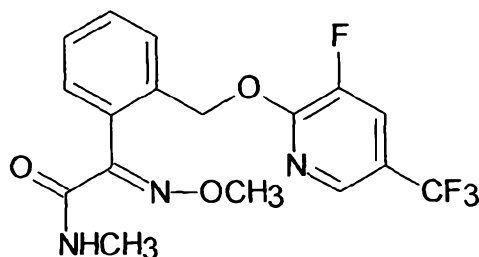
-metil)-1,3-oxazolidin-2,4-dion, 3-(3,5-diklór-fenil)-1-(izopropil-karbamoil)-hidantoin, N-(3,5--diklór-fenil)-1,2-dimetil-ciklopropán-1,2-dikarboximid, 2-ciano-[N-(etil-karbamoil)-2-(metoxi-imino)-acetamid, 1-[2-(2,4-diklór-fenil)-pentil]-1H-1,2,4-triazol, 2,4-difluor- α -(1H-1,2,4-triazol-1-il-metil)-benzhidrilalkohol, N-[3-klór-2,6-dinitro-4-(trifluor-metil)-fenil]-5-(trifluor-metil)-3-klór-2-amino-piridin, 1-[(bisz(4-fluor-fenil)-metil-szilil)-metil]-1H-1,2,4-triazol.

Szintézispéldák:

Az alábbi szintézispéldákban megadott előiratokat a kiindulási vegyületek megfelelő átalakításával további (I) általános képletű vegyületek előállítására használtuk fel. Az így nyert vegyületeket fizikai jellemzőikkel együtt az alábbi táblázatban soroltuk fel.

1. példa

α -anti-(Metoxi-imino)-N-metil-2-[3-fluor-5-(trifluor-metil)-2-piridil-oxi]-metil-fenil-acetamid (I-1 számú vegyület) előállítása



1,4 g nátrium-hidrid 15 ml dimetil-formamidos szuszpenziójához hozzáadjuk 11,1 g (E)-2-[2-(hidroximetil)-fenil]-2-(metoxi-imino)-N-metil-acetamid 120 ml dimetil-formamiddal készült ol-



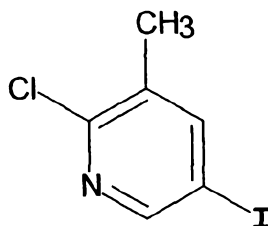
datát. A reakcióelegyet körülbelül 10 percig ultrahanggal kezeljük és végül 20-25 °C-on egy órán át keverjük. Ebbe becsepegtetjük 9,2 g 2,3-difluor-5-(trifluor-metil)-piridin 85 ml dimetil-formamiddal készült oldatát, és a reakcióelegyet 22-25 °C-on körülbelül 24 órán át keverjük. A reakcióelegyet 1 liter hígított nátrium-klorid-oldattal felvesszük és metil-terc-butil-éterrel extraháljuk. Az egyesített szerves fázist vízzel mossuk és megszáritjuk. Az oldószert vákuumban ledesztilláljuk, majd a bepárlási maradékot Kieselgel tölteten (futtatószer: ciklohexán/metil-terc-butil-éter = 2:1) kromatografálva világos porként 6,9 g cím szerinti vegyületet nyerünk.

Olvadáspontja: 112-116 °C

IR spektruma: 3380, 1659, 1623, 1498, 1453, 1336, 1272, 1151, 1131, 1040 cm^{-1}

2. példa

2-Klór-3-metil-5-jód-piridin előállítása



23,4 g 2-amino-3-metil-5-jód-piridin [J. Org. Chem., 5356. oldal (1995)] 146 g 10 tömeg%-os sósavval készült szuszpenziójába -10 °C-on 21,3 g klórgázt vezetünk be. Végül a reakcióelegybe körülbelül -5 °C-on becsepegtetjük 48,3 g nátrium-nitrit 120 ml vízzel készült oldatát. A reakcióelegyet 0 °C-on körülbelül két órán át keverjük majd 1 l vízzel meghígítjuk és metil-terc-butil-éterrel extraháljuk. A szerves fázist nátrium-hidrogén-

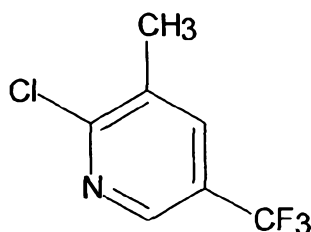


-karbonát-oldattal majd vízzel mossuk és megszárítjuk. Az oldószeret vákuumban ledesztilláljuk, és a bepárlási maradékot Kieselgel tölteten (futtatószer: ciklohexán/metil-terc-butil-éter = 1:10) kromatográfiásan megtisztítva sötét kristályokként 3,6 g cím szerinti vegyületet nyerünk.

$^1\text{H-NMR}$ spektruma (CDCl_3): $\delta = 8,4$ (1H); $7,9$ (1H); $2,3$ (3H) ppm.

3. példa

2-Klór-3-metil-5-(trifluor-metil)-piridin előállítás



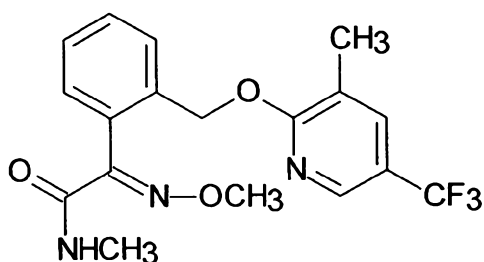
84,7 g 2-klór-3-metil-5-jód-piridin 1 l N-metil-pirrolidonnal készült oldatához adunk 136,3 g nátrium-(trifluor-acetát)-ot és 95,2 g réz(I)-jodidot, és a reakcióelegyet $160\text{ }^\circ\text{C}$ -on két órán át keverjük. Lehűlése után a reakcióelegyet körülbelül 3 liter vízzel felvesszük és etil-acetáttal extraháljuk. Az egyesített szerves fázist 2,5 tömegszázalékos vizes ammóniaoldattal és vízzel mossuk, megszárítjuk majd vákuumban oldószermentesítjük. A kapott nyers terméket egy rövid kolonnán rektifikálva színtelen olajként 14,3 g cím szerinti vegyületet nyerünk.

Forráspontja: $70\text{--}75\text{ }^\circ\text{C}/25\text{ mbar}$

$^1\text{H-NMR}$ spektruma (CDCl_3): $\delta = 8,6$ (1H); $7,8$ (1H); $2,4$ (3H) ppm.

4. példa

α -anti-(Metoxi-imino)-N-metil-2-[3-metil-5-(trifluor-metil)-2-piridil-oxi-metil]-fenil-acetamid (I-2 számú vegyület) szintézise

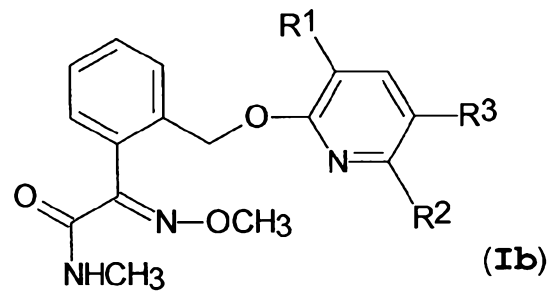
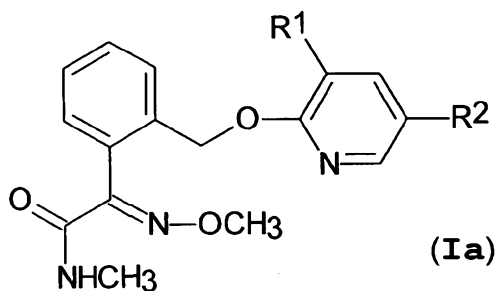


23,8 g (E)-2-[2-(hidroxil-metil)-fenil]-2-(metoxi-imino)-N-metil-acetamid 200 ml dimetil-formamiddal készült oldatához adjuk 2,82 g nátrium-hidrid 25 ml dimetil-formamiddal készült szuszpenzióját. A reakcióelegyet körülbelül 10 percig ultrahanggal kezeljük majd 20-25 °C-on 1 órán át keverjük. Ebbe a reakcióelegybe becsepegtetjük 20,9 g 2-klór-3-metil-5-(trifluor-metil)-piridin (3. példa cím szerinti vegyülete) 150 ml dimetil-formamiddal készült oldatát, és a reakcióelegyet 45 °C-on 3 órán át majd 22-25 °C-on további 24 órán át keverjük. Ezután a reakcióelegyet 3 liter hígított nátrium-klorid-oldattal felvesszük és metil-*terc*-butil-éterrel extraháljuk. Az egyesített szerves fázist vízzel mossuk, megszáritjuk és vákuumban oldószermentesítjük. A bepárlási maradékot Kieselgel tölteten kromatográfiásan (futtatószer: ciklohexán/metil-*terc*-butil-éter = 1:1) megtisztítva fehér porként 15,8 g cím szerinti vegyületet nyerünk. Olvadáspontja: 133-135 °C

IR spektruma: 1672, 1418, 1335, 1324, 1269, 1264, 1173, 1145, 1123, 1038 cm^{-1}

I. táblázat

Szám	Képlet	R ¹	R ²	R ³	fizikai állandók (o.p. [°C])
I-1	Ia	F	CF ₃	-	110 - 112
I-2	Ia	CH ₃	CF ₃	-	125 - 130
I-3	Ib	CF ₃	Cl	H	103 - 105
I-4	Ib	CH ₃	CH ₃	H	116 - 118
I-5	Ib	Cl	Cl	Cl	147 - 148
I-6	Ib	Cl	Cl	CF ₃	139 - 141
I-7	Ib	Cl	F	CF ₃	108 - 111

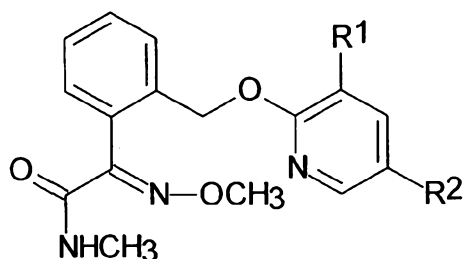


Példák a káros gombák elleni hatásra:

Az (I) általános képletű vegyületek fungicid hatását az alábbi kísérletek mutatják:

A hatóanyagokat elkülönítve vagy együttesen 10%-os vizes emulzióvá dolgoztuk fel egy 70 tömeg% ciklohexanonból, 20 tömeg% Nekanil[®] LN-ből (Lutensol[®] AP6, etoxilezett alkil-fenol-bázisú emulgeáló és diszpergáló hatású nedvesítőszert) és 10 tömeg% Wettol[®] EM-ből (etoxilezett ricinusolajbázisú nem ionos emulgeátor) álló elegyben, amit a kívánt koncentrációnak megfelelően vízzel meghígítottunk.

A kísérletekben ismert összehasonlító hatóanyagokként az A vegyületet (lásd az EP-A 398 692 számú szabadalmi irat 7. táblázatának 78. számú vegyületét) illetve a B vegyületet (lásd az EP-A 760 363 számú szabadalmi iratban a 9. számú vegyületet) használtuk:



A: R1 = CF₃, R2 = H

B: R1 = CF₃, R2 = Cl

1. alkalmazási példa — *Plasmopara viticola* elleni hatás

Cserépen tartott „Müller-Thurgau” fajtájú szőlő leveleit cseppnedvesre permeteztük be olyan vizes hatóanyagkészítménnyel,



amit 10% hatóanyagból, 63% ciklohexanonból és 27% emulgeálószerből álló törzsoldatból készítettünk. A hatóanyagok hatástartamának megítélése céljából a permetlé rászáradása után a kísérleti növényeket 7 napra üvegházba állítottuk. Csak ezután fertőztük meg a leveleiket a *Plasmopara viticola* spóráiból készült vizes szuszpenzióval. Ezután a kísérleti növényeket 48 órára egy, vízgőzzel telített levegőjű, 24 °C-os kamrába, majd 5 napra egy 20-30 °C-os üvegházba állítottuk. Ezután a spóratokok feltörésének meggyorsítása céljából a kísérleti növényeket 16 órára újból a nedveslevegőjű kamrába állítottuk. Ezt követően vizuálisan megállapítottuk a gombafertőzöttség kifejlődésének a mértékét, a levelek fonák oldalán.

Ebben a kísérletben az I-1, I-2, I-3, I-5, I-6, I-7 és az I-8 számú vegyületekkel 4 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növények fertőzöttsége legfeljebb 15%-os volt, míg az A és a B összehasonlító hatóanyagokkal 4 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növényeké a 60%-ot illetve az 50%-ot és a kezeletlen kísérleti növényeké pedig a 75%-ot is elérte.

2. alkalmazási példa — *Phytophthora infestans* elleni tartós hatás, paradicsomon

Cserépben nevelt „Große Fleischtomate” fajtájú paradicsomnövények leveleit 4-leveles fejlődési stádiumukban cseppnedvesre permeteztük be olyan vizes szuszpenzióval, amit 10% hatóanyagból, 63% ciklohexanonból és 27% emulgeálószerből álló törzsoldatból készítettünk. A hatóanyagok hatástartamának megítélése céljából a permetezés után egy héttel a leveleket a *Phytophthora infestans* spóráiból készített vizes szuszpenzióval fertőztük



meg. Ezután a kísérleti növényeket egy, vízgőzzel telített és 16-18 °C-os levegőjű kamrába állítottuk. 6 nap múlva a kezeletlen, de megfertőzött kontrollnövényeken olyan erősen fejlődött ki a gombabetegség, hogy a százalékos fertőzöttséget vizuálisan meg lehetett állapítani.

Ebben a kísérletben az I-1, I-2, I-5, I-6, I-7 és az I-8 számú vegyületekkel 16 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növények fertőzöttsége legfeljebb 15%-os volt, míg az A és a B összehasonlító hatóanyagokkal 16 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növényeké a 25%-ot illetve a 100%-ot és a kezeletlen kísérleti növényeké pedig szintén a 100%-ot is elérte.

3. alkalmazási példa — Puccinia recondita elleni hatás, búzán (búzabarnarozsda)

Cserépbén nevelt „Frühgold” fajtájú búzacsíranövények leveleit a búzabarnarozsda (*Puccinia recondita*) spóráival poroztuk be. Ezután a kísérleti növényeket 24 órára egy, nagy légnedvességű (90-95%) és 20-22 °C-os kamrába állítottuk. Ezalatt az idő alatt a spórák kicsíráztak, és hifafonalaik benyomultak a levél-szövetbe. A következő nap a fertőzött kísérleti növényeket cseppnedvesre permeteztük be olyan vizes hatóanyagkészítménnyel, amit egy, 10% hatóanyagból, 63% ciklohexanonból és 27% emulgeálószerből álló törzsoldatból készítettünk. A permetlé rászáradása után a kísérleti növényeket 7 napra 20-22 °C-os és 65-70% relatív légnedvességű üvegházba állítottuk. Ezt követően megállapítottuk a leveleken a gombafertőzöttség kifejlődésének a mértékét.

Ebben a kísérletben az I-1, I-2, I-3, I-6 és az I-8 számú



vegyületekkel 16 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növények fertőzöttsége legfeljebb 15%-os volt, az I-1, I-2, I-3, I-6 és az I-8 számú vegyületekkel 63 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növények teljesen mentesek voltak a fertőzöttségtől, míg az A összehasonlító hatóanyaggal 16 illetve 63 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növényeké a 75%-ot illetve a 40%-ot és a kezeltlen kísérleti növényeké pedig a 75%-ot is elérte.

4. alkalmazási példa — *Pyricularia oryzae* elleni (protektív) hatás

Cserépben nevelt „Tai-Nong 67” fajtájú rizscsíránövények leveleit cseppnedvesre permeteztük be olyan vizes hatóanyagkészítménnyel, amit egy, 10% hatóanyagból, 63% ciklohexanonból és 27% emulgeálószerből álló törzsoldatból készítettünk. Másnap a kísérleti növényeket megfertőztük a *Pyricularia oryzae* spóráiból készült vizes szuszpenzióval. Végül a kísérleti növényeket 6 napra 22-24 °C-os és 95-99% relatív légnedvességű klímakamrákba állítottuk. Ezt követően a leveleken vizuálisan megállapítottuk a gombafertőzöttség kifejlődésének a mértékét.

Ebben a kísérletben az I-1, I-2, I-3, I-5 és az I-8 számú vegyületekkel 63 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növények fertőzöttsége legfeljebb 15%-os volt, az I-1, I-2, I-3, I-5 és az I-8 számú vegyületekkel 16 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növények fertőzöttsége nem haladta meg a 40%-ot, míg az A összehasonlító hatóanyaggal 63 illetve 16 ppm koncentrációban kezelt kísérleti növényeké a 60%-ot illetve a 90%-ot és a kezeltlen kísérleti növényeké pedig szintén a 90%-ot is elérte.

Példák az állati kártevők elleni hatásra:



Az (I) általános képletű vegyületek állati kártevők elleni hatását az alábbi kísérletek mutatják:

A hatóanyagokból

- a) acetonban 0,1%-os oldatot vagy
- b) egy, 70 tömegszázalék ciklohexanonból, 20 tömegszázalék Ne-kanil[®] LN-ből (Lutensol[®] AP6, etoxilezett alkil-fenol-bázisú emulgeáló és diszpergáló hatású nedvesítőszer) és 10 tömegszázalék Wettol[®] EM-ből (etoxilezett ricinusolajbázisú nem ionos emulgeátor) álló elegyben 10%-os emulziót

készítettünk, amit a kívánt koncentrációnak megfelelően a) esetben acetonnal illetve b) esetben vízzel meghígítottunk.

A kísérletek lezárása után mindig meghatároztuk azt a legkisebb koncentrációt, amelynél a vizsgált vegyületek a kezeletlen kontrollkísérletekhez képest még 80-100%-os gátlást illetve mortalitást okoztak (hatásküszöb illetve minimális koncentráció).

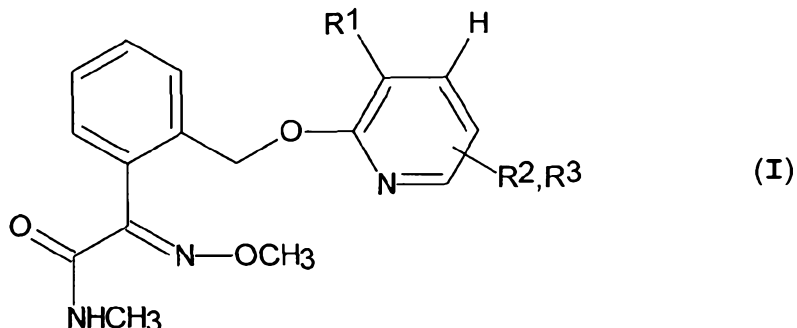
5. alkalmazási példa — Nephotettix cincliceptis elleni kontakthatás

9 cm átmérőjű szűrőkorongot 1 ml vizes hatóanyagkészítménnyel kezeltünk, majd öt kifejlett rovarot helyeztünk rá. 24 óra múlva meghatároztuk a mortalitást.

Ebben a kísérletben az I-2 számú vegyület hatásküszöbe 0,2 mg volt, míg az A és a B összehasonlító hatóanyagok hatásküszöbe több mint 0,2 mg volt.

Szabadalmi igénypontok

1. Az



általános képletű szubsztituált 2-(2-piridil-oxi)-fenil-acetamidok — amely képletben

R^1 jelentése fluor-, klóratom, metil- vagy halogén-metilcsoport;

R^2 jelentése fluor-, brómatom, 1-4 szénatomos alkil- vagy halogén-metilcsoport;

R^3 jelentése hidrogénatom vagy az R^2 -nél megnevezett csoportok egyike;

vagy

R^2 jelentése 6-klóratom, ha R^3 hidrogénatomot jelent;

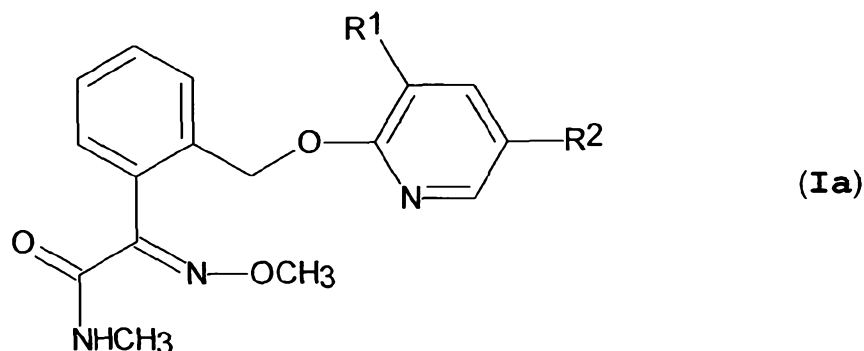
R^3 jelentése 5-klóratom, ha R^2 fluoratomot jelent —

valamint azok az (I) általános képletű vegyületek, amelyek képletében R^1 , R^2 és R^3 mindegyike klóratomot jelent,

azzal a megszorítással, hogy R^1 jelentése a klóratomtól eltérő,

ha R^2 5-(trifluor-metil)-csoportot és R^3 hidrogénatomot jelent.

2. Az



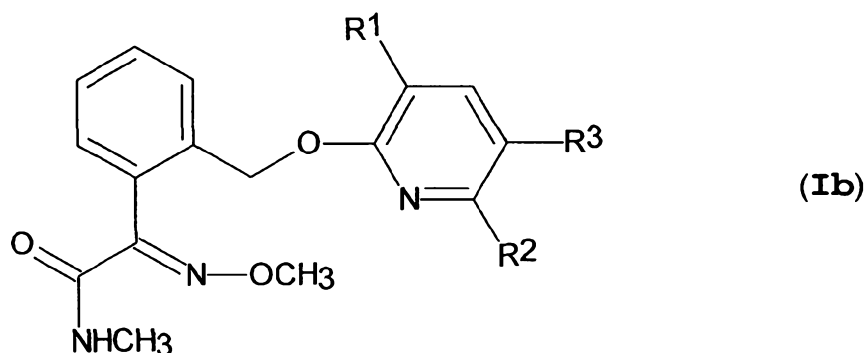


általános képletű fenil-acetamidok, amelyek képletében R^1 és R^2 jelentése az 1. igénypontban megadott.

3. A 2. igénypont szerinti (Ia) általános képletű fenil-acetamidok, amelyek képletében R^1 metil- vagy trifluor-metil-csoportot jelent.

4. A 2. igénypont szerinti (Ia) általános képletű fenil-acetamidok, amelyek képletében az R^1 és R^2 csoportok egyike metilcsoportot, a másik pedig trifluor-metilcsoportot jelent.

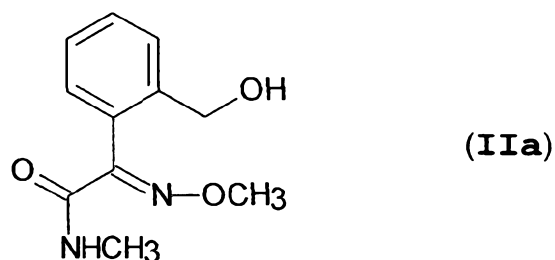
5. Az



általános képletű fenil-acetamidok, amelyek képletében R^1 , R^2 és R^3 jelentése az 1. igénypontban megadott.

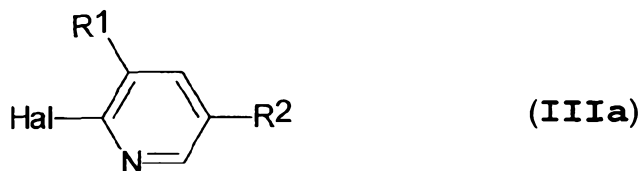
6. Az 5. igénypont szerinti (Ib) általános képletű fenil-acetamidok, amelyek képletében R^1 trifluor-metilcsoportot és R^3 hidrogénatomot jelent.

7. Eljárás a 2. igénypont szerinti (Ia) általános képletű vegyületek előállítására, azzal jellemezve, hogy a



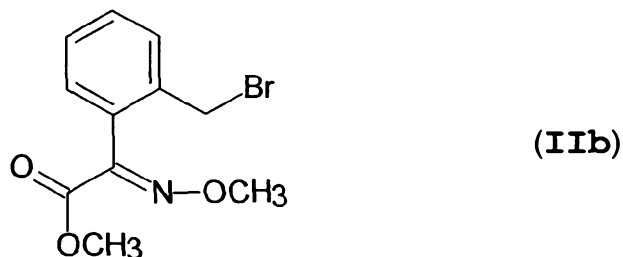


képletű benzil-alkohol-származékot bázikus reakciókörülmények között egy

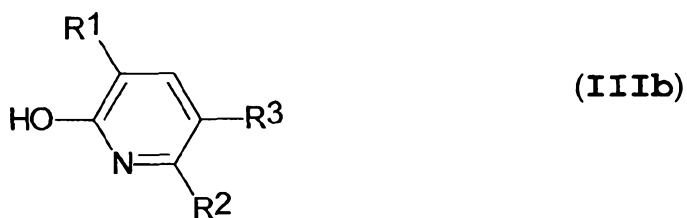


általános képletű 2-halogén-piridin-származékkal — ahol Hal halogénatomot jelent — reagáltatjuk.

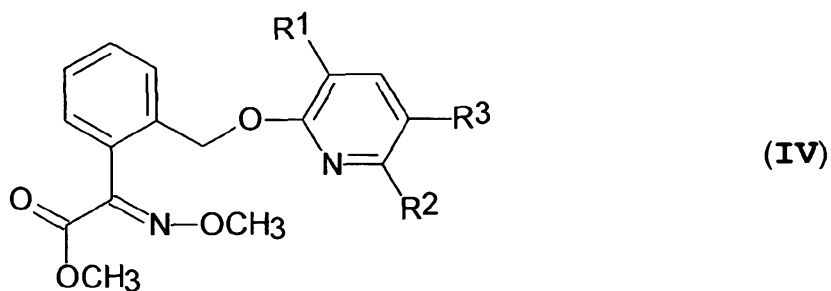
8. Eljárás az 5. igénypont szerinti (Ib) általános képletű vegyületek előállítására, azzal jellemezve, hogy a



képletű benzil-bromid-származékot bázikus reakciókörülmények között egy



általános képletű 2-hidroxi-piridin-származékkal reagáltatva a megfelelő





általános képletű 2-(2-piridil-oxi)-fenil-ecetsav-észterré, majd ezt metil-aminnal a megfelelő (Ib) általános képletű vegyületté alakítjuk át.

9. Állati kártevők vagy káros gombák leküzdésére alkalmas készítmények, amelyek egy szilárd vagy folyékony hordozóanyagot és hatásos mennyiségben legalább egy, az 1. igénypont szerinti (I) általános képletű vegyületet tartalmaznak.

10. Az 1. igénypont szerinti (I) általános képletű vegyületek alkalmazása állati kártevők vagy káros gombák leküzdésére alkalmas készítmények előállítására.

11. Eljárás káros gombák leküzdésére, azzal jellemezve, hogy a gombákat vagy a gombafertőzéstől megvédeni kívánt anyagokat, haszonnövényeket, a talajt vagy a vetőmagot legalább egy, az 1. igénypont szerinti (I) általános képletű vegyület hatásos mennyiségével kezeljük.

12. Eljárás állati kártevők leküzdésére, azzal jellemezve, hogy az állati kártevőket vagy a tőlük megvédeni kívánt anyagokat, haszonnövényeket, a talajt vagy a vetőmagot egy, az 1. igénypont szerinti (I) általános képletű vegyület hatásos mennyiségével kezeljük.

A meghatalmazott

Beliczay László
szabadalmi ügyvivő
az S.B.G. & K. Nemzetközi
Szabadalmiroda tagja
H-1062 Budapest, Andrásy út 113.
Telefon: 34-244950, Fax: 34-24-323

+ 10. oldal

Sz

01/01/25