



19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 286 249**

51 Int. Cl.:  
**A01N 43/54** (2006.01)  
**A01N 33/22** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Número de solicitud europea: **02722808 .9**  
86 Fecha de presentación : **26.04.2002**  
87 Número de publicación de la solicitud: **1430777**  
87 Fecha de publicación de la solicitud: **23.06.2004**

54 Título: **Composición herbicida.**

30 Prioridad: **28.09.2001 JP 2001-300872**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**01.12.2007**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**01.12.2007**

73 Titular/es: **Sumitomo Chemical Company, Limited**  
**27-1, Shinkawa 2-chome**  
**Chuo-ku, Tokyo 104-8260, JP**

72 Inventor/es: **Mito, Nobuaki y**  
**Shibuya, Shinsuke**

74 Agente: **Ungría López, Javier**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

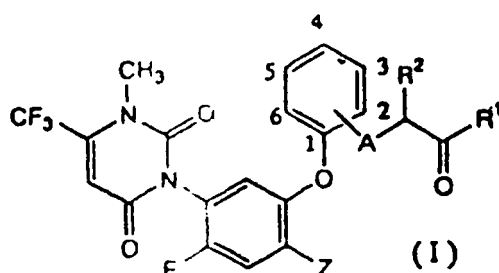
## DESCRIPCIÓN

## Composición herbicida.

La presente invención se relaciona con una composición herbicida, particularmente con una composición herbicida adecuada para controlar malas hierbas en huertos y tierras no cultivadas.

Aunque actualmente están comercializados y se usan numerosos herbicidas, las malas hierbas que se han de controlar son de tipo variado y su emergencia continúa a largo plazo. Ha habido una demanda de herbicidas con una mayor actividad y un espectro más amplio de malas hierbas y sin un problema de fitotoxicidad sobre los cultivos.

Como resultado de extensos estudios en búsqueda de un herbicida excelente, los presentes inventores han encontrado hechos de que un uso combinado de un compuesto de uracilo (al que en adelante se hará referencia como el presente compuesto de uracilo) representado por la siguiente fórmula (I):

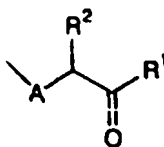


donde Z representa un átomo de halógeno o ciano; A representa un átomo de oxígeno, un átomo de azufre o NH; R<sup>1</sup> representa hidroxilo, alcoxi C1-C7, alquenciloxi C3-C7, alquenciloxi C3-C7, cicloalcoxi C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alcoxi C1-C3, (alquilamino C1-C7)oxi, {di(alquil C1-C7)amino}oxi, (alquilidenamino C3-C7)oxi, alquilamino C1-C7, di(alquilo C1-C7)amino, alquencilamino C3-C7, alquencilamino C3-C7, cicloalquilamino C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alquilamino C1-C3 o (alcoxi C1-C7)amino, y R<sup>2</sup> representa un átomo de hidrógeno o metilo,

y un 2-cloro-1-(3-etoxi-4-nitrofenoxi)-4-(trifluorometil)benceno (nombre genérico: oxifluorfenol, al que en adelante se hará referencia como Oxifluorfenol) puede controlar de manera efectiva diversas malas hierbas y de que el efecto herbicida con el uso combinado aumenta de forma sinérgica cuando se compara con sus usos simples, y, por lo tanto, completaron la presente invención. Cuando se usa una composición que contiene el presente compuesto de uracilo y Oxifluorfenol como herbicida, se puede hacer la aplicación a una dosis más baja, se puede ampliar el espectro herbicida y, en particular, se puede controlar una amplia variedad de malas hierbas en huertos.

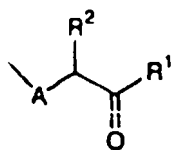
Por lo tanto, la invención proporciona:

1. una composición herbicida (a la que en adelante se hará referencia como la presente composición) consistente en los ingredientes activos, el presente compuesto de uracilo y Oxifluorfenol;
2. la composición herbicida según el apartado 1 anterior, donde, en el presente compuesto de uracilo, A es un átomo de oxígeno y R<sup>1</sup> es alcoxi C1-C7;
3. la composición herbicida según el apartado 1 anterior, donde, en el presente compuesto de uracilo, el sustituyente representado por la siguiente fórmula:



donde R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y A representan el mismo significado que antes, está unido a la posición 2 según se define en la fórmula (I);

4. la composición herbicida según el apartado 1 anterior, donde, en el presente compuesto de uracilo, el sustituyente representado por la siguiente fórmula:



donde  $R^1$ ,  $R^2$  y A representan el mismo significado que antes, está unido a la posición 3 o a la posición 4 según se define en la fórmula (I);

5. la composición herbicida según el apartado 1 anterior, donde, en el presente compuesto de uracilo, Z es un átomo de halógeno y  $R^2$  es un átomo de hidrógeno;
6. la composición herbicida según el apartado 1 anterior, donde, en el presente compuesto de uracilo, Z es ciano;
7. la composición herbicida según el apartado 1 anterior, donde la razón de mezcla del presente compuesto de uracilo con respecto al Oxifluorfenó es de 1:0,5 a 1:300 en razón de peso;
8. un método para controlar malas hierbas (al que en adelante se hará referencia como el presente procedimiento) consistente en aplicar cantidades efectivas del presente compuesto de uracilo y de Oxifluorfenó a las malas hierbas;
9. el método para controlar malas hierbas según el apartado 8 anterior, donde las malas hierbas son malas hierbas en un huerto;
10. el método para controlar malas hierbas según el apartado 8 anterior, donde las malas hierbas son malas hierbas en una tierra no cultivada;
11. un uso de una composición consistente en el presente compuesto de uracilo y Oxifluorfenó como herbicida;
12. el uso según el apartado 11 anterior, donde el herbicida es un herbicida para un huerto;
13. el uso según el apartado 11 anterior, donde el herbicida es un herbicida para una tierra no cultivada.

En la presente invención, un átomo de halógeno representado por Z en la fórmula (I) significa un átomo de flúor, un átomo de cloro, un átomo de bromo o un átomo de yodo; el alcoxi C1-C7 representado por  $R^1$  incluye metoxi, etoxi, propoxi, isopropoxi, butoxi, 1-metilpropoxi, 2-metilpropoxi, pentiloxi, 1-metilbutoxi, 2-metilbutoxi, 3-metilbutoxi, 2,2-dimetilpropoxi, hexiloxi, 1-metilpentiloxi, 2-metilpentiloxi, 3-metilpentiloxi, 4-metilpentiloxi, 1,2-dimetilbutoxi, 1,3-dimetilbutoxi, 2,3-dimetilbutoxi, 3,3-dimetilbutoxi, heptiloxi y similares; el alquenciloxi C3-C7 representado por  $R^1$  incluye 2-propiniloxi, 3-buteniloxi, 4-penteniloxi, 3-metil-3-buteniloxi, 3-metil-2-buteniloxi y similares; el alquenciloxi C3-C7 representado por  $R^1$  incluye 2-propiniloxi y similares; el cicloalcoxi C5-C7 representado por  $R^1$  incluye ciclopentiloxi, ciclohexiloxi y similares; el {(alcoxi C1-C7)carbonil}alcoxi C1-C3 representado por  $R^1$  incluye metoxycarbonilmetoxi, etoxycarbonilmetoxi, 1-(metoxycarbonil)-1-metiletoxi y similares; el (alquilamino C1-C7)oxi representado por  $R^1$  incluye (metilamino)oxi, (etilamino)oxi y similares; el {di(alquil C1-C7)amino}oxi representado por  $R^1$  incluye (dimetilamino)oxi, (metiletilamino)oxi y similares; el (alquilidenamino C3-C7)oxi representado por  $R^1$  incluye (isopropilidenamino)oxi y similares; el alquilamino C1-C7 representado por  $R^1$  incluye metilamino, etilamino, propilamino, isopropilamino, butilamino, 1-metilpropilamino, 2-metilpropilamino, pentilamino, 1-metilbutilamino, 2-metilbutilamino, 3-metilbutilamino, 2,2-dimetilpropilamino, hexilamino y similares; el di(alquil C1-C7)amino representado por  $R^1$  incluye dimetilamino, dietilamino y similares; el alquencilamino C3-C7 representado por  $R^1$  incluye propenilamino y similares; el alquencilamino C3-C7 representado por  $R^1$  incluye 2-propenilamino y similares; el cicloalquilamino C5-C7 representado por  $R^1$  incluye ciclopentilamino, ciclohexilamino y similares; el {(alcoxi C1-C7)carbonil}alquilamino C1-C3 representado por  $R^1$  incluye metoxycarbonilmetilamino y similares; el (alcoxi C1-C7)amino representado por  $R^1$  incluye metoxiamino, etoxiamino, isopropoxiamino y similares.

El Oxifluorfenó es un compuesto descrito en FARM CHEMICALS HANDBOOK 2001 (publicado por MEISTER PUBLISHING COMPANY en 2001), páginas C299, respectivamente. El Oxifluorfenó puede ser preparado por procedimientos conocidos y dichos compuestos o sus formulaciones están comercializados.

La presente composición es excelente como herbicida, porque tiene una actividad herbicida frente a una amplia variedad de malas hierbas y exhibe una excelente actividad herbicida en tierras de cultivo ordinarias, tales como

## ES 2 286 249 T3

campos de cultivo arados, campos de cultivo no labrados, huertos y similares y tierras no cultivadas, tales como campos de deportes, tierras baldías, tierras forestales, laterales de vías de ferrocarril y similares. La presente composición es particularmente efectiva en el control de una amplia variedad de malas hierbas emergentes en huertos y no causa una fitotoxicidad problemática en árboles frutales. Además, la presente composición es particularmente efectiva en el control de una amplia variedad de malas hierbas emergentes en campos de soja desde el invierno hasta la primavera antes de la siembra de la soja y no causa fitotoxicidad problemática en la soja sembrada después del tratamiento.

La presente composición tiene especialmente una actividad herbicida frente a diversas malas hierbas, que se enumeran a continuación, que causan problemas en huertos, tierras sin cultivar y similares.

Malas hierbas poligonáceas: alforfón silvestre (*Polygonum convolvulus*), polígono pata de perdiz (*Polygonum lapathifolium*), polígono de Pensilvania (*Polygonum pensylvanicum*), pimentilla (*Polygonum persicaria*), acedera japonesa (*Rumex crispus*), acedera (*Rumex obtusifolius*), centinodia Japonesa (*Polygonum cuspidatum*).

Malas hierbas portuláceas: verdulaga (*Portulaca oleracea*).

Malas hierbas cariofiláceas: pamplina común (*Stellaria media*).

Malas hierbas quenopodiáceas: cenizo común (*Chemopodium album*), morenita (*Kochia scoparia*).

Malas hierbas amarantáceas: bleado de raíz roja (*Amaranthus retroflexus*), bleado liso (*Amaranthus hybridus*).

Malas hierbas crucíferas: rábano silvestre (*Raphanus raphanistrum*), bolsa de pastor (*Capsella bursa-pastoris*).

Malas hierbas leguminosas: cáñamo sesbania (*Sesbania exaltata*), sen (*Cassia obtusifolia*), cadillo (*Desmodium tortuosum*), trébol blanco (*Trifolium repens*).

Malas hierbas malváceas: malva (*Abutilon theophrasti*), sida espinosa (*Sida spinosa*).

Malas hierbas violáceas: pensamiento campestre (*Viola arvensis*), pensamiento silvestre (*Viola tricolor*).

Malas hierbas rubiáceas: apegalosa (*Galium aparine*).

Malas hierbas convolvuláceas: dondiego de día hoja de hiedra (*Ipomoea hederacea*), volúbilis (*Ipomoea purpurea*), dondiego de día de hoja entera (*Ipomoea hederacea* var *integrifolia*), “whitestar” (*Ipomoea lacunosa*), correhuela anual campestre (*Convolvulus arvensis*).

Malas hierbas labiadas: ortiga muerta purpúrea (*Lamium purpureum*), conejitos (*Lamium amplexicaule*).

Malas hierbas solanáceas: hierba talpera (*Datura stramonium*), hierba mora (*Solanum nigrum*).

Malas hierbas escrofulariáceas: verónica (*Veronica persica*), hierba gallinera (*Veronica hederifolia*).

Malas hierbas compuestas: cadillo común (*Xanthium pensylvanicum*), girasol silvestre (*Helianthus annuus*), camomila inodora (*Matricaria perforata* o *inodora*), crisantemo de los trigos (*Chrysanthemum segetum*), margaza menor (*Matricaria matricarioides*), ambrosía común (*Ambrosia artemisiifolia*), ambrosía gigante (*Ambrosia trifida*), humagón (*Erigeron canadensis*), artemisia del Japón (*Artemisia princeps*), vara de oro alta (*Solidago altissima*).

Malas hierbas boragináceas: nomeolvides (*Myosotis arvensis*).

Malas hierbas asslepiadáceas: algodoncillo (*Asclepias syriaca*).

Malas hierbas euforbiáceas: lechetrezna (*Euphorbia helioscopia*), euforbia (*Euphorbia maculata*).

Malas hierbas gramíneas: cerreig (*Echinochloa crus-galli*), almorejo verde (*Setaria viridis*), almorejo grande (*Setaria faberi*), garranchuelo sureño (*Digitaria sanguinalis*), galio (*Eleusine indica*), espiguilla anual (*Poa annua*), cola de zorra (*Alopecurus myosuroides*), avena loca (*Avena fatua*), cañota (*Sorghum halepense*), grama del Norte (*Agropyron repens*), bromo velloso (*Bromus tectorum*), grama común (*Cynodone dactylon*), pasto colchón (*Panicum dichotomiflorum*), pasto tejano (*Panicum texanum*), sorgo (*Sorghum vulgare*), pasto de hoja ancha (*Brachiaria platyphylla*).

Malas hierbas commelináceas: “asiatic dayflower” (*Comelina communis*).

Malas hierbas equisetáceas: cola de caballo (*Equisetum arvense*).

Malas hierbas criperáceas: juncia de tierras de arroz (*Cyperus iria*), juncia púrpura (*Cyperus rotundus*), juncia amarilla (*Cyperus esculentus*).

## ES 2 286 249 T3

En la presente composición, la razón de mezcla del compuesto de uracilo con respecto al Oxifluorfenol puede variar dependiendo del tipo buscado de malas hierbas, del lugar de aplicación, de las condiciones de aplicación y similares y normalmente es una razón que muestra un efecto sinérgico, específicamente de 1:1 a 1:500, preferiblemente de 1:2 a 1:400 y más preferiblemente de 1:10 a 1:400.

La presente composición puede contener otros ingredientes además del presente compuesto de uracilo y del Oxifluorfenol y está normalmente en forma de una formulación tal como una emulsión, un polvo hidratable, una suspensión, un gránulo y similares, obtenibles por mezcla del presente compuesto de uracilo y de oxifluorfenol como ingredientes activos junto con un soporte sólido, soporte líquido o similar, y, si es necesario, adición de un surfactante, otros auxiliares de formulación y similares. Estas formulaciones contienen normalmente de un 0,5 a un 90% en peso, preferiblemente de un 1 a un 80% en peso, en total del presente compuesto de uracilo y Oxifluorfenol.

En la formulación, como soportes sólidos utilizables se incluyen, por ejemplo, finos polvos y gránulos tales como arcillas (caolinita, tierra de diatomeas, óxido de silicio hidratado sintético, arcilla de Fubasami, bentonita, arcilla ácida y similares), talco, otros minerales inorgánicos (sericita, polvo de cuarzo, polvo de azufre, carbón activado, carbonato de calcio y similares), fertilizantes químicos (sulfato de amonio, fosfato de amonio, nitrato de amonio, cloruro de amonio, urea y similares), etc.; y como soportes líquidos se incluyen, por ejemplo, agua, alcoholes (metanol, etanol y similares), cetonas (acetona, metilacetona, ciclohexanona y similares), hidrocarburos aromáticos (tolueno, xileno, etilbenceno, metilnaftaleno y similares), hidrocarburos no aromáticos (hexano, ciclohexano, queroseno y similares), ésteres (acetato de etilo, acetato de butilo y similares), nitrilos (acetonitrilo, isobutironitrilo y similares), éteres (dioxano, éter diisopropílico y similares), amidas de ácidos (dimetilformamida, dimetilacetamida y similares), hidrocarburos halogenados (dicloroetano, tricloroetileno y similares), etc.

Como surfactantes, se incluyen, por ejemplo, ésteres sulfato de alquilo, sales sulfonato de alquilo, sales arilsulfonato de alquilo, alquil aril éteres y sus compuestos de polioxietileno, éteres de polioxietilenglicol, ésteres de alcoholes polihídricos, derivados de alcoholes azucarados y similares.

Otros auxiliares de formulación incluyen, por ejemplo, agentes adherentes y agentes dispersantes, tales como caseína, gelatina, polisacáridos (almidón, goma Arábiga, derivados de celulosa, ácido alginico y similares), derivados de lignina, bentonita, moléculas grandes hidrosolubles sintéticas (alcohol polivinílico, polivinilpirrolidona, ácido poliacrílico y similares) y similares; agentes estabilizantes, tales como PAP (fosfato ácido de isopropilo), BHT (2,6-terc-butil-4-metilfenol), BHA (2-/3-terc-butil-4-metoxifenol), aceites vegetales, aceites minerales, ácidos grasos, ésteres de ácidos grasos y similares.

La presente composición puede también ser obtenida formulando por separado el presente compuesto de uracilo y el Oxifluorfenol como ingredientes activos según el procedimiento de formulación antes descrito y mezclando luego ambas formulaciones.

La presente composición es aplicada tal cual o, si es necesario, tras dilución sobre las hojas y los tallos de las malas hierbas. A veces, se puede esperar un aumento de la actividad del herbicida usando la presente composición con otro herbicida. Además, se puede usar concurrentemente junto con un insecticida, fungicida, regulador del crecimiento de las plantas, agente reductor de la fitotoxicidad (asegurador) y similares.

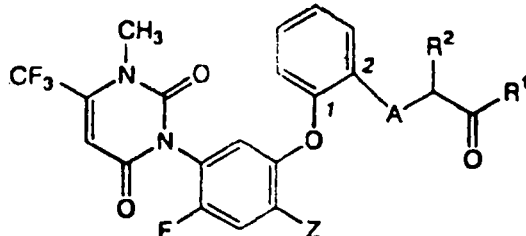
La cantidad que se ha de aplicar de la presente composición puede variar dependiendo de la razón de mezcla del presente compuesto de uracilo con respecto al Oxifluorfenol como ingredientes activos, de las condiciones meteorológicas, de las formas de formulación, del tiempo de aplicación, del método de aplicación, del lugar de aplicación, tipo de mala hierba que se ha de controlar, tipo de cultivo que se ha de proteger y similares; la cantidad total del presente compuesto de uracilo y del Oxifluorfenol por hectárea es normalmente de 10 g a 8.000 g, preferiblemente de 100 g a 4.000 g. Las emulsiones, polvos hidratables, suspensiones y similares de la presente composición son aplicados en una cantidad predeterminada normalmente diluida con 100 a 1.000 litros de agua por hectárea. Se puede esperar un aumento del efecto sobre las malas hierbas añadiendo adyuvante al diluyente acuoso.

El presente procedimiento es normalmente llevado a cabo aplicando una cantidad efectiva de la presente composición a las malas hierbas; también puede ser llevado a cabo aplicando cantidades efectivas del presente compuesto de uracilo y de Oxifluorfenol independientemente, pero en la misma fase, según la cantidad, la forma de uso y similares antes descritos.

A continuación se describen específicamente algunos ejemplos del presente compuesto de uracilo.

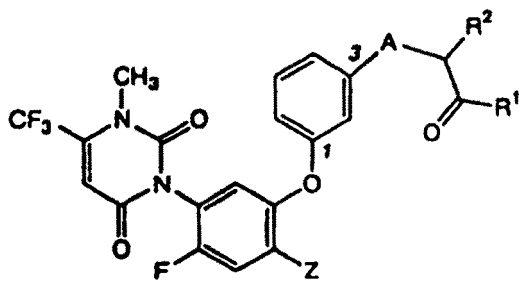
Compuestos representados por la fórmula (I-a):

TABLA 1

|  <p style="text-align: right;">( I - a )</p> |   |    |                 |                                |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---|----|-----------------|--------------------------------|
| Compuesto<br>N°                                                                                                               | A | Z  | R <sup>2</sup>  | R <sup>1</sup>                 |
| A-1                                                                                                                           | O | Cl | H               | OCH <sub>3</sub>               |
| A-2                                                                                                                           | O | Cl | H               | OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> |
| A-3                                                                                                                           | O | Cl | CH <sub>3</sub> | OCH <sub>3</sub>               |
| A-4                                                                                                                           | O | Cl | CH <sub>3</sub> | OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> |
| A-5                                                                                                                           | O | CN | H               | OCH <sub>3</sub>               |
| A-6                                                                                                                           | O | CN | CH <sub>3</sub> | OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> |
| A-7                                                                                                                           | O | Br | H               | OCH <sub>3</sub>               |

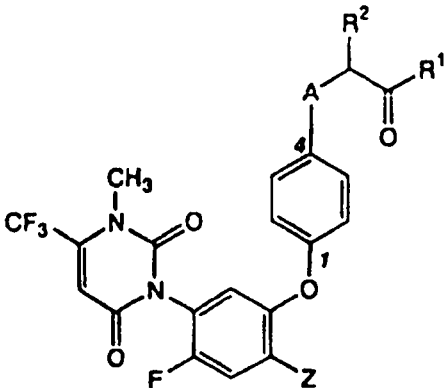
Compuestos representados por la fórmula (I-b):

TABLA 2

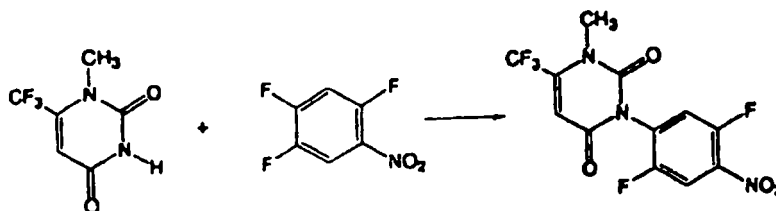
|  <p style="text-align: right;">( I - b )</p> |   |    |                 |                                |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---|----|-----------------|--------------------------------|
| Compuesto<br>N°                                                                                                                 | A | Z  | R <sup>2</sup>  | R <sup>1</sup>                 |
| B-1                                                                                                                             | O | Cl | H               | OCH <sub>3</sub>               |
| B-2                                                                                                                             | O | Cl | CH <sub>3</sub> | OCH <sub>3</sub>               |
| B-3                                                                                                                             | O | CN | H               | OCH <sub>3</sub>               |
| B-4                                                                                                                             | O | CN | CH <sub>3</sub> | OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> |

Compuestos representados por la fórmula (I-c):

TABLA 3

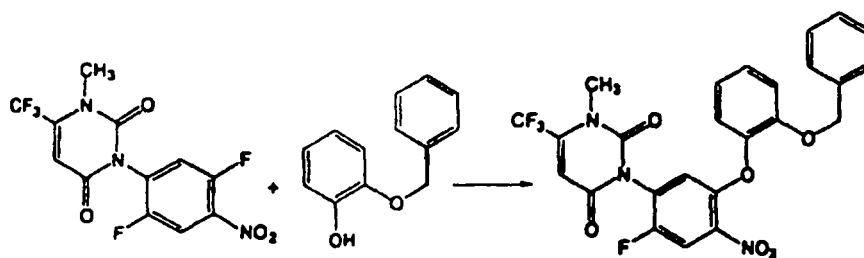
|  <p style="text-align: right;">( I - c )</p> |   |    |                 |                                |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---|----|-----------------|--------------------------------|
| Compuesto<br>N°                                                                                                               | A | Z  | R <sup>2</sup>  | R <sup>1</sup>                 |
| C-1                                                                                                                           | O | Cl | H               | OCH <sub>3</sub>               |
| C-2                                                                                                                           | O | Cl | CH <sub>3</sub> | OCH <sub>3</sub>               |
| C-3                                                                                                                           | O | CN | H               | OCH <sub>3</sub>               |
| C-4                                                                                                                           | O | CN | CH <sub>3</sub> | OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub> |

Los presentes compuestos de uracilo pueden ser producidos, por ejemplo, según el procedimiento descrito en EP 1.106.607. Por ejemplo, se puede producir el Compuesto A-3 por el siguiente procedimiento:



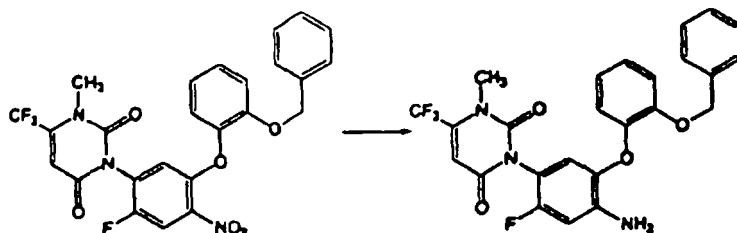
En 10 ml de sulfóxido de dimetilo se disolvieron 1,77 g de 2,4,5-trifluoronitrobenzono y 1,94 g de 3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidina. Después de añadir 1,52 g de carbonato de potasio anhidro a temperatura ambiente, se agitó la mezcla a 80°C durante 1 hora. Se enfrió la solución de reacción a temperatura ambiente y se vertió luego la solución en agua helada y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo a cromatografía en columna de gel de sílice para obtener 1,51 g de 2,5-difluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobenzono.

P.f. 150°C.



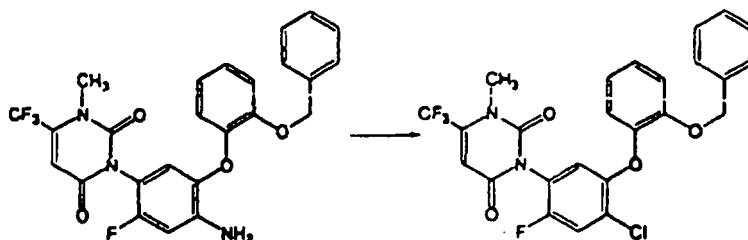
Se añadió gota a gota una mezcla de 4,05 g de 2-benciloxifenol y 9,5 ml de N,N-dimetilformamida a una mezcla de 0,80 g de hidruro de sodio y 20 ml de N,N-dimetilformamida enfriando con hielo y se agitó la mezcla durante 30 minutos. Se añadió gota a gota una mezcla de 7,1 g de 2,5-difluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobenzoceno y 17 ml de N,N-dimetilformamida a la misma temperatura y se agitó la mezcla durante 1 hora. Se vertió la solución de reacción en agua helada y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica sucesivamente una vez con HCl 1 N y una vez con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 8,6 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobenzoceno.

$^1\text{H-RMN}$  ( $\text{CDCl}_3/250\text{ MHz}$ ),  $\delta$  (ppm): 3,52 (c, 3H,  $J=1,1\text{ Hz}$ ), 5,01 (s, 2H), 6,31 (s, 1H), 6,81 (d, 1H,  $J=6,0\text{ Hz}$ ), 6,9-7,1 (m, 2H), 7,1-7,4 (m, 7H), 7,78 (d, 1H,  $J=8,7\text{ Hz}$ ).



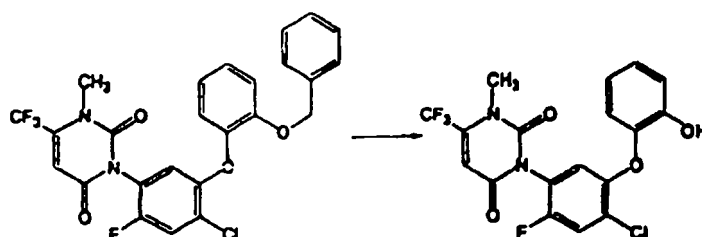
A una mezcla de 8,6 g de polvo de hierro, 27 ml de ácido acético y 2,7 ml de agua, se añadió gota a gota una solución de 8,6 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobenzoceno en 23 ml de ácido acético manteniendo la temperatura de la solución de reacción a  $35^\circ\text{C}$  o menos. Tras finalizar la adición, se continuó agitando durante 2 horas y se filtró luego la solución de reacción a través de celita y se diluyó con acetato de etilo. Se neutralizó la mezcla con una solución acuosa saturada de hidrógeno carbonato de sodio y se lavó la capa orgánica con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo obtenido a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 6,46 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]anilina.

$^1\text{H-RMN}$  ( $\text{CDCl}_3/250\text{ MHz}$ ),  $\delta$  (ppm): 3,50 (c, 3H,  $J=1,2\text{ Hz}$ ), 5,06 (s, 2H), 6,29 (s, 1H), 6,57 (dd, 1H,  $J=8,5, 1,6\text{ Hz}$ ), 6,9-7,0 (m, 1H), 7,0-7,1 (m, 3H), 7,2-7,4 (m, 6H).



A una mezcla de 6,46 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]anilina, 2,45 g de cloruro de cobre (I), 5,04 g de cloruro de cobre (II) y 90 ml de acetonitrilo, se añadieron gota a gota 4,46 g de nitrito de isoamilo a temperatura ambiente y se agitó la mezcla durante 1 hora. Se vertió la solución de reacción en ácido clorhídrico al 2% y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo obtenido a cromatografía en columna de gel de sílice para obtener 4,6 g de ([2-[2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi]fenoxi]metil)benzoceno.

P.f.  $50,8^\circ\text{C}$ .

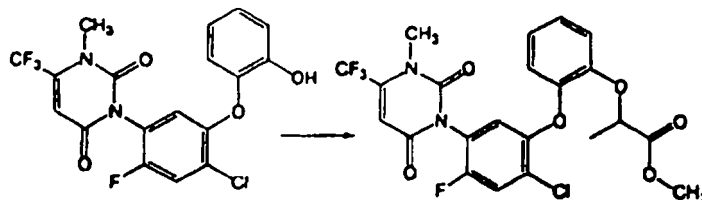




## ES 2 286 249 T3

A 4,5 g de ([2-[2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi]fenoxi]metil)benceno se añadieron 230 ml de acetato de etilo y 0,46 g de paladio al 10% sobre carbono y se agitó la mezcla bajo una atmósfera de hidrógeno a temperatura ambiente durante 5 horas. Después de substituir el sistema de reacción por nitrógeno, se filtró la solución de reacción sobre celita y se concentró el filtrado, para obtener 3,57 g de

P.f. 55,4°C.



En 6 ml de N,N-dimetilformamida se disolvieron 0,23 g de 2-{2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi}fenol. Después de añadir 0,22 g de carbonato de potasio anhidro, se añadieron 0,13 g de 2-bromopropionato de metilo a temperatura ambiente con agitación y se agitó luego la mezcla a 80°C durante 3 horas. Después de enfriar la solución de reacción hasta la temperatura ambiente, se vertió la solución de reacción en agua helada y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 0,23 g de 2-[2-[2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi]fenoxi]propionato de metilo [Compuesto A-3].

<sup>1</sup>H-RMN (CDCl<sub>3</sub>/250 MHz), δ (ppm): 1,47 (d, 3H, J=6,8 Hz), 3,50 (c, 3H, J=0,7 Hz), 3,6-3,8 (m, 3H), 4,6-4,8 (m, 1H), 6,28 (s, 1H), 6,7-6,8 (m, 1H), 6,8-6,9 (m, 1H), 6,9-7,1 (m, 1H), 7,1-7,2 (m, 2H), 7,3-7,4 (m, 1H).

Se muestran a continuación ejemplos de formulación. En los siguientes ejemplos de formulación y ejemplos de ensayo, los compuestos representados por números de compuesto son los compuestos de la Tabla 1 a 3 y parte significa parte en peso.

### Ejemplo de formulación 1

Se obtiene cada uno de los polvos hidratables pulverizando suficientemente y mezclando 1,5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 75 partes de Oxifluorfenol, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 18,5 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

### Ejemplo de formulación 2

Se obtiene cada uno de los polvos hidratables pulverizando suficientemente y mezclando 0,5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, partes de Oxifluorfenol, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 44,5 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

### Ejemplo de formulación 3

Se obtiene cada uno de los polvos hidratables pulverizando suficientemente y mezclando 10 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Oxifluorfenol, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 45 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

### Ejemplo de formulación 4

Se obtiene cada una de las suspensiones triturando en húmedo 0,6 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 30 partes de Oxifluorfenol, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 63,4 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

### Ejemplo de formulación 5

Se obtiene cada una de las suspensiones triturando en húmedo 0,4 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Oxifluorfenol, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 53,6 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

## ES 2 286 249 T3

### Ejemplo de formulación 6

Se obtiene cada una de las suspensiones triturando en húmedo 5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 10 partes de Oxifluorfenó, 3 partes de monooleato de polioxietilén-sorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 79 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

A continuación se muestran ejemplos de ensayo.

### 10 Criterios de evaluación

La evaluación de la actividad herbicida se divide en 11 niveles y se muestra por 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 ó 10, donde un nivel fue tomado como "0" cuando no se observó ninguna o casi ninguna diferencia entre el comportamiento de crecimiento de una mala hierba de ensayo en el momento de observación y el de la mala hierba no tratada y un nivel fue tomado como "10" cuando una mala hierba de ensayo murió por completo o su crecimiento resultó completamente inhibido.

### Ejemplo de ensayo 1

Se llenó un tiesto de plástico de 11 cm de diámetro y 8 cm de profundidad con tierra de campo. Se sembró una semilla de sen y se cultivó en un invernadero durante 28 días.

Se preparó una emulsión de Compuesto A-1 mezclando suficientemente 5 partes de Compuesto A-1, 6 partes de Sopol 3005X (surfactante, producido por Toho Chemical) y 89 partes de xileno.

Se diluyeron cada una de un uso simple de una emulsión de Compuesto A-1, un uso simple de una emulsión de Oxifluorfenó (denominación comercial: Goal, producido por Rohm & Hass Co., que contenía un 23% de Oxifluorfenó) y una composición mixta de una emulsión de Compuesto A-1 y una emulsión de Oxifluorfenó con agua que contenía un 1% de Agri-dex (producido por Helena). Se pulverizaron uniformemente las diluciones respectivas desde el lado superior sobre el follaje de sen cultivado como se ha descrito antes con un pequeño pulverizador, de tal forma que las cantidades de los ingredientes activos eran las cantidades mostradas en la Tabla 4.

Después del tratamiento, se cultivaron en un invernadero durante 5 días y se evaluó el efecto frente a las malas hierbas. En la Tabla 4 se muestran los resultados.

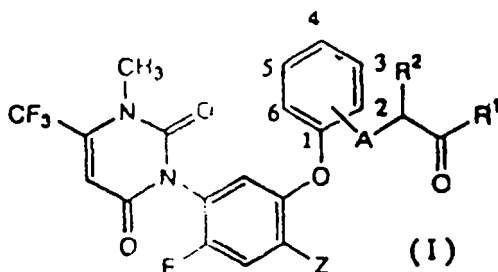
TABLA 4

| Compuesto de ensayo          | Cantidad de ingrediente activo (g/ha) | Efecto del herbicida |
|------------------------------|---------------------------------------|----------------------|
|                              |                                       | Sen                  |
| Compuesto A-1                | 5                                     | 2                    |
| Compuesto A-1                | 20                                    | 4                    |
| Oxifluorfenó                 | 500                                   | 3                    |
| Oxifluorfenó                 | 2.000                                 | 3                    |
| Compuesto A-1 + Oxifluorfenó | 5 + 2.000                             | 8                    |
| Compuesto A-1 + Oxifluorfenó | 20 + 500                              | 9                    |

Según la presente invención, se pueden controlar las malas hierbas de manera efectiva con una baja dosis. En particular, en huertos y tierra no cultivada, las malas hierbas pueden ser selectivamente controladas.

## REIVINDICACIONES

1. Una composición herbicida que contiene, como ingredientes activos, un compuesto de uracilo representado por la siguiente fórmula (I):

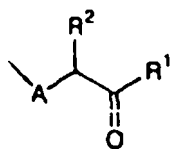


donde Z representa un átomo de halógeno o ciano; A representa un átomo de oxígeno, un átomo de azufre o NH; R<sup>1</sup> representa hidroxilo, alcoxi C1-C7, alquenciloxi C3-C7, alquenciloxi C3-C7, cicloalcoxi C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alcoxi C1-C3, (alquilamino C1-C7)oxi, {di(alquil C1-C7)amino}oxi, (alquilidenamino C3-C7)oxi, alquilamino C1-C7, di(alquilo C1-C7)amino, alquencilamino C3-C7, alquencilamino C3-C7, cicloalquilamino C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alquilamino C1-C3 o (alcoxi C1-C7)amino, y R<sup>2</sup> representa un átomo de hidrógeno o metilo,

y 2-cloro-1-(3-etoxi-4-nitrofenoxi)-4-(trifluorometil)-benceno.

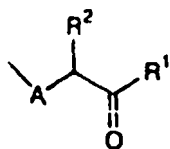
2. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), A es un átomo de oxígeno y R<sup>1</sup> es alcoxi C1-C7.

3. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), el sustituyente representado por la siguiente fórmula:



donde R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y A representan el mismo significado que antes, está unido a la posición 2 según se define en la fórmula (I).

4. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), el sustituyente representado por la siguiente fórmula:



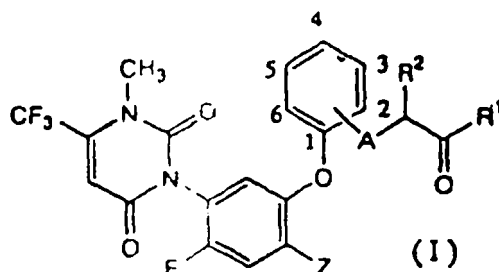
donde R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y A representan el mismo significado que antes, está unido a la posición 3 ó 4 según se define en la fórmula (I).

5. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), Z es un halógeno y R<sup>2</sup> es un hidrógeno.

6. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), Z es ciano.

7. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde la razón de mezcla del presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I) con respecto al 2-cloro-1-(3-etoxi-4-nitrofenoxi)-4-(trifluorometil)benceno es de 1:1 a 1:500 en razón de peso.

8. Un método para controlar malas hierbas consistente en aplicar cantidades efectivas de un compuesto de uracilo representado por la siguiente fórmula (I):



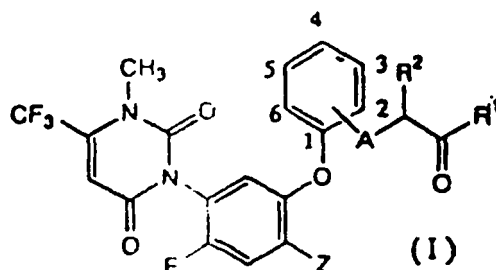
donde Z representa un átomo de halógeno o ciano; A representa un átomo de oxígeno, un átomo de azufre o NH; R<sup>1</sup> representa hidroxilo, alcoxi C1-C7, alqueniloxi C3-C7, alquililoxi C3-C7, cicloalcoxi C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alcoxi C1-C3, (alquilamino C1-C7)oxi, {di(alquil C1-C7)amino}oxi, (alquilidenamino C3-C7)oxi, alquilamino C1-C7, di(alquilo C1-C7)amino, alquenilamino C3-C7, alquililamino C3-C7, cicloalquilamino C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alquilamino C1-C3 o (alcoxi C1-C7)amino, y R<sup>2</sup> representa un átomo de hidrógeno o metilo,

y 2-cloro-1-(3-etoxi-4-nitrofenoxi)-4-(trifluorometil)-benceno a las malas hierbas.

9. El método para controlar malas hierbas según la reivindicación 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en un huerto.

10. El método para controlar malas hierbas según la reivindicación 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en una tierra no cultivada.

11. Un uso de una composición consistente en un compuesto de uracilo representado por la siguiente fórmula (I):



donde Z representa un átomo de halógeno o ciano; A representa un átomo de oxígeno, un átomo de azufre o NH; R<sup>1</sup> representa hidroxilo, alcoxi C1-C7, alqueniloxi C3-C7, alquililoxi C3-C7, cicloalcoxi C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alcoxi C1-C3, (alquilamino C1-C7)oxi, {di(alquil C1-C7)amino}oxi, (alquilidenamino C3-C7)oxi, alquilamino C1-C7, di(alquilo C1-C7)amino, alquenilamino C3-C7, alquililamino C3-C7, cicloalquilamino C5-C7, {(alcoxi C1-C7)carbonil}alquilamino C1-C3 o (alcoxi C1-C7)amino, y R<sup>2</sup> representa un átomo de hidrógeno o metilo,

y 2-cloro-1-(3-etoxi-4-nitrofenoxi)-4-(trifluorometil)-benceno como herbicida.

12. El uso según la reivindicación 11, donde el herbicida es un herbicida para un huerto.

13. El uso según la reivindicación 11, donde el herbicida es un herbicida para una tierra no cultivada.