

(19) HU

MAGYAR
NÉPKÖZTÁRSASÁG



ORSZÁGOS
TALÁLMÁNYI
HIVATAL

SZABADALMI LEÍRÁS

B

(11)

190646

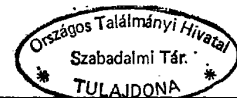
Bejelentés napja: (22) 1982.11.08. (21) (3587/82)

Elsőbbsége: (32) 1981.11.09.
(31) (8105047)
(33) Hollandia

Közzététel napja: (41) (42) 1984.04.30.

Megjelent: (45) 1988.02.29.

Nemzetközi osztályozás:
(51) NSZO,
C 07 C 79/35
C 07 C 93/06
A 01 N 33/18
A 01 N 33/06
A 01 N 37/18



Feltalálók: (72)
Paerels Gerald Bernard, vegyész,
Raven Cornelis Wouter, vegyész,
Weesp, Hollandia

Szabadalmas: (71)
Duphar Internacionaal Research
B.V., Weesp, Hollandia

(54) Hatóanyagként új difenil-éter-származékokat tartalmazó herbicid készítmények és eljárás a hatóanyagok előállítására

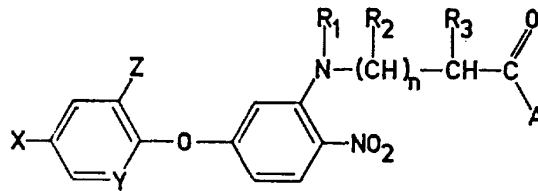
1 (57) Kivonat

A hatóanyagok (I) általános képletében
-X hidrogénatom, -CH vagy -CCl csoport;
-Z hidrogénatom, halogénatom, nitro-
csoport,
adott esetben halogénezett alkilcsoport vagy
alkanoilcsoport;

-n 0, 1 vagy 2;
-R₁ hidrogénatom, alkil- vagy alkano-
ilcsoport;
-R₂ és R₃ hidrogénatom vagy alkil-
csoport és

-A -OR₄, -SR₄ vagy -N $\begin{matrix} R_6 \\ \diagup \\ R_5 \end{matrix}$ általános

képletű csoport; amelyekben
-R₄ hidrogénatom, alkilcsoport, alkáli-
fém- vagy alkáliföldfémkation, vagy alkilezett
vagy alkilezetlen ammóniumcsoport;
-R₅ és R₆ hidrogénatom dialkil-amino-
csoport vagy R₅ és R₆ azzal a nitrogén-
atommal, amelyhez kapcsolódik, olyan hetero-
ciklusos gyűrűt alkot, amely egy második
heteroatomot foglal magában az O, S vagy N
atomok közül.



190646

A találmány új difenil-éter-származékokat tartalmazó herbicid és/vagy levélleszáritó készítményekre és a hatóanyagok előállítására vonatkozik. Ismeretes, hogy bizonyos difenil-éter-származékok alkalmasak gyomnövények irtására mind a mezőgazdaságban, mind a kertészetekben. A gyomnövények irtása történhet kikelés előtt és után. Azokat a szereket, amelyek kikelés után irtják a gyomnövényeket kikelés utáni (post-emergens) herbicideknek, azokat pedig, amelyek kikelés előtt irtják a gyomnövényeket kikelés előtti (pre-emergens) herbicideknek nevezzük. A haszonnövények akadálytalan fejlődésének elősegítésére az egész fejlődési időszakban kívánt esetben mindkét típusú herbicidet használjuk, de előnyösen csak az egyiket. Amennyiben kikelés előtti herbicidet használunk, akkor ezt a haszonnövény vetésével egyidejűleg vagy közvetlenül annak elvetése után alkalmazzuk. Abban az esetben, pedig, ha kikelés utáni herbicidet használunk, akkor ezt még abban az időszakban alkalmazzuk, mielőtt a gyomnövények akadályoznák a haszonnövények fejlődését. A kikelés előtti herbicidek használatának megvan az az előnye, hogy azokat a haszonnövény magvaival egyidejűleg vihetjük be a talajba a vetésnél. Ez egyúttal munkamegtakarítást jelent és egyben elkerüljük azt, hogy a herbicid a haszonnövényt későbbi fejlődési állapotában károsítsa. A kikelés után alkalmazott herbicidek gyakran jóval hatásosabbak, mint a kikelés előtti használtak, ennél fogva kisebb mennyiségekben alkalmazhatók a gyomnövények irtására.

Rendkívül fontos, hogy az alkalmazott herbicid szer szelektív legyen, vagyis a nem kívánt növényeket károsítsa, azaz a nem kívánt növények növekedését visszасzorítsa, miközben a haszonnövény fejlődését károsan nem befolyásolja. Az ideális herbicid szernek kis mennyiségben kell irtania a haszonnövények között tenyésző minden fajta gyomnövényt, az egész fejlődési időszakban, egyszeri kezelés után. Az ideális herbicidnek nemcsak valamennyi típusú gyomnövényt kellene pusztítania, hanem egyaránt irtania kellene ezeket a gyomnövényeket palánták és kifejlett növények alakjában, valamint meg kellene akadályoznia a gyomnövények magvainak a csírázását. Emellett a herbicid szerek nem lehetnek fitotoxikusak a védendő növényekre. A jelenleg használt herbicid szerek egyike sem ideális. A hatásos gyomirtás rendszerint azzal párosul, hogy a herbicid szer fitotoxikus a haszonnövényre. Abban az esetben pedig, ha az alkalmazott herbicid szer nem fejt ki káros hatást a haszonnövényre egy adott dózisban, akkor rendszerint nem irtja hatásosan a gyomnövényeket az alkalmazott mennyiségben.

Herbicid tulajdonságú difenil-éterek ismertek a 4 039 588. számú amerikai szabadalmi leírásból. Ezek közül a vegyületek közül

példaként megemlítjük azokat a p-nitro-difenil-étereket, amelyek a nitrocsoporthoz viszonyítva orto-helyzetben aminocsoportot tartalmaznak helyettesítőként. Ilyen például a 2,4-diklór-3'-(izopropil-amino)-4'-(nitro-difenil)-éter. Az ott leírt példák közül látható azonban, hogy ez a herbicid hatású vegyület is hagy kívánnivalót maga után. Egy másik kémiaiilag hasonló difenil-éter-származék, mégpedig az N-metil-2-(N-(2-nitro-5-fenoxi-6-klór)-anilino)-propionamid amely a 0 027 555. számú európai szabadalmi leírásból ismert, alig mutat herbicid hatást, ahogy az a példák közül látható.

Más rokon vegyületek - így a 2-klór-4-(trifluor-metil)-3'-(etil-amino)-4'-(nitro-difenil)-éter és a megfelelő 3'-(metil-amino)-vegyület - ismertek a 7 301 194. számú holland közzétett bejelentésből. Ezek az ismert vegyületek ugyancsak kevésbé aktívak, mint a kémiaiilag rokon új vegyületek, amelyek a találmány szerinti készítmények hatóanyagai, ahogy ez a példák közül kitűnik. Ezen túlmenően, az utóbb említett ismert vegyületek nem bomlanak el kellő mértékben a talajban, a találmány szerinti készítmények hatóanyagát alkotó vegyületek ellenben lebomlanak.

Hasonló szerkezetű, illetve egyéb herbicid hatású difenil-éter-származékokat az 1 079 303. sz. kanadai, a 4 093 446. sz. amerikai és a 2 926 829. sz. NSZK-beli szabadalmi leírás ismerteti.

A találmány tárgya tehát olyan herbicid készítmény, amely képes szelektíven irtani a nem kívánt növényeket a mezőgazdaságban és a kertészetben természetű haszonnövények között, emellett egyidejűleg hatásosabb, mint a fent említett ismert vegyületeket tartalmazó herbicid szerek.

A találmány szerinti herbicid szerek hatóanyagait alkotó új difenil-éter-származékok a (I) általános képletnek felelnek meg. Ebben a képletben

-X hidrogénatom, halogénatom, nitrocsoport, adott esetben halogénezett alkilcsoport vagy alkoxics csoport - amelyek 1-6 szénatomosak - vagy 1-4 szénatomos alkanoilcsoport;

-Y nitrogénatom, -CH vagy -CCl képletű csoport;

-Z hidrogénatom, halogénatom, nitrocsoport vagy 1-4 szénatomos, adott esetben halogénezett alkilcsoport;

-n értéke 0, 1 vagy 2;

-R₁ hidrogénatom vagy 1-4 szénatomos alkil- vagy alkanoilcsoport,

-R₂ hidrogénatom;

-R₃ hidrogénatom vagy 1-4 szénatomos alkilcsoportot képvisel; és

-A jelentése -OR₄ vagy -N $\begin{matrix} \text{R}_6 \\ \diagup \\ \text{R}_7 \end{matrix}$

általános képletű csoport, amelyekben

-R₄ hidrogénatom vagy 1-6 szénatomos alkilcsoport; és

-R₅ és R₆ egymással megegyező vagy egymástól különböző lehet és jelenthet hidrogénatomot, olyan dialkil-amino-csoportot, amelyben az alkilcsoportok 1-4 szénatomosak vagy 1-4 szénatomos alkilcsoportot, illetve R₅ és R₆ azzal a nitrogénatommal, amelyhez kapcsolódik, olyan telített, hattagú heterociklusos gyűrűt alkothat, amely egy második heteroatomot foglal magában az O vagy N atomok közül,

azzal a megszorítással, hogy X és Z egyidejűleg nem hidrogénatom vagy nitrocsoport, és ha A jelentése -OR₄ általános képletű csoport, akkor R₁ jelentése alkilcsoporttól eltérő.

Különösen értékesek a (Ia) általános képletnek megfelelő vegyületek. Ebben a képletben

-X' klóratom, nitrocsoport vagy trifluor-metil-csoport;

-Z' klóratom vagy nitrocsoport;

azzal a megszorítással, hogy X' és Z' egyidejűleg nem nitrocsoport;

-R₇ etilén-csoport, és

-A' jelentése -OR₄, vagy $\begin{matrix} R_6 \\ \diagdown \\ -N \\ \diagup \\ R_5 \end{matrix}$ általános

képletű csoport, amelyekben

-R₅ és R₆ jelentése a fenti és

-R₄' jelentése 1-4 szénatomos alkilcsoport.

Ugyancsak előnyösek az (Ib) általános képletű vegyületek. Ebben a képletben Y, X', Z' és R₇ jelentése a fent megadottakkal egyezik.

A 2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid (1) kiválóan alkalmas szelektív herbicid készítmények hatóanyagaként.

Ugyancsak jól használhatók szelektív herbicid készítmények hatóanyagaként a következő, a (I) általános képlet körébe tartozó új difenil-éterek-származékok:

(2) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(3) etil-N-[2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil]-amino-acetát,

(4) N-[2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil]-amino-acetát,

(5) etil-N-[2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil]-amino-acetát,

(6) 2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav,

(7) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(8) etil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(9) 2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(10) etil-N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetát,

(11) 2-[N-(2-nitro-5-/4-metil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(12) 2-[N-(2-nitro-5-/4-terc-butyl-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(13) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-metil-4-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

5 (14) 2-[N-(2-nitro-5-/2-metil-4-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(15) etil-N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-N-acetil-amino-acetát,

(16) N-metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

10 (17) 2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav,

(18) etil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

15 (19) izopropil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(20) n-butyl-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

20 (21) N,N-dimetil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(22) N,N-dimetil-amino-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

25 (23) metil-3-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(24) N-(N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-alanil)-morfolin,

(25) N-(N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-alanil)-pirrolidin,

30 (26) 2-[N-(2-nitro-5-/4-bróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(27) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4-dibróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

35 (28) 2-[N-(2-nitro-5-/2,4-dibróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(29) N-[2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil]-N-etil-amino-acetamid,

(30) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

40 (31) etil-N-[2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetát,

(32) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

45 (33) N-[2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetamid,

(34) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-(trifluor-metil)-4-nitro-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(35) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-nitrofenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(36) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-acetil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(37) metil-2-[N-(2-nitro-5-/3,5-diklór-piridil-2-oxi/-fenil)-amino]-propionát,

55 (38) 2-[N-(2-nitro-5-/2,6-diklór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav,

(39) metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,6-diklór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(40) 2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

60 (41) 2-[N-(2-nitro-5-/4-(1,1,2,2-tetrafluor-etoxi)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid,

(42) 3-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav,

65

(43) metil-3-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát,

(44) metil-2-[N-[2-nitro-5-/4-(trifluor-metoxi)-fenoxi/-fenil]-amino]-propionát,

(45) metil-2-[N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(1,1,2,2-tetra-fluor-etoxi-fenoxi-fenil]-amino)-propionát és

(46) 2-[N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(1,1,2,2-tetra-fluor-etoxi)-fenoxi/-fenil]-amino]-propionát.

A fenti sorszámú vegyületek a (I) általános képlet következő helyettesítőinek felelnek meg:

A vegyület sor-száma	X	Y	Z	R ₁	R ₂	R ₃	n	A
1	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	NH ₂
2	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
3	Cl	CH	Cl	H	-	H	0	OC ₂ H ₅
4	Cl	CH	Cl	H	-	H	0	NH ₂
5	Cl	CCl	Cl	H	-	H	0	OC ₂ H ₅
6	Cl	CCl	Cl	H	-	CH ₃	0	OH
7	Cl	CCl	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
8	Cl	CCl	Cl	H	-	CH ₃	0	OC ₂ H ₅
9	Cl	CCl	Cl	H	-	CH ₃	0	NH ₂
10	CF ₃	CH	Cl	H	-	H	0	OC ₂ H ₅
11	CH ₃	CH	H	H	-	CH ₃	0	NH ₂
12	t.C ₄ H ₉	CH	H	H	-	CH ₃	0	NH ₂
13	Cl	CH	CH ₃	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
14	Cl	CH	CH ₃	H	-	CH ₃	0	NH ₂
15	CF ₃	CH	Cl	COCH ₃	-	H	0	OC ₂ H ₅
16	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	NHCH ₃
17	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OH
18	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OC ₂
19	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH(CH ₃) ₂
20	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OC _n H _{9-n}
21	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	N(CH ₃) ₂
22	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	NH-N(CH ₃) ₂
23	CF ₃	CH	Cl	H	H	H	1	OCH ₃
24	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	morfolino
25	CF ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	N-pirrolidinil
26	Br	CH	H	H	-	CH ₃	0	NH ₂
27	Br	CH	Br	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
28	Br	CH	Br	H	-	CH ₃	0	NH ₂
29	Cl	CH	Cl	C ₂ H ₅	-	H	0	NH ₂
30	Cl	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
31	CF ₃	CH	NO ₂	H	-	H	0	OC ₂ H ₅
32	CF ₃	CH	NO ₂	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
33	CF ₃	CH	NO ₂	H	-	H	0	NH ₂
34	NO ₂	CH	CF ₃	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
35	NO ₂	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
36	COCH ₃	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
37	Cl	N	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
38	CF ₃	CCl	Cl	H	-	CH ₃	0	OH
39	CF ₃	CCl	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
40	H	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	NH ₂
41	OCF ₂ CHF ₂	CH	H	H	-	CH ₃	0	NH ₂
42	Cl	CH	Cl	H	H	H	1	OH
43	Cl	CH	Cl	H	H	H	1	OCH ₃
44	OCF ₃	CH	H	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
45	OCF ₂ CHF ₂	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	OCH ₃
46	OCF ₂ CHF ₂	CH	Cl	H	-	CH ₃	0	NH ₂

A (I) általános képletű vegyületeket hatóanyagként tartalmazó herbicid készítmények nem kívánt növények irtására használhatók a mezőgazdaságban és kertészetben. Jóllehet az új difenil-éter-származékokat tartalmazó készítmények értékes hatással rendelkeznek kikelés előtt is, kikelés után herbicid aktivitásuk erősebb. Ennél fogva az új difenil-éter-származékokat tartalmazó találmány szerinti készítmények kikelés előtt és kikelés után egyaránt használhatók. A készítmények egysziklevelű, de különösen kétsziklevelű gyomnövények irtására alkalmasak. Ilyen gyomnövények például a következők:

Galinsoga parviflora (gombvirág), Galium aparine (galaj), Chenopodium album (libatop) Polygohum convolvulus (vadhajdina) Capsella bursa-pastoris (pásztoráska), Stellaria media (csillaghúr), Senecio vulgaris (aggófű), Veronica arvensis (veronika), Matricaria maritima (székfű), Amaranthus retroflexus (vörösgyökerű disznóparéj), Solanum nigrum (fekete csucsor), Spargula arvensis (csibehúr), Urtica dioica (nagy csalán), Polygonum aviculare (madárkeserűfű), Silybum marianum (bögáncs), Xanthium pensylvanicum, Datura stamonium, Ipomea muricata, Ipomea hederacea, Ipomea Lucunosa, Cassia obtusifolia, Sida spinosa, Anoda cristata, Abutilon theophrasti és Portulaca oleracea. Ezek a gyomnövények különböző haszonnövények között tenyésznek, ilyenek például a gabonafélék, így a búza, rizs, kukorica, zab és az árpa, a hüvelyesek, így a bab, borsó, szója, földimogyoró és a lucerna, továbbá a legelőkön élnek.

A (I) általános képletű vegyületek levéltelenítő készítmények hatóanyagaiként is használhatók.

A haszonnövények levéltelenítése és kiszáritása betakarítás előtt számos előnnyel jár. Szemes termésű haszonnövényeknél meggyorsítja a magok érését, ennek eredményeként korábban lehet a betakarítást elvégezni és ezzel lehetőség nyílik másodvetésre vagy elérhetjük azt, hogy a betakarítást ne kelljen kedvezőtlen körülmények között, például a fagyos, esős időszakban végezni. A gépi betakarítás hatásosabbá tehető, ha a haszonnövények levéltelenítését és kiszáritását betakarítás előtt elvégezzük. Ez nagy mértékben elősegíti a betakarított termés azon fertőzésének a megelőzését, amelyet a vegetatív növényrészek betegségei okoznak. A levéltelenítés és a kiszáritás a betakarítás előtt jelentős hatást gyakorol a termés hozamra és a minőségre.

Burgonyánál, amennyire lehetséges, célszerű a föld feletti részek eltávolítása leszárítással annak érdekében, hogy megelőzzük a burgonyagumók azon fertőződését, amelyet a vegetatív növényrészek betegségei okozhatnak, továbbá azért, hogy megkönnyítsük a gépi betakarítást. A gyapot gépi betakarításánál követelmény a levelek teljes

eltávolítása vagy leszáritása kielégítő eredmények elérése érdekében. A leszáritás vagy a levéltelenítés meggyorsítja a száradást és megnyitja a gyapot zöld tokját anélkül, hogy károsítaná a már nyitott tokokat.

5 Gyakorlati használatra a (I) általános képletnek megfelelő vegyületeket készítményekké dolgozzuk fel. Ennek során a hatóanyagokat összekeverjük szilárd vivőanyagokkal és kívánt esetben segédanyagokkal, például emulgáló szerekkel, diszpergáló szerekkel vagy stabilizáló anyagokkal.

10 A találmány szerinti készítmények például vizes oldatok és diszperziók, olajos oldatok és olajos diszperziók, szerves oldószer oldatok, paszták, porozószer, diszpergálható porok, elegyíthető olajok, granulátumok, pelletek és aeroszol-kompozíciók lehetnek.

20 A diszpergálható porok, paszták és elegyíthető olajok olyan koncentrált formában előállított készítmények, amelyeket a felhasználás előtt vagy az alkalmazás folyamán felhígítunk.

25 A szerves oldószeres oldatokat főként repülőgépes kezelés útján alkalmazzuk, amikor is nagy felületeket kezelünk viszonylag kis mennyiségű készítménnyel. A hatóanyag szerves oldószeres oldatait fitotoxicitást csökkentő anyagokkal például gyapjúzsírral gyapjúzsírsavval vagy gyapjúzsíralkohollal elegyíthetjük.

Példaképpen néhány készítményt az alábbiakban részletesebben is leírunk.

35 A granulátumokat például úgy készítjük, hogy a hatóanyagot oldószerben felvesszük vagy hígítószerben diszpergáljuk és a keletkező oldattal/szuszpenzióval, kívánt esetben kötőanyag jelenlétében, valamely granulált vivőanyagot, például porusos szemcsézett anyagot (horzsakövet vagy attaclay-t), ásványi nemporusos szemcsés anyagot (homokot vagy őrölt murvát), szerves szemcsézett anyagot (például szárított kávéőrleményt, aprított dohányszárat) vagy őrölt kukoricaszárat, átitatunk. A granulált készítményeket úgy is előállíthatjuk, hogy a hatóanyagot porított ásványi anyagokkal összesajtoltjuk ke-
40 nőanyagok és kötőanyagok jelenlétében és a sajtolt terméket a kívánt szemcseméretre aprítjuk, majd szitáljuk. Granulált készítményeket úgy is kaphatunk, hogy a hatóanyagot por alakjában összekeverjük porított kötőanyagokkal és ezután a keveréket kívánt
50 méretű szemcsékké alakítjuk.

55 Porozószerkeket úgy állíthatunk elő, hogy a hatóanyagot közvetlenül összekeverjük közömbös, szilárd, porított vivőanyaggal, például talkummal.

60 Diszpergálható porokat pl. úgy készítünk, hogy 10-80 tömegrész közömbös, szilárd vivőanyagot, például kaolint, dolomitot, gipszet, mészkövet, bentonitot, atlapulgitot, kolloid SiO₂-t vagy ezek és hasonló anyagok keverékét, összekeverjük 10-80 tömegrész

hatóanyaggal, 1-5 tömegrész diszpergáló szerrel, például az erre a célra ismert ligninszulfonáttal vagy alkilnaftalinszulfonáttal, előnyösen 0,5-5 tömegrész nedvesítő szerrel is, például zsiralkoholszulfáttal, alkil-aril-szulfonáttal, zsírsavkondenzációs termékkel vagy poli(oxi-etilén)-vegyületekkel és kívánt esetben, más adalékokkal.

Elegyíthető olajok előállítása érdekében a hatóanyagot megfelelő, előnyösen vízzel kevéssé elegyedő, oldószerben oldjuk és egy vagy több emulgeáló szert adunk az oldathoz. Megfelelő oldószerek például a xilol, toluol, ásványolajpárlatok, amelyek gazdagok aromás szénhidrogénekben, így szolventnafta, desztillált kátrányolaj és ezeknek a folyadékoknak az elegye. Emulgeáló szerekként használhatók például a poli(oxi-etilén)-vegyületek és/vagy az alkil-aril-szulfonátok. A hatóanyag koncentrációja az elegyíthető olajokban nem korlátozódik szűk tartományra, 2-50 t% lehet.

Ezenkívül az elegyíthető olajok olyan folyékony és nagy koncentrációjú primer készítmények is lehetnek, amelyek a hatóanyagnak vízzel könnyen elegyedő folyadékkal - például glikollal - glikol-éterrel, dimetil-formamiddal vagy N-metil-pirrolidonnal - és kívánt esetben felületaktív anyaggal készített oldatai. Abban az esetben, ha ezt a koncentrált olajat vízzel hígítjuk - röviddel a felhasználás előtt vagy az alatt - akkor a hatóanyag vizes diszperzióját kapjuk.

Aeroszol-készítményeket szokásos módon kapunk, így a hatóanyagot valamely oldószerbe, hajtóanyagként szolgáló illékony folyadékba, például a metán és etán klór-fluor-származékainak az elegyébe, kis szénatomszámú szénhidrogének elegyébe, dimetil-éterbe, vagy gázokba - így szén-dioxidba, nitrogénbe és nitrogén-oxidokba - visszük be.

Az előzőekben említett alkotóanyagokon kívül a találmány szerinti készítmények tartalmazhatnak más, erre a célra használt típusú, szereket is. Ilyenek többek között a kenőanyagok, például a kalcium-sztearát vagy magnézium-sztearát, amelyek a diszpergálható porokhoz vagy a granulálható elegyekhez adhatók. Tapadásnövelő adalék például a poli(vinil-alkohol), a cellulózszármazékok vagy más kolloid anyagok, így a kazein. Ezen túlmenően olyan anyagot is adhatunk a készítményhez, amely csökkenti a hatóanyag toxicitását. További adalékok még bizonyos vivőanyagok vagy segédanyagok, például a gyapjúzsír vagy a gyapjúzsíralkohol.

A találmány szerinti készítmények kombinálhatók ismert növénynövekedést szabályozó és kártevőirtó hatású vegyületekkel. Ennek eredményeként megnő és kiszélesedik a készítmények hatásspektruma és szinergizmus jöhet létre. A találmány szerinti készítmények ezenkívül levéltrágyákkal is kombinálhatók.

Ilyen kombinált készítményekben például a következő ismert növénynövekedést szabályozó fungicid, inszekticid és akaricid hatóanyagokat alkalmazhatunk.

- 5 Növénynövekedést szabályozó anyagok például a következők:
1. nagyobb szénatomszámú alkoholok, például az oktanol és a dekanol;
 2. zsírsavak kis szénatomszámú észterei;
 3. etilénfejlesztő anyagok, például a 2-(klór-etil)-foszfonsav és a 2-(klór-etil)-t (2-metoxi-etoxi)-szilán;
 4. nitro-difenil-éterek;
 5. helyettesített dinitro-anilinek, például a 2-klór-N-etil-6-fluor-N-[2,6-dinitro-4-(trifluor-metil)-fenil]-benzol-metán-amin;
 6. trifluor-metil-szulfonilamino-vegyületek;
 7. piperidin-származékok;
 8. benzil-tio-karbamátok, például a benzil-N,N'-dipropil-tio-karbamát;
 9. foszforo-tiono-amidátok és amido-tiono-foszfonsav-észterek;
 10. benzoxazolok;
- és ezeken kívül még a következő vegyületek:
- 25 maleinsav-hidrazid; 2,3:4,6-di-O-izopropilidén- α -xilo-2-hexilo-furanozonsav-nátrium; N,N-dimetil-amino-szukcinsav; α -ciklopropil-4-metoxi- α -(pirimidin-5-il)-benzil-alkohol;
 - 30 2-(klór-etil)-trimetil-ammónium; N,N-di(foszfono-metil)-glicin;
 - 9-hidroxi-fluorén-9-karbonsav (vagy észter); 2-klór-9-hidroxi-fluorén-9-karbonsav (vagy észter); N-1-naftil-naftálaminsav; 2,3-dihidro-35 -5,6-difenil-1,4-oxatiin; N-(3,4-dimetil-3-ciklohexenil)-butilamin; és 3,5-dinitro-2,6-dimetil-4-(terc-butyl)-acetofenon; vagy ezeknek a vegyületeknek az elegye.
- Fungicid hatású anyagok például a következők:
- 40 1. szerves önvegyületek, például a trifenil-ón-hidroxid és a trifenil-ón-acetát;
 2. alkilén-bisz-ditiokarbamátok, például a cink-etilén-bisz-ditiokarbamát és a mangán-etilén-bisz-ditiokarbamát;
 - 3.1-acil- vagy 1-karbamoil-N-benzimidazol-(-2)-karbamátok;
 - és 1,2-bisz(3-alkoxi-karbonil-2-tiureido)-benzol;
 - 45 és ezeken kívül a következő vegyületek: 2,4-dinitro-6-/2-oktil-fenil-krotonát, 1-[bisz(dimetil-amino)-foszforil]-3-fenil-5-amino,1,2,4-triazol, N-(triklór-metil-tio)-ftálimid,
 - 55 N-(triklór-metil-tio)-tetrahydroftálimid, N-(1,1:2,2-tetraklór-etil-tio)-tetrahydroftálimid, N-(diklór-fluor-metil-tio)-N-fenil-N,N'-dimetil-szulfamid,
 - 60 továbbá tetraklór-rizofalónitril, 2-(4'-tiazolil)-benzimidazol, 5-butyl-2-(etil-amino)-6-metil-pirimidin-4-il-dimetil-szulfamát,

65

1-(4-klór-fenoxi)-3,3-dimetil-1-(1,2,4-triazol-1-il)-2-butanon,
 α -/2-klór-fenil/- α -/4-klór-fenil/-5-pirimidin-
 -metanol,
 1-/izopropil-karbamoil/-3-/3,5-diklór-fenil/-
 -hidantoin,
 N-/1,1,2,2-tetraklór-etil-tio/-4-ciklohexán-1,2-
 -karboximid,
 N-(triklór-metil-trio-4-ciklohexén-1,2-dikar-
 boximid,
 N-tridecil-2,6-dimetil-morfolin,
 etil-foszfit fém sói, és
 N-/2,6-dimetil-fenil-N-metoxi-acetil/-alanin-
 -metil-észter; vagy
 ezeknek a vegyületeknek az elegyei.

A találmány szerinti készítmények felhasználandó mennyisége gyakorlati alkalmazása során számos tényezőtől függ, így például az alkalmazás helyétől, a választott hatóanyagtól, a gyomnövények és a hasznó-
 20 vények természetétől és nagyságától, valamint az időjárási viszonyoktól.

Általában herbicid használat esetén kedvező eredményeket érhetünk el 0,01-5 kg hatóanyag-mennyiségnek megfelelő herbicid
 25 szerrel hektáronként, az előnyös mennyiség 0,1-3 kg hatóanyag hektáronként. Levéltele-
 nítésre jó eredményeket érünk el 0,1-5 kg hatóanyag/hektár, különösen 1-5 kg ható-
 anyag/ha hatóanyag-mennyiséggel.

Az tapasztaltuk, hogy a találmány szerinti készítmények herbicid hatását és levél-
 30 telenítő hatását jelentős mértékben megnövelhetjük megfelelő segédanyagok, például ásványolajak és/vagy poli(oxi-etilén)-vegyü-
 35 letek hozzáadásával, így a 7 613 453. számú holland szabadalmi bejelentésben leírt ásványolajok és felületaktív anyagok használ-
 atával. Az alkalmazástól függően a felhasználásra kerülő segédanyag mennyisége tág
 40 határok között változhat, szokásosan 10-10.000 ml/hektár tartományban van.

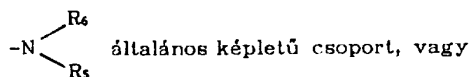
A (I) általános képletű vegyületek új anyagok és önmagában a rokon vegyületekre ismert módon állíthatók elő.

Az egyik előállítási mód szerint (II) általános képletű vegyület - X, Y és Z jelen-
 45 lése az előzőekben megadott, és B hidrogénatom, rövidszénláncú alkilcsoport vagy rövidszénláncú alkoxicsop-
 ort - (III) általános képletű vegyülettel

- R₂ és R₃ jelentése az előzőekben megadott,

Hal halogénatom, és

A'' jelentése 1-6 szénatomos alkoxicsop-
 50 port
 1-6 szénatomos alkiltiocsoport - reagáltatunk, majd dezacilezünk és ezután a keletkezett terméket, kívánt esetben (a) közvetlenül vagy a megfelelő savklorid útján (IV) általános képletű aminnal reagáltatjuk - R₅ és R₆ jelentése az előzőekben megadott - olyan vegyületek előállítása céljából, amelyek (I) általános képletében A jelentése



(b) szervetlen savval vagy bázissal hidrolizáljuk, olyan vegyületek előállítása céljából, amelyek (I) általános képletében A jelentése hidroxilcsoport.

A reakciót valamely α - vagy β -halogén-alkán-karbonsav-észterrel vagy -tio-észterrel szokásosan két lépésben játszhatjuk le. Az első lépésben az amino-hidrogénatomot egy alkoxi- vagy alkil-tio-karbonil-alkil-csoporttal helyettesítjük és közben hidrogénhalogénidet hasítunk le, míg a második reakció-
 10 lépésben az acilcsoportot vagy az észtercsoportot a nitrogénatomon hidrogénatommal helyettesítjük. Mindkét művelet előnyösen poláris szerves oldószerben, mégpedig az elsőt például dipoláris protonmentes oldószerben, így dimetil-formamidban, a másodikat pedig például protonos oldószerben, így ecetsav-
 20 ban, hajtjuk végre. Az első művelet előnyösen savmegkötő szer - például szervetlen bázis, így kálium-karbonát - a második műveletet pedig kevés sav - például hidrogén-
 25 bromid jelenlétében hajtjuk végre.

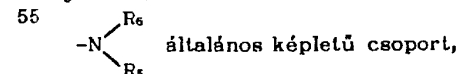
Az így kapott észter vagy tioészter szervetlen bázissal vagy savval való hidrolizálását előnyösen vízben, poláris szerves oldószerben vagy ezek elegyében végezzük
 30 0-50 °C hőmérsékleten. A keletkező észtert vagy tioésztert az aminnal, például ammóniával, előnyösen közömbös poláris szerves oldószerben, például alkoholban - így metanolban vagy etanolban - szobahőmérsékleten
 35 vagy kissé magasabb vagy alacsonyabb hőmérsékleten reagáltatjuk.

A (I) általános képletű új vegyületeket egy másik eljárás mód szerint úgy is előállíthatjuk, hogy (V) általános képletű vegyü-
 40 tet -

X, Y és Z jelentése az előzőekben megadott és

D nitrocsoport, halogénatom, továbbá helyettesített vagy helyettesítetlen aril-oxi-csoport -
 45

(VI) általános képletű aminnal - n, R₁, R₂, R₃ és A jelentése az előzőekben megadott - reagáltatunk, ezután a kapott vegyületet, amelynek (I) általános képletében A jelentése hidroxilcsoport vagy 1-6 szénatomos alkoxi-
 50 vagy alkil-tio-csoport, kívánt esetben, a fent leírt módon olyan megfelelő vegyületté alakítjuk, amely (I) általános képletében (a) A jelentése



R₅ és R₆ jelentése az előzőekben megadottakkal egyezik, vagy ahol

60 (b) A jelentése hidroxilcsoport.

A fenti reakciót előnyösen közömbös szerves oldószerben, például éterben, így di-
 oxánban, vagy poláros oldószerben, így acet-
 65 tonitrilben, szobahőmérséklete és az oldószer forráspontja közötti hőmérsékleten játszhatjuk

le. Kis mennyiségű alkalmas bázis, például alkálifém-hidroxid vagy -karbonát, jelen lehet a reakcióelegyben.

Az elmondottakból látható, hogy a (Ic) általános képletű új savamidokat -A''' jelentése



általános képletű csoport, míg a többi helyettesítő, valamint R₅ és R₆ jelentése a fenti - úgy állíthatjuk elő, hogy (Id) általános képletű vegyületeket - a helyettesítők jelentése az előzőekben megadott - közvetlenül vagy a megfelelő savklorid útján egy (IV) általános képletű aminnal reagáltatunk. Ha az aminnal közvetlenül reagáltatunk, úgy előnyösen poláros szerves oldószerekben vagy ezek elegyében, 0 °C és az alkalmazott oldószerek forráspontja közötti hőmérsékleten dolgozunk.

Abban az esetben, ha a megfelelő savkloridot képezzük közbenschőleg, akkor ezt a savkloridot a megfelelő savból állítjuk elő alkalmas klórozó szerrel, így tionil-kloriddal. A savkloridnak savamiddá való alakítását előnyösen poláros szerves oldószerekben, általában csökkentett hőmérsékleten végezzük.

A találmány szerinti készítményeket és a hatóanyagok előállítását a következő példákban is bemutatjuk.

1. Példa

(a) Metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát

22,1 g kálium-karbonátot és 10,7 ml (16,0 g) metil- α -bróm-propionátot egymás után hozzáadunk 30 g 2-nitro-5-(2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi)-acetanilid 100 ml dimetil-formamiddal készített oldatához. Ezután az elegyet 12 órán át szobahőmérsékleten keverjük. Ezt követően 4,0 ml α -bróm-propionsav-észtert adunk ismét az elegyhez és 6 óra hosszat 40 °C-on keverjük. Ezután ismét ugyanolyan mennyiségű α -bróm-propionsav-észtert és 8 g kálium-karbonátot adunk az elegyhez és 12 órán át 40 °C-on keverjük, majd vizet adunk a reakcióelegyhez és a szerves anyagot metilén-kloriddal extraháljuk. A kivonatot vízzel mossuk, szárítjuk, szűrjük, az oldószert ledesztilláljuk és a maradékot szilícium-dioxid töltésű oszlopon kromatografáljuk és kloroformmal eluáljuk. Ily módon 27,4 g cím szerinti terméket kapunk sárga színű szirupos folyadék alakjában. Az azonosítást NMR segítségével végezzük.

Hasonló módon állítjuk elő a következő vegyületeket is: etil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-klór-4-trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 87 °C;

etil-N-acetil-N-[2-nitro-5-(2,4,6-triklór-fenoxi)-fenil]-amino-acetát; Op. 142 °C;

etil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 172 °C;
metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 150 °C;
5 metil-3-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
etil-N-acetil-N-[2-nitro-5-(2,4-diklór-fenoxi)-fenil]-amino-acetát;
etil-N-acetil-N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetát; Op. 87 °C;
10 etil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/4-metil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
etil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/4-terc-butil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
15 metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-metil-4-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
metil-3-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
etil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/4-bróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
20 metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2,4-dibróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
25 etil-N-acetil-N-[2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-aminoacetát;
metil-2-[N-acetil-N-[2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino]-propionát;
metil-2-[N-acetil-N-[2-nitro-5-/2-(trifluor-metil)-4-nitro-fenoxi/-fenil]-amino]-propionát;
30 metil-2-[N-acetil-N-[2-nitro-5-/2-klór-4-nitro-fenoxi/-fenil]-amino]-propionát;
metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-klór-4-acetil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;
35 etil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát és
etil-2-[N-acetát-N-(2-nitro-5-/4-/1,1,2,2,-tetrafluor-etoxi/-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát.

(b) Metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát
90 ml 45 %-os ecetsav hidrogén-bromid-oldatot hozzáadunk 26,1 g 1(a). példa szerinti előállított metil-2-[N-acetil-N-(2-nitro-5-/2-klór-5-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát 250 ml ecetsavval készített oldatához. Az elegyet 40 °C-on keverjük 30 óra hosszat, utána vizet adunk hozzá és a szerves anyagot metilén-kloriddal extraháljuk. Az elegyet vízzel mossuk, szárítjuk, szűrjük és az oldószert ledesztilláljuk, a maradékot 25 ml metanol és 10 ml tömény kénsav elegyében oldjuk és az oldatot 1 óra hosszat visszafolyatás közben melegítjük. Az elegyet ezután csökkentett nyomáson szárazra pároljuk, majd jeget és vizet adunk hozzá, utána pedig metilén-kloriddal extraháljuk, a szerves fázist vízzel mossuk, szárítjuk, szűrjük és csökkentett nyomáson szárazra pároljuk.
60 A keletkező szirupos folyadékot szilícium-dioxiddal töltött oszlopon kromatografáljuk és kloroformmal eluáljuk. Ily módon sárga színű szirupot kapunk, amelyet NMR-el azonosítottunk.
65

A termék olvadáspontja metanolból való átkristályosítás után 101 °C. Az elemanalízis eredményei a következők [t%]:

49,09% C (számított 48,76/, 3,45% H (számított 3,39/, és 6,65% N (számított 6,69).

Hasonló módon állítjuk elő a következő vegyületeket is az 1/a példa szerinti N-acetil-vegyületekből kiindulva:

etil-N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetát; Op. 91 °C;

etil-N-[2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil]-aminoacetát; Op. 151-152 °C;

Elemanalízis [t%]:

45,68% C (számított 45,79), 3,06% H (számított 3,12).

25,46% Cl (számított 25,34) és 6,62% N (számított 6,68).

etil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát (olaj); szabad savvá alakítható;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 80 °C; szabad savvá alakítható:

2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav; Op. 234 °C;

etil-N-[2-nitro-5-/2,4,-diklór-fenoxi/-fenil]-amino-acetát; Op. 113 °C;

Elemanalízis [t%]:

talált 49,86% C (számított 49,88), talált 3,64% H (számított 3,66), talált 18,38% Cl (számított 18,41), talált 7,32% N (számított 7,27);

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-metil-4-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 121 °C;

metil-3-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;

Op. 91 °C;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4-dibróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 121 °C.

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; Op. 122 °C;

etil-N-[2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetát; Op. 97 °C;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;

Op. 96 °C;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-trifluor-metil)-4-nitro-fenoxi/-fenil]-amino]-propionát; szirup;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(nitro-fenoxi)-fenil]-amino)-propionát; szirup; CMR-analízis $C_6H_3(Cl-2)(NO_2-4)$. $OC_6H_3(NO_2-4)$. $NH(-3)-C^1H(C^2H_3)-C^3O_2C^4H_3$ képletre:

kémiai eltolódás (ppm) C^1 52,4, C^2 18,4, C^3 172,6, C^4 52,8;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-acetil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; szirup; IR spektrum; ν / cm^{-1} /=3350, 1740, 1690, 1630, 1340, 1260, 1220, 750; és

metil-3-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát; szirup; IR spektrum: ν / cm^{-1} /=3390, 1732, 1620, 1340, 1265, 1215, 756;

ezenkívül a szabad 3-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsavvá alakítható; Op. 115 °C,

metil-2-(N-[2-nitro-5-/4-(trifluor-metoxi)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionát; R_f ($CHCl_3$) 0,55;

metil-2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(1,1,2,2-tetrafluor-etoxi)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionát,

5 R_f ($C_2H_5OC_2H_5$) 0,70.

2. Példa

10 2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid

11,7 g l. példa szerint előállított metil-

2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)amino]-propionát 100 ml metanollal

15 készített oldatán szobahőmérsékleten 28 óra hosszat ammóniát vezetünk át. Ezután az oldatot csökkentett nyomáson szárazra pároljuk és a maradékot acetonitrilből átkristályosítjuk. Ily módon narancs színű kristályos

20 anyagot kapunk, amelynek az olvadáspontja 187 °C.

Elemanalízis [t%]:

47,67% C (számított 47,60), 3,24% H (számított 3,25) és 10,24% N (számított 10,41).

25 Hasonló módon állítjuk elő a következő vegyületeket is:

2-[N-(2-nitro-5-/2,4,6-triklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 228-229 °C;

Elemanalízis [t%]:

30 talált 44,58% C /számított 44,52/, talált 3,05% H /számított 2,99/, talált 26,08% Cl /számított 36,28/, talált 10,45% N /számított 10,38/;

N-[2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil]-amino-acetamid; Op. 188 °C;

35 2-[N-(2-nitro-5-/4-metil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 160 °C

2-[N-(2-nitro-5-/4-terc-butil-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 147 °C;

2-[N-(2-nitro-5-/2-metil-4-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 216 °C;

40 N-metil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid;

Op. 172 °C;

45 2-[N-(2-nitro-5-/4-bróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 207 °C;

2-[N-(2-nitro-5-/2,4-dibróm-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 236 °C;

N-[2-nitro-5-/2-nitro-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino-acetamid; Op. 201 °C;

50 2-[N-(2-nitro-5-(4-/1,1,2,2-tetrafluor-etoxi/-fenoxi-fenil)-amino)-propionamid; Op. 136 °C;

2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid; Op. 147 °C;

55 2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(1,1,2,2-tetrafluor-etoxi)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionamid;

Op. 136 °C.

3. Példa

N-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-alanil]-morfolin

8,11 g 2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav

65 amelyet a megfelelő metilészter elszappanosít-

tásával állítunk elő - 16 ml tionil-kloriddal készített oldatát 50 °C-on melegítjük 1 óra hosszat. Ezután az oldatot csökkentett nyomáson szárazra pároljuk és a maradékot 40 ml acetonitrilben oldjuk. Jéggel végzett külső hűtés alkalmazásával (a hőmérsékletet 10 °C alatt tartjuk) az oldathoz cseppenként hozzáadunk 3,50 g morfolint. Az elegyet 0,5 óra hosszat keverjük, utána bepároljuk és vizet adunk hozzá. A terméket metilén-kloriddal extraháljuk elkülönítjük, mossuk és a szerves fázist betöményítjük. A kapott szirupot (1:1 t/tf arányú) benzol/ciklohexán-elegyből átkristályosítjuk. Ily módon kristályos anyagot kapunk 7,50 g mennyiségben, amely a kívánt termék szerkezetét mutatja (spektr.).

Op. 190 °C.

Hasonló módon állítjuk elő a következő vegyületeket is:

N,N-dimetil-amino-2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionamid;

Op. 201 °C; és

N-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-alanil)-pirrolidin; Op. 158 °C.

4. Példa

3-[N-(2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil)-amino]-propionsav

8,90 g 2,4-bisz/2,4-diklór-fenoxi/-nitro-benzolt, 5,35 g β-alanint és 11,06 g kálium-karbonátot hozzáadunk 50 ml acetonitrilhez. A reakcióelegyet 5 napig visszafolyatás közben melegítjük és utána az oldószert lepároljuk. A maradékot 150 ml víz és 100 ml dietil-éter elegyével együtt keverjük 1 óra hosszat. A vizes fázist tömény hidrogén-klorid-oldattal megsavanyítjuk és metilén-kloriddal extraháljuk. A kivonatot szárítjuk és a szerves fázis oldószereit lepároljuk, így a kívánt terméket kapjuk sárga színű kristályos anyag alakjában. Kitermelés 2,64 g.

Op. 115 °C.

Hasonló módon állítjuk elő a következő vegyületet is, de dioxánt használunk oldószerként és kálium-hidroxidot alkalmazunk bázisként:

N-[2-nitro-5-/2,4-diklór-fenoxi/-fenil]-N-etil-amino-acetamid.

Op. 140 °C.

5. Példa

(a) 2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionsav

145 g 1-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-3,4-dinitro-benzolt, 107 g α-alanint és 221,2 g kálium-karbonátot hozzáadunk 500 ml acetonitrilhez. A reakcióelegyet keverés közben 24 óra hosszat visszafolyatós hűtő alkalmazásával forraljuk. Ezután az oldószert le-

pároljuk és a maradékot a 2 liter vízben oldjuk. Az oldatot tömény hidrogén-klorid-oldattal megsavanyítjuk és a szerves anyagot metilén-kloriddal extraháljuk. A kivonatot szárítjuk és az oldószert lepároljuk, így 150,2 g kívánt terméket kapunk sárga színű kristályos anyag alakjában.

Op. 167 °C (toluolból való átkristályosítás után).

10

(b) A kapott savat a következő módon észte-rezzük:

15

150,2 g 5/a példa szerint előállított vegyületet feloldunk 750 ml metanol és 10 ml tömény kénsav elegyében. Az oldatot 2,5 óra hosszat visszafolyatás közben melegítjük, utána az oldószert nagyobb részét lepároljuk és a maradékot metilén-kloriddal oldjuk. A szerves fázist vízzel háromszor mossuk, szárítjuk és betöményítjük. A maradékot metanolból átkristályosítjuk és így metil-2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionátot kapunk 121,4 g mennyiségben sárga színű kristályos anyagként.

25

Op. 101 °C.

Hasonló módon állítjuk elő a következő vegyületeket is:

30

N-metil-2-(N-[2-nitro-5/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionamid;

Op. 172 °C;

2-[N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino]-propionsav; Op. 173 °C

35

etil-2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionát; szirup; izopropil-2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionát; szirup;

40

n-butil-2-[N-(2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;

Op. 45 °C;

N,N-dimetil-2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionamid;

Op. 169 °C;

metil-2-[N-(2-nitro-5-/3,5-diklór-piridil-2-oxi/-fenil)-amino]-propionát; szirup;

45

2-[N-[2-nitro-5-/2,6-diklór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino]-propionsav; Op. 193 °C; és

50

metil-2-[N-(2-nitro-5-/2,6-diklór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil)-amino]-propionát;

Op. 84 °C.

55

6. Példa

A találmány szerinti készítmények előállítását az alábbi példákkal szemléltetjük:

60

a) vízzel elegyedő folyadékkal készített oldat előállítása

65

10 g 2-(N-[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi/-fenil]-amino)-propionamidot feloldunk 10 ml izoforon és körülbelül 70 ml dimetil-formamid elegyében, majd 10 g poli(o-

xi-etilén-glikol)-ricinil-éter emulgeáló szert adunk az oldathoz.

Hasonló módon állítunk elő más hatóanyagok felhasználásával 10 %-os vagy 20 %-os oldatokat.

Hasonló módon kapunk oldatokat N-metil-pirrolidonnal, dimetil-formamiddal és N-metil-pirrolidon és izoforon elegyével.

b) Szerves oldószerrel alkotott oldat előállítása

200 mg hatóanyagot 1,6 g nonil-fenolpoli(oxi-etilén) jelenlétében 1000 ml acetonban oldunk. Az oldatot permetező folyadékként használjuk.

c) Emulgeálható koncentrátum előállítása
10 g hatóanyagot feloldunk 15 ml izoforon és 70 ml xilol elegyében. Az oldathoz emulgeátorként hozzáadjuk poli(oxi-etilén)-szorbitán-észter és alkil-benzol-szulfonát elegyének 5 g-nyi mennyiségét.

d) Diszpergálható por (W. P.) előállítása
25 g hatóanyagot összekeverünk 68 g kaolinnal, 2 g nátrium-butyl-naftalinszulfonát és 5 g ligninszulfonát jelenlétében.

e) Szuszpendálható koncentrátum (folyóképes) előállítása

10 g hatóanyagot, 2 g ligninszulfonátot és 0,8 g nátrium-alkilszulfátot összekeverünk vízzel úgy, hogy az összmennyiség 100 ml legyen.

f) Granulátum előállítása
7,5 g hatóanyagot, 5 g szulfitszennylűgot és 87,5 g őrlött dolomitot összekeverünk, majd a keveréket granulált készítménnyé alakítjuk az úgynevezett tömörítő módszerrel.

7. Példa

Szelektív gyomirtás (kikelés után) mezőgazdasági és kertészeti haszonnövényekben, szabad levegős kísérlet (szabadföldi vetés)

6/a példa szerinti készítményt használunk 0,1 kg/hektár mennyiségben olyan parcella kezelésére, amely a következő gyomnövényeket tartalmazza: Galinsoga parviflora (gombvirág, Gp), Galium aparine (galaj, Ca), Chenopodium album (libatop, Ca), valamint Polygonum convolvulus (vadhajdina, Pc). A kísérleti parcellába a következő haszonnövényeket vetjük: Triticum aestivum (búza, Ta) és Pisum sativum (borsó, Ps).

A gyomnövények és a haszonnövények magvait egyidejűleg vetjük. Kikelés után a parcellát egy 6/a példa szerinti oldatból vízzel készített permetlével permetezzük meg egy traktor tartályúra szerelt szórófej segítségével. A permetezést 500 liter/hektár mennyiségű permetlével végezzük el.

A herbicid hatást 14 nappal a kezelés után értékeljük ki. Az eredményeket az A. táblázatban adjuk meg. A táblázatban alkalmazott jelölések jelentése a következő:

- 5 - = nincs vagy alig van károsító hatás
± = látható károsító hatás
+ = komoly károsító hatás
++ = a növények elpusztultak

A. táblázat

10 Szabadföldi kísérlet kikelés utáni alkalmazásnál (szabadföldi vetés); 0,1 kg hatóanyag/hektár használata esetén kapott eredményei:

15 2,4-diklór-3'-(izopropil-amino)-4'-nitro-difenil-éter = (a) vegyület

Hatás a következő növényekre

20 A vegyület sorszáma	Ta	Ps	Gp	Ga	Ca	Pc
(2)	±	±	++	++	++	++
25 (a) ismert	±	±	±	+	++	++

8. Példa

30 Szelektív gyomirtás (kikelés előtt illetve kikelés után) mezőgazdasági és kertészeti haszonnövényekben, szabad levegős kísérlet (szabadföldi vetés)

A 6/a példa szerinti készítményt használjuk 3 kg hatóanyag/hektár mennyiségben a 7. példában megadott gyomnövények irtására olyan parcellában, amelybe Triticum aestivum (búza, Ta), Pisum sativum (borsó, Ps) és Glycine max (szója, Gm) haszonnövények magvait is vetjük. A gyomnövények és a haszonnövények magvait egyidejűleg vetjük el. Kikelés előtt a parcellát egy 6/a példa szerinti oldatból vízzel készített permetlével permetezzük meg egy a 7. példában megadott készülékkel. A permetezést 500 liter/hektár mennyiségű permetlével végezzük. A herbicid hatás 21 nappal a kezelés után értékeljük. A kapott eredményeket a B. táblázatban foglaljuk össze. A jelölések meg-
50 egyeznek a 7. példában megadott jelölésekkel.

B. táblázat

55 Szabadföldi kísérlet kikelés előtti alkalmazásnál kapott eredményei; 3 kg hatóanyag/hektár

Hatás a következő növényekre

60 A vegyület sorszáma	Ta	Ps	Gm	Gp	Ga	Ca	Pc
(1)	±	±	±	++	++	++	++
(2)	±			++	++	++	++
65 (4)	-	-	-	+	+	++	+

Hatás a következő növényekre

A vegyület sorszáma	Ta	Ps	Gm	Gp	Ga	Ca	Pc
(8)	-	-	-	+	++	+	±
(9)	-	-	-	+	++	++	±

Az alábbi sorszámú vegyületekkel is elvégeztük a fentiek szerinti kísérletet, azzal az eléréssel, hogy a gyomirtást kikelés után hajtottuk végre, üvegházban. Az eredményeket az alábbi B' táblázat tartalmazza: a jelzések azonosak a fentiekben alkalmazottakkal.

B' táblázat

Kikelés utáni eredmények, üvegházi kísérletek;
3 kg/ hatóanyag/hektár

Hatás a következő növényekre

A vegyület sorszáma	Ca	Ga	Gp	Pc
(44)	++	+	+	+
(45)	++	+	++	+
(46)	++	+	++	++

9. Példa

Szelektív gyomirtás kikelés utáni alkalmazásnál mezőgazdasági és kertészeti haszonnövényekben; melegházi kísérlet esetén

A 6/b példa szerinti készítményt használjuk 100 g/hektár hatóanyag-mennyiségben a következő gyomnövények irtására. A gyomnövények a következők: Galinsoga parviflora (gombavirág, Gp), Galium aparine (galaj, Ga), Chenopodium album (libatop, Ca), valamint polygonum convolvulus (vadhajdina, Pc). A jelenlévő haszonnövények pedig a következők: Triticum aestivum (búza, Ta), valamint Oryza sativa (rizs, Os).

A gyomnövények és a haszonnövények magvait egyidejűleg vettjük el.

Kikelés után a növényeket a 6/b példa szerinti készítményből előállított permetlével permetezzük meg Sata permetező segítségével. A herbicid hatást 2 héttel a kezelés után értékeljük. A kapott eredményeket a C. táblázatban adjuk meg.

A jelölések megegyeznek a 7. példában megadott jelölésekkel.

C. táblázat

Melegházi kísérletek kikelés utáni alkalmazásnál kapott eredményei; 100 g hatóanyag/hektár használata esetén 2,4-diklór-3'-(izopropil-amino)-4'-nitro-difenil-éter = (a)

Hatás a következő növényekre

A vegyület sorszáma	Ta	Os	Gp	Ga	Ca	Pc
5 (2)	±	+	++	++	++	++
(3)			++	++	++	++
(4)	±	±	++	+	++	++
(5)	±	±	++	+	++	++
(6)	±	-	++	++	++	++
10 (7)	±	+	++	++	++	++
(8)	±	+	++	++	++	++
(9)	±	+	++	++	++	++
(10)	±	+	++	++	++	++
15 (a)ismert	±	+	+	±	++	++

10.példa

20 Pontosan a 9. példában leírt módon vizsgáljuk a találmány szerinti készítmények gyomirtó hatását kikelés utáni alkalmazásnál melegházban.

25 A kapott eredményeket a D. táblázatban adjuk meg. A jelölések megegyeznek a 7. példában megadott jelölésekkel.

D. táblázat

30 Melegházi kísérletek kikelés utáni alkalmazásnál kapott eredményei; 100 g hatóanyag/hektár használata esetén N-metil-2-[N-/2-nitro-5-fenoxi-6-klór/-analino]-propionamid = (b)

35

Hatás a következő növényekre

A vegyület sorszáma	Ca	Ga	Gp	Pc
40 (1)	++	++	++	++
(2)	++	++	++	++
(11)	++	++	++	++
(12)	++	+	++	++
(13)	++	++	++	++
45 (14)	++	+	++	++
(15)	++	++	++	++
(16)	++	++	++	++
(17)	++	++	++	++
(18)	++	++	++	++
50 (19)	++	++	++	++
(20)	++	++	++	++
(21)	++	++	++	++
(22)	++	++	++	++
(23)	++	++	++	++
55 (24)	++	++	++	++
(25)	++	++	++	++
(26)	++	++	++	++
(27)	++	+	++	++
(28)	++	++	++	++
60 (29)	++	+	++	++
(30)	++	++	++	++
(31)	++	++	++	++
(32)	++	+	++	++
(33)	++	++	++	++
65 (35)	++	++	++	++

Hatás a következő növényekre				
A vegyület sorszáma	Ca	Ga	Gp	Pc
(36)	++	+	++	++
(37)	++	++	++	++
(38)	++	+	++	++
(39)	++	++	++	++
(40)	++	++	++	++
(41)	++	+	++	++
(42)	++	++	++	++
(43)	++	++	++	++
(b)ismert	±	-	-	-

11. Példa

A találmány szerinti készítmények hatóanyagainak a vizsgálata a talajban való fennmaradása vonatkozásában összehasonlítva az ismert vegyületekkel.

A vizsgálandó vegyület oldatát homokos agyagtalajhoz adjuk 5 mg hatóanyag/kg talaj koncentrációban.

A talaj mintáit 1 héttel és 5 héttel a bevitel után megelemezük oly módon, hogy a talajt 90 lf%-os etanollal extraháljuk és utána meghatározzuk a kivonatban lévő kezdeti hatóanyag mennyiségét megfelelő analitikai módszerekkel, illetve nagynyomású folyadékromatográfiával.

A kapott eredményeket az E. táblázatban adjuk meg.

E. táblázat

2-klór-4-(trifluor-metil)-3'-(etil-amino)-4'-nitro-difenil-éter = (c)
2-klór-4-(trifluor-metil)-3'-(metil-amino)-4'-nitro-difenil-éter = (d)

Lebomlás %-ban		
A vegyület sorszáma	1 hét után	5 hét után
5 (1)	17	40
(2)	77	97
(c) ismert	8	9
(d) ismert	5	10

10 Következtetés:

Az ismert vegyületek túlságosan ellenállóak a talajban, ahogy a vizsgálatok igazolják. A találmány szerinti készítmények hatóanyagai ellenben elég gyorsan lebomlanak a talajban, így nem gyakorolnak károsító hatást a környezetre és/vagy a következőkben termesztendő haszonnövényekre.

12. Példa

A találmány szerinti készítmények hatóanyagait a 9. példában leírt módon vizsgáljuk melegházban. Összehasonlítás végett a 11. példában leírt (c) és (d) ismert vegyületeket is ugyanígy vizsgáljuk.

A hatóanyagokat kikelés utáni és kikelés előtti alkalmazásban a gyomnövények kikelése után és előtt vizsgáljuk. Az eredményeket az F. és G. táblázatok szemléltetik.

E táblázatokban a gyomnövények neveit a következő módon rövidítjük:

Galinsoga parviflora (gombavirág): Gp,
Capsella bursa-pastoris (pásztortáska): Cb,
Sinapsis alba (mustár): Sa,
Galium aparine (galaj): Ga,
Chenopodium album (libatop): Ca és
Lepidum sativum (zszáza): Ls.

F. táblázat

Kikelés utáni alkalmazás eredményei

A vegyület sorszáma	mennyisége g/ha	hatás 7 nap múlva				hatás 14 nap múlva			
		Gp	Cb	Sa	Ga	Gp	Cb	Sa	Ga
(1)	10	++	+	++	+	++	+	++	+
(1)	30	++	++	++	++	++	++	++	++
(2)	10	++	+	+	+	++	+	±	+
(2)	30	++	+	+	++	++	+	+	++
(c) ismert	10	+	+	±	+	+	±	±	+
(c) ismert	30	++	+	+	+	++	+	±	+
(d) ismert	10	+	±	±	+	+	±	±	+
(d) ismert	30	++	+	±	+	++	+	±	+

G. táblázat

A vegyület sor- sz.	mennyi- sége g/ha	hatás 14 nap múlva				hatás 21 nap múlva			
		Ca	Ga	Ls	Sa	Ca	Ga	Ls	Sa
(1)	10	++				++			
	30	++	++			++	++		
	100		++	++			++	++	
	300			++	++			++	++
	1000				++				++
(2)	10	++				±			
	30	++	+			+	+		
	100		++	++			++	++	
	300			++	++			++	+
	1000				++				++
(c) ismert	10	±				-			
	30	++	+			±	±		
	100		++	±			++	±	
	300			++	±			++	-
	1000				+				+
(d) ismert	10	+				-			
	30	++	+			±	±		
	100		++	-			+	-	
	300			-	-			+	-
	1000				±				±

A megjelölések megegyeznek a 7. példában megadott jelölésekkel.

A fenti eredmények azt mutatják, hogy a találmány szerinti készítmények hatóanyagai általában hatásosabban irtják a gyomnövényeket, mint az ismert vegyületek.

13. Példa

Burgonya- és gyapotlevéltelenítés és -szárítás.

A (I) általános képletű hatóanyagokat 6/b példa szerinti permeterző folyadékokká

készítjük el. A növényeket megpermetezzük ezekkel a folyadékokkal az alábbi táblázatban megadott mennyiségben.

A levélszáritó hatást, a gyapotnál még a levéleszakító hatást is, 2 héttel a kezelés után értékeljük. A kapott eredményeket a H. táblázatban foglaljuk össze. A jelölések jelentése a következő:

- = nincs vagy alig van szárító hatás

± = látható szárító hatás

+ = komoly szárító hatás

++ = teljes szárító hatás vagy levéltelenítő hatás

H. táblázat

Burgonya- és gyapot-szárítás és -levéltelenítés eredményei

A vegyület sorsz.	mennyi- sége kg/ha	hatás burgonyára		hatás gyapotra		
		levél	szár	levél	szár	leszakítás
(1)	1	++	+			
(2)	1	++	+			
(3)	1	±	+	+	±	±
	3	+	+	+	±	±
(6)	1	±	±	±	±	±
	5	±	±	+	+	+
(7)	1	±	±	+	±	±
	5	+	+	+	±	+

Szabadalmi igénypontok

1. Herbicid és/vagy levéleszárító készítmények, azzal jellemezve, hogy hatóanyagként 2-40 t%-ban olyan difenil-éter-származékot tartalmaznak, amelynek (I) általános képletében

-X hidrogénatom, halogénatom, nitrocsoport, adott esetben halogénezett alkilcsoport vagy alkoxicsoport - amelyek 1-6 szénatomosak - vagy 1-4 szénatomos alkanoilcsoport;

-Y nitrogénatom, -CH vagy -CCl képletű csoport;

-Z hidrogénatom, halogénatom, nitrocsoport vagy 1-4 szénatomos, adott esetben halogénezett alkilcsoport;

-n értéke 0, 1 vagy 2;

-R₁ hidrogénatom vagy 1-4 szénatomos alkil- vagy alkanoilcsoport,

-R₂ hidrogénatom;

-R₃ hidrogénatomot vagy 1-4 szénatomos alkilcsoportot képvisel; és

-A jelentése -OR₄ vagy $\text{-N} \begin{matrix} \text{R}_6 \\ \text{R}_5 \end{matrix}$

általános képletű csoport, amelyekben

-R₄ hidrogénatom vagy 1-6 szénatomos alkilcsoport; és

-R₅ és R₆ egymással megegyező vagy egymástól különböző lehet és jelenthet hidrogénatomot, olyan dialkil-amino-csoportot, amelyben az alkilcsoportok 1-4 szénatomosak vagy 1-4 szénatomos alkilcsoportot, illetve R₅ és R₆ azzal a nitrogénatommal, amelyhez kapcsolódik, olyan telített, hattagú heterociklusos gyűrűt alkothat, amely egy második heteroatomot foglal magában az O vagy N atomok közül, azzal a megszorítással, hogy X és Z egyidejűleg nem hidrogénatom vagy nitrocsoport, és ha A jelentése -OR₄ általános képletű csoport, akkor R₁ jelentése alkilcsoporttól eltérő:

Egy vagy több, folyékony vagy szilárd vivőanyaggal - előnyösen vízzel vagy szerves oldószerezrel - így dimetil-formamiddal, N-metil-pirrolidonnal, izoforonnal, acetonnal és/vagy xilollal - vagy ásványi anyaggal, így kaolinnal vagy dolomittal- és kívánt esetben segédanyaggal - előnyösen poli(oxi-etilén)-nel, alkil-aril-szulfonáttal, alkil-szulfáttal és/vagy ligninszulfonáttal - együtt.

2. Az 1. igénypont szerinti készítmény, azzal jellemezve, hogy hatóanyagként olyan difenil-éter-származékot tartalmaz, amelynek (Ia) általános képletében

-X' klóratom, nitrocsoport vagy trifluor-metil-csoport;

-Z' klóratom vagy nitrocsoport; azzal a megszorítással, hogy X' és Z' egyidejűleg nem nitrocsoport;

-R₇ etilencsoport, és

-A' jelentése -OR₄' vagy $\text{N} \begin{matrix} \text{R}_6 \\ \text{R}_5 \end{matrix}$

általános képletű csoport, amelyekben

-R₅ és R₆ jelentése az 1. igénypontban megadott, és R₄' jelentése 1-4 szénatomos alkilcsoport.

3. Az 1. vagy 2. igénypont szerinti készítmény, azzal jellemezve, hogy hatóanyagként olyan difenil-éter-származékot tartalmaz, amelynek (Ib) általános képletében

Y jelentése az 1. igénypontban megadott, és X' és Z' és R₇ jelentése a 2. igénypontban megadottakkal egyezik.

4. Az 1. igénypont szerinti készítmény, azzal jellemezve, hogy hatóanyagként 2-{N[2-nitro-5-/2-klór-4-(trifluor-metil)-fenoxi]-fenoil]-amino}-propionamidot tartalmaz.

5. Eljárás (Ie) általános képletű új difenil-éterek előállítására, e képletben X, Y, Z, n, R₂, R₃ és A jelentése az 1. igénypontban megadott, azzal jellemezve, hogy (II) általános képletű vegyületet - X, Y, és Z jelentése az 1. igénypontban megadott, és

B hidrogénatom, rövidszénláncú alkil- vagy rövidszénláncú alkoxicsoport - (III) általános képletű vegyülettel - R₂ és R₃ jelentése az 1. igénypontban megadott,

Hal halogénatom, és

A'' jelentése 1-6 szénatomos alkoxicsoport- vagy 1-6 szénatomos alkil-tio-csoport - reagáltatunk, majd dezacilezünk és ezután a keletkezett terméket, kívánt esetben

(a) közvetlenül vagy a megfelelő savklorid útján (IV) általános képletű aminnal reagáltatjuk - R₅ és R₆ jelentése az 1. igénypontban megadott - olyan vegyületek előállítása céljából, amelyeknek (I) általános képletében

A $\text{-N} \begin{matrix} \text{R}_6 \\ \text{R}_5 \end{matrix}$ általános képletű csoport, vagy

(b) szervesen savval vagy bázissal hidrolizáljuk olyan vegyületek előállítása céljából, amelyeknek (I) általános képletében A jelentése hidroxilcsoport.

6. Eljárás (I) általános képletű új difenil-éterek előállítására, e képletben X, Y, Z, n, R₁, R₂, R₃ és A jelentése az 1. igénypontban megadott, azzal jellemezve, hogy (V) általános képletű vegyületet -

X, Y és Z jelentése az 1. igénypontban megadott és

D nitrocsoport, halogénatom, továbbá helyettesített vagy helyettesítetlen ariloxicsoport - (VI) általános képletű aminnal - n, R₁, R₂, R₃ és A jelentése az 1. igénypontban megadott - reagáltatunk, ezután a kapott vegyületet, amelynek (I) általános képletében A jelentése hidroxilcsoport, 1-6 szénatomos alkoxi- vagy alkil-tio-csoport, kívánt esetben az 5. igénypontban leírt módon olyan megfelelő vegyületté alakítjuk, amelynek (I) általános képletében

(a) A jelentése $\text{-N} \begin{matrix} \text{R}_6 \\ \text{R}_5 \end{matrix}$ általános képletű

csoport- R_5 és R_6 jelentése az 1. igénypontban megadottakkal egyezik - vagy amelyben (b) A jelentése hidroxilcsoport.

7. Eljárás (Ic) általános képletű új difenil-éterek előállítására - X, Y, Z, n, R_1 , R_2 és R_3 jelentése az 1. igénypontban megadott és

A''' jelentése $-N \begin{matrix} R_6 \\ R_5 \end{matrix}$ általános képletű cso-

port, amelyben R_5 és R_6 az 1. igénypontban megadott jelentésű - azzal jellemezve, hogy (Id) általános képletű vegyületet - X, Y, Z, n, R_1 , R_2 és R_3 jelentése az 1. igénypontban megadott, és

5 A'' jelentése az 5. igénypontban megadottakkal egyezik - közvetlenül vagy a megfelelő savklorid útján (IV) általános képletű aminnal reagáltatunk; ebben a képletben R_5 és R_6 jelentése az 1. igénypontban megadott.

3 oldal képlettel

A kiadásért felel a Közgazdasági és Jogi Könyvkiadó igazgatója

88.17.66-4 Alföldi Nyomda Debrecen - Felelős vezető: Benkő István vezérigazgató

190646

Nemzetközi osztályozás:

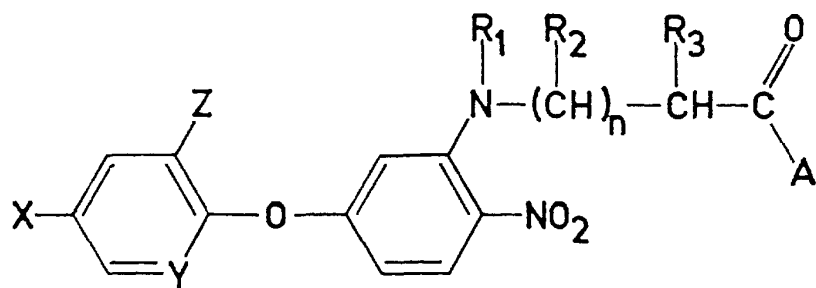
C 07 C 79/35

C 07 C 93/06

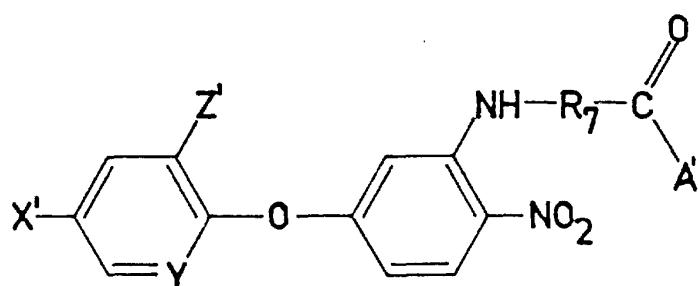
A 01 N 33/18

A 01 N 33/06

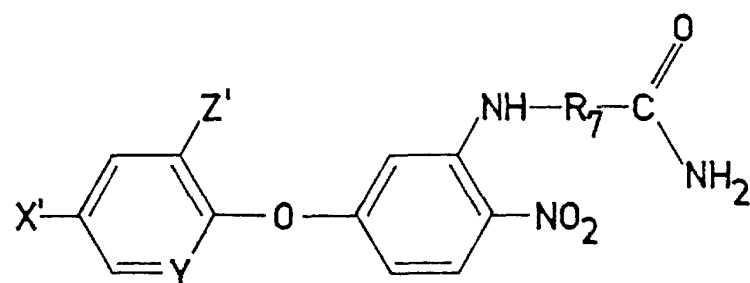
A 01 N 37/18



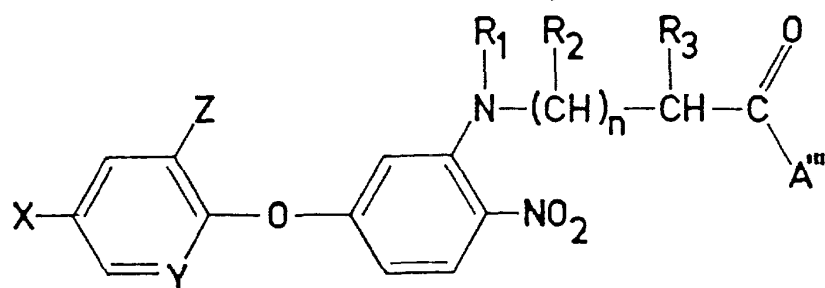
(I)



(I.a)



(I.b)



(I.c)

190646

Nemzetközi osztályozás:

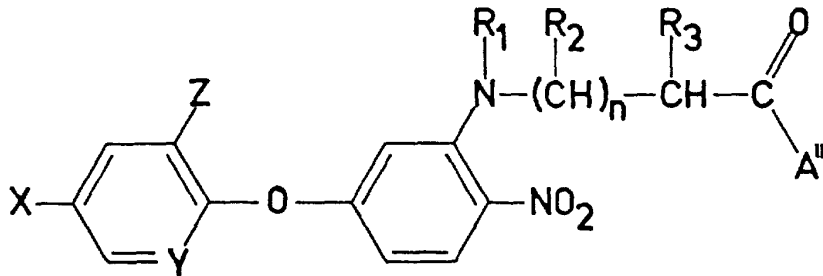
C 07 C 79/35

C 07 C 93/06

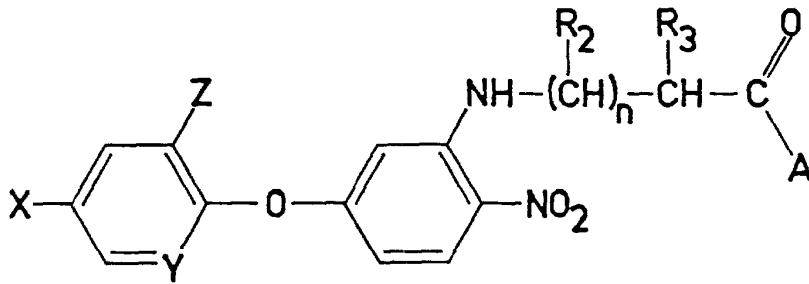
A 01 N 33/18

A 01 N 33/06

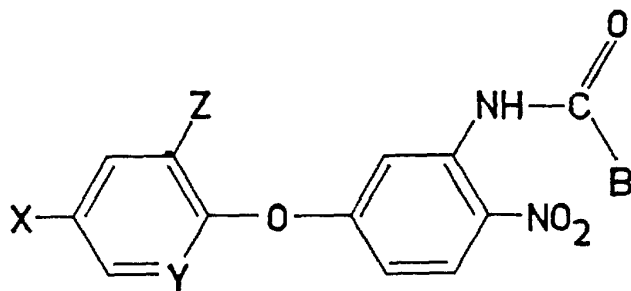
A 01 N 37/18



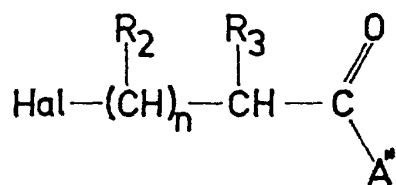
(I.d)



(I.e)



(II)



(III)

190646

Nemzetközi osztályozás:

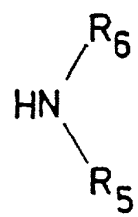
C 07 C 79/35

C 07 C 93/06

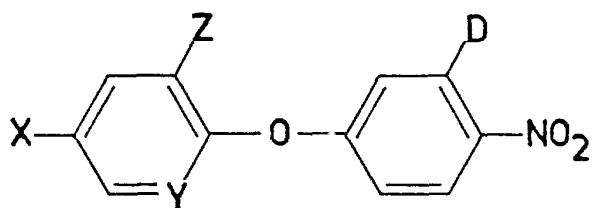
A 01 N 33/18

A 01 N 33/06

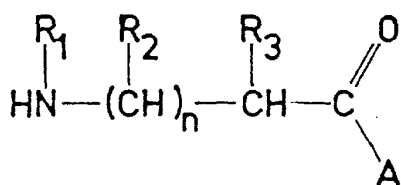
A 01 N 37/18



(IV)



(V)



(VI)