

Patent dodatkowy
do patentu nr _____

Zgłoszono: 05.02.76 (P. 187 040)

Pierwszeństwo: 28.06.75 Republika
Federalna Niemiec

Zgłoszenie ogłoszono: 09.05.77

Opis patentowy opublikowano: 31.12.1979

Int. Cl.² A01N 9/20

Twórca wynalazku: _____

Uprawniony z patentu: Bayer Aktiengesellschaft, Leverkusen (Republi-
ka Federalna Niemiec)

Środek owadobójczy

1

Przedmiotem wynalazku jest środek owadobójczy zawierający nowe etery benzoiloureido-dwufenylo- lub dwuchlorofenylo- jako substancję czynną środka.

Wiadomo, że określone benzoilomoczniki np. N-(2,6-dwuchlorobenzoilo)-N'-(4-chlorofenilo- lub 3,4-dwuchlorofenilo)-mocznik wykazują działanie owadobójcze (opis RFN DOS nr 2 123 236).

Stwierdzono, że nowe etery benzoiloureidodwufenylo- o wzorze 1, w którym R¹ oznacza atom wodoru, fluoru, chloru, bromu lub rodnik metylowy, R² oznacza atom wodoru, fluoru lub chloru, R³ oznacza atom wodoru lub chloru, R⁴ oznacza atom wodoru lub chloru albo rodnik metylowy, R⁵ oznacza atom wodoru lub chloru, a R⁶ oznacza grupę nitrową lub trójfluorometylową, mają silne działanie owadobójcze.

Nowe etery benzoiloureido-dwufenylo- o wzorze 1 otrzymuje się przez reakcję a) fenoksyaniliny o wzorze 2, w którym R³ — R⁶ mają wyżej podane znaczenie, z izocyjanianami benzoilu o wzorze 3, w którym R¹ i R² mają wyżej podane znaczenie, ewentualnie w środowisku rozpuszczalnika, lub b) przez reakcję eterów 4-izocyjanianodwufenylo- wych o wzorze 4, w którym R³—R⁶ mają wyżej podane znaczenie, z benzamidami o wzorze 5, w którym R¹ i R² mają wyżej podane znaczenie, ewentualnie w środowisku rozpuszczalnika.

Nowe etery benzoiloureidodwufenylo- wykazują niespodziewanie znacznie lepsze działanie owadobójcze niż zbliżone znane związki o analogicznej

2

budowie i takim samym kierunkiem działania. Wzbogacają one zatem stan techniki.

W przypadku stosowania 4-(2'-chloro-4'-trójfluorometylofenoksy)-aniliny i izocyjanianu 2-chlorobenzoilu według punktu a) przebieg reakcji przedstawia schemat 1, a w przypadku stosowania izocyjanianu 4-(2'-chloro-4'-trójfluorometylofenoksy)-fenylu i 2,6-dwufuorobenzamidu według punktu b) przebieg reakcji można przedstawić schematem 2.

Związki wyjściowe przedstawiają ogólnie wzory 2—5. Izocyjaniany benzoilowe o wzorze 3, stosowane jako związki wyjściowe są znane i można je wytwarzać w znany sposób [A.J. Speziale, i in. J.Org.Chem.30(12) str. 4306—4307 (1965)].

2,6-Dwufuorobenzamid i inne benzamidy o wzorze 5 są znane i można je wytwarzać w znany sposób (Beilstens Handbuch der organischen Chemie, tom 9, str. 336). Fenoksyaniliny o wzorze 2 można wytwarzać w znany sposób, na przykład z aminofenolanów metali alkalicznych i 1,2-dwuchloro-4-trójfluorometylobenzenu lub aromatycznych związków nitrochlorowcowych, np. 1,2-dwuchloro-4-nitrobenzenu w rozpuszczalniku, np. w sulfotlenku dwumetylowym (Jürgen Schram i in., Justus Liebigs Annalen der Chemie 1970, 740, 169—179). Grupę aminową można przekształcać w grupę izocyjanianową w znany sposób, np. przez reakcję z fosgenem, otrzymując etery 4-izocyjanianodwufenylo- o wzorze 4.

Przykładami stosowanych w reakcji izocyjanianów benzoilu o wzorze 3 i benzamidów o wzorze 5 są izocyjanian 2-chloro-, 2-fluoro-, 2-bromo-, 2,6-dwuchloro- i 2,6-dwufluorobenzoilu oraz 2-chloro-, 2-fluoro-, 2-bromo-, 2,6-dwuchloro- i 2,6-dwufluorobenzamid.

Przykładami stosowanych w reakcji fenoksyanilin o wzorze 2 i eterów 4-izocyjanianodwufenylo- wych o wzorze 4 są 3-chloro-4-(2'-chloro-4'-nitro- fenoksy)-anilina, 3,5-dwuchloro-4-(2'-chloro-4'-ni- trofenoksy)-anilina, 4-(2'-chloro-4'-nitrofenoksy)- anilina, ponadto eter 2,6-dwuchloro-4-izocyjaniano- -2'-chloro-4'-nitrodwufenylo-owy, eter 2-chloro-4-izo- cyjaniano-2'-chloro-4'-nitrodwufenylo-owy i eter 4- izocyjaniano-2'-chloro-4'-nitrodwufenylo-owy.

Korzystnie wytwarza się etery benzoiloureido- dwufenylo-owe o wzorze ogólnym 1, w którym R¹ oznacza atom chloru lub fluoru, R² oznacza atom wodoru chloru lub fluoru, R³, R⁴ i R⁵ oznaczają atomy wodoru, a R⁶ oznacza grupę trójfluorome- tylową.

Korzystnie wytwarza się również etery benzo- iloureidodwufenylo-owe o wzorze ogólnym 1, w któ- rym R¹ oznacza atom chloru, fluoru lub rodnik metylowy, R² oznacza atom wodoru chloru lub fluoru, R³ oznacza atom wodoru lub chloru, R⁴ oznacza atom wodoru, R⁵ oznacza atom wodoru lub chloru, a R⁶ oznacza grupę nitrową.

Korzystnie wytwarza się ponadto etery benzo- iloureidodwufenylo-owe o wzorze ogólnym 1, w któ- rym R¹ oznacza atom chloru, fluoru lub bromu, R² oznacza atom wodoru lub fluoru, R³ oznacza atom wodoru, R⁴ oznacza rodnik metylowy lub atom chloru, R⁵ oznacza atom wodoru, a R⁶ oznacza gru- pę nitrową.

Reakcję prowadzi się korzystnie w odpowiednim rozpuszczalniku lub rozcieńczalniku. Praktycznie można stosować wszystkie obojętne rozpuszczalniki organiczne zwłaszcza alifatyczne i aromatyczne, ewentualnie chlorowane węglowodory, np. benzen, toluen, ksylen, benzynę, chlorek metylenu, chloro- form, czterochlorek węgla, chlorobenzen lub etery, np. eter etylowy i butylowy, dioksan, dalej ketony, np. aceton, metyloetyloketon, metyloizopropyloke- ton i metyloizobutyloketon, oprócz tego nityle, np. acetonitryl i benzonitryl.

Temperatura reakcji może wahać się w szerokim zakresie. Na ogół reakcję prowadzi się w tempe- raturze 0—120°C, korzystnie 70—85°C. Reakcję pro- wadzi się przeważnie pod ciśnieniem normalnym.

Składniki reakcji stosuje się korzystnie w ilo- ściach równomolowych. Nadmiar jednego lub dru- giego reagentu nie daje żadnych istotnych korzy- ści. Stosowane w wariancie b) etery 4-izocyjanodwu- fenylo-owe o wzorze 4 można wprowadzać jako takie lub w postaci mieszaniny poreakcyjnej otrzymanej po reakcji aminy z fosgenem. Wymienioną miesza- ninę reakcyjną traktuje się w jednym z wymienio- nych rozpuszczalników benzamidem, np. 2,6-dwu- fluorobenzamidem. Reakcję prowadzi się w ko- rzystnych warunkach, a wytrącony produkt wy- dziela się w znany sposób przez odsączenie, prze- mywanie i ewentualne przekrystalizowanie. Zwią- zki otrzymuje się w postaci krystalicznej o ostrej temperaturze topnienia.

Jak już podano, etery benzoiloureido-dwufeny- lowe o wzorze 1 mają doskonałe działanie owado- bójcze, przy czym odznaczają się one nieznaczną toksycznością dla stałocieplnych i są dobrze tole- rowane przez rośliny.

Właściwości te umożliwiają stosowanie ich z do- brym wynikiem w dziedzinie ochrony roślin do zwalczania owadów o narządzie gębowym gryzą- cym i ssącym.

Do owadów o narządzie gębowym ssącym zwal- czanych przez środki według wynalazku należą głównie mszyce (Aphidae), np. mszyca brzoskwino- wo-ziemniaczana (*Myzus persicae*), mszyca trzmie- linowo-burakowa (*Doralis fabae*), mszyca czerem- chowo-zbożowa (*Rhopalosiphum padi*), mszyca gro- chowa (*Macrosiphum pisi*), mszyca ziemniaczana smugowana (*Macrosiphum solanifolii*), mszyca po- rzeczkowa (*Cryptomyzus korschelti*), mszyca jabło- niowo-babkowa (*Sappaphis mali*), mszyca śliwowo- -trzciniowa (*Hyalopterus arundinis*), mszyca wiśni- wo-przytuliowa (*myzus cerasi*), ponadto zwalczają czerwcowate (*Coccina*) np. tarczніка oleandrowca (*Aspidiotus hederæ*), *Lecanium hesperidum*, *Pseu- dococcus martimus*, przylżeńce (*Thysanoptera*), np. *Hercinotrips femoralis*, pluskwiaki np. płaszczyń- ca burakowego (*Piesma quadrata*), *Dysdercus inter- medius*, pluskwę domową (*Cimex lectularius*), *Rhodnius proliis*, *Triatoma infestans*, dalej piewi- ki, np. *Euscelis bilobatus* i *Nephotettix bipunctatus*.

Do owadów o narządzie gębowym gryzącym zwalczanych przez środki według wynalazku na- leżą przede wszystkim gąsienice motyli (*Lepidopte- ra*), takich jak tantniś krzyżowiaczek (*Plutella ma- culipennis*), brudnica nieparka (*Lymantria dispar*), kuprówka-rudnica (*Euproctis chrysorrhoea*), prząd- ka pierścienica (*Melacosoma neustria*), ponadto piętnówka kapustówka (*Mamestra brassicae*), zbo- żówka rolnica (*Agrotis segetum*), bielinek kapust- nik (*Pieris brassicae*), piędzik przedzimek (*Cheimatobia brumata*), zwójka zieloneczka (*Tortrix viri- dana*), *Lephygma frugiperda*, *Prodenia litura*, na- miotnik owocowy, (*Hyponomeuta padella*), molik mączny (*Ephestia kühniella*) i barciak większy (*Galleria mellonella*).

Ponadto do owadów o narządzie gębowym gry- zącym zwalczanych przez środki według wynalazku należą chrząszcze (*Coleoptera*, np. wołek zbożowy (*Sitophilus granarius* = *Calandra granaria*), stonka ziemniaczana (*Leptinotarsa decemlineata*), kałud- nica zielonka (*Gastrophysa viridula*), żaczka chrza- nówka (*Phaedon cochleariae*), słodyszek rzepakowy (*Meligethes aeneus*), kistnik maliniak (*Byturus to- mentosus*), strąkowiec fasolowy (*Bruchidius* = *Acanthoscelides obtectus*), *Dermestes frischii*, skórek zbożowiec (*Trogoderma granarium*), trójszyk gry- zący (*Tribolium castaneum*), wołek kukurydziany (*Calandra* lub *Sitophilus zeamais*), żywiak chlebo- wicz (*Stegobium paniceum*), mącznik młynarek (*Tenebrio molitor*), spichrzal surynamski (*Oryzae- philus surinamensis*), oraz rodzaje żyjące w glebie, np. drutowce (*Agriotes spec.*), chrabąszcze majowe (*Melolontha melolontha*), karaluchy, np. prusak (*Blattella germanica*), przybyszka amerykańska (*Pe- riplaneta americana*), *Leucophaea* lub *Phypparobia maderae*, karczan wschodni (*Blatta orientalis*), Bla-

berus giganteus, Blaberus fuscus, Henschoutedenia flexivitta, dalej różnoskrzydłe, np. świerszcz domowy (Gryllus domesticus), termity np. Reticulitermes flavipes i błonoskrzydłe, np. mrówki, przykładowo hurtnica czarna (Lasius niger).

Z dwuskrzydłych zwalczają głównie muchy, np. wywilżynę karłowatą (Drosophila melanogaster), owocankę południówkę (Ceratitis capitata), muchę domową (Musca domestica), muchę pokojową (Fannia canicularis), Phormia regina, plujkę rudogłową (Calliphora erythrocephala), oraz bolimuszki kleszczowate (Stomoxys calcitrans), dalej długoczułki, takie jak komary, np. Aedes aegypti, Culex pipiens i Anopheles stephensi.

Do roztoczy (Acari) zwalczanych przez środki według wynalazku należą zwłaszcza przedziorkowate (Tetranychidea), np. przedziorek chmielowiec (Tetranychus telarius = Tetranychus althaeae lub Tetranychus urticae (i przedziorek owocowiec (Paratetranychus pilosus — Panonychus ulmi, szpecielowate, np. szpeciel porzeczkowy (Eriophyes ribis), roztocza różnopazurkowate np. Hemitarsonemus latus i roztocz truskawkowy (Tarsonemus pallidus) i kleszcze, np. Ornithodoros moubata.

W przypadku stosowania w dziedzinie higieny i w przechowywalnictwie, zwłaszcza przeciwko muchom i komarom, środki według wynalazku wykazują doskonałe działanie pozostałościowe na drewnie i glinie oraz dobrą odporność na alkalia na uwapnionych podłożach.

Substancje czynne można przeprowadzać w zwykłe preparaty, takie jak roztwory, emulsje, proszki, zwilżalne, zawiesiny proszki, proszki do opylania, pianki, pasty, proszki rozpuszczalne, granulaty, aerozole, koncentraty zawieszinowo-emulsyjne, proszki do zaprawy nasion, oraz wprowadzać do impregnatów substancji naturalnych i syntetycznych, drobnych kapsulek w substancjach polimerycznych i otoczek nasion, środków do gazowania takich jak naboje, ładunki, świece do odymiania itp. oraz preparatów stosowanych sposobem ULV do opylania mgławicowych na zimno i ciepło.

Preparaty otrzymuje się w znany sposób, np. przez zmieszanie substancji czynnych z rozcieńczalnikami, to jest ciekłymi rozpuszczalnikami, skroplonymi pod ciśnieniem gazami i/lub stałymi nośnikami, ewentualnie stosując substancje powierzchniowo czynne, takie jak emulgatory i/lub dyspergatory i/lub środki pianotwórcze. W przypadku stosowania wody jako rozcieńczalnika można stosować np. rozpuszczalniki organiczne jako rozpuszczalniki pomocnicze. Jako ciekłe rozpuszczalniki można stosować zasadniczo związki aromatyczne, np. ksylen, toluen, benzen lub alkilonaftaleny, chlorowane związki aromatyczne lub chlorowane węglowodory alifatyczne, takie jak chlorobenzeny, chloroetyleny lub chlorek metylenu, węglowodory alifatyczne, takie jak cykloheksan lub parafiny np. frakcje ropy naftowej, alkohole, takie jak butanol lub glikol oraz jego etery i estry, ketony, takie jak aceton, metyloetyloketon, metyloizobutyloketon lub cykloheksanon, rozpuszczalniki o dużej polarności, takie jak dwumetyloformamid i sulfotlenek dwumetylowy, oraz wodę.

Jako skroplone gazowe rozcieńczalniki lub nośniki stosuje się ciecze, które w normalnej temperaturze i pod normalnym ciśnieniem są gazami, np. gazy aerozolutwórcze, takie jak chlorowcowęglowodory. Jako stałe nośniki stosuje się naturalne mączki mineralne, takie jak kaoliny, tlenki glinu, talk, kreda kwarc, atapulgity, montmorylonit lub ziemia okrzemkowa i syntetyczne mączki nieorganiczne, takie jak kwas krzemowy o wysokim stopniu rozdrobnienia, tlenek glinu i krzemiany. Jako emulgatory i/lub środki pianotwórcze stosuje się emulgatory niejonotwórcze i anionowe, takie jak estry politlenku etylenu i kwasów tłuszczowych, etery politlenku etylenu i alkoholi tłuszczowych, np. etery alkiloarylopoliglikolowe, alkilosulfoniany, siarczany alkilowe, arylosulfoniany oraz hydrolizaty białka. Jako środki dyspergujące stosuje się np. ligninę, ługi posiarzynowe i metylocelulozę. Preparaty substancji czynnych mogą zawierać domieszki znanych substancji czynnych. Preparaty zawierają na ogół 0,1–95% wagowych, korzystnie 0,5–90% wagowych substancji czynnej.

Substancje czynne można stosować same, w postaci koncentratów lub przygotowanych z nich preparatów roboczych. Środki stosuje się w znany sposób np. przez opryskiwanie, opryskiwanie mgławicowe, opylanie mgławicowe, opylanie, rozsiewanie, odymianie, gazowanie, podlewanie, zaprawianie lub inkrustowanie.

Stężenia substancji czynnych w preparatach roboczych mogą wahać się w szerokich granicach. Na ogół wynoszą 0,0001–10% korzystnie 0,01–1%. Substancje czynne można też stosować z dobrym wynikiem w sposobie Ultra-Low-Volume (ULV), w którym można stosować preparaty zawierające do 95%, a nawet 100% substancji czynnych. Następujące przykłady bliżej wyjaśniają wynalazek.

Przykład I. Testowanie Plutella:

Rozpuszczalnik: 3 części wagowe dwumetyloformamidu; emulgator: 1 część wagowa eteru alkiloarylopoliglikolowego.

W celu otrzymania odpowiedniego preparatu substancji czynnej miesza się 1 część wagową substancji czynnej z podaną ilością rozpuszczalnika i podaną ilością emulgatora, po czym koncentrat rozcieńcza się wodą dożądanego stężenia. Otrzymanym preparatem substancji czynnej opryskuje się mgławicowo do oroszenia liście kapusty (Brassica oleracea) i obsadza gąsiennicami tantnisiami krzyżowiaczką (Plutella maculipennis). Po podanym czasie ustala się śmiertelność w %, przy czym 100% oznacza, że wszystkie gąsiennice zostały zabite, a 0% oznacza, że żadna gąsiennica nie została zabita.

W tablicy 1 podaje się substancje czynne, stężenie substancji czynnych, czasy obserwacji oraz uzyskane wyniki.

Przykład II. Testowanie Laphygma

Rozpuszczalnik: 3 części wagowe dwumetyloformamidu; emulgator: 1 część wagowa eteru alkiloarylopoliglikolowego.

W celu otrzymania odpowiedniego preparatu substancji czynnej miesza się 1 część wagową substancji czynnej z podaną ilością rozpuszczalnika

Tablica 1

Owady szkodniki roślin

Testowanie *Plutella*

Substancja czynna	Stężenie substancji czynnej w %	Śmiertelność w % po upływie 8 dni
Związek o wzorze 6 (znany)	0,1	65
	0,01	0
Związek o wzorze 7 (znany)	0,1	100
	0,01	100
	0,001	15
Związek o wzorze 8	0,1	100
	0,01	100
	0,001	90
Związek o wzorze 9	0,1	100
	0,01	100
	0,001	95
Związek o wzorze 10	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 11	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
Związek o wzorze 12	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 13	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 14	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
Związek o wzorze 15	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 16	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 17	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 18	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 19	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100
Związek o wzorze 20	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
Związek o wzorze 21	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
Związek o wzorze 22	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,001	100

ka i podaną ilością emulgatora, po czym koncentrat rozcieńcza się wodą dożądanego stężenia. Otrzymanym preparatem substancji czynnej oprys-

kuje się mgławicowo do orosienia liście bawełny (*Gossypium hirsutum*) i obsadza gąsienicami *Laphygma exigua*. Po podanym czasie ustala się śmiertelność w %, przy czym 100% oznacza, że wszystkie gąsienice zostały zabite, a 0% oznacza, że żadna gąsienica nie została zabita.

W tablicy 2 podaje się substancje czynne, stężenie substancji czynnych, czasy obserwacji oraz uzyskane wyniki.

Tablica 2
Owady szkodniki roślin
Testowanie *Laphygma*

Substancja czynna	Stężenie substancji czynnej w %	Śmiertelność w % po upływie 8 dni
Związek o wzorze 7 (znany)	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,0001	50
	0,00001	0
Związek o wzorze 23	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	100
Związek o wzorze 8	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,0001	80
	0,00001	60
Związek o wzorze 9	0,1	100
	0,01	100
	0,001	100
	0,0001	95
	0,00001	100
Związek o wzorze 18	0,001	100
	0,0001	100
	0,00001	70
	0,001	100
	0,0001	100
Związek o wzorze 21	0,0001	50
	0,00001	50

Przykład III. Testowanie larw *Phaedon*.

Rozpuszczalnik: 3 części wagowe dwumetyloformamidu; emulgator: 1 część wagowa eteru alkilarylopoliglikolowego.

Celem otrzymania odpowiedniego preparatu substancji czynnej miesza się 1 część wagową substancji czynnej z podaną ilością rozpuszczalnika i podaną ilością emulgatora i rozcieńcza koncentrat wodą dożądanego stężenia. Otrzymanym preparatem substancji czynnej opryskuje się liście kapusty (*Brassica oleracea*) do orosienia i obsadza larwami żaczki chrzanówki (*Phaedon cochleariae*). Po podanym czasie ustala się śmiertelność przy czym przez 100% oznacza się, że wszystkie larwy żaczki zostały zabite, a przez 0%, że żadna larwa nie została zabita.

W tablicy 3 podaje się stosowane substancje czynne, stężenie substancji czynnych, czas obserwacji i otrzymane wyniki.

Tablica 3
Owady szkodniki roślin
Testowanie larw Phaeton

Substancja czynna	Stężenie substancji czynnej w %	Śmiertelność w % po 3 dniach
Związek o wzorze 6 (znany)	0,1	100
	0,01	55
	0,001	0
Związek o wzorze 7 (znany)	0,1	100
	0,01	15
	0,001	0
Związek o wzorze 9	0,1	100
	0,01	100
	0,001	80
Związek o wzorze 13	0,1	100
	0,01	100
	0,001	50
Związek o wzorze 16	0,1	100
	0,01	100
	0,001	80

Następujące przykłady bliżej wyjaśniają sposób wytwarzania substancji czynnej środka według wynalazku.

Przykład IV. Do 5,8 g (0,02 mola) 4-(2'-chloro-4'-trójfluorometylofenoksy)-aniliny w 100 cm³ toluenu wkrapla się w temperaturze 80°C roztwór 3,7 g (0,02 mola) izocyjanianu 2-chlorobenzoilu w 20 cm³ toluenu. Wsad miesza się w ciągu 1 godziny w temperaturze 80°C. Po ochłodzeniu odsąca się wytrącony produkt i przemywa najpierw toluenem, a następnie eterem naftowym. Po wysuszeniu otrzymuje się 6,6 g (70% wydajności teoretycznej) czystego analitycznie eteru 2-chloro-4-trójfluorometylo-4'-{N-[N'-(O-chlorobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowego o wzorze 23 o temperaturze topnienia 182°C.

Przykład V. Do roztworu 5,8 g (0,02 mola) 4-(2'-chloro-4'-trójfluorometylofenoksy)-aniliny w 100 cm³ toluenu wkrapla się w temperaturze 80°C roztwór 3,7 g (0,02 mola) izocyjanianu 2,6-dwufluorobenzoilu w 20 cm³ toluenu. Wsad miesza się w ciągu 1 godziny w temperaturze 80°C. Po ochłodzeniu mieszaniny reakcyjnej do temperatury 20°C odsąca się wydzieloną substancję i przemywa toluenem i eterem naftowym. Po wysuszeniu otrzymuje się 8 g (95% wydajności teoretycznej) eteru 2-chloro-4-trójfluorometylo-4'-{N-[N'-(2,6-dwufluorobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowego o wzorze 9 o temperaturze topnienia 187°C.

Przykład VI. Według przykładów IV i V otrzymuje się również eter 2-chloro-4-trójfluorometylo-4'-{N-[N'-(2,6-dwuchlorobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowy o wzorze 8 o temperaturze topnienia 177°C z wydajnością wynoszącą 89% wydajności teoretycznej.

Przykład VII. Do 5 g (0,015 mola) 3,5-dwuchloro-4-(2'-chloro-4'-nitrofenoksy)-aniliny w 50 cm³ toluenu wkrapla się w temperaturze 80°C roztwór 2,8 g (0,015 mola) izocyjanianu 2-chlorobenzoilu

w 10 cm³ toluenu. Wsad miesza się w ciągu 1 godziny w temperaturze 80°C. Po ochłodzeniu wytrącony produkt odsąca się i przemywa najpierw toluenem, a następnie eterem naftowym. Po wysuszeniu otrzymuje się 6,5 g 84% wydajności teoretycznej) czystego analitycznie eteru 2-chloro-4-nitro-2', 6'-dwuchloro-4'-{N-[N'-(o-chlorobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowego o wzorze 13 o temperaturze topnienia 221°C.

Przykład VIII. Do roztworu 6,0 g (0,02 mola) 3-chloro-4-(2'-chloro-4'-nitrofenoksy)-aniliny w 80 cm³ toluenu wkrapla się w temperaturze 80°C roztwór 3,25 g (0,02 mola) izocyjanianu 2-metylobenzoilu w 20 cm³ toluenu. Wsad miesza się w ciągu 1 godziny w temperaturze 80°C. Substancję wytrąconą po ochłodzeniu mieszaniny reakcyjnej do temperatury 20°C odsąca się i przemywa toluenem i eterem naftowym. Po wysuszeniu otrzymuje się 8 g (87% wydajności teoretycznej) eteru 2-chloro-2-nitro-2'-chloro-4'-{N-[N'-(o-metylobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowego o wzorze 10 o temperaturze topnienia 220°C.

W sposób analogiczny wytwarza się związki zestawione w tablicy 4.

Tablica 4

Przykład	Związek	Wydajność % wydajności teoretycznej	Temperatura topnienia °C
IX	Związek o wzorze 24	94	223
X	Związek o wzorze 25	82	208
XI	Związek o wzorze 26	87	227
XII	Związek o wzorze 12	83	201
XIII	Związek o wzorze 15	87	206
XIV	Związek o wzorze 16	96	235
XV	Związek o wzorze 11	70	220

Przykład XVI. Do 6,0 g (0,02 mola) 4-(2'-chloro-4'-nitrofenoksy)-2-chloroaniliny w 100 cm³ toluenu wkrapla się w temperaturze 30°C roztwór 3,7 g (0,02 mola) izocyjanianu 2-chlorobenzoilu w 20 cm³ toluenu. Wsad miesza się w ciągu 1 godziny w temperaturze 50°C. Po ochłodzeniu odsąca się wytrącony produkt i przemywa najpierw toluenem, a następnie eterem naftowym. Po wysuszeniu otrzymuje się 6,0 g (62% wydajności teoretycznej) analitycznie czystego eteru 2,3'-dwuchloro-4-nitro-4'-{N-[N'-(o-chlorobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowego o wzorze 20 o temperaturze topnienia 193°C.

Przykład XVII. Do roztworu 5,6 g (0,02 mola) 4-(2'-chloro-4'-nitrofenoksy)-2-metyloaniliny w 100 cm³ toluenu wkrapla się w temperaturze 50°C roztwór 3,7 g (0,02 mola) izocyjanianu 2,6-dwufluorobenzoilu w 20 cm³ toluenu. Wsad miesza się w ciągu 1 godziny w temperaturze 60°C. Wytrącającą się substancję odsąca się po ochłodzeniu mieszaniny reakcyjnej do temperatury 20°C i przemywa toluenem i eterem naftowym. Po wysuszeniu otrzymuje się 7 g (75% wydajności teoretycznej) eteru 2-chloro-4-nitro-3'-metylo-4'-{N-[N'-(2,6-dwufluorobenzoilo)]-ureido}-dwufenylowego o wzorze 18 o temperaturze topnienia 190°C.

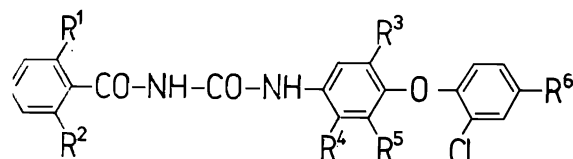
Według przykładów XVI i XVII otrzymuje się także związki zestawione w tablicy 5.

Tablica 5

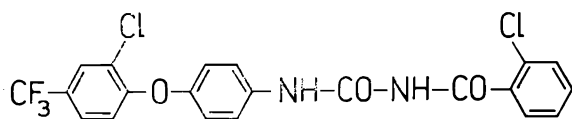
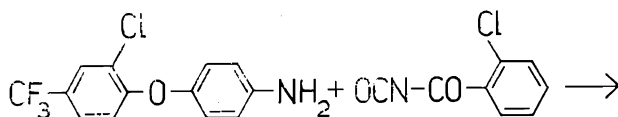
Przy- kład	Związek	Wydaj- ność % wy- dajności teore- tycznej	Tempe- ratura topnie- nia °C
XVIII	Związek o wzorze 21	200	93
XIX	Związek o wzorze 22	193	82
XX	Związek o wzorze 17	197	65
XXI	Związek o wzorze 19	200	86

Zastrzeżenie patentowe

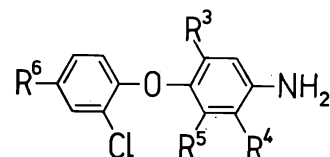
- 5 Środek owadobójczy, zawierający substancję czynną i znane dodatki, **znamienny tym**, że jako substancję czynną zawiera etery benzoiloureido-
- 10 dwufenylowe o wzorze 1, w którym R¹ oznacza atom fluoru, chloru, bromu lub rodnik metylowy, R² oznacza atom wodoru, fluoru lub chloru, R³ oznacza atom wodoru lub chloru, R⁴ oznacza atom wodoru, chloru lub rodnik metylowy, R⁵ oznacza atom wodoru lub chloru, a R⁶ oznacza grupę nitrową lub trójfluorometylową.



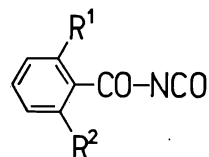
WZÓR 1



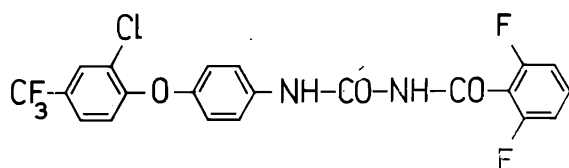
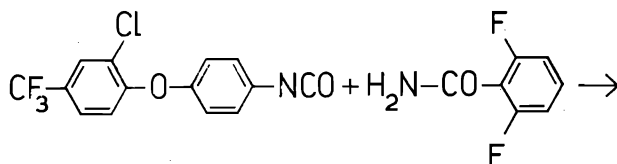
SCHEMAT 1



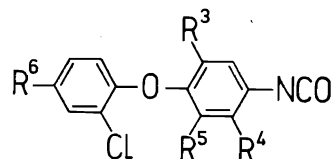
WZÓR 2



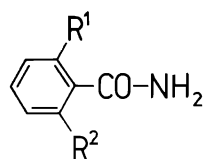
WZÓR 3



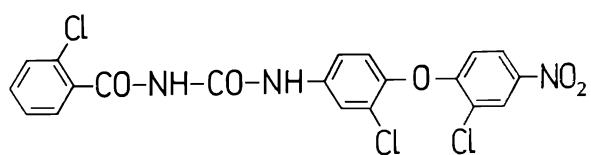
SCHEMAT 2



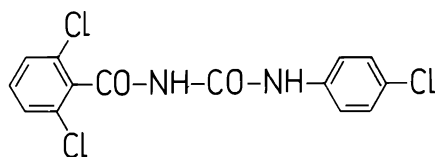
WZÓR 4



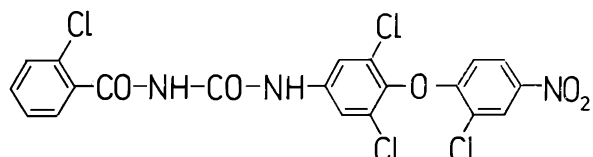
WZÓR 5



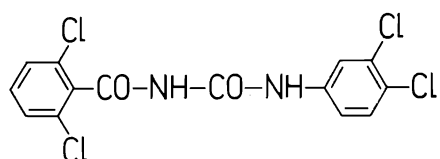
WZÓR 12



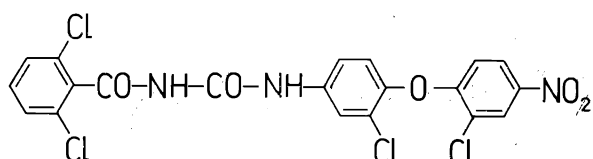
WZÓR 6



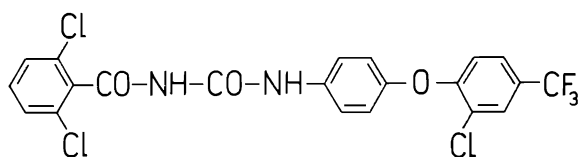
WZÓR 13



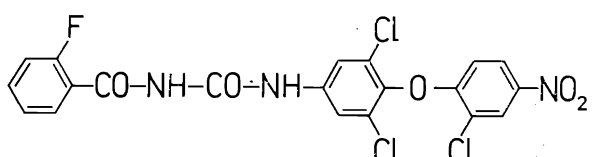
WZÓR 7



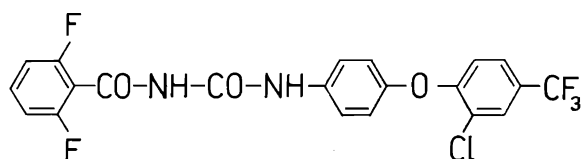
WZÓR 14



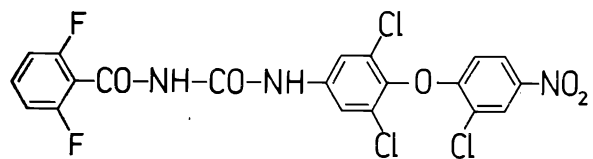
WZÓR 8



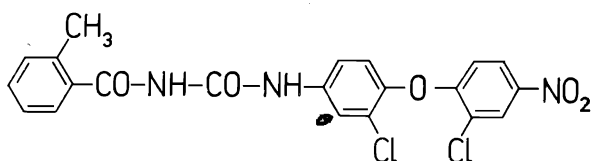
WZÓR 15



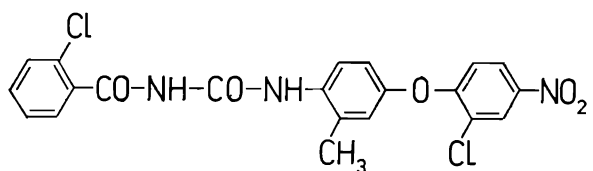
WZÓR 9



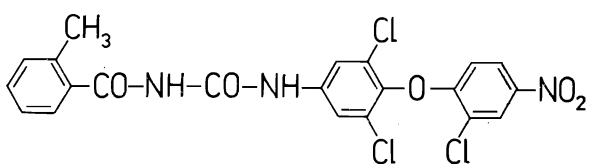
WZÓR 16



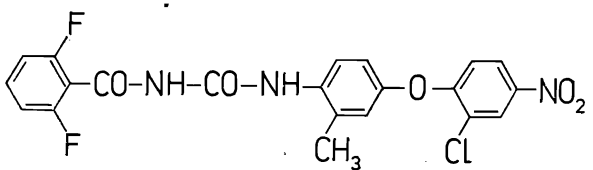
WZÓR 10



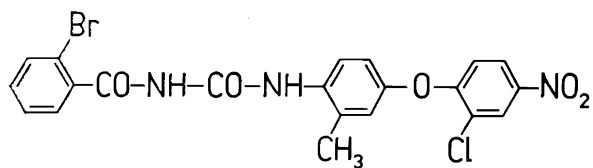
WZÓR 17



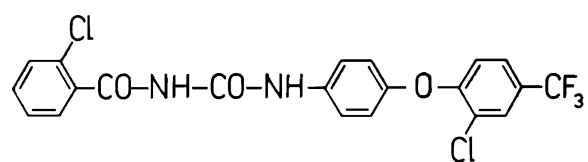
WZÓR 11



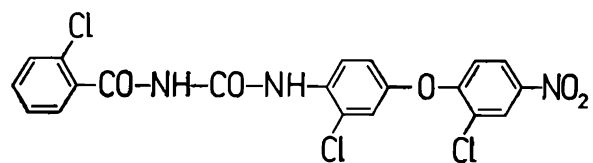
WZÓR 18



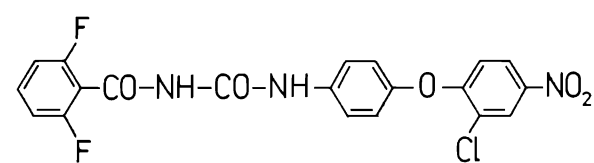
WZÓR 19



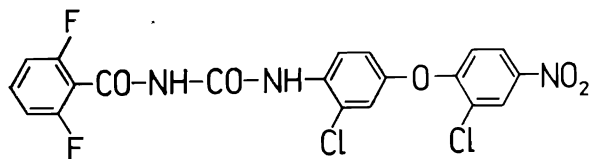
WZÓR 23



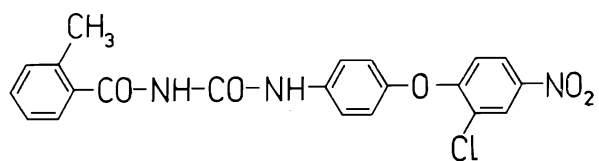
WZÓR 20



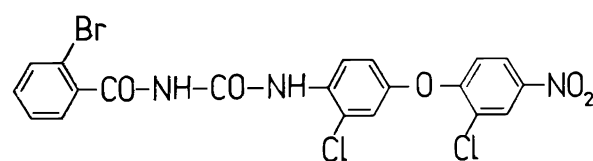
WZÓR 24



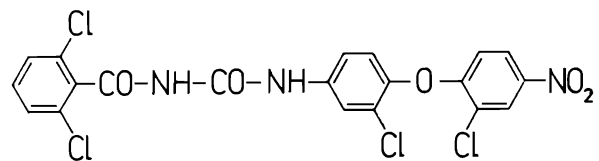
WZÓR 21



WZÓR 25



WZÓR 22



WZÓR 26