

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
2. Dezember 2004 (02.12.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/103953 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **C07C 233/65**,
233/66, 233/77, 63/06, 63/10, 61/08, A01N 37/18

Langenfeld (DE). **RIECK, Heiko** [DE/FR]; 9 rue Claude Monet, F-69110 Ste Foy lès Lyon (FR).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2004/005067

(74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER CROPSCIENCE AKTIENGESELLSCHAFT**; Law and Patents, Patents and Licensing, Kaiser-Wilhelm-Allee, 51368 Leverkusen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
12. Mai 2004 (12.05.2004)

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(25) Einreichungssprache: Deutsch
(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
(30) Angaben zur Priorität:
10322909.4 21. Mai 2003 (21.05.2003) DE
10325438.2 5. Juni 2003 (05.06.2003) DE

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BAYER CROPSCIENCE AKTIENGESELLSCHAFT** [DE/DE]; Alfred-Nobel-Str. 50, 40789 Monheim (DE).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

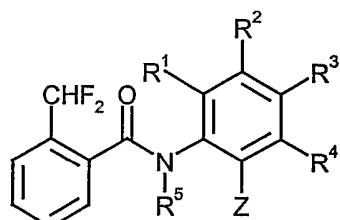
Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: DIFLUOROMETHYLBENZANILIDES AND USE THEREOF FOR COMBATING MICRO-ORGANISMS, INTERMEDIATE PRODUCTS AND USE THEREOF

(54) Bezeichnung: DIFLUORMETHYLBENZANILIDE UND DEREN VERWENDUNG ZUR BEKÄMPFUNG BON MIKROORGANISMEN, SOWIE ZWISCHEN PRODUKTE UND DEREN HERSTELLUNG

A1

WO 2004/103953



(I)

(57) Abstract: The invention relates to novel difluoromethylbenzanilides of formula (I), wherein R¹, R², R³, R⁴, R⁵ and Z have the meanings cited in the description. The invention also relates to several methods for the production of said substances and the use thereof in order to combat undesired micro-organisms, and to novel intermediate products and the use thereof.

un-er-wünschter Mikroorganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

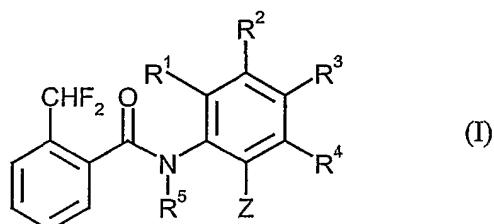
(57) Zusammenfassung: Neue Difluormethylbenzanolide der Formel (I), in welcher R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und Z die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, mehrere Verfahren zur Herstellung dieser Stoffe und deren Verwendung zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

DIFLUORMETHYLBENZANILIDE UND DEREN VERWENDUNG ZUR BEKÄMPFUNG VON
MIKROORGANISMEN, SOWIE ZWISCHENPRODUKTE UND DEREN HERSTELLUNG

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Difluormethylbenzanolide, mehrere Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen.

Es ist bereits bekannt, dass zahlreiche Carboxanilide fungizide Eigenschaften besitzen (vgl. EP-A 0 545 099, JP-A 2001-302605, JP-A 8-176112). So sind aus EP-A 0 554 099 bereits *N*-(4'-Fluor-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-(trifluormethyl)benzamid und *N*-(2-sec-Butylphenyl)-2-(trifluormethyl)benzamid bekannt. Die Wirksamkeit dieser Stoffe ist gut, lässt aber in manchen Fällen, z.B. bei niedrigen Aufwandmengen zu wünschen übrig. Difluormethylbenzanolide sind bisher nicht bekannt geworden.

Es wurden nun neue Difluormethylbenzanolide der Formel (I)



15 gefunden, in welcher

R^1 , R^2 , R^3 und R^4 unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, iso-Propyl oder Methylthio stehen,

R^5 für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_6 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_6 -Alkylsulfonyl, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkylthio, C_1 - C_4 -Halogenalkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- C_1 - C_4 -alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogenencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl- C_1 - C_3 -alkyl, (C_1 - C_3 -Alkyl)carbonyl- C_1 - C_3 -alkyl, (C_1 - C_3 -Alkoxy)carbonyl- C_1 - C_3 -alkyl; (C_1 - C_3 -Halogenalkyl)carbonyl- C_1 - C_3 -alkyl, (C_1 - C_3 -Halogenalkoxy)carbonyl- C_1 - C_3 -alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C_1 - C_3 -Alkyl)carbonyl- C_1 - C_3 -halogenalkyl, (C_1 - C_3 -Alkoxy)carbonyl- C_1 - C_3 -halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C_1 - C_3 -Halogenalkyl)carbonyl- C_1 - C_3 -halogenalkyl, (C_1 - C_3 -Halogenalkoxy)carbonyl- C_1 - C_3 -halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰ steht,

20 R^6 für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_8 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkoxy, Halogen- C_1 - C_4 -alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogenencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR¹¹ steht,

25 R^7 für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_8 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkoxy, Halogen- C_1 - C_4 -alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogenencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR¹¹ steht,

30 R^8 für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_8 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkoxy, Halogen- C_1 - C_4 -alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogenencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR¹¹ steht,

R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₈-Halogenalkyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

R⁷ und R⁸ außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹² enthalten kann,

R⁹ und R¹⁰ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₈-Halogenalkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

R⁹ und R¹⁰ außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹² enthalten kann,

R¹¹ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

R¹² für Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl steht,

Z für Z¹, Z², Z³ oder Z⁴ steht, worin

Z¹ für gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht,

Z² für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl oder Bicycloalkyl steht,

Z³ für unsubstituiertes C₂-C₂₀-Alkyl oder für einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₁-C₂₀-Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

Z⁴ für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₂₀-Alkenyl oder C₂-C₂₀-Alkinyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

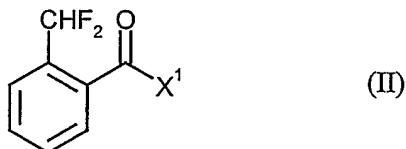
oder

R¹, R² und R³ unabhängig voneinander für Wasserstoff oder Fluor stehen und

Z und R⁴ gemeinsam mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gegebenenfalls substituierten 5- oder 6-gliedrigen carbocyclischen oder heterocyclischen Ring bilden.

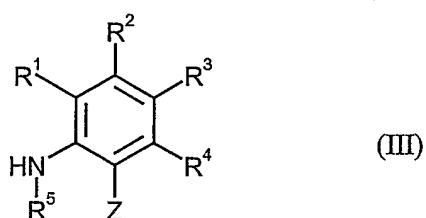
Weiterhin wurde gefunden, dass man Difluormethylbenzanilide der Formel (I) erhält, indem man

- a) Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



in welcher

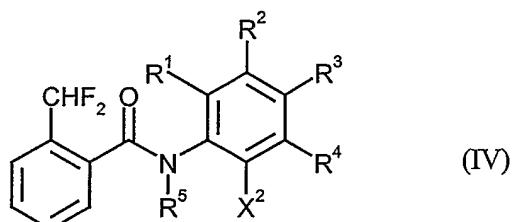
- 5 X¹ für Chlor oder Hydroxy steht,
mit Anilin-Derivaten der Formel (III)



10 in welcher R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und Z die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Konden-
sationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

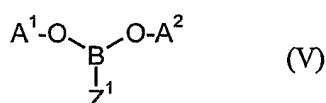
oder

- b) Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV)



15 in welcher

- R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ die oben angegebenen Bedeutungen haben, und
X² für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,
mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

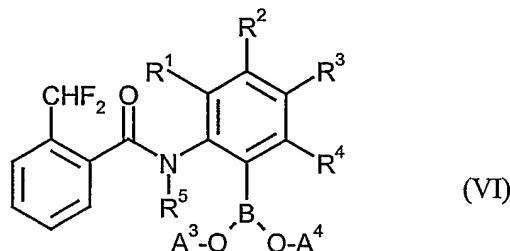


20 in welcher

- Z¹ die oben angegebene Bedeutung hat und
A¹ und A² jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,
in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

- c) Difluormethylbenzamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)



in welcher

- 5 R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die oben angegebenen Bedeutungen haben, und
 A^3 und A^4 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,
mit Phenyl-Derivaten der Formel (VII)

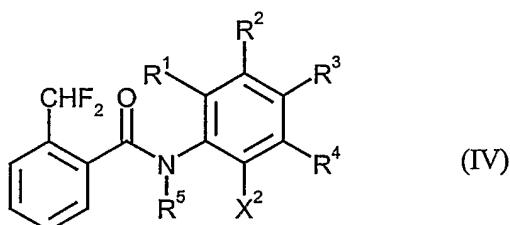


in welcher

- 10 Z^1 die oben angegebenen Bedeutungen hat und
 X^3 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,
in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

- 15 d) Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV)



in welcher

- 18 R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die oben angegebenen Bedeutungen haben, und
 X^2 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,
mit Phenyl-Derivaten der Formel (VII)

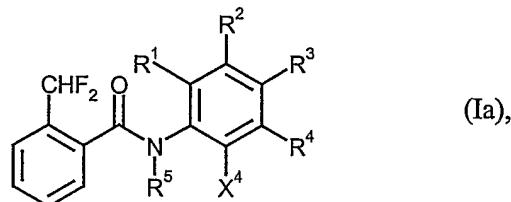


in welcher

- 22 Z^1 die oben angegebenen Bedeutungen hat und
 X^3 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,
in Gegenwart eines Palladium- oder Nickel-Katalysators und in Gegenwart von
4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines
Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

- e) Difluormethylbenzanilide der Formel (Ia)



in welcher

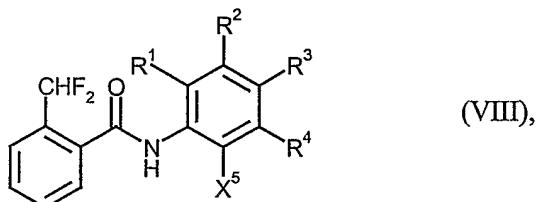
5 R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die oben angegebenen Bedeutungen haben und

X^4 für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C_3 - C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_2 - C_{20} -Alkenyl oder C_2 - C_{20} -Alkinyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiert sein kann,

10 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators hydriert,

oder

- f) Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanilide der Formel (VIII)



15 in welcher

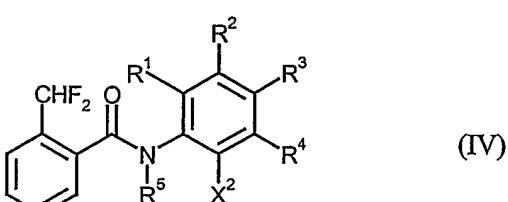
R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die oben angegebenen Bedeutungen haben und

X^5 für gegebenenfalls zusätzlich einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C_3 - C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_2 - C_{20} -Hydroxyalkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiert sein kann,

20 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart einer Säure dehydratisiert,

oder

- g) Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV)



in welcher

R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ die oben angegebenen Bedeutungen haben, und

X² für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,

mit einem Alkin der Formel (IX)

5

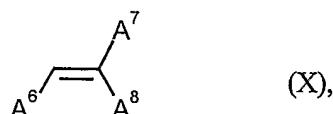


in welcher

A⁵ für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₈-Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

10

oder einem Alken der Formel (X)



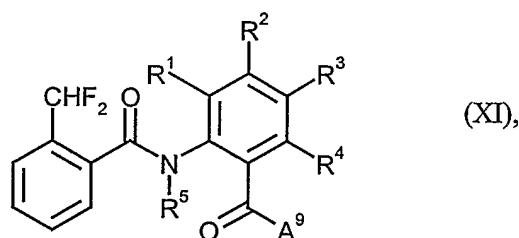
in welcher

A⁶, A⁷ und A⁸ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes Alkyl stehen, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann und die Gesamtzahl der Kohlenstoffatome des offenkettigen Molekülteils die Zahl 20 nicht übersteigt, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und in Gegenwart eines oder mehrerer Katalysatoren umsetzt,

20

oder

h) Ketone der Formel (XI)

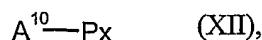


in welcher

R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

A⁹ für Wasserstoff oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₁-C₁₈-Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

mit einer Phosphorverbindung der allgemeinen Formel (XII)



in welcher

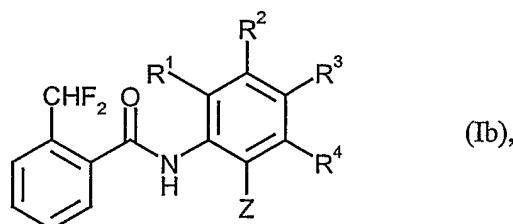
A¹⁰ für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₁-C₁₈-Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

Px für eine Gruppierung -P⁺(C₆H₅)₃ Cl⁻, -P⁺(C₆H₅)₃ Br⁻, -P⁺(C₆H₅)₃ I⁻, -P(=O)(OCH₃)₃ oder -P(=O)(OC₂H₅)₃ steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

i) Difluormethylbenzanilide der Formel (Ib)



in welcher

R¹, R², R³, R⁴ und Z die oben angegebenen Bedeutungen haben

mit einem Halogenid der Formel (XIII)



in welcher

R⁵⁻¹ für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

-COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰ steht,

R⁶, R⁷, R⁸, R⁹ und R¹⁰ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

X⁶ für Chlor, Brom oder Iod steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen Difluormethylbenzanolide der Formel (I) sehr gute
5 mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Difluormethylbenzanolide der Formel (I) eine wesentlich bessere fungizide Wirksamkeit als die konstitutionell ähnlichen, vorbekannten Wirk-
10 stoffe gleicher Wirkungsrichtung.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können gegebenenfalls als Mischungen verschiedener möglicher isomerer Formen, insbesondere von Stereoisomeren, wie z. B. E- und Z-, threo- und erythro-, sowie optischen Isomeren, gegebenenfalls aber auch von Tautomeren vorliegen. Es werden sowohl
15 die E- als auch die Z-Isomeren, wie auch die threo- und erythro-, sowie die optischen Isomeren, beliebige Mischungen dieser Isomeren, sowie die möglichen tautomeren Formen beansprucht.

Die erfindungsgemäßen Difluormethylbenzanolide sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugte Restedefinitionen der vorstehenden und nachfolgend genannten Formeln sind im
20 Folgenden angegeben. Diese Definitionen gelten für die Endprodukte der Formel (I) wie für alle Zwischenprodukte gleichermaßen.

R¹, R², R³ und R⁴ stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl.

25 R¹ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff oder Fluor.

R¹ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff.

R¹ steht auch ganz besonders bevorzugt für Fluor.

R² steht besonders bevorzugt für Wasserstoff.

R³ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methylthio.

30 R³ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff.

R³ steht auch ganz besonders bevorzugt für Fluor.

R⁴ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl oder iso-Propyl.

R⁴ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff.

R⁴ steht auch ganz besonders bevorzugt für Methyl.

35 R¹, R², R³ und R⁴ stehen ganz besonders bevorzugt gleichzeitig für Wasserstoff.

- 5 R⁵ steht bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogenalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/ oder Bromatomen, (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)-carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/ oder Bromatomen; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰.
- 10 R⁵ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl, -CH₂-CHO, -CH₂CH₂-CHO, -CH₂-CO-CH₃, -CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂-CO-CH(CH₃)₂, -CH₂CH₂-CO-CH₃, -CH₂CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂CH₂-CO-CH(CH₃)₂, -CH₂-C(O)OCH₃, -CH₂-C(O)OCH₂CH₃, -CH₂-C(O)OCH(CH₃)₂, -CH₂CH₂-C(O)OCH₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH₂CH₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH(CH₃)₂, -CH₂-CO-CF₃, -CH₂-CO-CCl₃, -CH₂-CO-CH₂CF₃, -CH₂-CO-CH₂CCl₃, -CH₂CH₂-CO-CH₂CF₃, -CH₂CH₂-CO-CH₂CCl₃, -CH₂-C(O)OCH₂CF₃, -CH₂-C(O)OCF₂CF₃, -CH₂-C(O)OCH₂CCl₃, -CH₂CH₂-C(O)OCCl₂CCl₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH₂CF₃, -CH₂CH₂-C(O)OCCl₂CCl₃; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰.
- 15 R⁵ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff; Methyl, Methoxymethyl, -CH₂-CHO, -CH₂CH₂-CHO, -CH₂-CO-CH₃, -CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂-CO-CH(CH₃)₂ oder -COR⁶.
- 20 R⁶ steht bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogenalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, -COR¹¹.
- 25 R⁶ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, iso-Propoxy, tert-Butoxy, Cyclopropyl; Trifluormethyl, Trifluormethoxy, -COR¹¹.

R⁶ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, -COCH₃, -CHO, -COCH₂OCH₃, -COCO₂CH₃, -COCO₂CH₂CH₃.

R⁷ und R⁸ stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.

R⁷ und R⁸ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹² enthalten kann.

R⁷ und R⁸ stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluoreethyl, Trifluormethoxymethyl.

R⁷ und R⁸ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch R¹² substituiert sein kann.

R⁹ und R¹⁰ stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.

R⁹ und R¹⁰ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹² enthalten kann.

R⁹ und R¹⁰ stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluoreethyl, Trifluormethoxymethyl.

R⁹ und R¹⁰ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin,

Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch R¹² substituiert sein kann.

- 5 R¹¹ steht bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.
- 10 R¹¹ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, iso-Propoxy, tert-Butoxy, Cyclopropyl; Trifluormethyl, Trifluormethoxy.
- 15 R¹² steht bevorzugt für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl.
- 15 R¹² steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl.
- 20 Z steht bevorzugt für Z¹.
- 20 Z¹ steht bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 20 Z¹ steht besonders bevorzugt für einfach substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 25 Z¹ steht auch besonders bevorzugt für zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 25 Z¹ steht auch besonders bevorzugt für dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 25 Z¹ steht ganz besonders bevorzugt für einfach in 4-Position substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 30 Z¹ steht ganz besonders bevorzugt für zweifach, gleich oder verschieden in 3,4-Position substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 30 Z¹ steht ganz besonders bevorzugt für zweifach, gleich oder verschieden in 2,4-Position substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 30 Z¹ steht ganz besonders bevorzugt für zweifach, gleich oder verschieden in 3,5-Position substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 35 Z¹ steht ganz besonders bevorzugt für dreifach, gleich oder verschieden in 2,4,6-Position substituiertes Phenyl, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind.
- 35 W¹ steht für Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Hydroxyalkyl, Oxoalkyl, Alkoxy, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Dialkoxyalkyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen;

5 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

10 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Arylalkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyloxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl, mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten;

15 Cycloalkyl oder Cycloalkyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen;

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl, Trifluormethyl oder Ethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Alkylen mit 3 oder 4 Kohlenstoffatomen, Oxyalkylen mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder Dioxyalkylen mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen;

20 oder eine Gruppierung $-C(Q^1)=N-Q^2$, worin

Q¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder Cycloalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und

25 Q² für Hydroxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Phenyl substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, oder für Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenyllthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Heterocyclyl oder Phenylalkyl, Phenylalkyloxy, Phenylalkylthio, oder Heterocyclylalkyl, mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen.

30 W¹ steht bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder iso-Propoxy, Trifluormethyl, Trifluorethyl, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Disfluorchlormethoxy, Trifluorethoxy, jeweils zweifach ver-

knüpftes Difluormethylendioxy oder Tetrafluorethylendioxy,

oder eine Gruppierung $-C(Q^1)=N-Q^2$, worin

Q^1 für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl oder Cyclopropyl steht und

Q^2 für Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, Propoxy oder Isopropoxy steht.

5

Z steht auch bevorzugt für Z^2 .

Z^2 steht bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch C_1-C_4 -Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Bicycloalkyl mit jeweils 3 bis 10 Kohlenstoffatomen.

Z^2 steht besonders bevorzugt für Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Cyclooctyl, Cyclononyl, Bicyclo[2.2.1]heptyl oder Bicyclo[2.2.2]octyl.

10

Z steht auch bevorzugt für Z^3 .

15

Z^3 steht bevorzugt für unsubstituiertes C_2-C_{20} -Alkyl oder für einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod und/oder C_3-C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_1-C_{20} -Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod, C_1-C_4 -Alkyl und/oder C_1-C_4 -Halogenalkyl substituiert sein kann.

Z^3 steht besonders bevorzugt für unsubstituiertes C_2-C_{20} -Alkyl.

20

Z^3 steht auch besonders bevorzugt für durch Chlor, Cyclopropyl, Dichlorcyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl substituiertes C_1-C_{20} -Alkyl.

Z steht auch bevorzugt für Z^4 .

25

Z^4 steht bevorzugt für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod und/oder C_3-C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_2-C_{20} -Alkenyl oder C_2-C_{20} -Alkinyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod, C_1-C_4 -Alkyl und/oder C_1-C_4 -Halogenalkyl substituiert sein kann.

Z^4 steht besonders bevorzugt für C_2-C_{20} -Alkenyl oder C_2-C_{20} -Alkinyl.

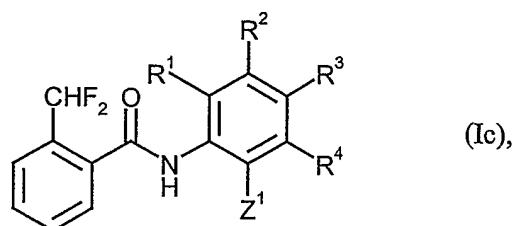
30

Z und R^4 stehen auch bevorzugt gemeinsam mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituierten 5- oder 6-gliedrigen carbocyclischen oder heterocyclischen Ring.

35

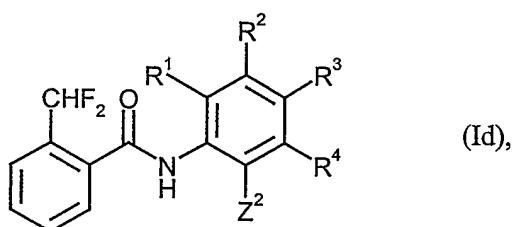
Z und R^4 stehen auch besonders bevorzugt gemeinsam mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach, zweifach oder dreifach durch Methyl substituierten 5- oder 6-gliedrigen carbocyclischen Ring.

Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (Ic)



in welcher R¹, R², R³, R⁴ und Z¹ die oben angegebenen Bedeutungen haben.

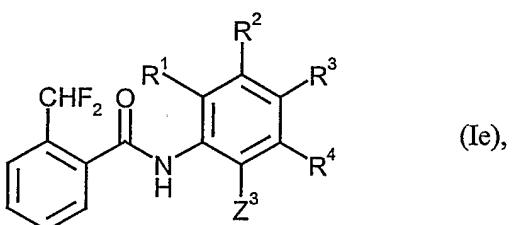
Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (Id)



5

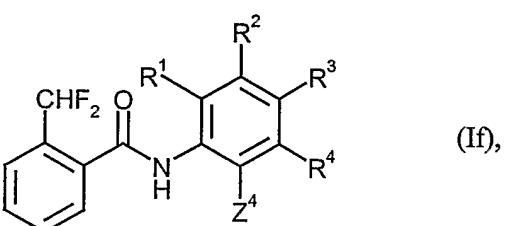
in welcher R¹, R², R³, R⁴ und Z² die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (Ie)



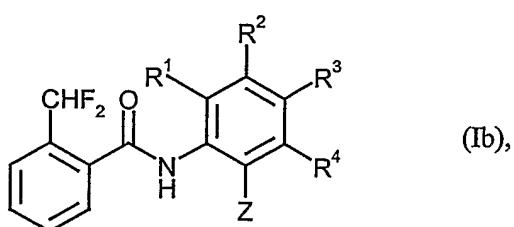
in welcher R¹, R², R³, R⁴ und Z³ die oben angegebenen Bedeutungen haben.

10 Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (If)



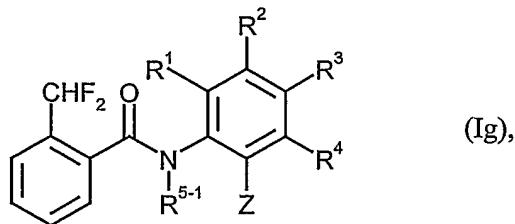
in welcher R¹, R², R³, R⁴ und Z⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (Ib)



15 in welcher R¹, R², R³, R⁴ und Z die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Bevorzugt sind außerdem Verbindungen der Formel (Ig)



in welcher R¹, R², R³, R⁴, R⁵⁻¹ und Z die oben angegebenen Bedeutungen haben.

- 5 R⁵⁻¹ steht bevorzugt für C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;
- 10 -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰.
- 15 R⁵⁻¹ steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluoreethyl, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl, -CH₂-CHO, -CH₂CH₂-CHO, -CH₂-CO-CH₃, -CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂-CO-CH(CH₃)₂, -CH₂CH₂-CO-CH₃, -CH₂CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂CH₂-CO-CH(CH₃)₂, -CH₂-C(O)OCH₃, -CH₂-C(O)OCH₂CH₃, -CH₂-C(O)OCH(CH₃)₂, -CH₂CH₂-C(O)OCH₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH₂CH₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH(CH₃)₂, -CH₂-CO-CF₃, -CH₂-CO-CCl₃, -CH₂-CO-CH₂CF₃, -CH₂-CO-CH₂CCl₃, -CH₂CH₂-CO-CH₂CCl₃, -CH₂-C(O)OCH₂CF₃, -CH₂-C(O)OCF₂CF₃, -CH₂-C(O)OCH₂CCl₃, -CH₂-C(O)OCCl₂CCl₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH₂CF₃, -CH₂CH₂-C(O)OCF₂CF₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH₂CCl₃, -CH₂CH₂-C(O)OCH₂CCl₃, -CH₂CH₂-C(O)OCCl₂CCl₃; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰.
- 20 R⁵⁻¹ steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Methoxymethyl, -CH₂-CHO, -CH₂CH₂-CHO, -CH₂-CO-CH₃, -CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂-CO-CH(CH₃)₂ oder -COR⁶.

Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl oder Alkenyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

- 5 Die Definition C₁-C₂₀-Alkyl umfasst den größten hierin definierten Bereich für einen Alkylrest. Im Einzelnen umfasst diese Definition die Bedeutungen Methyl, Ethyl, n-, iso-Propyl, n-, iso-, sec-, tert-Butyl, sowie jeweils alle isomeren Pentyle, Hexyle, Heptyle, Octyle, Nonyle, Decyle, Undecyle, Dodecyle, Tridecyle, Tetradecyle, Pentadecyle, Hexadecyle, Heptadecyle, Octadecyle, Nonadecyle und Eicosyle. Hierunter bevorzugt sind die Bedeutungen Methyl, Ethyl, n-, iso-Propyl, n-, iso-, sec-,
10 tert-Butyl, n-Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, n-Hexyl, 1-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, n-Heptyl, 1-Methylhexyl, 5-Methylhexyl, 1,4-Dimethylpentyl, 4,4-Dimethylpentyl, 1,3,3-Trimethylbutyl, 1,2,3-Trimethylbutyl.
- 15 Die Definition C₂-C₂₀-Alkenyl umfasst den größten hierin definierten Bereich für einen Alkenylrest. Im Einzelnen umfasst diese Definition die Bedeutungen Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, iso-Propenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 1-Ethylethenyl, sowie jeweils alle isomeren Pentenyle, Hexenyle, Heptenyle, Octenyle, Nonenyle, Decenyle, Undecenyle, Dodecenyle, Tridecenyle, Tetradecenyle,
20 Pentadecenyle, Hexadecenyle, Heptadecenyle, Octadecenyle, Nonadecenyle und Eicosenyle. Hierunter bevorzugt sind die Bedeutungen Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 1-Pentenyl, 4-Pentenyl, 1-Methyl-1-butenyl, 1,2-Dimethyl-1-propenyl, 1-Hexenyl, 5-Hexenyl, 1-Methyl-1-pentenyl, 1,3-Dimethyl-1-butene, 1-Methyl-1-hexenyl, 1,3,3-Trimethyl-1-butene.
- 25 Die Definition C₂-C₂₀-Alkinyl umfasst den größten hierin definierten Bereich für einen Alkinylrest. Im Einzelnen umfasst diese Definition die Bedeutungen Ethinyl, 1-Propinyl, 2-Propinyl, 1-Butinyl, 2-Butinyl, 3-Butinyl, 1-Methyl-2-propinyl, sowie jeweils alle isomeren Pentinyle, Hexinyle, Heptinyle, Octinyle, Noninyle, Decinyle, Undecinyle, Dodecinyle, Tridecinyle, Tetradecinyle,
30 Pentadecinyle, Hexadecinyle, Heptadecinyle, Octadecinyle, Nonadecinyle und Eicosinyle. Hierunter bevorzugt sind die Bedeutungen Ethinyl, 1-Propinyl, 1-Butinyl, 3-Butinyl, 1-Methyl-2-propinyl, 1-Pentinyl, 4-Pentinyl, 1-Hexinyl, 5-Hexinyl, 3,3-Dimethyl-1-butinyl, 4,4-Dimethyl-1-pentinyl, 4,4-Dimethyl-2-pentinyl, 1,4-Dimethyl-2-pentinyl.
- 35 Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

Durch Halogen substituierte Reste, wie z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach halogeniert. Bei mehrfacher Halogenierung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

- 5 Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restedefinitionen bzw. Erläuterungen können zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend.

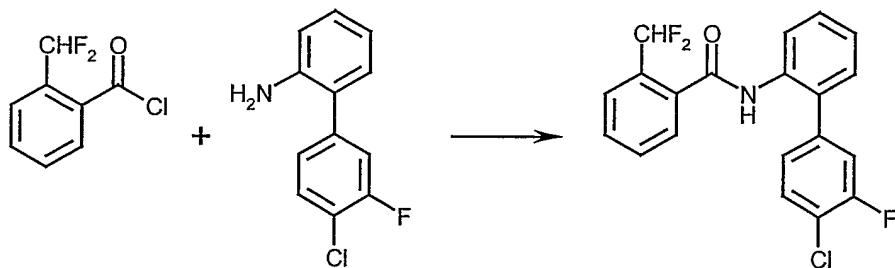
Erläuterungen der Verfahren und Zwischenprodukte:

10

Verfahren (a)

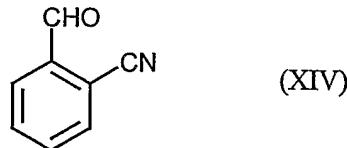
Verwendet man 2-(Difluormethyl)benzoylchlorid und 4'-Chlor-3'-fluor-1,1'-biphenyl-2-amin als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

15



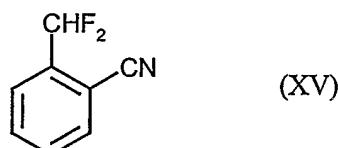
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzoyl-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) steht X¹ bevorzugt für Chlor oder Hydroxy.

- 20 Die Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II) sind neu. Sie werden erhalten, indem man
j) 2-Formyl-benzonitril der Formel (XIV)



in einem ersten Schritt mit (Diethylamino)schwefeltrifluorid in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (z.B. Methylenchlorid) fluoriert,

- 25 und das so erhaltene 2-Difluormethyl-benzonitril der Formel (XV)



in einem zweiten Schritt mit einer Base (z.B. NaOH oder KOH) umsetzt [Verbindungen der Formel (II), in denen X¹ für Hydroxy steht] und diese Säure in einem dritten Schritt gegebenenfalls mit einem Chlorierungsmittel (z.B. Thionylchlorid, Oxalylchlorid) in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (z.B. Toluol, Methylenechlorid) zum entsprechenden Säurechlorid umsetzt [Verbindungen der Formel (II), in denen X¹ für Chlor steht].

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Anilin-Derivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) haben R¹, 10 R², R³, R⁴, R⁵ und Z bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

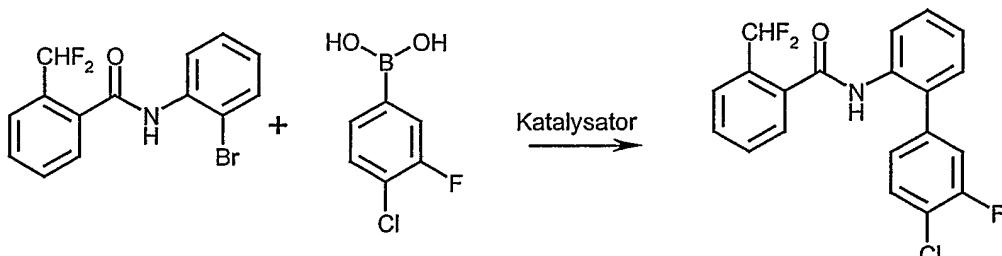
15 Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind größtenteils bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. z.B. Bull. Korean Chem. Soc. 2000, 21, 165-166; Chem. Pharm. Bull. 1992, 40, 240-244; Heterocycles 1989, 29, 1013-1016; J. Med. Chem. 1996, 39, 892-903; Synthesis 1995, 713-16; Synth. Commun. 1994, 24, 267-272; Synthesis 1994, 142-144; DE-A 27 27 416; DE-A 102 190 35; JP-A 9-132567; EP-A 0 824 099; WO 93/11117; EP-A 0 545 099; EP-20 A 0 589 301; EP-A 0 589 313 und WO 02/38542).

Es ist auch möglich zunächst Anilin-Derivate der Formel (III), in welcher R⁵ für Wasserstoff steht, herzustellen und die so erhaltenen Verbindungen anschließend nach üblichen Methoden zu derivatisieren (z.B. analog zum erfindungsgemäßen Verfahren (i)).

25

Verfahren (b)

Verwendet man N-(2-Bromphenyl)-2-(difluormethyl)benzamid und 4-Chlor-3-fluorphenylboronsäure als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



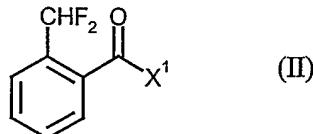
30

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe benötigten

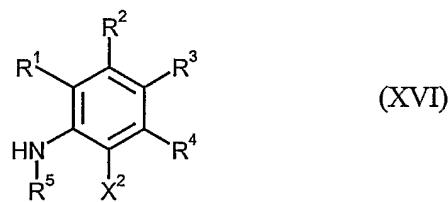
Halogen-difluormethylbenzanilide sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden. X² steht für Brom oder Iod.

Die Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV) sind noch nicht bekannt. Sie sind als neue chemische Verbindungen ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung. Sie werden erhalten, indem man

10 k) Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



in welcher X¹ für Halogen oder Hydroxy steht,
mit Halogenanilinen der Formel (XVI),

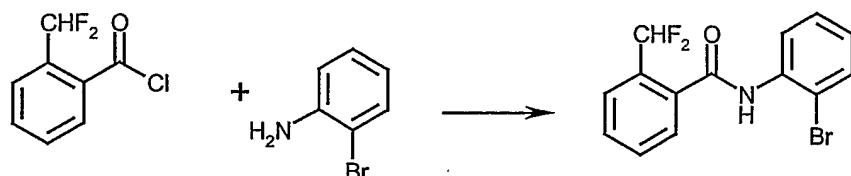


15 in welcher R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und X² die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umsetzt.

20

Verfahren (k)

Verwendet man 2-(Difluormethyl)benzoylchlorid und 2-Bromanilin als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



25

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (k) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem

erfindungsgemäßen Verfahren (a) beschrieben worden.

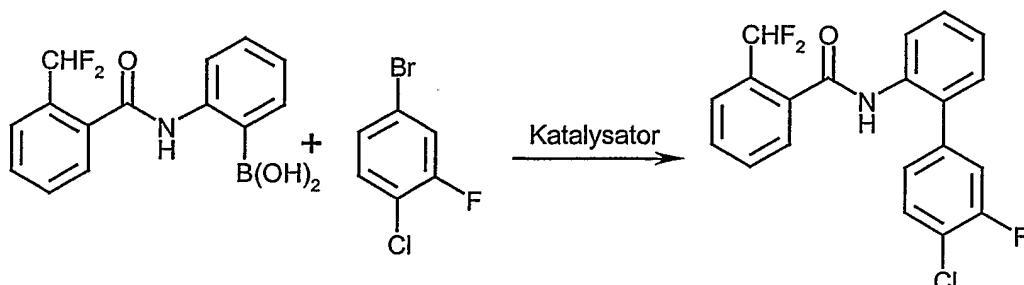
- Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (k) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Halogenaniline sind durch die Formel (XVI) allgemein definiert. In dieser Formel (XVI) haben
- 5 R^1, R^2, R^3, R^4, R^5 und X^2 bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I), bzw. die Vorprodukte der Formel (III) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.
- 10 Die Halogenaniline der Formel (XVI) sind bekannte Synthesekalien oder können nach bekannten Verfahren erhalten werden. Im Fall, dass R^5 nicht für Wasserstoff steht, kann der Rest R^5 auf der Stufe der Verbindungen der Formel (XVI) durch übliche Derivatisierungsmethoden eingeführt werden. Es ist auch möglich, zunächst Verbindungen der Formel (IV), in denen R^5 für Wasserstoff steht, herzustellen und die erhaltenen Produkte anschließend durch übliche Methoden zu
- 15 derivatisieren (vgl. das erfindungsgemäße Verfahren (i)).

- Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) hat Z^1 bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits
- 20 im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für Z^1 angegeben wurden. A^1 und A^2 stehen jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

- Die Boronsäure-Derivate der Formel (V) sind bekannt und/oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. z.B. WO 01/90084 und US 5,633,218).

Verfahren (c)

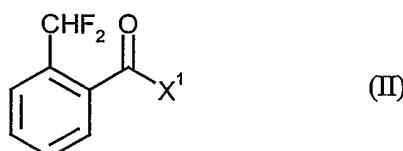
- Verwendet man 2-{{[2-(Difluormethyl)benzoyl]amino}phenylboronsäure und 1-Brom-4-chlor-3-fluorbenzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen
- 30 Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



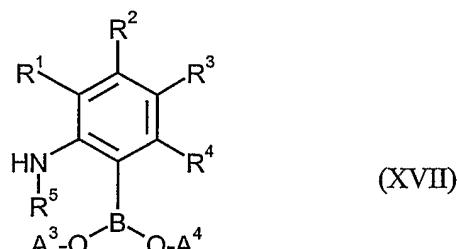
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzamid-Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden. A³ und A⁴ stehen jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Difluormethylbenzamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI) sind noch nicht bekannt. Sie sind 10 neue chemische Verbindungen und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung. Sie werden erhalten, indem man

- 1) Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



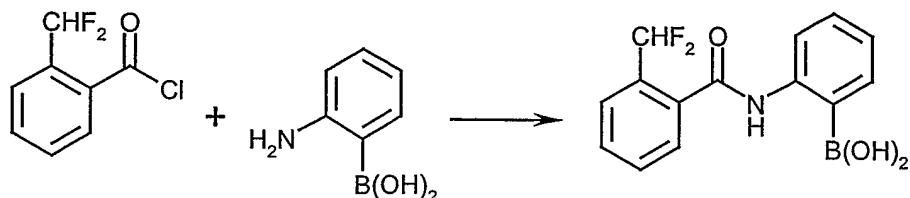
15 in welcher X¹ für Halogen oder Hydroxy steht,
mit Anilinboronsäurederivaten der Formel (XVII)



in welcher
R¹, R², R³, R⁴, R⁵, A³ und A⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in 20 Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umgesetzt.

Verfahren (I)

Verwendet man 2-(Difluormethyl)benzoylchlorid und 2-Aminophenylboronsäure als Ausgangsstoffe, 25 so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (I) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (I) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) beschrieben worden.

5

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (I) als Ausgangsstoffe benötigten Anilinboronsäurederivate sind durch die Formel (XVII) allgemein definiert. In dieser Formel (XVII) haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß 10 Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden. A³ und A⁴ stehen jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Anilinboronsäurederivate der Formel (XVII) sind bekannte Synthesechemikalien oder können 15 nach bekannten Verfahren erhalten werden. Im Fall, dass R⁵ nicht für Wasserstoff steht, kann der Rest R⁵ auf der Stufe der Verbindungen der Formel (XVII) durch übliche Derivatisierungsmethoden eingeführt werden. Es ist auch möglich, zunächst Verbindungen der Formel (VI), in denen R⁵ für Wasserstoff steht, herzustellen und die erhaltenen Produkte anschließend durch übliche Methoden zu derivatisieren (vgl. das erfindungsgemäße Verfahren (i)).

20

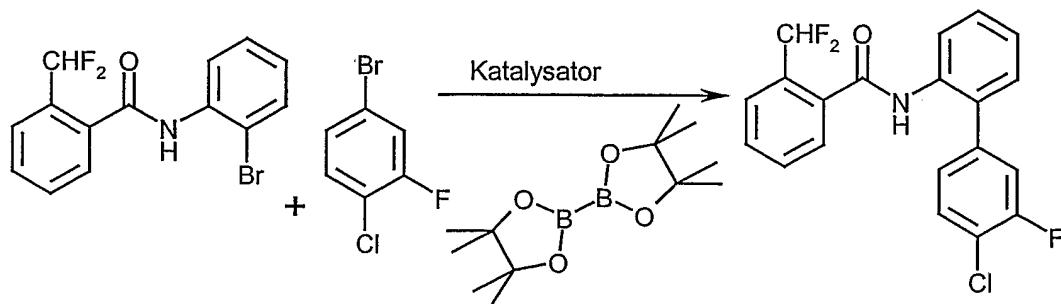
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Phenyl-Derivate sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel (VII) hat Z¹ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäß 25 Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für Z¹ angegeben wurden. X³ steht für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat.

Die Phenyl-Derivate der Formel (VII) sind bekannte Synthesechemikalien.

30 Verfahren (d)

Verwendet man N-(2-Bromphenyl)-2-(difluormethyl)benzamid und 1-Brom-4-chlor-3-fluorbenzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator und 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxa-

borolan, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

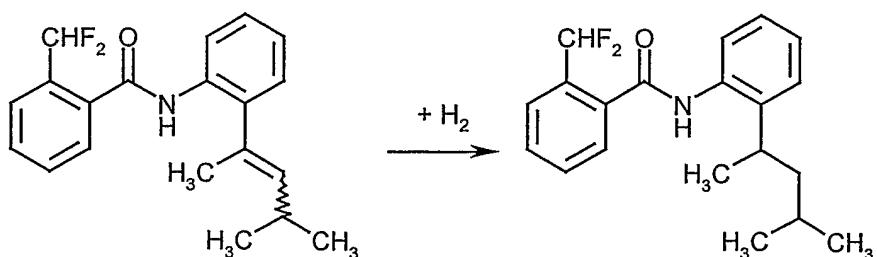


Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) als Ausgangsstoffe benötigten Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV), sowie die Phenyl-Derivate der Formel (VII) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit den erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) beschrieben worden.

Das weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) benötigte 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan ist eine handelsübliche Synthesekalimikalie.

Verfahren (e)

Hydriert man beispielsweise 2-(Difluormethyl)-N-{2-(1,3-dimethyl-1-butenyl)phenyl}benzamid so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

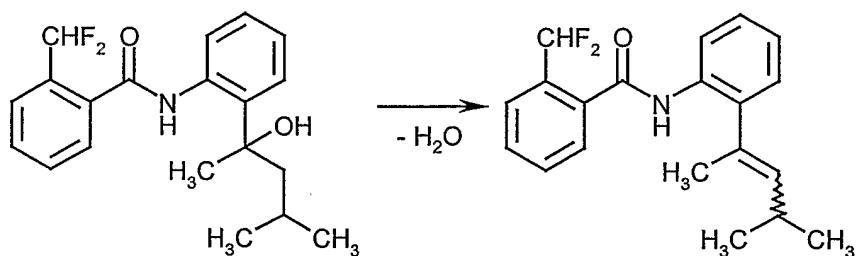


Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzanilide sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In dieser Formel (Ia) haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Verbindungen der Formel (Ia) sind erfindungsgemäße Verbindungen und können nach den Verfahren (a), (f), (g) oder (h) hergestellt werden.

Verfahren (f)

Dehydratisiert man beispielsweise 2-(Difluormethyl)-N-[2-(1-hydroxy-1,3-dimethylbutyl)phenyl]-benzamid, so kann der Verlauf des erfundungsgemäßen Verfahrens (f) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



Die zur Durchführung des erfundungsgemäßen Verfahrens (f) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanilide sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel (VIII) haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der er-

- 10 10 Die zur Durchführung des erfundungsgemäßen Verfahrens (f) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanilide sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel (VIII) haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der er-

15 15 bevorzugt für gegebenenfalls zusätzlich einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Chlor, Fluor, Brom und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₂-Hydroxyalkyl,

- 15 15 bevorzugt für gegebenenfalls zusätzlich einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Chlor, Fluor, Brom und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₂-Hydroxyalkyl, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann.

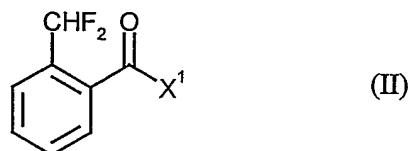
20 20 X⁵ steht besonders bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und/oder Cyclohexyl substituiertes, jeweils geradkettiges oder verzweigtes, jeweils an beliebiger Stelle verknüpftes Hydroxyethyl, Hydroxypropyl, Hydroxybutyl, Hydroxypentyl, Hydroxyhexyl, Hydroxyheptyl, Hydroxyoctyl, Hydroxynonyl oder Hydroxydecyl.

Die Verbindungen der Formel (VIII) sind noch nicht bekannt und als neue Verbindungen ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

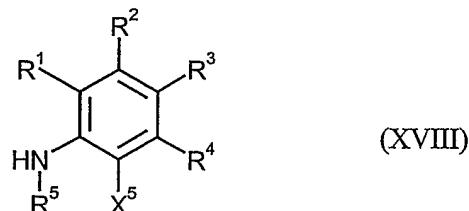
25

Es wurde auch gefunden, dass die Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanilide der Formel (VIII) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz eingesetzt werden können.

- 30 30 Die Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanilide der Formel (VIII) werden erhalten, indem man
m) Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



in welcher X¹ für Halogen oder Hydroxy steht,
mit Hydroxyalkylanilinderivaten der Formel (XVIII)

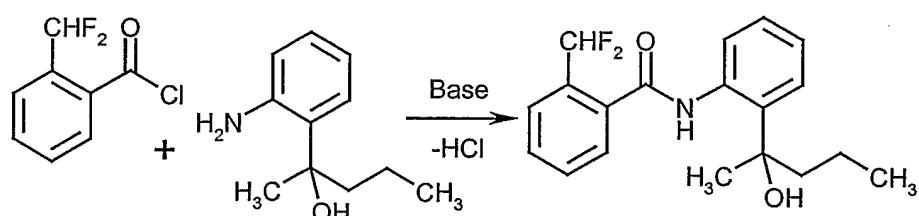


- 5 in welcher
R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und X⁵ die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Konden-
sationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umsetzt.

10

Verfahren (m)

Verwendet man beispielsweise 2-(Difluormethyl)benzoylchlorid und 2-(2-Aminophenyl)-2-pentanol als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (m) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden:



15

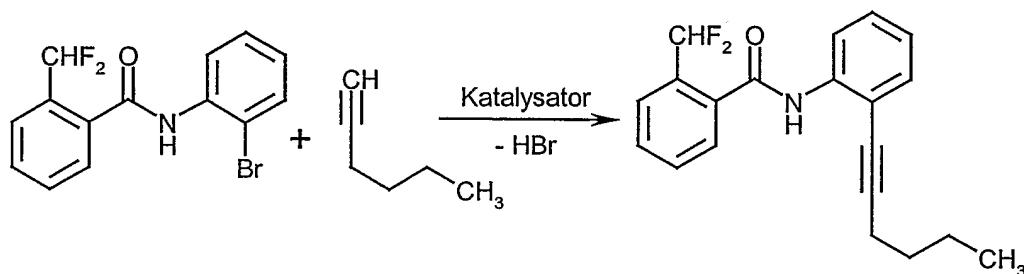
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (m) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) beschrieben worden.

- 20 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (I) als Ausgangsstoffe weiterhin benötig-
ten Hydroxyalkylanilinderivate sind durch die Formel (XVIII) allgemein definiert. In dieser Formel
(XVIII) haben R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und X⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders
bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der er-
findungsgemäßen Verbindungen der Formeln (I) bzw. (VIII) als bevorzugt, besonders bevorzugt
25 bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Hydroxyalkylanilinderivate der Formel (XVIII) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden erhalten werden (vgl. z.B. US 3,917,592 oder EP-A 0 824 099). Im Fall, dass R⁵ nicht für Wasserstoff steht, kann der Rest R⁵ auf der Stufe der Verbindungen der Formel (XVIII) durch übliche Derivatisierungsmethoden eingeführt werden. Es ist auch möglich, zunächst Verbindungen 5 der Formel (VIII), in denen R⁵ für Wasserstoff steht, herzustellen und die erhaltenen Produkte anschließend durch übliche Methoden zu derivatisieren [vgl. das erfindungsgemäße Verfahren (i)].

Verfahren (g)

Verwendet man beispielsweise N-(2-Bromphenyl)-2-(difluormethyl)benzamid und 1-Hexin als 10 Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) als Ausgangsstoffe benötigten Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit 15 dem erfindungsgemäßen Verfahrens (c) beschrieben worden.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Alkine sind durch die Formel (IX) allgemein definiert.

- 20 A⁵ steht bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₀-Alkyl, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann.
- A⁵ steht besonders bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und/oder Cyclohexyl substituiertes, jeweils geradkettiges oder verzweigtes, jeweils an beliebiger Stelle verknüpftes Ethyl, Propyl, Butyl, Pentyl, Hexyl, Heptyl oder Octyl.

Die Alkine der Formel (VI) sind bekannte Synthesekomplexe.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) weiterhin alternativ als Ausgangsstoffe benötigten Alkene sind durch die Formel (X) allgemein definiert.

A⁶, A⁷ und A⁸ stehen unabhängig voneinander bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder gegebenenfalls einfache bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes Alkyl, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann und die Gesamtzahl der Kohlenstoffatome des offenkettigen Molekülteils die Zahl 12 nicht übersteigt.

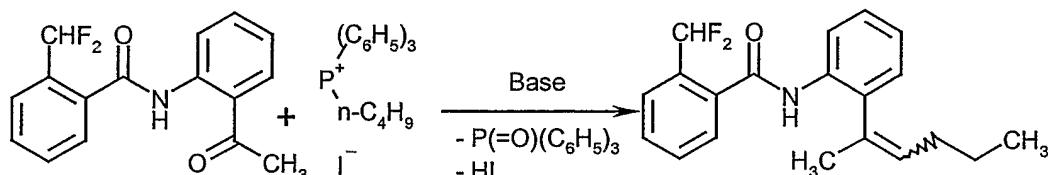
A⁶, A⁷ und A⁸ stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder gegebenenfalls einfache bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und/oder Cyclohexyl substituiertes, jeweils geradkettiges oder verzweigtes, jeweils an beliebiger Stelle verknüpftes Ethyl, Propyl, Butyl, Pentyl, Hexyl, Heptyl oder Octyl, wobei die Gesamtzahl der Kohlenstoffatome des offenkettigen Molekülteils die Zahl 12 nicht übersteigt.

15

Die Alkene der Formel (VII) sind bekannte Synthesechemikalien.

Verfahren (h)

Verwendet man N-(2-Acetylphenyl)-2-(difluormethyl)benzamid und Butyl(triphenyl)-phosphonium-iodid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) als Ausgangsstoffe benötigten Ketone sind durch die Formel (XI) allgemein definiert. In dieser Formel haben R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

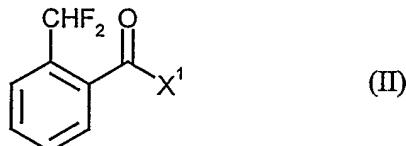
A⁹ steht bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₀-Alkyl, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann.

A⁹ steht besonders bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und/oder Cyclohexyl

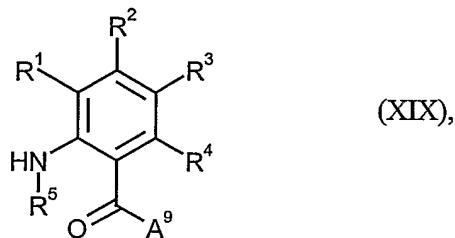
substituiertes, jeweils geradkettiges oder verzweigtes, jeweils an beliebiger Stelle verknüpftes Ethyl, Propyl, Butyl, Pentyl, Hexyl, Heptyl oder Octyl.

Die Ketone der Formel (VIII) sind noch nicht bekannt. Sie sind als neue chemische Verbindungen
5 ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung. Sie werden erhalten, indem man

n) Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



in welcher X¹ für Halogen oder Hydroxy steht,
mit Ketoanilinen der Formel (XIX)



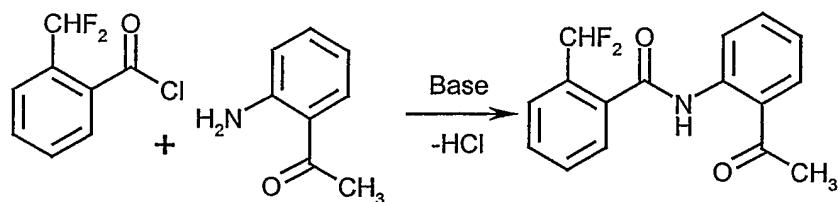
10

in welcher R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und A⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Konden-
sationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in
Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umsetzt.

15 **Verfahren (n)**

Verwendet man 2-(Difluormethyl)benzoylchlorid und 1-(2-Aminophenyl)ethanon als Ausgangs-
stoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (n) durch das folgende Formelschema
veranschaulicht werden:

20



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (n) als Ausgangsstoffe benötigten
Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II) sind bereits weiter oben im Zusammenhang mit dem
erfindungsgemäßen Verfahrens (a) beschrieben worden.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (n) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Ketoaniline sind durch die Formel (XIX) allgemein definiert. In dieser Formel (XIX) haben R¹, R², R³, R⁴, R⁵ und A⁹ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen 5 der Formeln (I) bzw. (XI) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

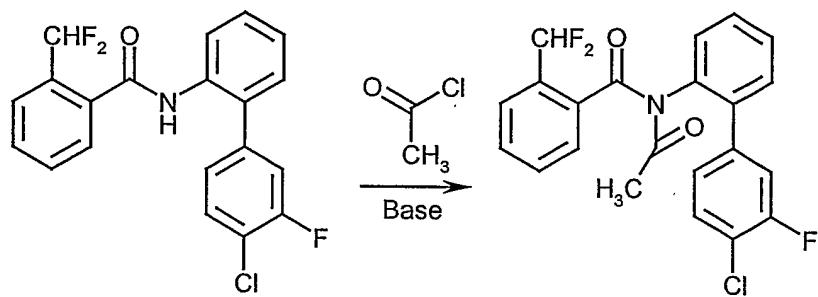
- Die Ketoaniline der Formel (XIX) sind bekannt (vgl. J. Am. Chem. Soc. 1978, 100, 4842-4857 oder US 4,032,573) und/oder können nach bekannten Methoden erhalten werden. Im Fall, dass R⁵ nicht 10 für Wasserstoff steht, kann der Rest R⁵ auf der Stufe der Verbindungen der Formel (XXII) durch übliche Derivatisierungsmethoden eingeführt werden. Es ist auch möglich, zunächst Verbindungen der Formel (VIII), in denen R⁵ für Wasserstoff steht, herzustellen und die erhaltenen Produkte anschließend durch übliche Methoden zu derivatisieren (vgl. das erfindungsgemäße Verfahren (i)).
- 15 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Phosphorverbindungen sind durch die Formel (XII) allgemein definiert.

- A¹⁰ steht bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Chlor, Fluor, Brom und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₀-Alkyl, wobei der Cycloalkylteil 20 seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann.
- A¹⁰ steht besonders bevorzugt für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Cyclopropyl, Difluorcyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und/oder Cyclohexyl substituiertes, jeweils geradkettiges oder verzweigtes, jeweils an beliebiger Stelle verknüpftes Ethyl, Propyl, Butyl, Pentyl, Hexyl, Heptyl oder Octyl.
- Px steht bevorzugt für eine Gruppierung -P⁺(C₆H₅)₃ Cl⁻, -P⁺(C₆H₅)₃ Br⁻, -P⁺(C₆H₅)₃ I⁻, 25 -P(=O)(OCH₃)₃ oder -P(=O)(OC₂H₅)₃.

- Die Phosphorverbindungen der Formel (XII) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. Justus Liebigs Ann. Chem. 1953, 580, 44-57 oder Pure Appl. 30 Chem. 1964, 9, 307-335).

Verfahren (i)

- Verwendet man N-(4'-Chlor-3'-fluor-1,1'-biphenyl-2-yl)-2-(difluormethyl)benzamid und Acetylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) durch das 35 folgende Formelschema veranschaulicht werden:



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) als Ausgangsstoffe benötigten Difluormethylbenzylanide sind durch die Formel (Ib) allgemein definiert. In dieser Formel (Ib) haben R¹, R², R³, R⁴ und Z bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

5

Die Verbindungen der Formel (Ib) sind erfindungsgemäße Verbindungen und können nach den 10 Verfahren (a) bis (h) hergestellt werden.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Halogenide sind durch die Formel (XIII) allgemein definiert. In dieser Formel (XIII) steht R⁵⁻¹ bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diejenigen Bedeutungen, die 15 bereits oben in Zusammenhang mit der Beschreibung der Verbindungen der Formel (Ig) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden. X⁶ steht für Chlor, Brom oder Iod.

Halogenide der Formel (XIII) sind bekannt.

20

Reaktionsbedingungen

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (k), (l), (m) und (n) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylool oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Ketone, wie Aceton, Butanon, Methyl-isobutylketon oder Cyclohexanon; 25 Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Di-

30

methylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

- Die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (k), (l), (m) und (n) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).
- Die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (k), (l), (m) und (n) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Kondensationsmittels durchgeführt. Als solche kommen alle üblicherweise für derartige Amidierungsreaktionen verwendbaren Kondensationsmittel infrage. Beispielhaft genannt seien Säurehalogenidbildner wie Phosgen, Phosphortribromid, Phosphortrichlorid, Phosphorpentachlorid, Phosphoroxychlorid oder Thionylchlorid; Anhydridbildner wie Chlorameisensäureethylester, Chlorameisensäuremethylester, Chlorameisensäureisopropylester, Chlorameisensäureisobutylester oder Methansulfonylchlorid; Carbodiimide, wie N,N'-Dicyclohexylcarbodiimid (DCC) oder andere übliche Kondensationsmittel, wie Phosphorpentoxid, Polyphosphorsäure, N,N'-Carbonyldiimidazol, 2-Ethoxy-N-ethoxycarbonyl-1,2-dihydrochinolin (EEDQ), Triphenylphosphin/Tetrachlorkohlenstoff oder Brom-tripyrrolidinophosphonium-hexafluorophosphat.
- Die erfindungsgemäßen Verfahren (a), (k), (l), (m) und (n) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators durchgeführt. Beispielsweise genannt seien 4-Dimethylaminopyridin, 1-Hydroxybenzotriazol oder Dimethylformamid.
- Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (k), (l), (m) und (n) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 0°C bis 80°C.
- Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Difluormethylbenzoyl-Derivats der Formel (II) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Anilin-Derivat der Formel (III) ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (j) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (IV) setzt man pro Mol des Difluormethylbenzoyl-Derivats der Formel (II) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Halogenaniline der Formel (XIII) ein.

- 5 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (k) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (VI) setzt man pro Mol des Difluormethylbenzoyl-Derivats der Formel (II) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Anilinboronsäurederivat der Formel (XIV) ein.

- 10 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (l) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (VIII) setzt man pro Mol des Difluormethylbenzoyl-Derivats der Formel (II) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Hydroxyalkylanilinderivat der Formel (XV) ein.

- 15 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (m) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (IX) setzt man pro Mol des Difluormethylbenzoyl-Derivats der Formel (II) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Ketoanilin der Formel (XVI) ein.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b), (c) und (d) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan,

- 20 Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäure-ethylester; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Sulfone, wie Sulfolan; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sec- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

- 30 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b), (c) und (d) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 180°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 150°C.

- 35 Die der erfindungsgemäßen Verfahren (b), (c) und (d) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride,

- hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, fluoride, phosphate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumacetat, Natrium-phosphat, Kaliumphosphat, Kaliumfluorid, Cäsiumfluorid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat,
- 5 Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Cäsiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).
- 10 Die der erfindungsgemäßen Verfahren (b), (c) und (d) werden in Gegenwart eines Katalysators, wie beispielsweise eines Palladiumsalzes oder -komplexes, durchgeführt. Hierzu kommen vorzugsweise Palladiumchlorid, Palladiumacetat, Tetrakis-(triphenylphosphin)-Palladium, Bis-(triphenylphosphin)-Palladiumdichlorid oder (1,1'-Bis(diphenylphosphino)ferrocen)palladium(II)chlorid infrage.
- 15 Es kann auch ein Palladiumkomplex in der Reaktionsmischung erzeugt werden, wenn man ein Palladiumsalz und ein Komplexligand, wie z.B. Triethylphosphan, Tri-tert-butylphosphan, Tricyclohexylphosphan, 2-(Dicyclohexylphosphan)-biphenyl, 2-(Di-tert-butylphosphan)-biphenyl, 2-(Dicyclohexylphosphan)-2'-(N,N-dimethylamino)-biphenyl, Triphenylphosphan, Tris-(o-Tolyl)-phosphan, Natrium 3-(Diphenylphosphino)benzolsulfonat, Tris-2-(Methoxyphenyl)-phosphan, 2,2'-Bis(diphenylphosphan)-1,1'-binaphthyl, 1,4-Bis-(diphenylphosphan)-butan, 1,2-Bis-(diphenylphosphan)-ethan, 1,4-Bis-(dicyclohexylphosphan)-butan, 1,2-Bis-(dicyclohexylphosphan)-ethan, 2-(Dicyclohexylphosphan)-2'-(N,N-dimethylamino)-biphenyl, Bis(diphenylphosphino)ferrocen oder Tris-(2,4-tert-butylphenyl)-phosphit getrennt zur Reaktion zugibt.
- 20 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Halogen-difluormethylbenzanilids der Formel (IV) im allgemeinen 1 bis 15 Mol, vorzugsweise 2 bis 8 Mol an Boronsäurederivat der Formel (V) ein.
- 25 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Difluormethylbenzamid-Boronsäure-Derivats der Formel (VI) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Phenyl-Derivat der Formel (VII) ein.
- 30 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Halogen-difluormethylbenzanilids der Formel (IV) im allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Phenyl-Derivat der Formel (VII) und 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan ein.

- Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische oder alicyclische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan oder Decalin; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan oder 1,2-Diethoxyethan; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sec- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.
- 10 Das erfindungsgemäße (e) Verfahren wird in Gegenwart eines Katalysators durchgeführt. Als solche kommen alle Katalysatoren infrage, die für Hydrierungen üblicherweise verwendet werden. Beispieldhaft seien genannt: Raney-Nickel, Palladium oder Platin, gegebenenfalls auf einem Trägermaterial, wie beispielsweise Aktivkohle.
- 15 Die Hydrierung im erfindungsgemäßen Verfahren (e) kann statt in Gegenwart von Wasserstoff in Kombination mit einem Katalysator auch in Anwesenheit von Triethylsilan durchgeführt werden.
- Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis
20 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 100°C.
- Das erfindungsgemäße Verfahren (e) wird unter einem Wasserstoffdruck zwischen 0.5 und 200 bar, bevorzugt zwischen 2 und 50 bar, besonders bevorzugt zwischen 3 und 10 bar durchgeführt.
- 25 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlor-
30 ethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Ketone, wie Aceton, Butanon, Methyl-isobutylketon oder Cyclohexanon; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäure-
35 triamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Sulfone, wie Sulfolan; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sec-

oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Das erfindungsgemäße Verfahren (f) wird gegebenenfalls in Gegenwart einer Säure durchgeführt.

- 5 Als solche kommen alle anorganischen und organischen Protonen- wie auch Lewissäuren, sowie auch alle polymeren Säuren infrage. Hierzu gehören beispielsweise Chlorwasserstoff, Schwefelsäure, Phosphorsäure, Ameisensäure, Essigsäure, Trifluoressigsäure, Methansulfonsäure, Trifluormethansulfonsäure, Toluolsulfonsäure, Bortrifluorid (auch als Etherat), Bortribromid, Aluminiumtrichlorid, Titanetrachlorid, Tetrabutylorthotitanat, Zinkchlorid, Eisen-III-chlorid, Antimonpentachlorid, saure
10 Ionenaustauscher, saure Tonerden und saures Kieselgel.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 0°C bis 100°C.

- 15 Die erfindungsgemäßen Verfahren (f) und (e) können auch in einer Tandemreaktion („Eintopf-Reaktion“) durchgeführt werden. Dazu wird eine Verbindung der Formel (VIII) gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (geeignete Lösungsmittel wie für Verfahren (f)), gegebenenfalls in Gegenwart einer Säure (geeignete Säuren wie für Verfahren (f)) und in Anwesenheit
20 von Triethylsilan umgesetzt.

- Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril oder Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-
25 Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäure-triamid.

- Das erfindungsgemäße Verfahren (g) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säure-akzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen
30 infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natrium-carbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammonium-carbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylamin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylami-

nopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Das erfindungsgemäße Verfahren (g) wird in Gegenwart eines oder mehrerer Katalysatoren
5 durchgeführt.

Dazu eignen sich besonders Palladiumsalze oder -komplexe. Hierzu kommen vorzugsweise Palladiumchlorid, Palladiumacetat, Tetrakis-(triphenylphosphin)-Palladium oder Bis-(triphenylphosphin)-Palladiumdichlorid infrage. Es kann auch ein Palladiumkomplex in der Reaktionsmischung erzeugt
10 werden, wenn man ein Palladiumsalz und ein Komplexligand getrennt zur Reaktion zugibt.

Als Liganden kommen vorzugsweise Organophosphorverbindungen infrage. Beispielhaft seien genannt: Triphenylphosphin, tri-o-Tolylphosphin, 2,2'-Bis(diphenylphosphino)-1,1'-binaphthyl, Di-cyclohexylphosphinebiphenyl, 1,4-Bis(diphenylphosphino)butan, Bisdiphenylphosphinoferrocen,
15 Di(tert.-butylphosphino)biphenyl, Di(cyclohexylphosphino)biphenyl, 2-Dicyclohexylphosphino-2'-N,N-dimethylaminobiphenyl, Tricyclohexylphosphin, Ttri-tert.-butylphosphine. Es kann aber auch auf Liganden verzichtet werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren (g) wird ferner gegebenenfalls in Gegenwart eines weiteren
20 Metallsalzes, wie Kupfersalzen, beispielsweise Kupfer-(I)-iodid durchgeführt.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 20°C bis 180°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 50°C bis 150°C.

25

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro mol des Halogen-difluormethylbenzanilids der Formel (IV) im allgemeinen 1 bis 5 mol, vorzugsweise 1 bis 2 mol an Alkin der Formel (IX) oder Alken der Formel (X) ein.

30

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder
35 Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amyl-ether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie

Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; Sulfone, wie Sulfolan; Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sec- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether.

- Das erfindungsgemäße Verfahren (h) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen starken Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate oder Alkalimetall-Kohlenwasserstoffverbindungen, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Methylolithium, Phenyllithium oder Butyllithium.
- 15 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von -80°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von -30°C bis 80°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro mol des Ketons der Formel (XI) im allgemeinen 1 bis 5 mol, vorzugsweise 1 bis 2 mol an Phosphorverbindung der Formel (XII) ein.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßens Verfahrens (i) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-tert-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2- Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol oder Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Das erfindungsgemäße Verfahren (i) wird in Gegenwart einer Base durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-

ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Caesiumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 5 N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 10 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) setzt man pro Mol des Iodpyrazolylcarboxanilids der Formel (Ib) im allgemeinen 0,2 bis 5 Mol, vorzugsweise 0,5 bis 2 Mol an Halogenid der Formel (XIII) ein.

15 Alle erfindungsgemäßen Verfahren werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder verminderter Druck – im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar – zu arbeiten.

20 Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

Fungizide lassen sich Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, 25 Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

30 Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise Xanthomonas campestris pv. oryzae;

Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise Pseudomonas syringae pv. lachrymans;

Erwinia-Arten, wie beispielsweise Erwinia amylovora;

35 Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum;

Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;

- Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder
Pseudoperonospora cubensis;
- Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;
- Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;
- 5 Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;
- Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;
- Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;
- Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;
- Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;
- 10 Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*
(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);
- Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*
(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);
- Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;
- 15 Puccinia-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;
- Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise *Sclerotinia sclerotiorum*;
- Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;
- Ustilago-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;
- Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;
- 20 Pyricularia-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;
- Fusarium-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;
- Botrytis-Arten, wie beispielsweise *Botrytis cinerea*;
- Septoria-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;
- Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;
- 25 Cercospora-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;
- Alternaria-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;
- Pseudocercosporella-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercosporella herpotrichoides*.

Die erfundungsgemäßen Wirkstoffe weisen auch eine starke stärkende Wirkung in Pflanzen auf. Sie
30 eignen sich daher zur Mobilisierung pflanzeneigener Abwehrkräfte gegen Befall durch unerwünschte
Mikroorganismen.

Unter pflanzenstärkenden (resistenzinduzierenden) Stoffen sind im vorliegenden Zusammenhang
solche Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, das Abwehrsystem von Pflanzen so zu
35 stimulieren, dass die behandelten Pflanzen bei nachfolgender Inokulation mit unerwünschten
Mikroorganismen weitgehende Resistenz gegen diese Mikroorganismen entfalten.

Unter unerwünschten Mikroorganismen sind im vorliegenden Fall phytopathogene Pilze, Bakterien und Viren zu verstehen. Die erfindungsgemäßen Stoffe können also eingesetzt werden, um Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu schützen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Schutz herbeigeführt wird, erstreckt sich

5 im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz-

10 und Saatgut, und des Bodens.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Getreidekrankheiten, wie beispielsweise gegen Puccinia-Arten und von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau, wie beispielsweise gegen Botrytis-, Venturia- oder Alternaria-Arten,

15 einsetzen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

20 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen und Aufwandmengen auch als Herbizide, zur Beeinflussung des Pflanzenwachstums, sowie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- und Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

25 Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden

30 erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaren oder nicht schützbaren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen

35 gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges
5 Umhüllen.

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

10 Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikro-
15 organismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Er-
findung seien als technische Materialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt,
20 besonders bevorzugt Holz.

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze,
25 holzverfärbende und holzzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie Alternaria tenuis,

30 Aspergillus, wie Aspergillus niger,

Chaetomium, wie Chaetomium globosum,

Coniophora, wie Coniophora puteana,

Lentinus, wie Lentinus tigrinus,

Penicillium, wie Penicillium glaucum,

35 Polyporus, wie Polyporus versicolor,

Aureobasidium, wie Aureobasidium pullulans,

- Sclerophoma, wie Sclerophoma pityophila,
Trichoderma, wie Trichoderma viride,
Escherichia, wie Escherichia coli,
Pseudomonas, wie Pseudomonas aeruginosa,
5 Staphylococcus, wie Staphylococcus aureus.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/ oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren 10 Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, 15 also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im Wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylen oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasser- 20 stoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol- 25 Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen infrage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Bims, Marmor, Sepiolith, 30 Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnusschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylaryl-polyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Disper- 35 giermittel kommen infrage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

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

5

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

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

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden 15 verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen infrage:

20 **Fungizide:**

2-Phenylphenol; 8-Hydroxychinolinsulfat; Acibenzolar-S-methyl; Aldimorph; Amidoftumet; Ampropylfos; Ampropylfos-potassium; Andoprim; Anilazine; Azaconazole; Azoxystrobin; Benalaxyl; Benodanil; Benomyl; Benthiavalicarb-isopropyl; Benzamacril; Benzamacril-isobutyl; Bilanafos; Binapacryl; Biphenyl; Bitertanol; Blasticidin-S; Bromuconazole; Bupirimate; Buthiobate; Butylamin; Calcium polysulfide; Capsimycin; Captafol; Captan; Carbendazim; Carboxin; Carpropamid; Carvone; Chinomethionat; Chlobenthiazole; Chlorfenazole; Chloroneb; Chlorothalonil; Chlozolinate; Clozylacon; Cyazofamid; Cyflufenamid; Cymoxanil; Cyproconazole; Cyprodinil; Cyprofuram; Dagger G; Debacarb; Dichlofluanid; Dichlone; Dichlorophen; Diclocymet; Diclomezine; Dicloran; Diethofencarb; Difenoconazole; Diflumetorim; Dimethirimol; Dimethomorph; Dimoxystrobin; Dini-30 conazole; Diniconazole-M; Dinocap; Diphenylamine; Dipyrithione; Ditalimfos; Dithianon; Dodine; Drazoxolon; Edifenphos; Epoxiconazole; Ethaboxam; Ethirimol; Etridiazole; Famoxadone; Fenamidine; Fenapanil; Fenarimol; Fenbuconazole; Fenfuram; Fenhexamid; Fenitropan; Fenoxanil; Fenpiclonil; Fenpropidin; Fenpropimorph; Ferbam; Fluazinam; Flubenzimine; Fludioxonil; Flumetover; Flumorph; Fluoromide; Fluoxastrobin; Fluquinconazole; Flurprimidol; Flusilazole; Flusulfamide; Flutolanil; Flutriafol; Folpet; Fosetyl-Al; Fosetyl-sodium; Fuberidazole; Furalaxyl; Furametpyr; Furcarbanil; Furmecyclox; Guazatine; Hexachlorobenzene; Hexaconazole; Hymexazol; Imazalil;

Imibenconazole; Iminoctadine triacetate; Iminoctadine tris(albesil; Iodocarb; Ipconazole; Iprobenfos; Iprodione; Iprovalicarb; Irumamycin; Isoprothiolane; Isovaledione; Kasugamycin; Kresoxim-methyl; Mancozeb; Maneb; Meferimzone; Mepanipyrim; Mepronil; Metalaxyl; Metalaxyl-M; Metconazole; Methasulfocarb; Methfuroxam; Metiram; Metominostrobin; Metsulfovax; Mildiomycin; Myclobutanil; Myclozolin; Natamycin; Nicobifen; Nitrothal-isopropyl; Noviflumuron; Nuarimol; Ofurace; Orysastrobin; Oxadixyl; Oxolinic acid; Oxoconazole; Oxycarboxin; Oxyfenthiin; Paclobutrazol; Pefurazoate; Penconazole; Pencycuron; Phosdiphen; Phthalide; Picoxystrobin; Piperalin; Polyoxins; Polyoxorim; Probenazole; Prochloraz; Procymidone; Propamocarb; Propanosine-sodium; Propiconazole; Propineb; Proquinazid; Prothioconazole; Pyraclostrobin; Pyrazophos; Pyrifenoxy; Pyrimethanil; Pyroquilon; Pyrooxyfur; Pyrrolnitrine; Quinconazole; Quinoxifen; Quintozene; Simeconazole; Spiroxamine; Sulfur; Tebuconazole; Tecloftalam; Tecnazene; Tetcyclacis; Tetraconazole; Thiabendazole; Thicyofen; Thifluzamide; Thiophanate-methyl; Thiram; Tioxymid; Tolclofos-methyl; Tolyflu-anid; Triadimefon; Triadimenol; Triazbutil; Triazoxide; Tricyclamide; Tricyclazole; Tridemorph; Trifloxystrobin; Triflumizole; Triforine; Triticonazole; Unionazole; Validamycin A; Vinclozolin; Zineb; Ziram; Zoxamide; (2S)-N-[2-[4-[[3-(4-Chlorphenyl)-2-propinyl]oxy]-3-methoxyphenyl]-ethyl]-3-methyl-2-[(methylsulfonyl)amino]-butanamid; 1-(1-Naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion; 2,3,5,6-Tetrachlor-4-(methylsulfonyl)-pyridin; 2-Amino-4-methyl-N-phenyl-5-thiazolcarboxamid; 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamide; 3,4,5-Trichlor-2,6-pyridindicarbonitril; Actinovate; cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol; Methyl 1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat; Monokaliumcarbonat; N-(6-Methoxy-3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid; N-Butyl-8-(1,1-dimethylethyl)-1-oxaspiro[4.5]decan-3-amin; Natriumtetrathiocarbonat; sowie Kupfersalze und -zubereitungen, wie Bordeaux mixture; Kupferhydroxid; Kupfernaphthenat; Kupferoxychlorid; Kupfersulfat; Cufraneb; Kupferoxid; Mancopper; Oxine-copper.

25

Bakterizide:

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

30

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

Abamectin, ABG-9008, Acephate, Acequinocyl, Acetamiprid, Acetoprole, Acrinathrin, AKD-1022, AKD-3059, AKD-3088, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Allethrin, Allethrin 1R-isomers, Alpha-Cypermethrin (Alphamethrin), Amidoflumet, Aminocarb, Amitraz, Avermectin, AZ-60541, Aza-dirachtin, Azamethiphos, Azinphos-methyl, Azinphos-ethyl, Azocyclotin, Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Bacillus thuringiensis strain EG-2348, Bacillus

thuringiensis strain GC-91, Bacillus thuringiensis strain NCTC-11821, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Beta-Cyfluthrin, Beta-Cypermethrin, Bifenazate, Bifenthrin, Binapacryl, Bioallethrin, Bioallethrin-S-cyclopentyl-isomer, Bioethanomethrin, Biopermethrin, Bioresmethrin, Bistrifluron, BPMC, Brofenprox, Bromo-5 phos-ethyl, Bromopropylate, Bromfenvinfos (-methyl), BTG-504, BTG-505, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butoxycarboxim, Butylpyridaben, Cadusafos, Camphechlor, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, CGA-50439, Chinomethionat, Chlordane, Chlor-dimeform, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorobenzilate, Chloropicrin, Chlorproxyfen, Chlorpyrifos-methyl, Chlorpyrifos (-ethyl), 10 Chlovaporthrin, Chromafenozide, Cis-Cypermethrin, Cis-Resmethrin, Cis-Permethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Clothianidin, Clothiazaben, Codlemone, Coumaphos, Cyanofenphos, Cyanophos, Cyclopren, Cycloprothrin, Cydia pomonella, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyphenothrin (1R-trans-isomer), Cyromazine, DDT, Deltamethrin, Demeton-S-methyl, Demeton-S-methylsulphon, Diafenthiuron, Dialifos, Diazinon, Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicofol, 15 Dicrotophos, Dicyclanil, Dislubenzuron, Dimethoate, Dimethylvinphos, Dinobuton, Dinocap, Dinetefuran, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn, DOWCO-439, Eflusilanate, Emamectin, Emamectin-benzoate, Empenthrin (1R-isomer), Endosulfan, Entomophthora spp., EPN, Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethiprole, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos, Famphur, Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenfluthrin, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocarb, 20 Fenoxacrim, Fenoxy carb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyriithrin, Fenpyroximate, Fensulfothion, Fenthion, Fentrifanil, Fenvalerate, Fipronil, Flonicamid, Fluacrypyrim, Fluazuron, Flubenzimine, Flubrocythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenerim, Flufenoxuron, Flufenprox, Flumethrin, Flupyrazofos, Flutenzin (Flufenzine), Fluvalinate, Fonofos, Formetanate, Formothion, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox (Fluproxyfen), Furathiocarb, Gamma-HCH, Gossyplure, Grandlure, 25 Granuloseviren, Halfenprox, Halofenozide, HCH, HCN-801, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydramethylnone, Hydroprene, IKA-2002, Imidacloprid, Imiprothrin, Indoxacarb, Iodofenphos, Iprobenfos, Isazofos, Isofenphos, Isoprocarb, Isoxathion, Ivermectin, Japonilure, Kadethrin, Kernpolyederviren, Kinoprene, Lambda-Cyhalothrin, Lindane, Lufenuron, Malathion, Mecarbam, Mesulfenfos, Metaldehyd, Metam-sodium, Methacrifos, Methamidophos, Metharhizium anisopliae, 30 Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoprene, Methoxychlor, Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Milbemycin, MKI-245, MON-45700, Monocrotophos, Moxidectin, MTI-800, Naled, NC-104, NC-170, NC-184, NC-194, NC-196, Niclosamide, Nicotine, Nitencyram, Nithiazine, NNI-0001, NNI-0101, NNI-0250, NNI-9768, Novaluron, Noviflumuron, OK-5101, OK-5201, OK-9601, OK-9602, OK-9701, OK-9802, 35 Omethoate, Oxamyl, Oxydemeton-methyl, Paecilomyces fumosoroseus, Parathion-methyl, Parathion (-ethyl), Permethrin (cis-, trans-), Petroleum, PH-6045, Phenothrin (1R-trans isomer), Phenthionate,

- Phorate, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phosphocarb, Phoxim, Piperonyl butoxide, Pirimicarb, Pirimiphos-methyl, Pirimiphos-ethyl, Prallethrin, Profenofos, Promecarb, Propaphos, Propargite, Propetamphos, Propoxur, Prothiofos, Prothoate, Protrifenbute, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridalyl, Pyridaphenthion, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxyfen, 5 Quinalphos, Resmethrin, RH-5849, Ribavirin, RU-12457, RU-15525, S-421, S-1833, Salithion, Sebufos, SI-0009, Silafluofen, Spinosad, Spirodiclofen, Spiromesifen, Sulfluramid, Sulfotep, Sulprofos, SZI-121, Tau-Fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimfos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temivinphos, Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Tetradifon, Tetramethrin, Tetramethrin (1R-isomer), Tetrasul, Theta-Cypermethrin, Thiacloprid, Thiamethoxam, Thiapronil, 10 Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thiometon, Thiosultap-sodium, Thuringiensin, Tolfenpyrad, Tralocythrin, Tralomethrin, Transfluthrin, Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb, Vamidothion, Vaniliprole, Verbutin, Verticillium lecanii, WL-108477, WL-40027, YI-5201, YI-5301, YI-5302, XMC, Xylcarb, ZA-3274, Zeta-Cypermethrin, Zolaprofos, ZXI-8901, die Verbindung 3-Methyl- 15 phenyl-propylcarbamat (Tsumacide Z), die Verbindung 3-(5-Chlor-3-pyridinyl)-8-(2,2,2-trifluoroethyl)-8-azabicyclo[3.2.1]octan-3-carbonitril (CAS-Reg.-Nr. 185982-80-3) und das entsprechende 3-endo-Isomere (CAS-Reg.-Nr. 185984-60-5) (vgl. WO-96/37494, WO-98/25923), sowie Präparate, welche insektizid wirksame Pflanzenextrakte, Nematoden, Pilze oder Viren enthalten.
- 20 Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren, Safener bzw. Semiochemicals ist möglich.

Darüber hinaus weisen die erfundungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimykotisches Wirkungsspektrum, 25 insbesondere gegen Dermatophyten und Sprosspilze, Schimmel und diphärische Pilze (z.B. gegen Candida-Spezies wie *Candida albicans*, *Candida glabrata*) sowie *Epidermophyton floccosum*, *Aspergillus*-Spezies wie *Aspergillus niger* und *Aspergillus fumigatus*, *Trichophyton*-Spezies wie *Trichophyton mentagrophytes*, *Microsporon*-Spezies wie *Microsporon canis* und *audouinii*. Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfassbaren mykotischen Spektrums 30 dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher 35 Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren aus-

zubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach
5 Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1.000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens
10 liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5.000 g/ha.

Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden.
In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle
15 biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetically Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff „Teile“ bzw. „Teile von Pflanzen“ oder „Pflanzenteile“ wurde
20 oben erläutert.

Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit neuen Eigenschaften („Traits“), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder
25 durch rekombinante DNA-Techniken gezüchtet worden sind. Dies können Sorten, Rassen, Bio- und Genotypen sein.

Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch
30 überadditive („synergistische“) Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife,
35 höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu

erwartenden Effekte hinausgehen.

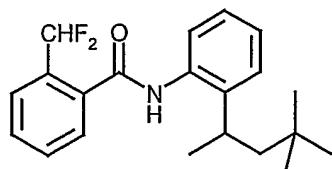
Zu den bevorzugten erfundungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation 5 genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften („Traits“) verleiht. Beispiele für solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders 10 hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide 15 (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften („Traits“) werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten, Spinnentiere, Nematoden und Schnecken durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das 20 genetische Material aus *Bacillus Thuringiensis* (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIB2, Cry9c Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im folgenden "Bt Pflanzen"). Als Eigenschaften („Traits“) werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene 25 und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften („Traits“) werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, z.B. Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. "PAT"-Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften („Traits“) verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für "Bt Pflanzen" 30 seien Maissorten, Baumwollsorarten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucoton® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorarten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate 35 z.B. Mais, Baumwolle, Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben

werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften („Traits“).

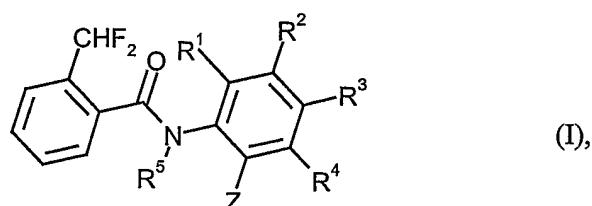
5

Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formel (I) bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoffmischungen behandelt werden. Die bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im 10 vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

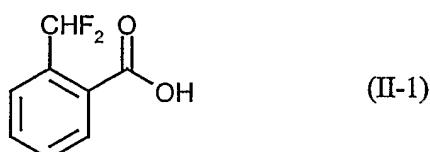
HerstellungsbeispieleBeispiel 1

- 5 150 mg (0,87 mmol) 2-Difluormethyl-benzoësäure, 139 mg (0,73 mmol) 2-(1,3,3-Trimethyl-butyl)-phenylamin, 188 mg (1,45 mmol) N,N-Diisopropylethylamin und 508 mg (1,09 mmol) Brom-triptyrrolidinophosphonium-hexafluorophosphat wurden in 8 ml Acetonitril 18 h bei Raumtemperatur gerührt. Das Gemisch wurde mit 10 ml Essigsäureethylester/Wasser 1:1 versetzt, die organische Phase abgetrennt und mit 10 ml gesättigter Ammoniumchlorid-Lösung und anschließend mit 10 ml Wasser gewaschen. Abtrennen, Einengen und Trocknen der organischen Phase lieferte 810 mg Rohprodukt. Nach säulenchromatographischer Reinigung über Kieselgel 60 mit Petrolether/Essigsäureethylester-Gemisch 10:1 bis Essigsäureethylester wurden 250 mg (97,9 % der Theorie) an 2-Difluormethyl-N-[2-(1,3,3-trimethyl-butyl)-phenyl]-benzamid [$\log P$ (pH 2,3) = 4,38] erhalten.
- 10
- 15 Analog Beispiel 1, sowie entsprechend den Angaben in der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellverfahren (a) bis (i) wurden auch die in der nachstehenden Tabelle 1 genannten Verbindungen der Formel (I) erhalten:

Tabelle 1

20

Nr.	Z	R ⁵	R ⁴	R ³	R ²	R ¹	logP
1	1,3,3-Trimethylbutyl	H	H	H	H	H	4.38
2	4-Chlor-3-fluorphenyl	H	H	H	H	H	3.67
3	3,4-Dichlorphenyl	H	H	H	H	H	3.96
4	4-Chlor-2-methylphenyl	H	H	H	H	H	4.06
5	1,3-Dimethylbutyl	H	H	H	H	H	4.11
6	4-propoxyiminomethylphenyl	H	H	H	H	H	4.27
7	4-isopropoxyiminomethylphenyl	H	H	H	H	H	4.24
8	3-Chlor-4-trifluormethylphenyl	H	H	H	H	H	3.85

Herstellung der Ausgangsstoffe der Formel (II)Beispiel (II-1)5 Schritt 1:

Zu einer Lösung von 45,0 g (343 mmol) 2-Formyl-bazonitril in 500 mL Dichlormethan wurde unter Röhren eine Lösung von 47,6 mL of DAST ([Diethylamino]sulfur trifluorid) in 50 mL Dichlormethan innerhalb von 2 Stunden bei Raumtemperatur getropft. Das Reaktionsgemisch wurde für 16 Stundengerührt.

- 10 Zur Aufarbeitung wurde das Lösungsmittel abgedampft und der Rückstand chromatographiert. Man erhielt 29,3 g (56 % der Theorie) an 2-Difluormethyl-bazonitril als gelbes Öl (Massenspektrometrie: $[M+1] = 154$).

Schritt 2:

- 15 Eine Lösung von 29,0 g (189 mmol) 2-Difluormethyl-bazonitril in 700 mL 4%iger Natronlauge wurde 6 Stunden unter Rückfluss erhitzt. Das Reaktionsgemisch wurde auf Raumtemperatur abgekühlt, auf Eis gegossen und mit konzentrierter Salzsäure angesäuert. Der Niederschlag wurde abgesaugt und getrocknet. Man erhielt 19,3 g (58 % der Theorie) an 2-Difluormethyl-benzoesäure in Form eines weißen Feststoffes (Massenspektrometrie: $[M+1] = 173$).

20

Die Bestimmung der angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- 25 Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich (pH 2,3): 0,1 % wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril.

Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren LogP-Werte bekannt sind (Bestimmung der LogP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

- 30 Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

AnwendungsbeispieleBeispiel A5 **Botrytis - Test (Bohne) / protektiv**

Lösungsmittel : 24,5 Gewichtsteile Aceton

 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator : 1 Gewichtsteil Alkyl-Aryl-Polyglykolether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden auf jedes Blatt 2 kleine mit *Botrytis cinerea* bewachsene Agarstückchen aufgelegt. Die inkulierten Pflanzen werden in einer abgedunkelten Kammer bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit aufgestellt.

20 2 Tage nach der Inkulation wird die Größe der Befallsflecken auf den Blättern ausgewertet. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

In diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen Nr. 3 und 4 der Herstellungsbeispiele (vgl. Tabelle 1)

25 bei einer Aufwandmenge von 500 g/ha einen Wirkungsgrad von 95 % oder besser.

Beispiel B**Puccinia-Test (Weizen) / protektiv**

5 Lösungsmittel: 25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid
Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit
10 Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von *Puccinia recondita* besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei
15 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

20 10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

In diesem Test zeigen z.B. die Verbindung Nr. 5 der Herstellungsbeispiele (vgl. Tabelle 1) bei einer
25 Aufwandmenge von 500 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 %.

Beispiel C**Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv**

- 5 Lösungsmittel: 49 Gewichtsteile N, N - Dimethylformamid
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit
10 Wasser auf die gewünschte Konzentration.

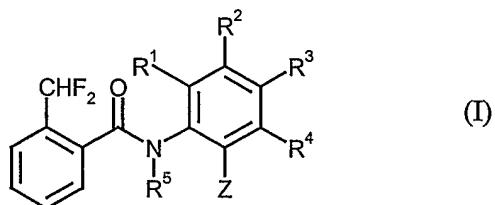
Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Gurkenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Sphaerotheca fuliginea* inkuliert. Anschließend werden
15 die Pflanzen in einem Gewächshaus bei 70 % relativer Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 23°C aufgestellt.

20 7 Tage nach der Inkulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

In diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen Nr. 3 und 5 der Herstellungsbeispiele (vgl. Tabelle 1) bei einer Aufwandmenge von 750 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 %, die Verbindung Nr. 4 von 95 %.

Patentansprüche

1. Difluormethylbenzanilide der Formel (I)



5 in welcher

R¹, R², R³ und R⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, iso-Propyl oder Methylthio stehen,

10 R⁵ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)-carbonyl-C₁-C₃-alkyl; (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰ steht,

15 R⁶ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR¹¹ steht,

20 R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₈-Halogenalkyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

25 R⁷ und R⁸ außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹² enthalten kann,

30 R⁹ und R¹⁰ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₈-

Halogenalkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

R⁹ und R¹⁰ außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder

5 C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹² enthalten kann,

R¹¹ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-

10 C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

R¹² für Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl steht,

Z für Z¹, Z², Z³ oder Z⁴ steht, worin

Z¹ für gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht,

Z² für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl oder Bicycloalkyl steht,

Z³ für unsubstituiertes C₂-C₂₀-Alkyl oder für einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₁-C₂₀-Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

Z⁴ für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₂₀-Alkenyl oder C₂-C₂₀-Alkinyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

oder

R¹, R² und R³ unabhängig voneinander für Wasserstoff oder Fluor stehen und

Z und R⁴ gemeinsam mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gegebenenfalls substituierten 5- oder 6-gliedrigen carbocyclischen oder heterocyclischen Ring bilden.

2. Difluormethylbenzanilide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

R¹, R², R³ und R⁴ unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl stehen,

35 R⁵ für Wasserstoff; C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl-

thio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/ oder Bromatomen, (C₁-C₃-Halogenalkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/ oder Bromatomen; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰ steht,

5 R⁶ für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, -COR¹¹ steht,

10 R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

15 R⁹ und R¹⁰ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

20 R¹¹ für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

25 R¹² für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht,

Z für Z¹, Z², Z³ oder Z⁴ steht, worin

Z¹ für gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei die Substituenten aus der Liste W¹ ausgewählt sind,

30 W¹ für Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxyl, Carbamoyl, Thiocarbamoyl;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Hydroxyalkyl, Oxoalkyl, Alkoxy, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Dialkoxyalkyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen;

35

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

5 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Arylalkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyloxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl, mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten;

10 Cycloalkyl oder Cycloalkyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen;

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl, Trifluormethyl oder Ethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Alkylen mit 3 oder 4 Kohlenstoffatomen, Oxyalkylen mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder Dioxyalkylen mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen;

15 oder eine Gruppierung $-C(Q^1)=N-Q^2$ steht, worin

Q¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder Cycloalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und

20 Q² für Hydroxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Halogen, Cyano, Hydroxy, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Phenyl substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, oder für Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

25 sowie für jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenyllthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Heterocyclyl oder Phenylalkyl, Phenylalkyloxy, Phenylalkylthio, oder

30 Heterocyclalkyl, mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen, steht,

Z² für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch C₁-C₄-Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Bicycloalkyl mit jeweils 3 bis 10 Kohlenstoffatomen steht,

35 Z³ für unsubstituiertes C₂-C₂₀-Alkyl oder für einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes

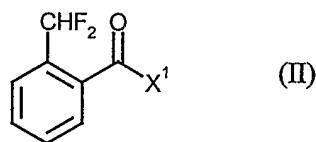
C_1 - C_{20} -Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod, C_1 - C_4 -Alkyl und/oder C_1 - C_4 -Halogenalkyl substituiert sein kann, steht,

Z^4 für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod und/oder C_3 - C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_2 - C_{20} -Alkenyl oder C_2 - C_{20} -Alkinyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Iod, C_1 - C_4 -Alkyl und/oder C_1 - C_4 -Halogenalkyl substituiert sein kann, steht,

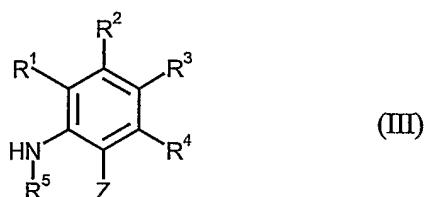
Z und R^4 auch gemeinsam mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituierten 5- oder 6-gliedrigen carbocyclischen oder heterocyclischen Ring stehen.

3. Verfahren zum Herstellen der Difluormethylbenzanolide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

15 a) Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



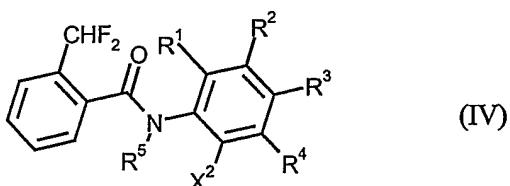
in welcher X^1 für Chlor oder Hydroxy steht,
mit Anilin-Derivaten der Formel (III)



20 in welcher

R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , R^5 und Z die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt, oder

25 b) Halogen-difluormethylbenzanolide der Formel (IV)

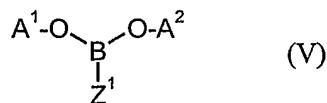


in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

X^2 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)



5

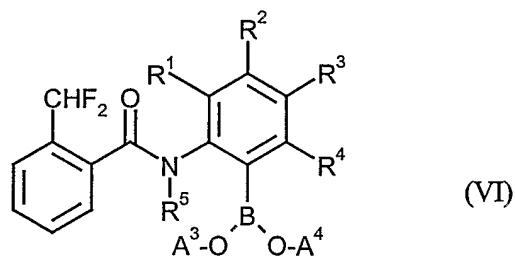
in welcher

Z^1 die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat und

A^1 und A^2 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen, in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt, oder

10

c) Difluormethylbenzamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)



in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

A^3 und A^4 jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

15

mit Phenyl-Derivaten der Formel (VII)



in welcher

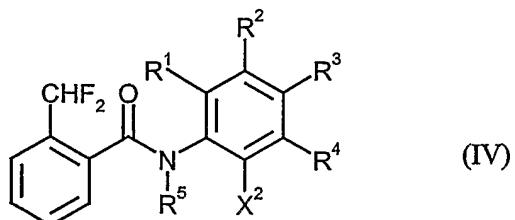
Z^1 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat und

X^3 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,

20

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt, oder

d) Halogen-difluormethylbenzanimide der Formel (IV)



in welcher

25

R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

X^2 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,

mit Phenyl-Derivaten der Formel (VII)

X^3-Z^1 (VII)

in welcher

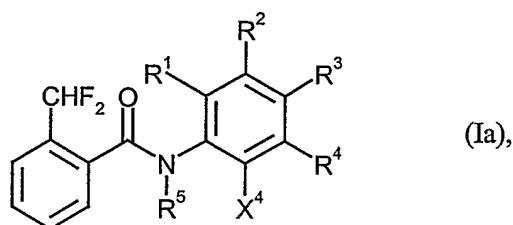
Z^1 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat und

X^3 für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,

in Gegenwart eines Palladium- oder Nickel-Katalysators und in Gegenwart von 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt, oder

10

e) Difluormethylbenzanolide der Formel (Ia)



in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben

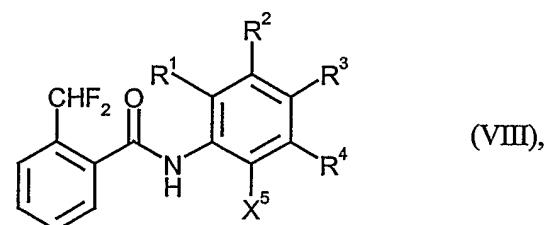
15

X^4 für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₂₀-Alkenyl oder C₂-C₂₀-Alkinyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators hydriert, oder

20

f) Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanolide der Formel (VIII)



in welcher

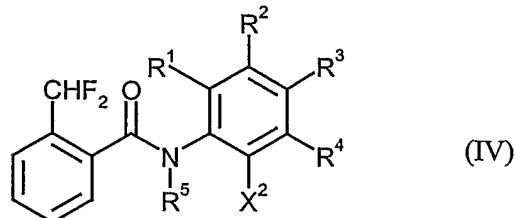
R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

25

X^5 für gegebenenfalls zusätzlich einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₂₀-

Hydroxyalkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart einer Säure dehydratisiert, oder

- 5 g) Halogen-difluormethylbenzanilide der Formel (IV)



in welcher

R¹, R², R³, R⁴ und R⁵ die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

X² für Chlor, Brom, Iod oder Trifluormethylsulfonat steht,

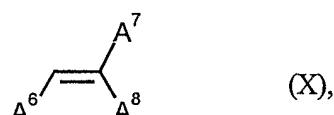
- 10 mit einem Alkin der Formel (IX)



in welcher

A⁵ für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₁₈-Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann,

- 15 oder einem Alken der Formel (X)

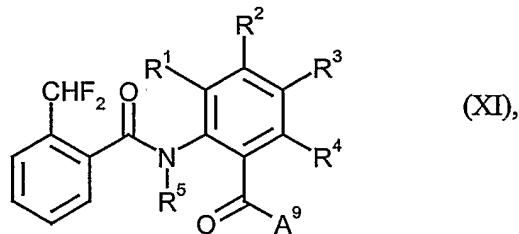


in welcher

20 A⁶, A⁷ und A⁸ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes Alkyl stehen, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl substituiert sein kann und die Gesamtzahl der Kohlenstoffatome des offenkettigen Molekülteils die Zahl 20 nicht übersteigt,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und in Gegenwart eines oder mehrerer Katalysatoren umsetzt, oder

- 25 h) Ketone der Formel (XI)



in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

A^9 für Wasserstoff oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C_3 - C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_1 - C_{18} -Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiert sein kann,

mit einer Phosphorverbindung der allgemeinen Formel (XII)

$A^{10}-Px$ (XII),

10

in welcher

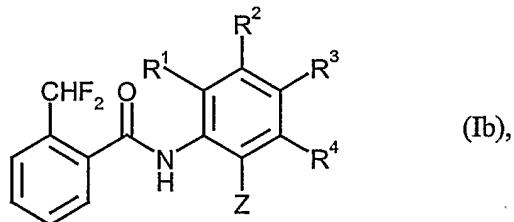
A^{10} für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder C_3 - C_6 -Cycloalkyl substituiertes C_1 - C_{18} -Alkyl steht, wobei der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiert sein kann,

15

Px für eine Gruppierung $-P^+(C_6H_5)_3^-Cl^-$, $-P^+(C_6H_5)_3^-Br^-$, $-P^+(C_6H_5)_3^-I^-$, $-P(=O)(OCH_3)_3$ oder $-P(=O)(OC_2H_5)_3$ steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt, oder

i) Difluormethylbenzanilide der Formel (Ib)



20

in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4 und Z die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben

mit einem Halogenid der Formel (XIII)

$R^{5-1}-X^6$ (XIII)

in welcher

25

R^{5-1} für C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_6 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_6 -Alkylsulfonyl, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkylthio, C_1 - C_4 -Halogenalkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- C_1 -

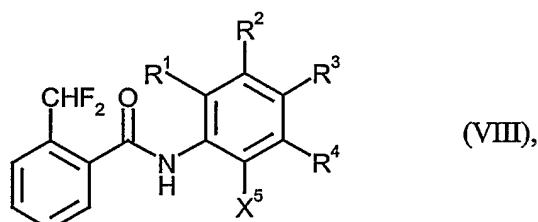
C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; (C₁-C₃-Halogenalkyl)-carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 7 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 6 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, (C₁-C₃-Halogenalkyl)-carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl, (C₁-C₃-Halogenalkoxy)carbonyl-C₁-C₃-halogenalkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; -COR⁶, -CONR⁷R⁸ oder -CH₂NR⁹R¹⁰ steht,

R⁶, R⁷, R⁸, R⁹ und R¹⁰ die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

X⁶ für Chlor, Brom oder Iod steht,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

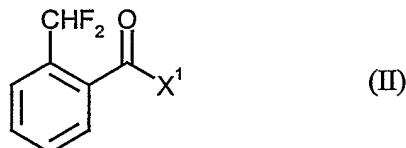
- 15 4. Mittel zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Difluormethylbenzanilid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
5. Verwendung von Difluormethylbenzaliden der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen.
- 20 6. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Difluormethylbenzalide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum aus bringt.
- 25 7. Verfahren zur Herstellung von Mitteln zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Difluormethylbenzalide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.
- 30 8. Hydroxyalkyl-difluormethylbenzanilide der Formel (VIII)



in welcher

R^1, R^2, R^3, R^4 und R^5 die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und
 X^5 für gegebenenfalls zusätzlich einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch
 Halogen und/oder C₃-C₆-Cycloalkyl substituiertes C₂-C₂₀-Hydroxyalkyl steht, wobei
 der Cycloalkylteil seinerseits gegebenenfalls durch Halogen und/oder C₁-C₄-Alkyl
 5 substituiert sein kann.

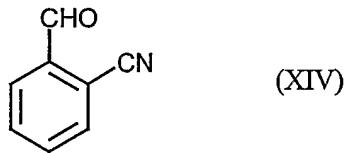
9. Difluormethylbenzoyl-Derivate der Formel (II)



in welcher X¹ für Chlor oder Hydroxy steht.

10

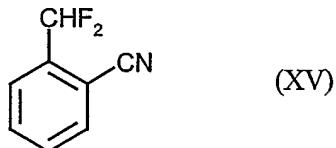
10. Verfahren zum Herstellen von Difluormethylbenzoyl-Derivaten der Formel (II) gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass man 2-Formyl-bazonitril der Formel (XIV)



15

in einem ersten Schritt mit (Diethylamino)schwefeltrifluorid in Gegenwart eines Verdünnungsmittels fluoriert,

und das so erhaltene 2-Difluormethyl-bazonitril der Formel (XV)



20

in einem zweiten Schritt mit einer Base umsetzt

und diese Säure in einem dritten Schritt gegebenenfalls mit einem Chlorierungsmittel in Gegenwart eines Verdünnungsmittels zum entsprechenden Säurechlorid umsetzt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In: International Application No

PCT/EP2004/005067

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07C233/65 C07C233/66 C07C233/77 C07C63/06 C07C63/10
C07C51/08 A01N37/18

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07C A01N

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

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

EPO-Internal, PAJ, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 53 135949 A (NIPPON NOHYAKU CO LTD) 28 November 1978 (1978-11-28) the whole document -----	1-8
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 0030, no. 11 (C-035), 30 January 1979 (1979-01-30) & JP 53 135949 A (NIPPON NOHYAKU CO LTD), 28 November 1978 (1978-11-28) abstract -----	1-8
Y	WO 98/03500 A (BUSCHHAUS HANS ULRICH ; ERDELEN CHRISTOPH (DE); KRUEGER BERND WIELAND) 29 January 1998 (1998-01-29) page 9, line 13 - line 17; claims 1-6; table 1 ----- -/-	1-8

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

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

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

Date of the actual completion of the international search

2 September 2004

Date of mailing of the international search report

10/09/2004

Name and mailing address of the ISA

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

Authorized officer

Rufet, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No
PCT/EP2004/005067

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 589 301 A (BASF AG) 30 March 1994 (1994-03-30) claims 1-8 -----	1-8
Y	EP 0 824 099 A (MITSUI TOATSU CHEMICALS) 18 February 1998 (1998-02-18) claims 1-19 -----	1-8
Y	EP 0 545 099 A (BASF AG) 9 June 1993 (1993-06-09) cited in the application page 8 - page 9; claims 1-11 -----	1-8
A	FR 2 369 252 A (INST NAT RECH CHIMIQUE) 26 May 1978 (1978-05-26) page 4, line 7 - line 10; examples 12,20,25,26 -----	9,10
A	MARKOVSKII L N ET AL: "Application of dialkylaminosulfur trifluorides in the synthesis of fluoroorganic compounds" SYNTHESIS, GEORG THIEME VERLAG. STUTTGART, DE, vol. 73, no. 12, 1 December 1973 (1973-12-01), pages 787-789, XP002085446 ISSN: 0039-7881 the whole document -----	10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/005067

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
JP 53135949	A	28-11-1978	JP JP	1297099 C 60021135 B	20-01-1986 25-05-1985
WO 9803500	A	29-01-1998	DE AU BR CN WO EP EP HU JP RU US US US	19629828 A1 3444197 A 9710400 A 1226244 A 9803500 A1 1443045 A1 0915868 A1 9903691 A2 2000516917 T 2194704 C2 2003078287 A1 6319940 B1 6534532 B1	29-01-1998 10-02-1998 17-08-1999 18-08-1999 29-01-1998 04-08-2004 19-05-1999 28-04-2000 19-12-2000 20-12-2002 24-04-2003 20-11-2001 18-03-2003
EP 0589301	A	30-03-1994	DE AT AU AU CA DE DK EP ES HU IL JP JP NZ PT US	4231517 A1 219771 T 669732 B2 4742293 A 2105503 A1 59310290 D1 589301 T3 0589301 A1 2179047 T3 68762 A2 106849 A 3530554 B2 6199803 A 248694 A 589301 T 5438070 A	24-03-1994 15-07-2002 20-06-1996 31-03-1994 22-03-1994 01-08-2002 22-07-2002 30-03-1994 16-01-2003 28-07-1995 28-01-2001 24-05-2004 19-07-1994 28-03-1995 29-11-2002 01-08-1995
EP 0824099	A	18-02-1998	CA CN CN DE DE EP ES JP US US	2213111 A1 1338452 A 1178791 A ,B 69708004 D1 69708004 T2 0824099 A1 2164972 T3 10310577 A 5965774 A 5914344 A	15-02-1998 06-03-2002 15-04-1998 13-12-2001 18-04-2002 18-02-1998 01-03-2002 24-11-1998 12-10-1999 22-06-1999
EP 0545099	A	09-06-1993	AT AU AU CA CZ CZ DE DK EP ES GR HU IL	149487 T 656243 B2 2855492 A 2081935 A1 9203448 A3 289478 B6 59208113 D1 545099 T3 0545099 A2 2098421 T3 3023336 T3 62861 A2 103614 A	15-03-1997 27-01-1995 27-05-1993 23-05-1993 13-10-1993 16-01-2002 10-04-1997 24-03-1997 09-06-1993 01-05-1997 29-08-1997 28-06-1993 24-09-1998

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

In onal Application No
PCT/EP2004/005067

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 0545099	A	JP	3202079 B2	27-08-2001
		JP	5221994 A	31-08-1993
		JP	2001253802 A	18-09-2001
		JP	2001316210 A	13-11-2001
		KR	267518 B1	16-10-2000
		NZ	245194 A	27-02-1996
		PL	296677 A1	18-10-1993
		SK	344892 A3	08-03-1995
		US	5480897 A	02-01-1996
		US	5556988 A	17-09-1996
		US	5589493 A	31-12-1996
		US	5330995 A	19-07-1994
		ZA	9208977 A	19-05-1994
FR 2369252	A	26-05-1978	FR	2369252 A1
				26-05-1978

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In nationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/005067

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7	C07C233/65	C07C233/66	C07C233/77	C07C63/06	C07C63/10
	C07C51/08	A01N37/18			

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprässtoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C07C A01N

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

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

EPO-Internal, PAJ, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	JP 53 135949 A (NIPPON NOHYAKU CO LTD) 28. November 1978 (1978-11-28) das ganze Dokument -----	1-8
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 0030, Nr. 11 (C-035), 30. Januar 1979 (1979-01-30) & JP 53 135949 A (NIPPON NOHYAKU CO LTD), 28. November 1978 (1978-11-28) Zusammenfassung -----	1-8
Y	WO 98/03500 A (BUSCHHAUS HANS ULRICH ; ERDELEN CHRISTOPH (DE); KRUEGER BERND WIELAND) 29. Januar 1998 (1998-01-29) Seite 9, Zeile 13 - Zeile 17; Ansprüche 1-6; Tabelle 1 ----- -/-	1-8

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- ° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Aussetzung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
2. September 2004	10/09/2004
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Rufet, J

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In: Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/005067

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 589 301 A (BASF AG) 30. März 1994 (1994-03-30) Ansprüche 1-8 -----	1-8
Y	EP 0 824 099 A (MITSUI TOATSU CHEMICALS) 18. Februar 1998 (1998-02-18) Ansprüche 1-19 -----	1-8
Y	EP 0 545 099 A (BASF AG) 9. Juni 1993 (1993-06-09) in der Anmeldung erwähnt Seite 8 - Seite 9; Ansprüche 1-11 -----	1-8
A	FR 2 369 252 A (INST NAT RECH CHIMIQUE) 26. Mai 1978 (1978-05-26) Seite 4, Zeile 7 - Zeile 10; Beispiele 12,20,25,26 -----	9,10
A	MARKOVSKII L N ET AL: "Application of dialkylaminosulfur trifluorides in the synthesis of fluoroorganic compounds" SYNTHESIS, GEORG THIEME VERLAG. STUTTGART, DE, Bd. 73, Nr. 12, 1. Dezember 1973 (1973-12-01), Seiten 787-789, XP002085446 ISSN: 0039-7881 das ganze Dokument -----	10

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inionales Aktenzeichen

PCT/EP2004/005067

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
JP 53135949	A	28-11-1978	JP JP	1297099 C 60021135 B		20-01-1986 25-05-1985
WO 9803500	A	29-01-1998	DE AU BR CN WO EP EP HU JP RU US US US	19629828 A1 3444197 A 9710400 A 1226244 A 9803500 A1 1443045 A1 0915868 A1 9903691 A2 2000516917 T 2194704 C2 2003078287 A1 6319940 B1 6534532 B1		29-01-1998 10-02-1998 17-08-1999 18-08-1999 29-01-1998 04-08-2004 19-05-1999 28-04-2000 19-12-2000 20-12-2002 24-04-2003 20-11-2001 18-03-2003
EP 0589301	A	30-03-1994	DE AT AU AU CA DE DK EP ES H!	4231517 A1 219771 T 669732 B2 4742293 A 2105503 A1 59310290 D1 589301 T3 0589301 A1 2179047 T3 68762 A2 106849 A 3530554 B2 6199803 A 248694 A 589301 T 5438070 A		24-03-1994 15-07-2002 20-06-1996 31-03-1994 22-03-1994 01-08-2002 22-07-2002 30-03-1994 16-01-2003 28-07-1995 28-01-2001 24-05-2004 19-07-1994 28-03-1995 29-11-2002 01-08-1995
EP 0824099	A	18-02-1998	CA CN CN DE DE EP ES JP US US	2213111 A1 1338452 A 1178791 A , B 69708004 D1 69708004 T2 0824099 A1 2164972 T3 10310577 A 5965774 A 5914344 A		15-02-1998 06-03-2002 15-04-1998 13-12-2001 18-04-2002 18-02-1998 01-03-2002 24-11-1998 12-10-1999 22-06-1999
EP 0545099	A	09-06-1993	AT AU AU CA CZ CZ DE DK EP ES GR HU IL	149487 T 656243 B2 2855492 A 2081935 A1 9203448 A3 289478 B6 59208113 D1 545099 T3 0545099 A2 2098421 T3 3023336 T3 62861 A2 103614 A		15-03-1997 27-01-1995 27-05-1993 23-05-1993 13-10-1993 16-01-2002 10-04-1997 24-03-1997 09-06-1993 01-05-1997 29-08-1997 28-06-1993 24-09-1998

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Int. als Aktenzeichen

PCT/EP2004/005067

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0545099	A	JP 3202079 B2	27-08-2001
		JP 5221994 A	31-08-1993
		JP 2001253802 A	18-09-2001
		JP 2001316210 A	13-11-2001
		KR 267518 B1	16-10-2000
		NZ 245194 A	27-02-1996
		PL 296677 A1	18-10-1993
		SK 344892 A3	08-03-1995
		US 5480897 A	02-01-1996
		US 5556988 A	17-09-1996
		US 5589493 A	31-12-1996
		US 5330995 A	19-07-1994
		ZA 9208977 A	19-05-1994
FR 2369252	A 26-05-1978 FR	2369252 A1	26-05-1978