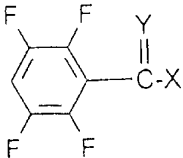


**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> <b>C07D 295/185, C07C 233/87, 235/06, 233/65, 233/66, 233/75, 233/83, 219/14, 233/78, C07D 295/192, 521/00, 207/16</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 95/14688</b>  <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 1. Juni 1995 (01.06.95)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP94/03775  <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 14. November 1994 (14.11.94)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> P 43 40 180.5      25. November 1993 (25.11.93)    DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> KRAATZ, Udo [DE/DE]; Andreasstrasse 22a, D-51375 Leverkusen (DE). HÄNSSLER, Gerd [DE/DE]; Am Arenzberg 58a, D-51381 Leverkusen (DE).  <b>(74) Gemeinsamer Vertreter:</b> BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).		<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, FI, HU, JP, KR, KZ, LK, NO, NZ, PL, RO, RU, SK, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i>
<b>(54) Title:</b> DERIVATIVES OF 2,3,5,6-TETRAFLUOROBENZOIC ACID AND THEIR USE IN COMBATING PESTS		
<b>(54) Bezeichnung:</b> DERIVATE DER 2,3,5,6-TETRAFLUOROBENZOE SäURE UND IHRE VERWENDUNG ZUR BEKÄMPFUNG VON SCHÄDLINGEN		
 <span style="margin-left: 20px;"><b>(I)</b></span>		
<b>(57) Abstract</b>		
<p>The application relates to derivatives of 2,3,5,6-tetrafluorobenzoic acid of formula (I) wherein Y represents oxygen or sulphur and X represents the groups -O-, N=CR<sup>1</sup>R<sup>2</sup>, -OR<sup>3</sup>, -OCHR<sup>4</sup>-CO-NR<sup>5</sup>R<sup>6</sup> or -NR<sup>7</sup>R<sup>8</sup> as well as a process for manufacturing the said substance and uses thereof in combating pests.</p>		
<b>(57) Zusammenfassung</b>		
<p>Die Anmeldung betrifft Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure der Formel (I), in welcher Y für Sauerstoff oder Schwefel steht und X für die Gruppen -O-N=CR<sup>1</sup>R<sup>2</sup>, -OR<sup>3</sup>, -OCHR<sup>4</sup>-CO-NR<sup>5</sup>R<sup>6</sup> oder -NR<sup>7</sup>R<sup>8</sup> steht, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung zur Bekämpfung von Schädlingen.</p>		

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

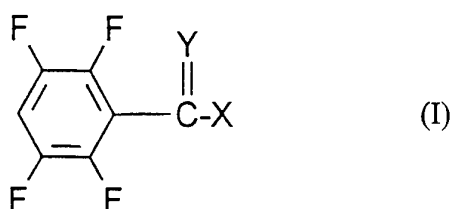
AT	Österreich	GA	Gabon	MR	Mauretanien
AU	Australien	GB	Vereinigtes Königreich	MW	Malawi
BB	Barbados	GE	Georgien	NE	Niger
BE	Belgien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BJ	Benin	IE	Irland	PL	Polen
BR	Brasilien	IT	Italien	PT	Portugal
BY	Belarus	JP	Japan	RO	Rumänien
CA	Kanada	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CG	Kongo	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CH	Schweiz	KR	Republik Korea	SI	Slowenien
CI	Côte d'Ivoire	KZ	Kasachstan	SK	Slowakei
CM	Kamerun	LI	Liechtenstein	SN	Senegal
CN	China	LK	Sri Lanka	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
ES	Spanien	MG	Madagaskar	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	ML	Mali	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MN	Mongolei	VN	Vietnam

- 1 -

# DERIVATE DER 2,3,5,6-TETRAFLUOROBENZOE SäURE UND IHRE VERWENDUNG ZUR BEKÄMPFUNG VON SCHÄDLINGEN

Die Erfindung betrifft neue Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung zur Bekämpfung von Schädlingen.

- 5 Gegenstand der Anmeldung sind Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure der allgemeinen Formel (I)



in welcher

Y für Sauerstoff oder Schwefel steht und

- 10 X für die Gruppen  $-O-N=CR^1R^2$ ,  $-OR^3$ ,  $-OCHR^4-CO-NR^5R^6$  oder  $-NR^7R^8$  steht

worin

$R^1$  und  $R^2$  unabhängig voneinander gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl und Aryl bedeuten,

- 2 -

- $R^3$  Alkyl mit mindestens 2 Kohlenstoffatomen, substituiertes Alkyl und gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl und Aralkyl bedeuten,
- $R^4$ ,  $R^5$  und  $R^6$  unabhängig voneinander Wasserstoff und gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Aryl und Aralkyl bedeuten, oder
- 5  $R^5$  und  $R^6$  gemeinsam mit dem Stickstoffatom an das sie gebunden sind einen gegebenenfalls substituierten Ring bilden, oder
- $R^7$  und  $R^8$  unabhängig voneinander Wasserstoff und gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Aryl, Aralkyl, Alkylheteroaryl und Heteroaryl bedeuten, oder für die Gruppen  $-\text{CHR}^4\text{-COOH}$  und  $-\text{CHR}^4\text{-COOCH}_3$  stehen, wobei  $R^7$  und  $R^8$  nicht
- 10 gleichzeitig für Wasserstoff stehen, oder
- $R^7$  und  $R^8$  gemeinsam mit dem Stickstoffatom an das sie gebunden sind einen gegebenenfalls substituierten Ring bilden

sowie deren Säureadditions-Salze und Metallsalz-Komplexe.

- 15 Weiterhin wurde gefunden, daß man die Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure der Formel (I) erhält, wenn man 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoylchlorid oder -anhydrid mit einem entsprechenden Oxim, Alkohol oder Amin gegebenenfalls in Gegenwart eines Lösungsmittels und/oder einer Base umsetzt.

- 20 Schließlich wurde gefunden, daß die neuen Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure der allgemeinen Formel (I) eine hervorragende mikrobizide Wirksamkeit, insbesondere gegen pflanzenpathogene Mikroorganismen besitzen. Darüber hinaus besitzen die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eine hervorragende resistenzinduzierende Wirksamkeit in Pflanzen gegen den Befall durch unerwünschte Mikroorganismen.

- 25 Im folgenden wird der Einfachheit halber stets von Verbindungen der Formel (I) gesprochen, obwohl sowohl die reinen Verbindungen, als auch die Gemische mit unterschiedlichen Anteilen an isomeren, enantiomeren und diastereomeren Verbindungen gemeint sind.

Die erfindungsgemäßen Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure sind durch die Formel (I) allgemein definiert.

Vorzugsweise bedeutet in den allgemeinen Formeln im folgenden, falls nicht anders definiert:

5 Alkyl, einzeln oder in zusammengesetzten Resten

- geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8, insbesondere 1 bis 4 Kohlenstoffatomen. Beispielhaft und vorzugsweise seien Methyl, Ethyl, n- und i.-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl, genannt.

Cycloalkyl

- 10 - ein 3- bis 7-gliedriger Ring, insbesondere ein Ring mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen. Beispielhaft und vorzugsweise seien Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl und Cycloheptyl genannt.

Aryl

- 15 - unsubstituiertes oder substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen. Beispielhaft und vorzugsweise sei jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl und Naphthyl, insbesondere unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl genannt.

Aralkyl

- 20 - unsubstituiertes oder substituiertes Aralkyl mit 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil und 6 bis 10 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise Phenyl im Arylteil. Beispielhaft und vorzugsweise seien Benzyl, 1,1- und 1,2-Phenethyl und 1,1-, 1,2-, 1,3- und 2,2-Phenylpropyl genannt.

Heteroaryl

- 25 - unsubstituierter oder substituierter 5- bis 9-gliedriger Ring, insbesondere 5- bis 7-gliedriger Ring, der 1 bis 4, bevorzugt 1 bis 3, gleiche oder verschiedene Heteroatome enthält. Als Heteroatome seien vorzugsweise Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff genannt. Beispielhaft und vorzugsweise seien

- 4 -

Pyrimidinyl, Pyrrolyl, Isothiazolyl, Oxazolyl, Thienyl, Furyl, Pyridazinyl, Pyrazinyl, Isooxazolyl, Thiazolyl und insbesondere Pyridyl genannt.

#### Heteroarylalkyl

- der Heteroarylteil entspricht den oben angegebenen Definitionen und Vorzugsbereichen. Der Alkylteil ist geradkettig oder verzweigt und enthält 1 bis 4 insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatome. Beispielfhaft und vorzugsweise seien Heteroarylmethyl, 1,1- und 1,2-Heteroarylethyl und 1,1-, 1,2-, 1,3- und 2,2-Heteroarylpropyl genannt.

Die gegebenenfalls substituierten Reste der allgemeinen Formeln können einen oder mehrere, vorzugsweise 1 bis 3, insbesondere 1 oder 2, gleiche oder verschiedene Substituenten tragen. Als Substituenten seien beispielhaft und vorzugsweise aufgeführt: Alkyl mit vorzugsweise 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen, wie Methyl, Ethyl, n.- und i.-Propyl und n.-, i.-, sec.- und t.-Butyl; Alkoxy mit vorzugsweise 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen, wie Methoxy, Ethoxy, n.- und i.-Propyloxy und n.-, i.-, sec.- und t.-Butyloxy; Alkylthio mit vorzugsweise 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen, wie Methylthio, Ethylthio, n.- und i.-Propylthio und n.-, i.-, sec.- und t.-Butylthio; Halogenalkyl, Halogenalkoxy und Halogenalkylthio mit vorzugsweise 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen und vorzugsweise 1 bis 9, insbesondere 1 bis 5 Halogenatomen, wobei die Halogenatome gleich oder verschieden sind und als Halogenatome, vorzugsweise Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere Fluor stehen, wie Trifluormethyl, Difluormethyl, Pentafluorethyl, Tetrafluorethyl, Trifluorchlorethyl, Trifluorethyl, Trifluorethoxy, Difluormethoxy, Pentafluorethoxy, Tetrafluorethoxy, Trifluorchlorethoxy, Trifluormethoxy und Trifluormethylthio; Hydroxy; Halogen, vorzugsweise Fluor, Chlor, Brom und Jod, insbesondere Fluor, Chlor und Brom; Cyano; Nitro; Dialkylamino mit vorzugsweise 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen je Alkylgruppe, wie Dimethylamino und Diethylamino; Carboxy; Alkylalkoxy mit 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen in jedem Alkylteil; Carbonylalkoxy mit 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, wie Carbonylmethoxy und Carbonylethoxy; Carbonylalkyl mit 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, wie Acetyl und Propionyl; Formyl; Carbonylaryloxy mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wie Carbonylphenoxy; Carbonylaryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wie Benzoyl;

- Oxycarbonylalkyl mit 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, wie Acetoxy; Oxycarbonylaryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wie Benzoyloxy; Carboxylamino, Carbonylaminoalkyl, Carbonylaminodialkyl, Aminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Aminocarbonylalkyl und Alkylaminocarbonylalkyl mit jeweils 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen im Alkylteil; Sulfonamido; Sulfonalkyl; Sulfonylalkyl und Sulfonylalkoxy mit jeweils 1 bis 4, insbesondere 1 oder 2 Kohlenstoffatomen; jeweils unsubstituiertes oder durch Halogen, insbesondere Fluor, Chlor und/oder Brom substituiertes Phenyl oder Phenoxy.
- 10 Die hier aufgeführten Definitionen gelten in entsprechender Weise auch für die Definitionen in den folgenden bevorzugten Kombinationen von Resten.
- Bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welcher
- 15  $R^1$  und  $R^2$  gleich oder verschieden sind und für jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen oder Phenyl stehen,
- $R^3$  für Alkyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, substituiertes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, Phenyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil stehen,
- 20  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$  und  $R^8$  gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, Phenyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil stehen, wobei  $R^4$  und  $R^8$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen,
- 25  $R^7$  und  $R^8$  unabhängig voneinander zusätzlich auch für jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, 5- bis 9-gliedriges Heteroaryl, welches 1 bis 4 gleiche oder verschiedene Heteroatome wie Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel enthält, oder

entsprechendes Heteroarylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil stehen, oder

R<sup>8</sup> für die Gruppen -CHR<sup>4</sup>-COOH und -CHR<sup>4</sup>-COOCH<sub>3</sub> steht oder

5 R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen unsubstituierten oder substituierten 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden der zusätzlich 1 oder 2 gleiche oder verschiedene Heteroatome wie Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel enthalten kann, oder

10 R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen unsubstituierten oder substituierten 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden der zusätzlich 1 oder 2 gleiche oder verschiedene Heteroatome wie Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel enthalten kann.

Besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), in welcher

15 R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gleich oder verschieden sind und für jeweils unsubstituiertes verzweigtes Alkyl mit 4 bis 6 Kohlenstoffatomen oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl stehen,

20 R<sup>3</sup> für Alkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Phenyl oder Benzyl steht,

R<sup>4</sup> für Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Benzyl steht,

25 R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen und unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl stehen wobei als Substituenten vorzugsweise Halogen, Alkyl, Alkoxy,



- 7 -

Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy und Halogenalkylthio genannt seien,

- 5  $R^7$  und  $R^8$  gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Phenyl und Benzyl stehen wobei als Substituenten vorzugsweise Halogen, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio und Dialkylamino genannt seien, wobei jedoch  $R^7$  und  $R^8$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen, und
- 10  $R^8$  zusätzlich für die Gruppen  $-\text{CHR}^4\text{-COOH}$  und  $-\text{CHR}^4\text{-COOCH}_3$  steht oder
- 15  $R^5$  und  $R^6$  zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen jeweils unsubstituierten oder substituierten Piperidin-, Morpholin-, Hexahydroazepin- oder Piperazinring bilden, wobei als Substituenten vorzugsweise Alkyl und Hydroxyalkyl genannt seien, oder
- 20  $R^7$  und  $R^8$  zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen jeweils unsubstituierten oder substituierten Piperidin-, Pyrrolidin-, Morpholin-, Hexahydroazepin- oder Piperazinring bilden, wobei als Substituenten vorzugsweise Alkyl und Hydroxyalkyl genannt seien.

Ganz besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I), in welcher

- $R^1$  für Methyltriazolyl steht,
- 25  $R^2$  für gegebenenfalls durch unsubstituiertes oder halogensubstituiertes Phenoxy substituiertes Butyl, Pentyl, Hexyl und Heptyl, oder jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethyl oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Cyclopropyl steht,

- 5       $R^3$       für Ethyl, n- und i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht, oder für durch Dimethylamino, Diethylamino, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n.- und i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl steht, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethyl, Trifluormethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht,
- $R^4$       für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n., i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl steht,
- $R^5$       für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n., i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl steht,
- 10       $R^6$       für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n., i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl steht, oder
- $R^5$  und  $R^6$       zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen Piperidin-, Morpholin-, Hexahydroazepin- oder Piperazinring bilden,
- 15       $R^7$       für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n., i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl steht,
- 20       $R^8$       für gegebenenfalls durch Dimethylamino, Diethylamino, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n.- und i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethyl und/oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl steht,
- oder für die Gruppen  $-CHR^{4'}-COOH$  und  $-CHR^{4'}-COOCH_3$  steht, worin
- 25       $R^{4'}$       für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n., i.-Propyl, n., i., s.- und t.-Butyl, Phenyl, Biphenyl und Hydroxybiphenyl und Benzyl steht, oder

$R^7$  und  $R^8$  zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind, einen jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach durch Methyl, Ethyl, Hydroxymethyl und Hydroxyethyl substituierten Piperidin-, Pyrrolidin-, Morpholin- oder Piperazinring bilden.

- 5 Bevorzugte Verbindungen sind auch Additionsprodukte aus Säuren und denjenigen Derivaten der Formel (I), in denen die Substituenten  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$  und  $R^8$  die Bedeutungen haben, die bereits vorzugsweise für diese Substituenten genannt wurden.

- Zu den Säuren die addiert werden können, gehören vorzugsweise Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. Chlorwasserstoffsäure und Bromwasserstoffsäure, insbesondere  
10 Chlorwasserstoffsäure, ferner Phosphorsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono-, bi- und trifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren, wie z.B. Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Zitronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure und Milchsäure, Sulfonsäuren, wie z.B. p-Toluolsulfonsäure und 1,5-  
15 Napthalindisulfonsäure sowie Saccharin oder Thiosaccharin.

- Außerdem bevorzugte Verbindungen sind Additionsprodukte aus Salzen und Metallen der II. bis IV. Haupt- und der I. und II. sowie IV. bis VIII. Nebengruppe und denjenigen Derivaten der Formel (I), in denen die Substituenten  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ ,  $R^5$ ,  $R^6$ ,  $R^7$  und  $R^8$  die Bedeutungen haben, die bereits vorzugsweise für diese  
20 Substituenten genannten wurden.

- Hierbei sind Salze des Kupfers, Zinks, Mangans, Magnesiums, Zinns, Eisens und des Nickels besonders bevorzugt. Als Anionen dieser Salze kommen solche in Betracht, die sich von solchen Säuren ableiten, die zu umweltverträglichen Additionsprodukten führen. Besonders bevorzugte derartige Säuren sind in diesem Zusammenhang die  
25 Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. die Chlorwasserstoffsäure und die Bromwasserstoffsäure, Salpetersäure und Schwefelsäure.

- Die neuen Derivate der Tetrafluorbenzoesäure der Formel (I) lassen sich nach bekannten Verfahren in analoger Weise herstellen. Die zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) benötigten Ausgangsverbindungen sind bekannt bzw. können  
30 nach allgemein bekannten Methoden hergestellt werden.

Die Umsetzung der Ausgangsverbindungen erfolgt vorzugsweise in einem inerten mit Wasser nicht mischbaren Verdünnungsmittel wie z.B. aromatische, nichtaromatische oder halogenierte Kohlenwasserstoffe wie: Ester, wie z.B. Essigester; Chlorkohlenwasserstoffen, wie z.B. Dichlormethan, Trichlorethan; Aromaten, wie  
5 z.B. Toluol; Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Cyclohexan bzw. derer Mischungen und/oder in Gegenwart eines Säurebindemittels wie z.B. Kaliumcarbonat, Triethylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin oder Kalium- oder Natriumhydroxid, bei Temperaturen von 0°C bis 100°C, vorzugsweise 20°C bis 40°C und unter Normaldruck. Bei der Reaktion mit Aminosäuren arbeitet man in wäßriger Lösung  
10 vorzugsweise mit Natronlauge als Hilfsbase bei 0°C bis 20°C.

Die Erfindung umfaßt sowohl die reinen Isomeren als auch die Gemische. Diese Gemische können nach gebräuchlichen Methoden, z.B. selektive Kristallisation aus geeigneten Lösungsmitteln oder Chromatographie an Kieselgel oder Aluminiumoxid in die Komponenten aufgetrennt werden. Racemate können nach üblichen Methoden  
15 in die einzelnen Enantiomeren aufgetrennt werden, so z.B. durch Salzbildung mit optisch aktiven Säuren wie Champhersulfonsäure oder Dibenzoylweinsäure und selektive Kristallisation oder durch Derivatisierung mit geeigneten, optisch aktiven Reagenzien, Trennung der diastereomeren Derivate und Rückspaltung oder Trennung an optisch aktivem Säulenmaterial.

20 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formel (I) weisen eine starke Wirkung gegen Schädlinge auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Schadorganismen praktisch eingesetzt werden. Die Wirkstoffe sind für den Gebrauch als Pflanzenschutzmittel insbesondere als Fungizide geeignet.

Fungizide Mittel im Pflanzenschutz werden eingesetzt zur Bekämpfung von  
25 Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes, Deuteromycetes.

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

Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum;  
30 Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;

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

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

- Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg
- 30 protektiv zur Bekämpfung von *Pyricularia*-Arten an Reis einsetzen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen desweiteren eine starke resistenz-induzierende Wirkung in Pflanzen auf. Sie eignen sich daher zur Erzeugung von Resistenz in Pflanzen gegen Befall durch unerwünschte Mikroorganismen.

Unter resistenz-induzierenden Stoffen sind im vorliegenden Zusammenhang solche Substanzen zu verstehen, die einerseits bei direkter Einwirkung auf die unerwünschten Mikroorganismen nur eine geringe Aktivität zeigen, andererseits aber in der Lage sind, das Abwehrsystem von Pflanzen so zu 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 in Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung Resistenz gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu erzeugen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Resistenz herbeigeführt wird, erstreckt sich im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

Zu den unerwünschten Mikroorganismen im Pflanzenschutz gehören Pilze aus den Klassen der Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in übliche Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren 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 oberflächen-aktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden 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 in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, 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-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid; als feste Trägerstoffe kommen in Frage: 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 in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykol-Ether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: 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.

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.

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

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in den Formulierungen in Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen vorliegen wie Fungizide, Insektizide, Akarizide und  
5 Herbizide sowie in Mischungen mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren.

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

Besonders günstige Mischpartner sind z.B. die folgenden Verbindungen.



**Fungizide:**

- 2-Aminobutan; 2-Anilino-4-methyl-6-cyclopropyl-pyrimidin; 2',6'-Dibromo-2-methyl-4'-trifluoromethoxy-4'-trifluoro-methyl-1,3-thiazole-5-carboxanilid; 2,6-Dichloro-N-(4-trifluoromethylbenzyl)benzamid; (E)-2-Methoxyimino-N-methyl-2-(2-phenoxyphenyl)-acetamid; 8-Hydroxyquinolinsulfat; Methyl-(E)-2-{2-[6-(2-cyanophenoxy)pyrimidin-4-yloxy]phenyl}-3-methoxyacrylat; Methyl-(E)-methoximino[ $\alpha$ -(o-tolyloxy)-o-tolyl]acetat; 2-Phenylphenol (OPP), Aldimorph, Ampropylfos, Anilazin, Azaconazol, Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazole, Bupirimate, Buthiobate,
- 5 10 Calciumpolysulfid, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Chinomethionat (Quinomethionat), Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinalat, Cufraneb, Cymoxanil, Cyproconazole, Cyprofuram, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, Difenconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Dinocap, Diphenylamin,
- 15 15 Dipyrithion, Ditalimfos, Dithianon, Dodin, Drazoxolon, Edifenphos, Epoxyconazole, Ethirimol, Etridiazol, Fenarimol, Fenbuconazole, Fenfuram, Fenitropan, Fenciclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetate, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzone, Fluazinam, Fludioxonil, Fluoromide, Fluquinconazole, Flusilazole, Flusulfamide, Flutolanil,
- 20 20 Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Aluminium, Fthalide, Fuberidazol, Furalaxyl, Fumecyclohex, Guazatine, Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol, Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iprobenfos (IBP), Iprodion, Isoprothiolan, Kasugamycin, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphtenat,
- 25 25 Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung, Mancopper, Mancozeb, Maneb, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl, Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metsulfosax, Myclobutanil, Nickeldimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol, Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxycarboxin,
- 30 30 Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin, Piperidin, Polyoxin, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propiconazole, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenoxy, Pyrimethanil, Pyroquilon, Quintozen (PCNB), Schwefel und Schwefel-Zubereitungen,

Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thio-  
phanatmethyl, Thiram, Tolclophos-methyl, Tolyfluanid, Triadimefon, Triadimenol,  
Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol,  
Validamycin A, Vinclozolin,

5 Zineb, Ziram

#### **Bakterizide:**

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

#### 10 **Insektizide / Akarizide / Nematizide:**

Abamectin, AC 303 630, Acephat, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Alphamethrin,  
Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azinphos A, Azinphos M,  
Azocyclotin,

Bacillus thuringiensis, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Betacyluthrin, Bifenthrin,

15 BPMC, Brofenprox, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butocarboxin,  
Butylpyridaben,

Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap,  
CGA 157 419, CGA 184 699, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chloretoxyfos,  
Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Cis-  
20 Resmethrin, Clocythrin, Clofentezin, Cyanophos, Cycloprothrin, Cyfluthrin,  
Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazin,

Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthion, Diazinon,  
Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicliphos, Dicrotophos, Diethion, Diflubenzuron,  
Dimethoat, Dimethylvinphos, Dioxathion, Disulfoton,

25 Edifenphos, Emamectin, Esfenvalerat, Ethiofencarb, Ethion, Ethofenprox,  
Ethoprophos, Etofenprox, Etrimphos,

Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatinoxid, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocarb,  
Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyroximat, Fenthion, Fenvalerate, Fipronil,  
Floazinam, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenoxuron, Flufenprox, Fluvalinate,

30 Fonophos, Formothion, Fosthiazat, Fubfenprox, Furathiocarb,

HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox,

Imidacloprid, Iprobenfos, Isazophos, Isofenphos, Isoprocarb, Isoxathion, Ivermectin,  
Lambda-cyhalothrin, Lufenuron,

- Malathion, Mecarbam, Mervinphos, Mesulfenphos, Metaldehyd, Methacrifos, Methamidophos, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Metolcarb, Milbemectin, Monocrotophos, Moxidectin, Naled, NC 184, NI 25, Nitenpyram,
- 5 Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M, Oxydeprofos, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat, Phorat, Phosalon, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos M, Pirimiphos A, Profenofos, Promecarb, Propaphos, Propoxur, Prothiofos, Prothoat, Pymetrozin, Pyraclofos, Pyradaphenthion, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyrimidifen, Pyriproxifen,
- 10 Quinalphos, RH 5992, Salithion, Sebufos, Silafluofen, Sulfotep, Sulprofos, Tebufenozid, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenuron, Tefluthrin, Temephos, Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Thiafenox, Thiodicarb, Thiofanox,
- 15 Thiomethon, Thionazin, Thuringiensin, Tralomethrin, Triarathen, Triazophos, Triazuron, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb, Vamidothion, XMC, Xylcarb, YI 5301/5302, Zetamethrin.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

- 20 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 Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw.. Es ist ferner
- 25 möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut von Pflanzen behandelt werden.

- Bei der Behandlung von Pflanzenteilen können die Wirkstoffkonzentrationen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden. Sie liegen im allge-
- 30 meinen zwischen 1 und 0,0001 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 %.

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g je Kilogramm Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 10 g benötigt.

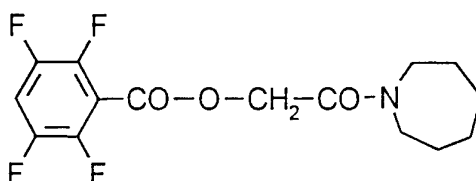
Bei Behandlung des Bodens sind Wirkstoffkonzentrationen von 0,00001 bis 0,1 Gew.-%, vorzugsweise von 0,0001 bis 0,02 % am Wirkungsort erforderlich.

- 5 Bei der Anwendung als Resistenzinduktoren können die Wirkstoffkonzentrationen für die Behandlung von Pflanzenteilen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden. Sie liegen im allgemeinen zwischen 1 und 0,0001 Gewichtsprozent, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 %.

- 10 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Stoffe wird durch die folgenden Beispiele veranschaulicht.

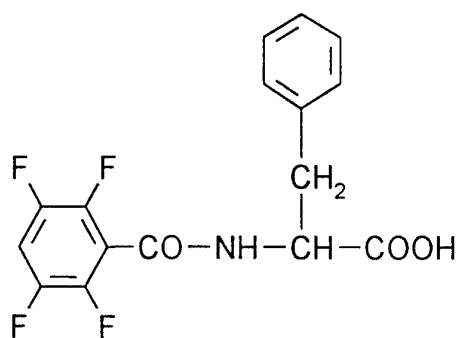
### Herstellungsbeispiele

#### Herstellungsbeispiel 1



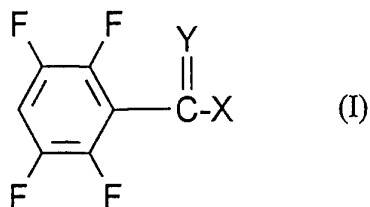
- Unter Rühren tropft man bei 20° 55 g (0,26 Mol) 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoylchlorid zu  
5 einer Lösung von 42,4 g (0,27 Mol) 1-Hydroxyacetyl-2,3,4,5,6,7-hexahydroazepin  
und 27 g (0,27 Mol) Triethylamin in 500 ml Methylenchlorid im Verlauf von 30  
Minuten zu. Nach Rühren über Nacht arbeitet man mit Wasser/Dichlormethan auf,  
trennt die organische Phase ab und engt diese im Vakuum ein. Man erhält ein zähes  
Öl, das bald kristallisiert und mit Petrolether verrührt wird.
- 10 Ausbeute: 67,5 g (77,9 % der Theorie)  
Fp.: 64 bis 66°



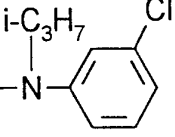
#### Herstellbeispiel 2

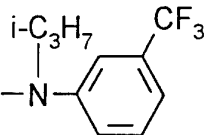
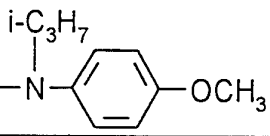
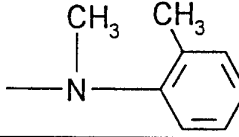
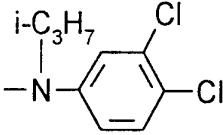
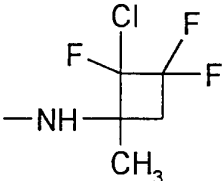
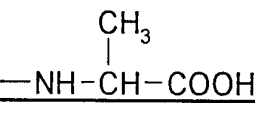
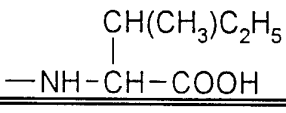



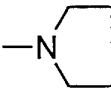
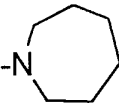
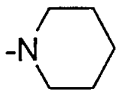
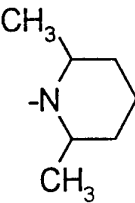
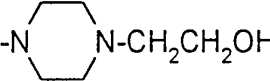
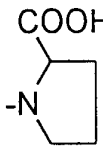
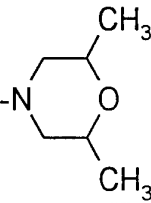
- Zur Lösung von 8,08 g (49 mMol) L-Phenylalanin in 25 ml 2N-Natronlauge tropft  
15 man unter Eiskühlung gleichzeitig 10,6 g (50 mMol) 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoylchlorid  
und 25 ml 2N-Natronlauge zu. Nach Rühren über Nacht stellt man mit verdünnter  
Salzsäure auf pH 2 und saugt das ausgefallene Kristallisat ab.
- Ausbeute 15,6 g (93,4 % der Theorie)  
Fp. 146 bis 147°

In entsprechender Weise und gemäß den allgemeinen Angaben werden die folgenden Verbindungen der Formel (I) hergestellt:

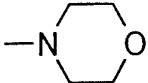
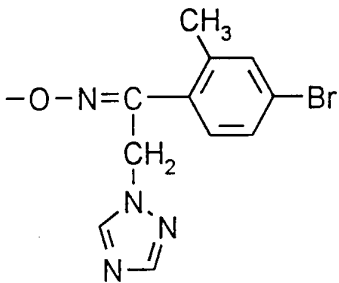
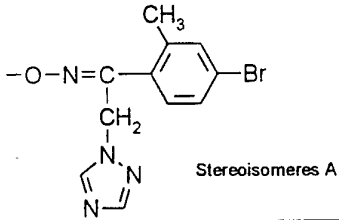
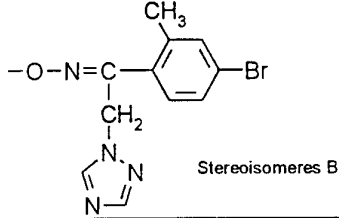
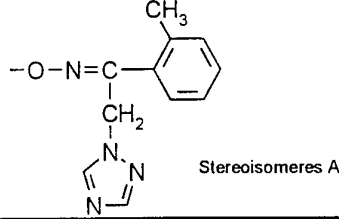
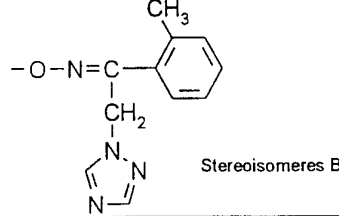


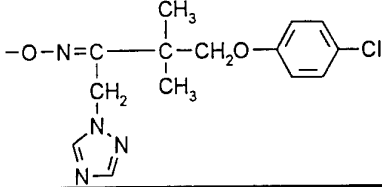
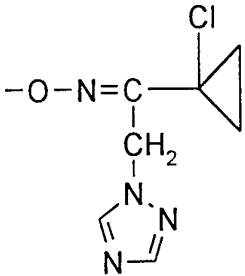
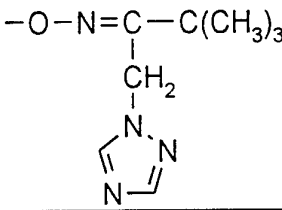
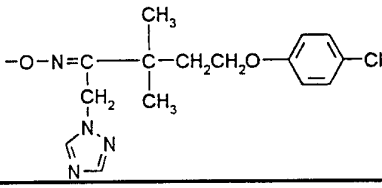
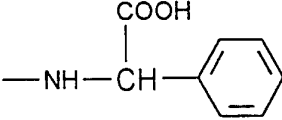
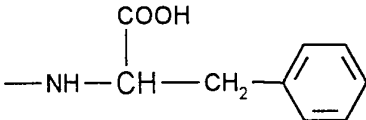
Beispiel	X	Y	Fp (°C)
5 3	$\text{-O-CH}_2\text{-CO-N(C}_3\text{H}_7\text{-i)}_2$	0	72
4	$\text{-O-CH}_2\text{-CO-N(C}_2\text{H}_5)_2$	0	88
5	$\text{-O-CH}_2\text{-}$ 	0	54
6	$\text{-O-CH}_2\text{CH}_2\text{N(C}_2\text{H}_5)_2$	0	$n_D^{20} = 1,4598$
7	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ \text{-O-CH-COOC}_2\text{H}_5 \end{array}$	0	$n_D^{20} = 1,4473$
10 8	$\text{-O-CH}_2\text{-C}_3\text{H}_7\text{-i}$	0	$n_D^{20} = 1,4430$
9	$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\   \\ \text{-N-} \end{array}$ 	0	60-64
10	$\begin{array}{c} \text{i-C}_3\text{H}_7 \\   \\ \text{-N-} \end{array}$ 	0	118-20

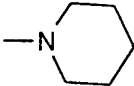
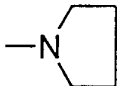
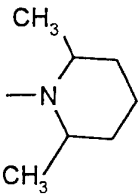
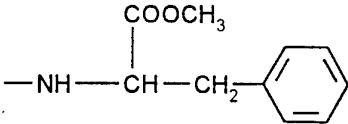
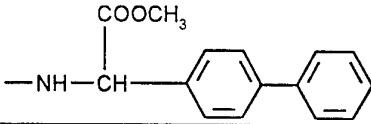
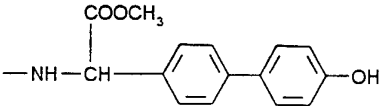
Beispiel	X	Y	Fp (°C)
11		0	132
12		0	122
13		0	102
14		0	158
15		0	102
16	$\text{-NH-CH}_2\text{CH}_2\text{-N(C}_2\text{H}_5)_2$	0	76
17	$\text{-NH-CH}_2\text{CH}_2\text{-N(C}_2\text{H}_5)_2 \times \text{HCl}$	0	148
18	$\text{-NH-CH}_2\text{-COOH}$	0	138
19		0	157
20		0	178

Beispiel	X	Y	Fp (°C)
21	$\begin{array}{c} i\text{-C}_3\text{H}_7 \\   \\ \text{—NH—CH—COOH} \end{array}$	0	137
22	$\text{—NH—CH}_2\text{—}$ 	0	120
23		0	110
24		0	72
25		0	67
26		0	114
27		0	81
28		0	$n_D^{20} = 1,4952$
29		0	84



Beispiel	X	Y	Fp (°C)
30		0	60
31		0	$n_D^{20} = 1,5498$
32		0	140
33		0	116
34		0	150
35		0	126

Beispiel	X	Y	Fp (°C)
36		0	87
37		0	88
38		0	98
39		0	$n_D^{20} = 1,5276$
40		0	170
41		0	152-55 (D-Form)

Beispiel	X	Y	Fp (°C)
42		S	138-40
43		S	104-06
44		S	124-27
45		0	120
46		0	158-60
47		0	log P: 2,68

### Anwendungsbeispiele

#### Beispiel A

Pyricularia-Test (Reis) / systemisch

Lösungsmittel: 12,5 Gewichtsteile Aceton

5 Emulgator: 0,3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

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

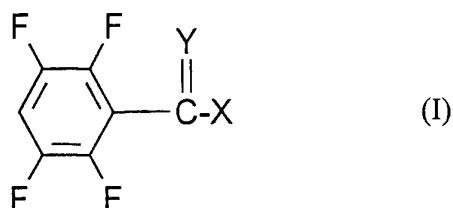
- 10 Zur Prüfung auf systemische Eigenschaften werden 40 ml der Wirkstoffzubereitung auf Einheitserde gegossen, in der junge Reispflanzen angezogen wurden. 7 Tage nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von *Pyricularia oryzae* inokuliert. Danach verbleiben die Pflanzen in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von 25°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 100 % bis
- 15 zur Auswertung.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung des Krankheitsbefalls.

Die Verbindungen gemäß der Herstellungsbeispiele 1, 2, 3 und 37 zeigen bei einer Aufwandmenge von 100 mg Wirkstoff pro 100 cm<sup>3</sup> einen 100 %igen Wirkungsgrad.

**Patentansprüche**

1. Derivate der 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoesäure der allgemeinen Formel (I)



in welcher

- 5            Y        für Sauerstoff oder Schwefel steht und
- X        für die Gruppen  $-O-N=CR^1R^2$ ,  $-OR^3$ ,  $-OCHR^4-CO-NR^5R^6$  oder  $-NR^7R^8$  steht

worin

- 10             $R^1$  und  $R^2$     unabhängig voneinander gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl und Aryl bedeuten,

- $R^3$             Alkyl mit mindestens 2 Kohlenstoffatomen, substituiertes Alkyl und gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl und Aralkyl bedeuten,

- 15             $R^4$ ,  $R^5$  und  $R^6$  unabhängig voneinander Wasserstoff und gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Aryl und Aralkyl bedeuten, oder

- $R^5$  und  $R^6$     gemeinsam mit dem Stickstoffatom an das sie gebunden sind einen gegebenenfalls substituierten Ring bilden, oder

- 20             $R^7$  und  $R^8$     unabhängig voneinander Wasserstoff und gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Aryl, Aralkyl,

Alkylheteroaryl und Heteroaryl bedeuten, oder für die Gruppen  $-\text{CHR}^4-\text{COOH}$  und  $-\text{CHR}^4-\text{COOCH}_3$  stehen, wobei  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen, oder

- 5                     $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$         gemeinsam mit dem Stickstoffatom an das sie gebunden sind einen gegebenenfalls substituierten Ring bilden

sowie deren Säureadditions-Salze und Metallsalz-Komplexe.

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

- 10                     $\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$                 gleich oder verschieden sind und für jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen oder Phenyl stehen,

- 15                     $\text{R}^3$         für Alkyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, substituiertes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, Phenyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil stehen,

- 20                     $\text{R}^4$ ,  $\text{R}^5$ ,  $\text{R}^6$ ,  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, Phenyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil stehen, wobei  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen,

- 25                     $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$                 unabhängig voneinander zusätzlich auch für jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, 5- bis 9-gliedriges Heteroaryl, welches 1 bis 4 gleiche oder verschiedene Heteroatome wie Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel enthält, oder

entsprechendes Heteroarylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil stehen, oder

$R^8$  für die Gruppen  $-\text{CHR}^4-\text{COOH}$  und  $-\text{CHR}^4-\text{COOCH}_3$  steht oder

5  $R^5$  und  $R^6$  zusammen mit dem Stickstoffatom an welches die gebunden sind einen unsubstituierten oder substituierten 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden der zusätzlich 1 oder 2 gleiche oder verschiedene Heteroatome wie Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel enthalten kann, oder

10  $R^7$  und  $R^8$  zusammen mit dem Stickstoffatom an welches die gebunden sind einen unsubstituierten oder substituierten 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden der zusätzlich 1 oder 2 gleiche oder verschiedene Heteroatome wie Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel enthalten kann.

3. Verbindungen der Formel (I), gemäß Anspruch 1, in welcher

15  $R^1$  und  $R^2$  gleich oder verschieden sind und für jeweils unsubstituiertes verzweigtes Alkyl mit 4 bis 6 Kohlenstoffatomen oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder  
20 Phenyl stehen,

$R^3$  für Alkyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Phenyl oder Benzyl steht,

25  $R^4$  für Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls Phenyl oder Benzyl steht,

- 5             $R^5$  und  $R^6$             gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen und unsubstituiertes oder substituiertes Phenyl stehen wobei als Substituenten vorzugsweise Halogen, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy und Halogenalkylthio genannt seien,
- 10             $R^7$  und  $R^8$             gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, jeweils unsubstituiertes oder substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Phenyl und Benzyl stehen wobei als Substituenten vorzugsweise Halogen, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio und Dialkylamino genannt seien, wobei jedoch  $R^7$  und  $R^8$  nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen, und
- 15             $R^8$             zusätzlich für die Gruppen  $-\text{CHR}^4\text{-COOH}$  und  $-\text{CHR}^4\text{-COOCH}_3$  steht oder
- 20             $R^5$  und  $R^6$             zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen jeweils unsubstituierten oder substituierten Piperidin-, Morpholin-, Hexahydroazepin- oder Piperazinring bilden, wobei als Substituenten vorzugsweise Alkyl und Hydroxyalkyl genannt seien, oder
- 25             $R^7$  und  $R^8$             zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen jeweils unsubstituierten oder substituierten Piperidin-, Pyrrolidin-, Morpholin-, Hexahydroazepin- oder Piperazinring bilden, wobei als Substituenten vorzugsweise Alkyl und Hydroxyalkyl genannt seien.
- 30    4.    Verbindungen der Formel (I), gemäß Anspruch 1, in welcher



- R<sup>1</sup> für Methyltriazolyl steht,
- 5 R<sup>2</sup> für gegebenenfalls durch unsubstituiertes oder halogensubstituiertes Phenoxy substituiertes Butyl, Pentyl, Hexyl und Heptyl, oder jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethyl oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Cyclopropyl steht,
- 10 R<sup>3</sup> für Ethyl, n- und i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht, oder für durch Dimethylamino, Diethylamino, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- und i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht, oder für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethyl, Trifluormethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl oder Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht,
- 15 R<sup>4</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht,
- R<sup>5</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht,
- R<sup>6</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht, oder
- 20 R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen Piperidin-, Morpholin-, Hexahydroazepin- oder Piperazinring bilden,
- R<sup>7</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-, i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht,
- 25 R<sup>8</sup> für gegebenenfalls durch Dimethylamino, Diethylamino, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- und i-Propyl, n-, i-, s- und t-Butyl steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach

bis dreifach durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethyl und/oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl, Benzyl, Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl steht,

- 5 oder für die Gruppen  $-\text{CHR}^{4'}-\text{COOH}$  und  $-\text{CHR}^{4'}-\text{COOCH}_3$  steht, worin

$\text{R}^{4'}$  für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-, i.-Propyl, n-, i-, s- und t.-Butyl, Phenyl, Biphenyl und Hydroxybiphenyl und Benzyl steht, oder

- 10  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  zusammen mit dem Stickstoffatom an welches sie gebunden sind einen jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach durch Methyl, Ethyl, Hydroxymethyl und Hydroxyethyl substituierten Piperidin-, Pyrrolidin-, Morphin- oder Piperazinring bilden.
- 15 5. Schädlingsbekämpfungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) nach Anspruch 1.
6. Verfahren zur Bekämpfung von Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) nach Anspruch 1 auf Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
- 20 7. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man 2,3,5,6-Tetrafluorbenzoylchlorid oder -anhydrid mit einem entsprechenden Oxim, Alkohol oder Amin gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und/oder einer Base umsetzt.
- 25 8. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 bis 4 zur Bekämpfung von Schädlingen.

9. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 bis 4 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern: al Application No

PCT/EP 94/03775

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C07D295/185 C07C233/87 C07C235/06 C07C233/65 C07C233/66  
 C07C233/75 C07C233/83 C07C219/14 C07C233/78 C07D295/192  
 C07D521/00 C07D207/16

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 6 C07D C07C

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)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP,A,0 028 346 (BAYER AG) 13 May 1981  see page 16, line 1 - line 13; claims 1,5-8 ---	1,4-6,8, 9
A	US,A,4 055 663 (S. J. BARER ET AL) 25 October 1977 see column 1, line 5 - line 8; claim 1 see column 1, line 45 - column 2, line 26 ---	1,5,6,8, 9
A	DE,A,16 42 232 (BASF) 6 May 1971  see claim; example 3 -----	1,5,6,8, 9



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

13 February 1995

Date of mailing of the international search report

1. 03. 95

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

Seufert, G

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 94/03775

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP-A-0028346	13-05-81	DE-A- 2944446 AT-T- 1423 AU-B- 535243 AU-A- 6384880 CA-A- 1156659 JP-A- 56079677 US-A- 4360529	11-06-81 15-08-82 08-03-84 07-05-81 08-11-83 30-06-81 23-11-82
US-A-4055663	25-10-77	NONE	
DE-A-1642232	06-05-71	DE-A- 1642224 BE-A- 714356 CH-A- 498564 FR-A- 1567381 GB-A- 1217868 NL-A- 6805744	13-04-72 28-10-68 15-11-70 16-05-68 31-12-70 29-10-68

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Intern: ales Aktenzeichen

PCT/EP 94/03775

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07D295/185 C07C233/87 C07C235/06 C07C233/65 C07C233/66  
C07C233/75 C07C233/83 C07C219/14 C07C233/78 C07D295/192  
C07D521/00 C07D207/16

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

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C07D C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehorende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

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

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP,A,0 028 346 (BAYER AG) 13. Mai 1981  siehe Seite 16, Zeile 1 - Zeile 13; Ansprüche 1,5-8 ---	1,4-6,8, 9
A	US,A,4 055 663 (S. J. BARER ET AL) 25. Oktober 1977 siehe Spalte 1, Zeile 5 - Zeile 8; Anspruch 1 siehe Spalte 1, Zeile 45 - Spalte 2, Zeile 26 ---	1,5,6,8, 9
A	DE,A,16 42 232 (BASF) 6. Mai 1971  siehe Anspruch; Beispiel 3 -----	1,5,6,8, 9



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 Ausstellung 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 erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher 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 naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Februar 1995

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

- 1. 03. 95

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

Seufert, G

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 94/03775

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP-A-0028346	13-05-81	DE-A- 2944446	11-06-81
		AT-T- 1423	15-08-82
		AU-B- 535243	08-03-84
		AU-A- 6384880	07-05-81
		CA-A- 1156659	08-11-83
		JP-A- 56079677	30-06-81
		US-A- 4360529	23-11-82
-----			
US-A-4055663	25-10-77	KEINE	
-----			
DE-A-1642232	06-05-71	DE-A- 1642224	13-04-72
		BE-A- 714356	28-10-68
		CH-A- 498564	15-11-70
		FR-A- 1567381	16-05-68
		GB-A- 1217868	31-12-70
		NL-A- 6805744	29-10-68
-----			