

(19) Országkód:

HU



**MAGYAR
KÖZTÁRSASÁG**

**ORSZÁGOS
TALÁLMÁNYI
HIVATAL**

SZABADALMI LEÍRÁS

(11) Lajstromszám:

208 226 B

(21) A bejelentés száma: 4346/88
(22) A bejelentés napja: 1988. 08. 12.
(30) Elsőbbségi adatok:
03132/87 1987. 08. 14. CH

(51) Int. Cl.⁵

A 01 N 43/36

A 01 N 43/38

C 07 D 207/452

C 07 D 209/48

(40) A közzététel napja: 1989. 04. 28.
(45) A megadás meghirdetésének dátuma a Szabadalmi
Közlönyben: 1993. 09. 28. SZKV 93/09

(72) Feltalálók:

dr. Moser, Hans, Rheinfelden (CH)
dr. Pissiotas, Georg, Lörrach (DE)
dr. Brunner, Hans-Georg, Lausen (CH)

(73) Szabadalmas:

Ciba-Geigy Ag., Bazel (CH)

(74) Képviseelő:

S.B.G. és K. Ügyvédi és Szabadalmi Iroda,
Budapest

(54)

Hatóanyagként pirrolidin-2,5-dion- vagy 4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-1,3-dion-származékot tartalmazó herbicid készítmény és eljárás a hatóanyag előállítására

(57) KIVONAT

A találmány szerinti készítmény hatóanyagként (I) általános képletű vegyületet tartalmaz, a képletben

R¹ 1-4 szénatomos alkilcsoport;

R² 1-4 szénatomos alkilcsoport vagy

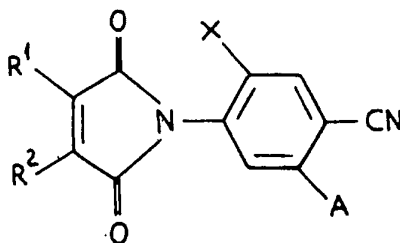
R¹ és R² együttesen -(CH₂)₄-csoportot alkot, mely egy 1-4 szénatomos alkilcsoporttal lehet szubsztituálva;

X hidrogén- vagy halogénatom;

A -COR³ vagy -OR⁴ általános képletű csoport;

R³ hidroxilcsoport vagy 1-8 szénatomos alkoxi-csoport;

R⁴ 1-8 szénatomos alkilcsoport vagy 3-8 szénatomos alkenilcsoport.



(I)

A találmány tárgya (I) általános képletű, 1-fenil-pirrolidin-2,5-dion vagy 2-fenil-4,5,6,7-tetrahidro-izo-indol-1,3-dion – származékot – mely helyzetben a fenti szubsztituens 4-helyzetben minden esetben egy cianocsoporttal szubsztituált –, tartalmazó herbicidkészítmény, valamint eljárás a hatóanyagok előállítására.

A DE-A-2 831 770 sz. szabadalmi leírásból ismertek hasonló típusú, a leírásban laktámnak nevezett, azonban ftálimido-származékokat is magukban foglaló olyan (I) általános képletű vegyületek, melyek képletében X, Y és Z egymástól függetlenül – többek között – metoxi-, etoxi- vagy cianocsoportot is jelenthet. Ezek a vegyületek herbicid hatással rendelkeznek.

Az NL-A-7 117 690 sz. szabadalmi leírás dion-származékokat ír le herbicid hatású vegyületeként, melyek általános képletében R egy aril- vagy aralkilcsoport, és e csoport – többek között – a következő szubsztituenseket hordozhatja: halogénatom, hidroxilcsoport, cianocsoport, alkoxics csoport.

Meglehető módon azt találtuk, hogy előző ismert vegyületek általános képlete által tartalmazott vegyületek köréből választható egy olyan vegyületcsoport, mely előre nem várt módon nagyságrenddel nagyobb herbicid hatást mutat, mint ami az ismert vegyületeknél általában tapasztalható.

A találmány szerinti készítmények tehát (I) általános képletű vegyületeket tartalmaznak, mely képletben R¹ 1–4 szénatomos alkilcsoport; R² 1–4 szénatomos alkilcsoport vagy R¹ és R² együtt alkot egy –(CH₂)₄-csoportot, mely egy 1–4 szénatomos alkilcsoporttal lehet szubsztituálva; X hidrogénatom vagy halogénatom;

||
A –C–R³ vagy –O–R⁴ képletű csoport;
R³ hidroxilcsoport vagy 1–8 szénatomos alkoxics csoport;
R⁴ 1–8 szénatomos alkilcsoport vagy 3–8 szénatomos alkinilcsoport.

E készítmények a hatóanyagot segéd- és/vagy hordozóanyagokkal együtt tartalmazzák.

A fenti definíciókban megadott általános fogalmak magukban foglalják a következő szubsztituenseket is, anélkül, hogy ez a felsorolás a találmány korlátozását jelentené.

Alkilcsoport: metil-, etil-, n-propil-, i-propil-, n-butil-, i-butil- és terc-butil-csoport, előnyös a metil- és az etilcsoport.

Halogénatom: fluor-, klór-, bróm- és jódatom, előnyös a fluor- és a klóratom.

Alkoxics csoport: metoxi-, etoxi-, propil-oxi-, i-propil-oxi-, n-butil-oxi-, i-butil-oxi-, szek-butil-oxi- és terc-butil-oxi-csoport, előnyös a metoxi- vagy az etoxics csoport.

Alkinilcsoport: propargil-, 2-butinil- vagy 3-butinil-csoport, ezek közül azonban a propargilcsoport előnyös.

Kiemelkedőek azok az (I) általános képletű hatóanyagok, melyekben

X fluoratomot vagy hidrogénatomot jelent.

Továbbá azok az (I) általános képletű hatóanyagok előnyösek, melyekben

R⁴ izopropilcsoportot jelent és

azok az (I) általános képletű hatóanyagok, melyekben

5 R³ szek-butil-oxi-csoport.

Főként a következő vegyületek említendőek:

1-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-fenil]-3,4-dimetil-pirrol-(1H)-2,5-dion;

10 2-(5-karboxi-4-ciano-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion;

2-[4-ciano-2-fluor-5-(n-propil-oxi-karbonil)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion;

2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion, és

15 2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi-karbonil)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion.

Az irodalomból ismert eljárásokhoz hasonlóan az (I) általános képletű vegyületeket úgy állíthatjuk elő, hogy

20 a) egy (II) általános képletű furán-2,5-diont (III) általános képletű anilinnel reagáltatunk; a (II) és (III) általános képletekben R¹, R², X és A az előzőekben megadott jelentésű; vagy

25 b) egy (IV) általános képletű vegyületből kiindulva halogén-cianid-cserét végzünk – a (IV) általános képletben R¹, R², X és A az előzőekben megadott jelentésű és Y klór- vagy bróm- vagy jódatom – CuCN-dal reagáltatva.

Továbbá az olyan (Ia) általános képletű vegyületeket, melyekben A egy –COR₃ csoportot jelent, úgy állíthatjuk elő, hogy

30 c) egy (V) általános képletű vegyületet – ahol R¹, R² és X az előzőekben megadott jelentésű és Z egy, a reakciókörülmények között kicserélhető csoport, például halogénatom vagy (1–4 szénatomos alkil)-karbonil-oxi-csoport – (VI) általános képletű vegyülettel – melyben R³ az előzőekben megadott jelentésű – kondenzálunk.

A fenti reakciókat előnyösen a reakciókkal szemben inert oldószerben végezzük. Ilyen inert oldószereként szénhidrogének, például benzol, toluol vagy xilol; éterek, például dietil-éter, metil-izopropil-éter, metilén-glikol, dimetilén-glikol; ciklusos éterek, például a tetrahydrofurán vagy dioxán, ketonok, például az aceton, metil-etil-ke-ton; amidok, például a dimetil-formamid, N-metil-pirrolidon; szulfoxidok, például a dimetil-szulfoxid; vagy klórozott szénhidrogének, például a diklór-metán, triklór-metán, széntetraklorid vagy a tetraklór-etán jönnek számításba.

50 A reakció-hőmérséklet tág határok között változtatható. A megfelelő reakció-hőmérséklet például –20 °C és a reakcióelegy visszafolyatási hőmérséklete közé esik. A reakciót előnyösen 0 °C és 100 °C közötti hőmérsékleten végezzük. A halogén-cianid-kicserélés [b) reakció] esetében magasabb hőfokon, előnyösen 100 °C és 180 °C közötti hőmérsékleten dolgozunk.

55 Az a) és c) kondenzációs reakciókat általában kondenzációs katalizátorok hozzáadásával és a keletkezett reakciótermék (H₂O, illetve HZ) eltávolításával gyorsíthatjuk.

Katalizátorokként főként aprotikus oldószer használata esetén a p-toluol-szulfonsav, benzoészav, 4-dialkyl-amino-piridin, kénsav, sósav, vagy naftalin-szulfonsav jönnek számításba. Az előzőekben említett típusú reakciókat a karbonsav-származékok előállításánál szokásos módon végezzük. A módszerek az általános laboratóriumi gyakorlatnak megfelelőek.

A b) reakciót fázistranszfer körülmények között, kétfázisú rendszerben is végezhetjük. Az ilyen jellegű reakciók a szakemberek számára ismertek (például a Dehmlow és Dehmlow, Phase Transfer Catalysis; Verlag Chemie; Weinheim 1983 helyen leírtakból).

Habár a végtermék (II) általános képletű furándionból és (III) általános képletű anilinnél a) reakcióval vázolt szintézise minden esetben keresztülvihető, ökonómiai vagy eljárás-technikai okokból egyszerű lehet bizonyos (I) általános képletű vegyületeket más, szintén az (I) általános képletnek megfelelő származékokká alakítani.

A (III) és (V) általános képletű vegyületek értékes közbelső termékek a találmány szerinti hatóanyagok előállításánál.

A (III) és (V) általános képletű közbelső termékek előállítása az irodalomból ismertekhez hasonlóan történik.

Az olyan (III) általános képletű anilint, melyekben A $-OR^4$ csoportot jelent [(IIIb) általános képletű vegyületek], az irodalomból ismert (IX) általános képletű nitro-benzolokból (például az EP-A 61 741 sz. európai szabadalmi bejelentésből ismert, Chem. Ber. 59 1254) kiindulva az 1. reakcióvázlat szerinti háromlépcsős reakciófolyamatban állíthatjuk elő.

Az ehhez szükséges r_1 (halogén-cianid-csere), r_2 (redukció) és r_3 (éterezés) reakciólépések a szakemberek számára ismertek, és az irodalomból ismert eljárásokhoz hasonlóan végezhetők.

Hasonló módon az olyan (III) általános képletű vegyületek, amelyekben A $-COR^3$ csoportot jelent [(IIIc) általános képletű vegyületek], a 2. reakcióvázlat szerint, (XI) általános képletű nitro-benzolokból halogén-cianid-cserével (r_1) és redukcióval (r_2) állíthatók elő.

A találmány szerinti készítmények hatóanyagaként alkalmazott (I) általános képletű vegyületek egy további általános előállítási módját a 3. reakcióvázlat mutatja be, ahol a (II) általános képletű furándionból és (XII) általános képletű anilinnél keletkezett N-fenil-pirrolidin-diont (r_1) először a fenilgyűrű p-helyzetében nitráljuk (r_2), majd redukáljuk (r_3) és ezután diazotáljuk (r_4). Az így nyert diazóniumsóba Sandmeyer (r_4/r_3) szerinti reakcióval Y csoportot vihetünk be és ezután halogén-cianid-cserével (r_6) (I) általános képletű vegyületeket állítunk elő.

Szintén széles körben használható a 4. reakcióvázlatban megadott eljárás olyan (Ia) általános képletű vegyületek előállítására, melyekben A $-COR^3$ csoportot jelent.

Az r_1-r_6 eljárási lépések a 3. reakcióvázlatban ismertett reakcióknak felelnek meg, azzal a különbséggel, hogy itt a (XIII) általános képletű m-antranilsavval – melyet a 3. reakcióvázlat foglal magában – először a (XIV) általános képletű jódegyületet állítjuk elő.

A (XIV) általános képletű vegyületet ezután aktivált savszármazékká alakítjuk (r_7), észterezzük (r_8), majd (Ia) általános képletű vegyületté reagáltatjuk vagy a reakciólépések felcserélésével jóde-cianid-kicseréléssel (r_6) aktivált savszármazékká alakítással (r_{10}) és észterezéssel (r_{11}) állítjuk elő az (Ia) általános képletű vegyületet.

Az előzőekben említett 1–4. reakcióvázlatok egyszerűen felhasználhatók a (III) és (V) általános képletű közbelső termékek előállítására is.

A találmány szerinti készítmények hatóanyagaként alkalmazott (I) általános képletű vegyületek nagy aktivitású növényi hatóanyagok, melyek megfelelő mennyiségű szelektív herbicidként alkalmazva haszonnövény kultúrákban kiválóan alkalmasak gyomnövények irtására. Azaz ennél a felhasználási mennyiségnél az (I) általános képletű hatóanyagok a gyomnövényekkel szemben jó szelektív-herbicid tulajdonságokat mutatnak. A kultúrnövények, így a rozs, árpa, zab, búza, kukorica, köles, gyapot és szója ilyen alacsonyabb felhasználási mennyiségűnél gyakorlatilag nem károsodnak. Növelt mennyiségű használata csak jelentéktelen mértékben befolyásolja a kultúrnövények fejlődését. Nagyon nagy mennyiséget adagolva az (I) általános képletű anyagok totális herbicid tulajdonságot mutatnak.

A találmány szerinti készítmények szelektív-herbicid hatása mind preemergens, mind posztemergens felhasználás esetén mutatkozik. Ezek a hatóanyagok ezért kikelés előtt és kikelés után szelektív gyomirtásra sikerrel használhatók.

A találmány szerinti készítmények hatóanyagai a növények anyagcseréjébe avatkoznak be és ezért növekedésszabályozóként is alkalmazhatók.

A növény-növekedést szabályozó anyagok hatásmechanizmusával kapcsolatban az a nézet terjedt el, hogy egy hatóanyag több, különböző jellegű hatást is gyakorolhat a növényekre. Az anyagok hatása lényegében az alkalmazás időpontjától, a növény fejlődési állapotától, a növényekre, illetve azok környezetére felvitt hatóanyag-mennyiségtől és az adagolás fajtájától függ. Minden esetben azonban a növény-növekedést szabályozó anyagoknak a haszonnövényt meghatározott kívánt módon kell befolyásolniuk.

Növény-növekedést szabályozó anyagokkal a növények levélzete olyan módon szabályozható, hogy a növények lombhullatása egy meghatározott időpontban történjen. Az ilyen jellegű lombtalanítás jelentős szerepet játszik a gyapot mechanikus szüretelésénél, azonban más kultúrákon, például szőlőültetvényeken is megkönnyíthető ily módon a szüret. A növények lombtalanítása végezhető azért is, hogy a növények légzését a kiültetés előtt csökkentjük.

Ugyancsak szabályozható növény-növekedést szabályozó anyagokkal a gyümölcs lezuhlása is. Egyrészt az idő előtti gyümölcshullás meggátolható. Másrészt ugyanakkor jelentős mértékben elősegíthető is a gyümölcshullás vagy a virághullás, az alternálódás csökkentésére. Alternálódás alatt bizonyos gyümölcsfajok sajátos tulajdonságát értjük, amelynek következtében endogén okokból évről évre igen különbö-

ző mértékű termést adnak. Végül az is lehetséges, hogy növény-növekedést szabályozó anyagok segítségével a szüret idejére a gyümölcsök leszakításához szükséges erőt csökkentjük, mellyel lehetővé válik a mechanikus szüretelés vagy a kézi szüretelés könnyíthető.

Előnyös módon a találmány szerinti készítmények hatóanyagai a haszonnövények szaporítóanyagára is felvihetők. Különösen kiemelendő ilyen szempontból a magcsávázás. Szaporítóanyag alatt a magokat, dugványokat és olyan más növényi részeket értünk, melyekből a kultúrnövények kihajthatók.

Az (I) általános képletű vegyületeket készítményként, a készítmények formálásánál általánosan alkalmazott segédanyagokkal együtt használjuk és ilyen célra például emulziókoncentrátum, közvetlenül permetezhető vagy hígítható oldat, híg emulzió, nedvesíthető por, oldható por, porozószer, granulátum alakra vagy például polimer anyagokba kapszulázott alakra dolgozzuk fel, önmagukban ismert módszerekkel. Az alkalmazási eljárást, például permetezést, ködösítést, porozást, kenést vagy öntözést mindenkor az adott készítménytől, az elérendő céltól és az adott körülményektől függően választjuk meg.

A készítményeket, azaz az (I) általános képletű hatóanyagot és egy szilárd vagy folyékony adalékanyagot tartalmazó keveréket vagy elegyet önmagukban ismert módszerekkel állítjuk elő, például oly módon, hogy a hatóanyagot töltőanyagokkal, például oldószerrel, szilárd hordozóanyagokkal és adott esetben felületaktív vegyületekkel (tenzidekkel) alaposan összekeverjük és/vagy eldörzsöljük.

Oldószerként a következők jönnek számításba: aromás szénhidrogének, előnyösen a 8–12 szénatomot tartalmazó frakciók, például xilolegyek vagy szubsztituált naftalinok, ftálsavészterek, például a dibutil- vagy a dioktil-ftalát, alifás szénhidrogének, például a ciklohexán vagy paraffinok, alkoholok és glikolok, valamint ezek étere és észtere, például az etanol, etilén-glikol, etilén-glikol-monometil- vagy -etil-éter, ketonok, például a ciklohexanon, erősen poláros oldószer, például az N-metil-2-pirrolidon, dimetil-szulfoxid vagy a dimetil-formamid, valamint adott esetben epoxidált növényi olajok, például epoxidált kókuszdióolaj vagy szójaolaj, vagy a víz.

Szilárd hordozóanyagokként például a porozószer és diszpergálható porok készítésére általában természetes kőzetlisztek, például kalcitot, talkumot, kaolint, montmorillonitot vagy attapulgitot használunk. A fizikai tulajdonságok javítása céljából a hordozóanyagokhoz erősen diszpergált kovasavat vagy erősen diszpergált nedvszívóképes polimerizátumokat keverhetünk. Szemcsés, adszorptív granulátumhordozóként a pórusos típusúak, például a habkő, téglatormelek, szepiolit vagy bentonit említendő, nem szorptív hordozóanyagokként például a kalcit vagy a homok jön számításba. Ezen kívül nagyszámú, szerves és szervetlen, előgranulált anyagot, például főként dolomitot vagy aprított növényi maradékokat használhatunk.

Felületaktív anyagokként a formálandó (I) általános képletű hatóanyag jellegétől függően nemionos, kat-

ion- és/vagy anionaktív tenzidek jönnek számításba, olyanok, amelyek jó emulgeáló-, diszpergáló- és nedvesítő tulajdonságokkal rendelkeznek. A tenzidekhez sorolandók a tenzidelegyek is.

5 Megfelelő anionos tenzidek mind az úgynevezett vízdoldható szappanok, mind a vízdoldható szintetikus felületaktív vegyületek.

Szappanokként a magasabb szénatomszámú (10–22 szénatomos) zsírsavak alkálifém-, alkáliföldfém- vagy adott esetben szubsztituált ammóniumsói, például az olaj- vagy sztearinsav nátrium- vagy káliumsói, vagy természetes zsírsavelegyek, például a kókuszdió- vagy faggyúolajból nyerhető természetes zsírsavelegyek nátrium- vagy káliumsói jönnek számításba. Meg kell

15 említeni továbbá a zsírsav-metil-aurinsókat is. Előnyösen azonban úgynevezett szintetikus tenzideket, főként zsírszulfonátokat, zsírszulfátokat, szulfonált benzimidazol-származékokat vagy alkil-aril-szulfonátokat alkalmazunk.

20 A zsírszulfonátok vagy -szulfátok általában alkálifém-, alkáliföldfém- vagy adott esetben szubsztituált ammóniumsóként állnak és egy 8–22 szénatomos alkilcsoportot tartalmaznak, mely alkilcsoport az acilcsoportok alkilrészét is jelentheti. Ilyenek például a lignin-szulfonsav, a dodecil-kénsavészter vagy egy természetes zsírsavakból előállított zsíralkohol-szulfát-elegy nátrium- vagy kalciumsói.

Ugyancsak ide tartoznak a zsíralkohol-etilén-oxid-adduktumok kénsavésztereinek és kénsav-származékainak sói is. A szulfonált benzimidazol-származékok előnyösen 2-szulfonsav-csoportokat és egy, 8–22 szénatomos zsírsavgyököt tartalmaznak. Alkil-, aril-szulfonátok például a dodecil-benzolszulfonsav, dibutil-naftalin-szulfonsav vagy egy naftalin-szulfonsav-formaldehid-kondenzációs termék nátrium-, kalcium- vagy trietanol-aminsói.

Ugyancsak alkalmazhatók a megfelelő foszfátok is, például egy p-nonil-fenol-(4–14 etilén-oxid)-adduktum foszforsav-észtereinek sói vagy a foszfolipidek is.

40 A nemionos tenzidek elsősorban az alifás vagy cikloalifás alkoholok, telített vagy telítetlen zsírsavak és alkilfenolok poliglikol-éter-származékai, melyek 3–10 glikol-éter-csoportot tartalmaznak és az (alifás) szénhidrogényekben 8–20 szénatom van és az alkil-fenolok alkilcsoportjában 6–18 szénatommal rendelkeznek.

További alkalmas nemionos tenzidek a vízdoldható, 20–250 etilén-glikol-éter-csoportot és 10–100 propilén-glikol-éter-csoportot tartalmazó poli(etilén-oxid)-propilén-glikol-, -etilén-diamino-propilén-glikol- és -alkil-propilén-glikol-adduktumok, amely utóbbiak az alkil-láncban 1–10 szénatomot tartalmaznak. E vegyületek általában 1–5 etilén-glikol-egységet tartalmaznak propilén-glikol-egységként.

Nemionos tenzidek a nonil-fenol-polietoxi-etanolok, ricinusolaj-poliglikol-éterek, polipropilén-poli(etilén-oxid)-adduktumok, tributil-fenoxi-polietoxi-etanol-polietilén-glikol és oktil-fenoxi-polietoxi-etanol.

Alkalmazhatók ezenkívül a poli(oxi-etilén)-szorbítán zsírsavésztere is, például a poli(oxi-etilén)-szorbítán-trioleát is.

A kationos tenzidek mindenekelőtt kvaterner ammóniumsók, melyek N-szubsztituensként legalább egy, 8–22 szénatomos alkilcsoportot tartalmaznak és további szubsztituenseikként rövid szénláncú, adott esetben halogénezett alkil-, benzil- vagy rövid láncú hidroxil-alkil-csoportok állhatnak. A sók előnyösen halogenidok, metil-szulfátok vagy etil-szulfátok. Ilyen például a sztearil-trimetil-ammónium-klorid vagy a benzil-dí(2-klór-etil)-etil-ammónium-bromid.

A formálási technikában általánosan alkalmazott tenzideket többek között az alábbi irodalmi hivatkozások ismertetik:

1986 International McCutcheon's Emulsifiers & Detergens, Glen Rock, N. J., USA;

H. Stache, „Tensid-Taschenbuch”, 2. kiadás, C. Hanser Verlag, München, Wien, 1981;

M. and J. Ash „Encyclopedia of Surfactant”, I–III. kötet, Chemical Publishing Co., New York, 1980–1981.

A hatóanyagot tartalmazó készítmények általában 0,5–95 tömeg%, főleg 0,1–80 tömeg% (I) általános képletű hatóanyagot, 1–99,9 tömeg% egy vagy több szilárd vagy folyékony adalékanyagot és 0–25 tömeg% tenzidet tartalmaznak.

Az előnyös készítmények főleg az alábbi összetétellel rendelkezhetnek (a % mindig tömeg%-ot jelent):

Emulziókoncentrátum:

hatóanyag: 1–20%, előnyösen 5–10%
felületaktív anyag: 5–30%, előnyösen 10–20%
folyékony hordozóanyag: 50–94%, előnyösen 70–85%.

Porózószér:

hatóanyag: 0,1–10%, előnyösen 0,1–1%
szilárd hordozóanyag: 99,9–90%, előnyösen 99,9–99%.

Szuszpenziókoncentrátum:

hatóanyag: 5–75%, előnyösen 10–50%
víz: 94–25%, előnyösen 88–30%
felületaktív szer: 5–40%, előnyösen 2–30%.

Nedvesíthető por:

hatóanyag: 0,5–90%, előnyösen 1–80%
felületaktív szer: 0,5–20%, előnyösen 1–15%
szilárd hordozóanyag: 5–95%, előnyösen 15–90%

Granulátum:

hatóanyag: 0,5–30%, előnyösen 3–15%
szilárd hordozóanyag: 99,5–70%, előnyösen 97–85%

Míg a kereskedelmi forgalomban előnyösen koncentrált készítmények férhetők hozzá, a felhasználó általában hígított készítményt alkalmaz. A fenti készítmények egészen 0,001% hatóanyag-tartalomig hígíthatók. A készítmények felhasználási mennyisége általában 0,001–4 kg hatóanyag/ha, előnyösen 0,005–1 kg hatóanyag/ha.

A készítmények tartalmazhatnak ezenkívül további adalékanyagokat is, például stabilizálószerket, habzágatlót, viszkozitást szabályozó szerket, kötőanyagot, tapadást elősegítő szerket, valamint műtrágyákat vagy más, különleges hatások elérése adagolt hatóanyagokkal is összekeverhetők.

Az alábbi példákban a találmány szerinti készítmé-

nyeket, illetve a találmány szerinti eljárást részletesebben is ismertetjük, anélkül azonban, hogy a találmány oltalmi körét kizárólag a példákban megadott kiviteli alakokra korlátoznánk. A %-os értékek tömeg%-ot jelentenek.

Előállítási („H” jelű) példák

1.1 példa

4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-nitro-benzol

375 g 4-bróm-2-fluor-5-izopropoxi-nitro-benzolt teszünk 1 liter dimetil-formamidba. A reakcióelegyhez keverés közben 145 g rész(I)-cianidot adunk és argon atmoszférában, lassan 155 °C-ra melegítjük. Körülbelül 140 °C belső hőmérsékletnél enyhén exoterm reakció lép fel (a belső hőmérséklet 153 °C-ig emelkedik, majd körülbelül 45 perc múlva lassan csökken). Ezután a reakcióelegyet további egy órán át keverjük 155 °C fürdőhőmérsékleten. Lassan hagyjuk szobahőmérsékletűre hűlni, majd az oldatlan üledékről dekantáljuk és a reakcióoldatot vízsugár-szivattyús vákuumban bepároljuk. A barna olajos maradékhoz 1 liter etil-acetátot adunk, jól átkeverjük és ismét dekantáljuk. Az etil-acetátos oldatot kezdődő kristályosodásig bepároljuk és jeges vízzel hűtjük. A kiváló terméket leszívátjuk, jéghideg etil-acetáttal mossuk és szárítjuk. Az anyalúggal megismételjük a fenti eljárást.

Így 227 g (XV) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk, beige színű, pelyhes, por alakú anyag alakjában. A termék 116–118 °C-on olvad.

1.2 példa

4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-anilin

160 g ón(II)-klorid \times 2 H₂O-t teszünk 184 ml 37 tömeg%-os sósavba. A színtelen oldatba keverés közben 44 g 4-ciano-2-fluor-5-izopropoxi-nitro-benzolt adunk részletenként. Eközben narancs színű szuszpenziót nyerünk. A szuszpenziót lassan forraljuk visszafolyatás közben. Körülbelül 75 °C hőmérsékletnél vörös színű oldat képződik. Az oldatot még 10 percen át keverjük 110 °C fürdőhőmérsékleten, majd szobahőmérsékletűre hűtjük le és ezután körülbelül 1,5 liter jeges vízre öntjük, a pH-t telített nátrium-hidroxid oldattal 9 értékre állítjuk. A képződött beige színű szuszpenziót kétszer extraháljuk etil-acetáttal. Az egyesített etil-acetátos fázisokat magnézium-szulfát felett szárítjuk és vákuumban bepároljuk, a maradékot nagyvákuumban desztilláljuk.

Így 32,2 g (XVI) képletű, cím szerinti vegyületet nyerünk, halványsárga, olajos anyag alakjában. Ez a termék 13,3 Pa nyomáson 143–145 °C-on forr.

1.3 példa

2-(5-karboxi-2-fluor-4-nitro-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

95 g 2-(5-karboxi-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont adunk részletenként 5 °C-on 75 ml 96 tömeg%-os kénsavhoz. Ezután szintén 5 °C-on, erős keverés közben, ehhez a keverékhez 15 ml 100 tömeg%-os salétomsavat csepegtetünk, majd szo-

bahőmérsékleten keverjük 5 órán át, végül jégre öntjük. A csapadékot leszívátjuk, hideg vízzel mossuk és szárítjuk.

Így 98 g, (XVII) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk kristályos anyag alakjában. A termék 225–227 °C-on olvad.

1.4. példa

2-(4-amino-5-karboxi-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

71 g 2-(5-karboxi-2-fluor-4-nitro-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont 720 ml tetrahidrofuránban 25–30 °C-on, 14 g Raney-nikkel jelenlétében, normál nyomáson, hidrogénnel hidrogénezünk. A sztöchiometrikus mennyiségű hidrogén felvétele után a katalizátort elválasztjuk és az oldatot bepároljuk.

Így 54,6 g (XVIII) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk, kristályos anyag alakjában. A termék 289 °C-on olvad.

1.5 példa

2-(5-karboxi-2-fluor-4-jód-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

25 g 2-(4-amino-5-karboxi-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont adunk részletenként 100 ml jégecet és 100 ml 96 tömeg%-os kénsav elegyéhez, keverés közben. Ezalatt a hőmérséklet 50 °C-ra emelkedik. A reakcióelegyet teljes oldatképződésig keverjük tovább. Ezután 5 °C-ra hűtjük le és 6,4 g nátrium-nitrit 40 ml vízzel készített oldatával diazotáljuk. A reakcióelegyet további 6 órán át keverjük szobahőmérsékleten, a diazotált terméket 12,6 g kálium-jodid 80 ml vízzel készített oldatába csepegtetjük és további egy órán át ex keverjük 40 °C-on. A reakciókeveréket jég-víz keverékbe öntjük, etil-acetáttal extraháljuk, a szerves fázist nátrium-hidrogén-szulfid oldattal mossuk, szárítjuk, bepároljuk és metanolból átkristályosítjuk.

Így 25 g, (XIX) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk, kristályos anyag alakjában. A termék 205–207 °C-on olvad.

2. példa

1-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-fenil]-3,4-dimetil-pirrol-(1H)-2,5-dion

8,9 g 4-ciano-2-fluor-5-izopropoxi-anilint és 6,3 g dimetil-maleinsavanhidridet 50 ml xilolban, 1 g 4-(dimetil-amino)-piridin mint katalizátor jelenlétében visszafolyásig melegítünk. (Nagyobb anyagmennyiségek alkalmazása esetén előnyösebb, ha a reakciót vízleválasztó készüléket használva végezzük.) A xilolt vízsugárszivattyús vákuumban ledesztilláljuk, a maradékot etil-acetátban felvesszük és semlegesítjük. A szerves fázist nátrium-szulfát felett szárítjuk és az oldószert ledesztilláljuk. A maradékot etanolból átkristályosítjuk.

Így 7,1 g 6.4 számú cím szerinti vegyületet nyerünk, kristályos anyag alakjában. A termék 128–132 °C-on olvad.

3. példa

2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

9,7 g 4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-anilint és 5 7,6 g 3,4,5,6-tetrahidro-ftálsavanhidridet 300 ml propionsavban összesen 30 órán át forralunk visszafolyatás közben. A reakció teljessé tétele céljából 16 óra után még 5 g anhidridet adunk a reakcióelegyhez. A sötétre színeződött reakciókeveréket 2 napon át hagyjuk állni szobahőmérsékleten, majd az ezidő alatt kivált sárga színű csapadékot szűrjük. Az így keletkezett terméket toluolból kristályosítjuk át.

Így 6,7 g 1.4 sz. cím szerinti vegyületet nyerünk kristályos anyag alakjában. Olvadáspontja: 138–139 °C. A toluolból történő átkristályosítás után nyert kristályok körülbelül 1/3 mól toluolt tartalmaznak.

4.1 példa

2-(5-karboxi-4-ciano-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

4,2 g 2-(5-karboxi-2-fluor-4-jód-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion és 0,9 g réz(I)-cianid 50 ml acetonitrillel készített keverékét 12 órán át forraljuk visszafolyatás közben. Lehűtés után az oldhatatlan maradékot szűrjük és a szűrletet szárazra pároljuk.

Így 2,7 g cím szerinti 2.1 számú vegyületet nyerünk kristályos anyag alakjában. A termék 203–204 °C-on olvad.

4.2 példa

2-[5-(klór-karbonil)-4-ciano-2-fluor-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

6 g 2-(5-karboxi-4-ciano-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont, 60 ml tionil-kloridot és 5 csepp dimetil-formamidot egy órán át forralunk visszafolyatás közben. Lehűtés után vákuumban bepároljuk.

Így 6 g (XX) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk, mely sűrűn folyó olajos anyag. Ezt a terméket tisztítás nélkül használjuk fel a további reakciókban.

4.3 példa

2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi-karbonil)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

5 ml izopropanol, 5 ml trietil-amin és 50 ml toluol elegyéhez szobahőmérsékleten 7,1 g 2-[5-(klór-karbonil)-4-ciano-2-fluor-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion 50 ml toluollal készített oldatát csepegtetjük, eközben a hőmérséklet 45 °C-ra emelkedik. A reakcióelegyet egy órán át keverjük szobahőmérsékleten, ezután a trietil-amin-hidrokloridot elválasztjuk és a szűrletet bepároljuk.

Így 5 g, 2.5 számú cím szerinti vegyületet nyerünk kristályos anyag alakjában. A termék 173–176 °C-on olvad.

5.1 példa

2-[5-(klór-karbonil)-2-fluor-4-jód-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-dion

60 16,4 g 2-(5-karboxi-2-fluor-4-jód-fenil)-4,5,6,7-

tetrahydro-izoindol-(2H)-1,3-diont, 6 ml tionil-kloridot és 200 ml toluolt 12 órán át forralunk visszafolytatás közben. A reakcióelegyet lehűtése után vákuumban bepároljuk.

Így 17,6 g (XXI) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk, kristályos anyag alakjában. A termék 114–117 °C-on olvad.

5.2 példa

2-[2-fluor-4-jód-5-(izopropil-oxi-karbonil)-fenil]-4,5,6,7-tetrahydro-izoindol-(2H)-1,3-dion

8 ml izopropanol, 12 ml trietil-amin és 120 ml toluol keverékéhez szobahőmérsékleten 17,1 g 2-[5-(klór-karbonil)-2-fluor-4-jód-fenil]-4,5,6,7-tetrahydro-izoindol-(2H)-1,3-diont csepegtetünk. 12 óra reakcióidő letelte után a kiváló trietil-amin-hidrokloridot szűrjük és a szűrletet bepároljuk.

Így 7,2 g (XXII) képletű cím szerinti vegyületet nyerünk, kristályos anyag alakjában. A termék 127–132 °C-on olvad.

5.3 példa

2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-karbonil]-4,5,6,7-tetrahydro-izoindol-(2H)-1,3-dion

2,3 g 2-[2-fluor-4-jód-5-(izopropil-oxi)-karbonil-fenil]-4,5,6,7-tetrahydro-izoindol-(2H)-1,3-dion és 0,5 g réz(I)-cianid 20 ml dimetil-formamiddal készített keverékét egy órán át melegítjük 100 °C-on, keverés közben. Lehűtés után a maradékot szűrjük és a szűrletet bepároljuk.

Így 1,4 g (2.5 képletű) cím szerinti vegyületet nyerünk, kristályos anyag alakjában. A termék 173–176 °C-on olvad.

Az előzőekben a 2–5. példákban leírtakhoz hasonlóan állítjuk elő az 1–5. táblázatokban feltüntetett vegyületeket.

1. táblázat

(A) általános képletű vegyületek

Vegyület száma	X	R ⁴	Fizikai állandó
1.4	F	-C ₃ H ₇ (i)	op.: 138–139 °C*
1.15	F	-CH ₂ C≡CH	op.: (196 °C) 200–202 °C

* A kristályok kb. 1 mól toluolt tartalmaznak.

2. táblázat

(B) általános képletű vegyületek

Vegyület száma	X	R ³	Fizikai állandó
2.1	F	-OH	op.: 203–204 °C
2.2	F	-OCH ₃	op.: 136–141 °C
2.3	F	-OC ₂ H ₅	op.: 155–157 °C
2.4	F	-OC ₃ H ₇	op.: 86–90 °C
2.5	F	-OC ₃ H ₇ (i)	op.: 173–176 °C
2.8	F	-OC ₄ H ₉ (s)	op.: 80–82 °C
2.47	H	-OCH ₃	op.: (161 °C) 164–166 °C

3. táblázat (C) általános képletű vegyület

Vegyület száma	X	R ⁴	Fizikai állandó
3.2	F	C ₃ H ₇ (i)	op.: 147–149 °C

4. táblázat

(F) általános képletű vegyület

Vegyület száma	X	R ⁴	Fizikai állandó
6.4	F	C ₃ H ₇ (i)	op.: 128–132 °C

5. táblázat

(H) általános képletű vegyület

Vegyület száma	X	R ⁴	Fizikai állandó
8.4	F	C ₃ H ₇ (i)	op.: 98–100 °C

Formálási példák

F 1.1 példa

Az (I) általános képletű hatóanyagok formálási példái (A % mindenkor tömeg%-ot jelent)

a) Emulzió-koncentrátum

	a)	b)	c)
Előállítási példák szerinti hatóanyag	20%	40%	50%
kalcium-dodecil-benzol-szulfonát	5%	8%	5,8%
ricinusolaj-polietylén-glikol-éter (36 mól etilén-oxid)	5%	–	–
tributil-fenol-polietylén-glikol-éter (30 mól etilén-oxid)	–	12%	4,2%
ciklohexanon	–	15%	20%
xilolegy	70%	25%	20%

A fenti koncentrátumokból vízzel történő hígítással bármely kívánt koncentrációjú emulzió előállítható.

b) Oldat

	a)	b)	c)
Előállítási példák szerinti hatóanyag	80%	10%	5%
etilénglikol-monometil-éter	20%	–	–
polietylén-glikol (MS = 400)	–	70%	–

a) b) c)

N-metil-2-pirrolidon – 20% 5%

epoxidált kókuszosaj – – 90%

Az oldatok a legkisebb cseppekben történő alkalmazásra is alkalmasak.

c) *Granulátum*

a) b)

Előállítási példák szerinti hatóanyag 5% 10%

kaolin 94% –

nagydiszperzitású kovasav 1% –

attapulgit – 90%

A hatóanyagot oldjuk, a hordozóanyagra felpermetezzük, majd az oldószert vákuumban lepároljuk.

d) *Porozószer*

a) b) c)

Előállítási példák szerinti hatóanyag 2% 5% 8%

nagydiszperzitású kovasav 1% 5% 5%

talkum 97% – 10%

kaolin – 90% 77%

A hordozóanyag és hatóanyag alapos összekeverésével felhasználásra kész porozószert nyerünk.

e) *Nedvesíthető por*

a) b)

Előállítási példák szerinti hatóanyag 20% 60%

nátrium-ligninszulfonát 5% 5%

nátrium-lauril-szulfát 3% 6%

oktil-fenol-poli-etilén-glikol-éter (7–8 mól etilén-oxid) – 2%

nagydiszperzitású kovasav 5% 27%

kaolin 67% –

A hatóanyagot az adalékanyagokkal alaposan összekeverjük, és megfelelő malomban eldörzsöljük. Ily módon nedvesíthető port kapunk, melyből vízzel történő hígítással bármely kívánt koncentrációjú szuszpenzió előállítható.

f) *Extrudált granulátum*

Előállítási példák szerinti hatóanyag 10%

nátrium-ligninszulfonát 2%

karboxi-metil-cellulóz 1%

kaolin 87%

A hatóanyagot az adalékanyagokkal összekeverjük, eldörzsöljük és vízzel megnedvesítjük. A fenti elegyet extrudáljuk, majd levegőáramban szárítjuk.

g) *Borított granulátum*

Előállítási példák szerinti hatóanyag 3%

polietilén-glikol (M = 200) 3%

kaolin 94%

A finoman eldörzsölt hatóanyagot keverőberendezésben, a polietilén-glikollal megnedvesített kaolinra egyenletesen felhordjuk. Ily módon, pormentes, borított granulátumot állítunk elő.

h) *Szuszpenzió-koncentrátum*

Előállítási példák szerinti hatóanyag 40%

etilén-glikol 10%

10 nonil-fenol-poli-etilén-glikol-éter (15 mól etilén-oxid) 6%

nátrium-ligninszulfonát 10%

karboxi-metil-cellulóz 1%

37%-os, vizes formaldehid-oldat 0,2%

15 szilikonolaj (75%-os, vizes emulzió) 0,8%

víz 32%

A finoman eldörzsölt hatóanyagot az adalékanyagokkal alaposan összekeverjük. Ily módon szuszpenzió-koncentrátumot kapunk, melyből vízzel történő hígítással bármely kívánt koncentrációjú szuszpenzió előállítható.

Biológiai példák

B 1. példa

Kikelés előtti herbicid hatás

25 Közvetlenül magoknak 12–15 cm átmérőjű virág-cserépre történő ültetése előtt minden cserép felületét egyenként 250 l/ha mennyiségű, a b) formálási példa a) pontja szerinti oldatból készített 500, 250 és 125 g hatóanyag/ha felhasználási dózisnak megfelelő vizes permetlével kezeljük.

30 Ezután a cserepeket 22–25 °C hőmérsékletű és 50–70% relatív nedvességtartalmú levegőjű melegházban tartjuk. Három hét elteltével a herbicid hatást 9 értékből álló skála szerint értékeljük, és összehasonlítjuk a kezeletlen kontrollnövényekkel.

35 Az 1–4 (főleg 1–3) értékek jó, illetve igen jó herbicid hatást mutatnak. A 6–9 értékek (főleg a 7–9 értékek) igen jó toleranciát mutatnak, különösen a haszonnövények esetén.

40 A fenti kísérletben az előállítási példák szerinti vegyületek jó, illetve igen jó herbicid hatást mutattak, és a haszonnövények jó tűrőképességgel rendelkeztek.

A 2.5. számú vegyület vizsgálata során kapott eredményeket a 6. táblázatban foglaljuk össze:

6. táblázat

Kísérleti növény	Alkalmazott mennyiség (g/ha)		
	500	250	125
50 árpa	8	9	9
kukorica	8	9	9
rizs (vetőrizs)	9	9	9
szója	9	9	9
gyapot	9	9	9
55 napraforgó	9	9	9
Amaranthus ret.	1	1	1
Abutilon	1	1	1
Solanum nigrum	1	1	1
Viola tricolor	1	1	1
60 Veronica sp.	1	1	1

B 2. példa**Kikelés utáni herbicid hatás
(Kontaktherbicid)**

Különböző, egy-, illetve kétszikű gyomnövényeket kikelés után, 4–6 leveles állapotukban 500, 250, 125 és 60 g hatóanyag/ha dózisnak megfelelő mennyiségben vizes hatóanyag-diszperzióval permetezzük be, és a növényeket 24–26 °C hőmérsékleten és 45–60% relatív nedvességtartalmú levegőn tartottuk. A kezelés után 15 nappal a kísérletet az előzőekben megadott értékskála szerint értékeltük ki. Ebben a kísérletben az előállítási példák szerinti vegyületek jó, illetve igen erős herbicid hatást mutattak.

B 3. példa**Herbicid hatás vízgyomokkal szemben**

Echinochloa crus-galli és Monocharia vag. vízi gyomnövényeket 60 cm² felületű, 500 ml térfogatú műanyag tartályokba ültettünk. Elültetés után az edényeket a talaj felületéig vízzel töltöttük meg. Három nappal az elültetés után a vízszintet kissé a föld felülete fölé emeltük (3–5 mm-rel). A kezelést az ültetést követő 3 napon végeztük, a vizsgált anyagok vizes emulziójával, melyet a tartályokra 0,5–4 kg hatóanyag/ha dózisban permetezzünk. A tartályokat ezután melegházban tartottuk, a vízgyomokra nézve optimális növekedési körülmények között, azaz 25–30 °C hőmérsékleten és nagy nedvességtartalmú levegőn. A kísérletet 3 héttel az adagolás után értékeltük ki. Az 1. példa szerint előállított vegyületek kizárólag a gyomokat károsították, a rizsnövényeket nem.

Összehasonlító példa

A leírás bevezető részében említett NL-A 7 117 690 sz. szabadalmi leírás 9. példája szerinti [(9) képletű] vegyületet, mint igen közelálló szerkezetű vegyületeket a találmány szerinti készítményekben alkalmazott hatóanyagok közül az 1.4, 1.15 és 2.2 számú hatóanyagokkal hasonlítottuk össze. A vizsgálatok eredményeként a következőket kaptuk.

(1) A növények kikelés előtti herbicid hatás

Egy- és két sziklevelű vizsgálati növényeket műanyag cserepekbe, standard talajba vetettünk. Közvetlenül a vetés után a vizsgált vegyületeket 4 kg/ha mennyiségű felhasználási dózisnak megfelelő vizes szuszpenzióban kiszórtuk. A vizsgált növényeket ezután melegházban optimális körülmények között neveljük. Háromhetes kísérleti idő után a kísérletet kiértékeljük, kilenc fokozatú skála (1 jelentése teljes pusztulás, 9 jelentése nincs hatás) segítségével. Az 1–4 értékek (különösen 1–3) jó, illetőleg nagyon jó herbicid hatást jelent.

Preemergens hatás táblázatosan:

Vizsgált növény: hélazab, muhar, mustár, csillaghúr

Hatóanyag száma; ill. képlete	hélazab	muhar	mustár	csillaghúr
1.4	1	1	1	1
1.15	1	1	1	1
2.2	6	1	2	4
(9)	7	1	5	8

(2) Posztemergens herbicid hatás (kontaktherbicid)

Több gyomnövényt, mind egyszikűeket, mind kétszikűeket, kikelés után (4–6 leveles stádiumban) vizes hatóanyagoldattal, 4 kg hatóanyag/ha hatóanyag dózisban lepermetezzük, és a növényeket 24–26 °C hőmérsékleten, 45–60% nedvességtartalmú levegőben tartjuk. A kezelést követő 15 nap után a kísérletet kiértékeljük.

Három hét után a herbicid hatást kilenc fokozatú skála (1 teljes pusztulást jelent, 9 azt jelenti, hogy nincs hatás) segítségével minősítjük. Az 1–4 értékek (különösen 1–3) a jótól nagyon jóig terjedő herbicid hatást jelentenek.

Posztemergens hatás táblázatosan:

Vizsgált növény: hélazab, muhar, mustár, csillaghúr

Hatóanyag száma; ill. képlete	hélazab	muhar	mustár	csillaghúr
1.4	2	1	1	1
1.15	2	4	1	3
2.2	3	1	1	2
(9)	8	6	4	9

A példák azt mutatják, hogy a találmány szerinti készítményekben alkalmazott vegyületek a (9) képletű vegyülethez viszonyítva pre- és posztemergens hatást tekintve egyaránt az alkalmazáskor lényegesen jobb hatást mutatnak.

SZABADALMI IGÉNYPONTOK

1. Herbicid készítmény, *azzal jellemezve*, hogy hatóanyagként 0,05–80 tömeg% mennyiségben (I) általános képletű vegyületet tartalmaz – a képletben

R¹ 1–4 szénatomos alkilcsoport;

R² 1–4 szénatomos alkilcsoport vagy

R¹ és R² együttesen –(CH₂)₄-csoportot alkot, mely egy 1–4 szénatomos alkilcsoporttal lehet szubsztituálva;

X hidrogén- vagy halogénatom;

A –COR³ vagy –OR⁴ általános képletű csoport;

R³ hidroxilcsoport vagy 1–8 szénatomos alkoxi-csoport;

R⁴ 1–8 szénatomos alkilcsoport vagy 3–8 szénatomos alkenilcsoport –

önmagában ismert segédanyagok és/vagy hordozóanyagok mellett.

2. Az 1. igénypont szerinti készítmény, *azzal jellemezve*, hogy olyan (I) általános képletű hatóanyagot tartalmaz, ahol

X jelentése fluor- vagy hidrogénatom.

3. Az 1. vagy 2. igénypont szerinti készítmény, *azzal jellemezve*, hogy olyan (I) általános képletű hatóanyagot tartalmaz, ahol

A jelentése –OR⁴ általános képletű csoport, és

R⁴ izopropilcsoport vagy

A –COR³ általános képletű csoport, és

R³ szek-butil-oxi-csoport.

4. Az 1. igénypont szerinti készítmény, *azzal jellemezve*, hogy hatóanyagként 1-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-fenil]-3,4-dimetil-pirrol-1H-2,5-diont, 2-(5-karboxi-4-ciano-2-fluor-fenil)-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont, 2-[4-ciano-2-fluor-5-(n-propil-oxi-karbonil)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont, 2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont vagy 2-[4-ciano-2-fluor-5-(izopropil-oxi-karbonil)-fenil]-4,5,6,7-tetrahidro-izoindol-(2H)-1,3-diont tartalmaz.

5. Eljárás (I) általános képletű vegyületek előállítására – a képletben

R¹ 1–4 szénatomos alkilcsoport;

R² 1–4 szénatomos alkilcsoport; vagy

R¹ és R² együttesen –(CH₂)₄-csoportot alkot, mely egy 1–4 szénatomos alkilcsoporttal lehet szubsztituálva;

X hidrogén- vagy halogénatom;

A –COR³ vagy –OR⁴ általános képletű csoport;

R³ hidroxilcsoport vagy 1–8 szénatomos alkoxi-csoport;

R⁴ 1–8 szénatomos alkilcsoport vagy 3–8 szénatomos alkinilcsoport –

azzal jellemezve, hogy

a) valamely (II) általános képletű furán-2,5-diont egy (III) általános képletű anilinnal reagáltatunk, ahol R¹, R², X és A a fent megadott, vagy

b) valamely (IV) általános képletű vegyület, ahol R¹, R², X és A a fent megadott, és Y klór-, bróm- vagy jódatom, és CuCN között halogén-cianid csereakciót végzünk, vagy

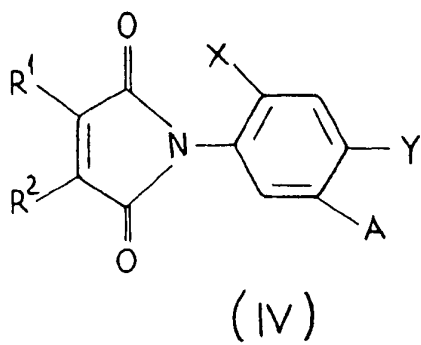
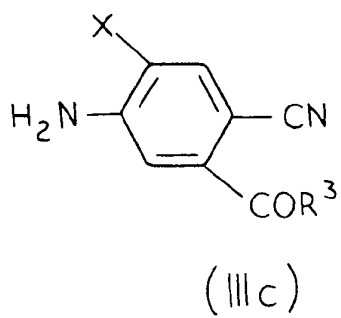
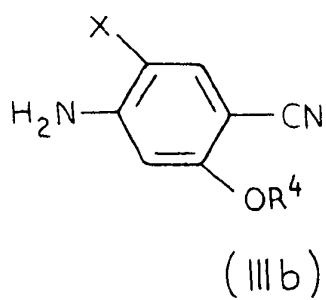
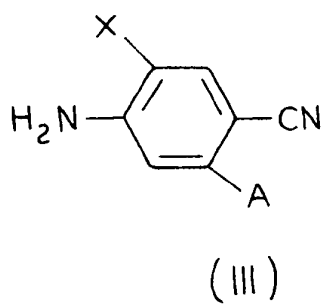
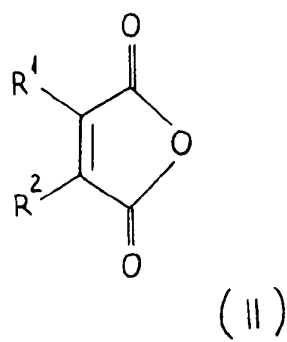
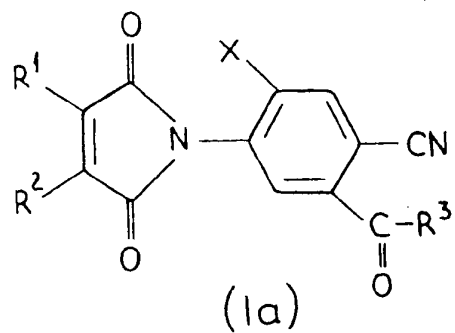
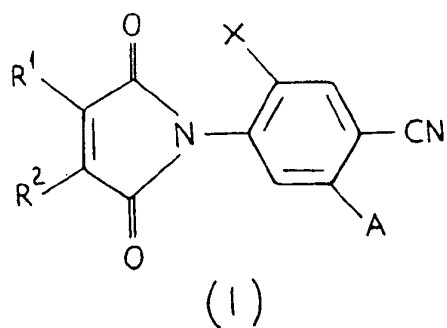
5 c) az olyan (I) általános képletű vegyületek előállítására, ahol A jelentése –COR³ képletű csoport,

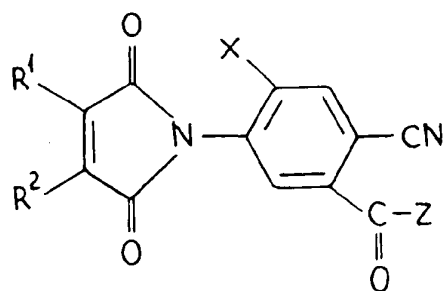
egy (V) általános képletű vegyületet, ahol R¹, R² és X az előzőekben megadott, és Z a reakciókörülmények között kicserélhető csoport, előnyösen halogénatom vagy (1–4 szénatomos alkil)-karbonil-oxi-csoport, egy (VI) általános képletű vegyülettel, ahol R³ a fent megadott, kondenzálunk.

6. Az 5. igénypont szerinti eljárás, olyan (I) általános képletű vegyületek előállítására, amelyekben X jelentése fluoratom vagy hidrogénatom, és R¹, R² és A az 5. igénypontban megadott jelentésű, *azzal jellemezve*, hogy a megfelelő kiindulási anyagokat alkalmazzuk.

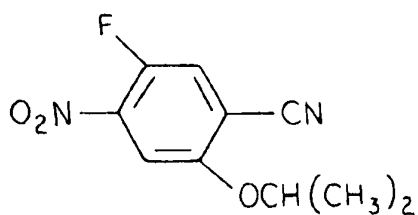
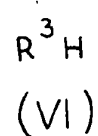
7. Az 5. igénypont szerinti eljárás, olyan (I) általános képletű vegyületek előállítására, amelyekben A jelentése –OR⁴ csoport és R⁴ izopropilcsoport, vagy ACOR³ csoport, ahol R³ szek-butil-oxi-csoportot képvisel, míg R¹, R² és X az 5. igénypontban megadott jelentésű, *azzal jellemezve*, hogy a megfelelő kiindulási anyagokat alkalmazzuk.

25

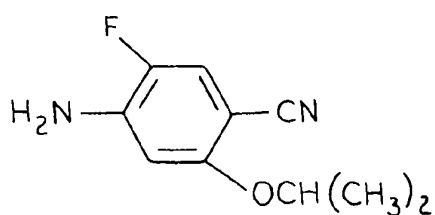




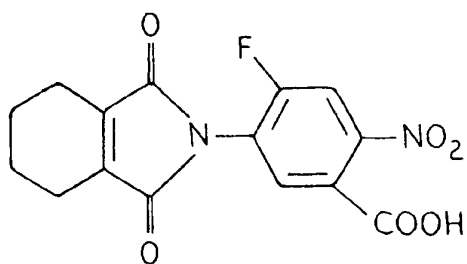
(V)



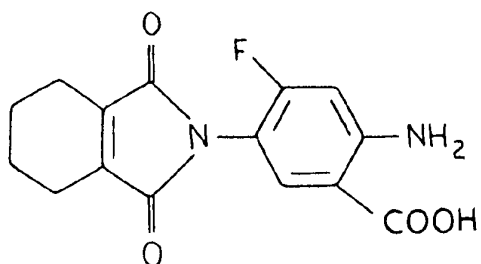
(XV)



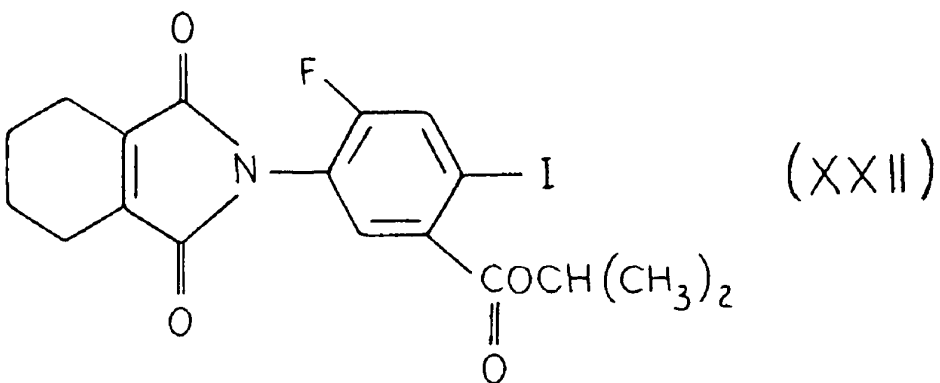
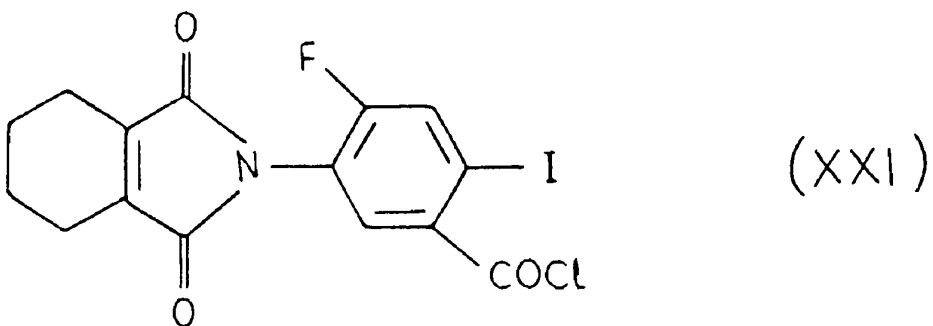
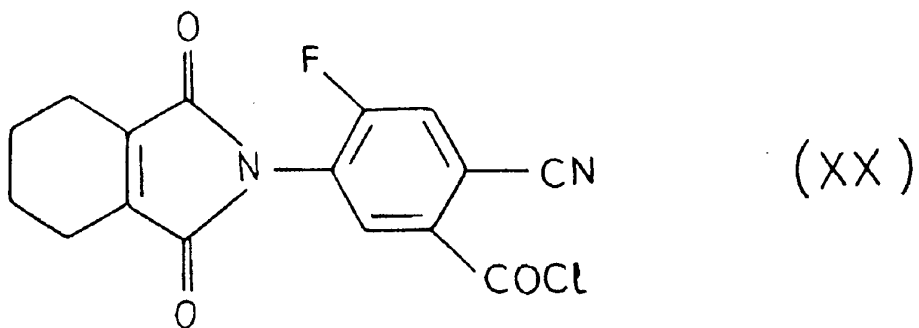
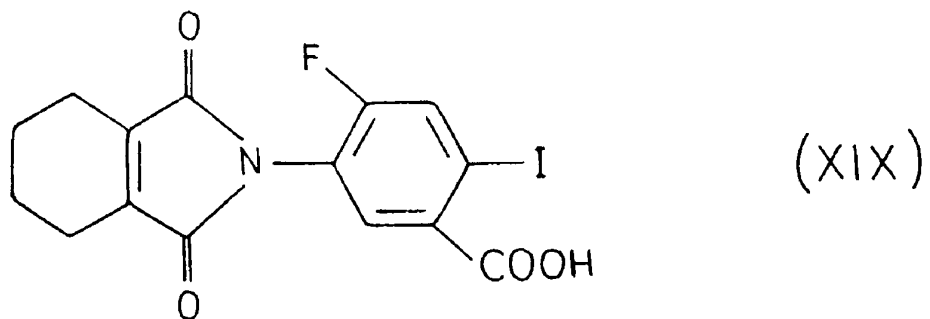
(XVI)

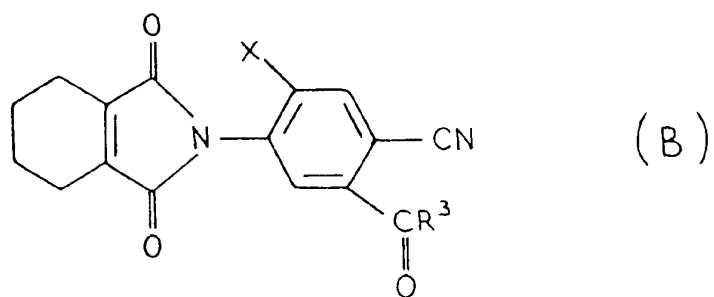
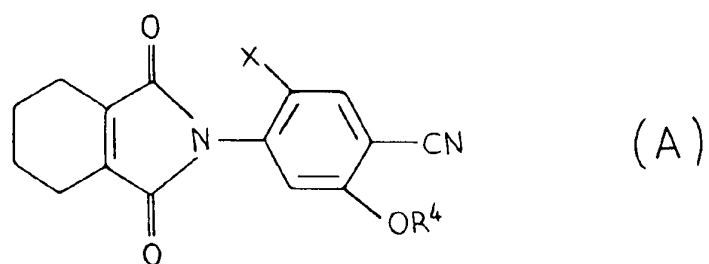
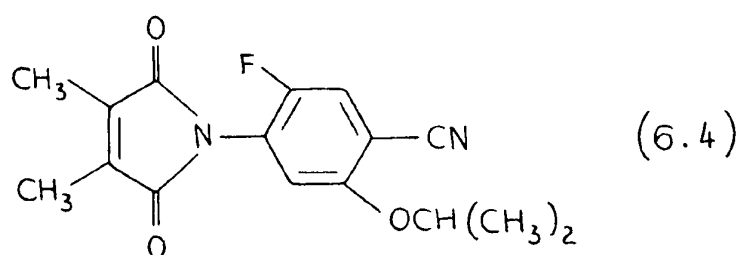
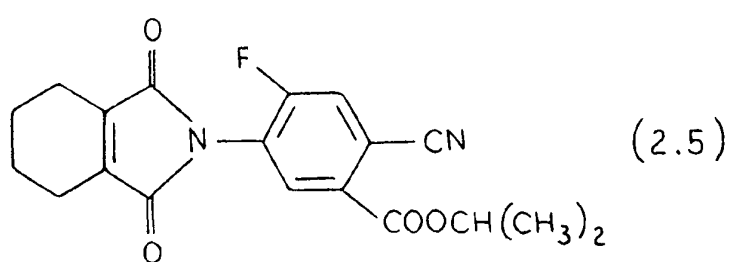
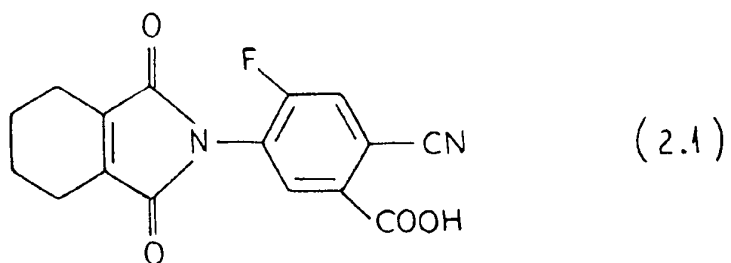


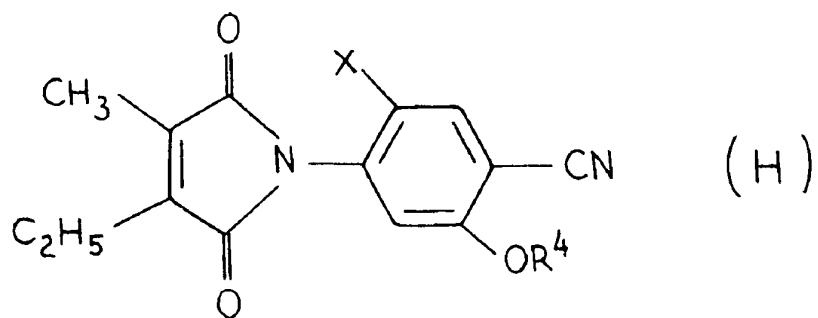
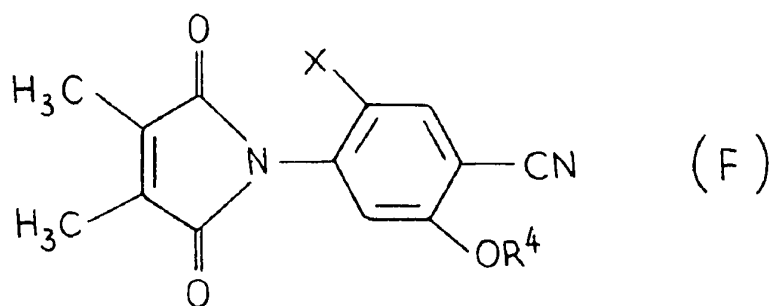
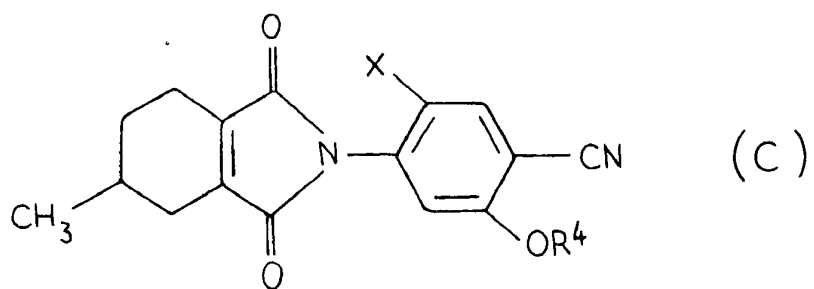
(XVII)



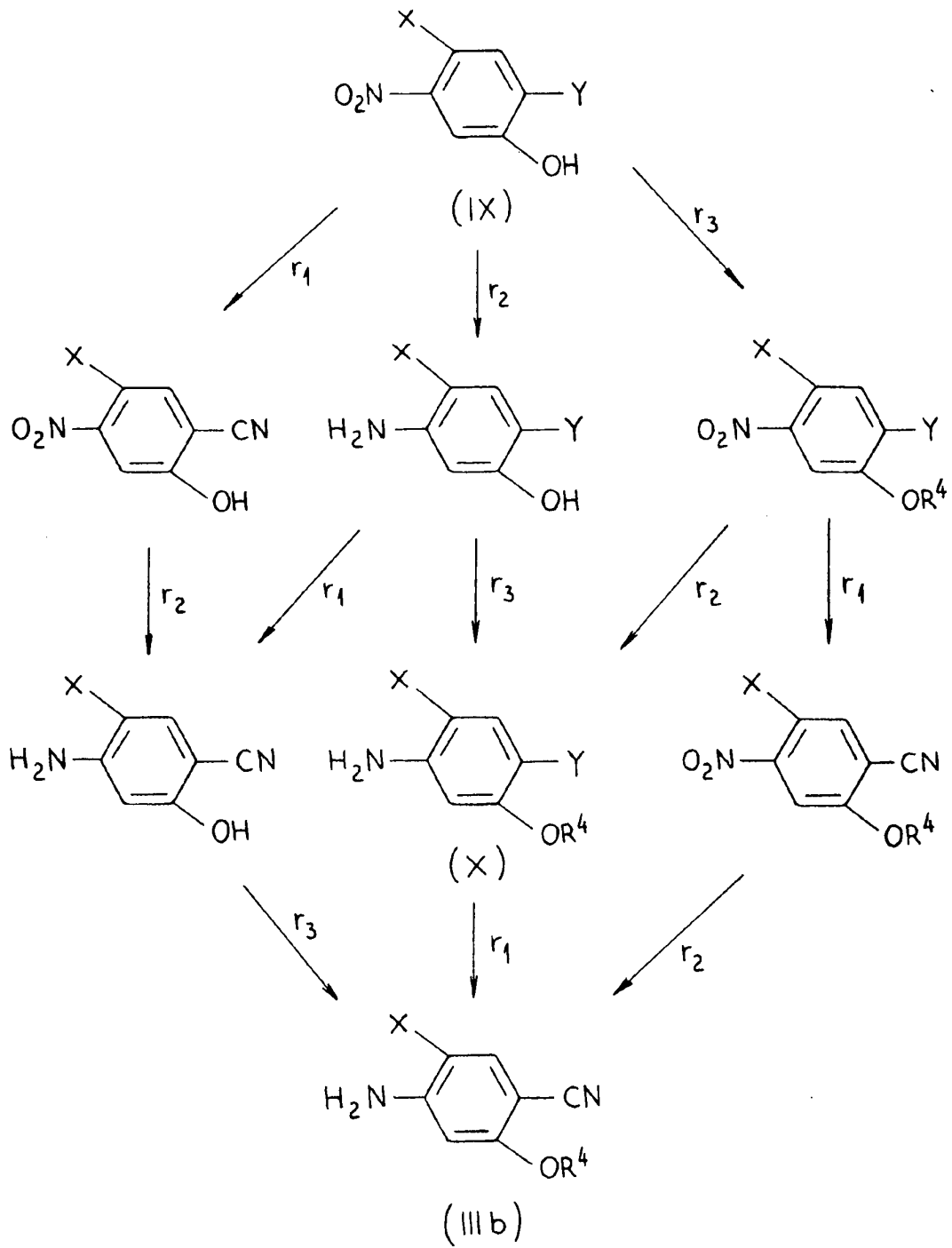
(XVIII)



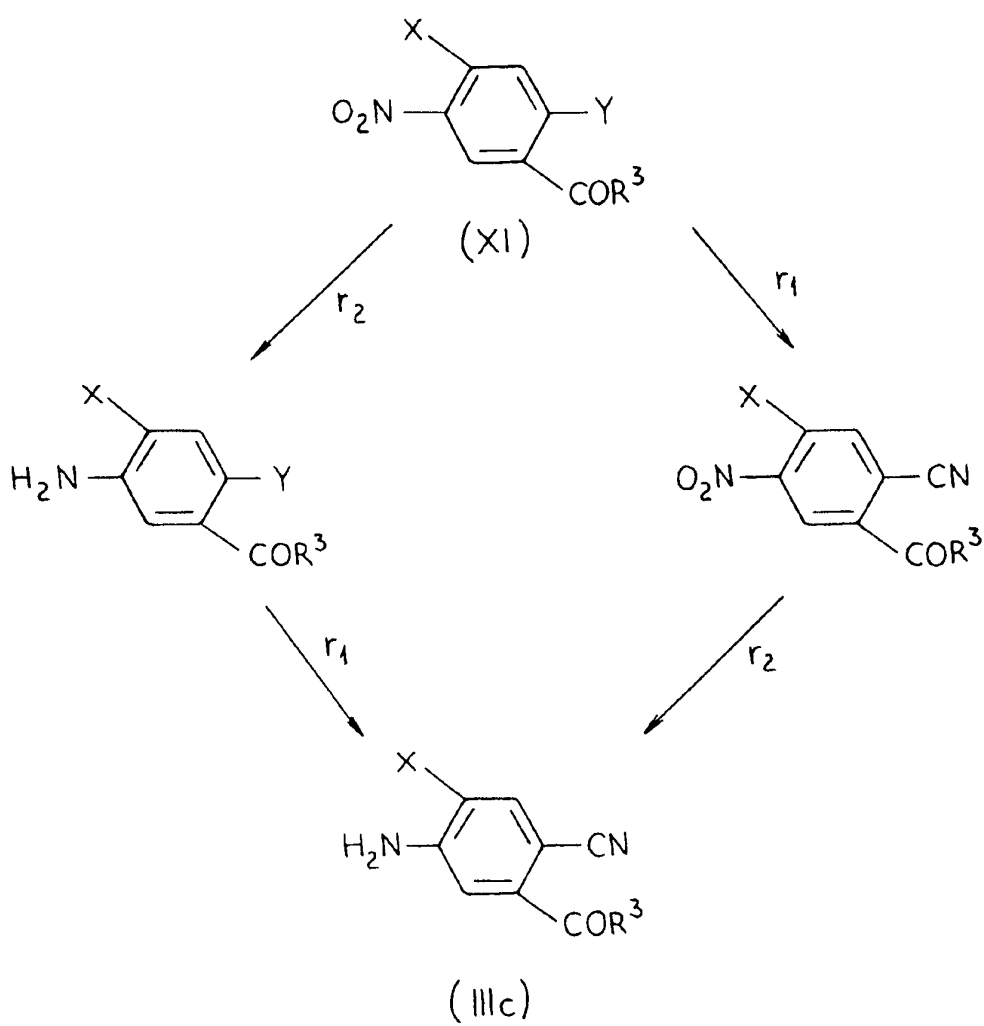




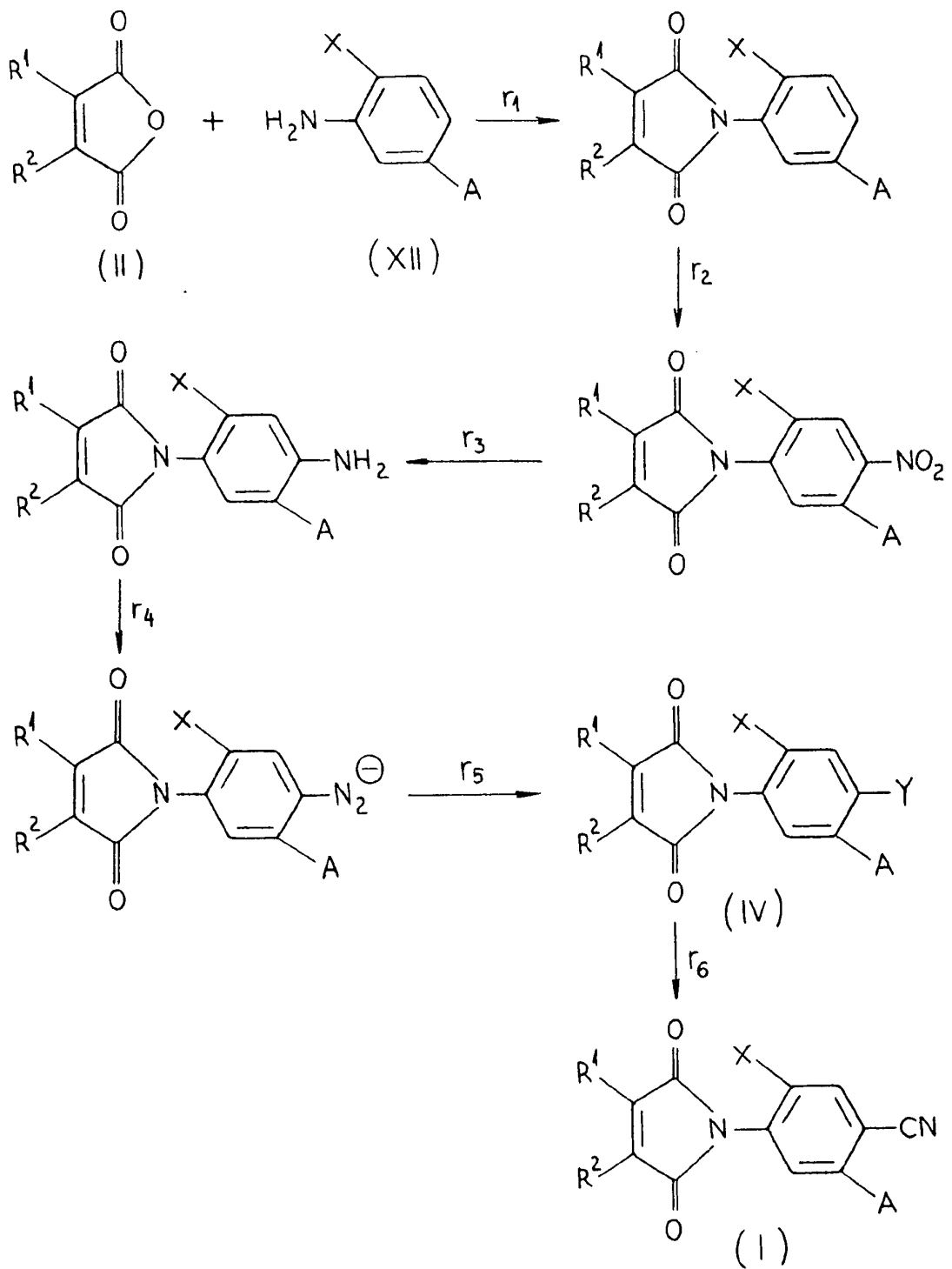
1. reakcióvázlat



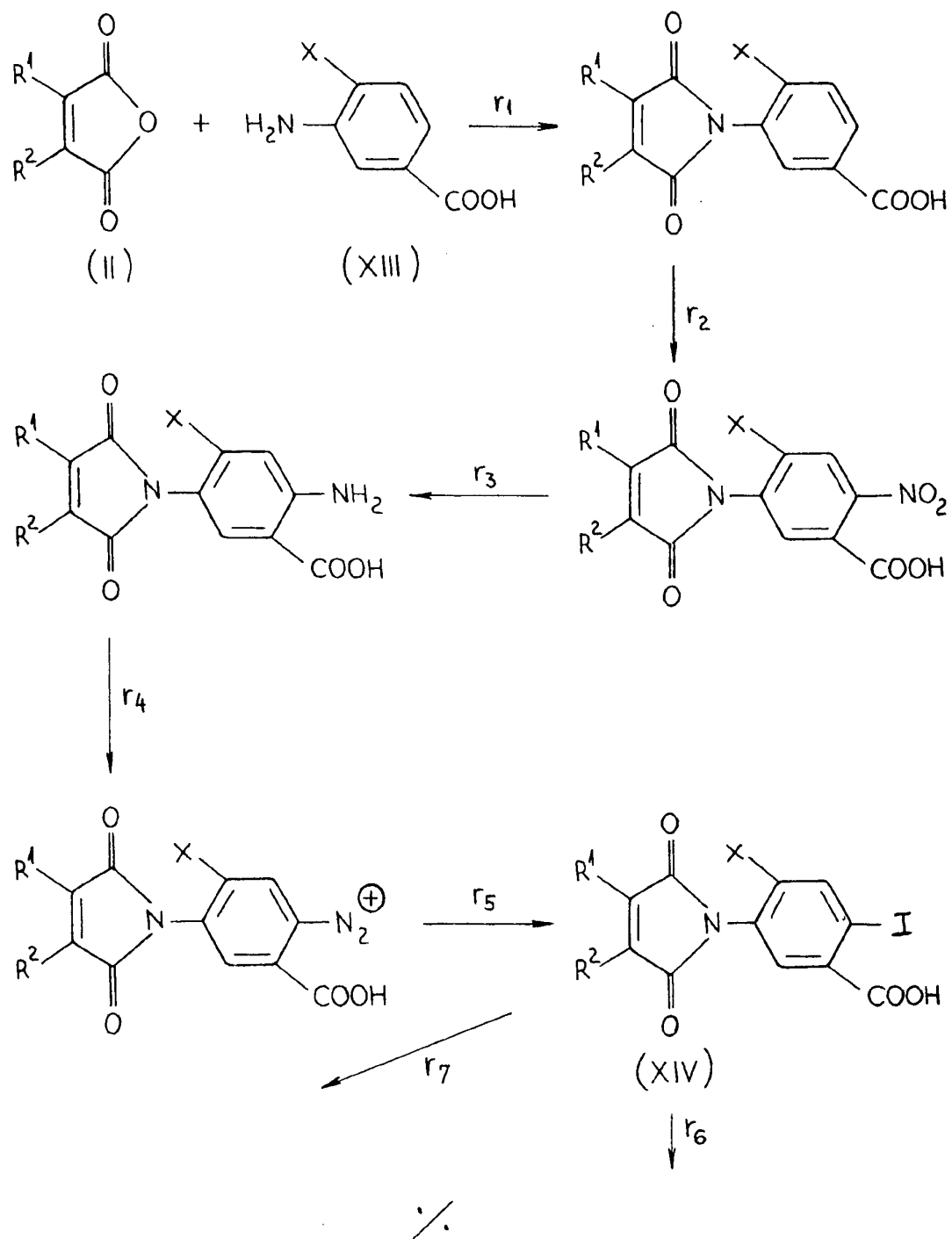
2. reakcióvázlat



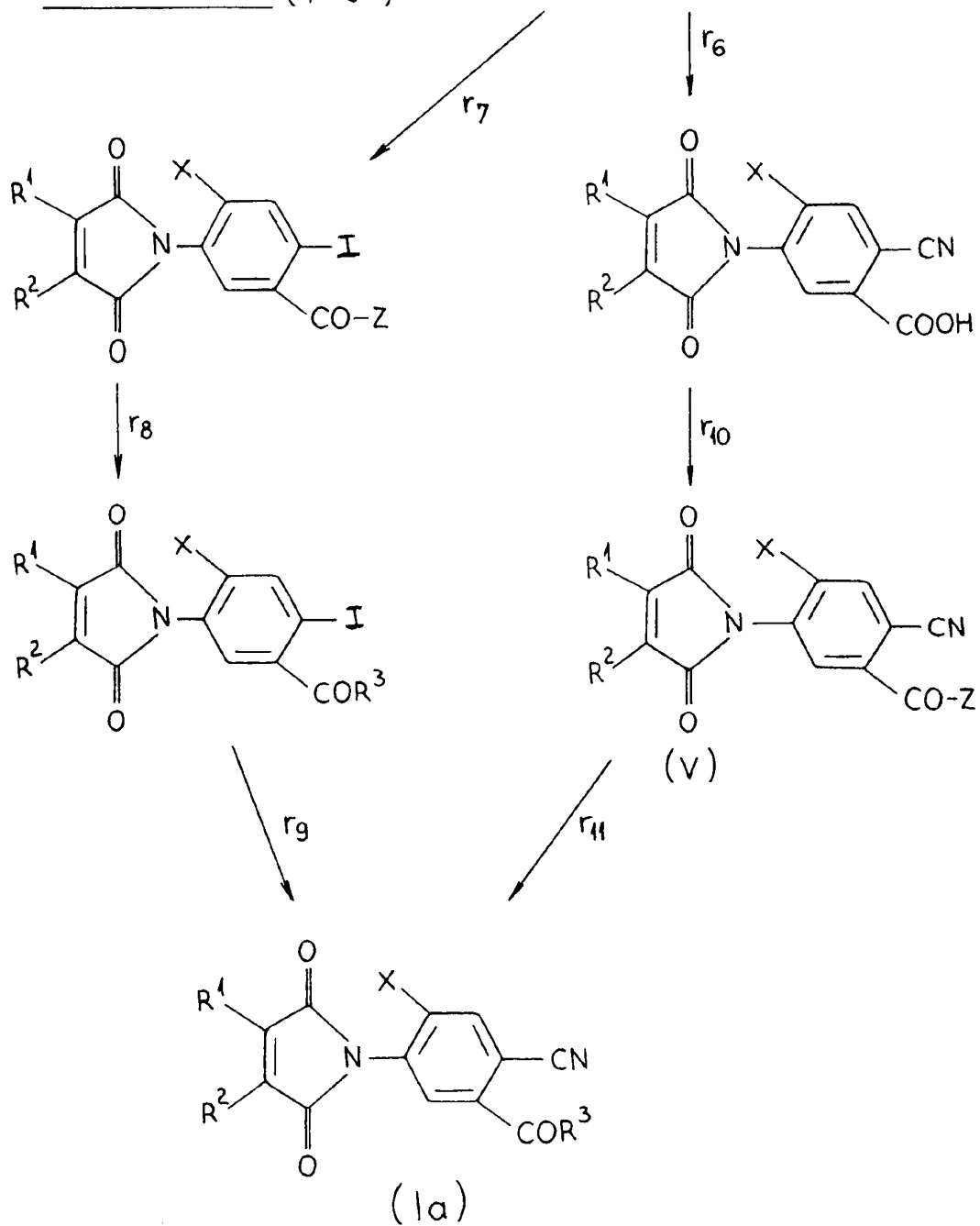
3. reakcióvázlat

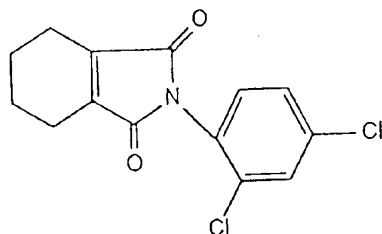


4. reakcióvázlat

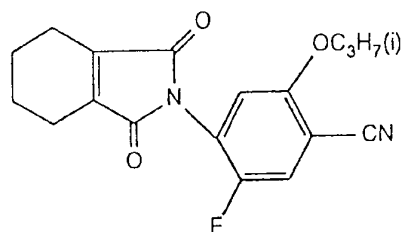


4. reakcióvázlat (folyt.)

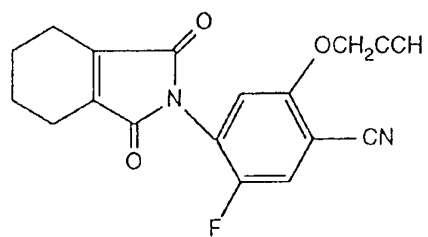




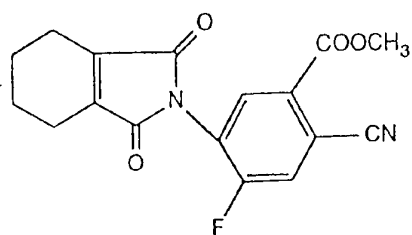
(9)



(1.4)



(1.15)



(2.2)