

AÑO

Expediente núm.



246489

REGISTRO DE LA PROPIEDAD INDUSTRIAL

CERTIFICADO DE ADICION

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se acompaña a la solicitud de

un **CERTIFICADO DE ADICION** en España,

a favor de

IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED, de nacionalidad
entidad inglesa domiciliado en **Imperial Chemical House**,
calle de Millbank, Londres, Inglaterra. núm.

por:

• **Mejoras introducidas**
....., en el objeto de la patente principal núm. 233.192
que fué concedida en 30 de marzo de 1957 por
« **Perfeccionamientos en composiciones fungicidas** ».

1er CERTIFICADO DE ADICION
=====

I.C.I. Case No.G.13300.
=====

Memoria Descriptiva
sobre:

2 46469



"Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 233.192, concedida en 30 de marzo de 1957, por "Perfeccionamientos en composiciones fungicidas".
=====

Solicitante:

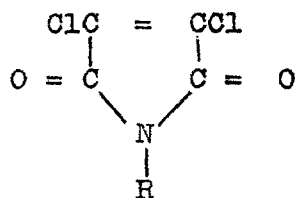
IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED, entidad inglesa, domiciliada en Imperial Chemical House, Millbank, Londres, Inglaterra.
=====

Este invento se refiere a perfeccionamientos en, o relativos a, composiciones fungicidas para la destrucción o el control de los hongos, y constituye una mejora en, o una modificación de, el invento reivindicado en la patente principal nº 233.192.

5.

En la mencionada solicitud de patente principal, se reivindican, entre otras cosas, la obtención de composiciones fungicidas que contienen, como un elemento activo, un compuesto de la fórmula

general



2 46469

5.

en la que R es un grupo carbocíclico monocíclico que puede estar sustituido y puede acoplarse al N a través de un grupo metileno.

10.

Se reivindica también en aquella Solicitud, por ejemplo, el que el ingrediente activo en las composiciones fungicidas pueda ser N-(4-metilfenil) dicloromaleimida, o N-ciclohexil dicloromaleimida y que el ingrediente activo pueda estar íntimamente asociado con un diluyente

15.

inerte sólido o disuelto o dispersado en un líquido adecuado. Se reivindica también el que la composición fungicida puede tener a ella incorporado un agente de dispersión soluble en agua, y también un agente de mojadura.

20.

En la mencionada solicitud principal para una patente, se reivindica asimismo entre otras cosas, un método para la protección de tejidos de algodón contra el ataque de hongos, un método para controlar el crecimiento o desarrollo de limo en los molinos de pulpa y papel, y un método para proteger la pulpa de madera mecánicamente preparada, del ataque por los hongos, empleando la composición fungicida en dicha Solicitud reivindicada.

25.

De acuerdo con este invento, las composiciones fungicidas contienen, como principio activo, por lo menos un compuesto de la fórmula



12 EB

240469

- 4 -

impedir o inhibir el desarrollo de hongos en materiales, objetos y artículos perjudicialmente afectados por la presencia de hongos en ellos, comprende el aplicar a dichos materiales, objetos y artículos, las composiciones fungicidas a que este invento se refiere.

5.

Por ejemplo, las composiciones fungicidas de este invento, pueden utilizarse en aplicaciones análogas a las de la Solicitud principal para una patente, tal como por ejemplo en el tratamiento y conservación de la madera para productos de madera reconstituida, (tal como cartón duro), en textiles y materiales similares que pueden hallarse expuestos a la infección por hongos, y para controlar el limo en los molinos de pulpa de madera y en la preservación de la pulpa de madera del ataque por los hongos.

10.

15.

Las composiciones fungicidas a que este invento se refiere, tienen las mismas ventajas que las de la Solicitud principal para una patente, dado que su principio o ingrediente activo es estable y libre de propiedades de coloración, y a causa de que la mayoría de ellas pueden prepararse por el procedimiento reivindicado en la Solicitud pendiente nº 38.703/56.

20.

Los puntos de fusión se han establecido para los compuestos: N-metil dicloromaleimida, 88°C.; N-metil dibromomaleimida, 121°C.; N-etil dicloromaleimida, 57°C.; N-etil dibromomaleimida, 93°-94°C.; N-hexil dicloromaleimida, 44° C.; N-hexil dibromomaleimida, 36°C.; N-butil dicloromaleimida 38°-41°C.; N-fenil dicloromaleimida 206°C; N-p-tolil dicloromaleimida,

25.



- 193-194°C.; N-ciclohexil dicloromaleimida, 143°C.; así como para los compuestos siguientes cada uno de los cuales, por lo menos, puede constituir el principio activo de las composiciones fungicidas de este invento; dicloromaleimida, 179°C.; dibromomaleimida 225°C.; N-fenil monobromomaleimida, 156°C.-157°C.; N-fenil dibromomaleimida, 164°C.; N-p-tolil monocloromaleimida, 153°C.; N-p-tolil monobromomaleimida, 144°C.-145°C.; N-p-tolil dibromomaleimida, 174°C., y N-ciclohexil dibromomaleimida, 167°C.-168°C.

Los ejemplos siguientes indican la eficacia de determinados principios o compuestos activos, en las composiciones a que este invento se refiere.

- Las cifras indican la menor concentración (g/ml) que inhibe el desarrollo del hongo de ensayo. "Ger" antes de la cifra indica la concentración mínima en microgramos por ml. precisa para inhibir la germinación de esporas. "Dev" antes de la cifra indica la concentración mínima precisa para restringir el desarrollo en los tubos de germen o de cultivo.

EJEMPLO 1

- Se prepara N-p-tolil monocloromaleimida, de 153°C de punto de fusión, condensando anhídrido monocloromaleico con p-toluina en 1:2:4-triclorobenceno, y se comprueba que tiene una actividad fungicida de 80, 80, 80, 80, 80, Ger. 8 y Dev. 8, al ensayarla "in vitro", respectivamente, contra los hongos Phoma pigmentivora, Mennoiella echinata, Ceratocystis pilifera, Polystictus versicolor, Oospora lactis, Penicillium notatum

y Aspergillus niger.

EJEMPLO 2



5. Se ha comprobado que la dibromomaleimida tiene una actividad fungicida de 80, 80, 80, 80, 80, y Ger 8 y Dev. 8 cuando se ensaya, "in vitro", contra los hongos Fusarium graminearum, Pythium ultimum, Botrytis allii, Saccharomyces cerevisiae, Aspergillus niger y Venturia inaequalis.

EJEMPLO 3

10. Se rociaron plantas de tomate en in invernáculo, con una dispersión del compuesto ensayado. De cada material químico se utilizaron tres concentraciones. Una serie de plantas de control se pulverizó con agua destilada, y otra serie, con un fungicida de actividad conocida.
15. Después de pulverizarlas, se dejó que las plantas se secaran durante una noche. A continuación se inocularon con esporas de Alternaria solani y se colocaron en un ambiente favorable para la germinación de las esporas y la infección. A continuación, las plantas se colocaron
20. en un invernáculo durante un período para permitir el desarrollo de los síntomas. Se realizó la comprobación y se expresó la cantidad de enfermedad en las plantas tratadas, como un porcentaje de las plantas de control. El valor ED95, o sea la concentración necesaria para obtener
25. un control del 95% de la enfermedad o invasión, se obtuvo representando las cifras de porcentaje de invasión para las diversas concentraciones de pulverización, en una escala logaritmica y comprobando los valores de la curva de regresión.

Los resultados obtenidos con tres dibromomaleimidias,

se indican a continuación



2 46469

	% Invasión a			ED95	ED50
	0.05% a.i	0.01% a.i	0.002% a.i		
Thiram	23	69	98	0.13	0.019
5. N-fenil-dibromomaleimida	3	23	69	0.035	0.0038
N-(p-tolil)-dibromomaleimida	1	7	73	0.019	0.003
N-ciclohexil dibromomaleimida	4	60	83	0.052	0.0074

EJEMPLO 4

10. Las actividades fungicidas, obtenidas comparando algunas maleimidas halogenadas, cuando se ensayan "in vitro" contra los hongos Phoma pigmentivora Memnoiella echinata, Ceratocystis pilifera, Polystictus versicolor, Oospora lactis, Penicillium notatum y Aspergillus niger, se recogen en la tabla siguiente. Las cifras son partes por millón de
15. producto químico necesarias para inhibir el desarrollo del hongo. La última columna indica las partes por millón precisas para impedir la germinación de las esporas.



Compuesto químico	Hongo							
	<u>Phoma pigmentivora</u>	<u>Memmiella echinata</u>	<u>Ceratocystis pillifera</u>	<u>Polystictus versicolor</u>	<u>Oospora lactis</u>	<u>Penicillium notatum</u>	<u>Aspergillus niger</u>	<u>Germinación de esporas</u>
N-p-tolil monobromomaleimida	16	400	80	80	80	400	-	40
N-p-tolil monocloromaleimida	16	80	16	400	400	400	400	
N-fenil monobromomaleimida(£)	16	400	80	16	400	-	-	8
N-n-hexil dibromomaleimida	3.2	80	80	400	400	80	80	40
N-n-hexil dicloromaleimida	3.2	16	16	16	400	80	80	200
N-p-tolil dibromomaleimida	16	400	16	400	400	400	-	8
N-p-tolil dicloromaleimida	3.2	80	400	400	400	-	-	40
N-fenil dibromomaleimida	3.2	400	80	80	-	400	-	8
N-fenil dicloromaleimida	16	80	400	16	400	400	400	40

£ - No se dispuso de cloro-análogo.(producto análogo clorado)

246,469

N O T A

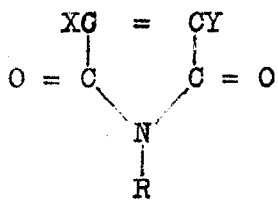


469

12 ENE. 1958

5. Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas, son susceptibles de modificaciones de detalle, en cuanto no alteren su principio fundamental. También se hace constar que el invento corresponde a una Patente presentada en Inglaterra con fecha 13 de enero de 1.958, nº 1.139/58 acogiéndose, por lo tanto, a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor, y
10. siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita 1er Certificado de Adición en España: "Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 233.192, concedida en 30 de marzo de 1957, por "Perfeccionamientos en composiciones fungicidas"; caracterizándose dichas mejoras por lo siguiente:
- 15.

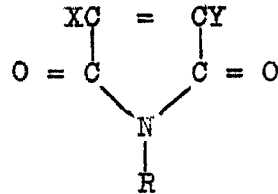
20. 1ª.- Mejoras en la obtención de composiciones fungicidas, objeto de la patente principal, de modo que contengan como un principio activo un mínimo de un compuesto de la fórmula



25. en la que Y se elige de H, a no ser que X sea H.

- 2ª.- Mejoras, según reivindicación 1ª, de modo que contengan como un principio activo un mínimo de un

compuesto de la fórmula

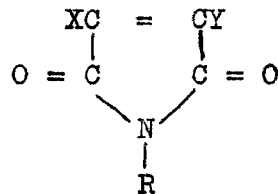


5.

en la que Y se elige de Cl, a no ser que X sea Br.

3^a.- Mejoras, según reivindicación 1^a y 2^a, de modo que contengan como un principio activo un mínimo de un compuesto de la fórmula

10.

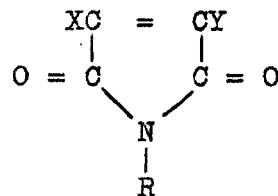


en la que Y se elige de Br., a no ser que X sea Cl.

15.

4^a.- Mejoras, según reivindicación 1^a a 3^a, de modo que contengan como un principio activo un mínimo de un compuesto de la fórmula

20.



en la que R se elige de H con la sola excepción del caso que X e Y sean ambos Cl, un grupo monocicloaromático, que admite posibilidad de estar substituido y un grupo

25.

alíciclico que admite la posibilidad de ser substituido.

5^a.- Mejoras, según reivindicaciones anteriores



240469

12 ENE 1959

caracterizándose porque en dichos casos el principio activo de la composición fungicida será N-p-tolil monocloro mellimida.

5.
10. 6^a.- Mejoras, según reivindicaciones anteriores, caracterizándose porque para la preparación de la composición final el principio activo se asocia con cuerpos apropiados para su posterior uso, asociándolo intimamente con un diluyente sólido inerte, disolviéndolo o dispersándolo en un líquido y haciendo que la composición contenga un agente de dispersión.

7^a.- Mejoras, según lo especificado en las reivindicaciones 1^a a 6^a, caracterizado porque el principio activo es N-p-tolil monocloromaleimida.

15. 8^a.- Mejoras, según lo especificado en las reivindicaciones 1^a a 7^a, caracterizado porque el principio activo es dibromomaleimida.

9^a.- Mejoras, según lo especificado en las reivindicaciones 1^a a 8^a, caracterizado porque el principio activo es N-fenil dibromomaleimida.

20. 10^a.- Mejoras, según lo especificado en las reivindicaciones 1^a a 9^a, caracterizado porque el principio activo es N-p-tolil dibromomaleimida.

25. 11^a.- Mejoras, según lo especificado en la reivindicaciones 1^a a 10^a, caracterizado porque el principio activo es N-ciclohexil dibromomaleimida.

12^a.- Mejoras, según lo especificado en cualquiera de las reivindicaciones 6^a a 11^a, caracterizado porque el principio activo está intimamente asociado con un diluyente sólido inerte.

2 4 6 4 6 9

- 12 -



13^a.- Mejoras, según lo especificado en cualquiera de las reivindicaciones 6^a a 12^a, caracterizado porque el principio activo se disuelve o dispersa en un líquido adecuado.

5. 14^a.- Mejoras, según lo especificado en la reivindicación 12^a ó 13^a, caracterizado porque la composición contiene un agente de dispersión.

10. 15^a.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 233.192, concedida en 30 de marzo de 1957, por "Perfeccionamientos en composiciones fungicidas"; tal y como queda substancialmente descrito en la presente memoria.

Esta memoria consta de doce hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid

12 ENE. 1959

IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED.

J. GOMEZ ACEBO Y MODET