

AÑO 1959

Expediente núm.

247459



REGISTRO DE LA PROPIEDAD INDUSTRIAL

PATENTE DE INVENCIÓN

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se acompaña a la solicitud de

una PATENTE DE INVENCIÓN por VEINTE años, en España

a favor de

N. V. PHILIPS' GLOEILAMPENFABRIEKEN, de nacionalidad

holandesa domiciliado en Emmasingel 29, Eindhoven,
calle de ~~XXXX~~ Holanda. ~~XXXX~~

por:

UN METODO PARA OBTENER UNA PREPARACION PARA COMBATIR
MOHOS"

Nº 13014

Agente Sr. ELZABURU

247459

P.- 17.688

PH 14926.
Rehecha I

10 JUN 1959

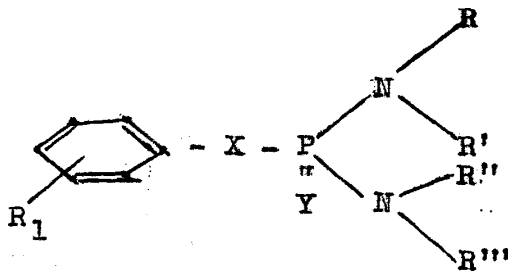


247459

MEMORIA DESCRIPTIVA
para solicitar
P A T E N T E D E I N V E N C I O N
e n
E S P A Ñ A
por VEINTE años

a nombre de N.V. PHILIPS 'GLOEILAMPENFABRIEKEN, entidad holandesa, establecida en Emmasingel 29, Eindhoven, Holanda, por:
"UN METODO PARA OBTENER UNA PREPARACION PARA COMBATIR MOHOS".

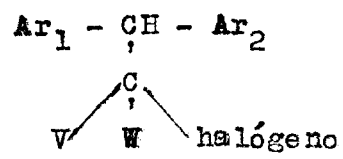
Es sabido que un compuesto de la fórmula general



en que X e Y representan oxígeno o azufre, R, R', R'' y R''' representan hidrógeno o grupos alquílicos y R₁ representa a voluntad uno o más átomos de halógeno y/o grupos alquílicos, puede ser usado como un constituyente activo en combinación con un insecticida por contacto, de la fórmula:

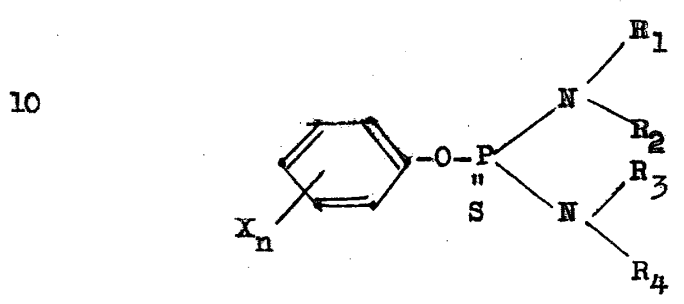


247459



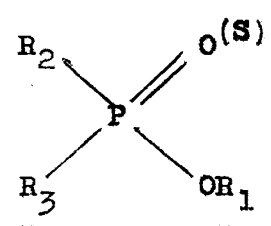
5 en que Ar_1 y Ar_2 representan grupos aromáticos que pueden llevar substituyentes que no forman sales iguales o diferentes y en que V y W representan halógeno o hidrógeno, en una preparación para combatir bichos y en particular, insectos.

Además es sabido que compuestos de la fórmula general



15 en que X representa cloro o bromo, R_1 representa un grupo alquílico y R_2 , R_3 y R_4 representan hidrógeno o un grupo alquílico, aralquilo o cicloalquilo y n representa un número entero comprendido entre 3 y 5 son activos contra la arañuela roja, mosca verde y escarabajo de haba mejicana y contra mohos tales como la ro-
20 ya de las habas.

Además se ha descrito que compuestos de la fórmula general:



25 en que R_1 representa un grupo fenilo negativamente substituido, por ejemplo un grupo nitrofenilo, carbaetoxifenilo, carbaetoxi-nitrofenilo, aldehidofenilo o clorofenilo, y R_2 y R_3 representa grupos alcoxi o alquilo o restos de aminas alifáticas, tienen propiedades insecticidas.

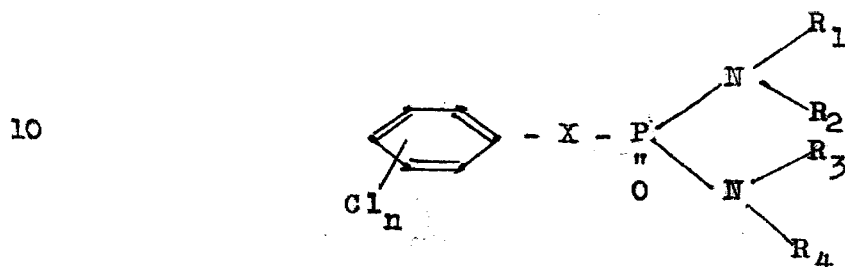
247459

10 JUN



Ahora se ha encontrado que un grupo de diamidofosfatos y diamidotiofosfatos son muy activos contra los mohos, en particular roya y además contra insectos.

La presente invención se refiere a un método de producción de una preparación para combatir mohos y en particular roya, caracterizado por el hecho de que un compuesto de la fórmula general:



en que X representa un átomo de oxígeno o azufre, R_1 , R_2 , R_3 y R_4 representan cada uno un grupo alquilo con 1 a 5 átomos de carbono y en que $n = 3, 4$ o 5 , si X es un átomo de oxígeno y $n = 1, 2, 3, 4$ o 5 , si X es un átomo de azufre, es mezclado o disuelto en materiales excipientes inertes sólidos o líquidos, si fuera deseable con la adición de sustancias que actúan sobre la superficie, agentes dispersantes y/o adhesivos y/o preparaciones que contienen estos compuestos.

En particular, compuestos en que $R_1 = R_2 = R_3 = R_4 = \text{CH}_3$ son muy activos contra la roya. Más particularmente compuestos bis (dimetilamido)-pentaclorofenilos de acuerdo con la invención, probaron ser muy efectivos contra la roya.

Además se ha encontrado que en particular también compuestos en que X representa un átomo de azufre y $n = 2, 3$ o 4 , son muy activos contra la roya.

Como es sabido, gran número de compuestos activos contra los mohos han sido descritos que, sin embargo, no son tenidos en cuenta en la práctica para combatir mohos en plantas, debido

2474590



a su mayor o menor grado de fitotoxicidad. Ellos pueden causar demasiado daño a las plantas.

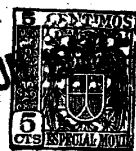
5 Se ha encontrado ahora que, entre los compuestos de acuerdo con la invención, los derivados de pentaclorofenil no son o substancialmente no son fitotóxicos y consecuentemente son particularmente adecuados para combatir mohos, y en particular, roya, en plantas tales como cebada, manzanas y vides.

Los compuestos fueron probados de la siguiente manera en actividad fungicida.

10 Plantas jóvenes de cebada (*Hordeum vulgare*) fueron cultivadas a una temperatura de 15 a 18°C en pequeñas macetas hasta que tenían una altura de aproximadamente 7 cm. Luego fueron espolvoreadas con soluciones acetónicas que tenían contenidos diferentes del compuesto que debía ser probado. Las soluciones
15 contenían 1000, 100 y 10 partes en peso respectivamente del compuesto activo para un millón de partes en peso de acetona. Siete plantas en una maceta fueron espolvoreadas simultáneamente con 0,2 cm³ de la solución. Inmediatamente después del espolvoreo las plantas fueron contaminadas con conidias vigorosas de *Erisi-
20 phae graminis*. Esto fué efectuado colocando simultáneamente las macetas de toda la serie de prueba bajo una gran campana y distribuyendo las conidias de la roya en este espacio por medio de una corriente de aire que era hecha pasar sobre hojas de cebada muy infestadas. El conjunto fué dejado durante algún tiempo y
25 las conidias se depositaron uniformemente sobre las plantas. Estas plantas fueron luego introducidas en un espacio en que la temperatura era de 18 a 20°C y la humedad relativa era aproximadamente 90%, bajo iluminación continua con lámparas fluorescentes (luz blanca) que tenían una intensidad de aproximadamente 3000 lux.
30 Cinco días después de la inoculación, se habían formado claramen-

247459

10 JUN



te puntos de moho de roya sobre las plantas de prueba puntos que produjeron esporos abundantemente.

5 El grado de ataque de cada planta fué determinado como una figura de la serie 0 a 10; 0 = no atacada, significando 10 que toda la planta estaba cubierta con puntos.

10 Las pruebas fueron realizadas tres veces, obteniéndose así 21 observaciones por concentración del compuesto probado, agregándoseles los resultados de estas observaciones. Dado que no todos los compuestos podían ser probados en una serie de prueba única, el grado de ataque de cada planta invariablemente fué comparado con el producido por 2,4-dinitro-6-(1'-metilheptil)-1-fenilcrotonato. Invariablemente se determinaron cantidades que producían una protección del 50% de la planta tanto en el caso del compuesto que debía ser probado como del derivado de fenilcrotonato.

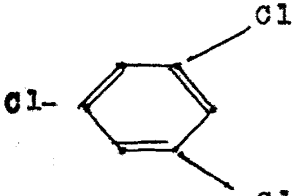
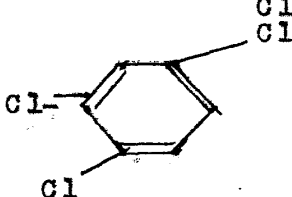
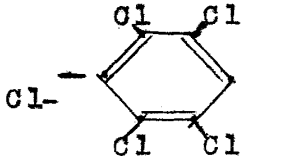
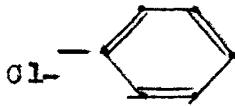
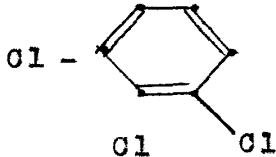
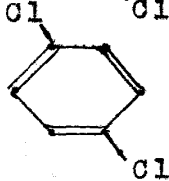
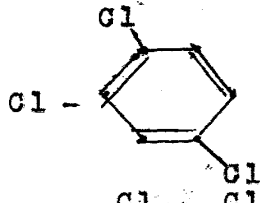
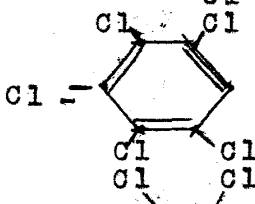
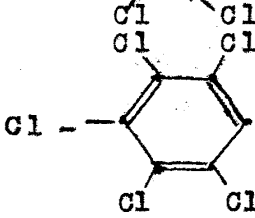
15 Como una medida de la actividad del compuesto probado, se tomó el cociente de la cantidad de fenilcrotonato y del compuesto probado que proporcionaban una protección del 50%. Los números así encontrados figuran en la columna h de la Tabla I.

20 Cuanto mayor el número, más poderoso el efecto fungicida del compuesto probado correspondiente.

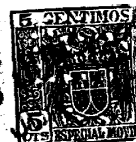
(Sigue Tabla I)

247459¹⁰J
 TABLA I



Prueba Nº	X	R ₁	R ₂	R ₃	R ₄	Cl _n	h	
5	1	0	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		1
	2	0	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		1
10	3	0	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		10-20
15	4	S	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		1
	5	S	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		10
	6	S	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		10
20	7	S	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		10
	8	S	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃		10-20
25	9	0	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅		0,1

247459



En esta Tabla, la primera columna se refiere al número de la prueba, las columnas 2a. a 6a. se refieren a los substituyentes de X, R₁, R₂, R₃ y R₄, respectivamente, la 7a. columna se refiere al anillo de benceno clorado y la última columna se refiere al efecto contra Erisiphaceae con respecto al del 2,4-dinitro-6-(1-metilheptil)-1-fenilcrotonato (sobre plantas de cebada) expresado como se ha establecido precedentemente.

Un compuesto obtenido de acuerdo con la invención puede ser trabajado para producir un fungicida de una manera convencional.

Para este fin, los compuestos son mezclados con o, si fuera deseable, disueltos en, materiales excipientes sólidos o líquidos y, si fuera deseable, enriquecidos con agentes dispersantes, emulsificadores o agentes humectantes. Las preparaciones así obtenidas, ya sea como tales, o emulsificadas o dispersadas en un líquido, por ejemplo, agua, pueden ser distribuídas espolvoreándolas o atomizándolas en el aire. Entre las varias preparaciones tomadas en cuenta en que los compuestos activos pueden ser trabajados, pueden mencionarse los así llamados aceites miscibles, polvos humedecibles y polvos. Estas formas son citadas solamente a título de ejemplo y la invención no está limitada a ellas.

Para preparar aceites miscibles el compuesto activo es disuelto en un solvente adecuado que en sí mismo es poco soluble en agua, y un agente emulsificador es agregado a esta solución. Solventes adecuados son, por ejemplo, xileno, tolueno, dioxano, destilados de petróleo ricos en compuestos aromáticos, por ejemplo nafta solvente, aceite destilado de alquitrán, además tetralina, ciclohexano, o mezclas de estos líquidos. Como agentes emulsificadores pueden utilizarse éteres alquifenoxipoliglicol,

247459



esteres polioxi-etileno sorbitano de ácidos grasos o esterres de polioxi-etilen-sorbitol de ácidos grasos. Una pluralidad de estos tipos de agentes emulsificadores son conocidos bajo las marcas "Tritón", Tween" y "Atlox".

5 La concentración del compuesto activo en el líquido miscible en agua no está ligada a límites estrechos. Por ejemplo, puede variar entre 2% y 50% en peso. Antes de usar estas soluciones, los aceites miscibles son emulsificados en agua y esta emulsión es espolvoreada. En general, la concentración del com-
10 puesto activo en estas emulsiones acuosas es 0,01% a 0,5% en peso.

Los polvos humedecibles pueden ser preparados mezclando el compuesto activo con un excipiente inerte sólido, y moliéndolo, como regla en la presencia de un agente dispersante y/o humec-
15 tante. Antes de su uso, los polvos humedecibles son dispersados en un líquido, preferentemente en agua, y la dispersión es atomizada. El polvo humedecible consistirá de partículas diminutas, a fin de evitar que la salida del atomizador se obstruya. Por esto, es aconsejable usar material finamente pulverizado co-
20 mo excipiente. Si fuera deseable, la mezcla del excipiente, el compuesto activo y cualesquiera sustancias auxiliares es molida.

El excipiente puede ser, por ejemplo, blanquizal, tierra de diatomeas, caolín, dolomita, talco, yeso, tiza, bentonita, atapulgita, kieselgur, celita, pulpa de madera, polvo de tabaco
25 o corteza de coco molida. Agentes dispersantes adecuados son sulfonato de lignina y sulfonatos de naftaleno. Como agentes humectantes pueden usarse sulfatos de alcoholes grasos, alquil- aril sulfonatos o productos de condensación de ácidos grasos, por ejemplo los conocidos comercialmente como "Igepón".

30 Tampoco en los polvos humedecibles la concentración de los

247459 10



compuestos activos está ligada a límites estrechos. En general la concentración será elegida entre 10% y 50% en peso. Pueden prepararse polvos aplicando un compuesto activo como tal o disuelto en un solvente, a un excipiente sólido. Cuando se usa
5 esta preparación ella es atomizada en una condición seca o finalmente pulverizada en el aire. Como alternativa, estos polvos pueden ser producidos por medio de excipientes livianos adecuados, en la forma establecida para producir los polvos humedecibles. Los excipientes pueden ser los productos mencionados precedentemente en la descripción de la producción de polvos humedecibles. En general, la concentración de los compuesto activos en los polvos pulverulentos es menor que en los polvos humedecibles o aceites miscibles, pero mayor que en las dispersiones o emulsiones obtenidas diluyendo polvos humedecibles, o aceites mezclables con líquidos. Los polvos usualmente contienen
15 1% a 20% en peso de compuesto activo. Para completar debería mencionarse que pueden ser producidos aceites mezclables, polvos humedecibles o polvos de acuerdo con la invención mezclando dos aceites miscibles (o polvos humedecibles y polvos) conteniendo cada uno uno de los compuestos activos.
20

Un polvo humedecible, por ejemplo, puede ser producido mezclando 25 partes en peso de bis (N.N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato, 68 partes en peso de dolomita, 2 partes en peso de oleilamido-etiltaurato y 5 partes en peso de sulfonato de sodio-
25 lignina y moliéndolo luego hasta un tamaño promedio de partículas menor que aproximadamente 10 μ .

Un polvo, por ejemplo, puede ser producido mezclando 3 partes en peso de bis (N.N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato, 7 partes en peso de kieselgur y 90 partes en peso de dolomita y
30 subsecuentemente moliéndolos hasta un tamaño promedio de partícu-



2474518

las menor que aproximadamente 10 μ .

Para producir un aceite miscible, por ejemplo, 10 partes en peso de bis (N,N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato son disueltos en una mezcla de 12 partes en peso de dioxano, 6 partes en peso de ester de ácido graso de polioxietilene-sorbitano y 72 partes en peso de xileno. Al verter en agua tal aceite miscible, espontáneamente produce emulsiones bastante estables.

Los compuestos de acuerdo con la invención, por ejemplo, pueden ser producidos de oxiclорuro de fósforo, fenol o tiofenol o un fenolato o un tiofenolato y una amina secundaria. Sin embargo, este método no es muy aconsejable para producir compuestos de pentaclorofenil. En general, la producción de fenol o tiofenol o un fenolato o tiofenolato y bis-(dialquil amido) fosforilcloruro rinde resultados satisfactorios. En el método de producción mencionado en último término por ejemplo, puede hacerse uso de una suspensión de fenolato de sodio o tiofenolato de sodio en un solvente inerte tal como benceno y acetonitrilo.

Se ha encontrado que los mencionados fenolatos y tiofenolatos son muy solubles en acetona. El uso de acetona como solvente, produce, en general una reacción que se desarrolla uniformemente, lo que es particularmente manifiesto al llevar a la práctica este método de escala industrial y puede ser de importancia.

Cuando se producen derivados de penta-cloro de acuerdo con la invención es fundamental que el pentaclorofenol o pentaclorotiofenol, que desarrollan una actividad fitocida intensa, deberían ser completamente eliminados. La completa separación de penta-clorofenol o pentaclorotiofenol de los derivados de penta-cloro de acuerdo con la invención es muy difícil por cristaliza-



247459

ción fraccionada en un solvente. En tal proceso de cristalización se producen pérdidas considerables del producto deseado.

Se ha encontrado que el pentaclorofenol o pentaclorotiofenol no convertido pueden ser eliminados de una manera simple por medio de una solución de soda cáustica o solución de hidróxido de potasio. Para este fin, el compuesto obtenido de acuerdo con la invención, puede ser lavado con una solución de hidróxido diluido (preferentemente 0,25 N) de soda cáustica o potasio o preferentemente ser disuelto en un solvente adecuado no miscible en agua, siendo lavada la solución obtenida con una solución de soda cáustica o una solución de hidróxido de potasio. Este modo de purificación del producto de reacción puede ser ventajosamente usado también cuando se producen estos otros compuestos de acuerdo con la invención.

Cuando se usa acetona como solvente para la reacción, el penta-clorofenol o penta-clorotiofenol puede ser eliminado simplemente agregando una solución de soda cáustica diluida a la solución. El compuesto de acuerdo con la invención se separa, mientras que el fenolato de sodio o el tiofenolato de sodio se disuelve.

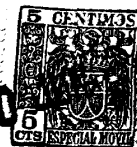
Este nuevo método será explicado a continuación con referencia a ejemplos.

EJEMPLO I.-

Bis-(N.N.-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato.-

134, grs. (0,465 mol) de fenolato de sodio fueron disueltos en 1 litro de acetona. Después de agregar 85 grs. (0,50 mol) de bis-(N.N.-dimetilamido)fosforil cloruro, la mezcla fué calentada con agitación durante 30 minutos a la temperatura de ebullición con eliminación de aire. Se separó el cloruro de sodio. Después de la reacción se separaron por destilación aproximada-

247459



mente 600 cm³ de acetona. Después de enfriamiento se añadió a la mezcla de reacción una cantidad de agua tal como para disolver todo el cloruro de sodio, aproximadamente 100 cm³. La solución clara fué alcalinizada hasta un pH = 10 con lejía de soda cáustica 2 n. Luego se agregaron 5 litros de agua y el pH fué llevado nuevamente a aproximadamente 10. El bis-(N,N-dimetilamido) pentacloro-fenilfosfato se separaba en forma cristalina. Después de filtrado y lavado con agua fué secado. Rendimiento: 120 grs. = 64,5%, calculado sobre fenolato de sodio. Punto de fusión: 144°C.

EJEMPLO II.-

Bis-(N,N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato.-

14,4 grs. (0,05 mol) de pentacloro-fenolato de sodio fueron suspendidos en 150 cm³ de acetonitrilo. Después de agregar 8,5 grs. (0,05 mol) de bis-(N,N-dimetilamido) fosforil cloruro, la suspensión fué calentada con agitación durante una hora a temperatura de ebullición con eliminación de aire. Después de la reacción, el cloruro de sodio así formado fué separado por filtración y el acetonitrilo fué evaporado. El residuo fué mezclado con 500 cm³ de agua y el pH de la mezcla fué llevado entonces a aproximadamente 10. Después de esto el bis-(N,N-dimetilamido) pentacloro-fenilfosfato producido fué separado por filtrado. Rendimiento 12 grs = 60%. Punto de fusión 144°C.

EJEMPLO III.-

Bis-(N,N-dimetilamido)pentacloro-tiofenilfosfato.-

15,2 grs (0,05 mol) de pentacloro-tiofenolato fueron suspendidos en 50 cm³ de benceno anhidro y 8,7 grs. (0,05 mol) de bis(N,N-dimetilamido)-fosforil cloruro. Esta suspensión fué calentada con agitación durante una hora a temperatura de ebullición con eliminación de aire. Luego, el benceno fué separado por destilación y el residuo agitado con benceno y luego con

247459 10



5 agua. Los líquidos recogidos fueron introducidos en un embudo separados y la solución bencénica fué separada. Esta solución fué lavada dos veces con un poco de soda cáustica diluída y una vez con agua. Después de secar la solución sobre cloruro de calcio, el benceno fué evaporado, dejando así un residuo de 18,6 grs. de bis-(N.N-dimetilamido)pentacloro-tiofenilfosfato crudo. Rendimiento 18,6 grs. = 89,5%.

10 Después de cristalización en eter de petróleo (punto de ebullición 60 a 80°C) se obtuvieron 13,0 grs = 62,5% del producto. Punto de fusión 133°C.

Los siguientes compuestos fueron producidos de manera completamente similar:

15 Bis-(N.N-dimetilamido)-4-cloro-tiofenilfosfato, punto de ebullición 173 a 175°C a una presión de 1 mm. de mercurio. Rendimiento 50%.

Bis-(N.N-dimetilamido)-2,5-diclorotiofenilfosfato, punto de ebullición 170°C a una presión de 1,2 mm. de mercurio; Punto de fusión 40°C, Rendimiento 51%.

20 Bis-(N.N-dimetilamido)-2,4,6-tricloro-tiofenilfosfato, punto de ebullición 63°C, rendimiento 75%.

Bis-(N.N-dimetilamido)-2,4,5-tricloro-tiofenilfosfato, punto de ebullición 150°C a 160°C a una presión de 0,4 mm. de mercurio, rendimiento 40%.

25 Bis-(N.N-dimetilamido)-2,4-diclorotiofenilfosfato, punto de ebullición 146 a 147°C a una presión de 0,4 mm. de mercurio, rendimiento 77%.

Bis-(N.N-dimetilamido)-2,4,6-triclorofenilfosfato, punto de ebullición 189 a 192°C a una presión de 3 mms. de mercurio; punto de ebullición 101°C, rendimiento 65%.

30 Esta solicitud, que corresponde a la presentada en Holanda,

247459

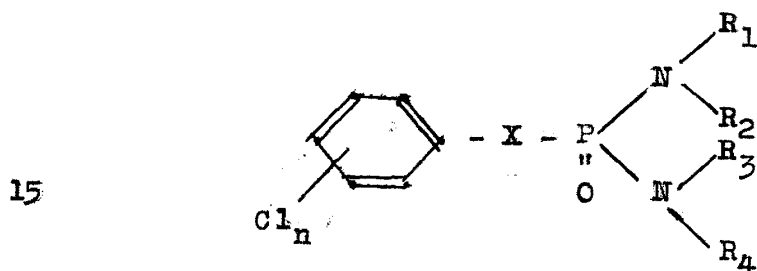


el 24 de Febrero de 1958, bajo el Número 225.241, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto Ley sobre Propiedad Industrial.

- N O T A -

5 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta Patente de Invención en España, son los siguientes:

1º. Método de producción de una preparación para combatir mohos, en particular roya, caracterizado por el hecho de que un
10 compuesto de la fórmula general:



en que X representa un átomo de oxígeno o azufre, R_1 , R_2 , R_3 y R_4 , representan cada uno un grupo alquilo con 1 a 5 átomos de carbono y $n = 3, 4$ o 5 , si X es un átomo de oxígeno y $n = 1, 2, 3, 4$ o 5 si X es átomo de azufre, son mezclados con, o disueltos
20 en, excipientes inertes sólidos o fluidos, si fuera deseable, con la adición de sustancias que actúan sobre la superficie, agentes dispersantes y/o adhesivos.

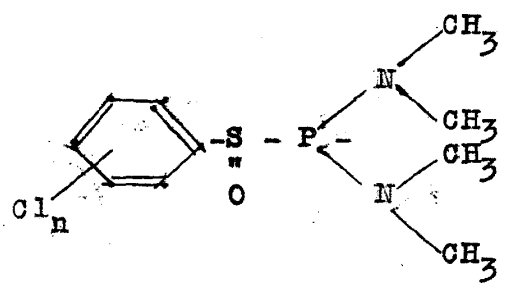
2º. Método de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por el hecho de que R_1 , R_2 , R_3 y R_4 representan grupos metilo.
25

3º. Método de acuerdo con la reivindicación 2, caracterizado por el hecho de que un compuesto de la fórmula general:



247459

5



10

en que $n = 2, 3, 4$ o 5 , es usado como compuesto activo.

4º. Método de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado por el hecho de que el compuesto activo es un derivado de pentaclorofenil.

5º. Método de acuerdo con la reivindicación 4, caracterizado por el hecho de que como compuesto activo es usado bis-(N,N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato.

15

6º. Método de acuerdo con la reivindicación 3, caracterizado por el hecho de que como compuesto activo es usado bis-(N,N.-dimetilamido)-S-pentaclorofeniltiofosfato.

20

7º. Método de acuerdo con la reivindicación 5, para producir un polvo humedecible caracterizado por el hecho de que 25 partes en peso de bis-(N,N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato, 68 partes en peso de dolomita, 2 partes en peso de oleilamido-taurato y 5 partes en peso de sulfonato de sodio-lignina son molidas juntas hasta un tamaño promedio de partículas menor que aproximadamente 10μ .

25

8º. Método de acuerdo con la reivindicación 4, para producir un polvo, caracterizado por el hecho de que 3 partes en peso de bis-(N,N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato, 7 partes en peso de kieselgur y 90 partes en peso de dolomita son molidos juntos hasta un tamaño promedio de partículas menor que aproximadamente 10μ .

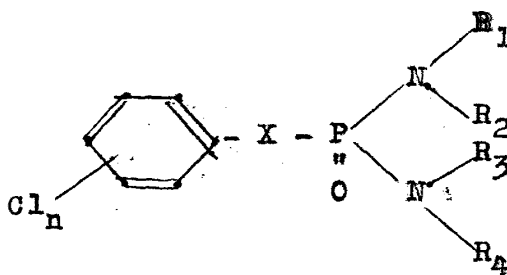
2474590



9°. Método de acuerdo con la reivindicación 4, para producir un aceite miscible, caracterizado por el hecho de que 10 partes en peso de bis-(N,N-dimetilamido)pentacloro-fenilfosfato son disueltas en una mezcla de 12 partes en peso de dioxano, 6 partes en peso de ester de ácido graso de polioxietilene sorbitano y 72 partes en peso de xileno.

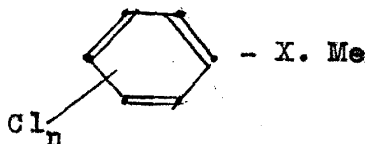
10°. Método de producción de bis-(dialquilamido)clorofenil-fosfatos y tiofosfatos, caracterizado por el hecho de que un compuesto de la fórmula general:

10



15

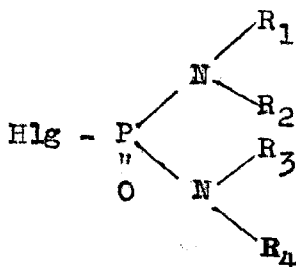
es producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general:



20

con un compuesto de la fórmula general:

25



fórmulas en las que X, R₁, R₂, R₃, R₄ y n tienen los significados precedentemente mencionados, Me representa un metal alcalino tal como sodio y Hlg representa un átomo de halógeno, prefe-

247459

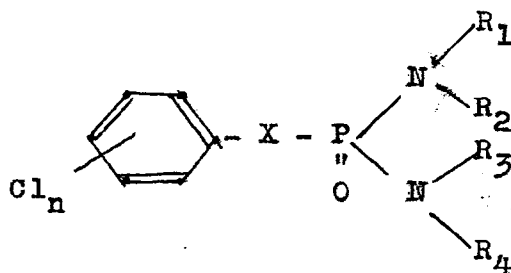


rentemente cloro.

11°. Método de acuerdo con la reivindicación 10, caracterizado por el hecho de que son producidos derivados de pentacloro y la reacción es realizada en presencia de benceno, acetonitrilo o acetona como diluyente.

12°. Método de acuerdo con las reivindicaciones 10 y 11, caracterizado por el hecho de que el pentaclorofenol o pentaclorotiofenol no convertido es separado del producto de reacción por un tratamiento con una solución de soda cáustica diluida o una solución de potasa cáustica.

13°. Método para combatir mohos, particularmente roya, caracterizado por el hecho de utilizar un compuesto de la fórmula general:

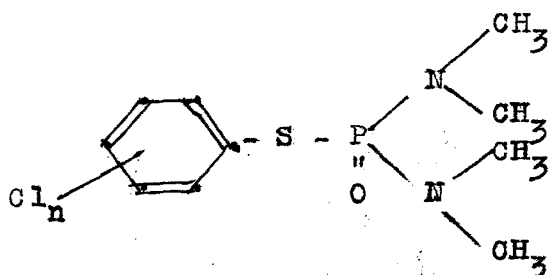


20 en que X, R₁, R₂, R₃, R₄ y n tienen los significados precedentemente mencionados, si fuera deseable, mezclado con, o disueltos en, excipientes inertes, sólidos o líquidos, si fuera deseable con la adición de sustancias que actúan sobre la superficie, agentes dispersantes y/o adhesivos.

25 14°. Método de acuerdo con la reivindicación 13, caracterizado por el hecho de que se usa un compuesto de la fórmula general:



10 JUN



247459

en que $n = 2, 3, 4$ o 5 .

15°. Método de acuerdo con las reivindicaciones 13 y 14, caracterizado por el hecho de que se usan derivados de pentaclorofenil.

16°. Método de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que se usa bis-(dimetilamino)pentaclorofenil-fosfato.

17°. Método de acuerdo con la reivindicación 15, caracterizado por el hecho de que se usa bis(dimetilamido)-S-pentaclorofeniltiofosfato.

18°. Un método para obtener una preparación para combatir mohos.

20 Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de dieciocho hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid 10 JUN 1959

P. A.
Alberto de Elzaburu
Por Poderes