

37 1 93 2

11 NOV



P.- 42.786

Pos-18986
Sumitomo

37 1932

C-07 A-01

D. N.

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar PATENTE DE INVENCION EN ESPAÑA por 20 años

a nombre de SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LTD.

entidad japonesa

con domicilio en 15, Kitahama-5-chome, Higashi-ku, Osaka,
Japón

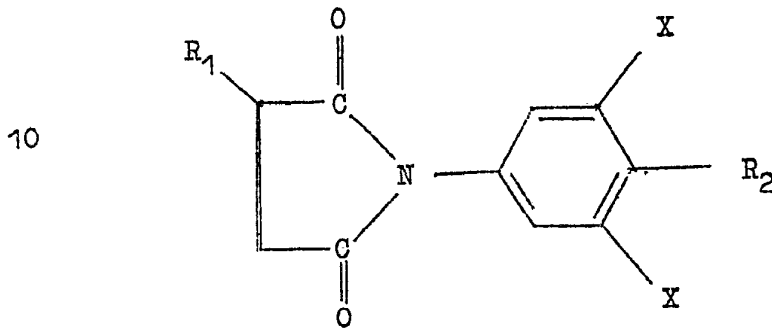
por: "UN PROCEDIMIENTO PARA PREPARAR UNA NUEVA COMPOSICION
MICROBICIDA"

4.11.71.



Esta Invención se refiere a nuevos derivados de N-fenilmaleimida valiosos como microbicidas; a un procedimiento para la preparación de los mismos; y a composiciones microbicidas que contienen dichos derivados.

5 Más concretamente, esta Invención se refiere a derivados de N-fenilmaleimida, representados por la fórmula,



15 en la que R_1 representa un átomo de hidrógeno, un átomo de halógeno, un grupo alcohilo inferior o un grupo fenilo, que puede tener un átomo de halógeno como sustituyente; R_2 representa un átomo de hidrógeno, un grupo alcohilo inferior o un átomo de halógeno; y X representa un átomo de
20 halógeno, siempre que, en el caso en que R_1 y R_2 son átomos de hidrógeno, X representa un átomo de halógeno distinto de un átomo de cloro.

Hasta la fecha solamente han sido bien conocidos unos pocos derivados de N-fenilmaleimida. Sin embargo, los
25 derivados de N-fenilmaleimida conforme con la presente In-
20.9.69.



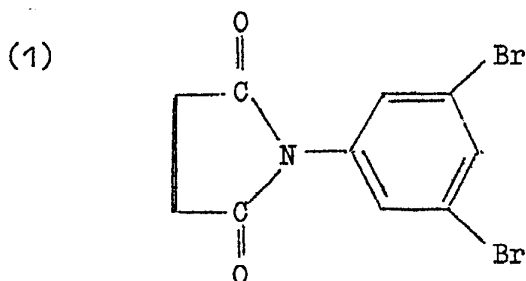
vención, son compuestos nuevos y tienen actividad microbica acusadamente elevada, que no puede esperarse, de ninguna manera, de otros homólogos conocidos.

Por consiguiente, los objetos de la presente
5 Invención son:

Proporcionar nuevos derivados de N-fenilmaleimida, un procedimiento para la preparación de los mismos, y composiciones microbicas que contienen dichos derivados.

10 Entre los nuevos compuestos representados mediante la fórmula (I) de la presente Invención, son compuestos típicos los enumerados a continuación.

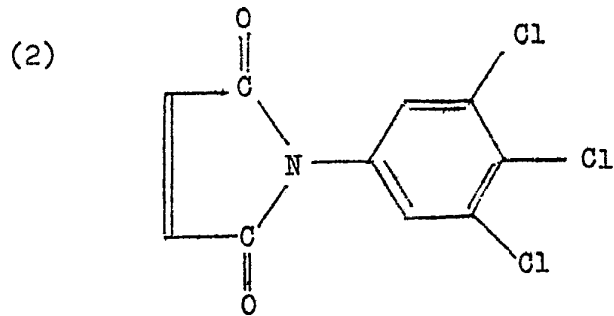
Compuesto
15 Nº Estructura química



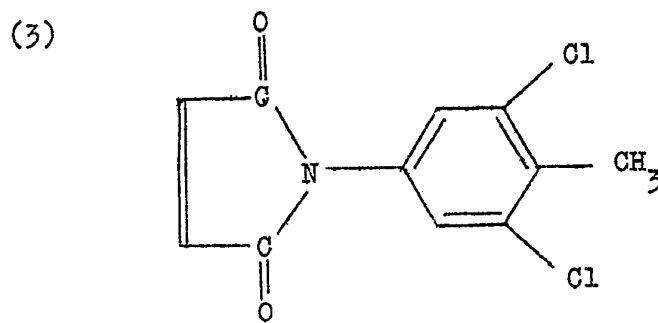
20

N-(3'-5'-dibromofenil)maleimida

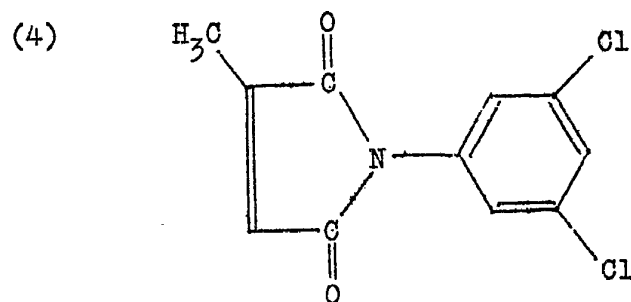
20.9.69.



N-(3',4',5'-triclorofenil)maleimida



N-(3',5'-dicloro-4'-metilfenil)maleimida

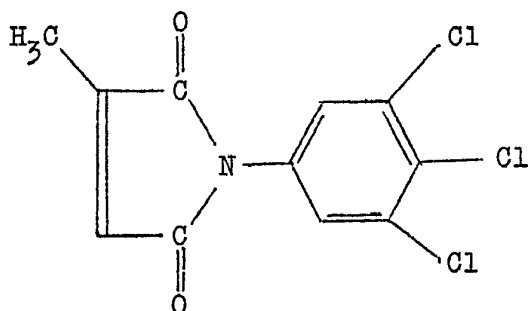


N-(3',5'-diclorofenil)-2-metilmaleimida

20.9.69.

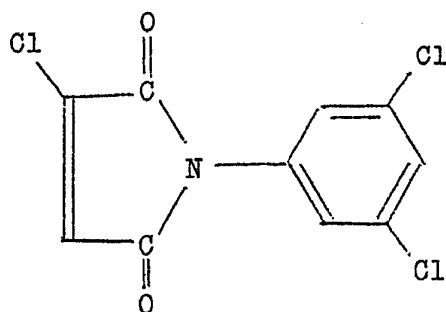


(5)



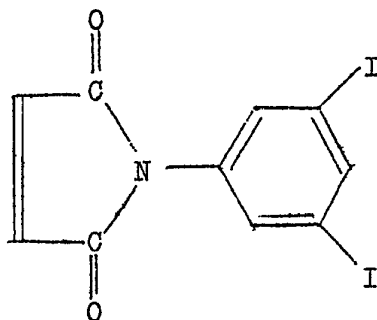
N-(3',4',5'-triclorofenil)-2-metilmaleimida

(6)



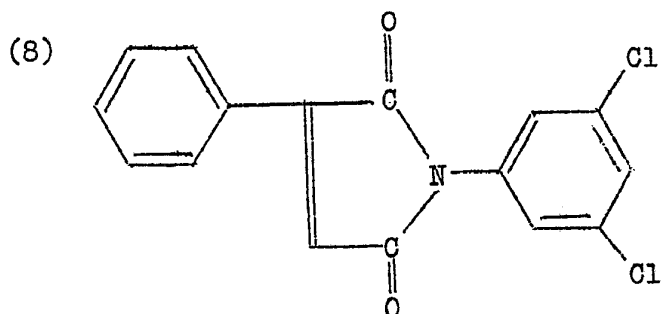
N-(3',5'-diclorofenil)-2-cloromaleimida

(7)

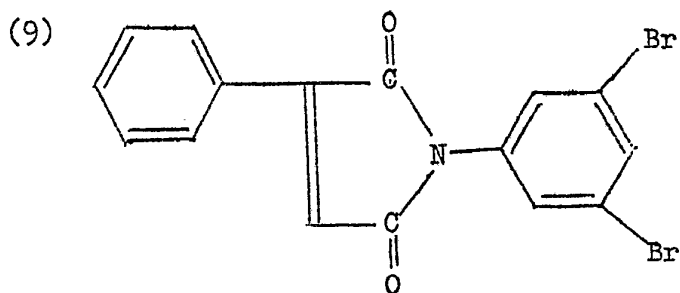


N-(3',5'-diiodofenil)maleimida

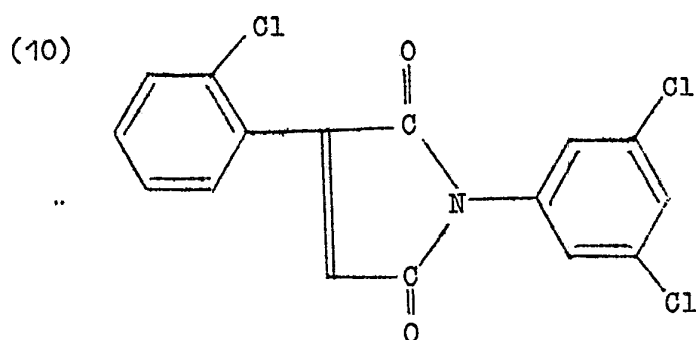
20.9.69.



N-(3',5'-diclorofenil)-2-fenilmaleimida



N-(3',5'-dibromofenil)-2-fenilmaleimida



N-(3',5'-diclorofenil)-2-(2''-clorofenil) malei
mida

20.9.69.



Los compuestos de la presente Invención tienen efectos sobresalientes sobre el hongo infectivo del arroz (Pyricularia oryzae), el hongo de la roya de la vaina del arroz (Pellicularia sasakii), el hongo Helminthosporium de la mancha de la hoja, del arroz (Cochliobolus miyabeanus), y el hongo esclerocio y el hongo del mildiu pulverulento de cultivos agrícolas y hortícolas, y, por consiguiente, son utilizables como agentes que controlan enfermedades de las plantas. Además son efectivos, asimismo, para el control del Aspergillus niger que se propaga en productos industriales. No obstante ejercen una acción perjudicial pequeña sobre los mamíferos.

Por ejemplo, la N-(3',5'-diclorofenil)-2-metil maleimida de la presente Invención, apenas tiene toxicidad oral en el ratón, y ningún ratón murió aun cuando se administrara dicho compuesto a la dosis de 2.000 mg/kg. Además la concentración letal 50% de dicho compuesto en carpa dorada fue de 10 p.p.m. o más. No han sido propuestos hasta la fecha microbicidas con espectro antimicrobiano tan amplio y acciones microbicidas tan fuertes. Por consiguiente, la utilidad de los presentes compuestos en el terreno industrial es inmenso.

Como resultado de los estudios efectuados durante años, los presentes inventores han descubierto que tal actividad fisiológica, característica de los presentes
20.9.69.



compuestos, dependen, en gran manera, de las clases y posiciones de los sustituyentes en los anillos bencénicos, que son esqueletos de las N-fenilmaleimidias. Es decir, se ha encontrado que debe haber simultáneamente

5 átomos de halógeno, como sustituyentes, en las posiciones 3 y 5 del anillo bencénico; que en el caso de que el número de sustituyentes sea 3, el tercer sustituyente debe encontrarse situado en la posición 4; que el número de sustituyentes debe ser 2 ó 3; y que en el caso en que

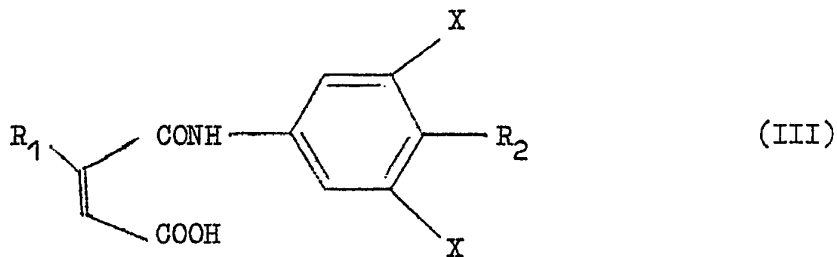
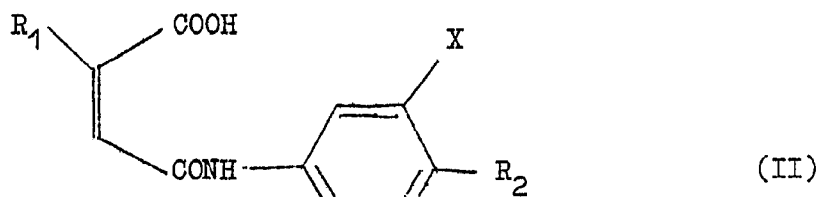
10 tales condiciones mencionadas anteriormente no sean satisfechas, los compuestos tienen una actividad marcadamente disminuída y están totalmente desprovistos de su calidad de útiles como microbicidas. La presente Invención ha sido llevada a cabo sobre la base de tales descubrimientos, anteriormente citados, y los derivados de

15 N-fenilmaleimida representados por la fórmula (I) satisfacen la totalidad de las condiciones antes citadas.

Los nuevos compuestos representados por la fórmula (I) de la presente Invención se preparan deshidratando y ciclando, según la presente Invención, derivados de la monoamida del ácido N-fenilmaleico representados por la fórmula (II) o (III).

20

20.9.69.



en las que R_1 , R_2 y X tienen el significado previamente de-
finido.

Los derivados de la monoamida del ácido N-fe-
nilmaleico de fórmulas (II) y (III), que son sustancias
5 de partida empleadas en el presente procedimiento, pueden
obtenerse fácilmente conforme a procedimientos ordinarios,
a partir de los anhídridos maleicos y las anilinas corres-
pondientes. Son anhídridos maleicos y anilinas, típicos,
los indicados a continuación, pero resulta innecesario de-
10 cir que la extensión de la presente Invención, no queda
limitada a ellos.

Anhídridos maleicos:

Anhídrido maleico.

Anhídrido 2-cloromaleico.

14
20.9.69.

371932



- Anhidrido 2-bromomaleico.
Anhidrido 2-metilmaleico.
Anhidrido 2-etilmaleico.
Anhidrido 2-propilmaleico.
5 Anhidrido 2-fenilmaleico.
Anhidrido 2-(2'-clorofenil) maleico.
Anhidrido 2-(3'-clorofenil) maleico.
Anhidrido 2-(4'-clorofenil) maleico.

Anilinas:

- 10 3,5-Dicloroanilina.
3,5-Difluoroanilina.
3,4,5-Tricloroanilina.
3,5-Dibromoanilina.
3,4,5-Tribromoanilina.
15 3,5-Dicloro-4-metilanilina.
3,5-Dicloro-4-bromoanilina.
3,5-Dibromo-4-cloroanilina.
3,5-Dibromo-4-metilanilina.
3,5-Dicloro-4-propilanilina
20 3,5-Diiodo anilina.

Al llevar a la práctica el presente procedimiento, las monoamidas de partida, simplemente, se calientan y funden a unos 170°C, con los que pueden obtenerse los productos deseados. Sin embargo, es deseable el someter a las monoamidas de partida, a reflujo, con agitación,
25
20.9.69.



en presencia de un agente deshidratante adecuado, por ejemplo, anhídrido acético, cloruro de acetilo, pentacloruro de fósforo, u oxiclорuro de fósforo, preferentemente anhídrido acético, con lo que pueden obtenerse los productos
5 deseados con facilidad y con rendimientos elevados. En este caso el tiempo de reacción es, adecuadamente, de 1 hora aproximadamente.

En la aplicación actual como microbicidas, los compuestos de la presente Invención, así obtenidos, pueden
10 utilizarse en forma pura sin la incorporación de otros ingredientes.

Para una más fácil aplicación como microbicidas, sin embargo, pueden emplearse en mezcla con excipientes inertes y pueden formularse en cualquiera de las formas
15 habitualmente adoptadas, como, por ejemplo, polvos, polvos humectables, pulverizaciones oleosas, pulverizaciones, tabletas, concentrados emulsionables, gránulos, etc. Además, los presentes compuestos pueden utilizarse en mezcla con otros compuestos químicos, como, por ejemplo, Blasticidin-S, Kasugamicina, Polioxina, pentaclorobenzaldoxi-
20 ma, γ -1,2,3,4,5,6-hexaclorociclohexano; imida del ácido N-(3,5-diclorofenil)-maleico; imida del ácido N-(3,5-diclorofenil)succínico; imida del ácido N-(3,5-diclorofenil)itacónico, fósforotioato de O,O-dietil-S-bencil, fósforditiolato de O-etil-S,S-difenilo, fósforditiolato de O-bu
25 20.9.69.



til-S-bencil-S-etil, fósforotioato de O,O-dimetil-O-(3-me
til-4-nitrofenilo), fósforoditioato de S- $\sqrt{1}$,2-bis(etoxi-
carbonil)etil-0,0-dimetilo, fósforoditioato de O,O-dime-
til-S-(N-metil carbamoilmetilo), tiofosfato de O,O-dietil-
5 O-(2-isopropil-6-metil-4-pirimidinilo), N-metilcarbamato
de 3,4-dimetilfenilo, etilenbisditiocarbamato de zinc,
N-triclorometiltio-4-ciclohexeno-1,2-dicarboximida,
N-(1,1,2,2-tetracloroetiltio)-4-ciclohexeno-1,2-dicarboxi-
mida, metilarsonato de hierro, etc. En la totalidad de los
10 casos los efectos de control de los compuestos químicos
aislados, no resultan dañados. Por consiguiente, es posi-
ble el control simultáneo de más de dos tipos de enferme-
dades e insectos perjudiciales, y pueden esperarse, asi-
mismo, efectos sinérgicos debidos al mezclado. Además,
15 los compuestos presentes pueden utilizarse en mezcla con
productos químicos agrícolas, tales como herbicidas, nema-
toidas y mitocidas, así como con fertilizantes.

La presente Invención se ilustrará a continua-
ción, con mayor detalle, con referencia a ejemplos, pero
20 es innecesario indicar que los ejemplos no limitan el al-
ce de la Invención.

Ejemplo 1-10

Todos estos ejemplos se llevaron a cabo según
el siguiente procedimiento operatorio tipo:

25
20.9.69.

Se coloca en un matraz de 100 ml de 4 bocas,



una mezcla constituida por 0,1 moles de una de las monoamidas de ácido N-fenilmaleico representadas mediante las fórmulas (II) ó (III), 50 g. de anhídrido acético y 1 g de acetato sódico anhidro, y se calienta a 100°C, con agitación, durante 1 hora. Después de ello, el ácido acético y el anhídrido acético se eliminan mediante destilación a presión reducida, y el residuo se lava con agua y seca, para obtener, con rendimiento elevado, una de las N-fenil maleimidadas deseadas, representadas por la fórmula (I). Si es necesario, se recristaliza el producto a partir de etanol, para obtenerlo en forma pura.

Los resultados obtenidos poniendo en práctica el procedimiento operatorio tipo, mencionado, se muestran en la Tabla I

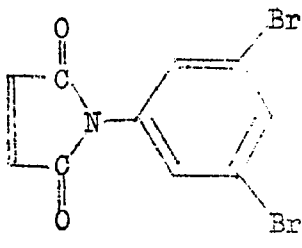
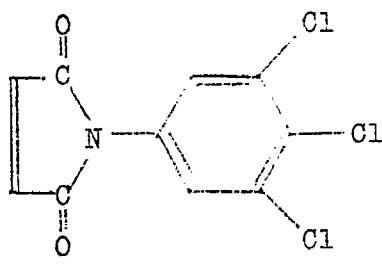
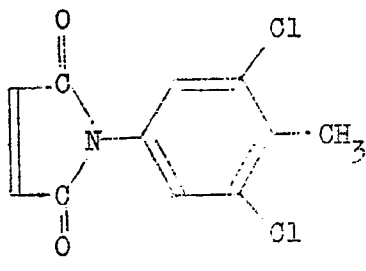
371932

20.9.69.

TABLA 1

Ejemplo N°	Com-puesto N°	Estructura	N-fenilmaleimidas resultantes					
			Rendi-miento (%)	F.F. (i.c.)	Análisis elemental (X: Atomo de halógeno)			X (%)
					C (%)	H (%)	N (%)	
1	(1) Monoamida del ácido N-fenilmaleico de partida N-(3',5'-Dibromofenil)maleico		87	150,5 162,5	Calculado 36,29 Encontrado 35,97	1,52 1,54	4,23 4,01	(Br) 48,29 48,43
2	(2) Monoamida del ácido N-(3',4',5'-Triclorofenil)maleico		92	173 174,5	Calculado 43,44 Encontrado 43,21	1,46 1,26	5,07 5,11	(Cl) 35,47 36,22
3	(3) Monoamida del ácido N-(3',5'-dicloro-4'-metilfenil) maleico		90	151 152	Calculado 51,59 Encontrado 51,63	2,76 2,46	5,47 5,27	(Cl) 27,69 27,90

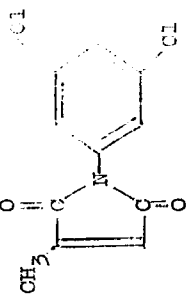
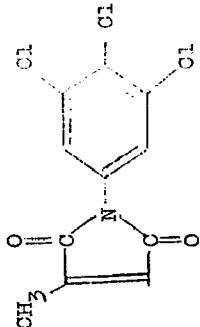
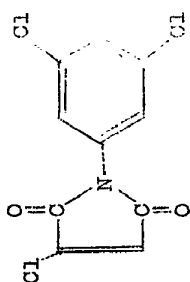
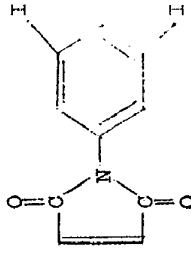
TABLA 1

Ejem- plo Nº	Com- pues- to Nº	Monoamidas del ácido N-fenilmaleico de partida	Estructura	N-fe
				Re mi (
1	(1)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Dibromofe- nil)maleico		8
2	(2)	Monoamida del ácido N-(3',4',5'-Triclo- rofenil)maleico		9
3	(3)	Monoamida del ácido N-(3',5'-dicloro- 4'-metilfenil) malei co		9

20.9.69.



N-fenilmaleimidas resultantes					
Rendimiento (%)	P.F. (P.C.)	Análisis elemental (X: Atomo de halógeno)			
		C (%)	H (%)	N (%)	X (%)
87	160,5 162,5	Calculado			(Br)
		36,29	1,52	4,23	48,29
		Encontrado			
		35,97	1,54	4,01	48,43
92	173 174,5	Calculado			(Cl)
		43,44	1,46	5,07	38,47
		Encontrado			
		43,21	1,26	5,11	38,22
90	151 152	Calculado			(Cl)
		51,59	2,76	5,47	27,69
		Encontrado			
		51,63	2,46	5,27	27,90

4	(4)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2(ó 3)-metilmaleicc.		88	115,5 118	Calculado 51,59 Encontrado 51,53	2,76 2,63	5,47 5,35	(Cl) 27,69 27,74
5	(5)	Monoamida del ácido N-(3',4',5'-Triclorofenil)-2(ó 3)-metilmaleico.		93	137 138	Calculado 45,47 Encontrado 45,27	2,08 2,03	4,82 4,98	(Cl) 36,61 36,82
6	(6)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2(ó 3)-cloro-maleico		85	115,5 116,5	Calculado 43,44 Encontrado 43,78	1,46 1,38	5,07 4,99	(Cl) 38,47 38,84
7	(7)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diodofenil)maleico		86	170 172	Calculado 31,86 Encontrado 31,74	1,34 1,56	3,72 3,93	(I) 67,33 67,18

4	(4)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2 (ó 3)-metilmaleico.		88
5	(5)	Monoamida del ácido N-(3',4',5'-Triclorofenil)-2(ó 3)-metilmaleico.		93
6	(6)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2 (ó 3)-cloromaleico		85
7	(7)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diiodofenil)maleico		86

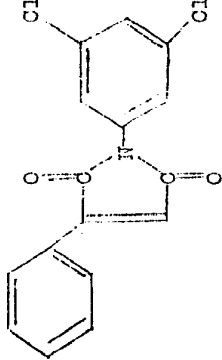
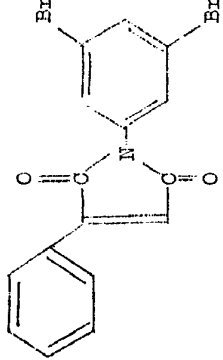
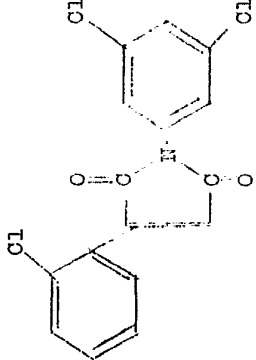
20.9.69.

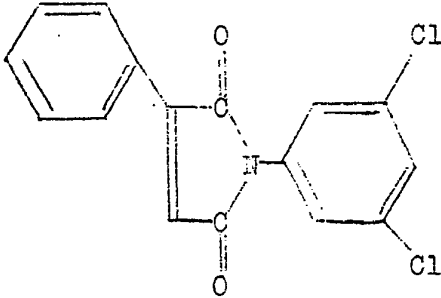
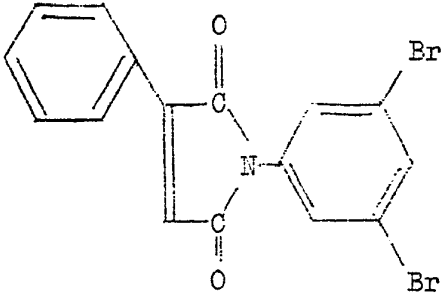
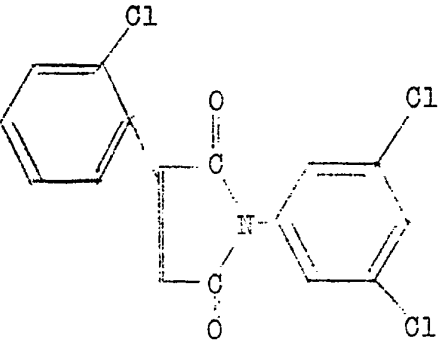


88	115,5 } 118	Calculado 51,59 Encontrado 51,53	2,76 2,63	5,47 5,35	(C1) 27,69 27,74
93	137 } 138	Calculado 45,47 Encontrado 45,27	2,08 2,03	4,82 4,98	(C1) 36,61 36,82
85	115,5 } 116,5	Calculado 43,44 Encontrado 43,78	1,46 1,38	5,07 4,99	(C1) 38,47 38,84
86	170 } 172	Calculado 31,86 Encontrado 31,74	1,34 1,56	3,72 3,93	(I) 67,33 67,18

37032

56 27 200

8	(8)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2 (6 3)-fenilmaleico		90	163 / 154,5	Calculado 60,46 Encontrado 60,35	2,85 2,66	4,40 4,50	(Cl) 22,29 22,48
9	(9)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Dibromofenil)-2(6 3)-fenilmaleico.		86	166,5 / 168,5	Calculado 47,21 Encontrado 47,55	2,23 2,22	3,44 3,27	(Br) 39,26 38,89
10	(10)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2 (6 3)-(2"-clorofenil) malei co.		91	196,5 / 197	Calculado 54,50 Encontrado 54,55	2,29 2,13	3,97 4,02	(Cl) 30,47 29,95

8	(8)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2(6 3)-fenilmaleico	
9	(9)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Dibromofenil)-2(6 3)-fenilmaleico.	
10	(10)	Monoamida del ácido N-(3',5'-Diclorofenil)-2(6 3)-(2''-clorofenil) maleico.	

20.9.69.



90	163 / 164,5	Calculado 60,46 Encontrado 60,35	2,85 2,66	4,40 4,50	(01) 22,29 22,48
86	166,5 / 168,5	Calculado 47,21 Encontrado 47,55	2,23 2,22	3,44 3,27	(Er) 39,26 38,89
91	196,5 / 197	Calculado 54,50 Encontrado 54,55	2,29 2,13	3,97 4,02	(01) 30,17 29,95

371000



El compuesto activo empleado se representa mediante el número de cada compuesto, previamente puesto de ejemplo.

Ejemplo 11 Polvo:

5 Se pulverizaron completamente y se mezclaron 3 Partes del compuesto (3) y 97 partes de arcilla, obteniéndose un polvo que contenía el 3% de ingrediente activo. Para su aplicación, el polvo se espolvoreó tal como estaba.

10 Ejemplo 12 Polvo:

Se pulverizaron completamente y se mezclaron 4 partes del compuesto (10) y 96 partes de talco, obteniéndose un polvo que contenía el 4% de ingrediente activo. Para su aplicación el polvo se espolvoreó tal como era.

15 Ejemplo 13 Polvo humedecible

Se pulverizaron completamente y se mezclaron, 50 partes del compuesto (7) 5 partes de un agente humectante, tipo alcoholbencenosulfonato, y 45 partes de tierra de diatomeas, obteniéndose un polvo humectable que contenía el 50% de ingrediente activo. Para su aplicación, el polvo humectable se diluyó con agua y se pulverizó.

20 Ejemplo 14 Concentrado emulsionable:

Se mezclaron 10 partes del compuesto (6), 80 partes de dimetil sulfóxido y 10 partes de un emulgente, tipo éter polioxietilénico de fenilfenol, para obtener un

25
20.9.69.



concentrado emulsionable que contenía el 10% de ingrediente activo. Para su aplicación, el concentrado emulsionable se diluyó con agua y se pulverizó.

Ejemplo 15 Gránulo:

5 Se pulverizaron completamente y se mezclaron, 5 partes del compuesto (5), 93,5 partes de arcilla y 1,5 partes de un aglutinante, tipo polialcohol vinílico. Después de amasar con agua, se granuló la mezcla y se secó, obteniéndose una preparación en gránulos, que contenía el
10 5% de ingrediente activo.

Ejemplo 16 Polvo compuesto:

 Se pulverizaron completamente y se mezclaron, 2 partes del compuesto (1), 1,5 partes de fósforoditiolato de O-n-butyl-S-etil-S-bencilo, 0,1 partes de Kasugamicina
15 y 96,4 partes de arcilla, obteniéndose un polvo que contenía 3,6% de ingrediente activo. Para su aplicación el polvo se espolvoreó tal como era.

Ejemplo 17 Polvo compuesto:

 Se pulverizaron completamente y se mezclaron
20 2 partes del compuesto (4), 1,5 partes de fósforoditiolato de O-n-butyl-S-etil-S-bencilo, 2 partes de fósforotioato de O,0-dimetil-O-(3-metil-4-nitrofenilo), 1,5 partes de N-metil carbamato de 3,4-dimetilfenilo y 93 partes de arcilla, obteniéndose un polvo que contenía el 7% de ingrediente activo. Para su aplicación el polvo se espolvoreó
25

20.9.69



tal como era.

Con objeto de poner de manifiesto los excelentes efectos microbicidas de los compuestos presentes, se muestran en los ejemplos de ensayo que se indican a continuación, los resultados de ensayos típicos.

Ejemplo de Ensayo 1

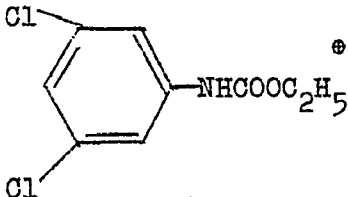
Resultados de controlar el hongo infectivo del arroz (Pyricularia oryzae):

Plantas de arroz (variedad: "Waseasahi"), que
10 habían sido cultivadas hasta la fase de 3 hojas, en tiestos de 9 cm de diámetro, se pulverizaron individualmente con 7 ml/tiesto de una solución acuosa diluída de cada uno de los compuestos químicos en ensayo, en forma de polvos humectables. Después de un día, las plantas de arroz
15 se pulverizaron e inocularon con una suspensión de esporas del hongo infectivo del arroz (Pyricularia oryzae). 5 días después, se contó el número de manchas de enfermedad generadas, para investigar el efecto fungicida de cada compuesto químico, con lo que se obtuvieron los resultados reseñados en la Tabla 2. Como puede verse en esta Tabla 2,
20 los presentes compuestos mostraron efectos acusadamente sobresalientes en comparación con los compuestos conocidos, empleados como control.

20.9.69.



Tabla 2

Compuesto	Concentración de Ingrediente Activo (p.p.m.)	Número de manchas por 10 hojas
(3)	500	18
(6)	500	26
 (Compuesto conocido)	500	225
Sin tratamiento	-	377

[⊕]Control

Ejemplo de Ensayo 2

Resultados de controlar el hongo *Helminthosporium* de la mancha de la hoja, del arroz (*Cochliobolus miyabeanus*):

5 Plantas de arroz (variedad : "Waseasahi"), que habían sido cultivadas hasta la fase de 4 hojas, en tiestos de 9 cm de diámetro, se espolvorearon individualmente, utilizando una campana de vidrio, con 100 mg/tiesto de cada uno de los compuestos químicos en ensayo, en forma de

9
20.9.69.



5 polvos. Después de un día, las plantas de arroz se pulverizaron e inocularon con una suspensión de esporas del hongo *Helminthosporium* de la mancha de la hoja, del arroz (*Cochliobolus Miyabeanus*).

10 3 días después de esto, se contó el número de manchas de enfermedad generadas, para investigar el efecto fungicida de cada compuesto químico, con lo que se obtuvieron los resultados indicados en la Tabla 3. Como se aprecia en la Tabla 3, los presentes compuestos mostraron efectos acusadamente sobresalientes, comparados con los compuestos conocidos de control.

Tabla 3

15

Compuesto	Concentración de ingrediente activo (%)	Número de manchas por hoja
(1)	3,0	0
(2)	3,0	4
20 (3)	3,0	0
(4)	3,0	6
(5)	3,0	13
(6)	3,0	7
(7)	3,0	6
25 (9)	3,0	19

20.9.69.



(10)	3,0	17
	3,0	83
(Compuesto conocido)		
	3,0	67
(Compuesto conocido)		
	3,0	61
(Compuesto conocido)		
Sin tratamiento	-	78

⊕ Control

20.9.69.



Ejemplo de Ensayo, 3

Resultados de controlar el hongo de la roya de la vaina del arroz (Pellicularia sasakii):

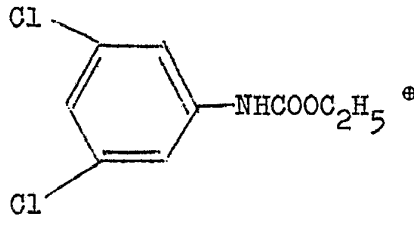
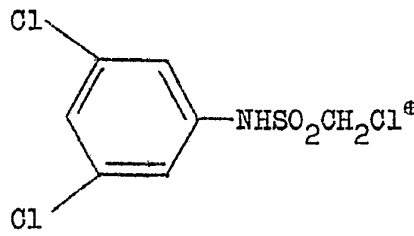
Se cultivaron plantas de arroz (variedad: "Waseasahi"), en tiestos de 9 cm de diámetro, cuatro ta-
5 llos en cada tiesto. Cuando crecieron hasta una altura de 50 - 60 cm, se pulverizaron las plantas con 10 ml / tiesto, de una emulsión acuosa diluida de cada uno de los compues-
10 tos químicos en ensayo, en forma de concentrados emulsio- nables. Después de 3 horas se aplicaron a las vainas de las hojas de tallos individuales de la planta, e inocula- ron en ellas, inoculum de disco miceliel del hongo de la roya de la vaina del arroz (Pellicularia sasakii). 5 Días después de ésto, se midieron los tamaños de las manchas
15 de enfermedad generadas sobre las vainas de las hojas, para calcular el grado de daño y para investigar los efec- tos fungicidas de los compuestos químicos. Los resultados obtenidos se indican en la Tabla 4. Como se ve en la Tabla 4, los presentes compuestos exhibieron efectos acusadamente
20 sobresalientes, comparados con los compuestos conocidos de control.

20.9.69.

371932



Tabla 4

Compuesto	Concentración de ingrediente activo (p.p.m.)	Grado de daño
(1)	200	0
(2)	200	9,2
(3)	200	11,4
(4)	200	2,3
(8)	200	8,5
 (Compuesto conocido)	200	87,4
 (Compuesto conocido)	200	92,8
TUZ (Nombre registrado) [⊕]	200	7,6
Sin tratamiento	-	100

[⊕] Control

20.9.69.



(TUZ) : Un polvo humectable al 80% que comprende:

Ditiocarbamato de monometilarsina-bis-dimetilo	20%
Ditiocarbamato de dimetil-zinc	20%
Disulfuro de tetrametiltiuram	40%

5

Ejemplo de Ensayo, 4

Resultados de controlar el mildiu pulverulento (Sphaerotheca fuliginea) de las plantas cucurbitáceas:

10 Se cultivaron en tiestos de 12 cm de diámetro, plantas de calabaza (variedad: "Heian Kogiku"). Cuando crecieron hasta la fase de 3-4 hojas, se pulverizaron las plantas con 7 ml / tiesto, de cada una de las soluciones, de concentración dada, de los compuestos químicos en ensayo, en forma de polvos humectables. Un día después las

15 plantas fueron pulverizadas e inoculadas con una suspensión de esporas del hongo del mildiu de las plantas cucurbitáceas (Sphaerotheca fuliginea). 10 días después se observó el estado de enfermedad de 4 hojas en la porción superior de cada planta, y se calculó el grado de daño a partir del área de las manchas generadas. En cada tratamiento

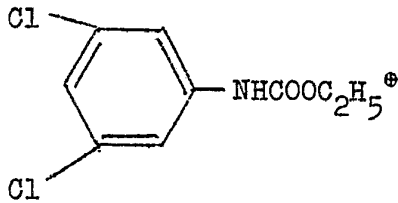
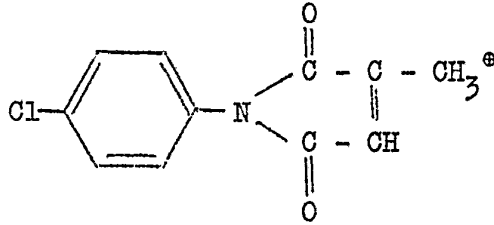
20 se ensayaron 7 tiestos, obteniéndose los resultados mostrados en la Tabla 5. Como puede apreciarse en la Tabla 5, los presentes compuestos exhiben efectos marcadamente sobresalientes, comparados con los compuestos conocidos, empleados de control.

25

20.9.69.



Tabla 5

Compuesto	Concentración de ingrediente activo (p.p.m.)	Grado de daño
(4)	500	4,8
(6)	500	6,7
 (Compuesto conocido)	500	31,2
 (Compuesto conocido)	500	46,1
Sin tratamiento	-	50,9

⊕Control

20.9.69.



Ejemplo de Ensayo, 5

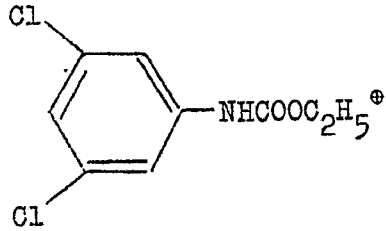
Resultados de controlar el hongo de las plantas de pepino (Pellicularia filamentosa):

5 Se llenaron, individualmente, tiestos de 9 cm de diámetro, con una tierra de granja. Además, se esparció uniformemente sobre la superficie de dicha tierra de granja, 10 ml / tiesto, de una tierra contaminada, en la que se había cultivado y propagado el hongo de las plantas de pepino (Pellicularia filamentosa). Seguidamente, la tierra se regó con 15 ml/tiasto de una emulsión acuosa de 10 500 p.p.m. de cada uno de los compuestos químicos en ensayo, en forma de concentrados emulsionables. Después de 2 horas se sembraron en la tierra 10 semillas de pepino (Variedad: "Kairyo Aodaicho") por tiesto. 5 días después de 15 ésto se observó el estado de enfermedad de las plantas de pepino para calcular la proporción de plantas no dañadas e investigar el efecto fungicida de los compuestos químicos. Los resultados obtenidos se indican en la Tabla 6. Como puede apreciarse en la Tabla 6 los presentes compuestos 20 mostraron efectos acusadamente sobresalientes.

20.9.69.



Tabla 6

Compuesto	Concentración de ingrediente activo (p.p.m.)	Proporción de plantas no dañadas (%)
(1)	500	88
(4)	500	93
(7)	500	90
 (Compuesto conocido)	500	0
Pentacloronitrobenceno [⊕] (Microbicida que puede adquirirse comercialmente)	500	86
Sin tratamiento, inoculado con el hongo	-	0
Sin tratamiento, sin inocular el hongo	-	100

[⊕]Control

Ejemplo de Ensayo, 6

Espectro antimicrobiano:

Según el método de dilución en medio de ágar,

20.9.69.



se investigaron los efectos de inhibición del crecimiento del compuesto (4) sobre diversos hongos y bacterias patógenos para las plantas, obteniéndose los resultados que se indican en la Tabla 7.

5

Tabla 7

Organismos de ensayo	Concentración efectiva (p.p.m.)
Pyricularia oryzae	40
Xanthomonas oryzae	200
Pellicularia filamentosa	40
Fusarium oxysporum f. niveum	200
Corticium rolfsii	200
Botrytis cinerea	8
Sclerotinia sclerotiorum	8
Alternaria kikuchiana	8
Alternaria mali	200
Glomerella cingulata	40

10

15

20

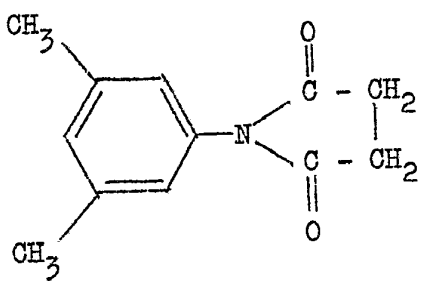
Conforme al mismo método anteriormente indicado, se investigaron los efectos de inhibición del crecimiento de varios compuestos, sobre el Aspergillus niger, cepa ATCC 9642, obteniéndose los resultados que se indican en la Tabla 8.

25

20.9.69.



Tabla 8

Compuesto	Concentración efectiva (p.p.m.)
(1)	200
(2)	200
(3)	200
(5)	200
 (Control)	1.000 <

Nota: "1.000 <" muestra que no se observó ningún efecto a una concentración de 1.000 p.p.m.

20.9.69.

371932

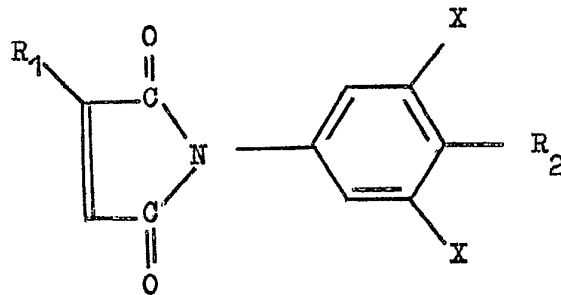


La presente solicitud que corresponde a la presentada en el Japón, el 9 de Octubre de 1.968, bajo el Nº 73.800/68, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

REIVINDICACIONES

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

10 1.- Un procedimiento de preparar una nueva composición microbicida, caracterizado porque comprende mezclar un excipiente inerte con un derivado de N-fenilma_lleimida representado por la fórmula,



371932

4.11.71.



en la que R_1 representa un átomo de hidrógeno, un átomo de halógeno, un grupo alcohilo inferior un grupo fenilo o un grupo fenilo sustituido por halógeno; R_2 representa un átomo de hidrógeno, un grupo alcohilo inferior o un átomo de halógeno; y X representa un átomo de halógeno, siempre que, en el caso en que R_1 y R_2 son átomos de hidrógeno, X representa un átomo de halógeno distinto de un átomo de cloro.

5
10 2.- Un procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por preparar la composición en forma de polvo, polvo humectable, concentrado emulsionable, gránulo, pulverización oleosa, pulverización o tabletas.

3.- Un procedimiento para preparar una nueva composición microbicida.

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

Esta Memoria consta de treinta y dos hojas escritas a máquina por una sola cara.

11 NOV 1971

Madrid,

P. A.

371932

AP
11 NOV 1971
[Handwritten signature]

G.D.S.
4.11.71.