

20673

386353

P. 46.507

Nº 1324/1º ad./E

SECCION TECNICA
 CLASIFICACION I.P.C.
 CLASE CO7 A01
 SUBCLASE D N



MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

1º CERTIFICADO DE ADICION

386353

en

ESPAÑA

por VEINTE años

a nombre de ROUSSEL-UCLAF, sociedad anónima francesa,
 establecida en 35 Boulevard des Invalides, París, Fran-
 cia

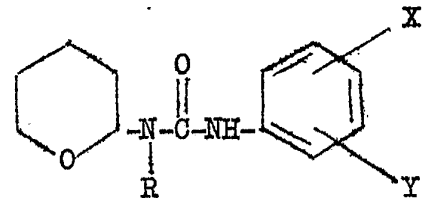
por: "MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRIN-
 CIPAL Nº. 375.615, solicitada el 19-I-1970, por: "Un pro-
 cedimiento de preparación de las nuevas N-alcohol-N-(te-
 trahidropiranyl-2)N'-(X-Y-fenil)ureas"

(Clase Internacional CO7d)

=====

En la patente principal número 375.615 se ha
 descrito un procedimiento de preparación de N-alcohol-N-
 (2-tetrahidropiranyl)-N'-(X,Y-fenil)-ureas de fórmula I

5



(I)

7.12.70.



en la cual R representa un radical alcohilo inferior, X representa un átomo de hidrógeno, de cloro o de bromo e Y representa un átomo de hidrógeno, de cloro o de bromo, un grupo nitro o un grupo trifluorometilo.

5 El presente Certificado de Adición tiene como objeto un procedimiento de preparación de nuevas ureas sustituidas, cuyos nombres son los siguientes:

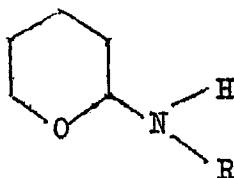
10 La N-metil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(meta-trifluorometilfenil)-urea, (compuesto II) y la N-etil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(3,4-diclorofenil)-urea (compuesto III).

Estos compuestos están dotados de notables propiedades pesticidas, especialmente herbicidas.

15 Sus propiedades herbicidas pueden ser puestas en evidencia por ensayos sobre plantas representativas de grandes familias botánicas tales como avena, trigo, maiz, cola de zorra (gramíneas), remolacha, (quenopodiaceas), crisantemo (compuestas), trébol (papilionáceas), lino (lináceas) y mostaza (crucíferas).

20 Detalles sobre estos ensayos se dan más adelante.

El procedimiento de preparación de los compuestos II y III, caracterizado esencialmente porque, según el procedimiento de la patente principal, se hace reaccionar un 2-alcohilaminotetrahidropirano, de fórmula:



386353

30

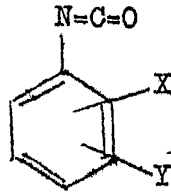
7.12.70.

20673



en la cual R conserva el significado antedicho, con un isocianato de fenilo, X, Y-sustituído de fórmula

5



10

en la cual X e Y conservan los significados antedichos, para obtener la N-alcohol-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(X,Y-fenil)-urea correspondiente deseada.

La condensación del 2-alcoholaminotetrahidropirano con isocianato de fenilo sustituido se efectúa en el seno de un disolvente orgánico tal como tetrahidrofurano, éter etílico o éter isopropílico.

15

Las nuevas ureas sustituidas, obtenidas por el procedimiento objeto del invento, pueden ser empleadas para la preparación de composiciones pesticidas, especialmente herbicidas, que contienen como materia activa uno al menos de los compuestos II o III y eventualmente uno o varios otros agentes pesticidas.

20

Estas composiciones pueden presentarse bajo forma de polvos, granulados, suspensiones, emulsiones, soluciones que contienen especialmente, además de los principios activos, agentes tensioactivos catiónicos, aniónicos o no iónicos, polvos inertes, tales como talco, arcillas, silicatos, kieselguhr, etc., un vehículo tal como agua, alcohol, hidrocarburos u otros disolventes orgánicos, un aceite mineral, animal o vegetal, etc.

25

Por ejemplo, para los usos herbicidas, se utilizará un concentrado emulsificable que contiene, en peso, 7.12.70.

30

386353



10% de N-metil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(metatrilfluoro metilfenil)-urea, 6% de ATLOX 4851 (alcohilarilsulfonato mezclado con un triglicérido polioxietilenado con viscosidad a 25°C igual a 300-700 cps, soluble en agua), 4% de
 5 ATLOX 4855 (alcohilarilsulfonato mezclado con un triglicérido polioxietilenado, con viscosidad a 25°C igual a 1500-1900 cps, dispersable en agua), 40% de ciclohexanona y 40% de xileno.

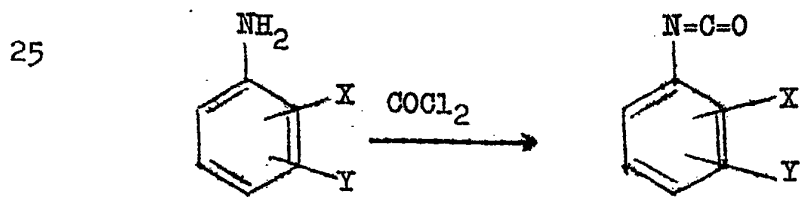
10 Estas composiciones herbicidas contienen en general de 5 a 80% en peso, preferentemente de 10 a 50% en peso de materia activa.

Pueden ser empleadas para la lucha pesticiada, especialmente herbicida, para combatir los organismos perjudiciales y especialmente las malas hierbas.

15 El 2-metilaminotetrahidropirano puede ser preparado según el método descrito por G. GLACET y D. VERON, C. R. Académie des Sciences 248, 1.347 (1959).

20 El 2-etilaminotetrahidropirano puede ser preparado según el método descrito por G. GLACET y J.C. COUTURIER, Bull. Soc. Chim. 1962, 2097.

Los isocianatos de fenilo, X, Y-sustituídos pueden ser preparados por acción del fosgeno sobre la fenilamina X, Y-sustituída conveniente según el esquema:



30 Los ejemplos siguientes ilustran el certificado de adición pero sin conferirle ningún carácter limi

7.12.70.

386353

6673



tativo.

Ejemplo 1: N-metil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(metatrifluorometilfenil)-urea.

En 300 cm³ de tetrahidrofurano, se introducen 29 g de isocianato de metatrifluorometilfenilo, compuesto descrito en la patente de los Estados Unidos 2.625.561, y después se añaden gota a gota 17,4 g de 2-metilaminotetrahidropirano en solución en 100 cm³ de tetrahidrofurano, se agita durante 16 horas a la temperatura ambiente, se concentra hasta sequedad por destilación, bajo presión reducida, se disuelve el residuo en acetato de etilo, se añade éter isopropílico, se enfría, se aísla el precipitado formado por filtración con succión, y se obtienen 30 g de N-metil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(metatrifluorometilfenil)-urea, p. de f. = 123°C.

Análisis: C₁₄H₁₇F₃N₂O₂ : 302,28

Calculado:	C% 55,63	H% 5,67	F% 18,86	N% 9,28
Encontrado:	55,7	6	18,9	9,3

Por lo que se sabe, este compuesto no está descrito en la bibliografía.

Ejemplo 2: N-etil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(3,4-diclorofenil)-urea.

En 400 cm³ de tetrahidrofurano, se introducen 13 g de 2-etilaminotetrahidropirano, y después se añade gota a gota una solución de 18,8 g de isocianato de 3,4-diclorofenilo, compuesto descrito por WERNER SIEFKEN Ann. 562 75 (1949), en 100 cm³ de tetrahidrofurano, se agita durante 16 horas a la temperatura ambiente, se concentra hasta sequedad por destilación bajo presión reducida, se cristaliza el residuo en éter isopropílico y se

7.12.70.

386353



obtienen 23,2 g de N-etil-N-(2-tetrahidropiraniil)-N'-(3,4-diclorofenil)-urea; p. de f. = 85°C.

Análisis: $C_{14}H_{18}Cl_2N_2O_2$ (317,22)

Calculado: C % 53,00 H % 5,72 Cl % 22,35 N % 8,84

5 Encontrado: 53,00 5,6 22,1 8,7

Por lo que se sabe, este compuesto no está descrito en la bibliografía.

Estudios de las propiedades herbicidas de después del brote de la N-metil-N-(2-tetrahidropiraniil)-N'-(metatrifluorometilfenil)-urea (compuesto A).

10

Los 9 vegetales utilizados (avena, remolacha, trigo, crisantemo, lino, maíz, mostaza, trébol y cola de zorra) son cultivados en una cubeta de cultivo (de 23 x 14 x 4 cm) con doble fondo y riego por la parte inferior. Las 9 especies son colocadas, a razón de 20 granos por especie, en líneas separadas en 3 cm, en una cubeta única, y se efectúan cuatro repeticiones para cada concentración. Las condiciones de cultivo son las siguientes: temperatura 20°C ± 2°C, humedad aproximadamente 60%, iluminación por tubo fluorescente (luz del día + blanco brillante) desde las 6 horas hasta las 22 horas, cada día. La mezcla de tierra utilizada está compuesta por 10 volúmenes de tierra normal, 10 volúmenes de arena de río y dos volúmenes de turba.

15

20

25

El tratamiento se efectúa después de 21 días de cultivo, sobre las partes aéreas.

El producto a estudiar es aplicado, en condiciones normales con ayuda de un micro-pulverizador, en dosis de 5; 2,5; 1,25 y 0,62 kg/hectárea y con una dilución correspondiente a 560 litros/hectárea.

30
7.12.70.



Se efectúan igualmente ensayos testigo sin tratamiento.

El control final se efectúa por pesada de las plantículas, 15 días después del tratamiento.

5 Los resultados son expresados en porcentaje de reducción de la vegetación:

$$P = \frac{\text{Peso de las plantículas testigo} - \text{peso de las plantículas tratadas}}{\text{Peso de las plantículas testigo}} \times 100$$

10 La tabla siguiente resume los resultados experimentales obtenidos con el compuesto A:

Porcentaje de reducción de la vegetación

	Dosis en kg de materia activa por hectárea			
	5,0	2,5	1,25	0,62
Avena	40,0	39,0	10,0	0
Remolacha			100	70,0
Trigo	35,0	33,0	13,0	7,0
Crisantemo				100
Lino		100	50,0	18,0
Maiz	53,0	30,0	15,0	4,0
Mostaza			100	60,0
Trébol			100	50,0
Gola de zorra	100	45,0	31,0	14,0

Conclusión: En la dosis de 1,25 kg/hectárea, el compuesto A posee una buena actividad herbicida de después del brote. Muestra ser selectiva frente a la avena, al trigo y al maiz.

30
7.12.70.

La presente solicitud que corresponde a la



presentada en Francia, el 12 de Diciembre de 1969, bajo el Nº 69-43163, 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 la presente solicitud de 1º Certificado de Adición en España, son los siguientes:

10 1.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal 375.615, o sea, en un procedimiento de preparación de nuevas ureas sustituidas escogidas en el grupo constituido por la N-etil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-netatrilfluorometilfenil)-urea y la N-etil-N-(2-tetrahidropiranyl)-N'-(3,4-diclorofenil)-urea, caracterizadas porque se hace reaccionar, en el seno de un disolvente orgánico, 2-metilaminotetrahidropirano con isocianato de netatrilfluorometilfenilo, ó 2-etilaminotetrahidropirano con isocianato de 3,4-diclorofenilo, y se aísla el compuesto deseado.

20 2.- "MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL Nº. 375.615, solicitada el 19-I-1970, por: "Un procedimiento de preparación de las nuevas N-alcohol-N-(tetrahidropiranyl-2)N'-(X-Y-fenil)ureas.

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

24

7.12.70.



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

Madrid, 11 DIC. 1970

P. A.

Alberto de
Por Deber.

G.D.S.
7.12.70

386353