

Int. Cl. C07D // A01N

Nº. 427.893

MEMORIA DESCRIPTIVA

correspondiente a la solicitud de concesión de una

PATENTE DE INVENCION

SOLICITANTE: NIPPON SODA COMPANY, LIMITED

RESIDENCIA: Nº 2-1. Ohtemachi 2-chome, Chiyoda-ku

TOKYO (Japón)

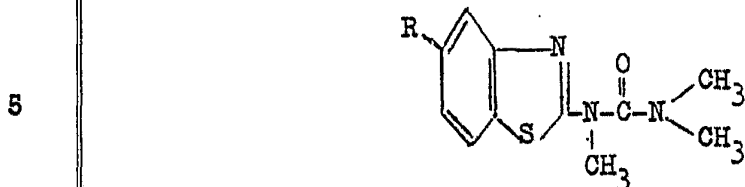
ENUNCIADO: UN PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCION

DE NUEVOS DERIVADOS DE TRIMETILUREA

Prioridad: Patente japonesa n.º 74610/73 del 2-7-73

1 RESUMEN DE LA INVENCION

Los derivados del benzotiazol de fórmula general

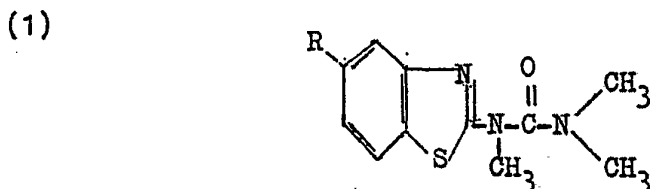


donde R es átomo de cloro, alquilo que tiene de 1 a 4 átomos de carbono o metoxi; son útiles como herbicidas selectivos.

10 DESCRIPCION DETALLADA DE LA INVENCION

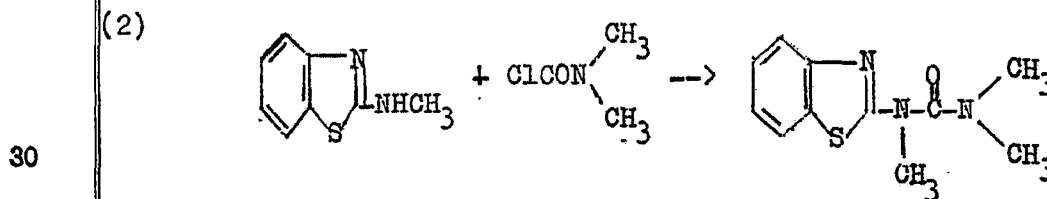
La presente invención se refiere al 3-(2-benzotiazolil sustituido en 5)-1,1,3-trimetilurea, sus métodos de preparación y su uso como herbicida selectivo.

15 Los compuestos de la invención se pueden representar por la fórmula:



20 donde R es átomo de cloro, alquilo que tiene de 1 a 4 átomos de carbono o metoxi.

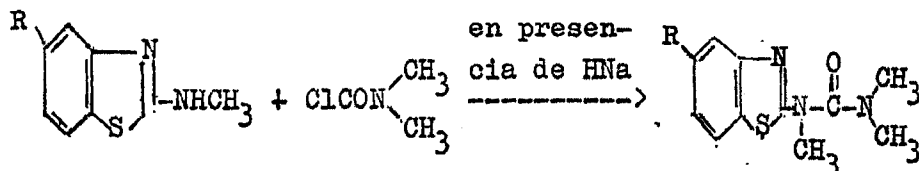
Hasta ahora, se sabe por la Patente Norteamericana Nº 2.756.135 que el 3-(2-benzotiazolil)-1,1,3-trimetilurea que tiene actividad herbicida se puede preparar por
25 reacción de 2-metilaminobenzotiazol con cloruro de N,N-dimetilcarbamilo según se expresa por la ecuación siguiente:



1 sin embargo, no se obtuvo tal compuesto, sino que se recuperaron las materias de partida aun cuando el inventor siguió la reacción anterior según los ejemplos 1 y 3 de la descripción de la Patente Norteamericana Nº 2.756.135.

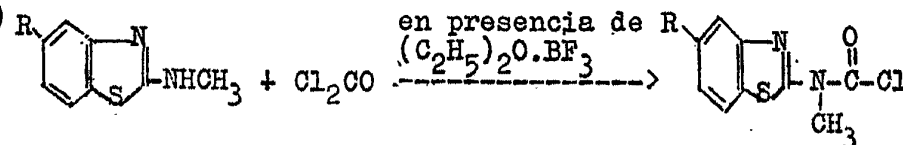
5 Cuando se usa un 2-metilaminobenzotiazol sustituido en 5 en vez de 2-metilaminobenzotiazol, se recuperan las materias de partida, y no se obtiene el producto deseado. Como resultado de una serie de experiencias, se ha encontrado que el compuesto de esta invención se puede preparar mediante las reacciones indicadas a continuación:

10 (3)

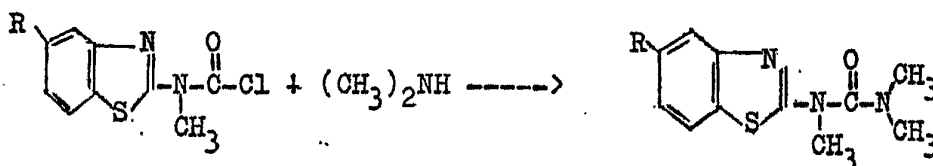


15

(4)



20



25

En el método práctico de la reacción descrita anteriormente (1), el 2-metilaminobenzotiazol sustituido en 5 y el cloruro de N,N-dimetilcarbamilo se disuelven en un disolvente inerte y se añade gota a gota hidruro sódico a la mezcla que se agita, preferiblemente en una corriente de nitrógeno.

30

Como disolvente inerte se usan, benceno, tolueno, tetrahidrofurano, dimetilformamida, y dimetilsulfósido, etc.

1 Normalmente se emplean de modo satisfactorio temperaturas de -10 a 20°C, y preferiblemente de -5 a 20°C.

5 Después de finalizada la reacción, la mezcla de reacción se puede verter en agua y se separa el precipitado de la disolución acuosa por filtración o mediante una extracción con disolvente.

10 El compuesto separado se puede lavar con agua posteriormente, si es necesario, y se purifica por recristalización a partir de un disolvente orgánico o mediante cromatografía de columna.

15 En el caso de la reacción descrita anteriormente (2), se hace reaccionar 2-metilaminobenzotiazol sustituido en 5 con fosgeno en presencia de $(C_2H_5)_2O \cdot BF_3$ usando un disolvente orgánico tal como benceno, tolueno y éter etc. a una temperatura de -20 a 70°C, preferiblemente -10 a 50°C, con lo que se obtiene cloruro de N-metil-N-(2-benzotiazolil sustituido en 5) carbamilo como producto intermedio. A continuación se añade dimetilamina a la mezcla de reacción y se obtiene 3-(2-benzotiazolil sustituido en 5)-1,1,3-trimetilurea a través del mismo postratamiento que en el caso anterior(1).

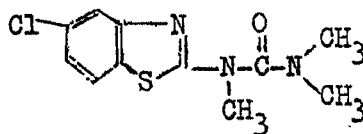
20

25 El compuesto aceitoso en la presente invención se separa como sal del ácido clorhídrico burbujeando ácido clorhídrico seco a través del compuesto aceitoso citado en un disolvente orgánico.

El producto se identifica mediante análisis elemental, espectro RMN y espectro IR.

30 Los métodos de preparación de compuestos característicos de la presente invención se ilustran mediante los ejemplos siguientes:

1 Ejemplo 1. 3-(5-clorobenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea



5 Se disuelven cloruro de N,N-dimetilcarbamilo (1,1 g) y 5-cloro-2-metilaminobenzotiazol (2g) en dimetilformamida (25 ml) y la mezcla se agita mientras se añade lentamente hidruro sódico (0,44 g, producto aceitoso de 55%) en una corriente de nitrógeno durante una hora y se
10 mantiene la temperatura por debajo de -5°C . Después de agitar otras tres horas a la temperatura ambiente, la mezcla se vierte en agua (100ml) y el precipitado se separa por filtración, se lava y se seca.

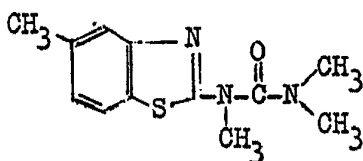
15 Por recristalización a partir de éter de petróleo se obtienen agujas blancas (1,7 g) que tienen un punto de fusión de $115-117^{\circ}\text{C}$.

Análisis.- Calculado para $\text{C}_{11}\text{H}_{12}\text{N}_3\text{OSCl}$ (%): C, 48,98;

H, 4,45; N, 15,58; Cl, 13,17. Encontrado (%):

C, 48,70; H, 4,30; N, 15,84; Cl, 12,91.

20 Ejemplo 2. 3-(5-metilbenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea



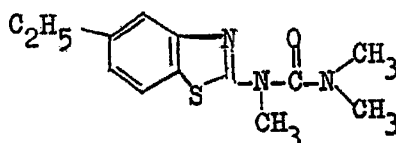
25 Se añade gota a gota $(\text{C}_2\text{H}_5)_2\text{O} \cdot \text{BF}_3$ (0,9 g) a tolueno (110 ml) en el que se había disuelto fosgeno (5 g), a la mezcla se añade 5-metil-2-metilaminobenzotiazol (7,5 g) y se agita durante tres horas a 60°C . La mezcla se enfria por debajo de 10°C , después se mantiene la temperatura a 70°C durante una hora y se añade dimetilamina(4 g) a la
30 mezcla manteniendo la temperatura por debajo de 30°C .

1 Después de agitar durante una hora a la tempera-
tura entre 25 y 30°C se separa por filtración el precipi-
tado (sal de ácido clorhídrico de la dimetilamina) y se
5 obtiene cristal blanco por concentración de la disolución
de tolueno a presión reducida.

 Por recristalización a partir de éter de petróleo
se obtienen agujas blancas (4,2 g) que tienen un punto de
fusión de 72-74°C.

10 Análisis.- Calculado para $C_{12}H_{15}N_3OS$ (%): C, 57,83; H, 6,02;
N, 16,87. Encontrado (%): C, 57,88; H, 6,10;
N, 16,89.

Ejemplo 3. 3-(5-etilbenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea



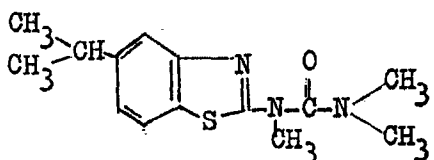
20 Se disuelven cloruro de N,N-dimetilcarbamoilo (0,9 g)
y 5-etil-2-metilaminobenzotiazol (1,6 g) en dimetilforma-
mida (20 ml) y la mezcla se agita mientras se añade lenta-
mente hidruro sódico (0,36 g, producto aceitoso de 55%) en
una corriente de nitrógeno durante una hora y se mantiene
la temperatura por debajo de -5°C. Después de agitar du-
rante otras tres horas, la mezcla se vierte en agua (100
ml) y se obtienen sustancias aceitosas que tienen un tenue
color amarillo.

25 Después de extraer las sustancias aceitosas con
cloroformo y secar con sulfato magnésico, por destilación
del cloroformo a presión reducida, se obtienen sustancias
aceitosas amarillentas (1,0 g) que tienen un índice de
refracción de n_D^{20} 1,6061. Estas muestran una absorción de
30 grupos carbonilo a una longitud de onda de 1670 cm^{-1} en

1 el espectro IR. Su sal de ácido clorhídrico que tiene un punto de fusión de 164-166°C y color blanco, se obtiene burbujeando cloruro de hidrógeno gaseoso seco a través de la sustancia aceitosa.

5 Análisis del hidrocioruro.- Calculado para $C_{13}H_{18}N_3OSCl$
(%): C, 52,09; H, 5,99; N, 14,00
Cl, 11,83
Encontrado (%): C, 52,20;
H, 6,12; N, 14,23; Cl, 12,12.

10 Ejemplo 4. 3-(5-isopropilbenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea



15 Se disuelve fosgeno (3,3 g) en tolueno (100 ml) y se añade gota a gota $(C_2H_5)_2O \cdot BF_3$ (0,5 g) a la mezcla por debajo de -10°C.

Además, se añade a la mezcla 5-isopropil-2-metilaminobenzotiazol (4 g) y se agita durante tres horas a 20 60°C.

Después de mantenerla una hora a 70°C, la mezcla se enfria por debajo de 10°C y se le añade dimetilamina (2 g) por debajo de 30°C. El precipitado resultante se separa por filtración después de agitar una hora a la temperatura de 25-30°C y se obtienen sustancias aceitosas amarillentas (3 g) concentrando la disolución de tolueno a presión reducida. 25

Burbujeando ácido clorhídrico gaseoso seco en las sustancias aceitosas en cloroformo se obtiene la sal del ácido clorhídrico blanca que tiene un punto de fusión de 30

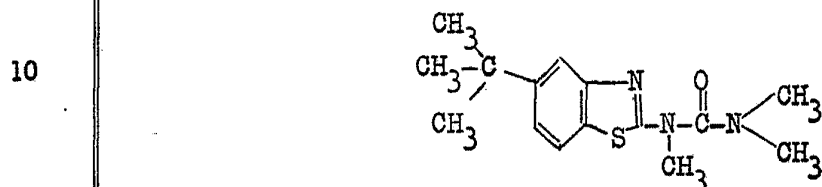
1 135-138°C. Esta muestra una absorción de grupo carbonilo
a una longitud de onda de 1665 cm^{-1} en el espectro IR.
Análisis del hidrocioruro.- Calculado para $\text{C}_{14}\text{H}_{20}\text{N}_3\text{OSCl}$

5 (%) : C, 53,59; H, 6,38;
N, 13,40; Cl, 11,32.

Encontrado (%): C, 53,17;

H, 6,56; N, 13,14; Cl, 11,45.

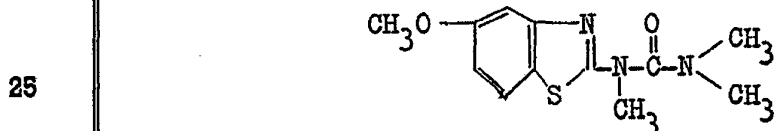
Ejemplo 5. 3-(5-t-butilbenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea



15 Se llevan a cabo los mismos procedimientos de
reacción que en el Ejemplo 1 usando cloruro de N,N-dime-
tilcarbamoilo (1,1g), 2-metilamino-5-t-butilbenzotiazol
(2,2 g) e hidruro sódico (0,44 g, producto aceitoso de
55%), y de este modo se obtiene 3-(5-t-butilbenzotiazolil-
2)-1,1,3-trimetilurea en forma de agujas blancas que tie-
nen un punto de fusión de 107-108°C.

20 Análisis.- Calculado para $\text{C}_{12}\text{H}_{15}\text{N}_3\text{O}_2\text{S}$ (%): C, 61,85; H,
7,21; N, 14,43. Encontrado (%): C, 61,92;
H, 7,18; N, 14,51.

Ejemplo 6. 3-(5-metoxibenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea



30 Se llevan a cabo los mismos procedimientos de
reacción que en el Ejemplo 3 usando cloruro de N,N-dime-
tilcarbamoilo(1,7 g), 5-metoxi-2-metilaminobenzotiazol
(3 g) e hidruro sódico (0,68 g, producto aceitoso de 55%)

1 y de este modo se obtiene 3-(5-metoxibenzotiazolil-2)-1,
1,3-trimetilurea (1,2₀) como una sustancia aceitosa ama-
rillenta que tiene un índice de refracción de n_D^{20} 1,6098
5 y que muestra una absorción de grupo carbonilo a una lon-
gitud de onda de 1660 cm^{-1} en el espectro IR.

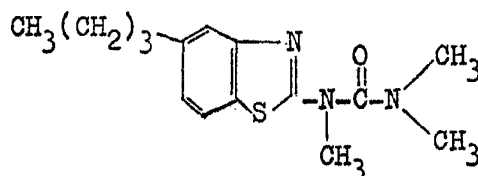
Análisis.- Calculado para $C_{12}H_{15}N_3O_2S$ (%): C, 54,34;

H, 5,66; N, 15,84;

Encontrado (%): C, 54,40; H, 5,70; N, 15,95.

Ejemplo 7. 3-(5-butilbenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea

10



15

Se llevan a cabo los mismos procedimientos de
reacción que en el Ejemplo 3 usando cloruro de N,N-dime-
tilcarbamilo (1,7 g), 5-butil-2-metilaminobenzotiazol
(3,3 g) e hidruro sódico (0,75 g, 50%), y de este modo
se obtiene 3-(5-butilbenzotiazolil-2)-1,1,3-trimetilurea
como sustancia aceitosa que tiene un índice de refracción
de n_D^{17} 1,5820.

20

25

30

Ya es sabido que el 3-(2-benzotiazolil)-1,1,3-
trimetiluréea tiene propiedades herbicidas enérgicas como
se indica en la Patente Norteamericana N^o 2.756.135. Esta
presenta propiedades herbicidas selectivas si se usa en
el cultivo del algodón, trigo y cebada, pero no se puede
utilizar para eliminación selectiva de hierbas malas en
el cultivo del arroz debido a que tiene una actividad
herbicida enérgica en el tratamiento de suelos y fitoto-
xicidad para la planta del arroz. Además, si se aplica
en una emergencia en el cultivo del trigo, cuando las
hierbas malas ya han crecido a una altura sustancial, es

1 difícil eliminar totalmente tales hierbas sin daño a las
plantas cultivadas.

5 Y se ha descrito en la solicitud de Patente Ale-
mana P 2150107.5 que la 1,3-dimetil-1-[2-(5-metilbenzo-
tiazolil)]-urea es altamente selectiva en el cultivo del
trigo y mata solo las hierbas malas, aun cuando ambos,
las hierbas malas y el trigo hayan crecido. Pero no se
puede utilizar en el cultivo del arroz debido a que hay
fuerte fitotoxicidad para la planta del arroz al igual
10 que la 3-(2-benzotiazolil)-1,1,3-trimetilurea.

Los inventores sintetizan varias benzotiazolil-
ureas e investigan la actividad herbicida de las mismas,
y descubren que la 3-(2-benzotiazolil)-1,1,3-trimetilurea
que tenga en la posición 5 del anillo del benzotiazol un
15 radical tal como cloro o radical metilo, etilo isopropilo o
terc-butilo es muy adecuado para la eliminación selectiva
de hierbas malas en ambos cultivos de arroz y trigo, espe-
cialmente los radicales metilo, etilo y terc-butilo son ex-
celentes.

20 Es decir, el compuesto de la presente invención
apenas daña la planta del arroz y el trigo, mientras que
destruye completamente muchas clases de hierbas malas ta-
les como el quenopodio (Chenopodium album L.), la carri-
cera verde (Panicum viride L.), la monocoria (Monochoria
25 vaginalis PRESL), la verdolaga común (Portulaca oleracea
L.), el cardo ajonjero común (Sonchus oleraceus L.), la
pamplina común (Alsine media L.), una ciperacea (Cyperus
ratundus L.), la hierba de corral (Echinochloa oryzicola
VASING) y la gran hierba rastrera (Panicum sanguinalis L.)
30 por tratamientos foliar y del suelo.

1 En consecuencia los compuestos de la presente
invencción se pueden utilizar para eliminar hierbas malas
no solo en el cultivo del trigo, sino también en el del
arroz, debido a que no hay temor de fitotoxicidad para
5 la planta del arroz y el trigo.

Otra ventaja es que los compuestos de la presen-
te invencción tienen baja toxicidad para los animales de
sangre caliente y peces.

10 En esta invencción, resulta conveniente que una
cantidad adecuada de ingradyente activo mayor que 50 g
por 10 áreas, preferiblemente 50-200 g por 10 áreas (el
"área" son "100 metros cuadrados"), se use selectivamente
de acuerdo con la clase de composicón. El compuesto se
puede aplicar a las plantas o a los suelos como tal o co-
15 mo polvo humectable, concentrado emulsionable, formulación
en polvo, formulación granular u otras de una forma gene-
ralmente usada en composiciones de pesticidas que es mez-
clando con vehículos adecuados. Como vehículos sólidos
se utilizan, talco, bentonita, arcilla, tierra de diatoma-
20 ceas, vermiculita, etc. Como vehículos líquidos se utili-
zan, agua, alcohol, benceno, xileno, ciclohexano, ciclo-
hexanona, petróleo, dimetilformamida, dimetilsulfóxido,
etc. Incidentalmente se suspenden o emulsionan en agua, el
polvo humectable o el concentrado emulsionable que con-
25 tienen la cantidad adecuada de compuesto activo y luego
se pulveriza sobre el follaje de las hierbas malas o en
el suelo alrededor de las plantas cultivadas. Además los
compuestos se pueden utilizar en forma de mezcla con her-
bicidas conocidos tales como derivados de la tiazina, de-
30 rivados del tiolcarbamato y otros.

1 Algunos ejemplos de esta invención se exponen a
continuuación. Pero los compuestos principales y los adi-
tivos no se definen limitadamente con estos ejemplos.

5 Ejemplo 8. Polvo humectable

	<u>Partes en peso</u>
3-(5-clorobenzotiazolil-2)- 1,1,3-trimetilurea	50
Alquilsulfonato sódico	8
Tierra de diatomaceas	32
Acido silícico	10

10 Estos se mezclan homogeneamente y se micronizan
a partículas finas. De este modo se obtiene polvo humec-
table que contiene 50% de ingrediente activo. En la prác-
tica se diluye a una cierta concentración con agua y se
pulveriza como una suspensión.

15 Ejemplo 9. Concentrado emulsionable

	<u>Partes en peso</u>
3-(5-etilbenzotiazolil-2)- 1,1,3-trimetilurea	30
Eter polioxietilentalquilarílico	8
Xileno	42
Dimetilformamida	20

20 Estos se mezclan y disuelven. De este modo se
obtiene una concentración emulsionable que contiene 30%
del ingrediente activo. En la práctica se diluye a cierta
concentración con agua y luego se pulveriza como una e-
mulsión.

25 Ejemplo 10. Formulación en polvo

	<u>Partes en peso</u>
3-(5-metilbenzotiazolil-2)- 1,1,3-trimetilurea	7
Talco	39
Arcilla	39

30

1	Bentonita	10
	Alquilsulfato sódico	5

5 Estos se mezclan homogéneamente y se reducen a partículas finas. De este modo se obtiene la formulación en polvo que contiene 7% de ingrediente activo. En la práctica se aplica directamente.

10 El compuesto de la presente invención tiene actividad herbicida selectiva y se ha de insistir en que los compuestos de la fórmula general antes mencionada (1) en la cual R es radical metilo, etilo o t-butilo tienen actividad especialmente superior.

El efecto herbicida selectivo superior de los compuestos de esta invención se ilustra claramente mediante los siguientes ensayos.

15 Ensayo 1.

20 Se dispone suelo de 1 cm de espesor en un recipiente que tiene 9 cm de diámetro y 6 cm de profundidad, y se siembran en el mismo 15 semillas de la planta del arroz y 40 semillas de hierba ciperacea y se cubren ligeramente con suelo. Dicho tiesto se llena de agua cuando las plantas de ensayo se han desarrollado al primer brote de hoja.

25 Entonces se aplica a la superficie del suelo concentrado emulsionable preparado según el Ejemplo 9.

14 días después se observan los grados de daño a las plantas objeto de ensayo y se evalúan por los valores de 0-5 que tienen el significado siguiente:

0: sin efecto

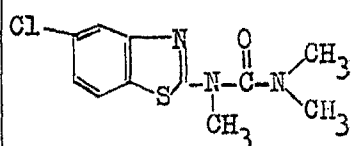
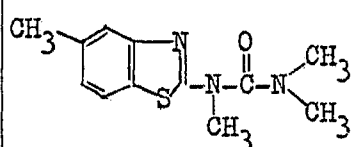
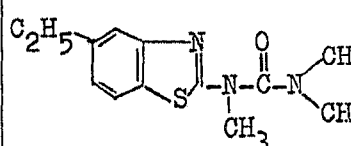
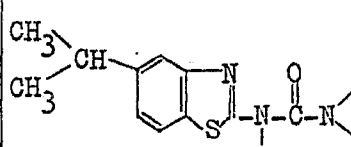
1: unas pocas manchas ligeramente quemado

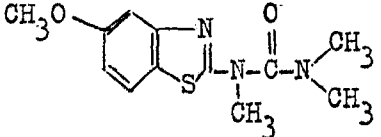
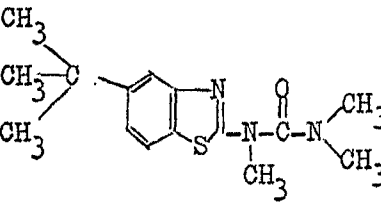
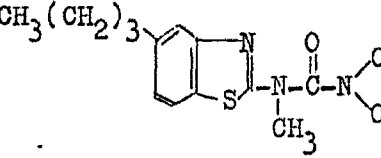
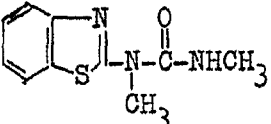
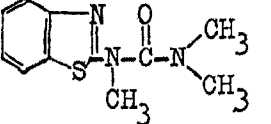
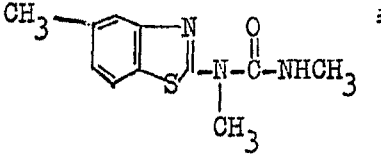
30 2: notable daño a las hojas

- 1 3: algunas hojas y partes de tallos parcialmente muertos
- 4: plantas parcialmente destruidas
- 5: plantas completamente destruidas o sin germinar.

Los resultados se muestran en la Tabla 1.

Tabla 1

10	Compuesto ensayado	Proporción de aplicación (g/10 areas)	Estado de desarrollo	
			Hierba ciperacea	Planta de arroz
15		500	4	1
		250	3	0
20		500	5	0
		250	5	0
25		500	5	0
		250	4	0
30		500	5	1
		250	5	1

1		500 250	5 4	0 0
5		500 250	4 3	1 0
10		500 250	5 5	0 0
15	<p>Compuesto comparativo</p> 	500 250	4 3	4 2
20		500 250	5 5	5 2
25		500 250	5 3	4 3

⌘ Patente Norteamericana Nº 2.756.135

⌘⌘ Solicitud de Patente Alemana P 2150107.5

30 Ensayo 2.

1 Se dispone suelo en un recipiente que tiene 9 cm de diámetro y 6 cm de profundidad y se siembran en el mismo 50 semillas de monocoria.

5 Un concentrado emulsionable preparado por método similar al Ejemplo 9 se diluye con agua a una concentración especificada y se pulveriza con él cuando la monocoria se ha desarrollado al primer brote de hoja (altura: 1 cm).

10 Después de 7 y 20 días se observan los estados de crecimiento de las plantas objeto de ensayo y se evalúan por los valores de 0-5 que tienen los mismos significados que los del ensayo 1.

Los resultados se muestran en la Tabla 2.

15

20

25

30

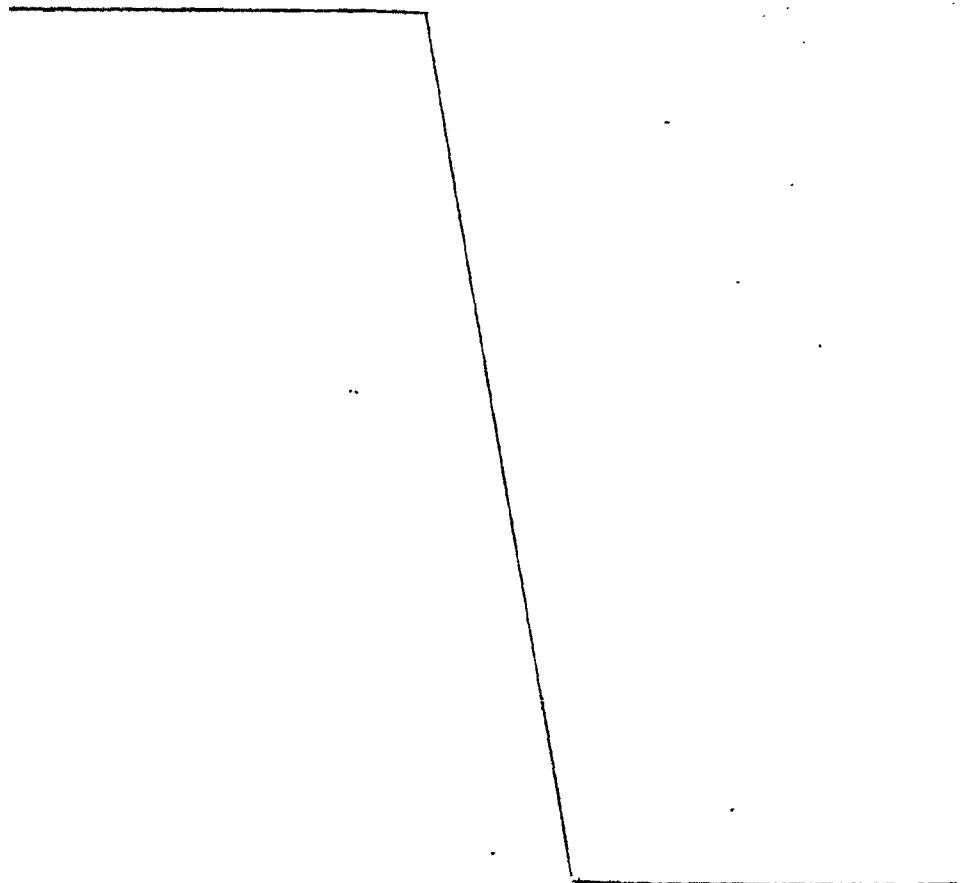


TABLA 2

1

5


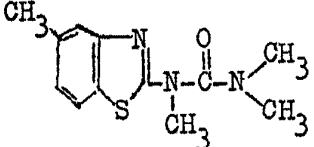
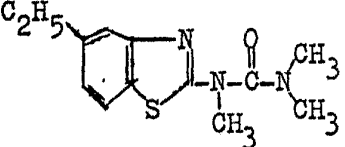
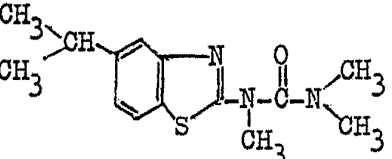
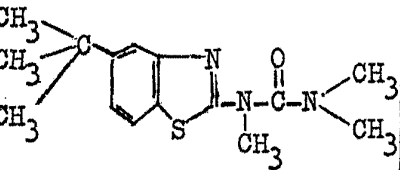

10

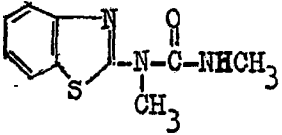
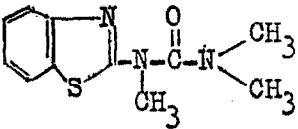
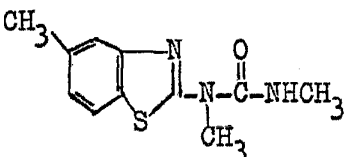
16

20

25

30

Compuesto ensayado	Proporción de aplicación (g/10 areas)	Estado de desarrollo	
		7 dias	20 dias
	200	0	5
	100	0	3
	200	1	5
	100	1	5
	200	2	5
	100	2	5
	200	4	5
	100	4	5
	200	4	5
	100	4	5
	200	2	5
	100	2	5

1	<p>Compuesto comparativo</p>  <p>⌘</p>	200	0	2
		100	0	0
5	 <p>⌘</p>	200	0	0
		100	0	0
10	 <p>⌘⌘</p>	200	2	4
		100	0	2

⌘ Patente Norteamericana N° 2.756.135

⌘⌘ Solicitud de Patente Alemana P 2150107.5

15

Ensayo 3.

Se siembran unas 10 semillas de trigo en un ties-
to y se cubren ligeramente con suelo que contiene pelosa
anual.

20

Un concentrado emulsionable preparado por método
similar al Ejemplo 9 se diluye con agua a una concentración
especificada y se pulveriza sobre ellos cuando cuando el
trigo y la pelosa anual se han desarrollado al sexto brote
de hoja.

25

21 días después de la pulverización se observan
los estados de crecimiento de las plantas y se evalúan por
los valores de 0-5 que tienen los mismos significados que
los del ensayo 1. Los resultados se muestran en la Tabla 3.

30

Tabla 3

1

5

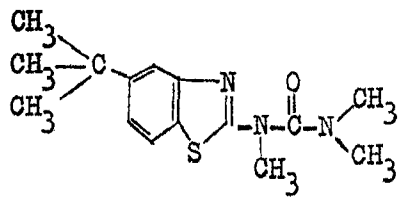
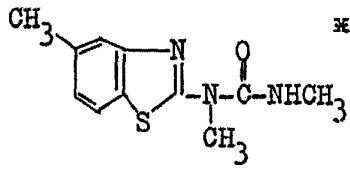
10

15

20

25

30

Compuesto ensayado	Proporción de aplicación (g/10 areas)	Estado de desarrollo	
		Trigo	Pelosa anual
	50	0	4
	100	0	5
	200	0	5
	50	0	1
	100	0	1
	200	0	2
No tratado	-	0	0

Ensayo 4.

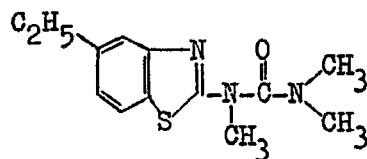

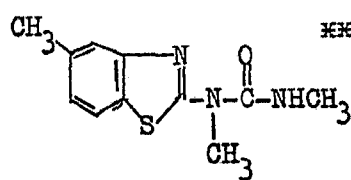
Se dispone suelo en un tiesto de 100 cm², se siembran en él 100 semillas de trigo y se cubren ligeramente con suelo que contiene las semillas de gran hierba rastrea y quenopodio.

Un concentrado emulsionable preparado por método similar al Ejemplo 9 se diluye con agua a una concentración especificada y se pulveriza sobre el suelo el día siguiente; luego el tiesto se mete en un invernadero.

21 días después de la pulverización, se observan los estados de crecimiento de las plantas y se evalúan por los valores 0-5 que tienen los mismos significados que los del Ensayo 1.

Los resultados se muestran en la Tabla 4.

Tabla 4

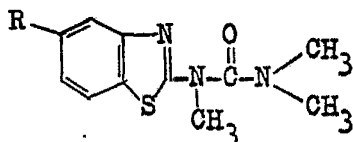
1	Compuesto ensayado	Proporción de aplicación (g/10 areas)	Estado de desarrollo		
			Trigo	gran hierba rastre ra	queno podio
5		125	0	2	3
		250	0	3	4
10		125	0	0	0
		250	0	0	2
15		125	0	0	1
		250	0	0	3
	No tratado	-	0	0	0

20 En resumen, la Patente de Invención que se solicita deberá recaer sobre las siguientes

REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento para la obtención de nuevos derivados de trimetilurea de fórmula

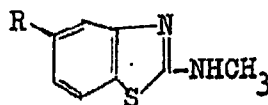
25



don R se selecciona del grupo de cloro, alquilo que tiene de 1 a 4 átomos de carbono y metoxi, que comprende la reacción de un compuesto de fórmula

30

1



5

donde R tiene los significados susodichos, con cloruro de N,N-dimetilcarbamilo en presencia de hidruro sódico en un disolvente orgánico inerte.

10

2. Un procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1 en la que R es metilo.

3. Un procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1 en la que R es etilo.

4. Un procedimiento de acuerdo con la reivindicación 1 en la que R es terc-butilo.

15

5. Se reivindica por último como objeto sobre el que ha de recaer la Patente de Invención que se solicita:
UN PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCION DE NUEVOS DERIVADOS DE TRIMETILUREA.

20

Todo conforme queda descrito y reivindicado en la presente Memoria descriptiva, que consta de veintiuna páginas mecanografiadas.

25

Madrid, 2 de Julio de 1.974

BERNARDO UNGRIA

P.P.



30