



ESPAÑA

- 5 ABR. 1978

CONCEDIDA
PATENTE DE INVENCION

19 ES	11 462304	10 A1
	22 FECHA DE PRESENTACION	
	12.9.1977	

30 PRIORIDADES:	32 FECHA	33 PAIS
31 NUMERO		
140224/1974	6.12.1974	Japón
143183/1974	13.12.1974	"

47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	C07D/A01N	443.296 de 5.12.1975

54 TITULO DE LA INVENCION

UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE NUEVOS DERIVADOS DE URAZOL 1,2,4-SUSTITUIDOS.

71 SOLICITANTE (S)

MITSUBISHI CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED

DOMICILIO DEL SOLICITANTE

5-2, Marunouchi 2-chome, Chiyoda-ku, Tokyo, Japón -

72 INVENTOR (ES)

Taichiro Shigematsu; Masayuki Tomida; Tetsuya Shibahara; Makoto Nakazawa y Toshio Munakata, todos de nacionalidad japonesa.

73 TITULAR (ES)

74 REPRESENTANTE

D. BERNARDO UNGRIA GOIBURU

1

RESUMEN DE LA INVENCION

Se describe un fungicida que comprende como ingrediente activo un derivado de 4-(3',5'-diclorofenil)urazol 1,2-sustituído adecuado para evitar diversas enfermedades de las plantas incluidos los árboles frutales, verduras, arroz y judías.

5

COMPENDIO DE LA INVENCION

Esta invención se refiere a un fungicida agrícola.

Se ha puesto a punto una amplia variedad de fungicidas agrícolas pero algunos de ellos no son prácticos porque producen contaminación ecológica.

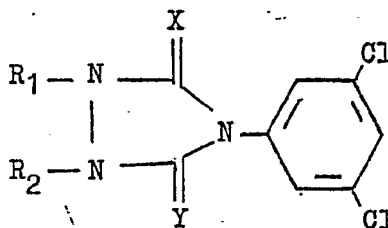
10

Hemos realizado extensos estudios para encontrar un fungicida agrícola que posea un efecto fungicida superior pero poca toxicidad y hemos encontrado que ciertos derivados de urazol presentan una excelente actividad fungicida.

15

Por consiguiente, esta invención proporciona un nuevo fungicida agrícola que comprende como ingrediente activo un 4-(3',5'-diclorofenil)urazol 1,2-sustituído representado por la fórmula general:

20



25

donde R₁ y R₂ pueden ser iguales o diferentes y representan un grupo alquilo, alquenilo, alquinilo, arilo que puede contener como mínimo un sustituyente, acilo, alquilcarbamoilo, alcoxycarbonilo, alquiltiocarbamoilo y (alquiltio)tiocarbamoilo y también pueden estar unidos entre sí para formar un grupo alquilenilo de 3 a 8 átomos de carbono que puede contener un sus-

30

1 tituyente metilo ramificado y X e Y pueden ser iguales o di-
ferentes y representan oxígeno y azufre.

5 Ya se ha encontrado que algunos derivados de urazol
1,2,4-sustituídos presentan actividad fungicida, herbicida e
insecticida. Los compuestos representados por la fórmula ge-
neral anterior son nuevos y poseen excelente actividad fungici-
da contra una amplia variedad de enfermedades de las plantas
pero no son patógenos para la planta huésped y su toxicidad
es pequeña o nula contra los seres humanos y los peces.

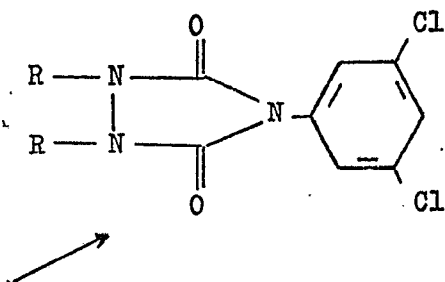
10 El fungicida de acuerdo con esta invención es espe-
cialmente eficaz contra la enfermedad añublo de la vaina del
arroz, enfermedad del moho gris Botrytis, enfermedad de las
manchas pardas del arroz, podredumbre causada por Sclerotinia
y manchas de las hojas causadas por Alternaria y, en algunos
15 casos, son evitadas simultáneamente dos o más enfermedades.

Los compuestos adecuados de esta invención se prepa-
ran por diversos métodos.

Método A

20 Se hace reaccionar una sal de 4-(3',5'-diclorofenil)
urazol con un haluro de alquilo en un disolvente, como dime-
tilformamida, alcohol y acetona, entre la temperatura ambien-
te y una temperatura elevada, durante algunas horas, para ob-
tener el producto deseado.

25



30

1

5

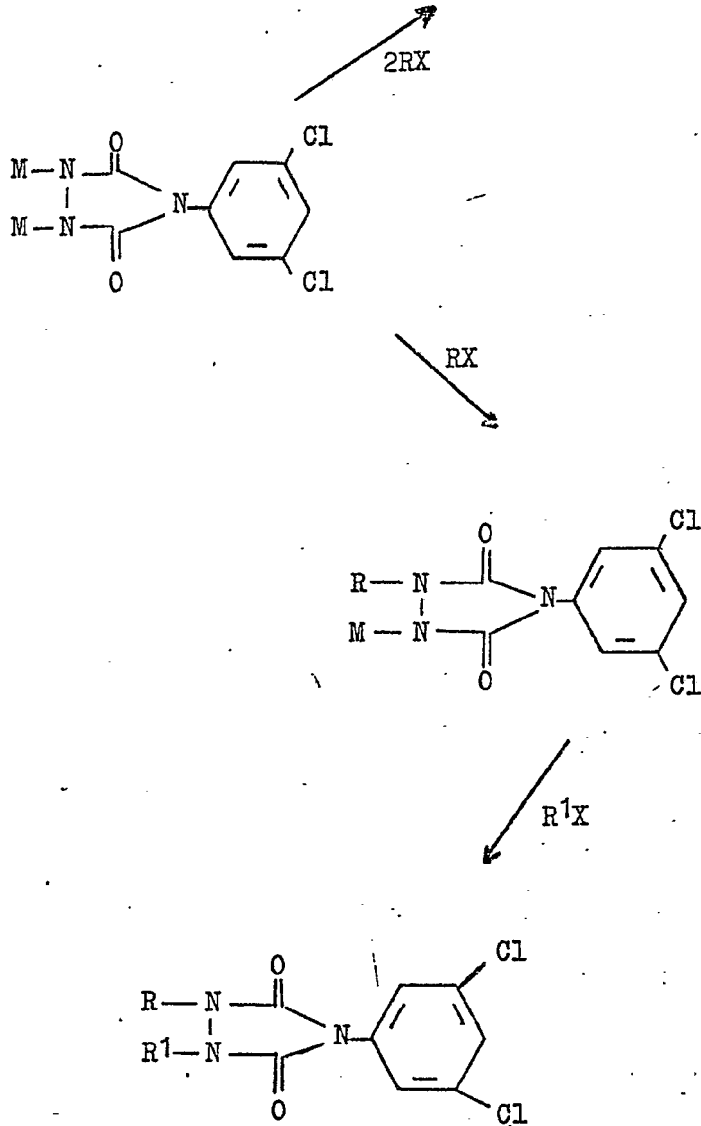
10

15

20

25

30



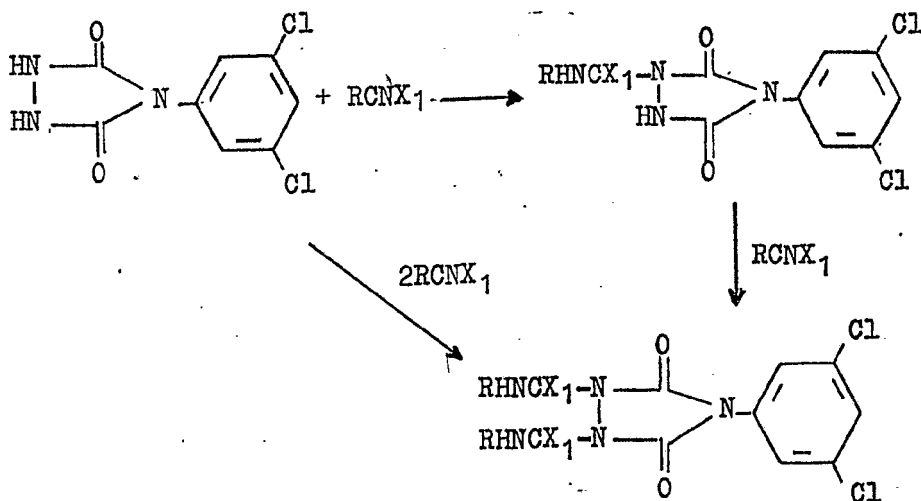
donde R y R¹ pueden ser iguales o diferentes y representan un grupo alquilo, alquenilo, alquinilo, acilo, alcoxicarbonilo y alcoxitiocarbonilo y M representa un metal alcalino, un metal alcalino-térreo y NH₄ y X representa halógeno.

Variando las proporciones molares de las sustancias reaccionantes y el tipo de haluro de alquilo, se preparan de-

1 derivados monosustituídos y disustituídos y derivados disusti-
tuídos que contienen diferentes sustituyentes.

Método B

5 En presencia de un disolvente, como dimetilformami-
da, acetona y tetrahidrofurano, se hace reaccionar 4-(3,5-
diclorofenil)urazol con un isocianato o un tioisocianato en
presencia de un catalizador básico como trietilamina y piri-
dina, entre la temperatura ambiente y una temperatura eleva-
da, durante varias horas, para preparar derivados 1-mono- o
10 1,2-di-alkilcarbamoílicos (o alkiltiocarbamoílicos).



25 donde R representa un grupo alquilo y X₁ representa un átomo
de oxígeno o azufre.

30 Como en el Método A, pueden prepararse selectivamen-
te derivados monosustituídos o disustituídos variando las
proporciones de las sustancias reaccionantes.

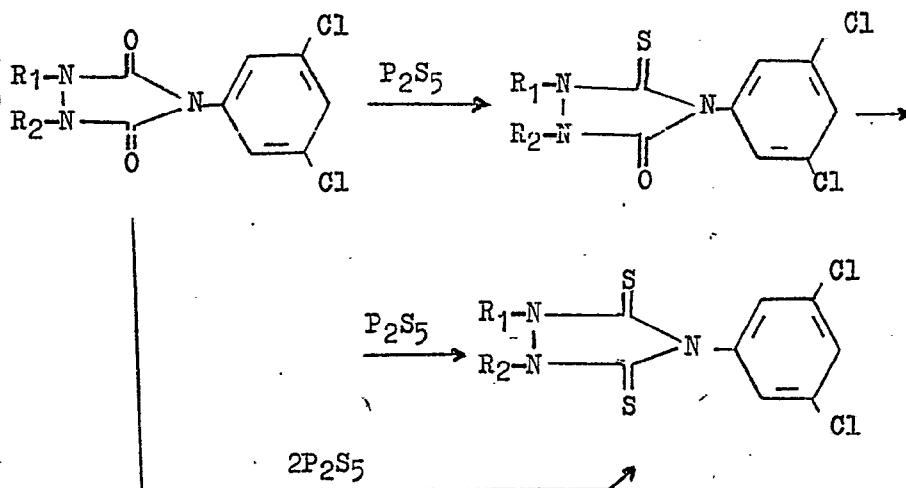
1

Método C

5

Una solución de 4-(3',5'-diclorofenil)urazol 1,2-sustituído en un disolvente, como xileno y cumeno, se trata con pentasulfuro de fósforo a reflujo durante algunas horas para producir derivados monotio o ditio.

10



15

donde R₁ y R₂ tienen el significado dado anteriormente.

Variando la proporción de sustancias reaccionantes, se prepara selectivamente monotio-urazol o ditio-urazol.

20

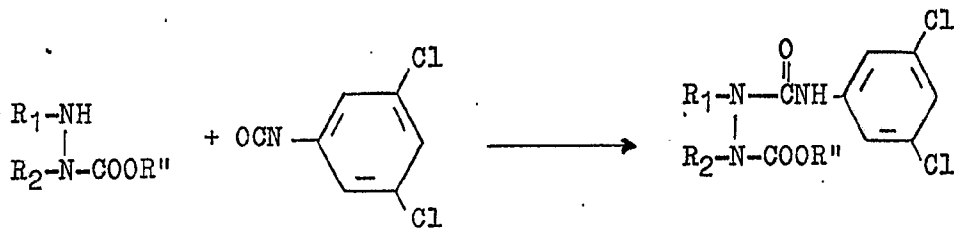
Método D

25

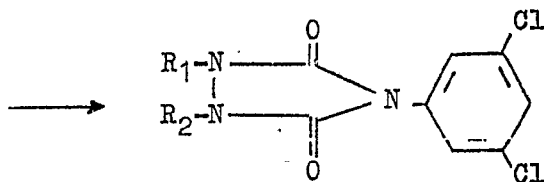
A una solución de 1-alcoxicarbonilhidrazina 1,2-sustituída en un disolvente como benceno, tolueno y xileno, se añade poco a poco isocianato de 3,5-diclorofenilo en cantidad estequiométrica para formar 1-alcoxicarbonil-2-(3',5'-diclorofenil)carbamoil hidrazina 1,2-sustituída que se precipita por destilación del disolvente, se filtra y se seca y luego se disuelve en una solución acuosa de hidróxido potásico o alcoholato sódico, agitando y calentando, seguido de enfriamiento y adición de un ácido para precipitar un 4-(3',5'-diclorofenil) urazol 1,2-sustituído.

30

1



5



10

donde R_1 y R_2 tienen el significado dado anteriormente y R'' representa un grupo alquilo inferior.

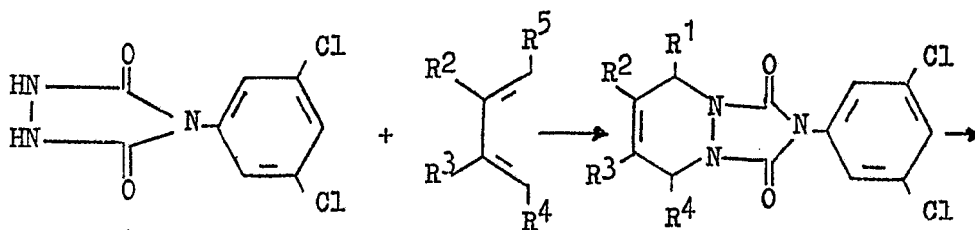
Método E

15

Se hace reaccionar un compuesto diénico y 4-(3',5'-diclorofenil)urazol en presencia de un agente oxidante como nitrato de plomo, acetato de plomo y N_2O_4 para efectuar una reacción Diels-Alder para preparar imida N-3,5-diclorofenil-1,2,3,6-tetrahidropiridazin-1,2-dicarboxílica que después se hidrogena en un disolvente como acetato de etilo, tetrahidrofurano, ácido acético y alcohol, en presencia de un catalizador como paladio en carbón y óxido de platino para dar el compuesto deseado.

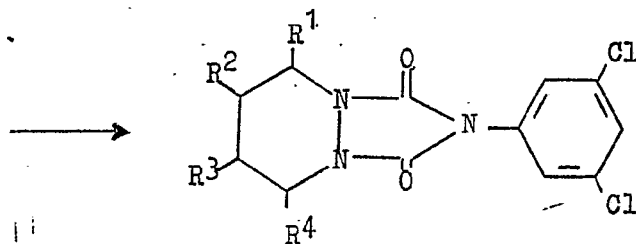
20

25



30

1



5

donde R¹ a R⁴ pueden ser iguales o diferentes y representan hidrógeno y metilo.

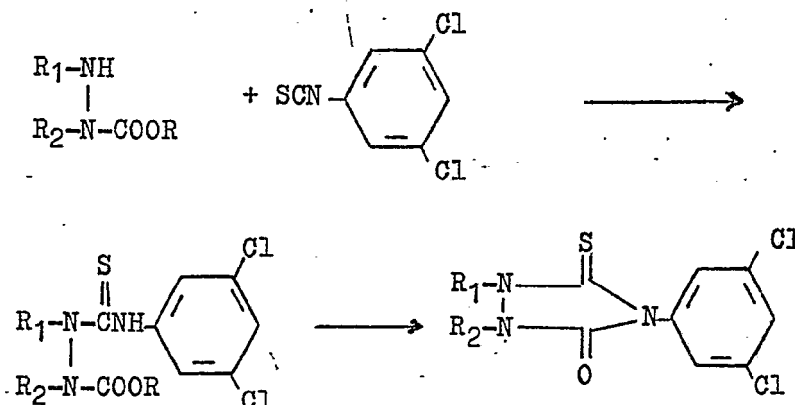
Método F.

10

A una solución de 1-alcoxicarbonilhidrazina 1,2-sustituída en un disolvente como benceno, tolueno, xileno y cumeno, se añade gota a gota isotiocianato de 3,5-diclorofenilo en cantidad estequiométrica para producir 1-alcoxicarbonil-2-(3',5'-diclorofeniltiocarbamoil)hidrazina 1,2-sustituída y la mezcla de reacción resultante se calienta a reflujo durante algunas horas hasta unas 10 para obtener el monotiourazol deseado.

15

20



25

donde R₁ y R₂ tienen el significado dado anteriormente.

30

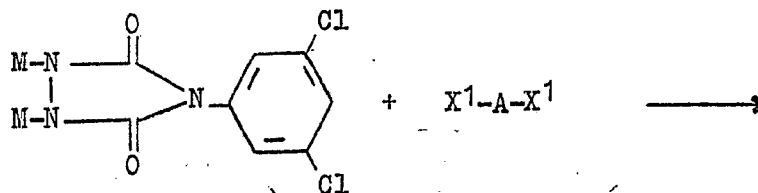
Los derivados de ditiourazol se preparan por procedimientos similares empleando 1-alcoxicarbonilhidrazina 1,2-sus-

1 tituída.

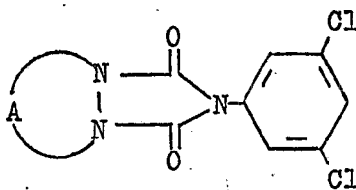
Método G

5 Se hace reaccionar una sal de 4-(3',5'-diclorofenil) urazol con un dihaluro de alquileo en un disolvente como agua, un alcohol, dimetilformamida, tetrahidrofurano y bence-
no, a una temperatura comprendida entre la ambiente y 200°C, durante un periodo comprendido entre media hora y algunas ho-
ras, con agitación.

10



15



20

donde A representa un grupo alquileo de 3 a 8 átomos de car-
bono que puede contener un grupo metilo ramificado, X¹ repre-
senta halógeno, M representa un metal o una amina monovalente
o bivalente y X¹ es 2 cuando M es monovalente o 1 cuando M es
bivalente.

25

La preparación de los compuestos que pueden ser uti-
lizados como ingredientes activos de acuerdo con esta inven-
ción será explicada con detalle mediante los siguientes ejem-
plos de referencia.

30

EJEMPLO DE REFERENCIA 1

1 A una suspensión de 3,2 g de sal dipotásica de 4-(3',5'-diclorofenil)urazol en 20 ml de N,N-dimetilformamida
seca se añaden 2,9 g de yoduro de metilo y la mezcla de reac
5 ción se calienta a una temperatura de 60 a 70°C durante una hora, con agitación. Después de separar la N,N-dimetilforma-
mida por destilación a vacío, la masa se vierte en 200 ml de agua para precipitar la materia sólida que se recristali-
za en etanol dando 2,6 g de 1,2-dimetil-4-(3',5'-diclorofe-
10 nil)urazol, siendo el rendimiento del 95 %.

El punto de fusión y el análisis elemental del produc-
to se encuentran en la Tabla I.

EJEMPLO DE REFERENCIA 2

15 A una solución de 2,5 g de 4-(3',5'-diclorofenil)ura-
zol y 1 g de trietilamina en 10 ml de N,N-dimetilformamida
se añaden gota a gota 1,1 g de cloroformiato de etilo, con
agitación. Después la reacción se prosigue a la temperatu-
ra ambiente durante una hora con agitación. La masa de reac
20 ción se mezcla con agua para precipitar cristales que se
filtran y recristalizan en acetona-etanol dando 2,3 g de 1-
etoxicarbonil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol con un rendimien-
to del 72 %.

EJEMPLO DE REFERENCIA 3

25 A una solución de 2,6 g de 1-metil-4-(3',5'-dicloro-
fenil)urazol, que ha sido preparada por reacción de 4-(3',5'-
diclorofenil)urazol y bromuro de metilo en proporciones equi-
moleculares y 1,0 g de trietilamina en 10 ml de N,N-dimetil-
formamida se añaden 0,8 g de cloruro de acetilo poco a poco,
a la temperatura ambiente y agitando. Una vez completada la
30 adición, se efectúa la reacción sobre un baño de agua duran-

1 te 2 horas con agitación. Se separa el disolvente por desti-
lación a vacío y la masa se vierte en agua para precipitar
cristales que se recristalizan en etanol para obtener 2,3 g
de 1-metil-2-acetil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol con un ren-
5 dimiento del 76 %.

EJEMPLO DE REFERENCIA 4

A una solución de 2,5 g de 4-(3',5'-diclorofenil)ura-
zol en 10 ml de N,N-dimetilformamida se añade una gota de
trietilamina y después gota a gota 0,8 g de isocianato de me-
10 tilo a la temperatura ambiente, con agitación. Se continúa
la reacción durante una hora más en las mismas condiciones y
después la mezcla de reacción se vierte en agua para preci-
pitar cristales que se filtran y recristalizan en acetona-
etanol para obtener 1-metilcarbamoil-4-(3',5'-diclorofenil)-
15 urazol en una cantidad de 2,1 g (rendimiento: 68 %).

EJEMPLO DE REFERENCIA 5

Se mezcla y calienta a reflujo durante 8 horas, con
agitación, una solución de 2,7 g de 1,2-dimetil-4-(3',5'-di-
20 clorofenil)urazol en 25 ml de xileno y 4,4 g de pentasulfuro
de fósforo. Después de enfriar y filtrar, el filtrado se con-
densa a vacío. El residuo se recristaliza en etanol para dar
1,4 g de 1,2-dimetil-4-(3',5'-diclorofenil)ditiourazol (ren-
dimiento: 47 %).

EJEMPLO DE REFERENCIA 6

25 A una solución de 1,6 g de 1,2-dimetil-etoxicarbonil-
hidrazina en 25 ml de benceno se añaden 1,9 g de isocianato
de 3,5-diclorofenilo, poco a poco y a la temperatura ambien-
te, con agitación. Separando el benceno a vacío, se obtienen
cristales de 1,2-dimetil-1-etoxicarbonil-2-(3',5'-diclorofe-
30 nilcarbamoil)hidrazina con un punto de fusión de 161-163°C.

1 El análisis elemental como $C_{12}H_{15}N_2O_3Cl_2$ es:

	C %	H %	N %	Cl %
Calculado :	45,01	4,72	13,12	22,15
Encontrado:	45,12	4,78	13,21	22,03

5 Después el producto resultante se hace reaccionar con metóxido sódico en proporciones equimoleculares en metanol, a reflujo, durante 6 horas y, después de enfriar, se agrega agua a la mezcla de reacción para precipitar cristales que se filtran y recristalizan en etanol para dar 1,2-dimetil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol en una cantidad de 1,0 g (rendimiento: 37 %).

10 El punto de fusión es 209-211°C y el análisis elemental como $C_{10}H_9N_3O_2Cl_2$ es:

	C %	H %	N %	Cl %
15 Calculado :	43,82	3,31	15,33	25,87
Encontrado:	43,49	3,30	15,42	25,81

EJEMPLO DE REFERENCIA 7

20 Se repiten procedimientos similares a los del Ejemplo de referencia 6 utilizando isotiocianato de 3,5-diclorofenilo para obtener 1,2-dimetil-1-etoxicarbonil-2-(3',5'-diclorofeniltiocarbamoil)hidrazina.

El punto de fusión es 147-149°C y el análisis elemental como $C_{12}H_{15}Cl_2N_2SO_2$ es:

	C %	H %	N %	Cl %	S %
25 Calculado :	42,86	4,50	12,50	21,09	9,54
Encontrado:	42,91	4,47	12,42	21,13	9,59

30 El compuesto se somete a tratamiento térmico en cumeno a reflujo durante 10 horas para obtener 1,8 g de 1,2-dimetil-4-(3',5'-diclorofenil)monotiourazol (rendimiento: 64 %).

EJEMPLO DE REFERENCIA 8

1 A una solución de 3,2 g de 1-etoxicarbonil-4-(3',5'-di-
clorofenil)urazol en 10 ml de N,N-dimetilformamida se añaden
consecutivamente una gota de trietilamina y 0,85 g de isocia-
5 nato de isopropilo, gota a gota y a la temperatura ambiente,
con agitación. Después de mantener las mismas condiciones du-
rante una hora, la mezcla de reacción se mezcla con agua pa-
ra precipitar cristales que se filtran y recristalizan en
10 etanol para obtener 1-etoxicarbonil-2-(isopropilcarbamoil)-4-
(3',5'-diclorofenil)urazol en una cantidad de 3,0 g, rendi-
miento: 75 %.

EJEMPLO DE REFERENCIA 9

15 A una solución de 10,8 g de fenilhidrazina y 10,1 g de
trietilamina en 60 ml de benceno se añade gota a gota una so-
lución de 10,9 g de cloroformiato de etilo en 40 ml de bence-
no, a lo largo de 20 minutos, mientras la temperatura se man-
tiene entre 10 y 15°C, con agitación.

20 La reacción se prosigue a la temperatura ambiente duran-
te una hora con agitación. Después de agregar agua agitando,
la mezcla de reacción se deja en reposo hasta que se produce
la separación de fases. Se separa la fase acuosa que contiene
la sal hidrocioruro de trietilamina que se forma en el trans-
curso de la reacción. La fase orgánica se seca con sulfato só-
25 dico anhidro. A la temperatura ambiente, se añaden gota a go-
ta 18,8 g de isocianato de 3,5-diclorofenilo a la solución
bencénica y después la mezcla se calienta en un baño de agua
para efectuar la reacción.

30 El benceno se separa por destilación a vacío para obte-
ner un producto oleoso que se mezcla con 200 ml de una solu-
ción acuosa de hidróxido potásico al 5 % y se calienta a re-

1 flujo durante unas 2 horas. Después de enfriar y filtrar, el
filtrado se mezcla con ácido clorhídrico concentrado para
precipitar cristales que se filtran y recristalizan en eta-
5 nol para obtener 23,2 g de 1-fenil-4-(3',5'-diclorofenil)ura-
zol, rendimiento: 72 %.

El punto de fusión es superior a 250°C y el análisis elemental como $C_{14}H_9N_3O_2Cl_2$ es:

	C %	H %	N %	Cl %
10 Calculado :	52,19	2,82	13,04	22,01
Encontrado:	52,42	2,87	12,95	21,88

Una mezcla de 3,2 g del producto así obtenido, 20 ml de N,N-dimetilformamida y 0,6 g de hidróxido potásico en 5 ml de agua se agita a la temperatura ambiente durante 30 minutos para dar una sal potásica; después se añaden 1,4 g de yoduro de metilo y se continúa agitando a la temperatura ambiente durante una hora. Una vez completada la reacción, se agrega agua a la mezcla para precipitar cristales que se separan y recristalizan en etanol para obtener 1-fenil-2-metil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol.

20 EJEMPLO DE REFERENCIA 10

A una suspensión de 29 g de sal disódica de 4-(3',5'-diclorofenil)urazol en 200 ml de N,N-dimetilformamida seca se añaden 26,4 g de 1,4-dibromopentano y la mezcla resultante se calienta a reflujo durante una hora con agitación. Después de separar la N,N-dimetilformamida a vacío, el residuo se vierte en 500 ml de agua para dar una materia sólida que se separa por filtración y se recristaliza en etanol para obtener 23,2 g de 1,2-pentameten-4-(3',5'-diclorofenil)urazol, rendimiento: 74 %.

30

EJEMPLO DE REFERENCIA 11

1 En una suspensión de 2,85 g de 4-(3',5'-diclorofenil) urazol se absorben 0,7 g de 1,3-butadieno y se añade gota a gota, a lo largo de 30 minutos, una solución de 6,7 g de tetraacetato de plomo en 100 ml de diclorometano, a la suspensión que se mantiene a una temperatura de 0 a 5°C enfriando con agitación. Después de continuar agitando durante 2 horas más, el diclorometano se separa por destilación a una temperatura inferior a 30°C a vacío.

5 El residuo se lava consecutivamente con 75 ml de agua, 75 ml de ácido nítrico 0,1N, 75 ml de hidróxido sódico acuoso 0,1N y 75 ml de agua y se recristaliza en acetato de etilo para obtener 2,8 g (rendimiento: 82 %) de imida de ácido N-(3',5'-diclorofenil)-1,2,3,6-tetrahidropiridazin-1,2-dicarboxílico.

10 El punto de fusión es 167-168°C y el análisis elemental como $C_{12}H_9N_3O_2Cl_2$ es:

	C %	H %	N %	Cl %
Calculado :	48,34	3,04	14,09	23,79
Encontrado:	48,31	3,01	14,25	23,82

15 Por una solución de 1,5 g del producto así obtenido en 50 ml de acetato de etilo se hace pasar hidrógeno a presión normal en presencia de 0,1 g de catalizador de paladio al 5 % en carbón hasta que ya no se detecta absorción de hidrógeno. Después de separar el catalizador por filtración, el acetato de etilo se separa por destilación a vacío para obtener 1,4 g de 1,2-pentameten-4-(3',5'-diclorofenil)urazol con un rendimiento del 95 %.

EJEMPLO DE REFERENCIA 12

20 Se calienta a reflujo durante 4 horas, con agitación,

1 una solución de 5,7 g de 1,2-trimetilen-4-(3',5'-diclorofe-
nil)urazol (preparado por el procedimiento del Ejemplo de re-
5 referencia 10) y 4,4 g de pentasulfuro de fósforo en 50 ml de
xileno. La mezcla de reacción se deja enfriar para precipitar
una materia sólida que se separa por filtración. El disolven-
te se separa a vacío y el residuo se recrystaliza en metanol
para dar 2,5 g de 1,2-trimetilen-4-(3',5'-diclorofenil)monotio-
urazol con un rendimiento del 41 %.

EJEMPLO DE REFERENCIA 13

10 Se añaden poco a poco 2 g (0,01 moles) de isotiocianato
de 3,5-diclorofenilo a una solución de 1,7 g de 1,2-pentameti-
len-1-etoxicarbonil-hidrazina, con agitación por sacudidas,
produciéndose instantáneamente en proporciones cuantitativas
15 la 1,2-pentameten-1-etoxicarbonil-2-(3',5'-diclorofeniltio-
carbamoil)hidrazina. Se toma una muestra de una parte de la
mezcla de reacción y el disolvente se separa de la misma para
precipitar cristales; el punto de fusión y el análisis elemen-
tal son los siguientes:

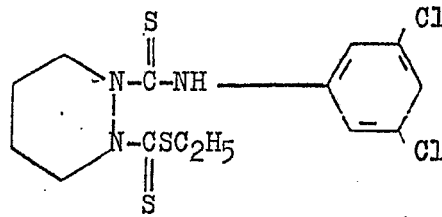
20 Punto de fusión: 128-130°C
Análisis elemental como $C_{15}H_{19}Cl_2N_3O_2S$:

	C %	H %	N %	Cl %	S %
Calculado :	47,88	5,09	11,17	18,84	8,52
Encontrado:	47,85	5,06	11,22	18,75	8,48

25 La mezcla de reacción que contiene el producto anterior
se calienta a reflujo durante 8 horas, se deja enfriar y se
diluye con éter de petróleo para precipitar cristales que se
recogen por filtración, se lavan con éter de petróleo y se
recrystalizan en etanol/benceno para dar 2,5 g de 1,2-pentame-
30 tilen-4-(3',5'-diclorofenil)monotiourazol, correspondiente a
un rendimiento del 77 %.

EJEMPLO DE REFERENCIA 14

Se añaden 2 g de isocianato de 3,5-diclorofenilo a una solución de 1,74 g de 1,2-tetrametilen-1-(etiltio)tiocarbonylo en 10 ml de benceno, agitando por sacudidas y después se observa la precipitación de cristales del siguiente compuesto:



Punto de fusión: 147-149°C.

Análisis elemental como $C_{14}H_{17}Cl_2N_3S_3$:

	C %	H %	N %	Cl %	S %
Calculado :	42,63	4,35	10,65	17,98	24,39
Encontrado:	42,58	4,31	10,62	18,04	24,33

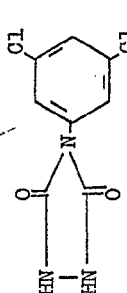
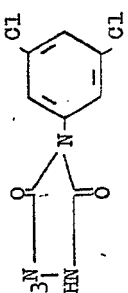
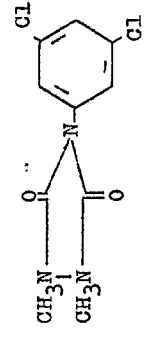
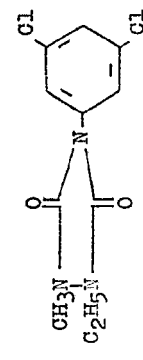
La mezcla de reacción que contiene los cristales se trata como en el Ejemplo de referencia 13 para obtener 2,4 g (rendimiento: 65 %) de 1,2-tetrametilen-4-(3',5'-diclorofenil)ditiourazol.

Varios compuestos que son adecuados como ingrediente activo de los fungicidas de esta invención se encuentran en la Tabla I.

25

30

TABLA I

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fusión(°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
1		275-276,5	39,05	2,05	17,08	28,82	6
2		189-192	41,56	2,71	16,16	27,26	6
3		209-211	43,82	3,31	15,33	25,87	1
4		115-117	45,85	3,85	14,58	24,61	1
			43,57	3,29	15,19	26,02	
			45,83	3,81	14,47	24,55	

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I

1
5
10
15
20
25
30

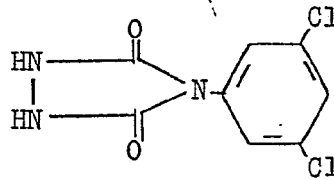
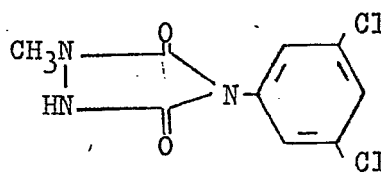
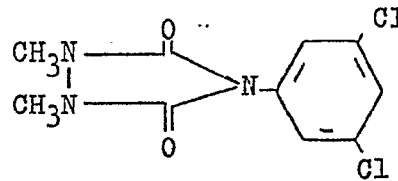
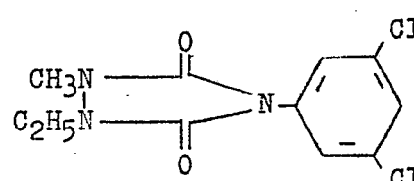
Compuesto núm.	Estructura	Punto de fusión(°C)	Análisis C
1		275-276,5	39,05 38,95
2		189-192	41,56 41,46
3		209-211	43,82 43,57
4		115-117	45,85 45,83

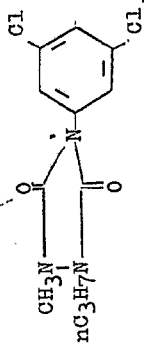
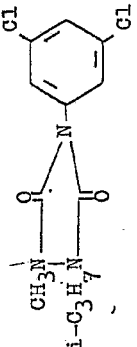
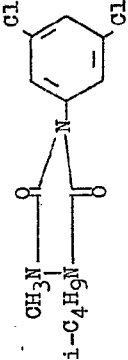
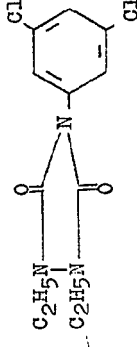
TABLA I

Punto de fusión(°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
	C	H	N	Cl	S	
275-276,5	39,05	2,05	17,08	28,82		6
	38,95	2,02	17,21	28,85		
189-192	41,56	2,71	16,16	27,26		6
	41,46	2,68	16,22	27,31		
209-211	43,82	3,31	15,33	25,87		1
	43,57	3,29	15,19	26,02		
115-117	45,85	3,85	14,58	24,61		1
	45,83	3,81	14,47	24,55		

1

1

TABLA I (continuación)

Compuesto n.º.	Estructura	Punto de fusión(°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
5	 CH ₃ N n-C ₃ H ₇ N	90-91	47,70	4,34	13,91	23,47	1
6	 CH ₃ N i-C ₃ H ₇ N	83-85	47,70	4,34	13,91	23,47	1
7	 CH ₃ N i-C ₄ H ₉ N	92-92,5	49,38	4,78	13,29	22,43	1
8	 C ₂ H ₅ N C ₂ H ₅ N	109-111	47,70	4,34	13,91	23,47	1

1

5

10

15

20

25

30

TABLE I (continuac

1
5
10
15
20
25
30

Compuesto número	Estructura	Punto de fusión(°C)	Ané C
5		90-91	47,70 47,54
6		83-85	47,70 47,81
7		92-92,5	49,38 49,27
8		109-111	47,70 47,53

TABLA I (continuación)

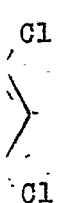

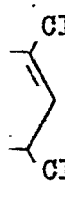
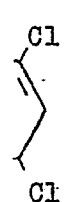
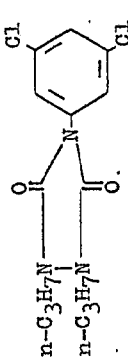
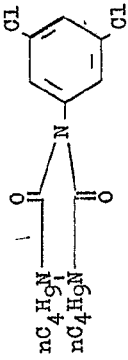
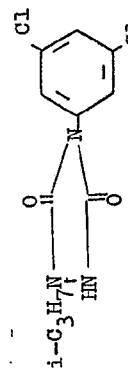
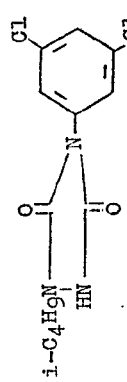
E	Punto de fusión(°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
	90-91	47,70	4,34	13,91	23,47		1
		47,54	4,31	13,87	23,52		
	83-85	47,70	4,34	13,91	23,47		1
		47,81	4,30	13,87	23,41		
	92-92,5	49,38	4,78	13,29	22,43		1
		49,27	4,69	13,27	22,14		
	109-111	47,70	4,34	13,91	23,47		1
		47,53	4,22	13,99	23,56		

TABLA I (continuación)

Compuesto n ^o .	Estructura	Punto de fusión(°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de re- ferencia
			C	H	N	Cl	
9		91-94	50,92	5,19	12,73	21,47	1
10		n _D ³⁰ 1,5365	53,64	5,90	11,73	19,79	1
11		142-146	45,85	3,85	14,58	24,61	1
12		133-135	47,70	4,34	13,91	23,47	1

1

5

10

15

20

25

30

1 TABLA I (continuac

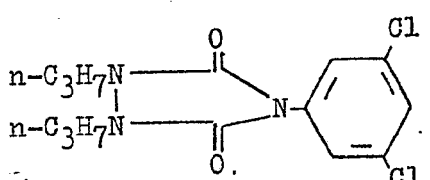
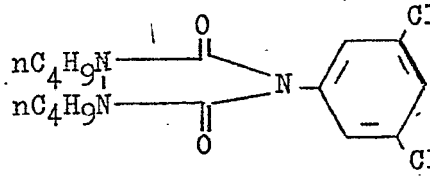
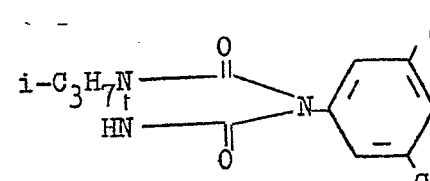
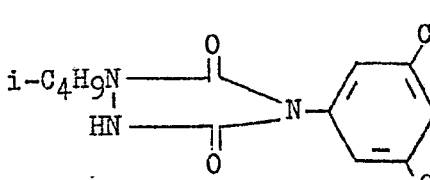
Compuesto número	Estructura	Punto de fusión(°C)	Análisis	
			C	H
5 9		91-94	50,92	5,19
10 10		n ³⁰ (4) D 1,5365	53,64	5,90
15 11		142-146	45,85	3,85
20 12		133-135	47,70	4,34
25 12			47,35	4,34

TABLA I (continuación)

Punto de fusión(°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
	C	H	N	Cl	S	
91-94	50,92	5,19	12,73	21,47		1
	51,21	5,20	12,69	21,57		
n_{30}^{D} (4) 1,5365	53,64	5,90	11,73	19,79		1
	53,58	5,79	11,73	19,67		
142-146	45,85	3,85	14,58	24,61		1
	45,90	3,81	14,55	24,68		
133-135	47,70	4,34	13,91	23,47		1
	47,35	4,34	13,87	23,51		

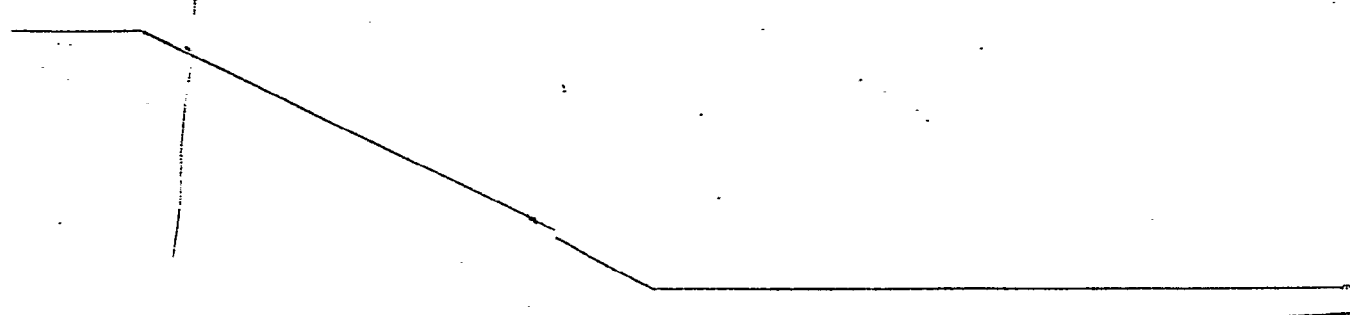
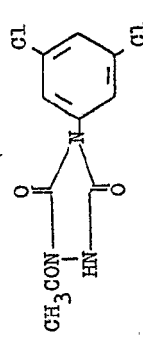
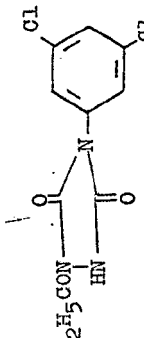
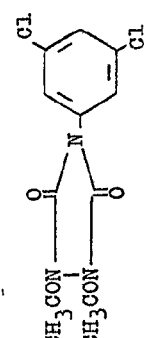
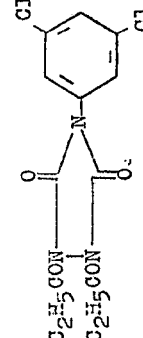


TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
13		225-228	41,69	2,45	14,59	24,61	3
14		193-194	43,73	3,00	13,90	23,47	3
15		226-227	43,66	2,75	12,73	21,48	3
16		257-260	46,94	3,66	11,73	19,80	3

1

5

10

15

20

25

50

TABLA I (continuac

1
5
10
15
20
25
30

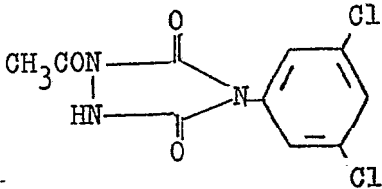
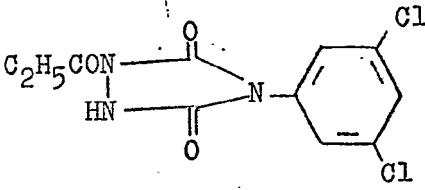
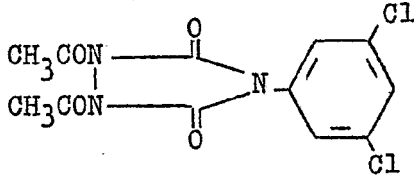
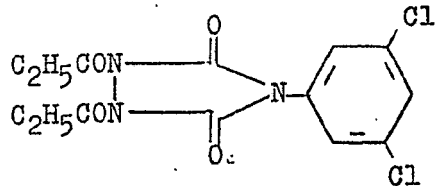
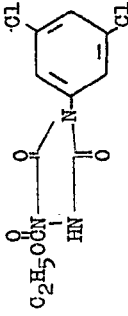
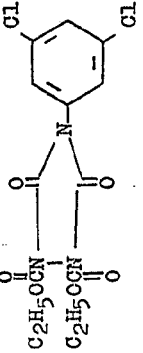
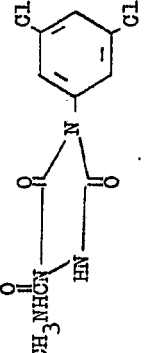
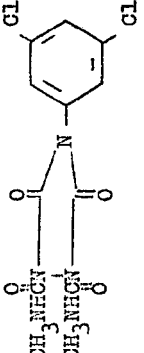
Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu sión (°C)	Análisi	
			C	H
13		226-228	41,69	2,45
			41,65	2,43
14		193-194	43,73	3,00
			43,68	3,02
15		226-227	43,66	2,75
			43,53	2,77
16		257-260	46,94	3,66
			46,79	3,58

TABLA I (continuación)

Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
	C	H	N	Cl	S	
226-228	41,69	2,45	14,59	24,61		3
	41,65	2,43	14,58	24,60		
193-194	43,73	3,00	13,90	23,47		3
	43,68	3,02	13,88	23,54		
226-227	43,66	2,75	12,73	21,48		3
	43,53	2,77	12,69	22,00		
257-260	46,94	3,66	11,73	19,80		3
	46,79	3,58	11,65	19,76		

TABLA I (continuación)

Compuesto nbm.	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
17		185-188	41,53	2,85	13,21	22,29	2
18		211-213	43,09	3,36	10,77	18,17	2
19		220-222	39,62	2,66	18,49	23,39	4
20		202-205	40,02	3,08	19,45	19,69	4

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continuaci

1
5
10
15
20
25
30

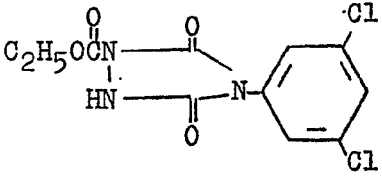
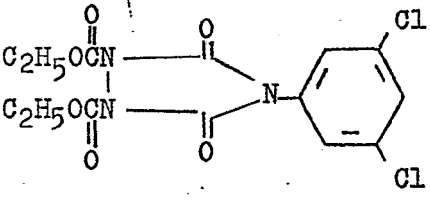
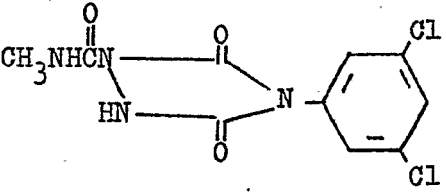
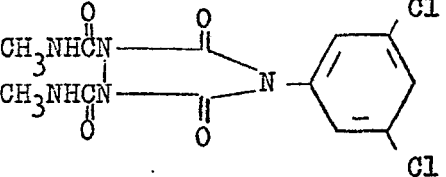
Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu sión (°C)	Análi:	
			C	H
17		185-188	41,53	2,85
			41,49	2,84
18		211-213	43,09	3,36
			42,98	3,42
19		220-222	39,62	2,66
			39,49	2,59
20		202-205	40,02	3,08
			40,14	3,07

TABLA I (continuación)

	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
I	185-188	41,53	2,85	13,21	22,29		2
I		41,49	2,84	13,09	22,34		
Cl	211-213	43,09	3,36	10,77	18,17		2
Cl		42,98	3,42	10,75	18,19		
Cl	220-222	39,62	2,66	18,49	23,39		4
Cl		39,49	2,59	18,47	23,45		
Cl	202-205	40,02	3,08	19,45	19,69		4
Cl		40,14	3,07	19,42	19,71		

TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
21		138-140	43,73	3,00	13,90	23,47	3
22		117-119	45,59	3,51	13,29	22,43	3
23		85,5-86,5	47,29	3,97	12,73	21,48	3
24		134-135	43,33	3,34	12,65	21,35	2

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continua)

1
5
10
15
20
25
30

Compuesto número	Estructura	Punto de fusión (°C)	An C
21		138-140	43,73 43,68
22		117-119	45,59 45,60
23		85,5-86,5	47,29 47,26
24		134-135	43,35 43,33

TABLA I (continuación)




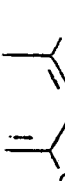
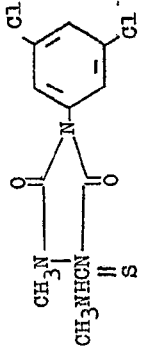
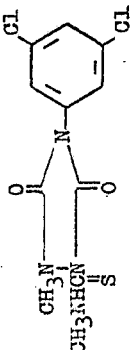
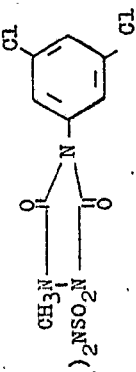
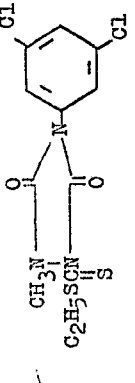
	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
	138-140	43,73	3,00	13,90	23,47		3
		43,68	3,00	13,87	23,49		
	117-119	45,59	3,51	13,29	22,43		3
		45,60	3,57	13,24	22,59		
	85,5-86,5	47,29	3,97	12,73	21,48		3
		47,26	3,95	12,69	21,53		
	134-135	43,35	3,34	12,65	21,35		2
		43,33	3,31	12,68	21,30		

TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis elemental (%)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
25		151-153	41,66	3,18	17,67	22,36	4
26		187-189	39,65	3,03	16,82	21,28	4
27		125-127	35,98	3,30	15,26	19,31	3
28		119-121	39,57	3,04	11,54	19,47	2

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continuac.

1
5
10
15
20
25
30

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	C
25		151-153	41,66 41,69
26		187-189	39,65 39,67
27		125-127	35,98 36,11
28		119-121	39,57 39,51

TABLA I (continuación)








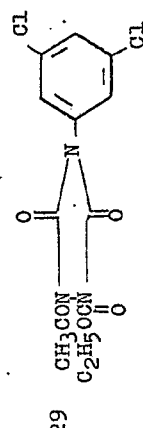
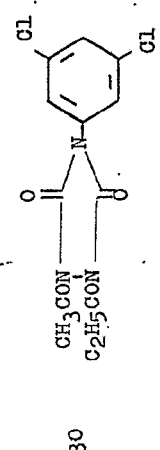
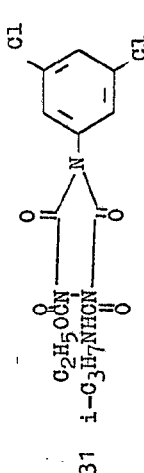
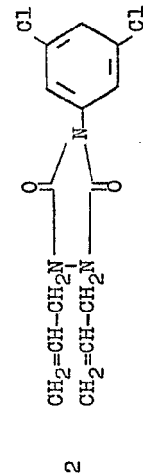
	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
	151-153	41,66	3,18	17,67	22,36		4
		41,69	3,20	17,59	22,43		
	187-189	39,65	3,03	16,82	21,28	9,62	4
		39,67	3,00	16,78	21,20	9,69	
	125-127	35,98	3,30	15,26	19,31	8,73	3
	119-121	39,57	3,04	11,54	19,47	17,60	2
		39,51	3,01	11,56	19,57	19,81	

TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia
			G	H	N	Cl	
29		163-165	43,35	3,08	11,67	19,69	2
30		175-177	46,44	3,30	12,50	21,09	3
31		173-175	44,68	4,00	13,90	17,59	8
32		82-83	51,55	4,02	12,88	21,74	1

1

5

10

15

20

25

30

1 TABLA I (continuac

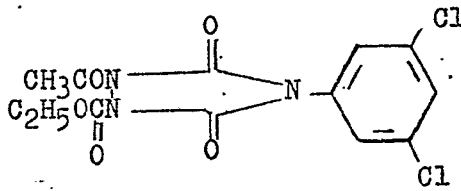
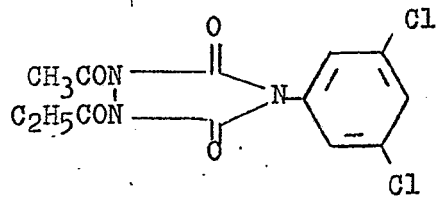
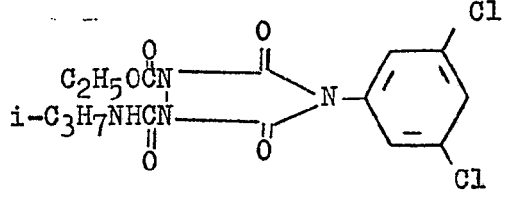
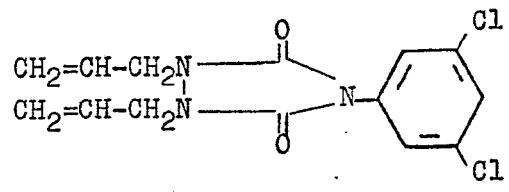
Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu sión (°C)	Análisis	
			C	H
5 29		163-165	43,35	3,0
			43,34	3,0
10 30		175-177	46,44	3,3
			46,50	3,2
15 31		173-175	44,68	4,0
			44,70	4,0
20 32		82-83	51,55	4,0
25			51,59	4,0
30				

TABLA I (continuación)

Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
	C	H	N	Cl	S	
163-165	43,35	3,08	11,67	19,69		2
	43,34	3,08	11,56	19,71		
175-177	46,44	3,30	12,50	21,09		3
	46,50	3,28	12,47	21,11		
173-175	44,68	4,00	13,90	17,59		8
	44,70	4,02	13,86	17,62		
82-83	51,55	4,02	12,88	21,74		1
	51,59	4,05	12,84	21,83		



TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	S	
33	<p> $\text{CH}\equiv\text{C}-\text{CH}_2\text{N}$ $\text{CH}\equiv\text{C}-\text{CH}_2\text{N}$ </p>	128-129,5	52,19	2,82	13,04	22,01		1
34	<p> CH_3 </p>	101-102,5	53,59	3,30	12,50	21,09		9
35		246-248	37,42	1,92	16,03	27,05	12,23	7
36	<p> CH_3N CH_3N </p>	125-127	41,39	3,13	14,48	24,43	11,05	7

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continuac

1
5
10
15
20
25
30

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu sión (°C)	C
33		128-129,5	52,19 52,22
34		101-102,5	53,59 3 53,16 3
35		246-248	37,42 1 37,35 1
36		125-127	41,39 : 41,18 :

TABLA I (continuación)

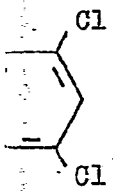


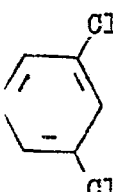
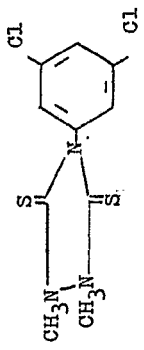
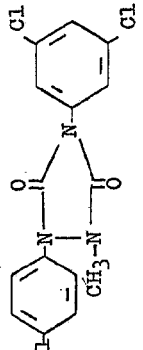
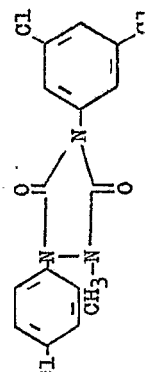
	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
	128-129,5	52,19	2,82	13,04	22,01		1
		52,22	2,89	13,05	22,08		
	101-102,5	53,59	3,30	12,50	21,09		9
		53,16	3,27	12,46	21,23		
	246-248	37,42	1,92	16,03	27,05	12,23	7
		37,35	1,86	16,00	27,03	12,16	
	125-127	41,39	3,13	14,48	24,43	11,05	7
		41,18	3,10	14,51	24,38	11,06	

TABLE I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia	
			C	H	N	Cl		
37		>250	39,22	2,96	13,72	23,16	20,94	5
38		134-136	48,61	2,72	11,34	28,70		9
39		116-118	54,87	3,74	12,00	20,25		9

1

5

10

15

20

25

30

1 TABLA I (continuac

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu sión (°C)	A
			C
37		>250	39,22
			39,23
38		134-136	48,61
			48,27
39		116-118	54,87
			55,02

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continuación)

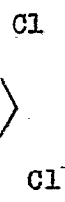



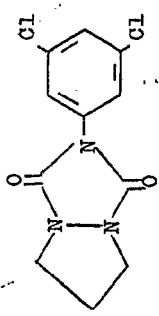
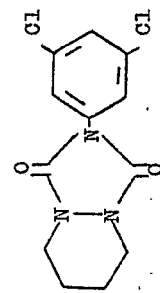
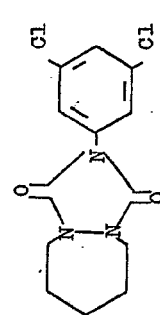
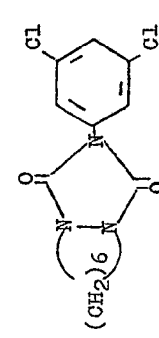
	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
	>250	39,22	2,96	13,72	23,16	20,94	5
		39,23	2,79	13,68	23,20	20,89	
	134-136	48,61	2,72	11,34	28,70		9
		48,27	2,75	11,22	28,59		
	116-118	54,87	3,74	12,00	20,25		9
		55,02	3,77	11,81	20,17		

TABLA I (continuación)

Compuesto num.	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	
40		142-143,5	46,17	3,17	16,69	24,78	C ₁₁ H ₉ N ₃ Cl ₂ O ₂ 10
41		139-144	48,02	3,69	14,00	23,63	C ₁₂ H ₁₁ N ₃ Cl ₂ O ₂ 11
42		124-125	49,70	4,17	13,38	22,57	C ₁₃ H ₁₃ N ₃ Cl ₂ O ₂ 10
43		117-119	51,23	4,60	12,80	21,60	C ₁₄ H ₁₅ N ₃ Cl ₂ O ₂ 10

1

5

10

15

20

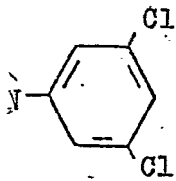
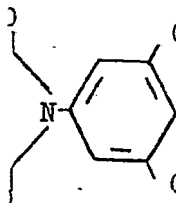
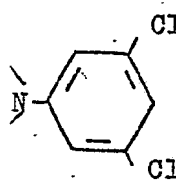
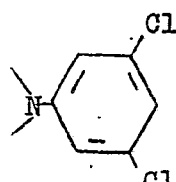
25

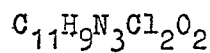
30

TABLA I (continuac:

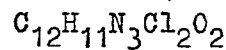
1	Compuesto número.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis C
5	40		142-143,5	46,17 3, 46,00 3,
10	41		139-144	48,02 3 48,23 3
15	42		124-125	49,70 4 49,66 4
20	43		117-119	51,23 4 51,09 4
30				

TABLA I (continuación)

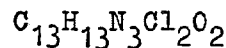
Ejemplo de referencia	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)				
		C	H	N	Cl	S
	142-143,5	46,17	3,17	16,69	24,78	
		46,00	3,09	16,34	24,56	
	139-144	48,02	3,69	14,00	23,63	
		48,23	3,51	13,77	23,50	
	124-125	49,70	4,17	13,38	22,57	
		49,66	4,21	13,37	22,60	
	117-119	51,23	4,60	12,80	21,60	
		51,09	4,55	12,68	21,41	



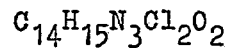
10



11

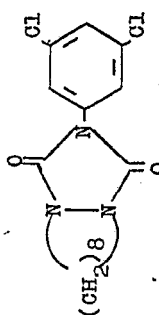
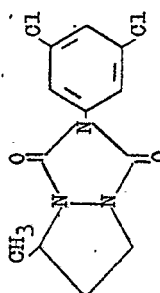
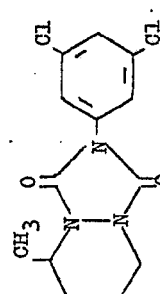
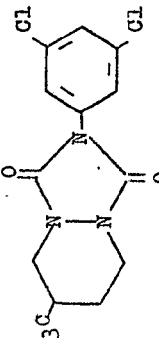


10



10

TABLA I (continuación)

Compuesto n.º.	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	S	
44		171-173	53,94	5,38	11,80	19,91		$C_{16}H_{19}N_3Cl_2O_2$
45		152-154	48,02	3,69	14,00	23,63		$C_{12}H_{11}N_3Cl_2O_2$
46		149-150	49,70	4,17	13,38	22,57		$C_{13}H_{13}N_3Cl_2O_2$
47		167	49,70	4,17	13,38	22,57		$C_{13}H_{13}N_3Cl_2O_2$

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continuación)

Compuesto número	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis	
			C	H
44		171-173	53,94	5,3
45		152-154	48,02	3,6
46		149-150	49,70	4,1
47		167	49,70	4,1
			49,63	4,0

TABLA I (continuación)

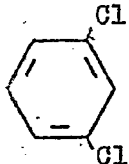
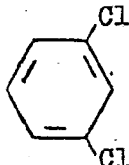
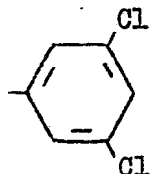
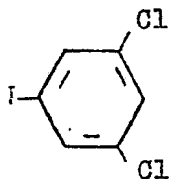
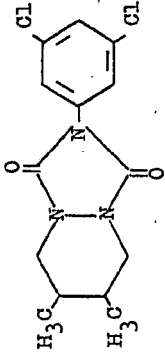
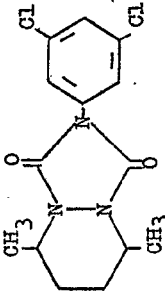
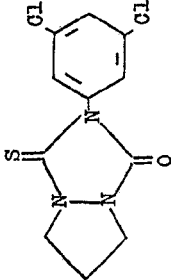
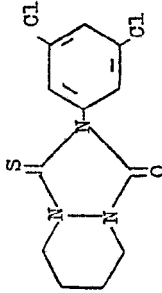
ra	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
		C	H	N	Cl	S	
	171-173	53,94	5,38	11,80	19,91		C ₁₆ H ₁₉ N ₃ Cl ₂ O ₂ 10
		53,67	5,31	11,49	19,80		
	152-154	48,02	3,69	14,00	23,63		C ₁₂ H ₁₁ N ₃ Cl ₂ O ₂ 10
		47,99	3,53	14,11	23,48		
	149-150	49,70	4,17	13,38	22,57		C ₁₃ H ₁₃ N ₃ Cl ₂ O ₂ 11
		49,56	4,13	13,27	22,41		
	167	49,70	4,17	13,38	22,57		C ₁₃ H ₁₃ N ₃ Cl ₂ O ₂ 11
		49,63	4,08	13,25	22,42		

TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Análisis elemental (%) (3)				Ejemplo de referencia			
		Punto de fu- sión (°C)	C	H	N		Cl	S	
48		180-182	51,23	4,60	12,80	21,60	$C_{14}H_{15}N_3Cl_2O_2$	11	
49		246-248	51,23	4,50	12,80	21,60	$C_{14}H_{15}N_3Cl_2O_2$	11	
50		164-165,5	43,72	3,00	13,91	23,47	10,61	$C_{11}H_9N_3Cl_2OS$	12
51		199-200,5	45,58	3,51	13,29	22,43	10,74	$C_{12}H_{11}N_3Cl_2OS$	13

1

5

10

15

20

25

30

TABLA I (continuac

1
5
10
15
20
25
30

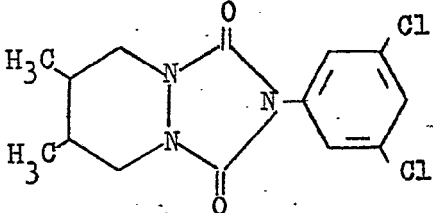
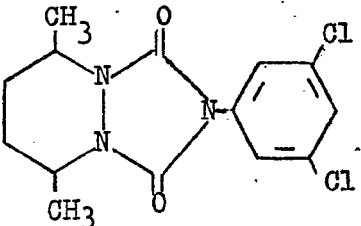
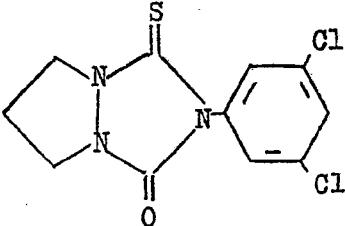
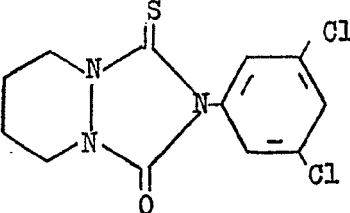
Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis ele		
			C	H	N
48		180-182	51,23	4,60	11
			51,43	4,44	11
49		246-248	51,23	4,60	11
			51,58	4,28	11
50		164-165,5	43,72	3,00	11
			43,68	2,97	11
51		199-200,5	45,58	3,51	11
			45,44	3,60	11

TABLA I (continuación)





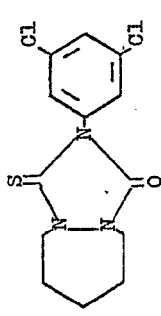
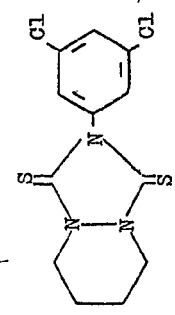
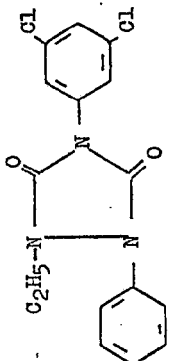
Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia	
	C	H	N	Cl	S		
 Cl Cl	180-182	51,23	4,60	12,80	21,60	$C_{14}H_{15}N_3Cl_2O_2$ 11	
		51,43	4,44	12,68	21,23		
 Cl Cl	246-248	51,23	4,60	12,80	21,60	$C_{14}H_{15}N_3Cl_2O_2$ 11	
		51,58	4,28	12,64	21,60		
 Cl Cl	164-165,5	43,72	3,00	13,91	23,47	10,61	$C_{11}H_9N_3Cl_2OS$ 12
		43,68	2,97	13,86	23,51	10,63	
 Cl Cl	199-200,5	45,58	3,51	13,29	22,43	10,14	$C_{12}H_{11}N_3Cl_2OS$ 13
		45,44	3,60	13,21	22,19	10,00	

TABLA I (continuación)

Compuesto núm.	Estructura	Punto de fu- sión (°C)	Análisis elemental (%) (3)					Ejemplo de referencia
			C	H	N	Cl	S	
52		168-170	47,28	3,97	12,72	21,47	9,71	$C_{13}H_{13}N_3Cl_2OS$ 13
53		>250	43,38	3,34	12,65	21,34	19,30	$C_{12}H_{11}N_3Cl_2S_2$ 14
54		n_D^{29} 1,5896 (4)	54,87	3,74	12,00	20,25		9
			55,04	3,77	12,12	20,15		

Notas: (1) compuesto conocido

(2) el compuesto es producido por el procedimiento del Ejemplo de referencia

(3) las cifras en la línea superior son el valor calculado y las cifras en la línea inferior son el valor encontrado

(4) índice de refracción.

TABLA I (continuación)

Compuesto número	Estructura	Punto de fusión (°C)	Análisis elemental		
			C	H	N
52		168-170	47,28 47,22	3,97 3,86	12,7 12,7
53		>250	43,38 43,29	3,34 3,30	12,6 12,5
54		n_D^{29} 1,5896 (4)	54,87 55,04	3,74 3,77	12,0 12,1

Notas: (1) compuesto conocido

(2) el compuesto es producido por el procedimiento del Ejemplo

(3) las cifras en la línea superior son el valor calculado y el valor encontrado

(4) índice de refracción.

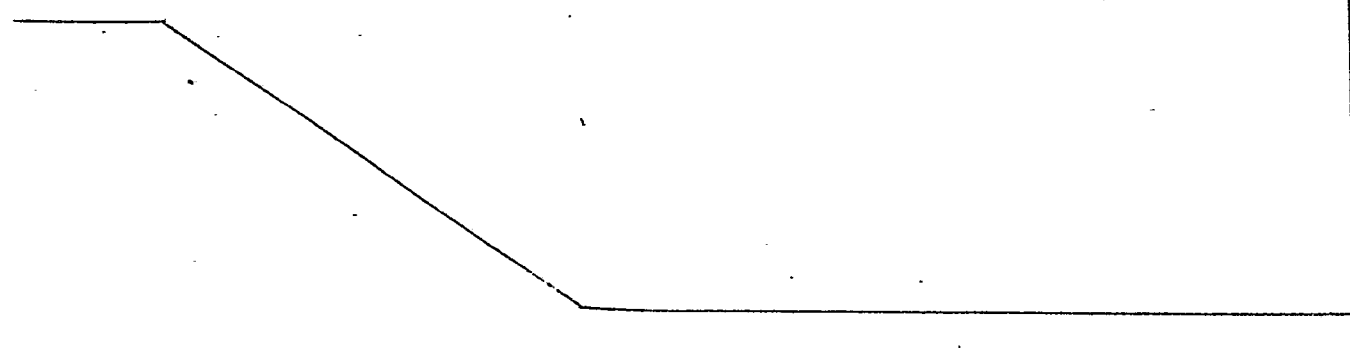
1
5
10
15
20
25
30

TABLA I (continuación)

Punto de fusión (°C)	Análisis elemental (%) ⁽³⁾					Ejemplo de referencia
	C	H	N	Cl	S	
168-170	47,28	3,97	12,72	21,47	9,71	C ₁₃ H ₁₃ N ₃ Cl ₂ OS 13
	47,22	3,86	12,70	21,53	9,64	
>250	43,38	3,34	12,65	21,34	19,30	C ₁₂ H ₁₁ N ₃ Cl ₂ S ₂ 14
	43,29	3,30	12,58	21,33	19,27	
	54,87	3,74	12,00	20,25		n _D ²⁹ 1,5896 (4) 9
	55,04	3,77	12,12	20,15		



acido por el procedimiento del Ejemplo de referencia
 ea superior son el valor calculado y las cifras en la línea inferior son el va-



1 Entre los compuestos citados en la Tabla I, se ha encontrado que son preferibles los siguientes como ingrediente activo del fungicida de acuerdo con esta invención:

1-metil-2-acetil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

5 1-metil-2-etil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

1-metil-2-n-propil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

1-metil-2-isopropil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

1,2-dimetil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

1-metil-2-fenil-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

10 1,2-(1"-metiltrimetilen)-4-(3',5'-diclorofenil)urazol,

1,2-(1"-metiltetrametilen)-4-(3',5'-diclorofenil)urazol y

1,2-pentametilen-4-(3',5'-diclorofenil)urazol.

Aunque los derivados de 4-(3',5'-diclorofenil)urazol 1,2-sustituídos pueden ser aplicados a las plantas como fungicidas agrícolas, es conveniente utilizar el compuesto diluído con un coadyuvante convencional en forma de emulsión, polvo mojable o polvo fino.

El coadyuvante puede ser alguno de los convencionalmente utilizados para la formulación de fungicidas agrícolas, incluido un vehículo líquido o sólido, un emulgente, un agente dispersante, un extendedor, un penetrante y un agente tensoactivo.

Son ejemplos del vehículo líquido que puede ser utilizado de acuerdo con esta invención una amplia variedad de disolventes, por ejemplo agua, un alcohol como alcohol metílico, alcohol etílico y etilenglicol, una cetona, como acetona, metil-etil-cetona y ciclohexanona un éter como éter metílico, dioxano y cellosolve, un hidrocarburo alifático como gasolina y queroseno, un hidrocarburo aromático como benceno, tolueno, xileno, nafta disolvente y metilnaftaleno, un hidrocarburo halogenado como diclorometano, triclorobenceno y te-

1 tracloruro de carbono, una amida de ácido como dimetilforma-
mida, un éster como acetato de etilo, acetato de butilo, un
glicérido de un ácido alifático y un nitrilo como acetoni-
trilo.

5 Son ejemplos del vehículo sólido que puede ser utiliza-
do de acuerdo con esta invención, por ejemplo, arcilla, cao-
lín, bentonita, talco, tierra de diatomeas, yeso, vermiculi-
ta, alúmina, azufre, carbono blanco y carboximetilcelulosa.
Este vehículo sólido puede ser utilizado solo o una mezcla
10 de dos o más.

Los agentes tensoactivos adecuados pueden ser, por ejem-
plo, un tipo no iónico como éter polioxietilentalquilarílico
y monolaurato de polioxietilensorbitol, un tipo catiónico
como cloruro de alquildimetilbencilamonio y cloruro de al-
15 quilpiridinio, un tipo aniónico como bencenosulfonato de al-
quilo, ligninsulfonato y un sulfato de un alcohol superior y
un tipo anfótero como alquildimetilbetaína y dodecilaminoetil-
glicina.

20 Este coadyuvante puede ser utilizado solo o una mezcla
de dos o más.

La emulsión puede prepararse formulando de 10 a 50 par-
tes en peso de un ingrediente activo, de 10 a 40 partes de
un disolvente y de 5 a 20 partes de un agente tensoactivo
para formar un concentrado que se diluye con agua hasta una
25 concentración predeterminada y se aplica a la planta o al te-
rreno, por ejemplo mediante pulverización.

El polvo mojable puede contener de 10 a 50 partes en
peso de un ingrediente activo, de 10 a 40 partes de un vehí-
culo sólido y de 5 a 20 partes de un agente tensoactivo. El
30 polvo puede ser utilizado después de diluirlo con agua.

1 El polvo fino puede ser una mezcla uniforme de 1 a 5 partes en peso de un compuesto activo y 95 a 99 partes de un vehículo sólido.

5 El fungicida agrícola de acuerdo con esta invención puede ser utilizado junto con uno o más de otros ingredientes activos que no afecten adversamente a la actividad fungicida del compuesto útil, tales como insecticidas, acaricidas y otros fungicidas.

10 El fungicida de acuerdo con esta invención puede ser aplicable mediante tratamientos al follaje y al terreno y su dosis efectiva está comprendida, en general, entre 500 y 1500 ppm en el caso del tratamiento al follaje y entre 50 y 300 g por 100 m² en el caso del tratamiento del terreno.

15 Se ha encontrado que el fungicida agrícola de acuerdo con esta invención posee un amplio espectro fungicida para evitar diversas enfermedades de las plantas que se observan en las frutas, como manzanas y uvas, hortalizas como tomate y pepino, judías y arroz, tales como el añublo de la vaina del arroz, la enfermedad del moho gris causada por el hongo Botrytis, la enfermedad de las manchas pardas del arroz, las manchas de las hojas causadas por Alternaria y las manchas causadas por Sclerotinia. También se ha encontrado que el fungicida es eficaz contra dos o más enfermedades simultáneamente y presenta una toxicidad extraordinariamente baja contra los seres humanos y peces y baja fitotoxicidad.

20

25

30 Esta invención será explicada con detalle mediante los siguientes ejemplos y ejemplos experimentales; sin embargo, se sobreentiende que esta invención no está limitada en modo alguno por estos ejemplos donde "partes" significan partes en peso salvo indicación en contrario.

1

EJEMPLO 1 (polvo fino)

Se mezclan los siguientes ingredientes y se pulverizan para obtener un polvo fino:

5

Compuesto nº 3 3 partes

Mezcla de arcilla y talco 97 partes

En lugar del compuesto 3, puede emplearse el compuesto 40 para formular el polvo fino.

EJEMPLO 2 (polvo mojable)

10

Se mezclan y pulverizan los siguientes ingredientes para preparar el polvo mojable:

Compuesto nº 17 20 partes

Mezcla de arcilla y tierra de diatomeas 75 partes

Alquilbencenosulfonato sódico 3 partes

15

Eter polioxietilennonilfenílico 2 partes

En lugar del compuesto nº 17, puede emplearse el compuesto 42 para formular el polvo mojable.

EJEMPLO 3 (emulsión)

20

Se mezclan con agitación los siguientes ingredientes para preparar la emulsión:

Compuesto nº 34 50 partes

Xileno 40 partes

Eter polioxietilennonilfenílico 6 partes

Alquilbencenosulfonato sódico 4 partes

25

El compuesto nº 34 puede ser sustituido por el compuesto nº 41 para formular la emulsión.

EJEMPLO EXPERIMENTAL 1

Efecto preventivo de la enfermedad añublo de la vaina del arroz

30

Unas plantas de arroz (variedad Kinmaze), que se encuentran en la fase de 5-6 hojas y se han cultivado en macetas de

1

EJEMPLO EXPERIMENTAL 2

Efecto preventivo contra el moho gris del pepino

5

Unos cotiledones cortados de plantitas de pepino (variedad Sagamihanziro) se sumergen en suspensiones acuosas de polvos mojables con diversas concentraciones de los productos químicos y se secan al aire. Se inoculan micelios patógenos de Botrytis cinerea en los cotiledones y se incuban en una cámara húmeda mantenida a 25°C. Al cabo de 7 días, se determina el índice de gravedad de la enfermedad.

10

Por otra parte, se repiten procedimientos similares a los anteriores pero sin aplicar ningún producto químico a los cotiledones.

15

Después se calcula el valor preventivo de acuerdo con la ecuación anterior.

Los resultados se encuentran en la Tabla III.

TABLA III

20

25

30

Compuesto nº	Valor preventivo (%)		
	1000 ppm	500 ppm	250 ppm
2	96,5	93,2	91,8
3	100	98,2	95,4
7	96,2	95,4	90,6
8	98,4	91,5	82,3
11	100	98,6	92,0
12	83,2	72,3	69,8
13	97,3	90,4	83,4
18	100	98,6	95,3
23	97,4	82,6	80,4
24	83,2	76,4	63,5
25	100	96,3	91,5
31	85,4	73,2	65,4

TABLA III (continuación)

Compuesto nº	Valor preventivo (%)		
	1000 ppm	500 ppm	250 ppm
37	100	92,4	86,3
40	100	98,0	92,1
41	96,4	92,3	88,5
42	100	95,7	90,4
43	86,2	82,4	72,3
45	92,5	86,4	80,8
49	85,3	79,0	68,4
50	98,6	89,3	82,1
51	85,3	80,4	73,8
53	91,6	85,0	72,9

EJEMPLO EXPERIMENTAL 3

Efecto preventivo de la mancha parda del arroz

Unas plantas de arroz (variedad Kinmaze), que se encuentran en la fase de 4-5 hojas y han crecido en macetas de 9 cm en un invernadero, se tratan con suspensiones de diversos polvos mojables de productos químicos, a concentraciones predeterminadas, mediante rociada a una dosis de 20 ml por maceta y se secan al aire.

Después se inocula en las plantas una suspensión que contiene esporas patógenas de Cochliobolus miyabeanus y se incuban en una cámara húmeda a 25-27°C. Al cabo de 48 horas, se cuenta el número de lesiones.

Por otra parte, se repiten procedimientos similares sin aplicar ningún producto químico.

Se calcula el valor preventivo de acuerdo con la siguiente ecuación:

1 Valor preventivo (%) = $\frac{(A) - \text{número de lesiones tratadas}}{\text{Número de lesiones no tratadas}(=A)} \times 100$

Los resultados se encuentran en la Tabla IV.

TABLA IV

5

Compuesto nº	Valor preventivo (%)			
	500 ppm	250 ppm	125 ppm	62,5 ppm
3	100	99,1	92,6	86,7
8	97,4	92,6	81,9	72,4
13	100	98,0	95,2	89,4
Control(1)	98,6	91,3	72,5	63,2

10

Nota: (1) El compuesto químico de control era N-3,5-dicloro-succinimida.

EJEMPLO EXPERIMENTAL 4

Efecto protector contra el moho gris de la judía de riñón

15 Unas plantas de judía de riñón de 2 hojas se tratan por rociada con suspensiones de polvo mojable de compuestos experimentales en una proporción de 25 ml y se secan al aire.

Después se deposita sobre las hojas un disco de ágar de 6 mm que contiene micelios patógenos de Botrytis cinerea y se incuba en una cámara húmeda a 23°C durante 4 días.

20 Después se calcula el valor protector de acuerdo con la ecuación dada en el Ejemplo experimental 1.

Los resultados se encuentran en la Tabla V.

25

30

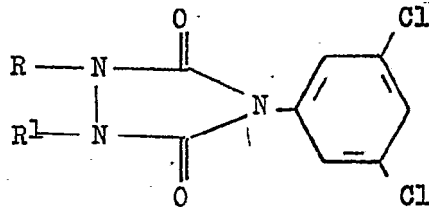
TABLA V

<u>Compuesto nº</u>	<u>Valor protector (%)</u>
40	100
41	96
42	89,7
43	78
45	100
46	93,3
47	72
51	75

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

REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento para la preparación de nuevos derivados de urazol 1,2,4-sustituidos de fórmula:



donde R y R¹ que pueden ser iguales o diferentes, representan un grupo alquilo, alqueno, alquinilo, acilo, alcoxi-carbonilo y alcoxitiocarbonilo, y R y R¹ unidos pueden formar un grupo alquileno de 3 a 8 átomos de carbono que puede tener un grupo metilo; cuyo procedimiento consiste en hacer reaccionar una sal de 4-(3', 5'-diclorofenil)urazol con un haluro seleccionado del grupo formado por un haluro de alquilo o dihaluro de alquileno en un disolvente de la temperatura ambiente a temperatura elevada, durante varias horas.

1

2. Se reivindica por último como objeto sobre el que ha de recaer la Patente de Invención que se solicita: UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE NUEVOS DERIVADOS DE URAZOL 1,2,4-SUSTITUIDOS.

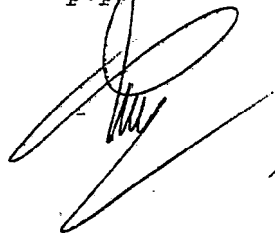
5

Todo conforme queda descrito y reivindicado en la presente memoria descriptiva que consta de cuarenta y dos páginas mecanografiadas.

Madrid, 12 Septiembre 1.977

BERNARDO UNGRIA

P.P.



10

15

20

25

30

129