

MINISTERIO DE INDUSTRIA Y ENERGIA

Registro de la Propiedad Industrial



ESPAÑA

19	ES	11	NUMERO	10	AT
		21	<b>477970</b>		
		22	FECHA DE PRESENTACION		
			<b>22 FEB. 1979</b>		

Concedido el Registro de acuerdo con los datos que figuran en el presente documento y según el contenido de la Memoria adjunta.

**PATENTE DE INVENCION**

20 PRIORIDADES:		
27 NUMERO	22 FECHA	28 PAIS
P 28 07 662.2	23 de febrero de 1.978	Rep. Federal Alemana.
47 FECHA DE PUBLICIDAD	51 CLASIFICACION INTERNACIONAL	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
	C07C, C02D, A01N	
54 TITULO DE LA INVENCION		
Procedimiento para preparar derivados de la diamina del ácido dicloromaleico.		
71 SOLICITANTE (S)		
BAYER AKTIENGESELLSCHAFT.		
DOMICILIO DEL SOLICITANTE		
Leverkusen-Bayerwerk, República Federal Alemana.		
75 INVENTOR (ES)		
Dr. Gerhard Bonse, Dr. Heinz Ulrich Blank, Dr. Wilhelm Brandes Dr. Volker Paul.		
72 TITULAR (ES)		
74 REPRESENTANTE		
GOMEZ-ACEBO.		

La presente invención se refiere a un procedimiento para preparar nuevos derivados de la diamina del ácido dicloromaleico, útiles como fungicidas.

Ya se sabe que la N-(p-fluorofenil)-imida  
5 del ácido 2,3-dicloromaleico tiene una acción muy buena contra la cos-  
tra de los cítricos (véanse por ejemplo la patente publicada no examinada  
de la Rep. Fed. de Alemania DT-OS 2.156.967 o la patente estadouniden-  
se 3.734.927). Sin embargo la amplitud de la acción del mencionado com-  
puesto, cuando se aplica en cantidades reducidas no es del todo satisfac-  
10 toria. Además se conocen desde hace bastante tiempo en todos lados el  
etileno-1,2-bis-ditiocarbamato de zinc, como preparado standard.  
(R. Wegler, "Chemie der Pflanzenschutz- und Schädlingsbekämpfungsmit-  
tel", Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg/New York (1970), tomo 2,  
página 65).

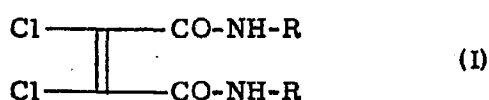
15 Además ya se sabe desde hace mucho tiem-  
po que en la acilación de la anilina con el dicloruro del ácido dicloroma-  
leico se forma una mezcla de productos (véase al respecto: J. prakt.  
Chemie 130, 255 (1931)). Si bien el dicloruro del ácido dicloromaleico  
existe exclusivamente en la forma lactoide (cíclica) en forma de tetra-  
20 cloro-5-H-furan-2-ona - hecho reconocido más recientemente - las reac-  
ciones de los cloruros de ácidos, lactoides, de ácidos dicarboxílicos,  
con componentes de reacción nucleófilos pueden llevar principalmente  
a productos que contienen un anillo lactoide intacto (Chem. Ber. 104  
3378 (1971)) o formar derivados de cadena abierta por apertura del  
25 ciclo (Chem. Ber. 109, 1163 (1976)). Conforme a ello, en la bibliogra-

ffa (J. prakt. Chem. 130, 255 (1931)), en el caso de la acilación de la anilina con dicloruro de ácido dicloromaleico se describe una mezcla de un producto amarillo de p. fus. 170°C y de un producto blanco de p. fus. 193°C; ambos productos tienen la misma fórmula bruta

5  $C_{16}H_{12}Cl_2N_2O_2$ . La formación del producto blanco (p. fus. 193°C) solamente, que se describe como bis-fenilamida simétrica, del ácido dicloromaleico, sólo resultó posible cuando el dicloruro del ácido dicloromaleico se sometió previamente a un tratamiento con cloruro de aluminio, lo que se interpretó como transformación de la forma lactoide en la  
10 forma simétrica de cadena abierta.

No se dieron a conocer hasta ahora informaciones sobre acciones biológicas de la bis-fenilamida del ácido dicloromaleico descrita (J. prakt. Chem. 130, 255 (1931)) arriba mencionada.

15 Ahora se han encontrado nuevos compuestos, los derivados de la diamida del ácido dicloromaleico, de fórmula general



en la cual

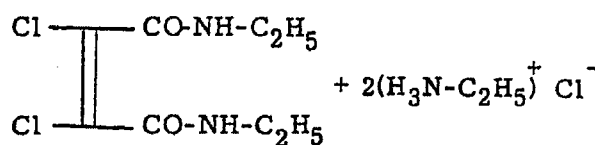
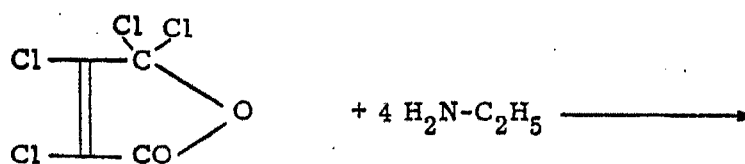
20 R representa un resto alifático eventualmente sustituido de hasta 8 átomos de carbono, un resto cicloalquilo de 3 a 6 átomos de carbono o un resto fenilo sustituido, que presentan propiedades fungicidas intensas.



invento representan un aporte a la técnica.

Además resulta sorprendente el hecho de que se logren formar en forma sencilla productos uniformes de fórmula (I) con la secuencia de acuerdo con el invento. La supresión del tratamiento del halogenuro del ácido dicloromaleico con cloruro de aluminio u otro  
5 ácido de Lewis necesario según los conocimientos hasta ahora válidos, representa una simplificación técnica.

Si se emplean como sustancias de partida la tetracloro-5H-furan-2-ona ("dicloruro del ácido dicloromaleico") y  
10 la etilamina, el desarrollo de la reacción puede ser representado por el siguiente esquema de fórmulas



Los halogenuros del ácido dicloromaleico  
15 a emplear como sustancias de partida están definidos por la fórmula (II). En esta fórmula, X representa preferiblemente cloro. Los compuestos son conocidos y pueden prepararse según procedimientos bien conocidos, por ejemplo por halogenación del anhídrido dicloromaleico empleando por ejemplo, pentacloruro de fósforo, fosgeno y cloruro de tionilo,

o, por ejemplo, halógenos tales como el cloro, en presencia de catalizadores, tales como, por ejemplo, sales de hierro.

Las aminas necesarias también como sustancias de partida, están definidas en forma general por la fórmula (III).

5 En esta fórmula, R representa preferiblemente un resto alifático saturado o no saturado, de cadena recta o ramificada, de hasta 6 átomos de carbono, que eventualmente puede llevar los siguientes sustituyentes: átomos de halógeno, grupos ciano, alcoxi y alquiltio, pudiendo tener estos últimos dos hasta 4 átomos de carbono; grupos fenilo, fenoxi y heterocíclicos, 10 pudiendo tener estos últimos 5 ó 6 miembros en el anillo, ser saturados o no saturados y contener átomos de oxígeno o azufre y/o de nitrógeno como heteroátomos, pudiendo mencionarse, por ejemplo, el grupo furilo y el grupo piranilo (derivados del pirano) y sus derivados hidrogenados o parcialmente hidrogenados; ha de mencionarse finalmente, como sustituyente, el grupo amino, cuyos átomos de hidrógeno pueden estar sustituidos con alquilo de hasta 4 átomos de carbono o con fenilo. Además, R 15 representa grupos cicloalquilo de 5 ó 6 átomos de carbono y finalmente fenilo sustituido, pudiendo mencionarse como sustituyentes, iguales o diferentes, preferiblemente: alquilo, alquenilo y alquinilo; alcoxi y alquiltio, cada uno de hasta 3 átomos de carbono; fenilo y fenoxi; halógeno, los 20 grupos nitro, ciano, halometilo tales como el trifluorometilo; haloetilo, trifluorometoxi, trifluorometiltio, tiocianato, carboxi y alcocarbonilo de hasta 4 átomos de carbono, y, finalmente, el grupo acetilamino.

Las aminas de fórmula (III) son compuestos conocidos y usuales en los laboratorios químicos orgánicos y pueden 25

5 obtenerse en forma bien conocida. Así, por ejemplo la [ tetrahidropirano-  
nil-(2)]-metilamina, también llamada 2-aminometil-tetrahidropirano-  
se obtiene hidrogenando el 2-ciano-tetrahidropirano, por ejemplo con  
alanato de litio o con hidrógeno bajo presión (véase Beilstein 18, E 3/4,  
10 página 7045. Por otra parte, el 2-aminometil-3,4-dihidropirano puede  
ser preparado por hidrogenación de 2-formil-3,4-dihidropirano bajo pre-  
sión y en presencia de amoníaco.

Naturalmente, las aminas también pueden  
emplearse en forma de sus productos de adición de ácidos, por ejemplo  
10 en forma de sus hidroclozuros o hidrobromuros, o en forma de los  
aductos con ácidos orgánicos, entre los cuales puede mencionarse aquí  
el ácido fumárico.

Para la reacción según el invento, pueden  
encontrar aplicación como diluyentes, todos los disolventes polares usua-  
15 les. De preferencia se emplean el agua y, además, los alcoholes ta-  
les como por ejemplo el metanol, el etanol o el propanol, y las cetonas  
tales como la acetona. Además pueden emplearse también mezclas de  
diversos disolventes, tales como por ejemplo aquellas formadas por agua  
y un disolvente miscible con agua.

20 Como sustancias auxiliares pueden emple-  
arse los agentes ligadores de ácidos (bases) usuales. Entre éstos, pre-  
feriblemente los ligadores inorgánicos de ácidos, tales como los hidró-  
xidos y carbonatos alcalinos, pudiendo mencionarse como ejemplos el  
hidróxido de sodio y el carbonato de potasio. Cuando se trabaja en di-  
25 solventes orgánicos se emplean preferiblemente aminas terciarias.

tales como, por ejemplo, la trietilamina o la piridina.

También preferiblemente puede utilizarse un exceso de la amina de fórmula (III) empleada como producto de partida, que así actúa simultáneamente como componente de la reacción y como ligador de ácidos.

La temperatura de la reacción puede variarse dentro de un margen amplio. Por lo general se trabaja entre -5 y +150°C, preferiblemente entre +10 y +50°C.

Para llevar a cabo el procedimiento se emplean, por cada mol del dihalogenuro del ácido dicloromaleico de fórmulas IIa ó IIb, por lo menos 2 moles de la amina de fórmula (III) y por lo menos 2 moles de un ligador de ácidos, y como tal también puede utilizarse, como ya se ha mencionado, la amina de fórmula (III) en exceso en vez de un ligador de ácidos distinto; en ese caso se necesitan por lo menos 4 moles de amina por cada mol del dihalogenuro del ácido dicloromaleico. El procesado se realiza en la forma usual, por ejemplo separando por filtración al vacío el producto final precipitado en agua y secándolo.

Las sustancias activas según el invento presentan una acción fungitóxica intensa, sin dañar las plantas de cultivo en las concentraciones necesarias para combatir los hongos. Por estas razones son apropiadas para su uso, como protectores de las plantas, para combatir, los hongos. Para la protección de las plantas, los agentes fungitóxicos se utilizan para combatir Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes,

**Basidiomycetes, Deuteromycetes.**

Las sustancias activas según el invento tienen un amplio espectro de acción y pueden emplearse contra los hongos parasitarios que atacan las partes aéreas de las plantas o que las atacan desde el suelo, así como contra los agentes fitopatógenos transmisibles por las semillas.

Así, presentan una acción particularmente buena contra el agente de la podredumbre de las hojas o de la podredumbre parda del tomate (*Phytophthora infestans*) y contra el hongo *Pyricularia oryzae* causante de una enfermedad del arroz.

En los cultivos de cereales, las sustancias activas son muy eficaces contra la roya de los cereales (*Puccinia recondita*), la roya del trigo (*Tilletia caries*) y la enfermedad de las estrías de la cebada (*Helminthosporium gramineum*).

Las sustancias activas según el invento pueden ser utilizadas como protectores de plantas para el tratamiento de las semillas y de las partes aéreas de las plantas.

Las sustancias activas pueden ser llevadas a las formulaciones usuales, tales como soluciones, emulsiones, polvos para rociar, suspensiones, polvos, preparados de espolvorear, espumas, pastas, polvos solubles, granulados, aerosoles, concentrados para preparar suspensiones y emulsiones, polvos desinfectantes de semillas, sustancias naturales y sintéticas impregnadas con sustancias activas, microencapsulaciones en sustancias polímeras y recubrimientos para semillas; también formulaciones para dispositivos de fumigación,

tales como cartuchos, tarros y espirales para fumigar y similares, así como formulaciones de nebulización en frío y en caliente de volumen ultrabajo.

Estas formulaciones se producen en forma conocida, por ejemplo mezclando las sustancias activas con diluyentes, vale decir, disolventes líquidos, gases licuados bajo presión y/o vehículos sólidos, eventualmente empleando agentes tensioactivos, vale decir, emulgentes y/o agentes dispersantes y/o agentes espumantes. En caso de utilizarse el agua como diluyente pueden emplearse también, por ejemplo, disolventes orgánicos como disolventes auxiliares.

Entran en consideración esencialmente como disolventes líquidos: los hidrocarburos aromáticos, tales como el xileno, el tolueno, el benceno o los alquilnaftalenos; los hidrocarburos aromáticos o alifáticos clorados, tales como los clorobencenos, los cloroetilenos o el cloruro de metileno; los hidrocarburos alifáticos, tales como el ciclohexano o las parafinas, p. ej. las fracciones de petróleo; los alcoholes, tales como el butanol o el glicol, así como sus éteres y ésteres; las cetonas, tales como la acetona, la metiletilcetona, la metilisobutilcetona o la ciclohexanona; los disolventes fuertemente polares, tales como la dimetilformamida y el sulfóxido de dimetilo, así como, el agua. Entre los diluyentes o vehículos gaseosos licuados, entendiéndose como tales aquellos líquidos que a la temperatura normal y a la presión normal son gaseosos, por ejemplo los gases impelentes de aerosoles, tales como los hidrocarburos halogenados, así como el butano, el propano, el nitrógeno y el dióxido de carbono. Entre los vehículos

sólidos, harinas de minerales naturales, tales como los caolines, las arcillas, el talco, la creta, el cuarzo, la atapulguita, la montmorillonita o la tierra de diatomeas, y harinas de minerales sintéticos, tales como la sílice altamente dispersa, la alúmina y los silicatos. Entre los vehículos sólidos para granulados; las piedras naturales quebradas y fraccionadas, tales como la calcita, el mármol, la piedra pómez, la sepiolita, la dolomita, así como los granulados sintéticos de harinas inorgánicas y orgánicas, así como granulados de material orgánico, tales como los aserrines, cáscaras de cocos, mazorcas de maíz y tallos de tabaco. Entre los agentes emulsionantes, los emulgentes no ionógenos y aniónicos, tales como los ésteres de polioxietileno con ácidos grasos, los éteres de polioxietileno y alcoholes grasos, p. ej. los éteres alquilarilpoliglicólicos, los alquilsulfonatos, los alquilsulfatos, arilsulfonatos, así como los hidrolizados de proteínas y entre los agentes dispersantes, p. ej. las lejías de desecho de lignina-sulfito y la metilcelulosa.

En las formulaciones pueden emplearse agentes adherentes, tales como la carboximetilcelulosa, los polímeros en polvo, en granos o en forma de látices, naturales o sintéticos, tales como la goma arábiga, el alcohol polivinílico y el acetato de polivinilo.

Pueden emplearse colorantes tales como los pigmentos inorgánicos, p. ej. el óxido de hierro, el óxido de titanio, el azul de ferrocianuro, y colorantes orgánicos, tales como los de la alizarina y los azoicos de ftalocianina metálica, y micronu-

trientes, tales como las sales de hierro, manganeso, boro, cobre, cobalto, molibdeno y zinc.

Por lo general, las formulaciones contienen entre 0,1 y 95% en peso de sustancia activa, preferiblemente entre 0,5 y 90%.

5

Las sustancias activas según el invento pueden estar presentes en las formulaciones en mezcla con otras sustancias activas conocidas, tales como fungicidas, insecticidas, acaricidas, nematodocidas, herbicidas, sustancias protectoras contra las aves, promotores del crecimiento, sustancias nutricias para las plantas y acondicionadores del suelo.

10

Las sustancias activas pueden aplicarse como tales, como formulaciones o en formas de aplicación preparadas de éstas por mayor dilución, tales como soluciones, emulsiones, suspensiones, polvos, pastas y granulados, listos para el uso. La aplicación se efectúa en la forma usual, por ejemplo, por riego, aspersión, pulverización, espolvoreo, esparcido, redesinfección de semillas en seco, en mojado, en suspensión o por incrustación.

15

Cuando las sustancias activas se emplean como fungicidas y bactericidas para el tratamiento de las hojas, sus concentraciones en las formas de aplicación pueden variarse dentro de un margen amplio. Por lo general están entre 0,5 y 0,0005% en peso, preferiblemente entre 0,2 y 0,001%.

20

Para el tratamiento de semillas se necesitan generalmente cantidades de sustancia activa de 0,01 a 50g, prefe-

25



0,01 parte en peso de emulgente (alquil-aril-poliglicol-éter)

1,80 partes en peso de agua

---

2 partes en peso de mezcla disolvente.

5 Se mezcla la cantidad de sustancia activa necesaria para obtener la concentración deseada en el medio de cultivo, con la cantidad indicada de la mezcla disolvente. Se mezcla bien el concentrado, en la relación cuantitativa indicada, con el medio de cultivo líquido enfriado a 42°C, y la mezcla se vierte en cajas de Petri de 9 cm de diámetro. Además, se preparan las cajas testigo sin adición de la sustancia activa.

10

Una vez enfriado y sólido el medio de cultivo, las cajas se inoculan con las especies de hongos indicadas en la tabla y se incuban a aproximadamente 21°C.

15 La evaluación se efectúa al cabo de 4 a 10 días, según la velocidad del crecimiento de los hongos. En la evaluación se compara el crecimiento radial de los micelios sobre el medio de cultivo tratado con el crecimiento sobre el medio de cultivo testigo. La calificación del crecimiento de los hongos procede conforme a la siguiente escala:

- 20
- 1 no hay crecimiento del hongo
  - hasta 3 inhibición muy fuerte del crecimiento
  - hasta 5 inhibición mediana del crecimiento
  - hasta 7 inhibición débil del crecimiento
  - 9 crecimiento igual a aquél del testigo no tratado.

La evaluación del ensayo reveló que contra las especies de hongos *Sclerotinia sclerotiorum*, *Fusarium nivale*, *Colletotrichum coffeanum*, *Rhizoctonia solani*, *Verticillium alboatrum*, *Pyricularia oryzae*, *Helminthosporium gramineum*, *Mycosphaerella musicola*, *Phytophthora cactorum* y *Pellicularia sasakii* los compuestos según los ejemplos de preparación 1, 6, 7, 15, 14, 2, 3, 8 y 11, por ejemplo, tienen un efecto superior al de los compuestos conocidos por el estado de la técnica.

Ejemplo B.

10 Ensayo con *Pyricularia* / preparación líquida de sustancia activa  
Disolvente: 11,75 partes en peso de acetona  
Dispersante: 0,75 partes en peso de alquil-aril-poliglicol-éter  
Agua: 987,50 partes en peso.

15 Se mezcla la cantidad de sustancia activa necesaria para la concentración de la sustancia activa deseada en el líquido a rociar con la cantidad indicada del disolvente y del dispersante y se diluye el concentrado con la cantidad indicada de agua.

20 Se rocía el líquido sobre plantas de arroz de unos 14 días, hasta que goteen. Las plantas permanecen en un invernáculo a una temperatura de 22 a 24°C y a una humedad relativa del aire de aproximadamente 70% hasta que estén secas. Luego se inoculan con una suspensión acuosa de 100.000 a 200.000 esporos/ml de *Pyricularia oryzae* y se colocan en un ambiente a 24-26°C y una humedad relativa del aire del 100%.

25 Al cabo de 5 días a contar de la inocula-

ción se determina el ataque en todas las hojas existentes en el momento de la inoculación, en % del ataque en las plantas testigo no tratadas, pero también inoculadas.

La evaluación se hace con los índices 1 a 9, significando

5 1, 100% de efecto; 3, efecto bueno; 5, efecto moderado, y 9, ningún efecto.

La evaluación reveló que los compuestos según los ejemplos de preparación 1, 6, 7, 15, 14, 18, 2, 3, 8 y 11, por ejemplo, tienen un efecto superior al de los compuestos conocidos por el estado de la técnica.

10

Ejemplo C.

Ensayo con *Phytophthora* (tomates) efecto protector.

Disolvente: 4, 7 partes en peso de acetona

Emulgente: 0, 3 partes en peso de alquil-aril-piglicol-éter

15 Agua: 95 partes en peso.

Se mezcla la cantidad de sustancia activa necesaria para la concentración deseada en el caldo rociable con la cantidad indicada del disolvente y se diluye el concentrado con la cantidad indicada de agua.

20

Con el caldo rociable se rocían plantas jóvenes de tomate con 2 a 4 hojas de follaje hasta formación de gotas. Las plantas permanecen durante 24 horas en un invernáculo a 20°C y a una humedad relativa del aire del 70%. Subsiguientemente se inoculan las plantas de tomate con una suspensión acuosa de esporos de

25 *Phytophthora infestans*. Entonces se llevan las plantas a una cámara

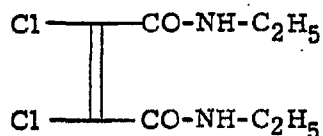
húmeda con una humedad relativa del aire del 100% y una temperatura de 18 a 20°C.

5 Al cabo de 5 días, se determina el ataque en las plantas de tomate. Las calificaciones obtenidas se calculan en % de ataque. 0% significa que no hubo ataque, y 100%, que las plantas estaban atacadas totalmente.

10 La evaluación del ensayo reveló que los compuestos según los ejemplos de preparación 6, 15, 2, 10, 8, 16, 17 y 11, p.ej. tienen un efecto superior al de los compuestos conocidos por el estado de la técnica.

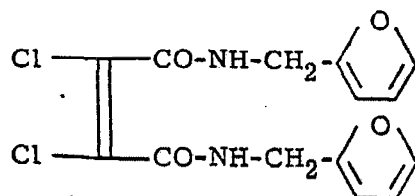
Ejemplos de preparación

Ejemplo 1.



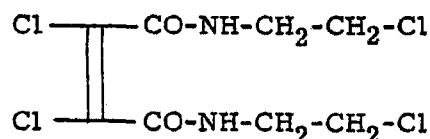
15 10,0 g (45,1 moles) de tetracloro-5-furan-2-ona ("dicloruro del ácido dicloromaleico") se introducen, lentamente, con fuerte agitación y a la temperatura ambiente, en 40 ml de una solución de etilamina al 25%. El producto que precipita se filtra al vacío y se seca. Se obtienen 8,7 g de bis-dietilamida del ácido dicloromaleico, de p. fus. 154-155°C. El rendimiento es del 81% del teórico.

20 Ejemplo 2.



22,2 g (0,1 mol) de dicloruro de ácido dicloromaleico se introducen, lentamente, agitando fuertemente y a la temperatura ambiente; en una mezcla de 20,2 g (0,2 mol) de trietil-  
amina y 19,4 g (0,2 mol) de furfurilamina en 200ml de acetona.  
La mezcla de la reacción se vierte sobre 1000 ml de agua, el producto que precipita se filtra al vacío y se seca. Se obtienen 29,0 g de bis-furfuril-  
amida del ácido dicloromaleico, de p.fus. 149°C. El rendimiento es del 85% del teórico.


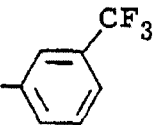
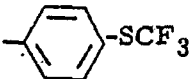
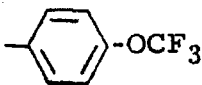
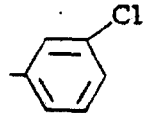
10 Ejemplo 3.



A 40,1 g (0,4 mol) de hidrocioruro de 2-cloroetilamina disueltos en 150 ml de agua, se agregan 160g (0,1 mol) de hidróxido de sodio al 10%, y luego se introducen lentamente y a la temperatura ambiente, 22,2 g (0,1 mol) de dicloruro del ácido dicloro-  
maleico. El producto que precipita, se filtra al vacío y se seca. Se obtienen 19,7 g de bis-(2-cloroetil)-amida del ácido dicloromaleico, de p.fus. 107-110°C, esto es, un 64% de la teoría.

En forma análoga a la de los ejemplos



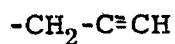
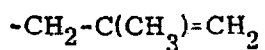
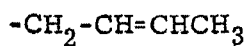
Ejem- plo No.	R	p. fus. (°C)
14		185
15		147 - 149
16		138 - 140
17		146
18		178

En forma similar pueden prepararse también los siguientes compuestos de fórmula (I), en la cual

R tiene los significados indicados a continuación:

5

R

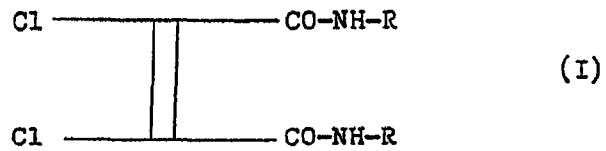


10

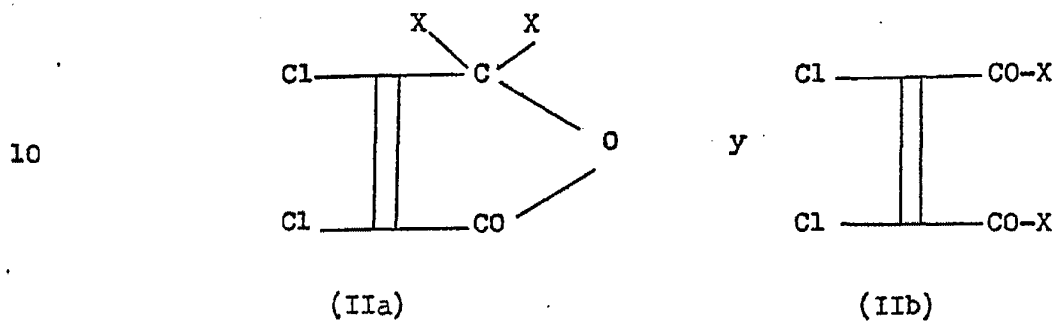
Descrita suficientemente la naturaleza del invento; así como la manera de realizarse en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental.

REIVINDICACIONES

1.- Procedimiento para preparar derivados de la diamina del ácido dicloromaleico, de fórmula general:



5 en la cual R representa un resto alifático eventualmente sustituido de hasta 8 átomos de carbono, un resto cicloalquilo de 3 a 6 átomos de carbono o un resto fenilo sustituido; caracterizado porque se hacen reaccionar halogenuros del ácido dicloromaleico, de fórmulas:



en las cuales X representa halógeno, con una amina de fórmula general



15 en la cual R tiene los significados arriba indicados, en un diluyente y en presencia de un ligador de ácidos.

2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque la reacción se lleva a cabo a una tempera-

tura comprendida entre -5 y +150°C.

3.- Procedimiento según las reivindicaciones  
1 y 2, caracterizado porque la reacción se lleva a cabo presen-  
tando la amina a acilar en el recipiente de reacción y agregando  
5 luego el halogenuro del ácido dicloromaleico.

4.- Procedimiento para preparar derivados de la  
diamina del ácido dicloromaleico, tal y como queda sustancialmente  
descrito en la presente Memoria.

Esta Memoria consta de 21 hojas escritas a  
10 máquina por una sola cara.

Madrid, 22 FEB. 1979

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT.

J. M. GOMEZ AGES Y FOMBO

v. p. Firmado J. Suarez 