

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 447 416**

51 Int. Cl.:

A01P 13/00 (2006.01)

A01N 43/54 (2006.01)

A01N 57/20 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **26.04.2002 E 02720617 (6)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **12.02.2014 EP 1430775**

54 Título: **Composición herbicida**

30 Prioridad:

28.09.2001 JP 2001300861

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

12.03.2014

73 Titular/es:

**SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED
(100.0%)
27-1, Shinkawa 2-chome, Chuo-ku
Tokyo 104-8260, JP**

72 Inventor/es:

**MITO, NOBUAKI y
SHIBUYA, SHINSUKE**

74 Agente/Representante:

UNGRÍA LÓPEZ, Javier

ES 2 447 416 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Composición herbicida

5 **Campo técnico**

La presente invención se relaciona con una composición herbicida, en particular con una composición herbicida adecuada para controlar las malas hierbas en huertos, campos de maíz, campos de soja, campos de algodón y terrenos no cultivados.

10

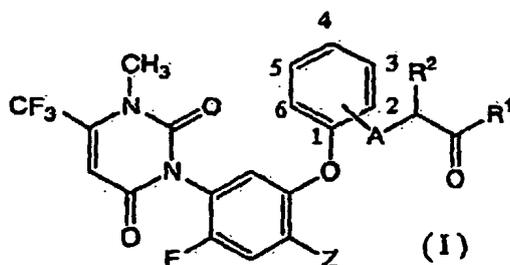
Técnica anterior

Aunque actualmente están comercializados y se utilizan numerosos herbicidas, las malas hierbas que han de ser controladas son variables en cuanto a tipo y continúan apareciendo a largo plazo. Existe una demanda de herbicidas con una mayor actividad y un más amplio espectro frente a las malas hierbas y que no presenten un problema de fitotoxicidad sobre los cultivos. WO 96/07323 divulga combinaciones de herbicidas a base de organofosfatos y uracilo.

15

20 **Descripción de la invención**

Como resultado de amplios estudios realizados para encontrar un herbicida que fuera excelente, los presentes inventores han descubierto que el uso combinado de un compuesto de uracilo (al que en adelante se hará aquí referencia como el presente compuesto de uracilo) representado por la siguiente fórmula (I):



25

donde Z representa un átomo de halógeno o ciano, A representa un átomo de oxígeno, R¹ representa alcoxi C₁-C₇ y R² representa un átomo de hidrógeno o metilo, y uno o más compuestos organofosforados seleccionados entre el grupo consistente en una N-(fosfonometil)glicina (nombre genérico: glifosato; en adelante se le hará aquí referencia como Glifosato), sales aceptables desde el punto de vista agrícola del Glifosato y DL-homoalanin-4-il(metil)fosfinato de amonio (nombre genérico: glufosinato-amonio, al que en adelante se hará aquí referencia como Glufosinato-Amonio) puede controlar de manera eficaz diversas malas hierbas, y que el efecto herbicida con el uso combinado aumenta sinérgicamente cuando se compara con sus usos individuales, y de este modo completaron la presente invención. Cuando se usa una composición que comprende el presente compuesto de uracilo y uno o más compuestos organofosforados seleccionados entre el grupo consistente en Glifosato, sales aceptables desde el punto de vista agrícola del Glifosato y Glufosinato-Amonio como herbicida, se puede realizar la aplicación a una dosis más baja, se puede ampliar el espectro herbicida y, en particular, se puede controlar una amplia variedad de malas hierbas en huertos, campos de maíz, campos de soja y campos de algodón.

30

35

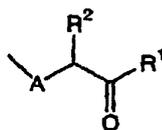
40

Por lo tanto, la invención proporciona:

1. una composición herbicida (a la que en adelante se hará aquí referencia como la presente composición) que comprende, como principios activos, el presente compuesto de uracilo y uno o más compuestos organofosforados (a los que en adelante se hará aquí referencia como el presente compuesto organofosforado) seleccionado entre el grupo consistente en Glifosato, sales aceptables desde el punto de vista agrícola del Glifosato y Glufosinato-Amonio;
3. la composición herbicida según el anterior punto 1, donde, en el presente compuesto de uracilo, el sustituyente representado por la siguiente fórmula:

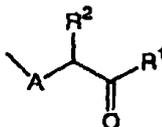
45

50



donde R^1 , R^2 y A tienen los mismos significados que antes, se une a la posición 2 como se define en la fórmula (I);

- 5
4. la composición herbicida según el anterior punto 1, donde, en el presente compuesto de uracilo, el sustituyente representado por la siguiente fórmula:



- 10
donde R^1 , R^2 y A representan el mismo significado que antes, se une a la posición 3 o a la posición 4 como se define en la fórmula (I);

- 15
5. la composición herbicida según el anterior punto 1, donde, en el presente compuesto de uracilo, Z es un átomo de halógeno y R^2 es un átomo de hidrógeno;

6. la composición herbicida según el anterior punto 1, donde, en el presente compuesto de uracilo, Z es ciano;

7. la composición herbicida según el anterior punto 1, donde la razón de mezcla del presente compuesto de uracilo con respecto al presente compuesto organofosforado es de 1:1 a 1:500 en peso;

- 20
8. un método para controlar las malas hierbas (al que en adelante se hará aquí referencia como el presente método), que comprende la aplicación de cantidades efectivas del presente compuesto de uracilo y del presente compuesto organofosforado a las malas hierbas;

9. el método para controlar las malas hierbas según el anterior punto 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en un huerto;

- 25
10. el método para controlar las malas hierbas según el anterior punto 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en un campo de maíz;

11. el método para controlar las malas hierbas según el anterior punto 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en un campo de soja;

- 30
12. el método para controlar las malas hierbas según el anterior punto 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en un campo de algodón;

13. el método para controlar las malas hierbas según el anterior punto 8, donde las malas hierbas son malas hierbas en un terreno no cultivado;

14. un uso de una composición que comprende el presente compuesto de uracilo y el presente compuesto organofosforado como herbicida;

- 35
15. el uso según el anterior punto 14, donde el herbicida es un herbicida para un huerto;

16. el uso según el anterior punto 14, donde el herbicida es un herbicida para un campo de maíz;

17. el uso según el anterior punto 14, donde el herbicida es un herbicida para un campo de soja;

18. el uso según el anterior punto 14, donde el herbicida es un herbicida para un campo de algodón;

- 40
19. el uso según el anterior punto 14, donde el herbicida es un herbicida para un terreno no cultivado.

En la presente invención, un átomo de halógeno representado por Z en la fórmula (I) significa un átomo de flúor, un átomo de cloro, un átomo de bromo o un átomo de yodo; el alcoxi C_1 - C_7 representado por R^1 incluye metoxi, etoxi, propoxi, isopropoxi, butoxi, 1-metilpropoxi, 2-metilpropoxi, pentiloxi, 1-metilbutoxi, 2-metilbutoxi, 3-metilbutoxi, 2,2-dimetilpropoxi, hexiloxi, 1-metilpentiloxi, 2-metilpentiloxi, 3-metilpentiloxi, 4-metilpentiloxi, 1,2-dimetilbutoxi, 1,3-dimetilbutoxi, 2,3-dimetilbutoxi, 3,3-dimetilbutoxi, heptiloxi y similares.

El Glifosato, las sales aceptables desde el punto de vista agrícola del Glifosato y el Glufosinato-Amonio son compuestos descritos en FARM CHEMICALS HANDBOOK 2001 (publicado por MEISTER PUBLISHING COMPANY en 2001), páginas C211, C211 y C210, respectivamente, y pueden ser preparados por procedimientos conocidos; dichos compuestos o sus formulaciones están comercializados. Sales aceptables desde el punto de vista agrícola del Glifosato significa sales tales como sal de amonio, sal de trimesio, sal de isopropilamina, sal de sodio, sal de potasio, sal de dimetilamina y similares del Glifosato.

55
La presente composición es excelente como herbicida, ya que tiene una actividad herbicida frente a una amplia variedad de malas hierbas, y exhibe una excelente actividad herbicida en tierras de cultivo ordinarias, tales como

- campos de cultivo arados, campos de cultivo no arados, huertos y similares, y terrenos no cultivados, tales como campos deportivos, terrenos desocupados, terrenos forestales, laterales de vías férreas y similares. La presente composición es particularmente efectiva en el control de una amplia variedad de malas hierbas que emergen en huertos, y no causa problemas de fitotoxicidad en árboles frutales. Además, la presente composición es particularmente efectiva en el control de una amplia variedad de malas hierbas que emergen en campos de maíz, campos de soja y campos de algodón desde el invierno hasta la primavera antes de la siembra del maíz, de la soja o del algodón, y no causa problemas de fitotoxicidad en el maíz, la soja o el algodón sembrados tras el tratamiento.
- La presente composición tiene una actividad herbicida especialmente frente a diversas malas hierbas, enumeradas a continuación, que causan problemas en huertos, campos de maíz, campos de soja, campos de algodón, terrenos no cultivados y similares.
- Malas hierbas de la familia Polygonaceae: polígono trepador (*Polygonum convolvulus*), hierba pejiquera (*Polygonum lapathifolium*), polígono de Pennsylvania (*Polygonum pennsylvanicum*), persicaria (*Polygonum persicaria*), acedera (*Rumex crispus*), romaza (*Rumex obtusifolius*), centinodia japonesa (*Polygonum cuspidatum*).
- Malas hierbas de la familia Portulacaceae: verdolaga (*Portulaca oleracea*).
- Malas hierbas de la familia Caryophyllaceae: pamplina (*Stellaria media*).
- Malas hierbas de la familia Chenopodiaceae: cenizo (*Chenopodium album*), ciprés de verano (*Kochia scoparia*).
- Malas hierbas de la familia Amaranthaceae: bleado (*Amaranthus retroflexus*), quelite (*Amaranthus hybridus*).
- Malas hierbas de la familia Cruciferae: rábano silvestre (*Raphanus raphanistrum*), mostaza de campo (*Sinapis arvensis*), bolsa de pastor (*Capsella bursa-pastoris*).
- Malas hierbas de la familia Leguminosae: sesbania (*Sesbania exaltata*), sen (*Cassia obtusifolia*), cadillo (*Desmodium tortuosum*), trébol blanco (*Trifolium repens*).
- Malas hierbas de la familia Malvaceae: yute de la China (*Abutilon theophrasti*), malva de caballo (*Sida spinosa*).
- Malas hierbas de la familia Violaceae: pensamiento silvestre (*Viola arvensis*), pensamiento salvaje (*Viola tricolor*).
- Malas hierbas de la familia Rubiaceae: amor de hortelano (*Galium aparine*).
- Malas hierbas de la familia Convolvulaceae: trompillo (*Ipomoea hederacea*), dondiego de día (*Ipomoea purpurea*), dondiego de día de hoja entera (*Ipomoea hederacea* var. *integriuscula*), campanilla (*Ipomoea lacunosa*), correhuela (*Convolvulus arvensis*).
- Malas hierbas de la familia Labiatae: ortiga roja (*Lamium purpureum*), ortiga mansa (*Lamium amplexicaule*).
- Malas hierbas de la familia Solanaceae: estramonio (*Datura stramonium*), hierba mora (*Solanum nigrum*).
- Malas hierbas de la familia Scrophulariaceae: hierba gallinera (*Veronica persica*), corregüela (*Veronica hederaefolia*).
- Malas hierbas de la familia Compositae: cadillo común (*Xanthium pensylvanicum*), girasol (*Helianthus annuus*), manzanilla inodora (*Matricaria perforata* o *inodora*), corona de rey (*Chrysanthemum segetum*), amagarza (*Matricaria matricarioides*), ambrosía común (*Ambrosia artemisiifolia*), ambrosía gigante (*Ambrosia trifida*), erigero del Canadá (*Erigeron canadensis*), artemisia del Japón (*Artemisia princeps*), vara de oro alta (*Solidago altissima*).
- Malas hierbas de la familia Boraginaceae: nomeolvides (*Myosotis arvensis*).
- Malas hierbas de la familia Asclepiadaceae: algodoncillo (*Asclepias syriaca*).
- Malas hierbas de la familia Euphorbiaceae: lecherula (*Euphorbia helioscopia*), hierba de la golondrina (*Euphorbia maculata*).
- Malas hierbas de la familia Gramineae: pata de gallo (*Echinochloa crus-galli*), almorejo (*Setaria viridis*), almorejo gigante (*Setaria faberi*), garranchuelo (*Digitaria sanguinalis*), pata de gallina (*Eleusine indica*), poa anual (*Poa annua*), cola de zorra (*Alopecurus myosuroides*), avena loca (*Avena fatua*), cañota (*Sorghum halepense*), grama de las boticas (*Agropyron repens*), espiguilla colgante (*Bromus tectorum*), grama común (*Cynodone dactylon*), falso mijo (*Panicum dichotomiflorum*), panizo texano (*Panicum texanum*), sorgo (*Sorghum vulgare*), brachiaria (*Brachiaria*

platyphylla).

Malas hierbas de la familia Commelinaceae: flor de día asiática (*Commelina communis*).

5 Malas hierbas de la familia Equisetaceae: cola de caballo (*Equisetum arvense*).

Malas hierbas de la familia Cyperaceae: juncia de tierras bajas (*Cyperus iria*), juncia real (*Cyperus rotundus*), juncia avellanada (*Cyperus esculentus*).

10 En la presente composición, la razón de mezcla del compuesto de uracilo con respecto al presente compuesto organofosforado puede variar dependiendo del tipo de malas hierbas abordado, del lugar de aplicación, de las condiciones de aplicación y de factores similares, y normalmente es una razón que muestra un efecto sinérgico, específicamente de 1:0,1 a 1:500, preferiblemente de 1:1 a 1:500 y más preferiblemente de 1:2 a 1:200.

15 La presente composición puede contener otros ingredientes además del presente compuesto de uracilo y del presente compuesto organofosforado. La presente composición está normalmente en forma de una formulación, tal como una emulsión, un polvo humectable, una suspensión, un gránulo y similares, que se obtiene mezclando el presente compuesto de uracilo y el presente compuesto organofosforado como principios activos junto con un soporte sólido, un soporte líquido o similar, y, de ser necesario, añadiendo un surfactante, otros auxiliares de formulación y similares. Estas formulaciones contienen normalmente de un 0,5 a un 90% en peso, preferiblemente de un 1 a un 80% en peso, en total del presente compuesto de uracilo y el presente compuesto organofosforado.

25 En la formulación, como soportes sólidos utilizables se incluyen, por ejemplo, polvos finos y gránulos, tales como arcillas (caolinita, tierra de diatomeas, óxido de silicio hidratado sintético, arcilla de Fubasami, bentonita, arcilla ácida y similares), talco, otros minerales inorgánicos (sericita, polvo de cuarzo, polvo de azufre, carbón activado, carbonato de calcio y similares), fertilizantes químicos (sulfato de amonio, fosfato de amonio, nitrato de amonio, cloruro de amonio, urea y similares), etc.; y como soportes líquidos se incluyen, por ejemplo, agua, alcoholes (metanol, etanol y similares), cetonas (acetona, metiletilcetona, ciclohexanona y similares), hidrocarburos aromáticos (tolueno, xileno, etilbenceno, metilnaftaleno y similares), hidrocarburos no aromáticos (hexano, ciclohexano, queroseno y similares), ésteres (acetato de etilo, acetato de butilo y similares), nitrilos (acetonitrilo, isobutironitrilo y similares), éteres (dioxano, éter diisopropílico y similares), amidas de ácidos (dimetilformamida, dimetilacetamida y similares), hidrocarburos halogenados (dicloroetano, tricloroetileno y similares), etc.

35 Como surfactantes, se incluyen, por ejemplo, ésteres de alquilsulfatos, sales de alquilsulfonatos, sales de alquilarilsulfonatos, alquil aril éteres y sus compuestos de polioxietileno, éteres de polioxietilenglicol, ésteres de alcoholes polihídricos, derivados de alcoholes de azúcares y similares.

40 Otros auxiliares de formulación incluyen, por ejemplo, agentes adherentes y agentes dispersantes, tales como caseína, gelatina, polisacáridos (almidón, goma arábiga, derivados de celulosa, ácido alginico y similares), derivados de lignina, bentonita, moléculas de alto peso molecular hidrosolubles sintéticas (alcohol polivinílico, polivinilpirrolidona, ácido poliacrílico y similares) y similares; y agentes estabilizantes, tales como PAP (fosfato ácido de isopropilo), BHT (2,6-terc-butil-4-metilfenol), BHA (2-/3-terc-butil-4-metoxifenol), aceites vegetales, aceites minerales, ácidos grasos, ésteres de ácidos grasos y similares.

45 La presente composición puede ser también obtenida formulando por separado el presente compuesto de uracilo y el presente compuesto organofosforado como principios activos según el procedimiento de formulación antes descrito y mezclando luego ambas formulaciones.

50 La presente composición es aplicada tal cual o, si es necesario, tras dilución sobre las hojas y los tallos de las malas hierbas. A veces, se puede esperar una potenciación de la actividad herbicida utilizando la presente composición con otro herbicida. Además, se puede usar simultáneamente junto con un insecticida, un fungicida, un regulador del crecimiento de las plantas, un agente reductor de la fitotoxicidad (asegurador) y similares.

55 La cantidad de la presente composición que se ha de aplicar puede variar dependiendo de la razón de mezcla del presente compuesto de uracilo con respecto al presente compuesto organofosforado como principios activos, de las condiciones meteorológicas, de las formas de formulación, del tiempo de aplicación, del método de aplicación, del lugar de aplicación, del tipo de mala hierba que se ha de controlar, del tipo de cultivo que se ha de proteger y similares; la cantidad total del presente compuesto de uracilo y del presente compuesto organofosforado por hectárea es normalmente de 10 g a 8.000 g, preferiblemente de 100 g a 4.000 g. Se aplican emulsiones, polvos humectables, suspensiones y similares de la presente composición en una cantidad predeterminada, normalmente diluida con 100 a 1.000 litros de agua por hectárea. Se puede esperar la potenciación del efecto sobre las malas hierbas añadiendo adyuvante al diluyente acuoso.

60

El presente método es normalmente llevado a cabo aplicando una cantidad efectiva de la presente composición a las malas hierbas; también se puede llevar a cabo aplicando cantidades efectivas del presente compuesto de uracilo y del presente compuesto organofosforado independientemente, pero en la misma etapa, según la cantidad antes descrita, el modo de utilización y similares.

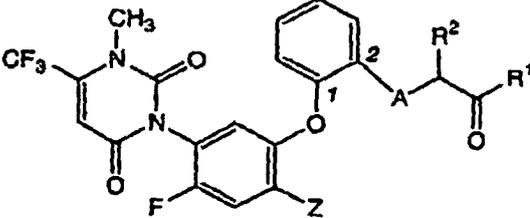
5

Se describen específicamente a continuación algunos ejemplos del presente compuesto de uracilo.

Compuestos representados por la fórmula (I-a):

10

Tabla 1



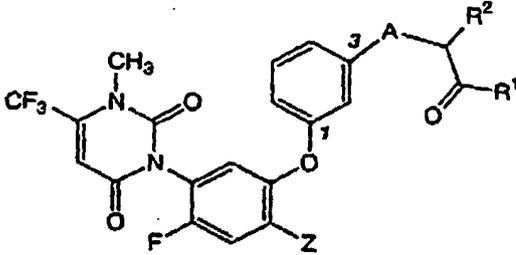
(I - a)

Compuesto N°	A	Z	R ²	R ¹
A-1	O	Cl	H	OCH ₃
A-2	O	Cl	H	OC ₂ H ₅
A-3	O	Cl	CH ₃	OCH ₃
A-4	O	Cl	CH ₃	OC ₂ H ₅
A-5	O	CN	H	OCH ₃
A-6	O	CN	CH ₃	OC ₂ H ₅
A-7	O	Br	H	OCH ₃

Compuestos representados por la fórmula (I-b):

15

Tabla 2

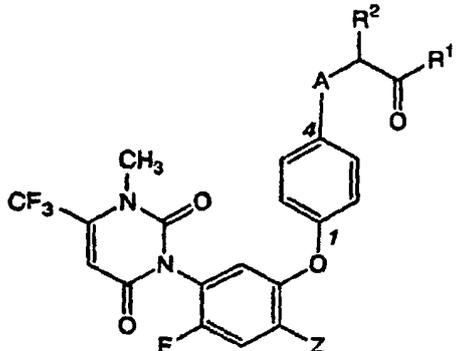


(I - b)

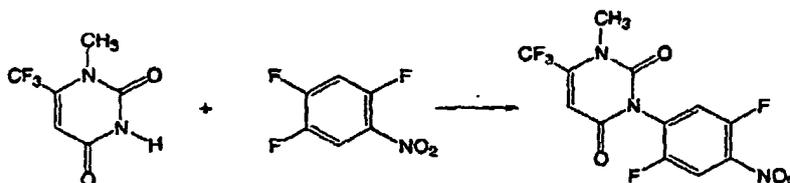
Compuesto N°	A	Z	R ²	R ¹
B-1	O	Cl	H	OCH ₃
B-2	O	Cl	CH ₃	OCH ₃
B-3	O	CN	H	OCH ₃
B-4	O	CN	CH ₃	OCH ₃

Compuestos representados por la fórmula (I-c):

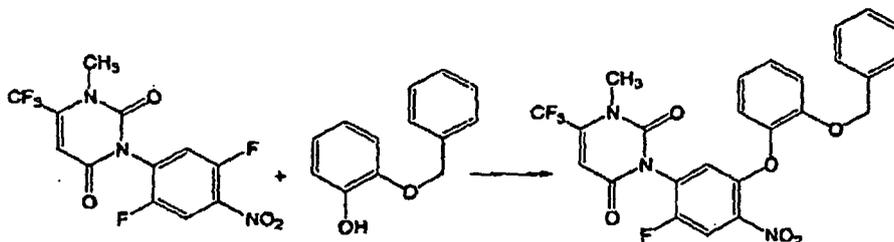
Tabla 3

				
Compuesto N°	A	Z	R ²	R ¹
C-1	O	Cl	H	OCH ₃
C-2	O	Cl	CH ₃	OCH ₃
C-3	O	CN	H	OCH ₃
C-4	O	CN	CH ₃	OC ₂ H ₅

5 Los presentes compuestos de uracilo pueden ser producidos, por ejemplo, según el procedimiento descrito en EP 1.106.607. Por ejemplo, se puede producir el Compuesto A-3 mediante el siguiente procedimiento:



10 En 10 ml de sulfóxido de dimetilo, se disolvieron 1,77 g de 2,4,5-trifluoronitrobenzene y 1,94 g de 3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidina. Después de añadir 1,52 g de carbonato de potasio anhidro a temperatura ambiente, se agitó la mezcla a 80°C durante 1 hora. Se enfrió la solución de reacción hasta la temperatura ambiente y se vertió entonces la solución en agua helada y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 1,51 g de 2,5-difluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobenzene. Pf: 150°C.

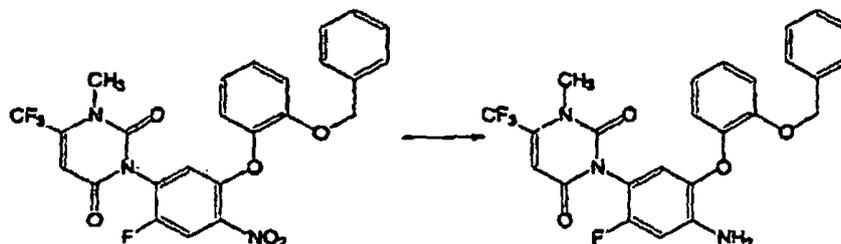


20 Se añadió gota a gota una mezcla de 4,05 g de 2-benciloxifenol y 9,5 ml de N,N-dimetilformamida a una mezcla de 0,80 g de hidruro de sodio y 20 ml de N,N-dimetilformamida enfriando con hielo y se agitó la mezcla durante 30 minutos. Se añadió gota a gota una mezcla de 7,1 g de 2,5-difluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobenzene y 17 ml de N,N-dimetilformamida a la misma temperatura y se agitó la mezcla durante 1 hora. Se vertió la solución de reacción en agua helada y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica sucesivamente una vez con HCl 1N y una vez con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo a cromatografía en columna de gel de

silice, para obtener 8,6 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobencono.

$^1\text{H-RMN}$ ($\text{CDCl}_3/250$ MHz), δ (ppm): 3,52 (c, 3H, J=1,1Hz), 5,01 (s,2H), 6,31 (s,1H), 6,81 (d,1H,J=6,0Hz), 6,9-7,1 (m,2H), 7,1-7,4 (m,7H), 7,78 (d,1H,J=8,7Hz).

5

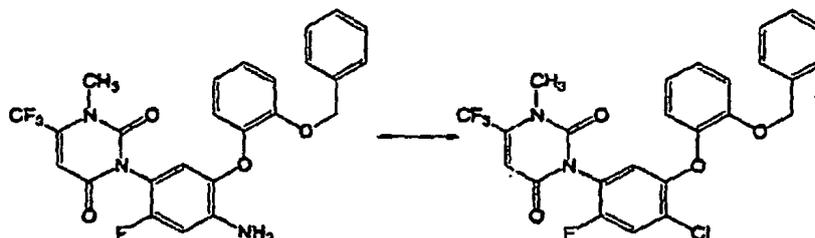


A una mezcla de 8,6 g de polvo de hierro, 27 ml de ácido acético y 2,7 ml de agua, se le añadió gota a gota una solución de 8,6 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]nitrobencono en 23 ml de ácido acético mientras se mantenía la temperatura de la solución de reacción a 35°C o menos. Después de finalizar la adición, se continuó agitando durante 2 horas y se filtró después la solución de reacción a través de Celite y se diluyó con acetato de etilo. Se neutralizó la mezcla con una solución acuosa saturada de hidrógeno carbonato de sodio y se lavó la capa orgánica con una solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo obtenido a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 6,46 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]anilina.

10

15

$^1\text{H-RMN}$ ($\text{CDCl}_3/250$ MHz), δ (ppm): 3,50 (c,3H,J=1,2Hz), 5,06 (s,2H), 6,29 (s,1H), 6,57 (dd,1H,J=8,5,1,6Hz), 6,9-7,0 (m,1H), 7,0-7,1 (m,3H), 7,2-7,4 (m,6H).



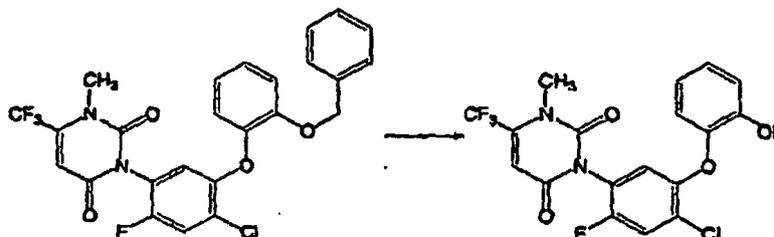
20

A una mezcla de 6,46 g de 2-(2-benciloxifenoxi)-5-fluoro-4-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]anilina, 2,45 g de cloruro de cobre (I), 5,04 g de cloruro de cobre (II) y 90 ml de acetonitrilo, se le añadieron gota a gota 4,46 g de nitrito de isoamilo a temperatura ambiente y se agitó la mezcla durante 1 hora. Se vertió la solución de reacción en ácido clorhídrico al 2% y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica con solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo obtenido a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 4,6 g de ([2-{2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi}fenoxi]metil)bencono.

25

30

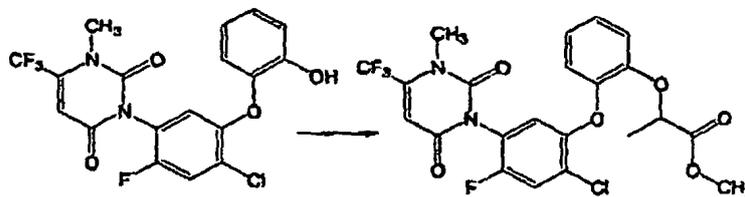
Pf: 50,8°C.



A 4,5 g de ([2-{2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi}fenoxi]metil)bencono, se les añadieron 230 ml de acetato de etilo y 0,46 g de paladio al 10% sobre carbono, y se agitó la mezcla bajo una atmósfera de hidrógeno a temperatura ambiente durante 5 horas. Después de reemplazar el sistema de reacción por nitrógeno, se filtró la solución de reacción a través de Celite y se concentró el

35

filtrado, para obtener 3,57 g de 2-[2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi]fenol.
Pf: 55,4°C.



5

En 6 ml de N,N-dimetilformamida, se disolvieron 0,23 g de 2-[2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi]fenol. Después de añadir 0,22 g de carbonato de potasio anhidro, se añadieron 0,13 g de 2-bromopropionato de metilo a temperatura ambiente con agitación y se agitó luego la mezcla a 80°C durante 3 horas. Después de enfriar la solución de reacción hasta la temperatura ambiente, se vertió la solución de reacción en agua helada y se extrajo con acetato de etilo. Se lavó la capa orgánica con solución acuosa saturada de cloruro de sodio, se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y se concentró. Se sometió el residuo a cromatografía en columna de gel de sílice, para obtener 0,23 g de 2-[2-[2-cloro-4-fluoro-5-[3-metil-2,6-dioxo-4-(trifluorometil)-1,2,3,6-tetrahidropirimidin-1-il]fenoxi]fenoxi]propionato de metilo [Compuesto A-3].

¹H-RMN (CDCl₃/250 MHz) δ (ppm): 1,47 (d,3H,J=6,8Hz), 3,50 (c,3H,J=0,7Hz), 3,6-3,8 (m,3H), 4,6-4,8 (m,1H), 6,28 (s,1H), 6,7-6,8 (m,1H), 6,8-6,9 (m,1H), 6,9-7,1 (m,1H), 7,1-7,2 (m,2H), 7,3-7,4 (m,1H).

A continuación, se muestran ejemplos de formulación. En los siguientes ejemplos de formulación y ejemplos de ensayo, los compuestos representados por números de compuesto son los compuestos de las Tablas 1 a 3 y partes significa partes en peso.

20

Ejemplo de formulación 1

Cada uno de los polvos humectables es obtenido pulverizando suficientemente y mezclando 2 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 80 partes de Glifosato o de una sal de amonio aceptable desde el punto de vista agrícola del Glifosato, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 13 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

25

Ejemplo de formulación 2

Cada uno de los polvos humectables es obtenido pulverizando suficientemente y mezclando 0,5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 80 partes de Glifosato o de una sal de amonio aceptable desde el punto de vista agrícola del Glifosato, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 14,5 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

30

35

Ejemplo de formulación 3

Cada uno de los polvos humectables es obtenido pulverizando suficientemente y mezclando 10 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, Glifosato o una sal de amonio aceptable desde el punto de vista agrícola del Glifosato, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 45 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

40

Ejemplo de formulación 4

Cada uno de los polvos humectables es obtenido pulverizando suficientemente y mezclando 4 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 80 partes de Glufosinato-Amonio, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 11 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

45

Ejemplo de formulación 5

Cada uno de los polvos humectables es obtenido pulverizando suficientemente y mezclando 0,5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 80 partes de Glufosinato-Amonio, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 14,5 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

50

55

Ejemplo de formulación 6

5 Cada uno de los polvos humectables es obtenido pulverizando suficientemente y mezclando 10 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Glufosinato-Amonio, 3 partes de ligninsulfonato de calcio, 2 partes de laurilsulfato de sodio y 45 partes de óxido de silicio hidratado sintético.

Ejemplo de formulación 7

10 Cada una de las suspensiones es obtenida triturando en húmedo 1 parte de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Glifosato o de una sal de amonio aceptable desde el punto de vista agrícola del Glifosato, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 53 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

15

Ejemplo de formulación 8

20 Cada una de las suspensiones es obtenida triturando en húmedo 0,25 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Glifosato o de una sal de amonio aceptable desde el punto de vista agrícola del Glifosato, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 53,75 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

Ejemplo de formulación 9

25 Cada una de las suspensiones es obtenida triturando en húmedo 5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 20 partes de Glifosato o de una sal de amonio aceptable desde el punto de vista agrícola del Glifosato, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 69 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

30

Ejemplo de formulación 10

35 Cada una de las suspensiones es obtenida triturando en húmedo 1 parte de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Glufosinato-Amonio, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 53 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

Ejemplo de formulación 11

40 Cada una de las suspensiones es obtenida triturando en húmedo 0,25 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 40 partes de Glufosinato-Amonio, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 53,75 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

45

Ejemplo de formulación 12

50 Cada una de las suspensiones es obtenida triturando en húmedo 5 partes de Compuesto A-1, A-2, A-3, A-4, A-5, A-6, A-7, B-1, B-2, B-3, B-4, C-1, C-2, C-3 o C-4, 20 partes de Glufosinato-Amonio, 3 partes de monooleato de polioxietilensorbitán, 3 partes de CMC (carboximetilcelulosa) y 69 partes de agua y triturando en húmedo hasta que el tamaño de partícula es de 5 micras o inferior.

A continuación, se muestran ejemplos de ensayo.

55 Criterios de evaluación:

60 La evaluación de la actividad herbicida se divide en 11 niveles y se muestra mediante 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 ó 10, donde se consideró un nivel de "0" cuando no se observó ninguna o casi ninguna diferencia entre el comportamiento de crecimiento de una mala hierba de ensayo en el momento de la observación y el de una mala hierba no tratada, y se consideró un nivel de "10" cuando una mala hierba de ensayo murió por completo o cuando su crecimiento resultó completamente inhibido. Se mostró la evaluación de la fitotoxicidad frente a un cultivo mediante "no" cuando prácticamente no se observó fitotoxicidad, "baja" cuando se observó un nivel bajo de fitotoxicidad, "media" cuando se observó un nivel medio de fitotoxicidad y "alta" cuando se observó un nivel alto de fitotoxicidad.

Ejemplo de ensayo 1

Se llenó una maceta de plástico de 11 cm de diámetro y 8 cm de profundidad con tierra de siembra. Se enterró un tubérculo de juncia avellanada y se cultivó en un invernadero durante 28 días.

Se preparó una emulsión de Compuesto A-1 mezclando suficientemente 5 partes de Compuesto A-1, 6 partes de Sorpol 3005X (surfactante, producido por Toho Chemical) y 89 partes de xileno.

Se diluyeron cada uno de los siguientes

- (a) uso único de una emulsión de Compuesto A-1,
- (b) uso único de una solución de sal de isopropilamina del Glifosato (denominación comercial: Roundup, producida por Nippon Monsanto, que contiene un 41% de sal de isopropilamina del Glifosato),
- (c) uso único de una solución de Glufosinato-Amonio (denominación comercial: Basta, producida por Hoechst Schering AgrEvo GmbH, que contiene un 18,5% de Glufosinato-Amonio),
- (d) una composición mixta de una emulsión de Compuesto A-1 y una solución de sal de isopropilamina del Glifosato y
- (e) una composición mixta de una emulsión de Compuesto A-1 y una solución de Glufosinato-Amonio

con agua que contenía un 1% de Agri-dex (producido por Helena). Se pulverizaron uniformemente las diluciones respectivas desde arriba sobre el follaje de la juncia avellanada cultivada como se ha descrito anteriormente con un pequeño pulverizador, de tal forma que las cantidades de los principios activos fueran las cantidades mostradas en la Tabla 4. Inmediatamente después del tratamiento con los compuestos de ensayo, se sembraron semillas de maíz, soja y algodón.

Después del tratamiento, se cultivaron en un invernadero durante 5 días y se evaluó el efecto frente a las malas hierbas. Además, después de 14 días de tratamiento, se evaluó la fitotoxicidad para el maíz, la soja y el algodón. En la Tabla 4 se muestran los resultados.

Tabla 4

Compuesto de ensayo	Cantidad de principio activo (g/ha)	Efecto herbicida	Fitotoxicidad		
			Cr	Be	Ct
Compuesto A-1	5	3	no	no	no
Compuesto A-1	20	4	no	no	no
Sal de isopropilamina del Glifosato	200	0	no	no	no
Sal de isopropilamina del Glifosato	1.000	0	no	no	no
Glufosinato-Amonio	100	0	no	no	no
Glufosinato-Amonio	500	2	no	no	no
Compuesto A-1 + sal de isopropilamina del Glifosato	20 + 200	7	no	no	no
Compuesto A-1 + sal de isopropilamina del Glifosato	5 + 1.000	7	no	no	no
Compuesto A-1 + Glufosinato-Amonio	20 + 100	8	no	no	no
Compuesto A-1 + Glufosinato-Amonio	5 + 500	8	no	no	no

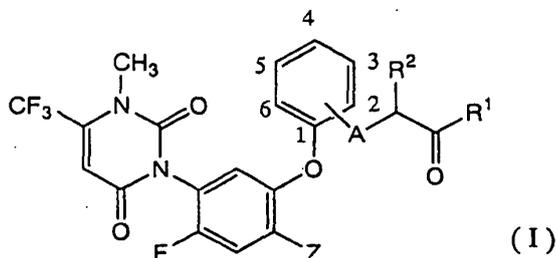
(En la Tabla anterior, "Cr" representa maíz, "Be" representa soja y "Ct" representa algodón).

Aplicabilidad industrial

Según la invención, las malas hierbas pueden ser controladas de una manera eficaz con una dosis baja. En particular, las malas hierbas pueden ser selectivamente controladas en huertos, campos de maíz, campos de soja y campos de algodón.

REIVINDICACIONES

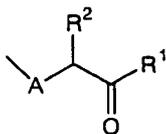
1. Una composición herbicida que comprende, como principios activos, un compuesto de uracilo representado por la siguiente fórmula (I):



10 donde Z representa un átomo de halógeno o ciano, A representa un átomo de oxígeno, R¹ representa alcoxi C₁-C₇ y R² representa un átomo de hidrógeno o metilo,

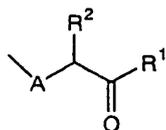
15 y uno o más compuestos organofosforados seleccionados entre el grupo consistente en N-(fosfonometil)glicina, sales aceptables desde el punto de vista agrícola de N-(fosfonometil)glicina y DL-homoalanin-4-il(metil)fosfinato de amonio.

2. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), el substituyente representado por la siguiente fórmula:



25 donde R¹, R² y A tienen los mismos significados que antes, se une a la posición 2 como se define en la fórmula (I).

3. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), el substituyente representado por la siguiente fórmula:



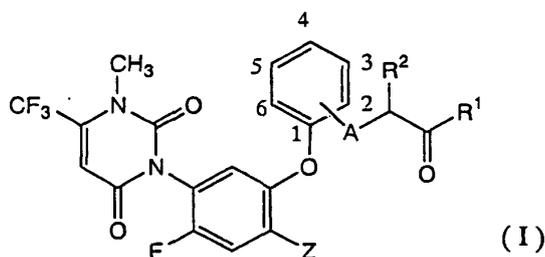
35 donde R¹, R² y A representan el mismo significado que antes, se une a la posición 3 ó 4 como se define en la fórmula (I).

4. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), Z es un átomo de halógeno y R² es hidrógeno.

5. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde, en el presente compuesto de uracilo representado por la fórmula (I), Z es ciano.

6. La composición herbicida según la reivindicación 1, donde la razón de mezcla del compuesto de uracilo representado por la fórmula (I) con respecto a uno o más compuestos organofosforados seleccionados entre el grupo consistente en N-(fosfonometil)glicina, sales aceptables desde el punto de vista agrícola de N-(fosfonometil)glicina y DL-homoalanin-4-il(metil)fosfinato de amonio es de 1:1 a 1:500 en peso.

7. Un método para controlar las malas hierbas que comprende la aplicación de cantidades efectivas de un compuesto de uracilo representado por la siguiente fórmula (I):



donde Z representa un átomo de halógeno o ciano, A representa un átomo de oxígeno, R¹ representa alcoxi C₁-C₇ y R² representa un átomo de hidrógeno o metilo,

5 y uno o más compuestos organofosforados seleccionados entre el grupo consistente en N-(fosfonometil)glicina, sales aceptables desde el punto de vista agrícola de N-(fosfonometil)glicina y DL-homoalanin-4-il(metil)fosfinato de amonio a las malas hierbas.

10 8. El método para controlar las malas hierbas según la reivindicación 7, donde las malas hierbas son malas hierbas en un huerto.

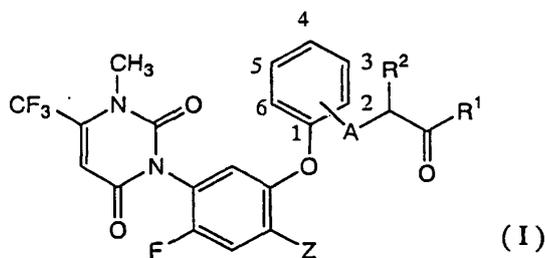
9. El método para controlar las malas hierbas según la reivindicación 7, donde las malas hierbas son malas hierbas en un maizal.

15 10. El método para controlar las malas hierbas según la reivindicación 7, donde las malas hierbas son malas hierbas en un campo de soja.

20 11. El método para controlar las malas hierbas según la reivindicación 7, donde las malas hierbas son malas hierbas en un algodonal.

12. El método para controlar las malas hierbas según la reivindicación 7, donde las malas hierbas son malas hierbas en un terreno no cultivado.

25 13. Un uso de una composición que comprende un compuesto de uracilo representado por la siguiente fórmula (I):



30 donde Z representa un átomo de halógeno o ciano, A representa un átomo de oxígeno, R¹ representa alcoxi C₁-C₇ y R² representa un átomo de hidrógeno o metilo,

35 y uno o más compuestos organofosforados seleccionados entre el grupo consistente en N-(fosfonometil)glicina, sales aceptables desde el punto de vista agrícola de N-(fosfonometil)glicina y DL-homoalanin-4-il(metil)fosfinato de amonio como herbicida.

14. El uso según la reivindicación 13, donde el herbicida es un herbicida para un huerto.

15. El uso según la reivindicación 13, donde el herbicida es un herbicida para un maizal.

40 16. El uso según la reivindicación 13, donde el herbicida es un herbicida para un campo de soja.

17. El uso según la reivindicación 13, donde el herbicida es un herbicida para un algodonal.

18. El uso según la reivindicación 13, donde el herbicida es un herbicida para un terreno no cultivado.