



(12) Ausschließungspatent

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

(19) DD (11) 238 909 A5

4(51) A 01 N 43/56

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) AP A 01 N / 278 632 0

(31) P3426424.8

(22) 16.07.85

(32) 18.07.85

(44) 10.09.86

(33) DE

(71) siehe (73)

(72) Gehring, Reinhold, Dr.; Stetter, Jörg, Dr.; Schallner, Otto, Dr.; Eue, Ludwig, Dr.; Santel, Hans-Joachim, Dr.; Schmidt, Robert R., Dr., DE

(73) BAYER AG, Leverkusen, DE

(54) Herbizide Mittel

(57) Die Erfindung betrifft herbizide Mittel für die Anwendung in der Landwirtschaft. Ziel der Erfindung ist die Bereitschaft neuer Mittel mit starker herbizider Wirkung für die selektive Unkrautbekämpfung in Nutzpflanzenkulturen. Erfindungsgemäß werden als Wirkstoff in den neuen herbiziden Mitteln neue herbiziden Mitteln neue substituierte 5-Amino-1-phenylpyrazole der allgemeinen Formel (I) angewandt, worin beispielsweise bedeuten:

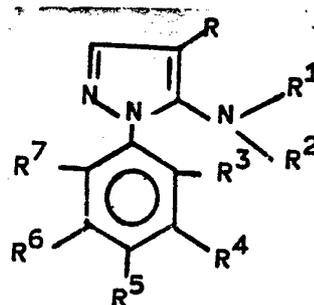
R Cyano, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl u. a.;

R¹ ggf. substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl;R² unabhängig von R¹ die gleichen Reste wie R¹ und zusätzlich Wasserstoff und einem Rest $-C-R^8$,

wobei X für Sauerstoff oder Schwefel steht

und R⁸ für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl,

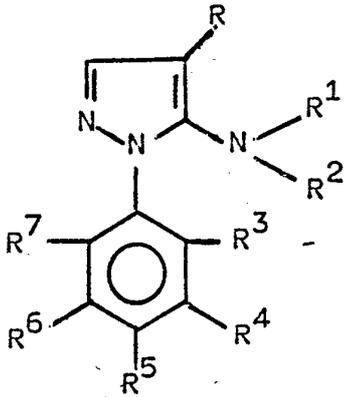
Alkynyl, ggf. substituiertes Arylamino u. a.;

R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷ gleich oder verschieden, Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, Alkyl, Alkoxy, Alkylsulfonyl, Alkoxy-carbonyl u. a. Formel (I)

(I)

Erfindungsanspruch:

1. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazol der allgemeinen Formel (I)



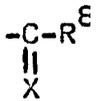
(I)

in welcher

R für Cyano, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkinyloxycarbonyl, Aminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Alkenylaminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkenylaminocarbonyl oder Dialkylaminocarbonyl steht,

R¹ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht,

R² unabhängig von R¹ für die gleichen Reste wie R¹ steht und zusätzlich für Wasserstoff oder für einen Rest



wobei X für Sauerstoff oder Schwefel steht und R⁸ für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Halogenalkyl, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, für gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, für gegebenenfalls substituiertes Aryl, für Alkoxy, Alkylthio, für gegebenenfalls substituiertes Aryloxy, für gegebenenfalls substituiertes Arylthio, für Alkylamino, für Dialkylamino oder für gegebenenfalls substituiertes Arylamino steht, und

R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷, welche gleich oder verschieden sind, für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, Alkyl, Alkoxy, Alkylsulfonyl, Alkoxy-carbonyl oder für einen Rest -(X')_n-R⁹ stehen,

wobei X' für Sauerstoff, Schwefel, Sulfinyl oder Sulfonyl steht,

n für 0 oder 1 steht und

R⁹ für Halogenalkyl steht,

mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷ für einen Rest -(X')_n-R⁹ steht, wobei jedoch nicht gleichzeitig R für Cyano und R⁵ für Trifluormethyl stehen.

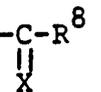
neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln.

2. Mittel gemäß Punkt 1, **gekennzeichnet dadurch**, daß sie einen Gehalt an mindestens einem substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazol der allgemeinen Formel (I) gemäß Punkt 1 aufweisen, worin

R für Cyano, für Aminocarbonyl oder für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkinyloxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Alkenylaminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkenylaminocarbonyl oder Dialkylaminocarbonyl mit jeweils bis zu 5 Kohlenstoffatomen in den einzelnen aliphatischen Resten steht,

R¹ für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen, wobei als Substituenten infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, Hydroxy, Carboxy, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy, oder Alkoxy-carbonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen, oder gegebenenfalls durch Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy oder Alkylsulfonyl substituiertes Aminocarbonyl, wobei das Stickstoffatom des Aminocarbonylrestes auch Teil eines gesättigten 3- bis 7gliedrigen Heterocyclus mit bis zu 2 weiteren Heteroatomen, insbesondere Stickstoff, Sauerstoff oder Schwefel, sein kann; außerdem für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen ein geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen steht,

R² unabhängig von R¹ für die gleichen Reste wie R¹ steht und zusätzlich für Wasserstoff oder für einen Rest



wobei

X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

R⁸ für Wasserstoff, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Halogenalkyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und im Fall des Halogenalkyl mit bis zu 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, außerdem für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen, niederes Alkyl oder niederes Halogenalkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, sowie für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio oder Arylamino steht, und

als Phenylsubstituenten infrage kommen: Halogen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy oder Halogenalkyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen und im Fall des Halogenalkyl mit bis zu 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, und

$R^3, R^4, R^5,$
 R^6 und R^7

unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylsulfonyl oder Alkoxy-carbonyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen oder für einen Rest $(X')_n-R^9$ stehen, wobei
 X' für Sauerstoff, Schwefel, Sulfinyl oder Sulfonyl steht,
 n für 0 oder 1 steht und R^9 für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen und bis zu 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen steht, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste R^3, R^4, R^5, R^6 oder R^7 für einen Rest $-(X')_n-R^9$ steht, wobei jedoch nicht gleichzeitig R für Cyano und R^5 für Trifluormethyl stehen,

neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln.

3. Mittel gemäß Punkt 1, **gekennzeichnet dadurch**, daß sie einen Gehalt an mindestens einem substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazol der allgemeinen Formel (I) gemäß Punkt 1 aufweisen, worin

R für Cyano, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxycarbonyl, Aminocarbonyl, Methylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Diallylaminocarbonyl oder Dipropargylaminocarbonyl steht,

R^1 für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Allyl, Butenyl, Propargyl oder Butinyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, Hydroxy, Carboxy, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, n-, i-, s- oder t-Butoxycarbonyl, Aminocarbonyl, N-Methylaminocarbonyl, n-Ethylaminocarbonyl, N,N-Dimethylaminocarbonyl, N,N-Diethylaminocarbonyl, N,N-Diallylaminocarbonyl, N-Methyl-N-ethylaminocarbonyl, N-Methyl-N-propylaminocarbonyl, N-Methyl-N-allylaminocarbonyl, N-Methyl-N-propargylaminocarbonyl, N-Methyl-N-methoxyaminocarbonyl, N-Methylsulfonylaminocarbonyl, N-Ethylsulfonylaminocarbonyl, Pyrrolidin-1-ylcarbonyl, Piperidin-1-ylcarbonyl, Morphol-in-4-ylcarbonyl oder Perhydroazepin-1-ylcarbonyl; außerdem für jeweils gegebenenfalls ein- bis fünffach gleich oder verschieden durch Chlor, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cycloheptyl steht,

R^2 unabhängig von R^1 für die gleichen Reste wie R^1 steht und zusätzlich für Wasserstoff oder für einen Rest $\begin{array}{c} -C-R^8 \\ || \\ X \end{array}$ steht, wobei

X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

R^8 für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- und i-Propyl, Allyl, Propargyl, Butenyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylamino, Ethylamino, Dimethylamino, Trifluormethyl, Trichlorethyl, Dichlorfluorethyl, Difluorchlorethyl, Chlormethyl, Iodmethyl, Brommethyl, Dichlormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 2-Bromethyl, Heptafluor-n-propyl, für jeweils gegebenenfalls ein- bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, sowie für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Methyl, Methoxy, Chlor oder Trifluormethyl substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio oder Phenylamino steht, und

$R^3, R^4, R^5,$
 R^6 und R^7

unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- und i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, Methylsulfonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder für einen Rest $-(X')_n-R^9$ stehen, wobei

X' für Sauerstoff, Schwefel, Sulfinyl oder Sulfonyl steht,

n für 0 oder 1 steht und

R^9 für Trifluormethyl, Trichlormethyl, Dichlorfluormethyl, Difluorchlormethyl, Dichlormethyl, Chlormethyl, Difluormethyl, Pentafluorethyl, Tetrafluorethyl, Trifluorchlorethyl, Trifluorethyl, Difluordichlorethyl, Trifluordichlorethyl oder Pentachlorethyl stehen,

mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste R^3, R^4, R^5, R^6 und R^7 für einen Rest $-(X')_n-R^9$ steht, wobei jedoch nicht gleichzeitig R für Cyano und R^5 für Trifluormethyl stehen,

neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln.

4. Verfahren zur Bekämpfung von Unkraut, **gekennzeichnet dadurch**, daß man substituierte 5-Amino-1-phenyl-pyrazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Punkt 1 auf die Unkräuter oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
5. Verwendung von substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazolen der allgemeinen Formel (I) gemäß Punkt 1, **gekennzeichnet dadurch**, daß sie zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzenwachstum eingesetzt werden.
6. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, **gekennzeichnet dadurch**, daß man substituierte 5-Amino-1-phenylpyrazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Punkt 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft herbizide Mittel mit einem Gehalt an neuen substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazolen, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide in der Landwirtschaft.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte substituierte 5-Amino-1-phenylpyrazole, wie beispielsweise das 4-Cyano-5-propion-amido-1-(2,4,6-trichlorphenyl)- oder auch das entsprechende 1-(2,3,4-trichlorphenyl)-pyrazol, herbizide Eigenschaften besitzen (vgl. z. B. DE-OS 3226513).

Die herbizide Wirkung dieser bekannten Verbindungen gegenüber Unkräutern, ebenso wie deren Verträglichkeit gegenüber wichtigen Kulturpflanzen ist jedoch nicht immer in allen Anwendungsgebieten völlig zufriedenstellend.

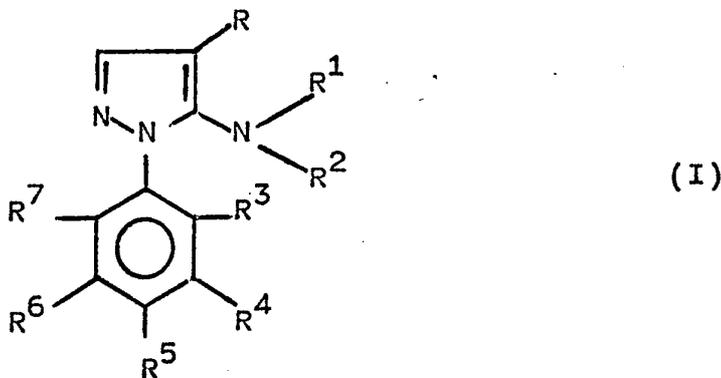
Ziel der Erfindung

Ziel der Erfindung ist die Bereitstellung von neuen Mitteln mit starker herbizider Wirkung und einem breiten Selektivitätsspektrum, die für die selektive Unkrautbekämpfung in Nutzpflanzenkulturen geeignet sind.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, neue 5-Amino-1-phenylpyrazol-Derivate mit den gewünschten Eigenschaften aufzufinden, die als Wirkstoff in den neuen herbiziden Mitteln geeignet sind.

Erfindungsgemäß werden in den neuen herbiziden Mitteln als Wirkstoff neue substituierte 5-Amino-1-phenylpyrazole der allgemeinen Formel (I)

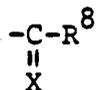


angewandt, in welcher

R für Cyano, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkinyloxycarbonyl, Aminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Alkenylaminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkenylaminocarbonyl oder Dialkylaminocarbonyl steht,

R¹ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl oder Cycloalkyl steht,

R² unabhängig von R¹ für die gleichen Reste wie R¹ steht und zusätzlich für Wasserstoff oder für einen Rest



steht, wobei X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

R⁹ für Wasserstoff, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Halogenalkyl, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, für gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, für gegebenenfalls substituiertes Aryl, für Alkoxy, Alkylthio, für gegebenenfalls substituiertes Aryloxy, für gegebenenfalls substituiertes Arylthio, für Alkylamino, für Dialkylamino oder für gegebenenfalls substituiertes Arylamino steht, und

R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷, welche gleich oder verschieden sind, für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro, Alkyl, Alkoxy, Alkylsulfonyl, Alkoxy-carbonyl oder für einen Rest -(X')_n-R⁹ stehen,

wobei X' für Sauerstoff, Schwefel, Sulfinyl oder Sulfonyl steht,

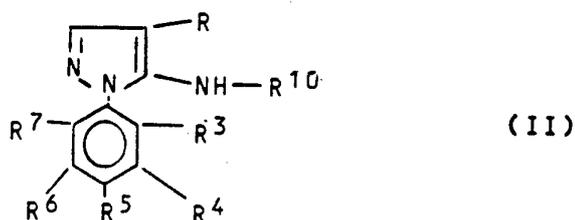
n für 0 oder 1 steht und

R⁹ für Halogenalkyl steht,

mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷ für einen Rest -(X')_n-R⁹ steht, wobei jedoch nicht gleichzeitig R für Cyano und R⁵ für Trifluormethyl stehen.

Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazole der allgemeinen Formel (I) erhält, wenn man

(a) 5-Amino-pyrazole der Formel (II)



in welcher

R, R³, R⁴, R⁵, R⁶, und R⁷ die oben angegebene Bedeutung haben und

R¹⁰ für Wasserstoff oder für einen Rest $\begin{matrix} -C-R^8 \\ || \\ X \end{matrix}$ steht,

wobei X und R⁸ die oben angegebene Bedeutung haben, mit Alkylierungsmitteln der Formel (III)

(III)

in welcher

R¹ die oben angegebene Bedeutung hat und

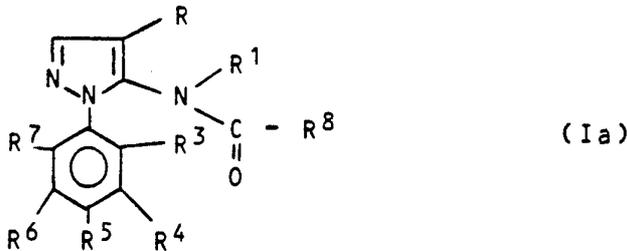
A für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels sowie

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt,

oder wenn man

(b) 5-Acylaminopyrazole der Formel (Ia)

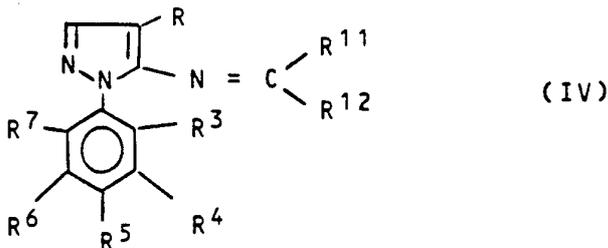


in welcher

R, R¹, R³, R⁴, R⁵, R⁶, R⁷ und R⁸ die oben angegebene Bedeutung haben,

in üblicher Weise mit Säuren und Basen, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, deacyliert oder wenn man

(c) Azomethine der Formel (IV),



in welcher

R, R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷ die oben angegebene Bedeutung haben,

R¹¹ für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl steht und

R¹² unabhängig von R¹¹ für die gleichen Reste wie dieses und außerdem für Wasserstoff steht,

mit einem komplexen Hydrid, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, reduziert.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazole der Formel (I) herbizide Eigenschaften, insbesondere auch selektiv-herbizide Eigenschaften besitzen.

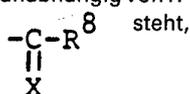
Überraschenderweise besitzen die neuen substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazole der Formel (I) eine bessere herbizide Wirksamkeit gegenüber Schädlingen, bei gleichzeitiger besserer Verträglichkeit gegenüber wichtigen Nutzpflanzen, als beispielsweise die aus dem Stand der Technik bekannten Verbindungen 4-Cyano-5-propionamido-1-(2,4,6-trichlorphenyl)- bzw. -(2,3,4-trichlorphenyl)-pyrazol, welche chemisch und wirkungsmäßig naheliegende Verbindungen sind.

Die neuen substituierten 5-Amino-1-phenylpyrazole sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R für Cyano, für Aminocarbonyl oder für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Alkenylaminocarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Dialkenylaminocarbonyl oder Dialkylaminocarbonyl mit jeweils bis zu 5 Kohlenstoffatomen in den einzelnen aliphatischen Resten steht,

R¹ für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen, wobei als Substituenten infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, Hydroxy, Carboxy, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy, oder Alkoxy-carbonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen, oder gegebenenfalls durch Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy oder Alkylsulfonyl substituiertes Aminocarbonyl, wobei das Stickstoffatom des Aminocarbonylrestes auch Teil eines gesättigten 3- bis 7gliedrigen Heterocyclus mit bis zu 2 weiteren Heteroatomen, insbesondere Stickstoff, Sauerstoff oder Schwefel, sein kann; außerdem für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen steht,

R² unabhängig von R¹ für die gleichen Reste wie R¹ steht und zusätzlich für Wasserstoff oder für einen Rest



wobei X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

R⁸ für Wasserstoff, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Halogenalkyl mit jeweils bis zu 4 Kohlen-

stoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und im Fall des Halogenalkyl mit bis zu 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, außerdem für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen, niederes Alkyl oder niederes Halogenalkyl substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, sowie für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio oder Phenylamino steht, wobei als Phenylsubstituenten infrage kommen: Halogen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy oder Halogenalkyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen und im Fall des Halogenalkyl mit bis zu 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, und

R^3, R^4, R^5, R^6 und R^7 unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylsulfonyl oder Alkoxy-carbonyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen oder für einen Rest $-(X')_n-R^9$ stehen, wobei
 X' für Sauerstoff, Schwefel, Sulfinyl oder Sulfonyl steht,
 n für 0 oder 1 steht und R^9 für geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen und bis zu 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen steht,
 mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste R^3, R^4, R^5, R^6 oder R^7 für einen Rest $-(X')_n-R^9$ steht, wobei jedoch nicht gleichzeitig R für Cyano und R^5 für Trifluormethyl stehen.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen,

R für Cyano, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Allyloxycarbonyl, Propargyloxycarbonyl, Aminocarbonyl, Methylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Diallylaminocarbonyl oder Dipropargylaminocarbonyl steht,

R^1 für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Allyl, Butenyl, Propargyl oder Butinyl steht, wobei als Substituenten in Frage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, Hydroxy, Carboxy, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, n-, i-, s- oder t-Butoxycarbonyl, Aminocarbonyl, N-Methylaminocarbonyl, n-Ethylaminocarbonyl, N,N-Dimethylaminocarbonyl, N,N-Diethylaminocarbonyl, N,N-Diallylaminocarbonyl, N-Methyl-N-ethylaminocarbonyl, N-Methyl-N-propylaminocarbonyl, N-Methyl-N-allylaminocarbonyl, N-Methyl-N-propargylaminocarbonyl, N-Methyl-N-methoxyaminocarbonyl, N-Methylsulfonylaminocarbonyl, N-Ethylsulfonylaminocarbonyl, Pyrrolidin-1-ylcarbonyl, Piperidin-1-ylcarbonyl, Morpholin-4-ylcarbonyl oder Perhydroazepin-1-ylcarbonyl;

außerdem für jeweils gegebenenfalls ein- bis fünffach gleich oder verschieden durch Chlor, Methyl, oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Cycloheptyl steht,

R^2 unabhängig von R^1 für die gleichen Reste wie R^1 steht und zusätzlich für Wasserstoff oder für einen Rest



X für Sauerstoff oder Schwefel steht und
 R^8 für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- und i-Propyl, Allyl, Propargyl, Butenyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylamino, Ethylamino, Dimethylamino, Trifluormethyl, Trichlorethyl, Dichlorfluorethyl, Difluorchlorethyl, Chlormethyl, Iodmethyl, Brommethyl, Dichlormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 2-Brommethyl, Heptafluor-n-propyl, für jeweils gegebenenfalls ein- bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclopentyl oder Cyclohexyl, sowie für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Methyl, Methoxy, Chlor oder Trifluormethyl substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio oder Phenylamino steht, und

R^3, R^4, R^5, R^6 und R^7 unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, Methyl, Ethyl, n- und i-Propyl, Methoxy, Ethoxy, Methylsulfonyl, Methoxycarbonyl oder für einen Rest $-(X')_n-R^9$ stehen,

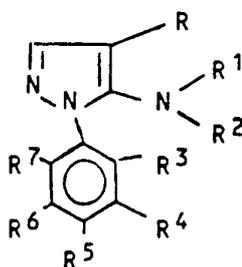
wobei X' für Sauerstoff, Schwefel, Sulfinyl oder Sulfonyl steht,

n für 0 oder 1 steht und

R^9 für Trifluormethyl, Trichlormethyl, Dichlorfluormethyl, Difluorchlormethyl, Dichlormethyl, Chlormethyl, Difluormethyl, Pentafluorethyl, Tetrafluorethyl, Trifluorchlorethyl, Trifluorethyl, Difluordichlorethyl, Trifluordichlorethyl oder Pentafluorethyl stehen,

mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste R^3, R^4, R^5, R^6 oder R^7 für einen Rest $-(X')_n-R^9$ steht, wobei jedoch nicht gleichzeitig R für Cyano und R^5 für Trifluormethyl stehen.

Im einzelnen seien außer den bei den Herstellungsbeispielen genannten Verbindungen, die folgenden Verbindungen der allgemeinen Formel (I) genannt:



(I)

Tabelle 1:

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	CH ₃	H	F	H	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	F	H	OCF ₃	H	F
CN	CH ₃	H	F	F	OCF ₃	F	F
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	H	Cl	Cl	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCF ₃	H	F
CN	CH ₃	H	Br	H	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	OCF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	F	H	H	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	F	H	OCF ₃	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	F	F	OCF ₃	F	F
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	Cl	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCF ₃	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	OCF ₃	H	Cl
CN		H	F	H	OCF ₃	H	H
CN		CH ₃	F	H	OCF ₃	H	F

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN		H	F	F	OCF ₃	F	F
CN		H	Cl	H	OCF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	OCF ₃	H	Cl
CN		H	Cl	Cl	OCF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	OCF ₃	H	F
CN		H	Br	H	OCF ₃	H	H
CN		H	Br	H	OCF ₃	H	Br
CN	CH ₃	H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	Br
CN	CH ₃	H	Cl	Cl	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	Cl	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN		H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN		H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	Br
CN		H	Cl	Cl	SCH ₂ CF ₃	H	H

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Cl	H	SCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Br	H	SCH ₂ CF ₃	H	Br
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Cl	Cl	SCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCH ₂ OCF ₃	H	Br
CN		H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN		H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCF ₃	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCF ₃	H	H
CN		H	F	H	SCF ₃	H	H
CN		H	F	H	SCF ₃	H	F
CN		H	F	F	SCF ₃	F	F

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN		H	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN		H	Cl	Cl	SCF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	SCF ₃	H	F
CN		H	Br	H	SCF ₃	H	H
CN		H	Br	H	SCF ₃	H	Br
CN	CH ₃	H	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN	CH ₃	H	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN	CH ₃	H	CF ₃	H	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	OCF ₃	H	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	CF ₃	H	SCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	OCF ₃	H	OCF ₃	H	H
EN		H	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN		CH ₃	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN		C ₂ H ₅	CF ₃	H	SCF ₃	H	H
CN		C ₃ H ₇	OCF ₃	H	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	SCHF ₂	H	H
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Cl	H	SCH ₂ F	H	Cl
CN	CH ₃	C ₃ H ₇	Br	H	SCHF ₂	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	SCHF ₂	H	Br
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	SCH ₂ F	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Cl	H	SCHF ₂	H	Cl

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Br	H	SCF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₃ H ₇	Br	H	SCF ₂	H	Br
CN		C ₃ H ₇	Cl	H	SCF ₂	H	H
CN		H	Cl	H	SCF ₂	H	Cl
CN		CH ₃	Br	H	SCF ₂	H	H
CN		C ₃ H ₇	Br	H	SCF ₂	H	Br
CN	CH ₃	H	Cl	H	SCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	SCF ₂ CHF ₂	H	Cl
CN	CH ₃	H	Br	H	SCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	Br	H	SCF ₂ CHF ₂	H	Br
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	SCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	SCF ₂ CHF ₂	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Br	H	SCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Br	H	SCF ₂ CHF ₂	H	Br
CN		C ₂ H ₅	Cl	H	SCF ₂ CHF ₂	H	H
CN		C ₃ H ₇	Cl	H	SCF ₂ CHF ₂	H	Cl
CN		C ₃ H ₇	Br	H	SCF ₂ CHF ₂	H	H
CN		C ₃ H ₇	Br	H	SCF ₂ CHF ₂	H	Br
CN	CH ₃	H	Cl	H	SCF ₂ CHFCl	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	SCF ₂ CHFCl	H	Cl
CN	CH ₃	H	Br	H	SCF ₂ CHFCl	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	SCF ₂ CHFCl	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCF ₂ CHFCl	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCF ₂ CHFCl	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCF ₂ CHFCl	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCF ₂ CHFCl	H	Br

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN		H	Cl	H	SCF ₂ CHFCl	H	H
CN		H	Cl	H	SCF ₂ CHFCl	H	Cl
CN		H	Br	H	SCF ₂ CHFCl	H	H
CN		H	Br	H	SCF ₂ CHFCl	H	Br
CN	ClCH ₂	CH ₃	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	ClCH ₂	CH ₃	Cl	H	OCF ₃	H	Cl
CN	ClCH ₂	C ₂ H ₅	Br	H	OCF ₃	H	H
CN	ClCH ₂	H	Br	H	OCF ₃	H	Br
CN	CH ₃ OCH ₂	C ₃ H ₇	Cl	H	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Cl	H	OCF ₃	H	Cl
CN	ClCH ₂	H	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	ClCH ₂	H	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	ClCH ₂	H	Br	H	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	S(O)CF ₃	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	S(O)CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	C ₃ H ₇	Br	H	S(O)CF ₃	H	Br
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Br	H	S(O)CF ₃	H	H
CN	CH ₃	C ₃ H ₇	CF ₃	H	S(O)CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	CF ₃	H	S(O)CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	S(O)CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	S(O)CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Br	H	S(O)CF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	S(O)CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	CF ₃	H	S(O)CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	CF ₃	H	S(O)CF ₃	H	Cl
CN		H	Cl	H	S(O)CF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	S(O)CF ₃	H	Cl
CN		H	Br	H	S(O)CF ₃	H	Br

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN		H	Br	H	S(O)CF ₃	H	H
CN		H	CF ₃	H	S(O)CF ₃	H	H
CN		H	CF ₃	H	S(O)CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCF ₂ CHFCl	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCF ₂ CHFCl	H	Cl
CN	CH ₃	CH ₃	Br	H	OCF ₂ CHFCl	H	H
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Br	H	OCF ₂ CHFCl	H	Br
CN	C ₂ H ₅	C ₃ H ₇	Cl	H	OCF ₂ CHFCl	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Cl	H	OCF ₂ CHFCl	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Br	H	OCF ₂ CHFCl	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCF ₂ CHFCl	H	Br
CN		H	Cl	H	OCF ₂ CHFCl	H	H
CN		H	Cl	H	OCF ₂ CHFCl	H	Cl
CN		H	Br	H	OCF ₂ CHFCl	H	H
CN		H	Br	H	OCF ₂ CHFCl	H	Br
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	H
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Cl	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	Cl
CN	CH ₃	C ₃ H ₇	Br	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Br	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	Br
CN		C ₂ H ₅	Cl	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	H

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN		C ₃ H ₇	Cl	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	Cl
CN		H	Br	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	H
CN		CH ₃	Br	H	OCF ₂ CHCl ₂	H	Br
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Cl	H	OCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	CH ₃	C ₃ H ₇	Cl	H	OCF ₂ CHF ₂	H	Cl
CN	CH ₃	H	Br	H	OCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	OCF ₂ CHF ₂	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCF ₂ CHF ₂	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCF ₂ CHF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCF ₂ CHF ₂	H	Br
CN		H	Cl	H	OCF ₂ CHF ₂	H	H
CN		H	Cl	H	OCF ₂ CHF ₂	H	Cl
CN		H	Br	H	OCF ₂ CHF ₂	H	H
CN		H	Br	H	OCF ₂ CHF ₂	H	Br
CN	CH ₃	CH ₃	CF ₃	H	SO ₂ CH ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Br	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Br	H	SO ₂ CF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	CF ₃	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN		CH ₃	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN		CH ₃	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN		H	Br	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN		H	Br	H	SO ₂ CF ₃	H	Br
CN		H	CF ₃	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	F	H	SCCl ₂ F	H	H

Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	CH ₃	H	F	H	SCCl ₂ F	H	F
CN	CH ₃	H	F	F	SCCl ₂ F	F	F
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	Cl
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	F
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Br	H	SCCl ₂ F	H	H
CN	CH ₃	C ₂ H ₅	Br	H	SCCl ₂ F	H	Br
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	F	H	SCCl ₂ F	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	F	H	SCCl ₂ F	H	F
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	F	H	SCCl ₂ F	F	F
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	H
CN	C ₂ H ₅	CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SCCl ₂ F	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCCl ₂ F	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	SCCl ₂ F	H	Br
CN		H	F	H	SCCl ₂ F	H	H
CN		H	F	H	SCCl ₂ F	H	F
CN		CH ₃	F	F	SCCl ₂ F	F	F
CN		CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	H
CN		CH ₃	Cl	H	SCCl ₂ F	H	Cl
CN		C ₂ H ₅	Cl	H	SCCl ₂ F	H	F
CN		C ₂ H ₅	Br	H	SCCl ₂ F	H	H
CN		C ₂ H ₅	Br	H	SCCl ₂ F	H	Br

Tabelle 1 (Fortsetzung):

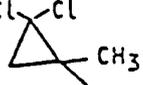
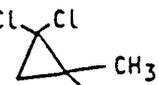
R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	CH ₃	H	F	H	OCHF ₂	H	H
CN	CH ₃	H	F	H	OCHF ₂	H	F
CN	CH ₃	H	F	F	OCHF ₂	F	F
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCHF ₂	H	H
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCHF ₂	H	Cl
CN	CH ₃	H	Cl	H	OCHF ₂	H	F
CN	CH ₃	H	Br	H	OCHF ₂	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	OCHF ₂	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	F	H	OCHF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	F	H	OCHF ₂	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	F	F	OCHF ₂	F	F
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCHF ₂	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCHF ₂	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	OCHF ₂	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCHF ₂	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	Br	H	OCHF ₂	H	Br
CN		H	F	H	OCHF ₂	H	H
CN		H	F	H	OCHF ₂	H	F
CN		H	F	F	OCHF ₂	F	F
CN		CH ₃	Cl	H	OCHF ₂	H	H
CN		CH ₃	Cl	H	OCHF ₂	H	Cl
CN		CH ₃	Cl	H	OCH ₂ F	H	F
CN		C ₂ H ₅	Br	H	OCH ₂ F	H	H
CN		C ₂ H ₅	Br	H	OCHF ₂	H	Br
CN		C ₂ H ₅	Cl	H	OCF ₃	H	H
CN		C ₂ H ₅	Cl	H	OCF ₃	H	Cl

Tabelle 1 (Fortsetzung):

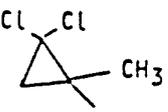
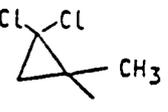
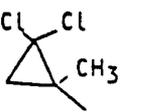
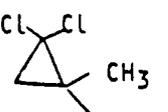
R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN		C ₂ H ₅	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN		C ₃ H ₇	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN		C ₃ H ₇	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN		H	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN		H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	Br
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	H
CN	CH ₃ OCH ₂	H	Br	H	OCH ₂ CF ₃	H	Br
CN	CH ₃	H	SCF ₃	H	Cl	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	SCF ₃	H	Cl	H	H
CN	CH ₃	H	SCF ₃	H	Cl	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	SCF ₃	H	Cl	H	Cl
CN	CH ₃	H	Cl	H	SO ₂ CH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	H	Cl	H	SO ₂ CH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SO ₂ CH ₂ CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	SO ₂ CH ₂ CF ₃	H	Cl

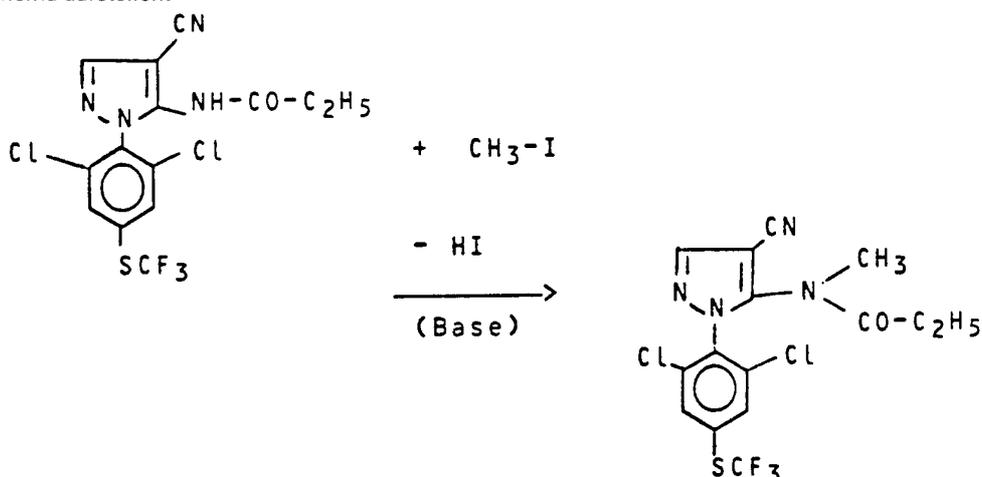
Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	CH ₃	H	F	H	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	F	H	SCF ₃	H	F
CN	CH ₃	H	F	F	SCF ₃	F	F
CN	CH ₃	H	CL	H	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	CL	H	SCF ₃	H	CL
CN	CH ₃	H	CL	CL	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	CL	H	SCF ₃	H	F
CN	CH ₃	H	Br	H	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	H	Br	H	SCF ₃	H	Br
CN	C ₂ H ₅	H	F	H	SCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	H	F	H	SCF ₃	H	F
CN	C ₂ H ₅	H	F	H	SCF ₃	F	F
CN	n-C ₃ H ₇	H	CL	H	OCF ₃	H	H
CN	n-C ₃ H ₇	H	CL	H	OCF ₃	H	CL
CN	i-C ₃ H ₇	H	CL	H	OCF ₃	H	H
CN	i-C ₃ H ₇	H	CL	H	OCF ₃	H	CL
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	CL	H	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	CL	H	OCF ₃	H	CL
CN	CH ₃	CH ₃	CL	H	OCF ₃	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	CL	H	OCF ₃	H	CL
CN	n-C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	CL	H	OCF ₃	H	H
CN	n-C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	CL	H	OCF ₃	H	CL
CN	n-C ₃ H ₇	H	CL	H	SCF ₃	H	H

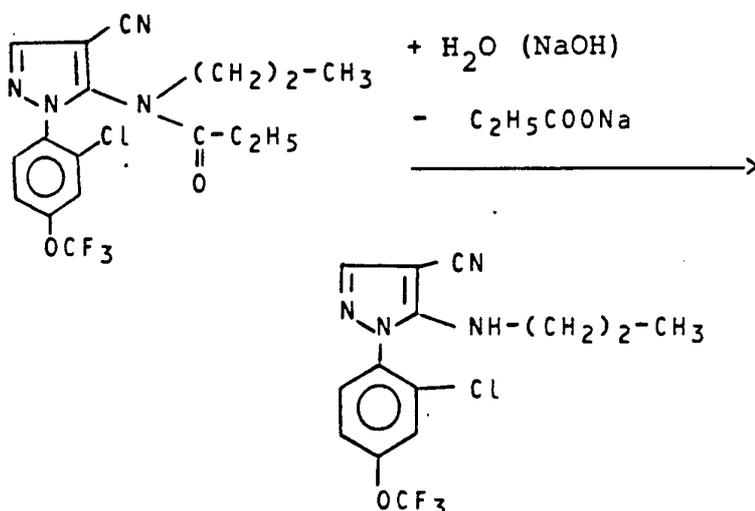
Tabelle 1 (Fortsetzung):

R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷
CN	n-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	i-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	i-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	CH ₃	CH ₃	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	Cl	H	SCF ₃	H	H
CN	n-C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	Cl	H	SCF ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN	n-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN	i-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN	i-C ₃ H ₇	H	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	H
CN	n-C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	$\begin{array}{c} \text{-C-CH}_3 \\ \\ \text{O} \end{array}$	Cl	H	OCF ₃	H	H
CN	C ₂ H ₅	$\begin{array}{c} \text{-C-CH}_3 \\ \\ \text{O} \end{array}$	Cl	H	OCF ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	$\begin{array}{c} \text{-C-CH}_3 \\ \\ \text{O} \end{array}$	Cl	H	SCH ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	$\begin{array}{c} \text{-C-CH}_3 \\ \\ \text{O} \end{array}$	Cl	H	SO ₂ CF ₃	H	Cl
CN	n-C ₃ H ₇	$\begin{array}{c} \text{-C-CH}_3 \\ \\ \text{O} \end{array}$	Cl	H	OCF ₃	H	Cl

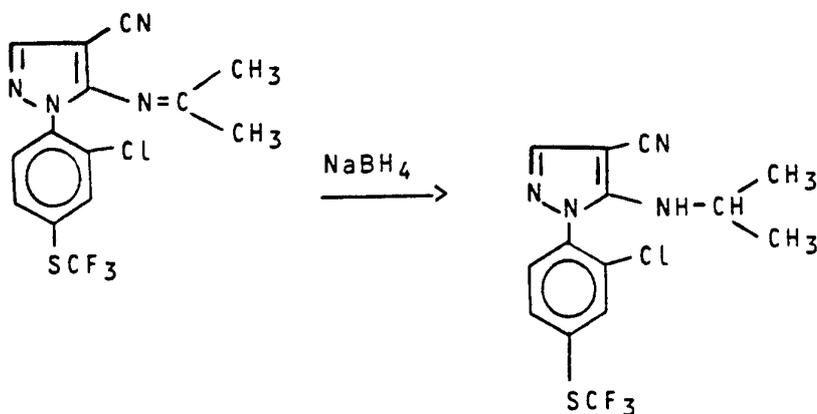
Verwendet man als Ausgangsstoffe beispielsweise 4-Cyano-5-propionylamino-1-(2,6-dichlor-4-trifluormethylthiophenyl)-pyrazol und Methyljodid, so läßt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema darstellen:



Verwendet man als Ausgangsstoffe beispielsweise 4-Cyano-5-(N-n-propyl-N-propionylamino)-1-(2-chlor-4-trifluormethoxyphenyl)-pyrazol und Natronlauge, so läßt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema darstellen:

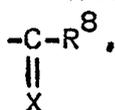


Verwendet man als Ausgangsstoff beispielsweise 4-Cyano-5-isopropylidenimino-1-(2-chlor-4-trifluormethylthiophenyl)-pyrazol und Natriumborhydrid als Reduktionsmittel, so läßt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema darstellen:



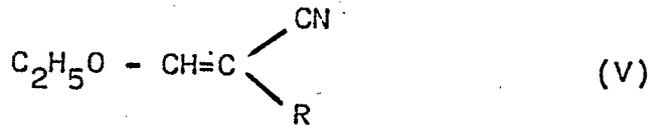
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten 5-Amino-pyrazole sind durch die Formel (II) allgemein definiert.

In dieser Formel (II) stehen, R, R³, R⁴, R⁵, R⁶ und R⁷ vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden. R¹⁰ steht vorzugsweise für Wasserstoff oder für einen Rest



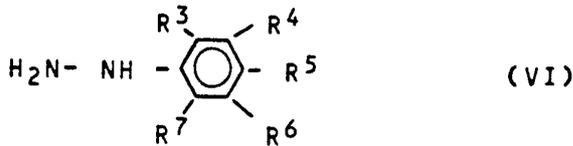
vorzugsweise Bedeutung besitzen, die bereits bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste genannt wurde.

Die 5-Aminopyrazole der Formel (II) sind teilweise bekannt (vgl. z. B. DE-OS 3226496, DE-OS 3129429 und EP-PS 34945). Man erhält sie nach prinzipiell bekannten Verfahren, beispielsweise wenn man Acrylnitril-Derivate der Formel (V),



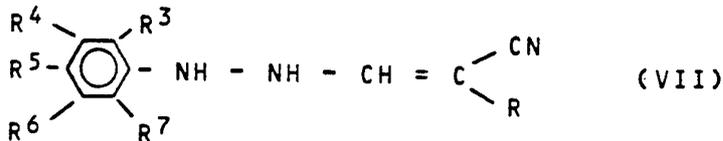
in welcher

die oben angegebene Bedeutung hat, mit Phenylhydrazinen der Formel (VI),



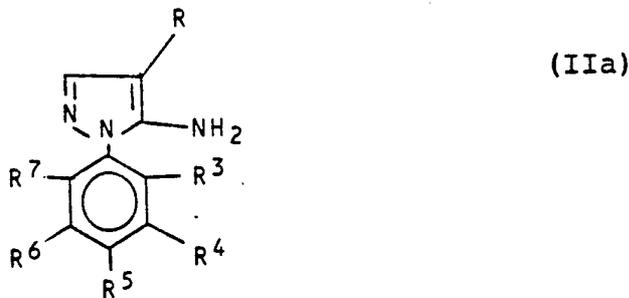
in welcher

$\text{R}^3, \text{R}^4, \text{R}^5, \text{R}^6$ und R^7 die oben angegebene Bedeutung haben, entweder zunächst in einer ersten Stufe, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (wie beispielsweise Eisessig oder Ethanol) sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels (wie beispielsweise Natriumacetat) bei Temperaturen zwischen -20°C und $+20^\circ\text{C}$ umgesetzt zu den Phenylhydrazin-Derivaten der Formel (VII),



in welcher

$\text{R}^3, \text{R}^4, \text{R}^5, \text{R}^6$ und R^7 die oben angegebene Bedeutung haben, und diese in einer zweiten Stufe, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (wie beispielsweise Ethylenglykolmonoethylether) bei Temperaturen zwischen $+50^\circ\text{C}$ und $+150^\circ\text{C}$ cyclisiert, oder in einem Reaktionsschritt ohne Isolierung der Zwischenstufe der Formel (VII), gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (wie beispielsweise Ethylenglykolmonoethylether oder Ethanol) bei Temperaturen zwischen $+50^\circ\text{C}$ und $+150^\circ\text{C}$ direkt cyclisiert und die so erhältlichen 5-Aminopyrazole der Formel (IIa),



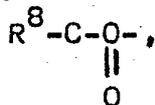
in welcher

$\text{R}^3, \text{R}^4, \text{R}^5, \text{R}^6$ und R^7 die oben angegebene Bedeutung haben, gegebenenfalls mit einem Acylierungsmittel der Formel (VIII),

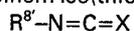


in welcher,

R^8 und X die oben angegebene Bedeutung haben und für eine elektronenziehende Austrittsgruppe, wie beispielsweise Halogen oder den Rest $\text{R}^8 - \text{C} - \text{O} -$, steht,



oder mit einem Iso(thio)cyanat der Formel (IX),



(IX)

in welcher

die oben angegebene Bedeutung hat und

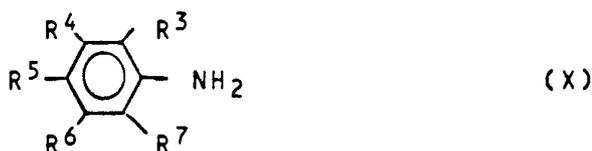
R^8 für Alkyl oder gegebenenfalls substituiertes Aryl steht,

gegebenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (wie beispielsweise Dichlormethan oder Acetonitril) und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels (wie beispielsweise Kaliumcarbonat oder Triethylamin) bei

Temperaturen zwischen -20°C und $+120^{\circ}\text{C}$ acyliert (vergl. auch Patentanmeldungen DE-P 3337 543.7 vom 15. 10. 1983, DE-P 3420985.9 vom 6. 6. 1984 bzw. DE-P 3423582.5 vom 27. 6. 1984).

Die Acrylnitril-Derivate der Formel (V) sind bekannt (vgl. z. B. EP-PS 34945 oder DE-OS 3 129429).

Die Phenylhydrazine der Formel (VI) sind größtenteils bekannt oder können nach bekannten Verfahren in einfacher, analoger Art und Weise hergestellt werden (vgl. z. B. Houben-Weyl, 'Methoden der organischen Chemie', Band X/2, S. 203, Thieme Verlag Stuttgart, 1967), indem man beispielsweise die bekannten Aniline der Formel (X),



in welcher

R^3, R^4, R^5, R^6 und R^7 die oben angegebene Bedeutung haben, mit Natriumnitrit in Gegenwart einer Säure (wie beispielsweise Schwefelsäure) und dann mit Zinn-II-chlorid ebenfalls in Gegenwart einer Säure (wie beispielsweise Salzsäure) bei Temperaturen zwischen -20°C und $+80^{\circ}\text{C}$ umgesetzt.

Die Acylierungsmittel der Formel (VIII), die Iso(thio)-cyanate der Formel (IX) und die Aniline der Formel (X) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Alkylierungsmittel sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) steht R^1 vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diesen Substituenten genannt wurden. A steht vorzugsweise für Halogen, insbesondere für Chlor, Brom oder Iod, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkylsulfonyloxy, Alkoxyulfonyloxy oder Arylsulfonyloxy, wie beispielsweise Methansulfonyloxy, Methoxysulfonyloxy oder p-Toluolsulfonyloxy.

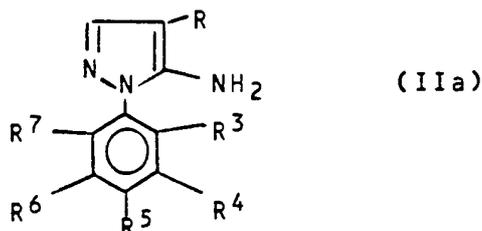
Die Alkylierungsmittel der Formel (III) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe benötigten 5-Acylamino-pyrazole sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In dieser Formel (Ia) stehen $R, R^1, R^3, R^4, R^5, R^6, R^7$ und R^8 vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

Die 5-Acylamino-pyrazole der Formel (Ia) sind erfindungsgemäße Verbindungen und erhältlich mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens (a).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) als Ausgangsstoffe benötigten Azomethine sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) stehen R, R^3, R^4, R^5, R^6 und R^7 vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits bei der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden. R^{11} steht vorzugsweise für jeweils geradkettiges oder verzweigtes, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils bis zu 7 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Allyl, Butenyl, Propargyl oder Butinyl, wobei als Substituenten in Frage kommen: Halogen, Cyano, Hydroxy, Carboxy, sowie jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy oder Alkoxy-carbonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen. R^{12} steht unabhängig von R^{11} vorzugsweise für die gleichen Reste wie dieses und außerdem für Wasserstoff.

Die Azomethine der Formel (IV) sind noch nicht bekannt. Man erhält sie, wenn man 5-Aminopyrazole der Formel (IIa),



in welcher

R, R^3, R^4, R^5, R^6 und R^7 die oben angegebene Bedeutung haben, mit Aldehyden oder Ketonen der Formel (XI),



in welcher

R^{11} und R^{12} die oben angegebene Bedeutung haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels (wie beispielsweise Methanol oder Ethanol) sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators (wie beispielsweise Salzsäure oder Schwefelsäure) bei Temperaturen zwischen $+20^{\circ}\text{C}$ und $+120^{\circ}\text{C}$ umgesetzt.

Die Aldehyde oder Ketone der Formel (XI) sind ebenfalls allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) kommen inerte organische Lösungsmittel in Frage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Ether, wie Diethylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether, Ketone

wie Aceton oder Butanon, Nitrile, wie Acetonitril oder Propionitril, Amide, wie Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid, Ester, wie Essigsäureethylester oder Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) kann gegebenenfalls auch in einem Zweiphasensystem, wie beispielsweise Wasser/Toluol oder Wasser/Dichlormethan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Phasentransferkatalysators, durchgeführt werden. Als Beispiele für solche Katalysatoren seien genannt: Tetrabutylammoniumiodid, Tetrabutylammoniumbromid, Tributylmethylphosphoniumbromid, Trimethyl-C₁₃/C₁₅-alkylammoniumchlorid, Dibenzyl-ammoniummethylsulfat, Dimethyl-C₁₂/C₁₄-alkyl-benzylammoniumchlorid, Tetrabutylammoniumhydroxid, 15-Krone-5, 18-Krone-6, Triethylbenzylammoniumchlorid, Trimethylbenzylammoniumchlorid.

Als Säurebindemittel zur Durchführung des Herstellungsverfahrens (a) kommen alle üblicherweise verwendbaren anorganischen und organischen Basen in Frage. Vorzugsweise verwendet man Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natriumhydroxid, Natriumcarbonat oder Natriumhydrogencarbonat oder auch tertiäre Amine, wie beispielsweise Triethylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, 4-(N,N-Dimethylamino)-pyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des Herstellungsverfahrens (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man zwischen -20°C und +150°C, vorzugsweise zwischen 0°C und +100°C.

Zur Durchführung des Herstellungsverfahrens (a) setzt man pro Mol 5-Amino-pyrazol der Formel (II) im allgemeinen 1,0 bis 20,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 15,0 Mol an Alkylierungsmittel der Formel (III) und gegebenenfalls 1,0 bis 3,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 2,0 Mol an Säurebindemittel sowie 0,01 bis 1,0 Mol an Phasentransferkatalysator ein. Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte der Formel (I) erfolgt in allgemein üblicher Art und Weise.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) kommen ebenfalls inerte organische oder anorganische Lösungsmittel in Frage.

Insbesondere seien die bei Verfahren (a) aufgezählten organischen Lösungsmittel genannt. Besonders bevorzugt sind Alkohole wie Methanol oder Ethanol oder deren Gemische mit Wasser.

Das Verfahren (b) wird entweder in Gegenwart einer starken Säure wie beispielsweise Salzsäure, Trifluoressigsäure oder Bromwasserstoffsäure in Eisessig oder in Gegenwart einer Base durchgeführt. Als Basen bevorzugt sind wässrige Lösungen von Natriumhydroxid oder Kaliumhydroxid.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +150°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 0°C und +120°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man pro Mol 5-Acylaminopyrazol der Formel (Ia) im allgemeinen 1 bis 30 Mol, vorzugsweise 1 bis 15 Mol, an Säure oder Base ein. Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte der Formel (I) erfolgt in allgemein üblicher Art und Weise.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) kommen ebenfalls inerte organische Lösungsmittel in Frage. Vorzugsweise verwendet man Ether wie beispielsweise Tetrahydrofuran oder Alkohole wie Methanol oder Ethanol.

Als Reduktionsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) kommen komplexe Hydride in Frage. Insbesondere verwendet man Alkalimetallborhydride, wie Lithiumborhydrid oder Natriumborhydrid oder Natriumcyanoborhydrid.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +150°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 0°C und +120°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) setzt man pro Mol Azomethin der Formel (IV) im allgemeinen 1 bis 5 Mol, vorzugsweise 1 bis 2 Mol an komplexem Hydrid ein. Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte der Formel (I) erfolgt in allgemein üblicher Art und Weise.

Die erfindungsgemäß verwendbaren Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäß verwendbaren Wirkstoffe können z. B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitalis, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z. B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen z. B. Forst-, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

Dabei zeigen die erfindungsgemäß verwendbaren Wirkstoffe der Formel (I) neben einer besonders guten allgemeinherbiziden Wirksamkeit auch eine deutlich verbesserte Kulturpflanzen Selektivität in wichtigen Kulturen und können als selektive Unkrautbekämpfungsmittel sowohl in dikotylen Kulturen, wie beispielsweise Baumwollpflanzungen, als auch in monokotylen Kulturen, wie beispielsweise Getreide, verwendet werden. Weiterhin sind die Verbindungen der Formel (I) als Herbizide

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, wirkstoffimprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z. B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z. B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:

Zum Beispiel Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z. B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier- und/oder schaum erzeugende Mittel kommen in Frage: z. B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z. B. Alkylarylpolyglykol-Ether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z. B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z. B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90%.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide wie z. B. 1-Amino-6-ethylthio-3-(2,2-dimethylpropyl)-1,3,5-triazin-2,4(1H,3H)-dion oder N-(2-Benzthiazolyl)-N,N'-dimethylharnstoff zur Unkrautbekämpfung in Getreide; 4-Amino-3-methyl-6-phenyl-1,2,4-triazin-5-(4H)-on zu Unkrautbekämpfung in Zuckerrüben und 4-Amino-6-(1,1-dimethylethyl)-3-methylthio-1,2,4-triazin-5(4H)-on zur Unkrautbekämpfung in Sojabohnen, infrage. Auch Mischungen mit N,N-Dimethyl-N'-(3-trifluormethylphenyl)-harnstoff, N,N-Dimethyl-N'-(3-chlor-4-methylphenyl)-harnstoff, N,N-Dimethyl-N'-(4-isopropylphenyl)-harnstoff, 4-Amino-6-t-butyl-3-ethylthio-1,2,4-triazin-5(4H)-on, 2,4-Dichlorphenoxyessigsäure, 2,4-Dichlorphenoxypropionsäure, (2-Methyl-4-chlorphenoxy)-essigsäure, (4-Chlor-2-methyl-phenoxy)-propionsäure, Chloressigsäure-N-(methoxymethyl)-2,6-diethylanilid, 2-Ethyl-6-methyl-N-(1-methyl-2-methoxyethyl)-chloracetanilid, 2,6-Dinitro-4-trifluor-methyl-N,N-dipropylanilin, Methyl-5-(2,4-dichlorphenoxy)-2-nitrobenzoat; 3,5-Diiod-4-hydroxy-benzonitril; 3-Isopropyl-2,1,3-benzothiadiazin-4-on-2,2-dioxid; 2-Chlor-N-{{(4-methoxy-6-methyl-1,3,5-triazin-2-yl)-amino}-carbonyl}-benzolsulfonamid; 4-Ethylamino-2-t-butyl-amino-6-methylthio-S-triazin oder N-(1-Ethylpropyl)-3,4-dimethyl-2,6-dinitroanilin sind möglich. Einige Mischungen zeigen überraschenderweise auch synergistische Wirkung.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z. B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäß verwendbaren Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken und hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 0,01 und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 0,05 und 5 kg pro ha.

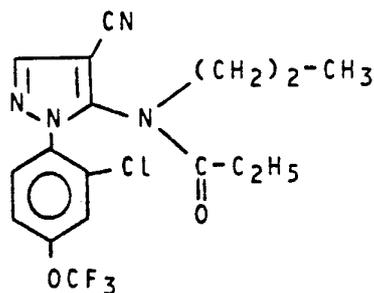
Ausführungsbeispiel

Die Erfindung wird nachstehend an einigen Beispielen näher erläutert.

Aus den nachfolgenden Beispielen geht die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe hervor.

Herstellungsbeispiele

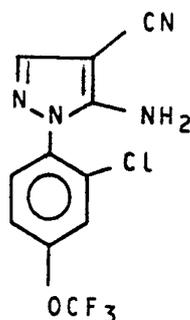
Beispiel 1



(Verfahren a)

Zu 10,8 g (0,03 Mol) 4-Cyano-5-propionylamino-1-(2-chlor-4-trifluormethoxyphenyl)-pyrazol in 100 ml Tetrahydrofuran gibt man 0,8 g (0,033 Mol) Natriumhydrid und nach beendeter Gasentwicklung 10,2 g (0,06 Mol) n-Propyliodid und rührt 48 Stunden bei Rückflußtemperatur. Zur Aufarbeitung wird im Vakuum eingeeengt, der Rückstand in 200 ml Dichlormethan aufgenommen, zweimal mit jeweils 100 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeeengt. Das verbleibende Öl wird säulenchromatographisch gereinigt (Laufmittel: Chloroform/Aceton/ 9:1) und aus Petrolether kristallisiert. Man erhält 8,0 g (66,6% der Theorie) an 4-Cyano-1-(2-chlor-4-trifluormethoxyphenyl)-5-(N-n-propyl-N-propionylamino)-pyrazol vom Schmelzpunkt 83°C.

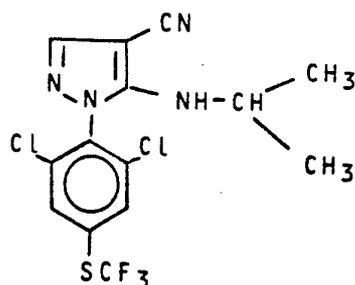
Herstellung der Ausgangsverbindung



3,08 g (0,025 Mol) Ethoxymethylenmalonsäuredinitril und 5,7 g (0,025 Mol) 2-Chlor-4-trifluormethoxy-phenylhydrazin in 50 ml Ethylenglykolmonoethylether werden 3 Stunden unter Rückfluß erhitzt. Nach dem Abkühlen wird das Reaktionsgemisch auf Wasser gegossen, dann wird der kristalline Niederschlag abgesaugt, mit Petrolether verrührt, gekühlt und abermals abgesaugt.

Man erhält 5,3 g (73,6% der Theorie) an 5-Amino-4-cyano-1-(2-chlor-4-trifluormethoxyphenyl)-pyrazol vom Schmelzpunkt 115°C.

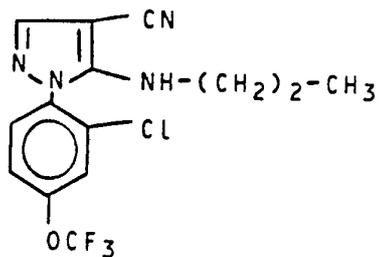
Beispiel 2



Zu 7,0 g (0,02 Mol) 4-Cyano-5-amino-1-(2,6-dichlor-4-trifluormethylthiophenyl)-pyrazol in 150 ml Tetrahydrofuran gibt man 1,4 g (0,062 Mol) Natriumhydrid und nach beendeter Gasentwicklung 17 g (0,1 Mol) i-Propyliodid und rührt 18 Stunden bei Raumtemperatur. Zur Aufarbeitung wird im Vakuum eingeeengt, der Rückstand in 200 ml Dichlormethan aufgenommen, zweimal mit jeweils 100 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum eingeeengt. Der verbleibende Rückstand wird säulenchromatographisch gereinigt (Laufmittel: Chloroform/Aceton = 9:1).

Man erhält 5,2 g (66% der Theorie) an 4-Cyano-1-(2,6-dichlor-4-trifluormethylthio-phenyl)-5-isopropylaminopyrazol vom Schmelzpunkt 130°C.

Beispiel 3

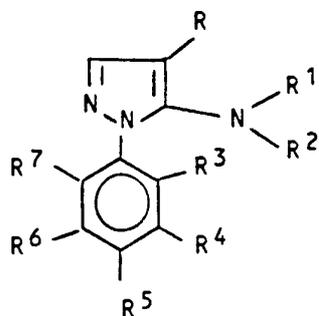


(Verfahren b)

5,0g (0,012 Mol) 1-(2-Chlor-4-trifluormethoxyphenyl)-4-cyano-5-(N-propionyl-N-n-propylamino)-pyrazol in 200ml Methanol werden mit 11,6ml (0,012 Mol) 1-normaler Natronlauge 48 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Zur Aufarbeitung wird im Vakuum eingeeengt, der Rückstand in Dichlormethan aufgenommen, zweimal mit jeweils 100 ml Wasser gewaschen, über Natriumsulfat getrocknet, eingeeengt und der Rückstand aus Petrolether kristallisiert. Man erhält 3,8g (92% der Theorie) an 1-(2-Chlor-4-trifluormethoxyphenyl)-4-cyano-5-n-propylamino-pyrazol vom Schmelzpunkt 63°C.

In entsprechender Weise und gemäß den allgemeinen Herstellungsbeispielen erhält man die folgenden Verbindungen der allgemeinen Formel (I):

Tabelle 2

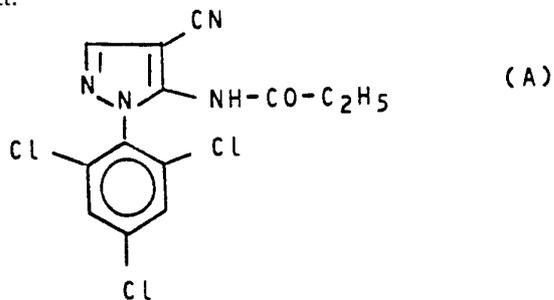


(I)

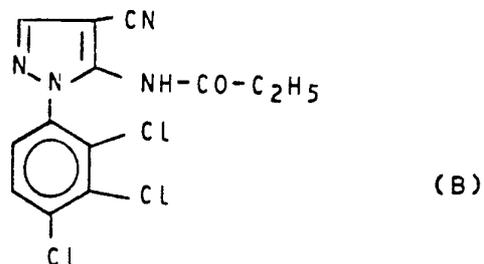
Bsp.	Nr.	R	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	Schmelzpunkt (°C)
	4	CN	CH ₃	CH ₃ OCO-	Cl	H	-OCF ₃	H	H	0el
	5	CN	CH ₃	H	Cl	H	-OCF ₃	H	H	165-166
	6	CN	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅ CO-	Cl	H	-OCF ₃	H	H	68
	7	CN	CH ₃	CH ₃ OCO-	Cl	H	-OCF ₃	H	Cl	0el
	8	CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	-OCF ₃	H	H	78
	9	CN	CH ₃	C ₂ H ₅ CO-	Cl	H	-SO ₂ CF ₃	H	Cl	164
	10	CN	CH ₃	C ₂ H ₅ CO-	Cl	H	-OCF ₃	H	Cl	108
	11	CN	CH ₃	H	Cl	H	-OCF ₃	H	Cl	157-158
	12	CN	CH ₃	C ₂ H ₅ CO-	Cl	H	-SCF ₃	H	Cl	108
	13	CN	CH ₃	H	Cl	H	-SCF ₃	H	Cl	177
	14	CN	CH ₃	H	Cl	H	-SO ₂ CF ₃	H	Cl	52
	15	CN	C ₃ H ₇	H	Cl	H	-SCF ₃	H	Cl	Öl
	16	CN	C ₃ H ₇	C ₃ H ₇	Cl	H	-SCF ₃	H	Cl	Öl
	17	CN	iC ₃ H ₇	H	Cl	H	-OCF ₃	H	H	90
	18	CN	iC ₃ H ₇	H	Cl	H	-OCF ₃	H	Cl	138
	19	CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	-OCF ₃	H	Cl	112
	20	CN	C ₂ H ₅	H	Cl	H	-SCF ₃	H	Cl	114
	21	CN	C ₂ H ₅ OCOCH ₂ -	CH ₃ CO-	Cl	H	-SCF ₃	H	Cl	126
	22	CN	CH ₃ OCOCH-	CH ₃	H	H	-SCF ₃	H	H	85-89

Anwendungsbeispiele

In den folgenden Anwendungsbeispielen werden die nachstehend aufgeführten Verbindungen als Vergleichssubstanzen eingesetzt:



4-Cyano-5-propionylamino-1-(2,4,6-trichlorophenyl)-pyrazol (bekannt aus DE-OS 3226513);



4-Cyano-5-propionylamino-1-(2,3,4-trichlorphenyl)-pyrazol (bekannt aus DE-OS 3226513).

Beispiel

Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffs pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle. Es bedeuten:

0% = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100% = totale Vernichtung

In diesem Beispiel zeigt z. B. die Verbindung gemäß Herstellungsbeispiel (5) eine deutliche Überlegenheit in der Nutzpflanzenselektivität im Vergleich zum Stand der Technik; dies gilt insbesondere für Weizen und Baumwolle.

Beispiel

Post-emergence-Test

Lösungsmittel: Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5–15cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 2000l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

0% = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100% = totale Vernichtung

In diesem Beispiel zeigt z. B. die Verbindung gemäß Herstellungsbeispiel (3) eine deutliche Überlegenheit in der herbiziden Wirkung, ebenso wie in der Nutzpflanzenselektivität im Vergleich zum Stand der Technik. Dies gilt insbesondere für Hafer.
