

(12) Ausschließungspatent

Erteilt gemäß § 17 Absatz 1 Patentgesetz

(19) DD (11) 264 842 A5

4(51) A 01 N 43/30  
A 01 N 43/36  
A 01 N 43/40

AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

(21) AP.A 01 N / 310 860 7  
(31) P3643957.6

(22) 21. 12. 87  
(32) 22. 12. 86

(44) 15.02.89  
(33) DE

(71) siehe (73)

(72) Weißmüller, Joachim, Dr., DE; Berg, Dieter, Dr., AT; Dutzmann, Stefan, Dr. Dipl.-Ing.-Agr., DE; Reinecke, Paul, Dr., DE; Stendel, Wilhelm, Dr., DE

(73) Bayer AG, Leverkusen, DE

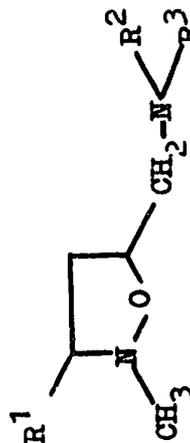
(74) Internationales Patentbüro Berlin, Wallstraße 23/24, Berlin, 1020, DD

(54) Schädlingsbekämpfungsmittel

(55) Schädlingsbekämpfungsmittel, N-Methylisoxazolidine, Anwendungsmengen, Konzentrationen, Wirkungssteigerung, Insektizide, Fungizide

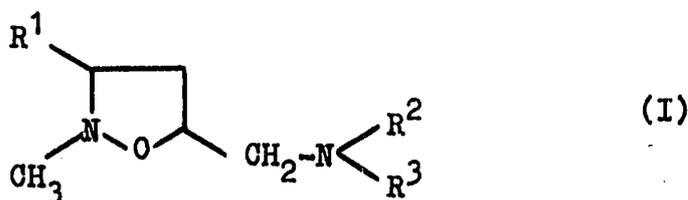
(57) Die Erfindung betrifft Schädlingsbekämpfungsmittel, die substituierte N-Methylisoxazolidine der Formel (I), in welcher R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> die in der Beschreibung gegebenen Bedeutungen haben, deren Säureadditionssalze sowie deren geometrische und optische Isomere als Wirkstoffe enthalten. Formel (I)

(I)



Patentansprüche

1. Schädlingsbekämpfungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem substituierten N-Methylisoxazolidin der allgemeinen Formel (I),



in welcher

- $R^1$  für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Aryl oder Heteroaryl steht,
- $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Cyloalkyl oder Aryl stehen oder gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls substituierten, gesättigten Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome enthalten kann, sowie deren Säureadditionssalze sowie deren geometrische und optische Isomere und Isomerengemische, ausgenommen die Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-yl-methyl)-isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-5-(morpholin-4-ylmethyl)-isoxazolidin, neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln.
2. Mittel gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in der Formel (I)

5           R<sup>1</sup> für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit  
einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden  
10 durch Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituier-  
tes Cycloalkylalkyl mit 3 bis 7 Koh-  
lenstoffatomen im Cycloalkylteil und 1 bis 8  
15 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder ver-  
zweigten Alkylteil oder für gegebenenfalls im  
Arylteil einfach bis mehrfach, gleich oder  
verschieden substituiertes Aralkyl mit 1 bis  
20 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder  
verzweigten Alkylteil und 6 bis 10 Kohlen-  
stoffatomen im Arylteil steht, wobei als Aryl-  
substituenten infrage kommen: Halogen, jeweils  
geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy,  
Alkylthio, Alkoximinoalkyl, Halogenalkyl, Ha-  
25 logenalkoxy oder Halogenalkylthio mit jeweils  
1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen  
Alkylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 glei-  
chen oder verschiedenen Halogenatomen;  
außerdem für gegebenenfalls einfach bis mehr-  
25 fach, gleich oder verschieden durch Alkyl  
mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes  
Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen oder  
für gegebenenfalls einfach bis mehrfach,  
gleich oder verschieden substituiertes Phenyl  
30 steht, wobei als Substituenten infrage kommen:  
Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges  
oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio,  
35

5 Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder  
Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 6  
Kohlenstoffatomen und gegebenenfalls 1 bis 9  
gleichen oder verschiedenen Halogenatomen,  
Amino, jeweils geradkettiges oder verzweigtes  
Alkylamino, Dialkylamino oder Alkoximinoalkyl  
10 mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den  
einzelnen Alkylteilen;  
ferner für jeweils gegebenenfalls einfach bis  
mehrfach, gleich oder verschieden substi-  
tuiertes  $\alpha$ -Naphthyl oder  $\beta$ -Naphthyl steht,  
15 wobei als Substituenten jeweils infrage  
kommen: Halogen, jeweils geradkettiges oder  
verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1  
bis 4 Kohlenstoffatomen und schließlich für  
einen gegebenenfalls einfach bis mehrfach,  
20 gleich oder verschieden durch Alkyl mit 1 bis  
6 Kohlenstoffatomen und/oder Halogen  
substituierten 5-Ring- oder 6-Ring-  
Heteroarylrest mit 1 oder 2 Heteroatomen  
steht und  
25

$R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander jeweils für  
Wasserstoff, für jeweils geradkettiges oder  
verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoff-  
30 atomen, Hydroxyalkyl mit 2 bis 8 Kohlenstoff-  
atomen oder Alkoxyalkyl mit 3 bis 8 Kohlen-  
stoffatomen, für geradkettiges oder verzweig-  
tes Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für  
gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich  
oder verschieden durch niederes Alkyl mit 1  
35 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder Halogen sub-

- 5 stituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aralkyl oder Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und
- 10 gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil stehen, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1
- 15 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder
- 20  $R^2$  und  $R^3$  gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituierten, gesättigten 5- bis
- 25 7-gliedrigen Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome, enthalten kann, wobei als Substituenten infrage kommen: jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Hydroxyalkyl mit jeweils 1 bis 4
- 30 Kohlenstoffatomen;
- 35 sowie deren Säureadditionssalze sowie deren geometrische und optische Isomere und Isomengemische, ausgenommen die Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-yl-methyl)-isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-5-(morpholin-4-yl-methyl)-isoxazolidin.

3. Mittel gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in der Formel (I)

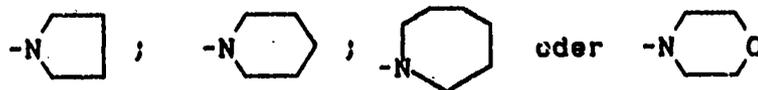
R<sup>1</sup> für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Cyclopentyl oder Cyclohexyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen: geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen;  
außerdem für gegebenenfalls im Phenylteil ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil steht, wobei als Phenylsubstituenten infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Trifluormethoxy oder Methoximinomethyl;  
ferner für gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten n infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Trifluormethyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylthio oder Methoximinomethyl;  
ferner für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes  $\alpha$ -Naphthyl oder  $\beta$ -Naphthyl steht,

5 wobei als Substituenten infrage kommen: Fluor,  
 Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy;  
 10 und außerdem für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden durch Chlor, Brom, Methyl und/oder t-Butyl substituiertes 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl, 2-Thienyl oder 3-Thienyl steht und

15  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, n- oder i-Pentyl, n- oder i-Hexyl, Allyl, n- oder i-Butenyl, n- oder i-Pentenyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methoxypropyl, Ethoxypropyl, Propoxypropyl, für Cyclopropylmethyl, Dichlorcyclopropylmethyl, für Dichlordimethylcyclopropylmethyl, für Dimethylcyclopropylmethyl oder  
 20 Cyclohexyl oder für gegebenenfalls ein- bis dreifach gleich oder verschieden durch Chlor oder Methyl substituiertes Phenyl stehen oder

25  $R^2$  und  $R^3$  gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder verschieden substituierten Heterocyclus der Formel

30



35 stehen, wobei als Substituenten infrage kommen: Methyl, Ethyl, Hydroxymethyl,

sowie deren Säureadditionssalze sowie deren geometrische und optische Isomere und Isomerenmische, ausgenommen die Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-yl-methyl)-isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-5-(morpholin-4-yl-methyl)-isoxazolidin.

4. Verwendung von substituierten N-Methylisoxazolidinen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie zur Bekämpfung von Schädlingen eingesetzt werden.
5. Verfahren zur Bekämpfung von Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte N-Methyl-isoxazolidine der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf Schädlinge oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
6. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte N-Methyl-isoxazolidine der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
7. Verwendung von substituierten N-Methylisoxazolidinen der Formel (I) gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß sie zur Bekämpfung von Pilzen eingesetzt werden.
8. Verwendung von substituierten N-Methylisoxazolidinen der Formel (I) gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß sie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen eingesetzt werden.

264 842

- 1 -

Berlin, den 21.12.1987  
69 441/18

## Schädlingsbekämpfungsmittel

### Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft Schädlingsbekämpfungsmittel, die neue substituierte N-Methylisoxazolidine als Wirkstoffe enthalten.

### Charakteristik des bekannten Standes der Technik

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Isoxazolidine, wie beispielsweise das 5-Benzyl-5-ethoxycarbonyl-2-t-butylisoxazolidin, insektizide und fungizide Wirksamkeit besitzen (vgl. z. B. DE-OS 34 18 935).

Die Wirksamkeit dieser vorbekannten Verbindungen ist jedoch insbesondere bei niedrigen Aufwandmengen und Konzentrationen nicht in allen Anwendungsgebieten völlig zufriedenstellend.

Weiterhin sind bestimmte substituierte N-Methylisoxazolidine, wie beispielsweise das 2-Methyl-3-phenyl-5-(1-piperidinylmethyl)-isoxazolidin oder das 2-Methyl-3-phenyl-5-(4-morpholinylmethyl)-isoxazolidin bekannt (vgl. Japan. Pat. JP 43/14 215 vom 15.06.1968). Über eine Wirksamkeit dieser vorbekannten Verbindungen gegen Schädlinge ist bisher nichts bekannt.

### Ziel der Erfindung

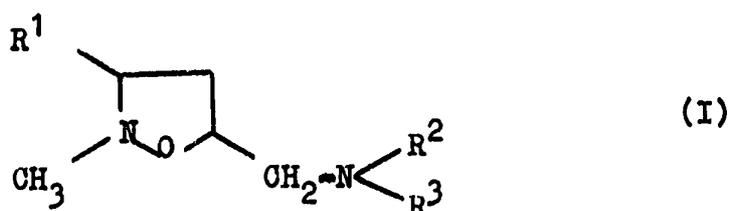
Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen N-Methyl-

21087-48277

isoxazolidine eine erheblich bessere Wirksamkeit gegen Insekten und pilzliche Schaderreger als die aus dem Stand der Technik bekannten Isoxazolidine, wie beispielsweise das 5-Benzyl-5-ethoxycarbonyl-2-t-butyl-is-oxazolidin, welches chemisch und wirkungsgemäß naheliegende Verbindungen sind.

#### Darlegung des Wesens der Erfindung

Es wurden neue substituierte N-Methylisoxazolidine der allgemeinen Formel (I),



in welcher

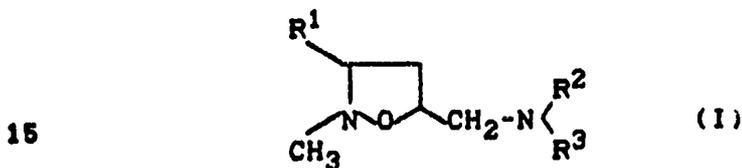
$R^1$  für jeweils gegebenenfalls substituierte Alkyl, Cycloalkyl, Aryl oder Heteroaryl steht,

$R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Cyloalkyl und Aryl stehen oder gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls substituierten, gesättigten Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls weitere Heteroatome enthalten kann, sowie deren Säureadditionssalze, ausgenommen die Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-yl-methyl)isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-5-(morpholin-4-ylmethyl)-isoxazolidin.

Die Verbindungen der Formel (I) können gegebenenfalls als geometrische und/oder optische Isomere oder Isomerengemische unterschiedlicher Zusammensetzung an-

5 fallen. Sowohl die reinen Isomeren als auch die Iso-  
merengemische werden erfindungsgemäß unter der Formel  
(I) beansprucht. Im folgenden wird immer von der Formel  
(I) gesprochen, wobei alle Formen eingeschlossen sind.

10 Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen substitu-  
ierten N-Methylisoxazolidine der allgemeinen Formel  
(I),



in welcher

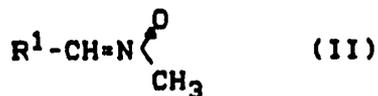
20 R<sup>1</sup> für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl,  
Cycloalkyl, Aryl oder Heteroaryl steht und

25 R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> unabhängig voneinander jeweils für Wasser-  
stoff, für jeweils gegebenenfalls substituier-  
tes Alkyl, Alkenyl, Cycloalkyl oder Aryl ste-  
hen oder gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an  
welches sie gebunden sind, für einen gegebe-  
nenfalls substituierten, gesättigten Hetero-  
cyclus stehen. Der gegebenenfalls weitere  
30 Heteroatomer enthalten kann, ausgenommen die  
Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-  
yl-methyl)-isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-  
5-(morpholin-4-yl-methyl)-isoxazolidin,

35 sowie deren Säureadditionssalze erhält, wenn man

(a) Nitronne der Formel (II),

5



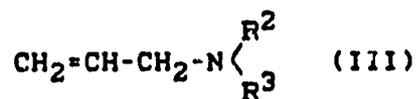
10

in welcher

$R^1$  die oben angegebene Bedeutung hat,

15

mit Allylaminen der Formel (III),



20

in welcher

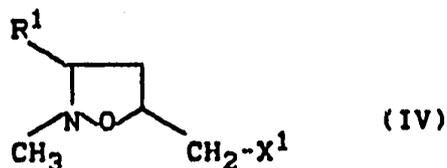
$R^2$  und  $R^3$  die oben angegebene Bedeutung haben,

25

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt, oder wenn man

(b) Isoxazolidine der Formel (IV),

30



35

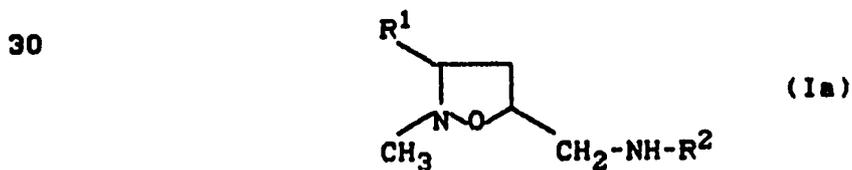
5 in welcher  
R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung hat und  
X<sup>1</sup> für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe  
steht,

10 mit Aminen der Formel (V),



in welcher  
20 R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,  
gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels,  
und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels  
sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators  
umsetzt oder wenn man

25 (c) die nach Verfahren (a) oder (b) erhältlichen substituierten N-Methylisoxazolidine der Formel (Ia),



35 in welcher

$R^1$  und  $R^2$  die oben angegebene Bedeutung haben, mit Alkylierungsmitteln der Formel (VI),



in welcher

$R^{3-1}$  für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkyl oder Cycloalkyl steht und

$X^2$  für eine elektronenanziehende Abgangsgruppe steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittel sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umgesetzt und gegebenenfalls anschließend eine Säure addiert.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen substituierten N-Methylisoxazolidine gute Wirkung gegen Schädlinge besitzen.

Die erfindungsgemäßen substituierten N-Methylisoxazoli-  
dine sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Be-  
vorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R<sup>1</sup> für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis  
18 Kohlenstoffatomen, für gegebenenfalls einfach  
bis mehrfach, gleich oder verschieden durch Alkyl  
mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Cyclo-  
alkylalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cyclo-  
alkylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im gerad-  
kettigen oder verzweigten Alkylteil oder für gege-  
benenfalls im Arylteil einfach bis mehrfach, gleich  
oder verschieden substituiertes Aralkyl mit 1 bis  
8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweig-  
ten Alkylteil und 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im  
Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten infrage  
kommen: Halogen, jeweils geradkettiges oder ver-  
zweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkoximinoalkyl,  
Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylthio  
mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den ein-  
zelnen Alkylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 glei-  
chen oder verschiedenen Halogenatomen;  
außerdem für gegebenenfalls einfach bis mehrfach,  
gleich oder verschieden durch Alkyl mit 1 bis 6  
Kohlenstoffatomen substituiertes Cycloalkyl mit 3  
bis 7 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls  
einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden sub-  
stituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten  
infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, jeweils ge-  
radkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkyl-

35

5 thio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, Amino, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in  
10 den einzelnen Alkylteilen;  
ferner für jeweils gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes  $\alpha$ -Naphthyl oder  $\beta$ -Naphthyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Halogen, jeweils  
15 geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen; und schließlich für einen gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden durch Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder Halogen substituierten  
20 5-Ring- oder 6-Ring-Heteroarylrest mit 1 oder 2 Heteroatomen, insbesondere Stickstoff, Sauerstoff oder Schwefel steht und

25  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, Hydroxyalkyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen oder Alkoxyalkyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder  
30 verschieden durch Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder Halogen substituiertes

35

- 5 Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aralkyl oder Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und gegebenenfalls
- 10 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil stehen, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Halogen, Cyano, Nitro, sowie jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio oder
- 15 Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder
- 20  $R^2$  und  $R^3$  gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituierten, gesättigten 5- bis 7-gliedrigen Heterocyclus stehen, der gegebenenfalls
- 25 weitere Heteroatome, insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel enthalten kann, wobei als Substituenten infrage kommen:
- 30 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Hydroxyalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, sowie deren Säureadditionssalze, ausgenommen die Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-yl-methyl)-isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-5-(morpholin-4-yl-methyl)-isoxazolidin.
- 35

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

R<sup>1</sup> für jeweils gegebenenfalls ein- bis dreifach,  
gleich oder verschieden substituiertes Cyclopentyl  
oder Cyclohexyl steht, wobei als Substituenten in-  
10 frage kommen: geradkettiges oder verzweigtes Alkyl  
mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen;  
außerdem für gegebenenfalls im Phenylteil ein- bis  
dreifach, gleich oder verschieden substituiertes  
Phenylalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im ge-  
15 radkettigen oder verzweigtem Alkylteil steht, wobei  
als Phenylsubstituenten infrage kommen: Fluor,  
Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-,  
i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Trifluorme-  
thoxy oder Methoximinomethyl;  
20 ferner für gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich  
oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei  
als Substituenten infrage kommen: Fluor, Chlor,  
Brom, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1  
bis 6 Kohlenstoffatomen, Methoxy, Ethoxy, n- oder  
25 i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Trifluorme-  
thyl, Trifluormethoxy, Trifluormethylthio oder Me-  
thoximinomethyl;  
ferner für jeweils gegebenenfalls ein- bis drei-  
fach, gleich oder verschieden substituiertes  $\alpha$ -

30

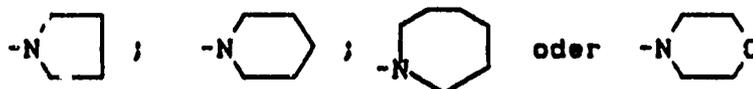
35

5 Naphthyl oder  $\beta$ -Naphthyl steht, wobei als Substi-  
tuenten infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Methyl,  
Ethyl, Methoxy oder Ethoxy; und außerdem für je-  
weils gegebenenfalls ein- bis dreifach, gleich oder  
verschieden durch Chlor, Brom, Methyl und/oder t-  
10 Butyl substituiertes 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyri-  
dyl, 2-Thienyl oder 3-Thienyl steht und

$R^2$  und  $R^3$  unabhängig voneinander jeweils für Wasser-  
stoff, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-,  
i-, s- oder t-Butyl, n- oder i-Pentyl, n-oder  
15 i-Hexyl, Allyl, n- oder i-Butenyl, n- oder i-  
Pentenyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Ethoxy-  
ethyl, Methoxypropyl, Ethoxypropyl, Propoxy-  
propyl, für Cyclopropylmethyl, Dichlorcyclo-  
propylmethyl, für Dichlordimethylcyclopropyl-  
20 methyl, für Dimethylcyclopropylmethyl oder Cy-  
clohexyl oder für gegebenenfalls ein- bis  
dreifach, gleich oder verschieden durch Chlor  
oder Methyl substituiertes Phenyl stehen oder

25  $R^2$  und  $R^3$  gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an welches  
sie gebunden sind, für einen gegebenenfalls  
ein- bis dreifach, gleich oder verschieden  
substituierten Heterocyclus der Formel

30



35

5

stehen, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Methyl, Ethyl, Hydroxymethyl; sowie deren Säureadditionssalze, ausgenommen die Verbindungen 2-Methyl-3-phenyl-5-(piperidin-1-yl-methyl)isoxazolidin und 2-Methyl-3-phenyl-5-(morpholin-4-yl-methyl)-isoxazolidin.

10

Bevorzugte erfindungsgemäße Verbindungen sind auch Additionsprodukte aus Säuren und denjenigen Aminomethylisoxazolidinen der Formel (I), in denen die Substituenten  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  die Bedeutung haben, die bereits vorzugsweise für diese Substituenten genannt wurden.

15

Zu den Säuren, die addiert werden können, gehören vorzugsweise Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. Chlorwasserstoffsäure und Bromwasserstoffsäure, insbesondere Chlorwasserstoffsäure, ferner Phosphorsäure, Salpetersäure, mono-, bi- und trifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren, wie z.B. Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Zitronensäure, Salicylsäure, Sorbinsäure und Milchsäure, ferner Sulfonsäuren, wie p-Toluolsulfonsäure und 1,5-Naphthalindisulfonsäure sowie Saccharin.

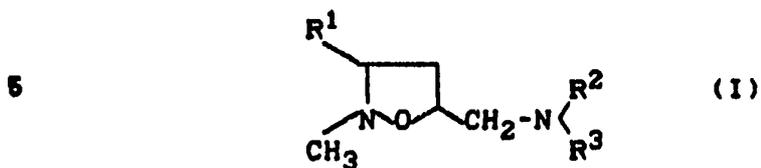
20

25

30

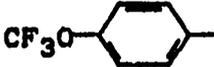
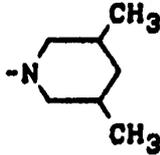
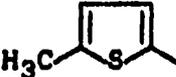
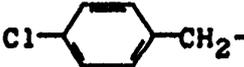
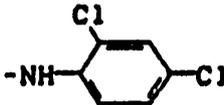
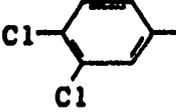
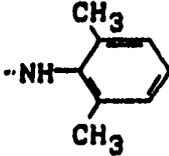
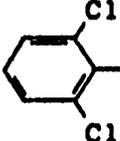
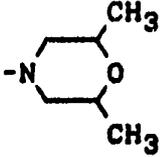
Im einzelnen seien außer den bei den Herstellungsbeispielen genannten Verbindungen die folgenden substituierten N-Methylisoxazolidine der allgemeinen Formel (I) genannt:

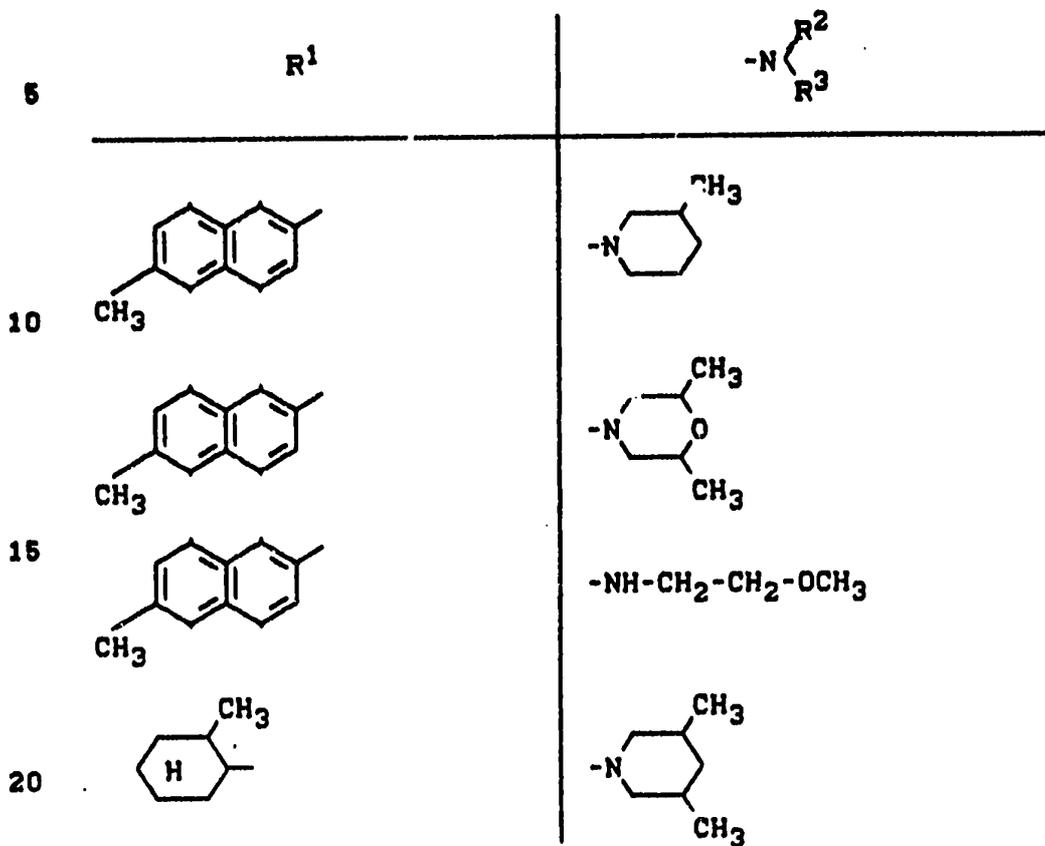
35



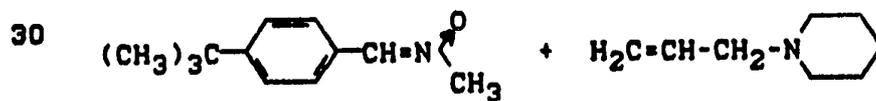
10	R <sup>1</sup>	-N $\begin{matrix} R^2 \\ R^3 \end{matrix}$
15		
20		
25		
30		

35

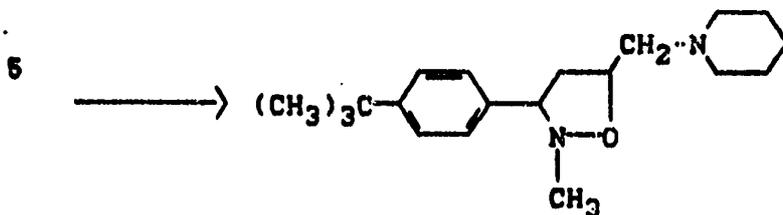
5	$R^1$	$-N \begin{matrix} R^2 \\ R^3 \end{matrix}$
		
10		
15		$-NH-CH_2-CH_2-CH_2-OC_2H_5$
		
20		
25		$-NH-CH_2-CH_2-CH_2-CH_3$
30		
		$-NH-CH_2-CH_2-CH_3$
35		



25 Verwendet man beispielsweise N-Methyl-4-t-butylbenzyl-  
nitron und N-Allylpiperidin als Ausgangsstoffe, so läßt  
sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Ver-  
fahrens (a) durch das folgende Formelschema darstellen:

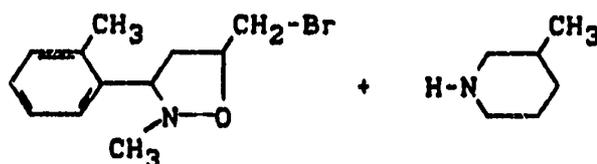


35

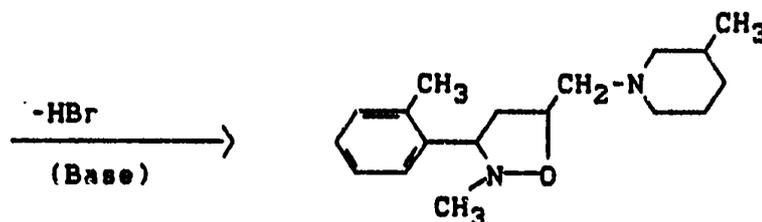


10 Verwendet man beispielsweise 5-Brommethyl-2-methyl-3-(2-methylphenyl)-isoxazolidin und 3-Methylpiperidin als Ausgangsstoffe, so lässt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema darstellen:

15

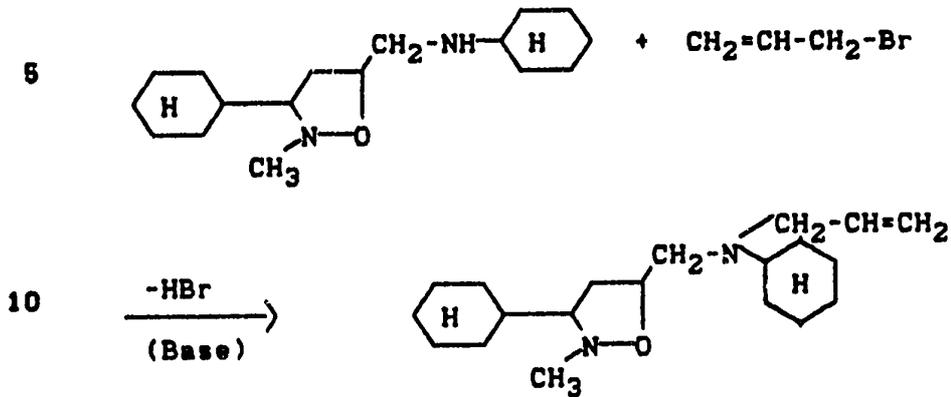


20



30 Verwendet man beispielsweise 2-Methyl-3-cyclohexyl-5-(N-cyclohexylaminomethyl)-isoxazolidin und Allylbromid als Ausgangsstoffe, so lässt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema darstellen:

35



15 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens  
(a) als Ausgangsstoffe benötigten Nitron sind durch die  
Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II)  
steht  $R^1$  vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits  
im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsge-  
mäßigen Stoffe der Formel (I) für diesen Substituenten  
20 genannt wurden.

Die Nitron der Formel (II) sind größtenteils bekannt  
(vgl. z.B. J. org. Chem. 32, 261 [1969]; Chem. Ber. 101,  
2548 [1968]; Synthesis 1974, 478; Tetrahedron Lett. 26,  
25 4331 [1985]) oder lassen sich in Analogie zu bekannten  
Verfahren erhalten (vgl. z.B. Houben-Weyl "Methoden der  
organischen Chemie" Band X, 4; 4. Auflage, Thieme Verlag  
Stuttgart 1968, S. 328 oder Helv. Chim. Acta 55, 2187  
30 [1972]), beispielsweise wenn man Aldehyde der Formel  
(VII),



35

in welcher

5

$R^1$  die oben angegebene Bedeutung hat,

mit N-Methylhydroxylamin der Formel (VIII),

10



oder dessen Hydrochlorid in Gegenwart einer Base, wie beispielsweise Kaliumhydroxid bei Temperaturen zwischen + 20 °C und 120 °C umgesetzt.

15

Das N-Methylhydroxylamin der Formel (VIII) ebenso wie die Aldehyde der Formel (VII) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie oder erhältlich in Analogie zu allgemein bekannten Verfahren (vgl. auch Liebigs Ann. Chem. 1979, 1585).

20

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Allylamine sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) stehen  $R^2$  und  $R^3$  vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Substituenten genannt wurden.

25

30 Die Allylamine der Formel (III) sind ebenfalls allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

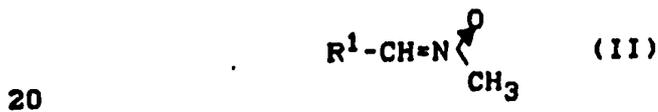
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe benötigten Isoxazolidine sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser

35

5 Formel (IV) steht  $R^1$  vorzugsweise für diejenigen Reste,  
die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der  
erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diesen  
Substituenten genannt wurden.

10  $X^1$  steht vorzugsweise für Halogen, insbesondere für  
Chlor oder Brom, oder für gegebenenfalls substituiertes  
Alkylsulfonyloxy oder Arylsulfonyloxy, wie beispielswei-  
se Methansulfonyloxy oder p-Toluolsulfonyloxy.

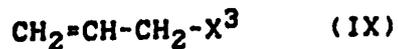
15 Die Isoxazolidine der Formel (IV) sind noch nicht be-  
kannt. Man erhält sie in Analogie zum erfindungsgemäßen  
Verfahren (a), wenn man Nitronen der Formel (II),



in welcher

25  $R^1$  die oben angegebene Bedeutung hat,

mit Allylhalogeniden oder Allylalkohol der Formel (IX),



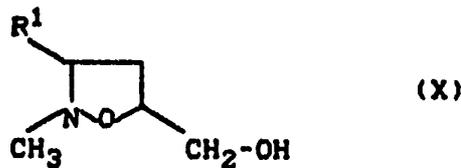
30 in welcher

$X^3$  für Hydroxy oder Halogen, insbesondere für Hydroxy,  
Chlor oder Brom steht,

35

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels,  
5 wie beispielsweise Toluol bei Temperaturen zwischen 60°C  
und 140 °C umsetzt und in den Fällen, wo X<sup>3</sup> für Hydroxy  
steht, die so erhältlichen Hydroxymethylisoxazolidine  
der Formel (X),

10



15

in welcher

R<sup>1</sup> die oben angegebene Bedeutung hat,

20

in einer 2. Stufe mit Sulfonylhalogeniden der Formel  
(XI),



25

in welcher

X<sup>4</sup> für Halogen, insbesondere für Chlor oder Brom steht  
und

30

R<sup>4</sup> für gegebenenfalls substituiertes Alkyl oder Aryl,  
wie beispielsweise Methyl oder p-Tolyl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels,  
wie beispielsweise Dichlormethan und gegebenenfalls in  
35 Gegenwart eines basischen Reaktionshilfsmittels, wie

5 beispielsweise Triethylamin bei Temperaturen zwischen 10 °C und 60 °C umsetzt.

10 Die Allylhalogenide bzw. der Allylalkohol der Formel (IX) und die Sulfonylhalogenide der Formel (XI) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

15 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Amine sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) stehen  $R^2$  und  $R^3$  vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Substituenten genannt wurden.

20 Die Amine der Formel (V) sind ebenfalls allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.

25 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) als Ausgangsstoffe benötigten substituierten N-Methylisoxazolidine sind durch die Formel (Ia) allgemein definiert. In dieser Formel (Ia) stehen  $R^1$  und  $R^2$  vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Substituenten genannt wurden.

30 Die substituierten N-Methylisoxazolidine der Formel (Ia) sind erfindungsgemäße Verbindungen und erhältlich mit Hilfe der erfindungsgemäßen Verfahren (a) und (b).

35

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens  
5 (c) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Alkylierungsmittel sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) steht  $R^{3-1}$  vorzugsweise für  
jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis  
8 Kohlenstoffatomen, Hydroxyalkyl mit 2 bis 8 Kohlen-  
10 stoffatomen oder Alkoxyalkyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für gegebenenfalls einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden durch Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder Halogen substituier-  
15 tes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen oder für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aralkyl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil,  
20 wobei als Aryl-Substituenten jeweils genannt seien: Halogen, Cyano, Nitro, sowie jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Al-  
25 kylteilen und gegebenenfalls 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen.

$R^{3-1}$  steht insbesondere für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, n- oder i-Pentyl, n- oder i-Hexyl, Allyl, n- oder i-Butenyl, n- oder i-  
30 Pentenyl, Hydroxypropyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl,

35

5 Methoxypropyl, Ethoxypropyl, Propoxypropyl oder Cyclo-  
hexyl, für Cyclopropylmethyl, Dichlorcyclopropylmethyl,  
Dimethylcyclopropylmethyl oder Dichlordimethylcyclopro-  
pylmethyl.  $X^2$  steht vorzugsweise für Halogen, insbeson-  
dere für Chlor oder Brom oder für gegebenenfalls sub-  
stituiertes Alkylsulfonyloxy oder Arylsulfonyloxy, wie  
10 beispielsweise Methansulfonyloxy oder p-Toluolsulfonyl-  
oxy.

Die Alkylierungsmittel der Formel (VI) sind ebenfalls  
allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie.  
15

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsge-  
mäßigen Verfahrens (a) kommen inerte organische Lösungs-  
mittel infrage.

20 Hierzu gehören insbesondere aliphatische oder aroma-  
tische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe,  
wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlor-  
benzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan,  
Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Ether, wie Diethyl-  
25 ether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldi-  
methyl- oder diethylether, Ketone, wie Aceton oder Buta-  
non, Nitrile, wie Acetonitril oder Propionitril, Amide,  
wie Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylformani-  
lid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäure-  
30 triamid, Ester, wie Essigsäureethylester oder Sulfoxide,  
wie Dimethylsulfoxid.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung  
des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) in einem größeren  
35

5 Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei  
Temperaturen zwischen 20 °C und 150 °C, vorzugsweise bei  
Temperaturen zwischen 40 °C und 140 °C.

10 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a)  
setzt man pro Mol an Nitron der Formel (II) im allge-  
meinen 0,8 bis 1,3 Mol, vorzugsweise äquimolare Mengen  
an Allylamin der Formel (III) ein.

15 Es ist auch möglich, die als Vorprodukte benötigten  
Nitrone der Formel (II) in einer vorgelagerten Reaktion  
aus den Aldehyden der Formel (VII) mit N-Methylhydroxyl-  
amin der Formel (VIII) direkt im Reaktionsgefäß herzu-  
stellen und in einer "Eintopfreaktion" ohne Isolierung  
gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren (a) weiter umzu-  
setzen.

20

Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung  
der Reaktionsprodukte der Formel (I) erfolgt mit Hilfe  
üblicher Methoden in Analogie zu bekannten Verfahren.

25 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsge-  
mäßigen Verfahren (b) und (c) kommen inerte organische  
Lösungsmittel oder wäßrige Systeme infrage.

30 Hierzu gehören insbesondere aliphatische oder aroma-  
tische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe,  
wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlor-  
benzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan,  
Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Ether, wie Diethyl-  
ether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldime-

35

5 thyl oder -diethylether, Ketone, wie Aceton oder Butanon, Nitrile, wie Acetonitril oder Propionitril, Amide, wie Dimethylformamid, Dimethylacetamid, N-Methylfermanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid, Ester, wie Essigsäureethylester oder Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid.

10

Es ist auch möglich die erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) ohne Zusatz eines Lösungsmittels durchzuführen.

15

Die erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) können 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, Tributyl-methylphosphoniumbromid, Trimethyl-C<sub>13</sub>/C<sub>15</sub>-alkylammoniumchlorid, Dibenzoldimethylammoniummethylsulfat, Dimethyl-C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-alkyl-benzylammoniumchlorid, Tetrabutylammoniumhydroxid, 15-Krone-5, 18 Krone-6, Triethylbenzylammoniumchlorid oder Trimethylbenzylammoniumchlorid.

25

Als Säurebindemittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (c) kommen alle üblicherweise verwendbaren anorganischen und organischen Basen infrage. Vorzugsweise verwendet man Alkalimetallhydroxide, 30 -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydroxid, Natriumcarbonat oder Natriumhydrogencarbonat oder auch tertiäre Amine, wie beispielweise Triethylamin, N,N-Dimethylanilin, Pyridin, 4-(N,N-

35

Dimethylamino)-pyridin, Diazabicyclooctan (DABCO),  
5 Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Es ist auch möglich, die als Reaktionsteilnehmer ver-  
wendeten Amine der Formeln (V) bzw. (Ia) in entsprechen-  
dem Überschuß gleichzeitig als Säurebindemittel einzu-  
10 setzen.

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

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b)  
20 setzt man pro Mol an Isoxazolidin der Formel (IV) im  
allgemeinen 1,0 bis 3,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 1,5  
Mol an Amin der Formel (V) und gegebenenfalls 1,0 bis  
3,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 1,5 Mol an Säurebinde-  
mittel, sowie gegebenenfalls 0,1 bis 1,0 Mol an Phasen-  
25 transferkatalysator ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c)  
setzt man pro Mol an substituiertem N-Methylisoxazolidin  
der Formel (Ia) im allgemeinen 1,0 bis 5,0 Mol, vorzugs-  
30 weise 1,0, bis 2,0 Mol an Alkylierungsmittel und 1,0 bis  
5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 2,0 Mol an Säurebindemit-  
tel, sowie gegebenenfalls 0,1 bis 1,0 Mol an Phasen-  
transferkatalysator ein.

35

5 Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung  
der Reaktionsprodukte der Formel (I) erfolgt in beiden  
Fällen nach üblichen Methoden.

10 Zur Herstellung von Säureadditionssalzen der Verbindungen  
der Formel (I) kommen vorzugsweise folgende  
Säuren infrage: Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B.  
Chlorwasserstoffsäure und Bromwasserstoffsäure,  
insbesondere Chlorwasserstoffsäure, ferner Phosphor-  
säure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono-, bi- und  
trifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonsäuren,  
15 wie z.B. Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure,  
Fumarsäure, Weinsäure, Zitronensäure, Salicylsäure,  
Sorbinsäure, Milchsäure, sowie Sulfonsäuren, wie z.B.  
p-Toluolsulfonsäure und 1,5-Naphthalindisulfonsäure  
sowie Saccharin.

20

Die Säureadditionssalze der Verbindungen der Formel (I)  
können in einfacher Weise nach üblichen Salzbildungs-  
methoden, wie z.B. durch Lösen einer Verbindung der For-  
mel (I) in einem geeigneten inerten Lösungsmittel und  
25 Hinzufügen der Säure, wie z.B. Chlorwasserstoffsäure,  
erhalten werden und in bekannter Weise, z.B. durch Ab-  
filtrieren, isoliert und gegebenenfalls durch Waschen  
mit einem inerten organischen Lösungsmittel gereinigt  
werden.

30

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen eine starke  
Wirkung gegen Schädlinge auf und können zur Bekämpfung  
von unerwünschten Schadorganismen praktisch eingesetzt

35

werden. Die Wirkstoffe sind für den Gebrauch u.a. als  
5 Pflanzenschutzmittel insbesondere als Fungizide ge-  
eignet.

Fungizide Mittel im Pflanzenschutz werden eingesetzt zur  
Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytri-  
10 diomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes,  
Deuteromycetes.

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger  
von pilzlichen Erkrankungen, die unter die oben aufge-  
15 zählten Oberbegriffe fallen, genannt:

- Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;  
Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora*  
*infestans*;  
20 Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise  
*Pseudoperonospora humuli* oder *Pseudoperonospora*  
*cubensis*;  
Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara*  
*viticola*;  
25 Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi*  
oder *P. brassicae*;  
Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;  
Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca*  
*fuliginea*;  
30 Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leuco-*  
*tricha*;  
Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;  
Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres*  
oder *P. graminum*

35

- (Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);  
5 Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus  
sativus  
(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);  
Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces  
appendiculatus;  
10 Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;  
Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;  
Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder  
Ustilago avenae;  
Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia  
15 sasakii;  
Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia  
oryzae;  
Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;  
Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;  
20 Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum;  
Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria  
nodorum;  
Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora  
canescens;  
25 Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria  
brassicae;  
Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise  
Pseudocercospora herpotrichoides.  
30 Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den  
zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Kon-  
zentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen  
Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des  
Bodens.

35

5 Dabei zeigen die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eine be-  
sonders breite fungizide Wirksamkeit und lassen sich mit  
besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Getreidekrank-  
heiten, wie beispielsweise gegen den Erreger des echten  
Gerstenmehltaus (*Erysiphe graminis*), gegen den Erreger  
der Braunspeligkeit des Weizens (*Leptosphaeria nodorum*)  
10 oder gegen den Erreger der Blattfleckenkrankheit am Reis  
(*Pyricularia oryzae*) oder zur Bekämpfung von Krankheiten  
im Obstbau, wie beispielsweise gegen den Erreger des Ap-  
felschorfes (*Venturia inaequalis*) einsetzen. Dabei ist  
hervorzuheben, daß die erfindungsgemäßen Wirkstoffe  
15 nicht nur protektive sondern auch kurative Eigenschaften  
besitzen.

Darüber hinaus eignen sich die Wirkstoffe zur Bekämpfung  
von tierischen Schädlingen, vorzugsweise Arthropoden,  
20 insbesondere Insekten und Spinnentieren, die in der  
Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Material-  
schutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind  
gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen  
alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den  
25 oben erwähnten Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. *Oniscus asellus*, *Arma-  
dillidium vulgare*, *Porcellio scaber*.

30 Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. *Blaniulus guttula-  
tus*.

Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. *Geophilus carpophag-  
us*, *Scutigera spec.*

Aus der Ordnung der Symphyla z.B. *Scutigereilla immacu-  
lata*.

35

Le A 24 945 - Ausland

- Aus der Ordnung der Thysanura z.B. *Lepisma saccharina*.
- 5 Aus der Ordnung der Collembola z.B. *Onychiurus armatus*.  
Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. *Blatta orientalis*,  
*Periplaneta americana*, *Leucophaea maderae*, *Blattella*  
*germanica*, *Acheta domesticus*, *Gryllotalpa* spp., *Locusta*  
*migratoria migratorioides*, *Melanoplus differentialis*,  
10 *Schistocerca gregaria*.  
Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. *Forficula auricularia*.  
Aus der Ordnung der Isoptera z.B. *Reticulitermes* spp..  
Aus der Ordnung der Anoplura z.B. *Phylloxera vastatrix*,  
15 *Pemphigus* spp., *Pediculus humanus corporis*, *Haematopinus*  
spp., *Linognathus* spp.  
Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. *Trichodectes* spp.,  
*Damalinea* spp.  
Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. *Hercinothrips*  
20 *femoralis*, *Thrips tabaci*.
- Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Eurygaster* spp.,  
*Dysdercus intermedius*, *Piesma quadrata*, *Cimex lectularius*,  
*Rhodnius prolixus*, *Triatoma* spp.
- 25 Aus der Ordnung der Homoptera z.B. *Aleurodes brassicae*,  
*Bemisia tabaci*, *Trialeurodes vaporariorum*, *Aphis gossypii*,  
*Brevicoryne brassicae*, *Cryptomyzus ribis*, *Aphis fabae*,  
*Doralis pomi*, *Eriosoma lanigerum*, *Hyalopterus arundinis*,  
*Macrosiphum avenae*, *Myzus* spp., *Phorodon humuli*,  
30 *Rhopalosiphum padi*, *Empoasca* spp., *Euscelis bilobatus*,  
*Nephotettix cincticeps*, *Lecanium corni*, *Saissetia oleae*,  
*Laodelphax striatellus*, *Nilaparvata lugens*,  
*Aonidiella aurantii*, *Aspidiotus hederæ*, *Pseudococcus*  
spp. *Payl'a* spp.
- 35

Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. *Pectinophora gossypiella*, *Bupalus piniarius*, *Cheimatobia brumata*, *Lithocolletis blancardella*, *Hyponomeuta padella*, *Plutella maculipennis*, *Malacosoma neustria*, *Euproctis chrysoorrhoea*, *Lymantria* spp., *Bucculatrix thurberiella*, *Phyllocnistis citrella*, *Agrotis* spp., *Euxoa* spp., *Feltia* spp.,  
10 *Earias insulana*, *Heliothis* spp., *Spodoptera exigua*, *Mamestra brassicae*, *Panolis flammea*, *Prodenia litura*, *Spodoptera* spp., *Trichoplusia ni*, *Carpocapsa pomonella*, *Pieris* spp., *Chilo* spp., *Pyrausta nubilalis*, *Ephestia kuehniella*, *Galleria mellonella*, *Tineola bisselliella*,  
15 *Tinea pellionella*, *Hofmannophila pseudospretella*, *Cacoecia podana*, *Capua reticulana*, *Choristoneura fumiferana*, *Clysis ambiguella*, *Homona magnanima*, *Tortrix viridana*.

Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. *Anobium punctatum*,  
20 *Rhizopertha dominica*, *Acanthoscelides obtectus*, *Hylotrupes bajulus*, *Agelastica alni*, *Leptinotarsa decemlineata*, *Phaedon cochleariae*, *Diabrotica* spp., *Psylliodes chrysocephala*, *Epilachna varivestis*, *Atomaria* spp., *Oryzaephilus surinamensis*, *Anthonomus*  
25 spp., *Sitophilus* spp., *Otiorrhynchus sulcatus*, *Cosmopolites sordidus*, *Ceuthorrhynchus assimilis*, *Hypera postica*, *Dermestes* spp., *Trogoderma* spp., *Anthrenus* spp., *Attagenus* spp., *Lyctus* spp., *Meligethes aeneus*, *Ptinus* spp., *Niptus hololeucus*, *Gibbium psylloides*,  
30 *Tribolium* spp., *Tenebrio molitor*, *Agriotes* spp., *Conoderus* spp., *Melolontha melolontha*, *Amphimallon solstitialis*, *Costelytra zealandica*.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. *Diprion* spp., *Hoplocampa* spp., *Lasius* spp., *Monomorium pharaonis*, *Vespa*  
35 spp.

Aus der Ordnung der Diptera z.B. *Aedes* spp., *Anopheles* spp., *Culex* spp., *Drosophila melanogaster*, *Musca* spp., *Fannia* spp., *Calliphora erythrocephala*, *Lucilia* spp., *Chrysomyia* spp., *Cuterebra* spp., *Gastrophilus* spp., *Hypobosca* spp., *Stomoxys* spp., *Oestrus* spp., *Hypoderma* spp., *Tabanus* spp., *Tannia* spp., *Bibio hortulanus*, *Oscinella frit*, *Phorbia* spp., *Pegomyia hyoscyami*, *Ceratitis capitata*, *Dacus oleae*, *Tipula paludosa*.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. *Xenopsylla cheopis*, *Ceratophyllus* spp..  
Aus der Ordnung der Arachnida z.B. *Scorpio maurus*, *Latrodectus mactans*.

Aus der Ordnung der Acarina z.B. *Acarus siro*, *Argas* spp., *Ornithodoros* spp., *Dermanyssus gallinae*, *Eriophyes ribis*, *Phyllocoptura oleivora*, *Boophilus* spp., *Rhipicephalus* spp., *Amblyomma* spp., *Hyalomma* spp., *Ixodes* spp., *Psoroptes* spp., *Chorioptes* spp., *Sarcoptes* spp., *Tarsonemus* spp., *Bryobia praetiosa*, *Panonychus* spp., *Tetranychus* spp..

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe wirken nicht nur gegen Pflanzen-, Hygiene- und Vorratsschädlinge, sondern auch auf dem veterinär-medizinischen Sektor bei Nutztieren, wie z.B. Rindern, Schafen, Schweinen, Pferden, Ziegen, Büffeln, Kamelen; bei Hobbytieren, wie z.B. Hunden, Katzen; bei sogenannten Labortieren, wie Ratten, Mäusen, Hamstern, Kaninchen sowie bei Bienen; gegen tierische Parasiten (Ektoparasiten), wie Schildzecken, Lederzecken, Räude milben, Laufmilben, Fliegen (stechend und lekkend), parasitierende Fliegenlarven, Läuse, Haarlinge, Federlinge, Flöhe. Sie sind gegen normalsensible und

- 5 resistente Arten und Stämme, sowie auf alle parasitierenden und nichtparasitierenden Entwicklungsstadien der Ektoparasiten wirksam. Insbesondere eignen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe auf diesem Gebiet zur Bekämpfung von Räudemilben (*Psoroptes ovis*).
- 10 Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in übliche Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe, Feinstverkapselungen in polymeren
- 15 Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, ferner in Formulierungen mit Brennsätzen, wie Räucherpatronen, -dosen, -spiralen u.ä., sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.
- 20 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln. Im Falle der
- 25 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, Chloräthylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdöl-
- 35

fraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie  
5 deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethyl-  
keton, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark po-  
lare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethyl-  
sulfoxid, sowie Wasser; mit verflüssigten gasförmigen  
10 Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkei-  
ten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter  
Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie  
Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stick-  
stoff und Kohlendioxid; als feste Trägerstoffe kommen  
15 in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline,  
Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmoril-  
lonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle,  
wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Sili-  
kate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in  
20 Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Ge-  
steine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit so-  
wie synthetische Granulate aus anorganischen und orga-  
nischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material  
wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabak-  
25 stengel; als Emulgier und/oder schaum erzeugende Mittel  
kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emul-  
gatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxy-  
ethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykol-  
Ether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie  
Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage:  
30 z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxy-  
methylcellulose, natürliche und synthetische pulverige,  
35 körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie

- 5 Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kepheline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.
- 10 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.
- 15 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.
- 20 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können bei der Verwendung als Fungizide in den Formulierungen in Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen vorliegen wie Fungiziden, Bakteriziden, Insektiziden, Akariziden, Herbiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Wachststoffen, Pflanzen-
- 25 nährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln.
- 30 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw.. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-
- 35

5 Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

10 Bei der Behandlung von Pflanzenteilen können die Wirkstoffkonzentrationen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden. Sie liegen im allgemeinen zwischen 1 und 0,0001 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 %.

15 Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g je Kilogramm Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 10 g benötigt.

20 Bei Behandlung des Bodens sind Wirkstoffkonzentrationen von 0,00001 bis 0,1 Gew.-%, vorzugsweise von 0,0001 bis 0,02 % am Wirkungsort erforderlich.

25 Bei der Verwendung als Insektizide und Akarizide können die erfindungsgemäßen Wirkstoffe ebenfalls in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit anderen Wirkstoffen, wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbiziden vorliegen. Zu  
30 den Insektiziden zählen beispielsweise Phosphorsäureester, Carbamate, Carbonsäureester, chlorierte Kohlenwasserstoffe, Phenylharnstoffe, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u.a..

35

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können ferner in ihren  
5 handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen  
Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung  
mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindun-  
gen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert  
wird, ohne daß der zugesetzte Synergist selbst aktiv  
10 wirksam sein muß.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formu-  
lierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Be-  
reichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwen-  
15 dungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gew.-% Wirk-  
stoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% lie-  
gen.

Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen  
20 angepaßten üblichen Weise.

Bei der Anwendung gegen Hygiene- und Vorratschädlinge  
zeichnen sich die Wirkstoffe durch eine hervorragende  
Residualwirkung auf Holz und Ton sowie durch eine gute  
25 Alkalistabilität auf gekälkten Unterlagen aus.

Die erfindungsgemäß verwendbaren Wirkstoffe eignen sich  
auch zur Bekämpfung von Insekten, Milben, Zecken usw.  
auf dem Gebiet der Tierhaltung und Viehzucht, wobei  
30 durch die Bekämpfung der Schädlinge bessere Ergebnisse,  
z. B. höhere Milchleistungen, höheres Gewicht, schöneres  
Tierfell, längere Lebensdauer usw. erreicht werden  
können.

35

Die Anwendung der erfindungsgemäß verwendbaren Wirkstoffe geschieht auf diesem Gebiet in bekannter Weise wie durch orale Anwendung in Form von beispielsweise Tabletten, Kapseln, Tränken, Granulaten, durch dermale bzw. äußerliche Anwendung in Form beispielsweise des Tauchens (Dippen), Sprühens (Sprayen), Aufgießens (pour-on and spot-on) und des Einpuderns sowie durch parenterale Anwendung in Form beispielsweise der Injektion sowie ferner durch das "feed-through"-Verfahren. Daneben ist auch eine Anwendung als Formkörper (Halsband, Ohrmarke) möglich.

15

20

25

30

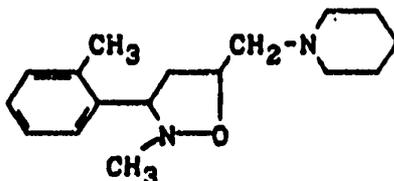
35

Herstellungsbeispiele.

5

Beispiel 1:

10



15 (Verfahren a)

Zu einer Lösung von 17,5 g (0,14 Mol) N-Allylpiperidin in 120 ml Toluol tropft man bei 100 °C eine Lösung von 14,9 g (0,1 Mol) 2-Methylbenzaldehyd-N-methylnitron in 100 ml Toluol. Nach beendeter Zugabe rührt man weitere 16 Stunden bei 110 °C, wäscht die erkaltete Reaktionsmischung mit Wasser, trocknet über Natriumsulfat, engt im Vakuum ein und chromatographiert den Rückstand an Kieselgel (Laufmittel: Petrolether/Essigester 2:1).

25

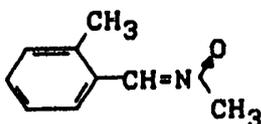
Man erhält 12,5 g (45 % der Theorie) an 2-Methyl-3-(3-methylphenyl)-5-(piperidin-1-yl-methyl)-isoxazolidin vom Brechungsindex  $n_D^{20}$  1,5222.

30

35

Herstellung der Ausgangsverbindung

5

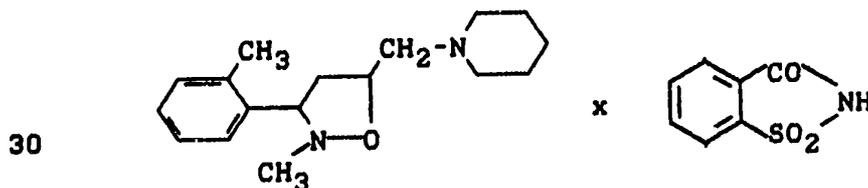


10

Zu einer Lösung von 84 g (1,5 Mol) Kaliumhydroxid in 800 ml Methanol gibt man unter Rühren und Kühlung portionsweise 125,25 g (1,5 Mol) N-Methylhydroxylamin Hydrochlorid und filtriert nach 30 Minuten den ausgefallenen Niederschlag ab. Das Filtrat gibt man zu 120 g (1 Mol) 2-Methylbenzaldehyd in 500 ml Toluol, setzt 400 g Natriumsulfat zu und rührt 16 Stunden bei 80 °C. Zur Aufarbeitung wird filtriert, das Filtrat im Vakuum eingeeengt, der Rückstand in Essigester aufgenommen, über Natriumsulfat getrocknet und im Vakuum vom Lösungsmittel befreit.

Man erhält 134 g (90 % der Theorie) an 2-Methylbenzaldehyd-N-methylnitron vom Brechungsindex  $n_D^{20}$  1.6053.

25 Beispiel 2:

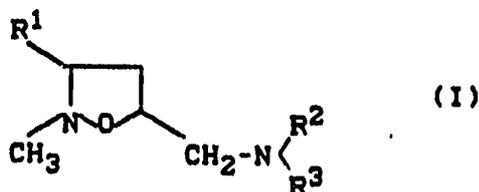


35

5 Zu einer Lösung von 5,3 g (0,02 Mol) 2-Methyl-3-(2-methylphenyl)-5-(1-piperidinylmethyl)-isoxazolidin in 30 ml Aceton gibt man eine Lösung von 3,6 g (0,02 Mol) Saccharin in 50 ml Aceton, rührt 10 Minuten bei Raumtemperatur und entfernt das Lösungsmittel im Vakuum. Man erhält 8,9 g (100 % der Theorie) an 2-Methyl-3-(2-methylphenyl)-5-(piperidin-1-ylmethyl)-isoxazolidin-Saccharinsalz als zähes Öl.

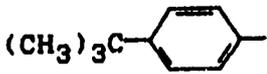
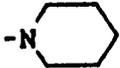
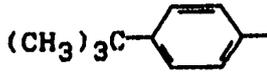
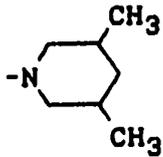
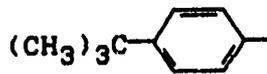
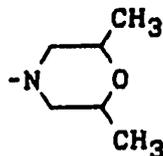
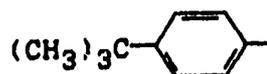
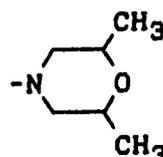
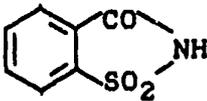
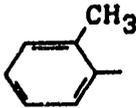
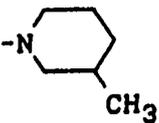
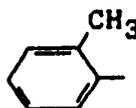
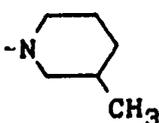
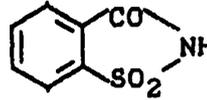
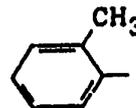
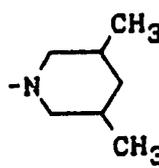
10  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3/\text{TMS}$ ):  $\delta = 4,9 - 5,0$  (m,1H);  $4,7 - 4,8$  (m,1H) ppm.

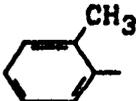
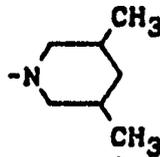
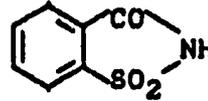
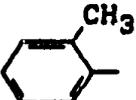
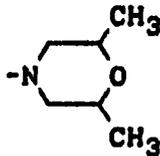
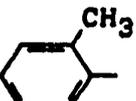
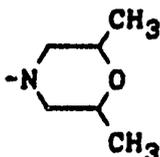
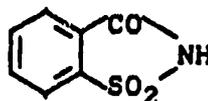
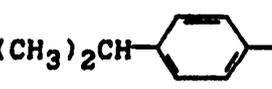
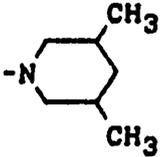
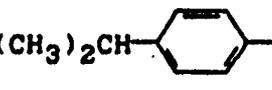
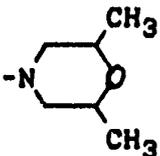
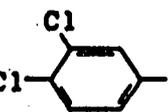
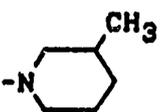
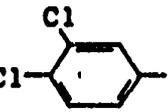
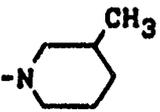
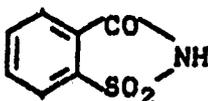
15 In entsprechender Weise und gemäß den allgemeinen Angaben zur Herstellung erhält man die folgenden substituierten N-Methylisoxazolidine der allgemeinen Formel (I):

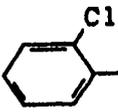
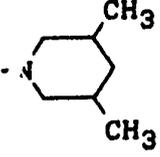
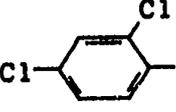
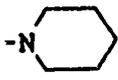
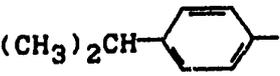
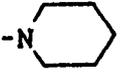
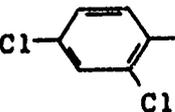
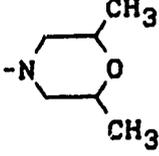
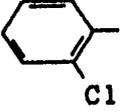
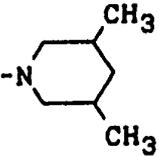
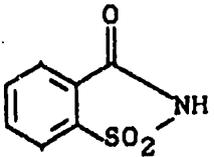
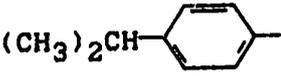
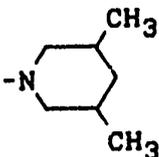
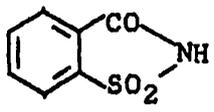
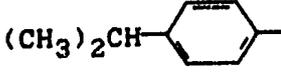
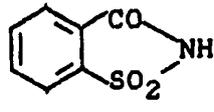
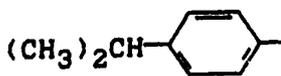
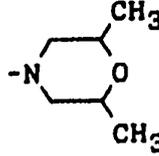
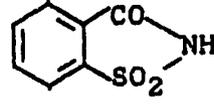


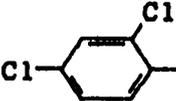
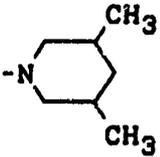
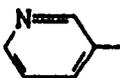
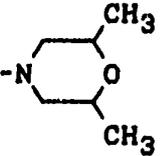
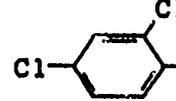
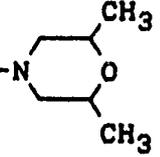
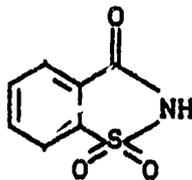
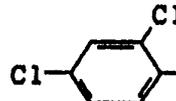
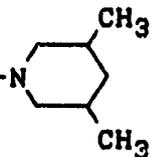
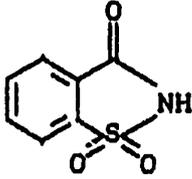
30

35

Bsp. Nr.	R <sup>1</sup>	-N $\begin{matrix} R^2 \\ R^3 \end{matrix}$	physikalische Daten
5			
3			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5272
10			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5268
15			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5167
20			<sup>1</sup> H-NMR*); 4,7-5,0 4,1-4,3 2,9-3,9
		x 	
25			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1,5147
30			<sup>1</sup> H-NMR*); 4,7-5,0; 3,9-4,2; 3,6-3,8
		x 	
35			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1,5148

Bsp. Nr.	R <sup>1</sup>	-N $\begin{matrix} R^2 \\ R^3 \end{matrix}$	physikalische Daten
5			
10			<sup>1</sup> H-NMR*); 4,65-5,0; 3,0-4,0
10		x 	
11			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5192
15			
12			<sup>1</sup> H-NMR*); 4,65-5,05; 4,1 -4,35; 3,0 -4,0
20		x 	
25			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.4945
30			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.4960
30			
15			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1.5660
35			Fp. 38 °C
	<u>Le A 24 945 - Ausland</u>	x 	

Bsp. Nr.	R <sup>1</sup>	-N $\begin{matrix} R^2 \\ R^3 \end{matrix}$	physikalische Daten
5			
17			$n_D^{20}$ 1.5168
10			
18			$n_D^{20}$ 1.5523
15			
19			
15			
20			
20			
21		 X	
25			
22		 X	
23		 X	
30			
24		 X	
35			

Bsp. Nr.	R <sup>1</sup>	-N $\begin{matrix} \text{R}^2 \\ \text{R}^3 \end{matrix}$	physikalische Daten
5 25			Fp. 79° C
10 26			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1,5142
15 27			n <sub>D</sub> <sup>20</sup> 1,5291
20 28			<sup>1</sup> H-NMR*); 1,2-1,4(m); 7,2-7,9(m)
25			
30 29			<sup>1</sup> H-NMR*); 0,9-1,3(m); 7,2-7,9(m)
35			

Bsp. Nr.	R <sup>1</sup>	-N $\begin{matrix} R^2 \\ R^3 \end{matrix}$	physikalische Daten	
5				
30			<sup>1</sup> H-NMR*); 1,2-1,4(m); 7,6-7,9(m)	
10				
15	31			<sup>1</sup> H-NMR <sup>x</sup> ); 7,6-7,9(m)
20				

\*) Die <sup>1</sup>H-NMR-Spektren wurden in CDCl<sub>3</sub> mit Tetramethylsilan (TMS) als innerem Standard aufgenommen. Angegeben ist die chemische Verschiebung als δ-Wert in ppm.

30

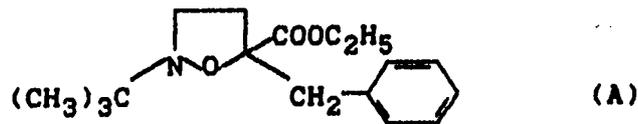
35

Anwendungsbeispiele:

5

In den folgenden Anwendungsbeispielen wurde die nachstehend aufgeführte Verbindung als Vergleichsubstanz eingesetzt:

10



15

5-Benzyl-5-ethoxycarbonyl-2-tert-butyl-isoxazolidin

(bekannt aus DE-OS 34 18 395).

20

25

30

35

Beispiel A

5

Erysiphe-Test (Gerste) / protektiv

Lösungsmittel: 100 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 0,25 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykol-  
10 ether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung  
vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebene-  
nen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das  
15 Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit besprüht man jun-  
ge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung taufeucht. Nach  
Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit  
20 Sporen von Erysiphe graminis f.sp.hordei bestäubt.

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Tem-  
peratur von ca. 20 °C und einer relativen Luftfeuchtig-  
keit von ca. 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von  
25 Mehltaupusteln zu begünstigen.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit gegen-  
über dem Stand der Technik zeigen bei diesem Test z.B.  
30 die Verbindungen gemäß den Herstellungbeispielen:  
3, 4 und 5.

35

Le A 24 945 - Ausland

Beispiel B

5

Test mit *Psoroptes ovis*

10

Lösungsmittel: 35 Gewichtsteile Ethylenglykolmono-  
methylether

35 Gewichtsteile Nonylphenolpolyglykol-  
ether

15

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man drei Gewichtsteile Wirkstoff mit sieben Gewichtsteilen des oben angegebenen Lösungsmittel-Gemisches und verdünnt das so erhaltene Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

20

Etwa 10 - 25 *Psoroptes ovis* werden in 1 ml der zu testenden Wirkstoffzubereitung gebracht, die in Tablettenester einer Tiefziehverpackung pipettiert wurden. Nach 24 Stunden wird der Abtötungsgrad bestimmt.

25

Bei diesem Test zeigen z. B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele 3 und 4 eine überlegene Wirkung gegenüber dem Stand der Technik.

30

35

Le A 24 945 - Ausland