

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4018244号  
(P4018244)

(45) 発行日 平成19年12月5日(2007.12.5)

(24) 登録日 平成19年9月28日(2007.9.28)

| (51) Int. Cl.          | F I          |         |
|------------------------|--------------|---------|
| AO 1 N 47/36 (2006.01) | AO 1 N 47/36 | 1 O 1 E |
| AO 1 N 43/10 (2006.01) | AO 1 N 43/10 | E       |
| AO 1 N 43/76 (2006.01) | AO 1 N 43/76 |         |
| AO 1 P 13/02 (2006.01) | AO 1 P 13/02 |         |

請求項の数 4 (全 17 頁)

|              |                       |           |                       |
|--------------|-----------------------|-----------|-----------------------|
| (21) 出願番号    | 特願平10-176560          | (73) 特許権者 | 390023674             |
| (22) 出願日     | 平成10年6月10日(1998.6.10) |           | イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・   |
| (65) 公開番号    | 特開平11-12111           |           | アンド・カンパニー             |
| (43) 公開日     | 平成11年1月19日(1999.1.19) |           | E. I. DU PONT DE NEMO |
| 審査請求日        | 平成16年5月18日(2004.5.18) |           | URS AND COMPANY       |
| (31) 優先権主張番号 | 60/049407             |           | アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイルミ   |
| (32) 優先日     | 平成9年6月12日(1997.6.12)  |           | ントン、マーケット・ストリート 100   |
| (33) 優先権主張国  | 米国 (US)               |           | 7                     |
|              |                       | (74) 代理人  | 100060782             |
|              |                       |           | 弁理士 小田島 平吉            |
|              |                       | (74) 代理人  | 100103311             |
|              |                       |           | 弁理士 小田嶋 平吾            |
|              |                       | (72) 発明者  | ジーン・アレン・ボザース          |
|              |                       |           | アメリカ合衆国デラウェア州19707ホ   |
|              |                       |           | ツケシン・ナタリードライブ15       |
|              |                       |           | 最終頁に続く                |

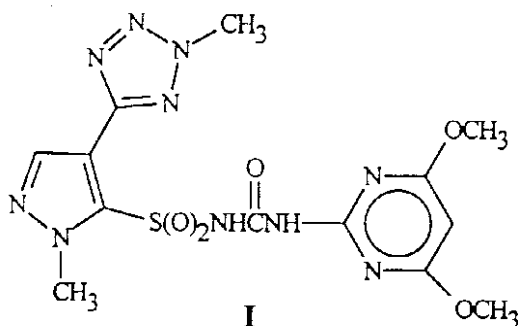
(54) 【発明の名称】 除草剤混合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

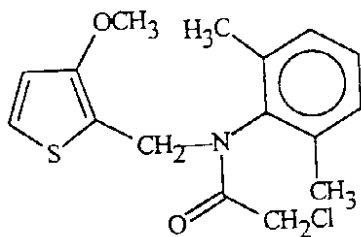
N - [[ (4, 6 - ジメトキシ - 2 - ピリミジニル) アミノ ] カルボニル] - 1 - メチル - 4 - (2 - メチル - 2 H - テトラゾール - 5 - イル) - 1 H - ピラゾール - 5 - スルホンアミド (アジムスルフロン (azimsulfuron)) である式 I

【化1】



の化合物またはその農業用に適する塩、  
並びに 2 - クロロ - N - (2, 6 - ジメチルフェニル) - N - [(3 - メトキシ - 2 - チエニル)メチル]アセトアミド (テニルクロル (thénylchlor)) である式 II a

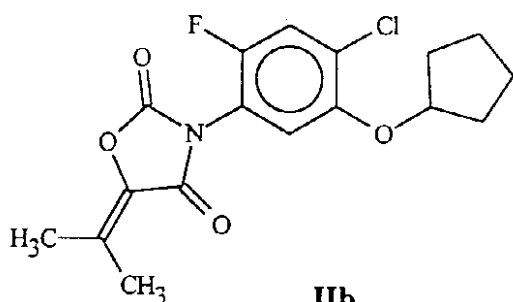
## 【化2】



IIa

の化合物および3-[4-クロロ-5-(シクロペンチルオキシ)-2-フルオロフェニル]-5-(1-メチルエチリデン)-2,4-オキサゾリジンジオン(ペントキサゾン(pentoxazone))である式IIb

## 【化3】



IIb

の化合物から選択される1種もしくはそれ以上の化合物を含んでなる除草剤混合物。

## 【請求項2】

ベンスフロンメチル(bensulfuron methyl)、メトスルフロンメチル(metsulfuron methyl)、プロパニル(propanil)、クロリムロンエチル(chlorimuron ethyl)、ピラゾスルフロンエチル(pyrazosulfuron ethyl)、イマゾスルフロン(imazosulfuron)、シノスルフロン(cinosulfuron)およびシクロスルフアムロン(cyclosulfamuron)よりなる群から選択される化合物をさらに含んでなる請求項1に記載の除草剤混合物。

## 【請求項3】

有効量の請求項1に記載の除草剤混合物および少なくとも1種の次の成分：界面活性剤、固体または液体の希釈剤を含んでなる望ましくない植生の成長を抑制するための農業用に適する組成物。

## 【請求項4】

保護しようとする場所に除草有効量の請求項1に記載の除草剤混合物を接触させることを含んでなる望ましくない植生の成長を抑制するための方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の分野】

本発明は雑草に対する相乗的効果を有する除草剤の混合物に関する。

## 【0002】

## 【発明の背景】

望ましくない植生(vegetation)の抑制は高い作物効率を得る際に非常に重要である。特に例えばとりわけイネ、大豆、サトウダイコン、トウモロコシ、ポテト、小麦、大麦、トマトおよびプランテーション作物の如き有用な作物中における雑草の成長の選択的抑制の達成は非常に望ましい。そのような有用な作物中における抑制されない雑草成長は生産性における相当な減少を引き起こし、そしてそれにより消費者に対する価格の増加をもたらす。非作物領域における望ましくない植生の抑制も重要である。そのような成果を達成する

10

20

30

40

50

生成物を発見するという要望は依然として商業的に重要である。

【0003】

典型的には除草剤の組み合わせを使用すると、植物抑制範囲を拡大または加算的效果による特定種類の抑制水準が高まる。ある種の稀な組み合わせが驚くべきことに加算的效果値より大きい効果すなわち相乗効果を与える。そのような価値ある組み合わせが今回発見された。

【0004】

米国特許第4,746,353号、米国特許第4,802,907号およびヨーロッパ特許出願公開496,347-A2は、本発明の混合物中で使用される個々の化合物を開示しているが、これらの文献のいずれにも混合物またはそれらの驚くべき相乗的効用は開示されていない。

10

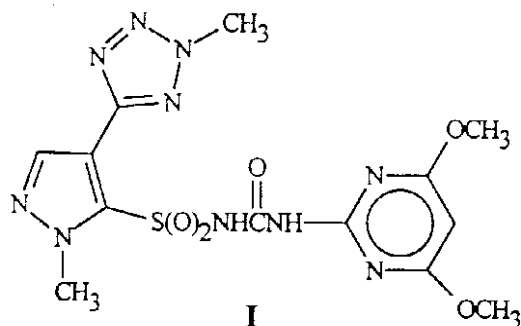
【0005】

【発明の要旨】

本発明は、雑草を相乗的に抑制することが今回発見された、N - [(4,6 - ジメトキシ - 2 - ピリジニル)アミノ]カルボニル] - 1 - メチル - 4 - (2 - メチル - 2H - テトラゾール - 5 - イル) - 1H - ピラゾール - 5 - スルホンアミド (アジムスルフロン (azimsulfuron)、式I)

【0006】

【化4】



20

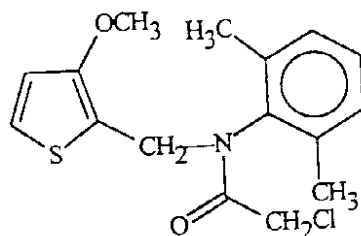
【0007】

またはその農業用に適する塩と、  
2 - クロロ - N - (2,6 - ジメチルフェニル) - N - [(3 - メトキシ - 2 - チエニル)メチル]アセトアミド (テニルクロル (thénylchlor)、式IIa)

30

【0008】

【化5】



IIa

40

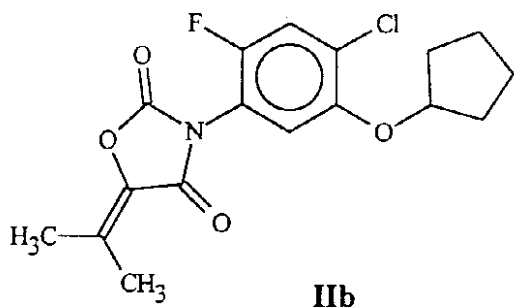
【0009】

および3 - [4 - クロロ - 5 - (シクロペンチルオキシ) - 2 - フルオロフェニル] - 5 - (1 - メチルエチリデン) - 2,4 - オキサゾリジンジオン (ペントキサゾン (pentoxazone)、式IIb)

【0010】

【化6】

50



10

## 【0011】

から選択される1種もしくはそれ以上の化合物の混合物に関する。本発明はまた除草有効量の上記の混合物および少なくとも1種の次の成分：界面活性剤、固体または液体の希釈剤を含んでなる除草剤組成物にも関する。本発明はまた望ましくない植生の場所に除草有効量の上記の混合物を適用することを含んでなる望ましくない植生を抑制する方法にも関する。

## 【0012】

増強された除草利用にとって好適な本発明の混合物には、

(a) 式Iの化合物および式IIaの化合物、並びに

(b) 式Iの化合物および式IIbの化合物

20

が包含される。除草有効量の該好適な混合物および少なくとも1種の次の成分：界面活性剤、固体または液体希釈剤を含んでなる除草剤組成物も好適である。

## 【0013】

望ましくない植生を抑制する好適な方法は、植生の場所に除草有効量の好適な混合物またはそれらの組成物を適用することを含んでなる。

## 【0014】

雑草抑制範囲および/または作物選択性の理由のために、本発明の混合物の好適な適用はイネ作物中、特に水田イネ栽培中である。

## 【0015】

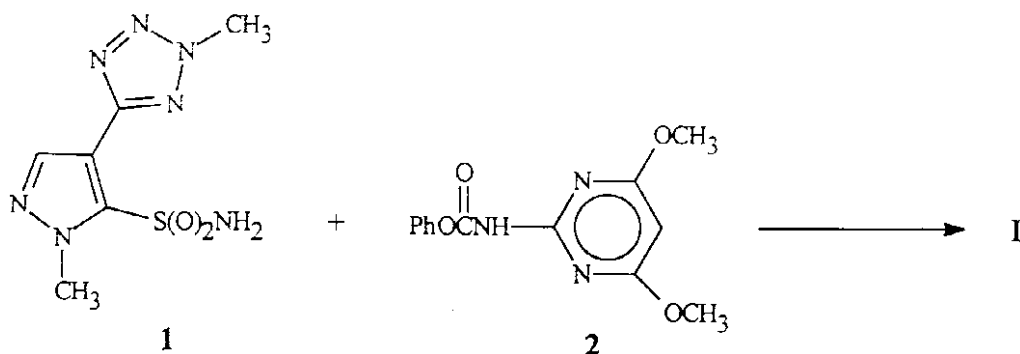
発明の詳細

30

式Iの化合物は米国特許第4,746,353号に記載されている。その合成は式1のピラゾールスルホンアミドと式2の複素環式カルバメートのカップリングを包含する。

## 【0016】

## 【化7】



40

## 【0017】

本発明の混合物は式Iのスルホニルウレア化合物を1種もしくはそれ以上のその農業用に適する塩として含むことができる。これらは当該技術分野で既知である多くの方法で製造することができる。例えば、式Iのスルホニルウレアを十分な塩基性アニオンを有するアルカリまたはアルカリ土類金属塩（例えば、水酸化物、アルコキシド、炭酸塩または水素

50

化物)の溶液と接触させることにより金属塩を製造することができる。第四級アミン塩は同様な技術により製造することができる。

【0018】

式Iのスルホニルウレアの塩はまた1つのカチオンと別のものとの交換によっても製造することができる。カチオン交換は式Iのスルホニルウレアの塩(例えば、アルカリまたは第四級アミン塩)の水溶液と交換しようとするカチオンを含有する溶液との直接的接触により行うことができる。この方法は交換されたカチオンを含有する所望する塩が水中に不溶性でありそして濾過により分離できる時に最も有効である。

【0019】

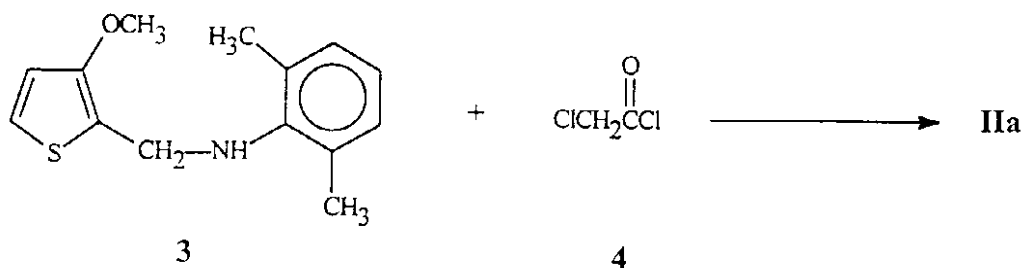
式Iのスルホニルウレアの塩(例えば、アルカリまたは第四級アミン塩)の水溶液を元の塩のカチオンと交換すべきカチオンを含有するカチオン-交換樹脂が充填されたカラム中に通すことにより交換を行ってもよくそして所望する生成物をカラムから溶離する。この方法は所望する塩が水溶性である時(例えば、カリウム、ナトリウムまたはカルシウム塩)に特に有用である。

【0020】

式IIaの化合物は米国特許第4,802,907号に記載されている通りにして製造することができる。この合成は式3のアニンと式4のアシルクロリドとのカップリングを包含する。

【0021】

【化8】

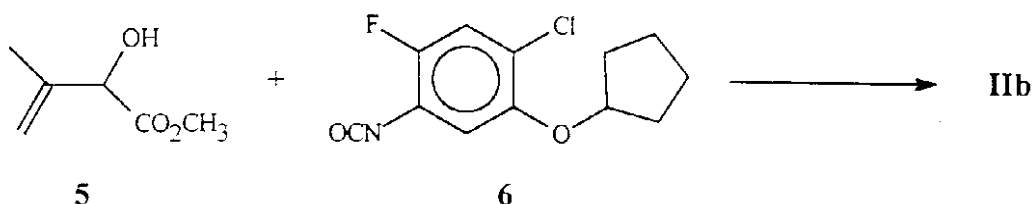


【0022】

式IIbの化合物はヨーロッパ特許出願公開496,347-A2に記載されている通りにして製造することができる。その合成は式5の2-ヒドロキシエステルと式6のイソシアナートとの環化を包含する。

【0023】

【化9】



【0024】

調合

式I並びに式IIaおよびIIbの化合物の混合物は多くの方法で調合することができる:

(a) 式I並びに式IIaおよびIIbの化合物を別個に調合しそして別個に適用することができ、または適当な重量比で例えばタンク混合物として同時に適用することができ、或いは

(b) 式I並びに式IIaおよびIIbの化合物を適当な重量比で一緒に調合することができる。

【0025】

10

20

30

40

50

式I並びに式IIaおよびIIbの化合物の混合物は、一般的には液体もしくは固体の希釈剤および/または界面活性剤を含んでなる農業用に適する担体との調合物において使用され、そこではその調合物は活性成分の物理的性質、適用方式並びに環境要素、例えば土壌のタイプ、水分および温度に適合させる。有用な調合物には、場合により濃稠化してゲルにすることができる液体、例えば液剤(乳化可能な濃縮物を含む)、懸濁剤、乳剤(微細乳剤および/または懸濁乳剤を含む)などが包含される。有用な調合物にはさらに、水-分散性(「湿潤性」)または水溶性でありうる固体、例えば粉剤(dust)、散剤(powder)、顆粒剤、ペレット、錠剤、フィルムなどが包含される。活性成分は(マイクロ)カプセル化しそしてさらに懸濁液または固体調合物に形成されていてもよく、或いは活性成分の調合物全体をカプセル化(または「オーバーコーティング」)することもできる。カプセル化は活性成分の放出を抑制または遅延させることができる。噴霧可能な調合物を適当な媒体中に希釈しそして1ヘクタール当たり約1~数百リットルの噴霧量で使用することができる。高濃度組成物は主として別の調合物用の中間体として使用される。

## 【0026】

調合物は典型的には有効量の活性成分、希釈剤および界面活性剤を合計100重量%になる下記の概略範囲内で含有する。

## 【0027】

|                        | 重量%     |         |       |
|------------------------|---------|---------|-------|
|                        | 活性成分    | 希釈剤     | 表面活性剤 |
| 水一分散性および水溶性顆粒剤、錠剤および散剤 | 5-90    | 0-94    | 1-15  |
| 懸濁剤、乳剤、液剤<br>(濃厚乳剤を含む) | 5-50    | 40-95   | 0-15  |
| 粉剤                     | 1-25    | 70-99   | 0-5   |
| 顆粒剤および錠剤               | 0.01-99 | 5-99.99 | 0-15  |
| 高濃度組成物                 | 90-99   | 0-10    | 0-2   |

代表的な固体希釈剤はWatkins, et al., Handbook of Insecticide Dust Diluents and Carriers, 2nd Ed., Dorland Books, Caldwell, New Jersey に記載されている。代表的な液体希釈剤はMarsden, Solvents Guide, 2nd Ed., Interscience, New York, 1950 に記載されている。McCutcheon's Detergents and Emulsifiers Annual, Allured Publ. Corp., Ridgewood, New Jersey、並びに Sisely and Wood, Encyclopedia of Surface Active Agents, Chemical Publ. Co., Inc., New York, 1964 は界面活性剤およびその推奨用途を示している。全ての調合物は、泡立ち、ケーキ化、腐食、微生物の生長などを減ずるためにまたは濃稠化して粘度を増すために少量の添加剤を含有することができる。

## 【0028】

界面活性剤には、例えば、ポリエトキシ化アルコール類、ポリエトキシ化アルキルフェノール類、ポリエトキシ化ソルピタン脂肪酸エステル類、ジアルキルスルホ琥珀酸類、硫酸アルキル類、スルホン酸アルキルベンゼン類、有機シリコン類、N,N-ジアルキルタウレート類、リグニンスルホン酸塩類、ナフタレンスルホネートホルムアルデヒド縮合物、ポリカルボキシレート類、およびポリエチレン/ポリオキシプロピレンブロック共重合体が包含される。固体希釈剤には、例えば、クレー、例えばベントナイト、モンモリロナイト、アタパルジャイトおよびカオリン、澱粉、砂糖、シリカ、タルク、珪藻土、ウレア、炭酸カルシウム、炭酸および炭酸水素ナトリウム、並びに硫酸ナトリウムが包含される。液体希釈剤には、例えば、水、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、N-アルキルピロリドン、エチレングリコール、ポリプロピレングリコール、パ

ラフィン類、アルキルベンゼン類、アルキルナフタレン類、オリーブ油、ヒマシ油、アマニ油、桐油、ゴマ油、トウモロコシ油、ピーナツ油、綿実油、大豆油、菜種油およびヤシ油、脂肪酸エステル類、ケトン類、例えばシクロヘキサノン、2-ヘプタノン、イソホロンおよび4-ヒドロキシ-4-メチル-2-ペンタノン、並びにアルコール類、例えばメタノール、シクロヘキサノール、デカノールおよびテトラヒドロフルフリルアルコールが包含される。

【0029】

濃厚乳剤を包含する液剤は、成分を単に混合することにより製造することができる。化学的に安定化された水性スルホニルウレアまたは農業用に適するスルホニルウレア塩分散液は米国特許第4,936,900号に教示されている。改良された化学的安定性を有するスルホニルウレアの液剤調合物は米国特許第4,599,412号に教示されている。粉剤および散剤は、配合しそして一般的にはハンマーミルまたは流体エネルギーミル中でのように粉碎することにより製造できる。懸濁剤は一般的には湿潤-粉碎により製造され、例えば、米国特許第3,060,084号を参照のこと。顆粒剤およびペレットは活性物質を予備成形された粒状担体に噴霧することによりまたは凝集技術により製造することができる。Browning, "Agglomeration", Chemical Engineering, December 4, 1967, pp 147-148, Perry's Chemical Engineer's Handbook, 4th Ed., McGraw-Hill, New York, 1963, pages 8-57 以下、並びにWO 91/13546を参照のこと。ペレットは米国特許第4,172,714号に記載されている通りにして製造することができる。水-分散性および水溶性顆粒剤は米国特許第4,144,050号、米国特許第3,920,442号およびDE 3,246,493号に教示されている通りにして製造することができる。錠剤は米国特許第5,180,587号、米国特許第5,232,701号および米国特許第5,208,030号に教示されている通りにして製造することができる。フィルムは英国特許第2,095,558号および米国特許第3,299,566号に教示されている通りにして製造することができる。

【0030】

調合技術に関する別の情報に関しては、米国特許第3,235,361号、6欄、16行~7欄、19行および実施例10-41；米国特許第3,309,192号、5欄、43行~7欄、62行および実施例8、12、15、39、41、52、53、58、132、138-140、162-164、166、167および169-182；米国特許第2,891,855号、3欄、66行~5欄、17行および実施例1-4；Klingman, Weed Control as a Science, John Wiley and Sons, Inc., New York, 1961, pp 81-96；並びにHance et al., Weed Control Handbook, 8th Ed., Blackwell Scientific Publications, Oxford, 1989を参照のこと。

【0031】

以下の実施例では、百分率はすべて重量によるものであり、そして調合物はすべて一般的方法で製造される。

【0032】

実施例 A

高強度濃厚剤

|                         |        |
|-------------------------|--------|
| アジムスルフロン (azimsulfuron) | 1.0 %  |
| テニルクロル (thenylchlor)    | 97.5 % |
| シリカエーロゲル                | 0.5 %  |
| 合成非晶質微細シリカ              | 1.0 %  |

実施例 B

水和剤

|                          |        |
|--------------------------|--------|
| アジムスルフロン (azimsulfuron)  | 21.7 % |
| テニルクロル (thenylchlor)     | 43.3 % |
| ドデシルフェノールポリエチレングリコールエーテル | 2.0 %  |
| リグニンスルホン酸ナトリウム           | 4.0 %  |

10

20

30

40

50

|  |       |    |
|--|-------|----|
| シリコアルミン酸ナトリウム  | 6.0%  |    |
| モンモリロナイト(か焼されたもの)                                    | 23.0% |    |
| <u>実施例 C</u>   |       |    |
| <u>顆粒剤</u>   |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 1.7%  |    |
| テニルクロル(thenylchlor)                                  | 8.3%  |    |
| アタパルジャイト顆粒(低揮発性物体、0.71/0.30mm、<br>U.S.S.No.25-50ふるい) | 90.0% |    |
| <u>実施例 D</u>   |       |    |
| <u>押し出し成形されたペレット</u>                                 |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 0.6%  | 10 |
| テニルクロル(thenylchlor)                                  | 24.4% |    |
| 無水硫酸ナトリウム  | 10.0% |    |
| 粗製リグニンスルホン酸カルシウム                                     | 5.0%  |    |
| アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム                                  | 1.0%  |    |
| カルシウム/マグネシウムベントナイト                                   | 59.0% |    |
| <u>実施例 E</u>   |       |    |
| <u>高強度濃厚剤</u>  |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 0.7%  |    |
| ペントキサゾン(pentoxazone)                                 | 97.8% | 20 |
| シリカエーロゲル   | 0.5%  |    |
| 合成非晶質微細シリカ   | 1.0%  |    |
| <u>実施例 F</u>   |       |    |
| <u>水和剤</u>   |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 21.7% |    |
| ペントキサゾン(pentoxazone)                                 | 43.3% |    |
| ドデシルフェノールポリエチレングリコールエーテル                             | 2.0%  |    |
| リグニンスルホン酸ナトリウム                                       | 4.0%  |    |
| シリコアルミン酸ナトリウム  | 6.0%  |    |
| モンモリロナイト(か焼された)                                      | 23.0% | 30 |
| <u>実施例 G</u>   |       |    |
| <u>顆粒剤</u>   |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 0.9%  |    |
| ペントキサゾン(pentoxazone)                                 | 9.1%  |    |
| アタパルジャイト顆粒(低揮発性物体、0.71/0.30mm、<br>U.S.S.No.25-50ふるい) | 90.0% |    |
| <u>実施例 H</u>   |       |    |
| <u>押し出し成形された押し込み錠</u>                                |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 0.5%  |    |
| ペントキサゾン(pentoxazone)                                 | 24.5% | 40 |
| 無水硫酸ナトリウム  | 10.0% |    |
| 粗製リグニンスルホン酸カルシウム                                     | 5.0%  |    |
| アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム                                  | 1.0%  |    |
| カルシウム/マグネシウムベントナイト                                   | 59.0% |    |
| <u>実施例 I</u>   |       |    |
| <u>高強度濃厚剤</u>  |       |    |
| アジムスルフロン(azimsulfuron)                               | 6.2%  |    |
| テニルクロル(thenylchlor)                                  | 36.9% |    |
| ペントキサゾン(pentoxazone)                                 | 55.4% |    |
| シリカエーロゲル   | 0.5%  | 50 |



合成非晶質微細シリカ

1.0%

#### 用途

式 I 並びに式 II a および II b の除草性化合物の混合物が、例えばイネの如きある種の一年生単子葉植物種に対する選択的安全性を保有しながら、選択された雑草の予期せぬ相乗的抑制を与えることが今回発見された。本発明の混合物は、移植されたまたは直撒きされたジャポニカ(japonica)またはインディカ(indica)イネに対する影響をほとんどまたは全く有していないが、望ましくない地上または水性のイネ科植物(grass)、広葉植物、およびスゲ科植物(sedge)の雑草種の成長を選択的に抑制するのに有効である。これらがイネに対する被害なしにイヌビエ(barnyardgrass)の抑制を与える相乗的作用は、イヌビエおよびイネが両者ともイネ科植物であるため、非常に価値があり且つ注目すべきである。本発明の混合物を雑草種がはびこっている乾燥土または灌水土に適用することにより、或いは雑草植物の葉への適用により、或いは葉、種子または植物部分を覆う水への適用により、雑草は死滅するかまたは十分な被害を受けてイネ作物に対して競争に負けない利点を与える。発芽前から4葉段階までの直撒きイネへの適用、1.0 - 4.0葉段階での移植イネへの適用および発芽前から3葉段階までの雑草に対する適用が好ましい。適用は間欠的にまたは連続的な灌漑式イネ栽培に対して行うことができる。

10

#### 【0033】

式 I (アジムスルフロン(azimsulfuron)) および式 II a (テニルクロル(thenylchlor)) の化合物の除草有効量は環境条件、調合、適用方法、存在する植物の量およびタイプなどに依存して変動するであろう。式 I 対式 II a の使用割合は一般的には 1 : 2 ~ 1 : 10 であり、ほとんどの用途には 1 : 5 ~ 1 : 40 の比が好ましい。一般的には、式 I の化合物は 3 ~ 30 g ai / ha の割合で適用され、そして式 II a の化合物は 50 ~ 300 g ai / ha の割合で適用される。好適には、式 I の化合物は 5 ~ 20 g ai / ha の割合で適用され、そして式 II a の化合物は 75 ~ 250 g ai / ha の割合で適用される。

20

#### 【0034】

式 I (アジムスルフロン(azimsulfuron)) および式 II b (ペントキサゾン(pentaxazone)) の化合物の除草有効量は環境条件、調合、適用方法、存在する植物の量およびタイプなどに依存して変動するであろう。式 I 対式 II b の使用割合は一般的には 1 : 2 ~ 1 : 150 であり、ほとんどの用途には 1 : 10 ~ 1 : 50 の比が好ましい。一般的には、式 I の化合物は 3 ~ 30 g ai / ha の割合で適用され、そして式 II b の化合物は 50 ~ 500 g ai / ha の割合で適用される。好適には、式 I の化合物は 5 ~ 20 g ai / ha の割合で適用され、そして式 II b の化合物は 75 ~ 400 g ai / ha の割合で適用される。

30

#### 【0035】

当該技術分野の専門家は、適用割合並びに式 I の除草剤対式 II a および II b の除草剤の比並びに所望とする雑草抑制および作物安全性水準に関して必要な時機を容易に決めることができる。

#### 【0036】

除草剤処置としての実際的な使用のために、本発明の混合物をさらに他の既知の除草剤および農業用の作物保護化学薬品と混合して別の雑草種に対する追加的活性範囲を与えるようにしてもよい。混合しうる除草剤には下記のものゝ包含されるがそれらに限定されない：シハロフォップ - ブチル(cyhalofop-butyl)、カフェンストロール(cafenstrole)、ジメピペレート(dimepiperate)、エポプロダン(epoprodan)、エトベンザニド(etobenzanid)、プレチラクロル(pretilachlor)、チオベンカルブ(thiobencarb)、ピリブチカルブ(pyributicarb)、ピラゾレート(pyrazolate)、ベンキソフェナップ(benxofenap)、プロモブチド(bromobutid)、メフェナセツト(mefenacet)、アニロフォス(anilofos)およびベンフレセツト(benfuresate)。好適に使用される除草剤混合物相手はスルホニルウレア除草剤であるベンスルフロンメチル(bensulfuron methyl)、メツスルフロンメチル(metsulfuron methyl)、クロリムロンエチル(chlorimuron ethyl)、ピラゾスルフロンエチル(pyrazosulfuro

40

50

n ethyl)、イマゾスルフロン(imazosulfuron)、シノスルフロン(cinosulfuron)およびシクロスルフアムロン(cyclosulfamuron)である。

【0037】

さらに、本発明の混合物を、農業用に許容可能な添加剤、例えば界面活性剤、緩和剤、延展剤、乳化剤または肥料と組み合わせて性能を改良してもよい。本発明の混合物は一般的には調合された組成物として使用されるであろう。

【0038】

下記の試験は特定の雑草に対する本発明の化合物の抑制効果を示す。しかしながら、これらの化合物により得られる雑草抑制はこれらの種に限定されるものではない。これらの試験では、化合物1は式Iの化合物であるアジムスルフロン(azimsulfuron)であり、化合物2は式IIaの化合物であるテニルクロル(thenylchlor)であり、そして化合物3は式IIbの化合物であるペントキサゾン(pentoxazone)である。

【0039】

本発明の生物学的実施例

試験A 処方

イヌビエ(Echinochloa crus-galli)の個々の容器に種を撒きそして発生の2葉段階まで成長させた。繁殖のためにタマ・シルト・ローム土(Tama silt loam soil)を使用した。イネ(Oryza sativa, cv. Cypress)を予備発芽させそして土の表面に種を撒きそして発生の3葉段階まで成長させた。処置前に全ての容器中の水の深さを約3cmに調節した。化合物1および2を非-植物毒性溶媒混合物中で調合しそして各容器中の土の表面に適用した。

【0040】

処置した植物および未処置対照を温室条件下で14日間保ち、その時点で植物を未処置対照と比較しそして視覚的に評価した。表Aにまとめる植物応答評価は0~100の目盛りに基づいており、そこでは0は効果なしでありそして100は完全抑制である。

【0041】

コルビー(Colby)式を使用して化合物1と化合物2の混合物の予測される加算的除草効果を計算した。コルビー式(Colby, S. R. "Calculating Synergistic and Antagonistic Responses of Herbicide Combinations," Weeds, 15(1), pp 20-22 (1967))により除草剤混合物の予測される加算的効果を計算し、そして2種の活性成分に関しては式：

$$P_{a+b} = P_a + P_b - (P_a P_b / 100)$$

[式中、 $P_{a+b}$ は個々の成分の加算的寄与から予測される混合物の効果百分率であり、 $P_a$ は混合物中での同時使用割合における第一活性成分の観察された効果百分率であり、そして

$P_b$ は混合物中での同時使用割合における第二活性成分の観察された効果百分率である]により計算される。

【0042】

化合物1と化合物2の組み合わせは、驚くべきことに、コルビー式からの計算により予測されるものより良好なある種の雑草の抑制を与えることが見いだされ、従って相乗的作用を示す。表Aは化合物1および化合物2を単一活性成分として単独で適用した場合、化合物1および化合物2の2種の活性成分の混合物として適用した場合の特定雑草の抑制の視覚的評価、並びに化合物1および化合物2の除草剤混合物の予測される加算的効果(コルビー式)を示す。化合物1対化合物2の種々の比、並びに種々の調合タイプが2種の除草剤の組み合わせにより有用な雑草抑制を与える。

【0043】

【表1】

表A\*

単独および混合物中での活性成分としての化合物1  
および化合物2の効果

| 化合物<br>1 | 化合物<br>2 | イネ  |     | イヌビエ |    |
|----------|----------|-----|-----|------|----|
|          |          | 観 察 | 予測† | 観 察  | 予測 |
| 単 独      |          |     |     |      |    |
| 5        | 0        | 0   | —   | 30   | —  |
| 10       | 0        | 10  | —   | 70   | —  |
| 0        | 90       | 0   | —   | 70   | —  |
| 0        | 180      | 40  | —   | 98   | —  |
| 混合物      |          |     |     |      |    |
| 5        | 90       | 30  | 0   | 85   | 79 |
| 10       | 90       | 10  | 10  | 98   | 91 |
| 5        | 180      | 40  | 40  | 99   | 99 |
| 10       | 180      | 40  | 46  | 100  | 99 |

\* 適用割合は化合物1および化合物2の両者に関して  $g \ a \ i / h \ a$   
で表示されている。データは抑制百分率として報告されている。

† コルビー式から予測されたもの。

#### 【 0 0 4 4 】

この試験からわかるように、アジムスルフロン (azimsulfuron) (化合物1) と  $90 \ g / h \ a$  のテニルクロル (thenylchlor) (化合物2) の組み合わせはイヌビエ抑制を予測されたものより驚異的に増加させた。  $5 \ g$  のアジムスルフロン +  $90 \ g$  のテニルクロルの場合には、抑制は不良 (  $79\%$  ) から良好 (  $85\%$  ) に増加した。  $10 \ g$  のアジムスルフロン +  $90 \ g$  のテニルクロルの場合には、抑制は  $91\%$  (良好) の予測値から  $98\%$  (優秀) となった。より高いテニルクロルの割合 (  $180 \ g / h \ a$  ) では、抑制はすでに優秀 (  $98\%$  ) であったため、この試験ではこの高い割合では相乗的作用を示す機会がなかった。この相乗的作用により、本発明の混合物はコルビー式を使用した個々の成分の効果の加算に基づいて必要であるものより実質的に低い適用割合で使用することができる。  $5 \ g$  のアジムスルフロン +  $90 \ g$  のテニルクロルという低い割合で見られるイネ被害の増加は、  $10 \ g$  のアジムスルフロンというより高い割合またはテニルクロルのより高い割合において被害の増加が起きていないため、明らかに異常である。この試験における直接的に水に種撒きされたイネはより一般的な農業用の実施法である移植イネより除草剤による被害に対して敏感である。さらに、イネは屋外より温室内で成長させる時の方がはるかに虚弱であり、そして除草剤による被害に対してより敏感である。これらの温室結果は従って  $10 \ g / h \ a$  のアジムスルフロンおよび  $180 \ g / h \ a$  のテニルクロル程度の高い割合では畑条件下では作物の被害がほとんどまたは全くないことを示唆している。

## 【 0 0 4 5 】

## 試験 B 処方

イヌビエ ( *Echinochloa crus-galli* ) の個々の容器に種を撒きそして発生の 2 葉段階まで成長させた。繁殖のためにタマ・シルト・ローム土を使用した。イネ ( *Oryza sativa*, cv. Cypress ) を予備発芽させそして土の表面に種を撒きそして発生の 3 葉段階まで成長させた。処置前に全ての容器中の水の深さを約 3 c m に調節した。化合物 1 および 3 を非 - 植物毒性溶媒混合物中で調合しそして各容器中で土の表面に適用した。

## 【 0 0 4 6 】

処置した植物および未処置対照を温室条件下で 1 4 日間保ち、その時に植物を未処置対照と比較しそして視覚的に評価した。表 B にまとめる植物応答評価は 0 ~ 1 0 0 の目盛りに基づいており、ここでは 0 は効果なしでありそして 1 0 0 は完全抑制である。

10

## 【 0 0 4 7 】

化合物 1 と化合物 3 の組み合わせは、驚くべきことに、コルビー式からの計算により予測されるものより良好なある種の雑草の抑制を与えることが見いだされ、従って相乗的作用を示す。表 B は化合物 1 および化合物 3 を単一活性成分として単独で適用した場合、化合物 1 および化合物 3 の 2 種の活性成分の混合物として適用した場合の特定雑草の抑制の視覚的評価、並びに化合物 1 および化合物 3 の除草剤混合物の予測される加算的效果 ( コルビー式 ) を示す。化合物 1 対化合物 3 の種々の比、並びに種々の調合タイプが 2 種の除草剤の組み合わせにより有用な雑草抑制を与える。

## 【 0 0 4 8 】

20

## 【 表 2 】

表B\*

単独および混合物中での活性成分としての化合物1および化合物3の効果

| 化合物<br>1 | 化合物<br>3 | イネ(直撒き) |     | イヌビエ |    |
|----------|----------|---------|-----|------|----|
|          |          | 観 察     | 予測† | 観 察  | 予測 |
| 単 独      |          |         |     |      |    |
| 5        | 0        | 0       | —   | 30   | —  |
| 10       | 0        | 0       | —   | 70   | —  |
| 0        | 75       | 0       | —   | 60   | —  |
| 0        | 150      | 0       | —   | 90   | —  |
| 混合物      |          |         |     |      |    |
| 5        | 75       | 0       | 0   | 95   | 72 |
| 10       | 75       | 0       | 0   | 95   | 88 |
| 5        | 150      | 0       | 0   | 90   | 93 |
| 10       | 150      | 0       | 0   | 98   | 97 |

\* 適用割合は化合物1および化合物3の両者に関して  $g\ a\ i / h\ a$  で表示されている。データは抑制百分率として報告されている。

† コルビー式から予測されたもの。

#### 【0049】

この試験からわかるように、イヌビエの90%以下の抑制を与えるであろうと予測されたアジムスルフロン(azimsulfuron)(化合物1)と75g/h aのペントキサゾン(pentoxazone)(化合物3)の組み合わせがはるかに良好な効果を与えることが驚くべきことに見いだされた。例えば、5g/h aのアジムスルフロンおよび75g/h aのペントキサゾンはイヌビエに対して72%の被害しか与えないであろうと予測されたが、95%が観察された。これは最適および最適以下の抑制水準の間にある差である。この相乗的作用により、本発明の混合物はコルビー式を使用した個々の成分の効果の加算に基づいて必要であるものより実質的に低い適用割合で使用することができる。イヌビエに対する相乗的作用とは対照的に、直撒きされたイネには被害が観察されなかった。

#### 【0050】

##### 試験C処方

移植イネ(Oryza sativa, cv. Cypress)をタマ・シルト・ローム土中で処置前に5葉段階まで成長させた。イヌビエ(Echinochloa crus-galli)は2葉段階であった。化学薬品を調合しそして水田に直接加えた。3回反復しそして完全に無作為の設定で温室ベンチ上に容器を配置した。水の深さを実験中はずっと3cmに保った。処置から14日後に、イネの被害水準およびイヌビエの抑制を視覚的評価により測定した。表Cにまとめる植物応答評価は0~100の目盛りに基づいており、そこでは0は効果なしでありそして10

0 は完全抑制である。コルビー式を使用して化合物 1 と化合物 3 の混合物の予測される加算的除草効果を計算した。

【 0 0 5 1 】

【表 3】

表 C\*

単独および混合物中での活性成分としての化合物 1  
および化合物 3 の効果

| 化合物<br>1 | 化合物<br>3 | イネ(移植) |     | イヌビエ |    |
|----------|----------|--------|-----|------|----|
|          |          | 観 察    | 予測† | 観 察  | 予測 |
| 単 独      |          |        |     |      |    |
| 5        | 0        | 0      | —   | 37   | —  |
| 10       | 0        | 0      | —   | 73   | —  |
| 15       | 0        | 0      | —   | 88   | —  |
| 0        | 50       | 0      | —   | 0    | —  |
| 0        | 100      | 0      | —   | 33   | —  |
| 0        | 150      | 0      | —   | 40   | —  |
| 混合物      |          |        |     |      |    |
| 5        | 50       | 0      | 0   | 57   | 37 |
| 5        | 100      | 0      | 0   | 65   | 58 |
| 5        | 150      | 0      | 0   | 67   | 62 |
| 10       | 50       | 0      | 0   | 84   | 73 |
| 10       | 100      | 0      | 0   | 96   | 82 |
| 10       | 150      | 0      | 0   | 95   | 84 |
| 15       | 50       | 0      | 0   | 94   | 88 |
| 15       | 100      | 3      | 0   | 99   | 92 |

\* 適用割合は化合物 1 および化合物 3 の両者に関して g a i / h a  
で表示されている。データは抑制百分率として報告されている。

† コルビー式から予測されたもの。

【 0 0 5 2 】

この試験からわかるように、アジムスルフロン (azimsulfuron) (化合物 1) とペントキサゾン (pentoxazone) (化合物 3) の組み合わせは全ての試験された割合において予測された抑制値より実質的に良好なイヌビエ抑制効果を与えた。予測された効果が相対的に低い時には相乗的作用が最大の効果増加を与えることができる。この試験では、5 g / h a の

10

20

30

40

50

アジムスルフロンと50g/haのペントキサゾンは37%の予測値に対して57%の抑制を与えた。予測された効果がすでに100%近い時には、観察された効果はそれよりはるかに大きいことはありえないが、この試験では15g/haのアジムスルフロンおよび100g/haのペントキサゾンからの相乗的作用でも92%の予測値から99%の抑制という有意の増加を生じた。この相乗的作用により、アジムスルフロンとペントキサゾンの混合物はより低い適用割合において予測値より有意義に良好な抑制を与える。イヌビエに対する相乗的作用とは対照的に、移植イネには被害が実質的に観察されなかった。

【0053】

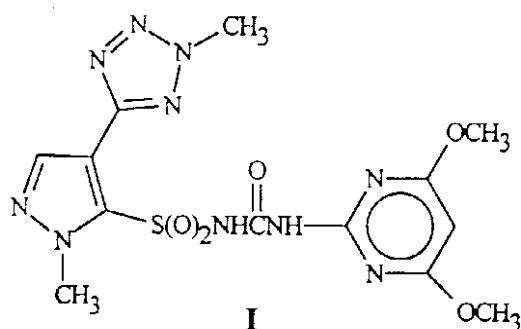
本発明の主なる特徴および態様は以下のとおりである。

【0054】

1. N-[[ (4,6-ジメトキシ-2-ピリミジニル)アミノ]カルボニル]-1-メチル-4-(2-メチル-2H-テトラゾール-5-イル)-1H-ピラゾール-5-スルホンアミド(アジムスルフロン(azimsulfuron))である式I

【0055】

【化10】

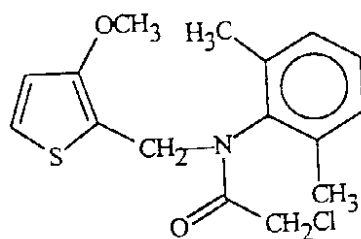


【0056】

の化合物またはその農業用に適する塩、並びに2-クロロ-N-(2,6-ジメチルフェニル)-N-[(3-メトキシ-2-チエニル)メチル]アセトアミド(テニルクロル(thenylchlor))である式IIa

【0057】

【化11】



**IIa**

【0058】

の化合物および3-[4-クロロ-5-(シクロペンチルオキシ)-2-フルオロフェニル]-5-(1-メチルエチリデン)-2,4-オキサゾリジンジオン(ペントキサゾン(pentoxazone))である式IIb

【0059】

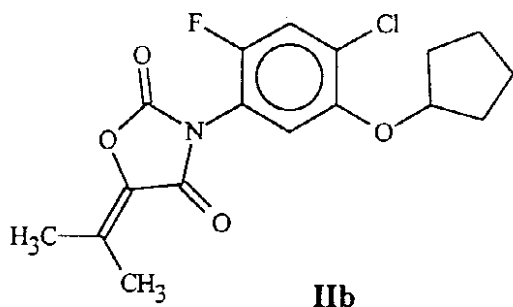
【化12】

10

20

30

40



10

【 0 0 6 0 】

の化合物から選択される 1 種もしくはそれ以上の化合物を含んでなる除草剤混合物。

【 0 0 6 1 】

2 . 式 I の化合物および式 II a の化合物を含んでなる上記 1 の除草剤混合物。

【 0 0 6 2 】

3 . 式 I の化合物および式 II b の化合物を含んでなる上記 1 の除草剤混合物。

【 0 0 6 3 】

4 . ベンスフロンメチル (bensulfuron methyl)、メトスルフロンメチル (metsulfuron methyl)、プロパニル (propanil)、クロリムロンエチル (chlorimuron ethyl)、ピラゾスルフロンエチル (pyrazosulfuron ethyl)、イマゾスルフロン (imazosulfuron)、シノスルフロン (cinosulfuron) およびシクロスルファムロン (cyclosulfamuron) よりなる群から選択される化合物をさらに含んでなる上記 1、2 または 3 のいずれかの除草剤混合物。

20

【 0 0 6 4 】

5 . 有効量の上記 1、2 または 3 のいずれかの除草剤混合物および少なくとも 1 種の次の成分：界面活性剤、固体または液体の希釈剤を含んでなる望ましくない植生 (vegetation) の成長を抑制するための農業用に適する組成物。

【 0 0 6 5 】

6 . 保護しようとする場所に除草有効量の上記 1、2 または 3 のいずれかの除草剤混合物を接触させることを含んでなる望ましくない植生の成長を抑制するための方法。

【 0 0 6 6 】

7 . 保護しようとする場所がイネ作物である上記 6 の方法。

【 0 0 6 7 】

8 . イネ作物が灌水した水田 (flooded paddy) の中で成長する上記 7 の方法。

30



フロントページの続き

審査官 富永 保

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

A01N 47/36

A01N 43/10

A01N 43/76

CAplus(STN)

REGISTRY(STN)