

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2018-521035

(P2018-521035A)

(43) 公表日 平成30年8月2日(2018.8.2)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>AO1N 25/28 (2006.01)</b>	AO1N 25/28	4H011
<b>AO1P 13/00 (2006.01)</b>	AO1P 13/00	4J002
<b>AO1N 33/18 (2006.01)</b>	AO1N 33/18	B 4J034
<b>CO8G 18/00 (2006.01)</b>	CO8G 18/00	A
<b>CO8G 18/32 (2006.01)</b>	CO8G 18/32	O28

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 16 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2017-565801 (P2017-565801)  
 (86) (22) 出願日 平成28年6月8日 (2016.6.8)  
 (85) 翻訳文提出日 平成30年2月14日 (2018.2.14)  
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2016/062985  
 (87) 国際公開番号 W02016/202659  
 (87) 国際公開日 平成28年12月22日 (2016.12.22)  
 (31) 優先権主張番号 15172817.7  
 (32) 優先日 平成27年6月19日 (2015.6.19)  
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)  
 (31) 優先権主張番号 15184367.9  
 (32) 優先日 平成27年9月9日 (2015.9.9)  
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 508020155  
 ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ  
 BASF SE  
 ドイツ連邦共和国 67056 ルートヴ  
 ィヒスハーフェン・アム・ライン カール  
 -ボッシュ-シュトラッセ 38  
 Carl-Bosch-Strasse  
 38, 67056 Ludwigsha  
 fen am Rhein, Germa  
 ny  
 (74) 代理人 110002572  
 特許業務法人平木国際特許事務所

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 テトラメチルキシリレンジイソシアネート及び少なくとも3つのアミン基を有するポリアミンから調製されるシェルを有するペンディメタリンマイクロカプセル

## (57) 【要約】

本発明は、ポリ尿素シェル及びコアを含むマイクロカプセルを含む組成物であって、コアはペンディメタリンを含み、並びにシェルはテトラメチルキシリレンジイソシアネート、及び少なくとも3つのアミン基を有するポリアミンの重合生成物を含み、及び重合生成物は、テトラメチルキシリレンジイソシアネートの重量に対して、重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを5wt%未満含む組成物;組成物の調製方法であって、水、ペンディメタリン、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、及びポリアミンを接触させるステップを含む方法;並びに望ましくない植物生長を防除する方法であって、組成物を、土壤に及び/若しくは望ましくない植物に及び/若しくは作物植物に並びに/又はそれらの環境に作用させる方法に関する。

【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

ポリ尿素シェル及びコアを含むマイクロカプセルを含む組成物であって、  
コアはペンディメタリンを含み、シェルは

- c) テトラメチルキシリレンジイソシアネート、及び
- d) 少なくとも3つのアミン基を有するポリアミン

の重合生成物を含み、

重合生成物は、テトラメチルキシリレンジイソシアネートの重量に対して、重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを5wt%未満含む、上記組成物。

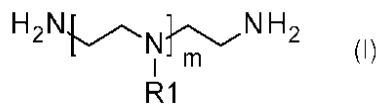
## 【請求項2】

重合生成物が重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを本質的に含まない、請求項1に記載の組成物。

## 【請求項3】

ポリアミンが式(I)

## 【化1】



の化合物であり、式中、mは1から8までの整数であり、及びR1はH又はメチルである、請求項1又は2に記載の組成物。

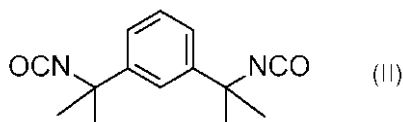
## 【請求項4】

式中、mは2から5までの整数、及びR1はHである、請求項3に記載の組成物。

## 【請求項5】

テトラメチルキシリレンジイソシアネートが式(II)

## 【化2】



の化合物である、請求項1から4のいずれかに記載の組成物。

## 【請求項6】

コアとポリ尿素シェルとの重量比が、50:1から5:1までの範囲、好ましくは40:1から10:1までの範囲、特に30:1から15:1までの範囲にある、請求項1から5のいずれかに記載の組成物。

## 【請求項7】

テトラメチルキシリレンジイソシアネートとポリアミンとのモル比が、0.8:1から1:1.5までの範囲にある、請求項1から6のいずれかに記載の組成物。

## 【請求項8】

ポリ尿素シェルがテトラメチルキシリレンジイソシアネートを少なくとも55wt%含む、請求項1から7のいずれかに記載の組成物。

## 【請求項9】

ポリ尿素シェルがポリアミンを最大で45wt%含む、請求項1から8のいずれかに記載の組成物。

## 【請求項10】

組成物が水性組成物であり、水相がリグノスルホネートを含む、請求項1から10のいずれかに記載の組成物。

## 【請求項11】

リグノスルホネートが最大で10000g/molの分子量を有する、請求項10に記載の組成物。

## 【請求項12】

10

20

30

40

50

リグノスルホネートを0.3～3.0wt%含む、請求項10又は11に記載の組成物。

【請求項13】

コアが水非混和性有機溶媒を1wt%未満含む、請求項1から12のいずれかに記載の組成物。

【請求項14】

コアが水非混和性有機溶媒を0.5wt%未満含む、請求項1から12のいずれかに記載の組成物。

【請求項15】

請求項1から14のいずれかに記載の組成物を調製する方法であって、水、ペンディメタリン、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、及びポリアミンを接触させるステップを含む、上記方法。

10

【請求項16】

望ましくない植物生長を防除する方法であって、請求項1から14のいずれかに記載の組成物を、土壌及び/若しくは望ましくない植物及び/若しくは作物植物並びに/又はそれらの環境に作用させる、上記方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ポリ尿素シェル及びコアを含むマイクロカプセルを含む組成物であって、コアはペンディメタリン (pendimethalin) を含み、並びにシェルはテトラメチルキシリレンジイソシアネート、及び少なくとも3つのアミン基を有するポリアミンの重合生成物を含み、及び重合生成物は、テトラメチルキシリレンジイソシアネートの重量に対して、重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを5wt%未満含む組成物;組成物を調製する方法であって、水、ペンディメタリン、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、及びポリアミンを接触させるステップを含む方法;並びに望ましくない植物生長を防除する方法であって、組成物を、それぞれの有害生物から保護すべき作物植物に、土壌に及び/若しくは望ましくない植物に及び/若しくは作物植物に並びに/又はそれらの環境に作用させる方法に関する。本発明は、好ましい特徴と他の好ましい特徴との組合せを含む。

20

【背景技術】

【0002】

ペンディメタリンは、望まれない雑草を防除するために出芽前施用及び出芽後施用において典型的に使用される既知の除草剤である。これは3,4-ジメチル-2,6-ジニトロ-N-ペンタン-3-イル-アニリン CAS No. 40487-42-1としても公知である。ペンディメタリンの農薬製剤は独特な課題であり、なぜならこの除草剤は特性に関して非常に珍しい組合せを有するからである: 融点が高い(55～57)、蒸気圧が高い(25で約2mPa)、これは光によってゆっくりと分解する、その上に、これは、ペンディメタリンと接触したあらゆる農機具及び皮膚を橙色に汚す。例えば、ペンディメタリンの懸濁濃縮剤は溶媒ベースの乳剤濃縮物(concentrates)と注意深くタンクミックスを行う必要があり、なぜなら、溶媒は懸濁粒子を部分的に溶解し、その結果橙色の噴霧装置をもたらす恐れがあるからである。したがって、様々な問題のこのような組合せを解決するテイラーメイド製剤を見いだすために、この特別な除草剤に鋭意研究が捧げられた。

30

40

【0003】

ポリ尿素シェル及びペンディメタリンコアを含む農薬マイクロカプセルが公知であるが、これらにはいくつかの改善がなお必要である。WO 2011/095859には、ポリマー壁中にマイクロカプセル化されているペンディメタリンのカプセル懸濁剤が開示されているが、この場合、懸濁液は有機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩の第2の相を含む。米国特許第8,709,975(B2)号には、100～400g/lのペンディメタリンマイクロカプセルの安定な水性濃縮物が開示されている。米国特許公開第2014/0200141(A1)号には、マイクロカプセル化されたペンディメタリン及びクロマゾンを含む第2の相を含む製剤が開示されている。

50

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】WO 2011/095859

【特許文献2】米国特許第8,709,975(B2)号

【特許文献3】米国特許公開第2014/0200141(A1)号

【発明の概要】

【0005】

本発明の目的は、ポリ尿素シェル及びコアを含むマイクロカプセルを含む組成物であって、コアはペンディメタリンを含み、並びにシェルは、

10

a) テトラメチルキシリレンジイソシアネート、及び

b) 少なくとも3つのアミン基を有するポリアミン

の重合生成物を含み、並びに

重合生成物は、テトラメチルキシリレンジイソシアネートの重量に対して、重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを5wt%未満含む、組成物によって解決された。

【発明を実施するための形態】

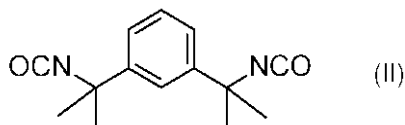
【0006】

適切なテトラメチルキシリレンジイソシアネートとしては、メタ-置換テトラメチルキシリレンジイソシアネート又はパラ-置換テトラメチルキシリレンジイソシアネートとすることができる。好ましくは、テトラメチルキシリレンジイソシアネートは式(II)

20

【0007】

【化1】



の化合物である。

【0008】

重合生成物は、テトラメチルキシリレンジイソシアネートの重量に対して、重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを5wt%未満、好ましくは3wt%未満、特に1wt%未満含む。

30

別の形態では、重合生成物は重合形態のさらなるイソシアネートモノマーを本質的に含まない。用語「さらなるイソシアネートモノマー」とは、少なくとも1つ(好ましくは少なくとも2つ)のイソシアネート基を含むとともに、ポリ尿素を調製するのにモノマーとして適していることができる、任意の化合物を指すことができる。

【0009】

ポリアミンは少なくとも3つのアミン基を有する。様々なポリアミンの混合物も可能である。好ましくは、ポリアミンは、2つの第一級アミン基並びに少なくとも1つの第二級アミン基及び/又は第三級アミン基を有する脂肪族ポリアミンである。適切なポリアミンはエチレンアミンであり、これは通常Huntsman Corp.社、米国又はDow Chemical Co.社、米国から市販されている。より好ましくは、ポリアミンは、ジエチレントリアミン(DETA)、直鎖若しくは分枝トリエチレンテトラミン(TETA)、N,N'-ビス-(2-アミノエチル)ピペラジン(Bis AEP)、テトラエチレンペンタミン(TEPA)、4-(2-アミノエチル)-N-(2-アミノエチル)-N'-{2-[(2-アミノエチル)アミノ]エチル}-1,2-エタンジアミン(AETETA)、1-(2-アミノエチル)-4-[(2-アミノエチル)アミノ]エチル-ピペラジン(AEPEEDA)、1-(2-アミノエチル)-4-[(2-アミノエチル)アミノ]エチル-ピペラジン(AEPEEDA)、ペンタエチレンヘキサミン(PEHA)、ヘキサエチレンヘプタミン(HEHA)、又はそれらの混合物である。さらにより好ましいのは、トリエチレンテトラミン(TETA)、テトラエチレンペンタミン(TEPA)、ペンタエチレンヘキサミン(PEHA)、ヘキサエチレンヘプタミン(HEHA)、及びそれらの混合物である。

40

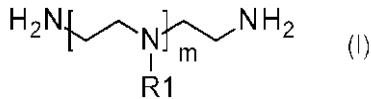
【0010】

50

別の好ましい形態では、ポリアミンは式(1)

【0011】

【化2】



の化合物であり、式中、mは1から8までの整数であり、及びR1はH又はメチルである。係数mは好ましくは2から5まで、より好ましくは3から4まで、特に3の整数である。R1はHであるのが好ましい。好ましくは、mは2から5までの整数であり、及びR1はHである。

【0012】

ポリ尿素シェルは、テトラメチルキシリレンジイソシアネートを通常少なくとも45wt%、好ましくは少なくとも55wt%、特に少なくとも65wt%含む。ポリ尿素シェルは、テトラメチルキシリレンジイソシアネートを通常45~90wt%、好ましくは55~85wt%、特に65~78wt%含む。ポリ尿素シェル中のテトラメチルキシリレンジイソシアネートのwt%は、モノマーの総量を指すことができる。

10

【0013】

ポリ尿素シェルは、ポリアミン(例えば式(1)のポリアミン、式中、mは1から8までの整数である)を通常最大で55wt%、好ましくは最大で45wt%含む、及び最大で35wt%含む。ポリ尿素シェルは、ポリアミン(例えば式(1)のポリアミン、式中、mは1から8までの整数である)を通常15~55wt%、好ましくは20~45wt%、特に25~35wt%含む。ポリ尿素シェル中のポリアミンのwt%は、モノマーの総量を指すことができる。

20

【0014】

重合生成物は、ポリアミンの重量に対して、重合形態のさらなるアミンモノマーを最大で30wt%、好ましくは最大で10wt%、特に最大で5wt%含むことができる。用語「さらなるアミンモノマー」とは、少なくとも1つ(好ましくは少なくとも2つ)のアミン基を含むとともに、ポリ尿素を調製するのにモノマーとして適しているとするすることができる、任意の化合物を指すことができる。

【0015】

コアとポリ尿素シェルの重量比は、通常50:1から5:1までの、好ましくは40:1から10:1までの、特に30:1から15:1までの範囲にある。コアの重量はペンディメタリンの量、任意選択で水非混和性有機溶媒の量、及び任意選択でさらなる溶媒の量に基づいてもよい。ポリ尿素シェルの重量は、テトラメチルキシリレンジイソシアネートの量、及びポリアミンの量に基づいてもよい。

30

【0016】

別の好ましい形態では、ポリ尿素シェルは、テトラメチルキシリレンジイソシアネートを45~90wt%、ポリアミン(例えば式(1)のポリアミン、式中、mは2から5までの整数である)を15~55wt%、さらなるイソシアネートモノマー5wt%未満を含み、コアとポリ尿素シェルの重量比は50:1から5:1までの範囲にある。

【0017】

別の好ましい形態では、ポリ尿素シェルは、テトラメチルキシリレンジイソシアネートを55~85wt%、ポリアミン(例えば式(1)のポリアミン、式中mは2から5の整数である)を20~45wt%、さらなるイソシアネートモノマーを3wt%未満含み、コアとポリ尿素シェルの重量比は40:1から10:1までの範囲にある。

40

【0018】

別の好ましい形態では、ポリ尿素シェルは、テトラメチルキシリレンジイソシアネートを65~75wt%、ポリアミン(例えば式(1)のポリアミン、式中mは2から5の整数である)を25~35wt%を含み、さらなるイソシアネートモノマーを含まず、コアとポリ尿素シェルの重量比は30:1から15:1までの範囲にある。

【0019】

ポリ尿素シェルを有するマイクロカプセルは従来技術と同様にして調製することができる

50

る。これらは、適切なポリマー壁形成材料、例えば、ジイソシアネート及びジアミンの界面重合法により調製するのが好ましい。界面重合は、ポリマー壁形成材料の少なくとも一部を溶解して含有するコア材料の水性水中油型乳濁液又は懸濁液中で、通常は行われる。重合中、ポリマーはコア材料からコア材料と水との間の境界面に分離し、その結果、マイクロカプセルの壁を形成する。それによってマイクロカプセル材料の水性懸濁液が得られる。ペンディメタリンを含有するマイクロカプセルを調製する界面重合法に適切な方法は従来技術で開示されてきた。概して、少なくとも1種のジイソシアネートを少なくとも1種のジアミンと反応させることによりポリ尿素を形成して、ポリ尿素シェルを形成する。

【0020】

マイクロカプセルの平均粒径(光散乱によるz-平均、好ましくは $D_{4.3}$ 平均)は、0.5~50  $\mu\text{m}$ 、好ましくは0.5~20  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは1~15  $\mu\text{m}$ 、特に2~10  $\mu\text{m}$ である。

10

【0021】

本発明のマイクロカプセルのコアは水非混和性有機溶媒を含んでもよい。水非混和性有機溶媒の適切な例は、

- 炭化水素溶媒、例えば、脂肪族、環状及び芳香族炭化水素(例えば、トルエン、キシレン、パラフィン、テトラヒドロナフタレン、アルキル化ナフタレン又はそれらの誘導体、中~高沸点の鉱物油留分(例えば灯油、ディーゼル油、コールタール油))、
  - 植物油、例えば、トウモロコシ油、ナタネ油、
  - 脂肪酸エステル、例えば、 $C_{10}$ ~ $C_{22}$ -脂肪酸の $C_1$ ~ $C_{10}$ -アルキルエステル、又は
  - 植物油のメチルエステル又はエチルエステル、例えば、ナタネ油メチルエステル若しくはトウモロコシ油メチルエステル
- である。

20

【0022】

上記水非混和性有機溶媒の混合物も可能である。水非混和性有機溶媒は、通常市販されており、例えば、商品名Solvesso(登録商標)200、Aromatic(登録商標)200、又はCaromax(登録商標)28の炭化水素である。芳香族炭化水素をナフタレンを除いた品質(naphthalene depleted quality)として使用することができる。好ましい水非混和性有機溶媒は炭化水素、特に芳香族炭化水素である。

【0023】

好ましくは、水非混和性有機溶媒は、20 で最大で20g/lの、より好ましくは最大で5g/lの、特に最大で0.5g/lの水溶解度を有する。

30

【0024】

通常、水非混和性有機溶媒は、100 超、好ましくは150 超、特に180 超の沸点を有する。

【0025】

好ましい一形態では、マイクロカプセルのコアは、水非混和性有機溶媒を最大で10wt%、好ましくは最大で5wt%、特に最大で1wt%含んでもよい。

【0026】

より好ましい一形態では、マイクロカプセルのコアは、水非混和性有機溶媒を1wt%未満、好ましくは0.5wt%未満、特に0.1wt%未満含んでもよい。別のより好ましい形態では、マイクロカプセルのコアは水非混和性有機溶媒を含まない。

40

【0027】

マイクロカプセルのコアは、コア中の全溶媒の総量に対して、さらなる溶媒を、例えば最大で30wt%、好ましくは最大で15wt%含んでもよい。別の好ましい形態では、マイクロカプセルのコアはさらなる溶媒を含まない。さらなる溶媒は水でもよく、水混和性溶媒でもよい。水混和性有機溶媒は、20 で少なくとも0.5g/l、より好ましくは少なくとも5g/l、特に少なくとも20g/lの水溶解度を有することができる。

【0028】

より好ましい一形態では、マイクロカプセルのコアは、有機溶媒を1wt%未満、好ましくは0.5wt%未満、特に0.1wt%未満含んでもよい。別のより好ましい形態では、マイクロカプ

50

セルのコアは有機溶媒を含まない。適切な有機溶媒は、水非混和性有機溶媒及びさらなる溶媒である。

【0029】

マイクロカプセルのコアは、ペンディメタリン、任意選択で水非混和性有機溶媒、及び任意選択でさらなる溶媒の合計を、少なくとも90wt%、好ましくは少なくとも95wt%、特に少なくとも99wt%含んでもよい。別の形態では、マイクロカプセルのコアはペンディメタリン、任意選択で水非混和性有機溶媒、及び任意選択でさらなる溶媒からなることができる。また別の形態では、マイクロカプセルのコアはペンディメタリンからなることができる。

【0030】

好ましい一形態では、マイクロカプセルのコアはペンディメタリンを少なくとも90wt%、好ましくは少なくとも95wt%、特に少なくとも99wt%含んでもよい。

【0031】

本発明の組成物は水性組成物とすることができ、これは水相(例えば連続水相)を含むことができる。水性組成物は水を少なくとも10wt%、好ましくは少なくとも25wt%、特に少なくとも35wt%含んでもよい。通常、マイクロカプセルは水性組成物の水相中に懸濁している。

【0032】

好ましくは、本発明の組成物は水性組成物であり、水相はリグノスルホネートを含む。適切であるリグノスルホネートは、アルカリ金属塩及び/又はアルカリ土類金属塩及び/又はアンモニウム塩、例えばリグノスルホン酸のアンモニウム塩、ナトリウム塩、カリウム塩、カルシウム塩又はマグネシウム塩である。ナトリウム塩、カリウム塩及び/又はカルシウム塩を使用するのが特段に好ましい。いうまでもないが、用語リグノスルホネートはまた、様々なイオンの混合塩、例えばカリウム/ナトリウムリグノスルホン酸塩、カリウム/カルシウムリグノスルホン酸塩等、特にナトリウム/カルシウムリグノスルホン酸塩を包含する。

【0033】

リグノスルホネートはクラフトリグニンをベースとすることができ、クラフトリグニンは、リグニンの水酸化ナトリウム及び硫化ナトリウムとのパルブプロセスにおいて得られる。クラフトリグニンをスルホン化して、リグノスルホネートが得られる。

【0034】

リグノスルホネートの分子量は、500から20000g/molまでの範囲とすることができ、好ましくは、リグノスルホネートは700~10000g/molの、より好ましくは900から7000g/molまでの、特に1000から5000g/molまでの分子量を有する。

【0035】

リグノスルホネートは、通常、例えば少なくとも5wt%、好ましくは少なくとも10wt%、特に少なくとも20wt%、水に可溶性である(例えば20 度)。

【0036】

水性組成物はリグノスルホネートを通常0.1~5.0wt%、好ましくは0.3~3.0wt%、特に0.5~2.0wt%含む。

【0037】

本発明の組成物(例えば水性組成物)はカプセル化ペンディメタリン(encapsulated pen dimethalin)を通常少なくとも1wt%、好ましくは少なくとも3wt%、特に少なくとも10wt%含有する。

【0038】

本発明の組成物はカプセル化ペンディメタリンに加えて非カプセル化殺有害生物剤(non-encapsulated pesticide)を含むことができる。この非カプセル化殺有害生物剤は、溶解形態で、又は懸濁物、エマルジョン若しくはサスポエマルジョンとして存在することができる。これはコア中の殺有害生物剤と同一でも異なってもよい。水性組成物は、水相中に非カプセル化殺有害生物剤を含むことができる。水性組成物は非カプセル化殺有害

10

20

30

40

50

生物剤を通常少なくとも1wt%、好ましくは少なくとも3wt%、特に少なくとも10wt%含有する。

【0039】

殺有害生物剤という用語は、通常、殺菌剤、殺虫剤、殺線虫剤、除草剤、薬害軽減剤、バイオ殺有害生物剤及び/又は成長調節剤の群から選択される少なくとも1種の活性物質を指す。好ましい殺有害生物剤は、殺菌剤、殺虫剤、除草剤及び成長調節剤である。特に好ましい殺有害生物剤は除草剤である。上記クラスの2種以上の殺有害生物剤の混合物を用いてもよい。当業者であれば、このような殺有害生物剤に精通しており、このような殺有害生物剤は例えば、Pesticide Manual、16版(2013)、The British Crop Protection Council、Londonに見出すことができる。適切な殺虫剤は、カーバメート系、有機リン酸エステル系、有機塩素系殺虫剤、フェニルピラゾール系、ピレスロイド系、ネオニコチノイド系、スピノシン系、アベルメクチン系、ミルベマイシン系、幼若ホルモンアナログ系、ハロゲン化アルキル系、有機スズ化合物、ネレリストキシン(nereistoxin)アナログ系、ベンゾイル尿素系、ジアシルヒドラジン系、METI殺ダニ剤(acarizide)系のクラスからの殺虫剤、並びに例えばクロロピクリン、ピメトロジン、フロニカミド、クロフェンテジン、ヘキシチアゾクス、エトキサゾール、ジアフェンチウロン、プロパルギット、テトラジホン、クロロフェナピル、DNOC、ブプロフェジン、シロマジン、アミトラズ、ヒドラメチルノン、アセキノシル、フルアクリピリム、ロテノン又はこれらの誘導体の殺虫剤である。適切な殺菌剤は、ジニトロアニリン系、アリルアミン系、アニリノピリミジン系、抗生物質、芳香族炭化水素、ベンゼンスルホンアミド系、ベンズイミダゾール系、ベンズイソチアゾール系、ベンゾフェノン系、ベンゾチアジアゾール系、ベンゾトリアジン系、ベンジルカーバメート系、カーバメート系、カルボキサミド系、カルボン酸ジアミド系、クロロニトリル系、シアノアセトアミドオキシム系、シアノイミダゾール系、シクロプロパンカルボキサミド系、ジカルボキシイミド系、ジヒドロジオキサジン系、ジニトロフェニルクロトネート系、ジチオカーバメート系、ジチオラン系、エチルホスホネート系、エチルアミノチアゾールカルボキサミド系、グアニジン系、ヒドロキシ-(2-アミノ)ピリミジン系、ヒドロキシアニリド系、イミダゾール系、イミダゾリノン系、無機物、イソベンゾフラノン系、メトキシアクリレート系、メトキシカーバメート系、モルホリン系、N-フェニルカーバメート系、オキサゾリジンジオン系、オキシミノアセテート系、オキシミノアセトアミド系、ペプチジルピリミジンヌクレオシド系、フェニルアセトアミド系、フェニルアミド系、フェニルピロール系、フェニル尿素系、ホスホン酸エステル系、ホスホロチオラート系、フタルアミド酸系、フタルイミド系、ペペラジン系、ペペリジン系、プロピオンアミド系、ピリダジノン系、ピリジン系、ピリジニルメチルベンズアミド系、ピリミジンアミン系、ピリミジン系、ピリミジノンヒドラゾン系、ピロロキノリノン系、キナゾリノン系、キノリン系、キノン系、スルファミド系、スルファモイルトリアゾール系、チアゾールカルボキサミド系、チオカーバメート系、チオファネート系、チオフエンカルボキサミド系、トルアミド系、トリフェニルスズ化合物系、トリアジン系、トリアゾール系のクラスからの殺菌剤である。適切な除草剤は、アセトアミド系、アミド系、アリーロキシフェノキシプロピオネート系、ベンズアミド系、ベンゾフラン系、安息香酸系、ベンゾチアジアジノン系、ビピリジリウム系、カーバメート系、クロロアセトアミド系、クロロカルボン酸系、シクロヘキサジジオン系、ジニトロアニリン系、ジニトロフェノール系、ジフェニルエーテル系、グリシン系、イミダゾリノン系、イソオキサゾール系、イソオキサゾリジンジオン系、ニトリル系、N-フェニルフタルイミド系、オキサジアゾール系、オキサゾリジンジオン系、オキシアセトアミド系、フェノキシカルボン酸系、フェニルカーバメート系、フェニルピラゾール系、フェニルピラゾリン系、フェニルピリダジン系、ホスフィン酸系、ホスホロアミデート系、ホスホロジチオエート系、フタラメート系、ピラゾール系、ピリダジノン系、ピリジン系、ピリジンカルボン酸系、ピリジンカルボキサミド系、ピリミジンジオン系、ピリミジニル(チオ)ベンゾエート系、キノリンカルボン酸系、セミカルバゾン系、スルホニルアミノカルボニルトリアゾリノン系、スルホニル尿素系、テトラゾリノン系、チアジアゾール系、チオカーバメート系、トリアジン系、トリアジノ

10

20

30

40

50



ン系、トリアゾール系、トリアゾリノン系、トリアゾロカルボキサミド系、トリアゾロピリミジン系、トリケトン系、ウラシル系、尿素系のクラスからの除草剤である。

【0040】

本発明の組成物はまた、水溶性の無機塩を含有し、これはマイクロカプセルの調製から生じる場合もあり、後から添加される場合もある。存在する場合、水溶性無機塩の濃度は1から200g/lまでの、好ましくは2から150g/lまでの、特に10から130g/lまでの範囲とすることができる。塩の水溶性とは、20 で少なくとも50g/l、特に少なくとも100g/l、又はさらには少なくとも200g/lの水溶解度を意味する。

【0041】

そのような無機塩は、アルカリ金属の硫酸塩、塩化物、硝酸塩、リン酸一水素塩及びリン酸二水素塩、アンモニアの硫酸塩、塩化物、硝酸塩、リン酸一水素塩及びリン酸二水素塩、アルカリ土類金属の塩化物及び硝酸塩、並びに硫酸マグネシウムから選択されるのが好ましい。例としては、塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、硝酸リチウム、硝酸ナトリウム、硝酸カリウム、硫酸リチウム、硫酸ナトリウム、硫酸カリウム、リン酸一水素ナトリウム、リン酸一水素カリウム、リン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウム、塩化マグネシウム、塩化カルシウム、硝酸マグネシウム、硝酸カルシウム、硫酸マグネシウム、塩化アンモニウム、硫酸アンモニウム、リン酸一水素アンモニウム、リン酸二水素アンモニウム等が、挙げられる。好ましい無機塩は塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化カルシウム、硫酸アンモニウム及び硫酸マグネシウムであり、硫酸アンモニウム及び硫酸マグネシウムが特に好ましい。

10

20

【0042】

別の実施形態では、本発明の組成物は水溶性無機塩を含有しないか、それを10g/l未満、特に1g/l未満含有する。

【0043】

本発明の組成物は、グリコール、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコールを含むことができる。本発明の組成物はグリコールを、1から250g/lまで、好ましくは10から150g/lまで、特に30から100g/lまで含むことができる。

【0044】

本発明の組成物は、マイクロカプセルの外に、例えば水性組成物の水相中に、さらなる助剤を含んでもよい。適切な助剤の例は、界面活性剤、分散剤、乳化剤、湿潤剤、補助剤、可溶化剤、浸透促進剤、保護コロイド、接着剤、増粘剤、保湿剤、忌避剤、誘引剤、摂食刺激物質、相溶化剤、殺細菌剤、消泡剤、着色剤、粘着付与剤及びバインダーである。

30

【0045】

適切な界面活性剤は、表面活性化合物 (surface-active compound)、例えばアニオン性、カチオン性、非イオン性及び両性界面活性剤、ブロックポリマー、高分子電解質、並びにそれらの混合物である。そのような界面活性剤は、乳化剤、分散剤、可溶化剤、湿潤剤、浸透促進剤、保護コロイド、又は補助剤として使用することができる。界面活性剤の例は、McCutcheon's、第1巻: Emulsifiers & Detergents, McCutcheon's Directories、Glen Rock、米国、2008 (International編又はNorth American編)に列記されている。

【0046】

適切なアニオン性界面活性剤は、スルホネート、スルフェート、ホスフェート、カルボキシレートのアルカリ塩、アルカリ土類塩又はアンモニウム塩、及びそれらの混合物である。スルホネートの例は、アルキルアリアルスルホネート、ジフェニルスルホネート、アルファ-オレフィンスルホネート、脂肪酸及び油のスルホネート、エトキシル化アルキルフェノールのスルホネート、アルコキシル化アリアルフェノールのスルホネート、縮合ナフタレンのスルホネート、ドデシルベンゼン及びトリデシルベンゼンのスルホネート、ナフタレン及びアルキルナフタレンのスルホネート、スルホスクシネート又はスルホスクシナメートである。スルフェートの例は、脂肪酸及び油のスルフェート、エトキシル化アルキルフェノールのスルフェート、アルコールのスルフェート、エトキシル化アルコールのスルフェート、又は脂肪酸エステルのスルフェートである。ホスフェートの例はホスフェ

40

50

ートエステルである。カルボキシレートの例は、アルキルカルボキシレート、及びカルボキシル化アルコール又はアルキルフェノールエトキシレートである。スルホネートという用語は、リグニンスルホネートとは異なる物質を指す。

【0047】

適切な非イオン性界面活性剤は、アルコキシレート、N置換脂肪酸アミド、アミノオキシド、エステル、糖ベースの界面活性剤、ポリマー界面活性剤、及びそれらの混合物である。アルコキシレートの例は、1~50当量でアルコキシル化された、アルコール、アルキルフェノール、アミン、アミド、アリールフェノール、脂肪酸又は脂肪酸エステルなどの化合物である。エチレンオキシド及び/又はプロピレンオキシド、好ましくはエチレンオキシドをアルコキシル化のために用いることができる。N置換脂肪酸アミドの例は、脂肪酸グルカミド又は脂肪酸アルカノールアミドである。エステルの例は脂肪酸エステル、グリセロールエステル又はモノグリセリドである。糖ベースの界面活性剤の例は、ソルビタン、エトキシル化ソルビタン、スクロース及びグルコースエステル又はアルキルポリグルコシドである。ポリマー界面活性剤の例は、ビニルピロリドン、ビニルアルコール、又は酢酸ビニルのホモポリマー若しくはコポリマーである。

10

【0048】

適切なカチオン性界面活性剤は、第4級界面活性剤、例えば1個若しくは2個の疎水性基を有する第4級アンモニウム化合物、又は長鎖第一級アミンの塩である。適切な両性界面活性剤は、アルキルベタイン及びイミダゾリンである。適切なブロックポリマーは、ポリエチレンオキシド及びポリプロピレンオキシドのブロックを含むA-B型若しくはA-B-A型のブロックポリマー、又はアルカノール、ポリエチレンオキシド及びポリプロピレンオキシドを含むA-B-C型のブロックポリマーである。適切な高分子電解質は、ポリ酸又はポリ塩基である。ポリ酸の例は、ポリアクリル酸又はポリ酸くし形ポリマーのアルカリ塩である。ポリ塩基の例は、ポリビニルアミン又はポリエチレンアミンである。

20

【0049】

適切な補助剤は、それ自体は無視し得る殺有害生物活性を有するか又はそれを全く有さず、化合物Iの標的に対する生物学的性能を改善する化合物である。例としては、界面活性剤、鉱油又は植物油及び他の助剤である。さらなる例は、Knowles、Adjuvants and additives、Agrow Reports DS256、T&F Informa UK、2006、5章に列記されている。

30

【0050】

適切な増粘剤は、多糖類(例えば、キサンタンガム、カルボキシメチルセルロース)、無機質のクレイ(有機修飾又は非修飾)、ポリカルボキシレート、及びシリケートである。

【0051】

適切な殺細菌剤は、プロノポール及びイソチアゾリノン誘導体、例えばアルキルイソチアゾリノン及びベンゾイソチアゾリノンである。

【0052】

適切な消泡剤は、シリコーン、長鎖アルコール、及び脂肪酸の塩である。

【0053】

本発明はまた、水、ペンディメタリン、テトラメチルキシリレンジイソシアネート、及びポリアミンを接触させるステップを含む、本発明の組成物を調製する方法にも関する。接触ステップは、成分を、例えば20から100 までの温度で成分を混合することにより行うことができる。

40

【0054】

本発明は、望ましくない植物生長を防除する方法であって、本発明による組成物を、土壌に及び/若しくは望ましくない植物に及び/若しくは作物植物に並びに/又はそれらの環境に作用させる、方法にさらに関する。

【0055】

適切な作物植物の例は、穀類、例えばコムギ、ライムギ、オオムギ、ライコムギ、オートムギ又はイネ;ビート、例えばテンサイ又は飼料ビート;ナシ状果、核果及び柔らかい果実、例えばリンゴ、ナシ、プラム、モモ、アーモンド、サクランボ、イチゴ、キイチゴ、

50

スグリ又はグズベリー；豆類、例えばマメ、レンチル、エンドウマメ、アルファルファ又はダイズ；油料作物、例えばアブラナ、マスタード、オリーブ、ヒマワリ、ココナッツ、カカオ、トウゴマ、アブラヤシ、ピーナッツ又はダイズ；ウリ科植物、例えばカボチャ(pumpkin/squash)、キュウリ又はメロン；繊維植物、例えば、綿、亜麻、麻又はジュート；柑橘類、例えばオレンジ、レモン、グレープフルーツ又はマンダリン；野菜、例えばハウレンソウ、レタス、アスパラガス、キャベツ、ニンジン、タマネギ、トマト、ジャガイモ、カボチャ又はパプリカ；クスノキ科植物、例えばアボカド、シナモン又はカンファー；エネルギー作物及び原材料作物、例えばトウモロコシ、ダイズ、コムギ、ナタネ、サトウキビ又はアブラヤシ；トウモロコシ；タバコ；ナッツ；コーヒー；茶；バナナ；つる植物(食用ブドウ及びワイン醸造用ブドウ)；ホップ；草、例えば芝；スウィートリーフ(sweet leaf)(ステビア・レバウダニア(*Stevia rebaudania*))；ゴムの木及び森林植物、例えば花、灌木、落葉樹及び針葉樹、並びに繁殖材料、例えば種子、及びこれらの植物の収穫生産物である。

10

## 【0056】

作物植物という用語にはまた、市場に出ているか開発中の生物工学農産物を含めて、育種、突然変異生成又は組換え方法によって改変された植物も含まれる。遺伝子改変植物とは、その遺伝物質が、交雑、突然変異又は天然の組換え(すなわち遺伝物質の組換え)によって自然条件下で起こらない方法で改変された植物である。この点では、植物の特性を向上させるために、一般には、1以上の遺伝子が植物の遺伝物質に組み込まれることになる。そのような組換え改変はまた、例えばグリコシル化による、又は例えばプレニル化、アセチル化若しくはファルネシル化残基又はPEG残基などのポリマーを結合することによるタンパク質、オリゴペプチド又はポリペプチドの翻訳後修飾も含む。

20

## 【0057】

使用者は、本発明による組成物を、通常、プレ投与装置(predosage device)、背負い式噴霧器、噴霧タンク、噴霧飛行機、又は灌漑システムから施用する。通常、農薬組成物は、水、緩衝剤、及び/又はさらなる助剤により所望の施用濃度とされ、即時使用可能噴霧液又は本発明による農薬組成物がかくして得られる。通常、農業有用面積1ヘクタール当たり20~2000リットル、好ましくは50~400リットルの即時使用可能噴霧液が施用される。

## 【0058】

様々な種類の油、湿潤剤、補助剤、肥料、又は微量栄養素、及びさらなる殺有害生物剤(例えば除草剤、殺虫剤、殺菌剤、成長調節剤、毒性緩和剤)を、プレミックスとしてそれらを含む農薬組成物に、又は適切であれば使用直前に添加することができる(タンクミックス)。これらの薬剤は、本発明による組成物と、1:100~100:1、好ましくは1:10~10:1の重量比で混合することができる。

30

## 【0059】

植物保護で用いられる場合、施用される活性物質の量は、望まれる効果の種類に応じて、1haにつき0.001から2kgまで、好ましくは1haにつき0.005から2kgまで、より好ましくは1haにつき0.05から0.9kgまで、特に1haにつき0.1から0.75kgまでである。例えば種子に散粉、コーティング又は浸漬をすることによる、種子などの植物繁殖材料の処理において、100キログラムの植物繁殖材料(好ましくは、種子)あたり、0.1から1000gまで、好ましくは1から1000gまで、より好ましくは1から100gまで、最も好ましくは5から100gまでの活性物質の量が一般的に必要とされる。

40

## 【0060】

本発明は種々の利点を有する：本発明の組成物は例えば広範囲の温度でも貯蔵の間長期間安定である；本発明の組成物は水で希釈後にスプレーノズルが目詰まりすることなく施用可能である；本発明の組成物は水で希釈後安定である；本発明の組成物は種々の他の作物保護製品と混合することができる；着色ペンディメタリンによって生じる、装置、農夫、又は作物の汚れが低減する；ペンディメタリンの揮発が低減する；UV感受性が低下する；ペンディメタリンは作物への施用後より安定である。

## 【0061】

50

以下の実施例は、本発明をさらに説明するが、本発明はこれらの実施例に制限されるものではない。

【実施例】

【0062】

TMXDI: テトラメチル-m-キシリレンジイソシアネート、CAS 2778-42-9。

TEPA: テトラエチレンペンタミン (Tetraethylenepentaamine)

添加剤A: ナフタレンスルホネート縮合物のナトリウム塩。

リグノスルホネート: リグノスルホネートのナトリウム塩、クラフトリグニンをベースとする、分子量約3000g/mol、水溶性、CAS 68512-34-5。

【0063】

[実施例1]

殺有害生物剤及びTMXDIを含む油相を、65 で水相(リグノスルホネート、硫酸マグネシウム五水和物を含む)に添加し、高せん断装置を使用して乳化させた。乳化後、乳化デバイスを低せん断攪拌機に代え、テトラエチレンペンタミン(TEPA)を添加した。続いて、分散液を60 で30~60分間ゆっくりと振とうした。攪拌下で、添加剤A、キサンタンガム、シリコン消泡剤、殺生物剤を含む水性仕上げ溶液をカプセル分散液に添加し、酢酸を添加してpHをpH6~8に調整した。マイクロカプセルの平均サイズは7.4 μmであった。

【0064】

【表1】

表1:

	量[g/l]
ペンディメタリン	455
TMXDI	14,7
TEPA	5,92
リグノスルホネート	11
添加剤A	4
硫酸マグネシウム	100
キサンタンガム	0,4
シリコン消泡剤	0,6
殺生物剤	2
水	加えて1,0l とした

【0065】

[実施例2]

マイクロカプセルを実施例1におけるように調製した。表2に成分の量が列記されている。マイクロカプセルの平均サイズは8.0 μmであった。

【0066】

10

20

30

## 【表 2】

表 2:

	量[g/l]
ペンディメタリン	455
TMXDI	14,7
TEPA	5,92
リグノスルホネート	11
添加剤 A	5
1,2 プロピレングリコール	70
キサンタンガム	2,5
シリコン消泡剤	5
殺生物剤	2
水	加えて 1,0l とした

10

## 【 0 0 6 7 】

## [実施例3]

噴霧可能濃度に水で希釈後のマイクロカプセル製剤を、フィルターを目詰まりすることなく且つ噴霧器又はスプレーノズルを汚すことなく、標準噴霧器で使うことができるかどうかについて、目詰まり試験及び汚れ試験を使用して調査した。

20

## 【 0 0 6 8 】

比較実施例Comp-1を実施例1によって調製したが、TEPA(テトラエチレンペンタミン)5.92gの代わりにヘキサメチレンジアミン5.8gを使用した。

## 【 0 0 6 9 】

実施例1又は比較実施例Comp-1の製剤を硬水(CIPAC D)で希釈して、実施例1の製剤又は比較実施例Comp-1の製剤を1wt%含有するマイクロカプセル懸濁液1000mlを調製した。このマイクロカプセル懸濁液を金属篩(150 μm)を備えるカートリッジをとおして8h循環させた。試験中、冷たい井戸水をシミュレートするために、温度を約10℃に一定に維持した。

## 【 0 0 7 0 】

その後、残渣について金属篩を視覚的に検査した。実施例1を使用した場合、少量の残渣のみが見られた。比較実施例Comp-1を使用した場合、既に2h後には、明らかに多量の橙色の粘着性残渣によってフィルターは目詰まりし且つ汚れていた。試験を継続することは出来ず、装置を洗浄する必要があった。

30

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2016/062985
---

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. A01N25/28 A01N25/30 A01N33/18 A01P13/00 ADD.		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) A01N		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2007/238615 A1 (KRAUSE HANS-PETER [DE] ET AL) 11 October 2007 (2007-10-11) paragraphs [0159], [0161], [0225]; examples 3, 6, 7; tables 1, 2 -----	1-16
A	US 2014/200141 A1 (SHROFF JAIDEV RAJNIKANT [IN] ET AL) 17 July 2014 (2014-07-17) paragraph [0206] -----	1-16
A	US 5 925 595 A (SEITZ MICHAEL E [US] ET AL) 20 July 1999 (1999-07-20) column 10; example 6; table 1 -----	1-16
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
14 July 2016		02/08/2016
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer
		Sawicki, Marcin

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2016/062985

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date	
US 2007238615	A1	11-10-2007	DE 102006015940 A1	11-10-2007
			TW 200808174 A	16-02-2008
			US 2007238615 A1	11-10-2007
			WO 2007115654 A2	18-10-2007
-----				
US 2014200141	A1	17-07-2014	AU 2011374749 A1	06-02-2014
			CA 2842763 A1	14-02-2013
			CN 103929958 A	16-07-2014
			CO 6870048 A2	20-02-2014
			CR 20140068 A	18-08-2014
			DO P2014000028 A	30-06-2014
			KR 20140048241 A	23-04-2014
			PE 14832014 A1	16-11-2014
			US 2014200141 A1	17-07-2014
			UY 33642 A	28-02-2013
			WO 2013021229 A1	14-02-2013
-----				
US 5925595	A	20-07-1999	AR 017065 A1	22-08-2001
			AT 256389 T	15-01-2004
			AU 734072 B2	31-05-2001
			AU 9376398 A	22-03-1999
			BR 9814262 A	25-02-2004
			CA 2302235 A1	11-03-1999
			CN 1291074 A	11-04-2001
			DE 69820677 D1	29-01-2004
			DE 69820677 T2	30-09-2004
			EP 1037527 A1	27-09-2000
			HU 0100193 A2	28-06-2001
			ID 20837 A	11-03-1999
			MY 120760 A	30-11-2005
			PL 343867 A1	10-09-2001
			US 5925595 A	20-07-1999
			WO 9911122 A1	11-03-1999
YU 13100 A	12-08-2002			
ZA 9808125 A	05-03-1999			
-----				

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I		テーマコード (参考)
<b>C 0 8 G 18/76 (2006.01)</b>	C 0 8 G 18/76	0 1 4	
<b>C 0 8 L 75/02 (2006.01)</b>	C 0 8 L 75/02		
<b>C 0 8 K 5/32 (2006.01)</b>	C 0 8 K 5/32		

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(72) 発明者 コルブ, クラウス  
 ドイツ連邦共和国 6 7 1 0 5 シファーシュタット, シュパイアー シュトラーセ 9 3

(72) 発明者 グレゴリ, ヴォルフガング  
 ドイツ連邦共和国 6 7 0 6 7 ルートヴィヒスハーフェン, ケーニヒスバッハー シュトラーセ 5 8

(72) 発明者 シュタインブレンナー, ウルリヒ  
 ドイツ連邦共和国 6 7 4 3 5 ノイシュタット, ミュラー - トゥールガオ - ヴェーク 2 0

(72) 発明者 パラ ラパド, リリアナ  
 ドイツ連邦共和国 7 7 6 5 4 オッフェンブルク, ヴァルター - ブルーメンシュトック - シュトラーセ 2 2

F ターム (参考) 4H011 AB01 BA01 BB04 BC07 BC19 DA06 DE15 DG02 DG16 DH05  
 4J002 CK011 ES006 FA101 FB286 FD206 GA01  
 4J034 BA02 CA14 CA16 CB02 CB07 CC05 HA07 HA11 HC12 HC61  
 HC73 JA03 JA28 JA30 MA14 QC04 QC05 RA01