

[19]中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷

A01N 41/10

A01N 41/04

A01N 37/22

[12] 发明专利说明书

[21] ZL 专利号 96195541.4

[45] 授权公告日 2001 年 10 月 31 日

[11] 授权公告号 CN 1073798C

[22] 申请日 1996. 7. 11

[21] 申请号 96195541.4

[30] 优先权

[32] 1995. 7. 19 [33] US [31] 08/504,267

[86] 国际申请 PCT/GB96/01673 1996. 7. 11

[87] 国际公布 WO97/03562 英 1997. 2. 6

[85] 进入国家阶段日期 1998. 1. 14

[73] 专利权人 泽尼卡有限公司

地址 英国伦敦

[72] 发明人 J·M·施里布斯

[56] 参考文献

DE4216880A 1993. 11. 25 _

WO9105469A1 1991. 5. 2 _

审查员 刘 建

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利商标事务所

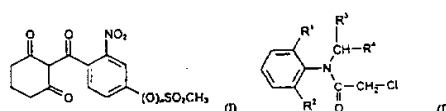
代理人 孙 爱

权利要求书 2 页 说明书 11 页 附图页数 0 页

[54] 发明名称 除草组合物及其控制杂草的方法

[57] 摘要

本发明涉及一种增效除草组合物,其含有(A)一种式(I)环己二酮化合物:其中n是0或1;和(B)一种式(II)氯代N-乙酰苯胺化合物:其中R¹是氢,甲基或乙基;R²是氢或乙基;R³是氢或甲基;以及R⁴是甲基,甲氧基,甲氧基甲基,乙氧基或丁氧基。本发明也涉及一种控制不期望植物,特别是农作物中不期望植物生长的方法,也公开了该增效组合物的应用。

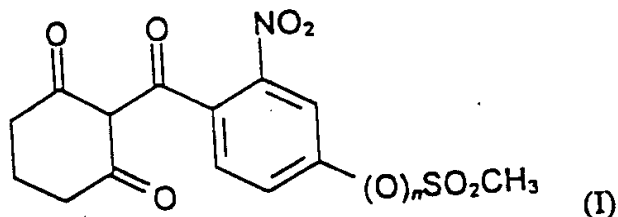


ISSN 1008-4274

权 利 要 求 书

1. 一种含有除草有效量下述混合物的除草组合物, 所述混合物由组份(A)和组份(B)组成:

(A) 一种式(I)环己二酮化合物:



其中 n 是 0 或 1; 和

(B) 乙草胺, 甲草胺或丙草胺,

其中组份(A)与组份(B)的重量比在 32:1 和 1:20 之间。

2. 权利要求 1 的除草组合物, 其中组份(A)是 2-(2'-硝基-4'-甲基磺酰基苯甲酰基)-1, 3-环己二酮。

3. 权利要求 2 的除草组合物, 其中组份(B)是乙草胺。

4. 权利要求 3 的除草组合物, 其中组份(A)与组份(B)的重量比在 8:1 和 1:15 之间。

5. 权利要求 4 的除草组合物, 其中组份(A)与组份(B)的重量比在 4:1 和 1:10 之间。

6. 一种控制不期望植物的方法, 包括向这种植物地点施用除草有效量的权利要求 1-5 中任一项的组合物。

7. 权利要求 6 的方法, 其中向不期望植物地点施用的组份(A)与组份(B)

的合并的量在 0.005 kg/ha-5.0 kg/ha 之间。

8. 权利要求 7 的方法, 其中向不期望植物地点施用的组份 (A) 与组份 (B) 的合并的量在 0.5 kg/ha-3.0 kg/ha 之间。

9. 权利要求 6 的方法, 其中向不期望植物地点施用的组份 (A) 与组份 (B) 的合并的量至少是 1.0 kg/ha, 其中向不期望植物地点施用至少 0.04kg/ha 组份 (A)。



说明书

除草组合物及其控制杂草的方法

发明领域

本发明涉及一种增效除草组合物，其含有(A)一种除草剂环己二酮化合物和(B)一种除草剂氯代 N-乙酰苯胺化合物，以及一种其农业上可接受载体。本发明也涉及一种控制不期望植物，特别是农作物中不期望植物生长的方法，以及涉及该增效组合物的应用。

发明背景

保护农作物不受杂草和其它抑制农作物生长的植物的侵害一直是农业中重复性问题。为了帮助解决这一问题，合成化学领域的研究人员已经制备出很多不同的有效控制这样的不期望的植物生长的化学物质和化学制剂。很多类型化学除草剂已经在文献中公开，而且很多化学除草剂是商业上应用的。

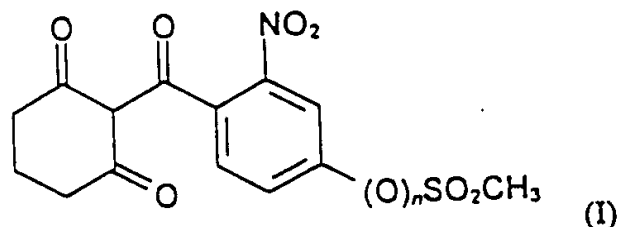
在某些情况下，除草活性成分显示出混合时比单独施用更有效，这被称作“增效作用”。根据美国杂草科学研究院《除草剂手册》(Herbicide Handbook)第7版，1994，pp. 318，“‘增效作用’是两种或多种因素相互作用，使得混合时的效果比根据单独施用各个因素的反应所预计的效果更好”。本发明的基础在于发现已知各自有除草效力的一些环己二酮和一些氯代 N-乙酰苯胺当混合施用显示出增效作用。

形成本发明增效组合物的除草化合物在本领域已知各自对植物生长

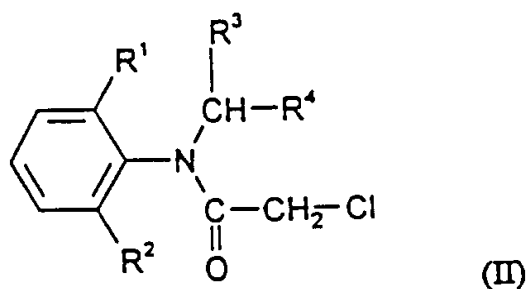
有影响。除草剂环己二酮化合物 2-(2'-硝基-4'-甲基磺酰基苯甲酰基)-1,3-环己二酮(“NMSC”)和除草剂环己二酮化合物 2-(2'-硝基-4'-甲基磺酰氧基苯甲酰基)-1,3-环己二酮(“NMSOC”)公开于 Lee 等人的美国专利 No.5089046。氯代 N-乙酰苯胺是一类已知具有除草活性的化合物。美国杂草科学研究院《除草剂手册》,(第 7 版, 1994)公开的一些除草剂氯代 N-乙酰苯胺化合物包括 2-氯-N-(乙氧甲基)-N-(2-乙基-6-甲基苯基)乙酰胺(“乙草胺”), 2-氯-N-(2,6-二乙基苯基)-N-(甲氧甲基)乙酰胺(“甲草胺”), N-(丁氧甲基)-2-氯-N-(2,6-二乙基苯基)乙酰胺(“丁草胺”), 2-氯-N-(2-乙基-6-甲基苯基)-N-(2-甲氧基-1-甲基乙基)乙酰胺(“丙草安”), 和 2-氯-N-(1-甲基乙基)-N-苯基乙酰胺(“毒草安”)。很多这样的氯代 N-乙酰苯胺除草剂是可以商购的。

发明概述

本发明涉及一种增效除草组合物,其含有(A)一种式(I)环己二酮化合物:



其中 n 是 0 或 1;和(B)一种式(II)氯代 N-乙酰苯胺化合物:



其中 R¹ 是氢, 甲基或乙基; R² 是氢或乙基; R³ 是氢或甲基; 以及 R⁴ 是甲基,

甲氧基,甲氧基甲基,乙氧基或丁氧基。本发明也涉及一种控制不期望植物,特别是农作物中不期望植物生长的方法,以及涉及该增效组合物的应用。

式(I)和式(II)化合物所针对的物种范围,即各化合物控制的杂草物种范围很宽而且高度互补。式(I)化合物控制大多数阔叶杂草和少数禾本科杂草,而式(II)化合物控制大多数禾本科杂草和少数或一些阔叶杂草。各结构式范围内各个化合物所针对的物种范围在一定程度上是不同的。但是出人意料地发现,式(I)化合物和式(II)化合物以单独施用式(I)化合物或式(II)化合物时都不控制所述杂草物种的比例混合时对控制常见的马齿苋,*Portulaca oleracea* (“POROL”)显示出增效作用。POROL是阔叶杂草,在美国南部常见,在世界范围内很普遍,人们非常希望在农作物特别是谷类作物中控制该类杂草。

本发明增效组合物提供了一些比单独施用式(I)化合物和式(II)化合物更好的优点。首先,在保持高水平除草效果的同时明显减小了使用各个化合物的比例。其次,与单独施用各化合物相比,增效组合物有效针对的杂草范围明显变宽。最后,增效组合物能以低施用比例控制杂草物种,而在这样的低比例下单独施用各化合物是没有效果的。

发明的详细说明

本发明增效除草组合物含有(A)一种式(I)化合物和(B)一种式(II)化合物,其中式(I)和式(II)如上定义;以及一种其农业上可接受载体。优选的是组份(A)是NMSC,组份(B)是乙草胺,甲草胺或丙草安,特别优选乙草胺。

增效组合物含有除草有效量的组份(A)和组份(B)的混合物。这里使用的术语“除草剂”指控制或改变植物生长的化合物。术语“除草有效

量”指能对植物生长产生控制或改变作用的一种化合物或这些化合物的混合物的量。控制或改变作用包括所有偏离自然生长的情况，例如：杀死，抑制生长，叶枯萎，白化，萎缩等。术语“植物”指植物所有有形部分，包括种子，幼苗，成苗，根，茎，枝，叶柄，叶，和果。

在本发明组合物中，除草效果是增效的组份(A)对组份(B)的重量比在大约 32:1 和大约 1:20 之间的范围内。优选的是组份(A)对组份(B)的重量比在大约 8:1 和大约 1:15 之间的范围内。特别优选的是组份(A)对组份(B)的重量比在大约 4:1 和大约 1:10 之间的范围内。

本发明增效组合物施用的比例取决于要控制的杂草的具体类型，所要控制的程度，和施用的时间和方法。一般情况下，本发明组合物可以以组合物中活性成分（组份(A)加组份(B)）的总量为基础以大约 0.005 千克/公顷（kg/ha）至大约 5.0kg/ha 的施用比例施用。优选大约 0.5kg/ha 至大约 3.0kg/ha 的施用比例。在本发明一个特别优选的实施方案中，组合物含有组份(A)和组份(B)，其相对量足以提供至少 1.0kg/ha 的施用比例，其中组份(A)提供至少 0.04kg/ha。

本发明组合物作为除草剂是有用的，证明有控制不需要植物的增效活性。该组合物可以以除草剂常规配制的相同方法配制。所述化合物可以分开施用或作为两部分除草体系的部分而混合。

本发明制剂的目的是向需要通过方便方法控制杂草的地点施用本发明组合物。“地点”是指包括土壤，种子，和幼苗以及长成的植物。

本发明实际使用的组合物可以以各种浓度用本领域技术人员公知的各种方法施用。本发明组合物用于通过向需要控制杂草的地点苗前或苗后施药而控制不期望植物的生长。当苗前施用时本发明组合物特别有效。

实际中，本发明组合物作为含有工业上已知或使用的利于分散的各种辅剂和载体的制剂而施用。对于任何给定的化合物，选择制剂和施用方式可以影响其活性，因此要进行选择。因此本发明组合物可以配制成颗粒剂，可湿粉末，乳油，粉剂或细粉剂可流动剂，溶液，悬浮液或可控释放剂型如微胶囊。这些制剂可以含有少至大约 0.5 % 至多至大约 95% 重量或更多活性成分。对于任何给定的化合物的最佳量取决于制剂，施药设备，和要控制植物的性质。

可湿粉末是容易分散于水或其它液体载体中的研细的颗粒的形式。这些颗粒含有保留在固体基质中的活性成分。典型的固体基质包括漂白土，高岭土，硅酸盐和其它容易湿润的有机或无机固体。可湿粉末一般含有大约 5%-大约 95% 活性成分加少量湿润剂，分散剂，或乳化剂。

乳油是分散于水或其它液体中的均匀的液体组合物，可能完全由活性化合物和一种液体或固体乳化剂组成，或者也可以含有一种液体载体，例如二甲苯，重芳香石脑油，异佛尔酮和其它非挥发性有机溶剂。在使用中，乳油分散于水或其它液体中，一般对要处理的地方喷雾施药。活性成分的量可以是乳油的大约 0.5%-大约 95%。

颗粒剂包括挤出物和相对来说粗的颗粒，而且通常不用稀释就可以施加到需要抑制植物生长的地点。用于颗粒剂的典型的载体包括砂子，漂白土，硅镁土，膨润土，蒙脱石，蛭石，珍珠石和其它可以吸附活性化合物或被活性化合物包衣的有机或无机材料。颗粒剂一般含有大约 5%-25% 活性成分，其可以含有表面活性剂，例如重芳香樟脑油，煤油，和其它石油馏份，或植物油；和/或粘合剂，例如糊精，胶或合成树脂。

细粉剂是活性成分和研细的固体例如滑石，粘土，面粉和用作分散剂或载体的其它有机和无机固体的自由流动的混合物。

微胶囊一般是活性成分包封在惰性大孔外壳中的液滴或颗粒，其使包封的物质以控制的速度向周围扩散。包成胶囊的液滴直径一般是大约1 - 50微米。包封的液体一般占胶囊重量的大约50 - 95%，而且除活性成分外可以含有溶剂。包成胶囊的颗粒一般是大孔颗粒，大孔膜密封颗粒核心开孔，使液体形式的活性物质保留在颗粒核心中。颗粒直径一般是1mm - 1cm，优选1 - 2mm。颗粒通过挤压，附聚，或造粒而形成，或者本来就是颗粒。这样的材料的例子是蛭石，烧结的粘土，高岭土，硅镁土，木屑和颗粒碳。外壳或膜材料包括天然的和合成橡胶，纤维素材料，苯乙烯-丁二烯共聚物，聚丙烯腈，聚丙烯酸酯，聚酯，聚酰胺，聚脲，聚氨基甲酸酯，和淀粉黄原酸酯。

其它对于除草应用有用的制剂包括活性成分溶解于一种活性成分在其中以需要的浓度完全溶解的溶剂的简单的溶液，所述溶剂例如丙酮，烷基化萘，二甲苯和其它有机溶剂。也可以使用加压喷雾剂，其中活性成分由于低沸点分散剂溶剂载体的挥发性而分散在研细的形式中。

很多这样的制剂含有湿润剂，分散剂，或乳化剂。例子有磺酸和硫酸的烷基酯和烷基芳基酯及其盐；多元醇；多乙氧化醇；酯和脂肪胺。当使用时，这些试剂一般占制剂重量的0.1%-15%。

每一种上述制剂可以制备成含有除草剂和制剂中其它成分（稀释剂，乳化剂，表面活性剂等）的包装。制剂也可以通过罐混方法制备，其中各成分单独得到并在杂草生长地混合。

这些制剂可以施加到需要通过常规方法控制杂草的地点。例如，细粉剂和液体组合物可以通过使用粉末-细粉喷洒器，路刷和手动喷粉器和喷雾喷粉器施药。制剂也可以从飞机上洒下细粉剂或喷雾或通过绳芯施药。为了改变或控制发芽的种子或出苗的苗的生长，细粉剂和液体制

剂可以散播到土壤中达土壤表面下至少二分之一英寸深度或者通过喷雾或喷洒而只施加到土壤表面。制剂也可以通过加入到灌溉水中而施药。这使得制剂与灌溉水一起渗透到土壤中。施加到土壤表面的细粉剂组合物,颗粒剂组合物,或液体制剂可以通过常规方法例如用圆盘犁耕作,耙平或混合操作而使其分布于土壤表面以下。

影响给定除草剂用途的一个重要的因素是其对农作物的选择性。在某些情况下,有益的农作物易受除草剂的影响。为使有效,除草剂必需对有益农作物有最小的损害(优选没有损害),同时,对侵害农作物农田的杂草物种有最大的破坏力。已知式(II)氯代 N-乙酰苯胺化合物以相对高比例施药时对一些农作物特别是谷物会引起不期望的伤害。为了保持除草剂使用的有利方面并减小对农作物的伤害,,已知与一种解毒药混合使用氯代 N-乙酰苯胺。这里使用的“解毒药”是指一种对存在的除草剂的选择性有影响的化合物,即保持除草剂对杂草物种的除草植物毒性,并减小对耕作的农作物物种的药害,或者对耕作的农作物物种是没有药害的。术语“解毒有效量”指将有益农作物对除草剂的药害反应平衡到一定程度的解毒药化合物的量。如果对于具体的应用或农作物需要或期望的话,本发明组合物可以含有解毒有效量的对于组份(B)的解毒药。本领域技术人员对适于与式(II) 氯代 N-乙酰苯胺化合物使用的解毒药很熟悉,并且容易确定对于具体的化合物和应用的解毒有效量。

而且,其它杀生物活性成分或组合物可以与本发明增效除草组合物混合。例如,除组份(A)和(B)外,组合物为了扩大活性范围可以含有杀虫剂,杀真菌剂,杀细菌剂,杀螨剂或杀线虫剂。

下面的实施例只是为了详细说明的目的。该实施例不是要作为进行的所有试验的必然的代表,而且不是为了在任何方面限制本发明。正如本领域技术人员所清楚的,在除草试验中,不容易控制的很多因素可以

影响各试验的结果,并使其不可重复。例如,结果可以根据环境因素而不同,例如,光照量和水量,土壤类型,土壤的 pH,温度,湿度,以及其它因素。耕种的深度,各除草剂和混合除草剂的施用比例,解毒药施用的比例,各除草剂相互之间和/或各除草剂与解毒药之间的比例,以及农作物的性质和要处理的杂草的性质也能影响试验结果。农作物品种范围内农作物与农作物之间结果不一样。

实施例

将下面的 6 个不同杂草物种的种子种植到含有沙壤土的 1 升铝板中: 稗草(*Echinochoa crusgalli*)(“ ECHCG ”),牛筋草 (*Eleusine indica*) (“ ELEIN ”),稷(*Panicum miliaceum*)(“ PANMI ”),马唐 (*Digitaria sanguinalis*) (“ DIGSA ”),阔叶臂形草 (*Brachiaria platyphylla*) (“ BRAPP ”),和 POROL。播种深度范围是 0.5-1.5cm,植物密度根据各植物品种是每行 3-25 株。裂叶牵牛(*Ipomoea hederacea*)(“ IPOHE ”)播种到含有沙壤土的 400ml 塑料小盆中。

NMSC 和乙草胺的水可分散制剂施加到土壤表面,完全是人工处理,各设计 7 个等级。以每公顷 0,5,10,20,40,80 和 160 克 (g/ha) 向平板和小盆施加 NMSC。以 0,5,10,20,40,80 和 160g/ha 向平板以及以 0,50, 100,200,400,800 和 1600g/ha 向小盆施加乙草胺。施药后,平板和小盆置于温室中并保持在好的生长条件下。

目测杂草控制程度,处理 25 天后,以杂草控制百分比记录结果。控制百分数是所有因素对植物的总的伤害,包括:抑制发芽,阻碍生长,畸形,萎黄,以及其它类型植物伤害。控制比例范围是 0-100 百分数,其中 0 代表没有伤害,100 代表完全杀死。

NMSC 和乙草胺的混合物以各种施药比例施用时对试验的杂草物种是有效的。NMSC 和乙草胺的混合物对于 PANMI, ECHCG, DIGSA, ELEIN, BRAPP 和 IPOHE 给出不同的结果, 显示出反协同效应, 加和作用和增效作用, 或表明在不同所施用水平时的药效协同性。但是, 发现 NMSC 和乙草胺的混合物在一定比例时对控制 POROL 出人意料地惊奇地具有增效作用, 而在该比例时单独使用哪一种化合物都不控制该杂草物种。

下面的表 I 给出 NMSC 和乙草胺的混合物对于 POROL 的上文描述的苗前试验的实际结果。表 I 也给出根据 Colby 方法(S.R.Colby, “计算除草组合物之增效和反协同作用的效应” (Calculating Synergistic and Antagonistic Response of Herbicide Combinations), WEEDS15 (1):20-23, 1967) 计算的试验的 NMSC 和乙草胺的混合物对 POROL 所期望的杂草的控制的结果, Colby 方法代表测定两种除草剂增效活性的直接方法。根据 Colby 方法:

$$E = X + Y - (XY/100),$$

其中 E 是 p + q g/ha 施用比例的第一种除草剂 H1 和第二种除草剂 H2 的混合物的预期的杂草控制百分率; X 是所发现的 p g/ha 施用比例的 H1 的杂草控制百分率; Y 是所发现的 q g/ha 施用比例的 H2 的杂草控制百分率。

表 I
NMSC 和乙草胺的混合物对 POROL 杂草控制

NMSC (g/ha)	乙草胺 (g/ha)														
	0		5		10		20		40		80		160		
	A ¹	E ²	A	E	A	E	A	E	A	E	A	E	A	E	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	12	12	45	45
5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	17	12	45	45
10	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	17	12	70	45
20	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	22	12	33	45
40	0	0	0	0	0	0	0	0	5	0	0	77	12	88	45
80	5	5	0	5	83	5	60	5	77	5	100	100	16	100	48
160	5	5	55	5	47	5	62	5	72	5	100	100	16	100	48

¹ 实际杂草控制百分率

² 预期的杂草控制百分率

表 1 所示结果证明通过本发明组合物实现的增效除草效力。

尽管本发明参照优选的实施方案及其实施例进行了描述，但是，本发明范围不不仅仅局限于那些描述的实施方案。本领域技术人员明白，不脱离本发明的精神和范围可以对上述发明进行修饰和变化，这些都是权利要求书中定义和确定的。