

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5030332号  
(P5030332)

(45) 発行日 平成24年9月19日(2012.9.19)

(24) 登録日 平成24年7月6日(2012.7.6)

(51) Int. Cl.	F I		
AO 1 N 25/00 (2006.01)	AO 1 N 25/00	1 O 1	
AO 1 N 25/30 (2006.01)	AO 1 N 25/30		
AO 1 N 33/22 (2006.01)	AO 1 N 33/22	1 O 1	
AO 1 N 57/20 (2006.01)	AO 1 N 57/20		G
AO 1 P 13/00 (2006.01)	AO 1 N 57/20		L
請求項の数 14 (全 81 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号	特願2000-613261 (P2000-613261)	(73) 特許権者	501231613
(86) (22) 出願日	平成12年4月3日(2000.4.3)		モンサント テクノロジー エルエルシー
(65) 公表番号	特表2002-542267 (P2002-542267A)		アメリカ合衆国 ミズーリ州 セントルイス
(43) 公表日	平成14年12月10日(2002.12.10)		ス ノース リンドバーグ プールバード
(86) 国際出願番号	PCT/US2000/008907		800
(87) 国際公開番号	W02000/064258	(74) 代理人	100081422
(87) 国際公開日	平成12年11月2日(2000.11.2)		弁理士 田中 光雄
審査請求日	平成19年3月1日(2007.3.1)	(74) 代理人	100117053
(31) 優先権主張番号	60/130,756		弁理士 相馬 貴昌
(32) 優先日	平成11年4月23日(1999.4.23)	(72) 発明者	ブリンカー, ロナルド・ジエイ
(33) 優先権主張国	米国 (US)		アメリカ合衆国、ミズーリ・63021、
			エリスビル、オークグローブ・パーク・コート・925
最終頁に続く			

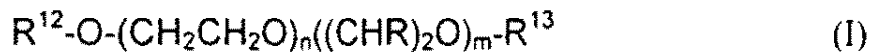
(54) 【発明の名称】 植物処理用組成物の生物学的効果を向上させる方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

- (i) (a) その中に溶解するか分散させる水；
- (b) 生物学的に有効な量のアニオン性外因性化学物質；
- (c) 式(I)：

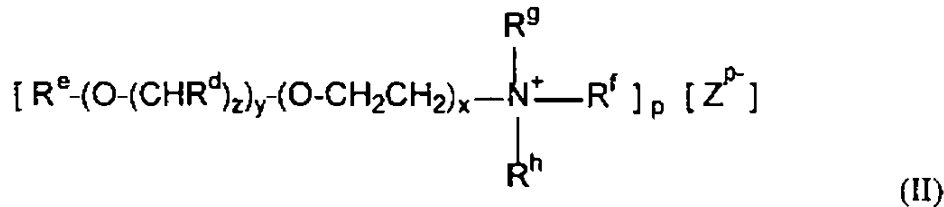
【化1】



[式中、R<sup>12</sup>は、16～22個の炭素原子を有する直鎖脂肪族飽和または不飽和ヒドロカルビル基であり、nは、10～100の平均数であり、mは、0～5の平均数であり、各-(CHR)<sub>2</sub>O-基における一方のRは水素であり、もう一方のRはメチルであり、R<sup>13</sup>は、水素、C<sub>1-4</sub>アルキルまたはC<sub>2-4</sub>アシル基である]を各々が有する一つ以上の界面活性剤から成るアルキルエーテル界面活性剤成分；および

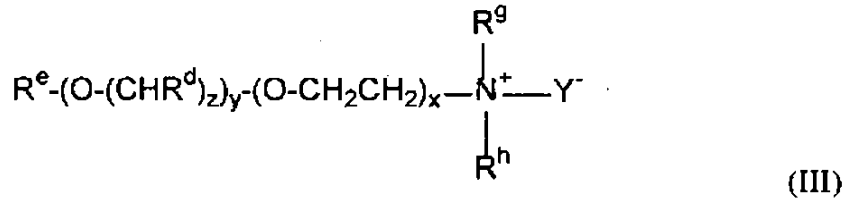
- (d) pH4で、式(II)：

【化2】



または式(III)：

【化3】



[式(II)および式(III)中：

$R^e$  は、水素、または直鎖もしくは枝分れした  $C_{8-20}$  脂肪族ヒドロカルビル基であり；

$z$  は、独立して2または3であり；

各  $R^d$  は水素またはメチルであるが、 $z$  が2である場合、二つの  $-(CHR^d)-$  基における少なくとも一つの  $R^d$  はメチルであり；

$y$  は、 $R^e-(O-(CHR^d)_z)_y-$  基中の炭素原子の合計数が  $8 \sim 24$  であるように、 $0 \sim 7$  であり；

$x$  は、 $0 \sim 5$  であり；

$R^f$  は、水素、 $C_{1-4}$  アルキルまたはベンジルであり；

$R^g$  は、 $C_{1-4}$  アルキルまたは  $-(CH_2CH_2-O)_x-R^c$  であり、 $R^h$  は、 $C_{1-4}$  アルキルまたは  $-(CH_2CH_2-O)_x-R^c$  であり、この場合、 $R^c$  は、水素、 $C_{1-4}$  アルキルまたは  $C_{2-4}$  アシルであり、 $x'$  および  $x''$  は、 $x+x'+x''$  が  $1 \sim 50$  であるような平均数であり；

$Z^{p-}$  は、適するアニオンであり、 $p$  は、1または2であり；

$Y^-$  は、 $-O^-$ 、 $-(CHR^b)_w-COO^-$  および  $-(CHR^b)_w-SO_3^-$  から選択されるアニオン基であり、この場合、 $w$  は、 $1 \sim 3$  であり、各  $R^b$  は、独立して水素、ヒドロキシル、 $C_{1-4}$  アルキルまたはヒドロキシ- $(C_{1-4}$  アルキル)である]

を有する1以上の界面活性剤を含むアミン界面活性剤成分；

を含む組成物であって、

アルキルエーテル界面活性剤成分のアミン界面活性剤成分に対する重量比が、 $1 : 10 \sim 10 : 1$  であり、アルキルエーテルおよびアミン界面活性剤成分が、合計で、酸当量で表わされるアニオン性外因性化学物質の1重量部あたり  $0.05 \sim 0.5$  重量部のアジュバント量で存在する植物処理用組成物を調製すること；および

(ii) 生物学的に有効な量の該植物処理用組成物を植物の茎葉に施用すること；

を含む、降雨または樹上灌水による劣化に対する植物の茎葉に施用するアニオン性外因性化学物質の生物学的活性を維持するための方法。

【請求項2】

アニオン性外因性化学物質が、対イオンを除外して  $300$  未満の分子量を有する除草剤、植物成長調節薬および殺線虫剤から選択される、請求項1に記載の方法。

【請求項3】

アニオン性外因性化学物質が、アシフルオルフェン、アシュラム、ペナゾリン、ペンタ

10

20

30

40

50

ゾン、ピラナホス、プロマシル、プロモキシニル、カルフェントラゾン、クロラムベン、クロピラリド、2,4-D、2,4-DB、ダラボン、ジカンバ、ジクロルプロップ、ジクロホップ、エンドサール、フェナック、フェノキサプロップ、フラムプロップ、フルアジホップ、フルミクロラック、フルオログリコフェン、ホメサフェン、ホサミン、グルホシネート、グリホサート、ハロオキシホップ、イマザメス、イマザメタベンズ、イマザモックス、イマザピック、イマザピル、イマザキン、イマゼサピル、イオキシニル、MCPA、MCPB、メコプロップ、メチルアルソン酸、ナプタラム、ノナン酸、ピコラム、キンクロラック、キザロホップ、スルファミン酸、2,3,6-TBA、TCA、トリクロピル、および農学上許容され得るそれらの塩から選択される除草剤である、請求項1に記載の方法。

10

## 【請求項4】

外因性化学物質がグリホサート除草剤である、請求項1に記載の方法。

## 【請求項5】

グリホサートが、100未満の分子量のカチオン性対イオンを有する水溶性塩またはこうした塩の混合物の形態で主として存在する、請求項4に記載の方法。

## 【請求項6】

カチオン性対イオンが、ナトリウム、カリウム、アンモニウム、ジメチルアンモニウム、イソプロピルアンモニウム、モノエタノールアンモニウムおよびトリメチルスルホニウムカチオンから選択される、請求項5に記載の方法。

## 【請求項7】

アルキルエーテル界面活性剤成分に関する式(I)において、 $R^{1,2}$ が、直鎖 $C_{16}$ または $C_{18}$ アルキル、アルケニルまたはアルカジエニル基であるか、あるいはアルキルエーテル界面活性剤成分が、 $R^{1,2}$ などの種々の基を有する界面活性剤の混合物であるかまたは天然油もしくは脂肪から誘導される、請求項1に記載の方法。

20

## 【請求項8】

アルキルエーテル界面活性剤成分に関する式(I)において、 $n$ が10~50であり、 $m$ が0であり、 $R^{1,3}$ が水素である、請求項1に記載の方法。

## 【請求項9】

アミン界面活性剤成分が、ポリオキシエチレンアルキルアミン、ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミン、ポリオキシエチレンN-メチルアルキルアンモニウム塩、ポリオキシエチレンN-メチルアルキルエーテルアンモニウム塩およびポリオキシプロピレン第四アンモニウム塩から選択される式(II)の界面活性剤を一つ以上含む、請求項1に記載の方法。

30

## 【請求項10】

アミン界面活性剤成分が、一つ以上のポリオキシエチレン(2~20) $C_{12-18}$ アルキルアミンおよび/または塩化アルキルアンモニウムを含む、請求項1に記載の方法。

## 【請求項11】

アミン界面活性剤成分が、ポリオキシエチレンアルキルアミンオキシドおよびポリオキシエチレンアルキルエーテルアミンオキシドから選択される式(III)の界面活性剤を一つ以上含む、請求項1に記載の方法。

40

## 【請求項12】

アルキルエーテル界面活性剤成分のアミン界面活性剤成分に対する比率が、重量で1:5~5:1である、請求項1に記載の方法。

## 【請求項13】

酸当量で表わされるアニオン性外因性化学物質に対する界面活性剤の比率が、重量で0.1:1~0.4:1である、請求項1に記載の方法。

## 【請求項14】

植物処理用組成物が、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤を併せて25~250g/Lの濃度を有する液体濃厚組成物、またはアルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤を併せて3重量%~30重量%の濃度を有する固体濃厚組成物を水に希釈す

50

ることによって調製される、請求項 1 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

(発明の技術分野)

本発明の属する技術分野は、植物の茎葉に施用する外因性化学物質の分野、さらに詳細には、こうした外因性化学物質の組成物の生物学的効果を向上させる分野である。

【0002】

本明細書中で用いる用語「外因性化学物質」は、所望の生物活性を表わすために植物に施用される、天然でまたは合成して得られる化学物質を意味する。本明細書で用いる用語「生物活性」とは、植物における、または植物中または植物上に存在する病原体、寄生虫または摂食生物における刺激性、阻害的、調節性、治療的、毒性または致死反応の誘発を意味する。外因性化学物質の例には、化学農薬（除草剤、殺藻剤、殺真菌剤、殺菌剤、殺ウイルス剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤および軟体動物駆除剤など）、植物成長調節剤、肥料、栄養剤、生殖体撲滅薬、枯葉剤、乾燥剤、およびそれらの混合物などが挙げられるが、それらに限定されない。

【0003】

本明細書中では、「生物学的効果」という用語を用いて、外因性化学物質を植物の茎葉に施用した時、望ましい生物活性を現わす程度を示すか、あるいは結果的に所定の程度に所望の生物学活性を現わすこととなる外因性化学物質の投与量または施用割合を示す。例えば、外因性化学物質が除草剤である場合、生物学的効果は、特定割合の除草剤を施用することによってもたらされる植物成長の阻害度によって、または特定の阻害度をもたらすために必要な除草剤の施用割合によって、例えば50%または85%の阻害といったように計ることができる。従って、増大または向上した除草剤の生物学的効果は、例えば、所定割合の除草剤で増大した植物成長阻害レベルとして、または一定の臨界レベルの植物成長阻害をもたらす除草剤の最低割合の低下として示すことができる。

【0004】

(発明の背景)

農業および関連分野における多くの目的のために、植物を多様な種類の外因性化学物質で処理することが望まれる。多くの外因性化学物質は、植物の茎葉（すなわち、葉およびその他の非木質地上部分）に施用され、植物において、施用部位近くまたは施用部位から遠隔した作用部位を有する。こうした物質を本明細書中では葉施用用外因性化学物質と呼ぶ。

【0005】

典型的には、外因性化学物質が、当業者において既知の植物処理方法によって茎葉に施用された時、施用された量のうちのほんの少しの部分しか外因性化学物質の所望の生物活性を有効に現わすことができる植物における作用部位に達しない。従って、葉施用用外因性化学物質を植物の作用部位に送達する効率を向上させ、それによって、その外因性化学物質を用いる目的に対する外因性化学物質の生物学的効果を向上させることは、農業および関連分野における主たる願望である。

【0006】

当業者において既知の方法による外因性化学物質の茎葉への施用が、例外なく、作用部位へ送達効率が悪いわけではない。一部の状況では、こうした方法は、外因性化学物質の使用割合が低い場合でさえ、卓越した生物学的効果をもたらす。しかし、別の状況では、同じ割合の同じ外因性化学物質を使用する同じ方法が、十分な生物学的活性をもたらさない。このように、これらの方法は、もたらす結果に一貫性がないか、または所望の結果をもたらすことをあてにすることができない。

【0007】

非常に多くの因子が送達効率に影響するため、良好な生物学的効果が得られるであろう状況をあらかじめある程度特定することがほとんどできないということは問題である。これらの因子には、施用の前、間および後の天候（温度、相対湿度、光周期、曇天、降水量、

10

20

30

40

50

風など)、土壌条件(肥沃度、空気混和度など)、植物の成長段階、健康および生理学的状態、装置に関連する施用の不正確さ、およびその他の因子が挙げられる。従って、葉施用用外因性化学物質の信頼できるまたは一貫した生物学的効果の確保を助長するために、使用者は、典型的に、大多数の状況において本当に必要であるより高い割合でこうした物質を施用する。

【0008】

外因性化学物質が酸であり、典型的には外因性化学物質がアニオン形態で存在する水溶性塩として処方される場合、現場条件における生物学的効果の可変性は、特に厄介な問題である。時として、こうした酸物質をエステルに転化することによって、この可変性を和らげることができるが、多くの場合、エステルは、例えば、一旦、処理植物内に入ると、親酸に戻ってしまうという不適切な転化のため、低減した生物学的効果を示す。葉施用用外因性化学物質、特にアニオン性外因性化学物質の生物学的効果の向上および生物学的効果に対する信頼性の向上が、強く求められている。

10

【0009】

本明細書中で用いる用語「アニオン外因性化学物質」は、分子構造が一つ以上の酸、すなわちプロトン供与体性部位を含み、それ故、プロトン受容体の存在下でアニオンを形成することができる外因性化学物質を意味する。従って、この用語は、両性イオン性である物質を包含する。外因性化学物質を本明細書中で「アニオン性」と記載することに関して、外因性化学物質が必ずアニオン形態であり、または解離しているということを含意するわけではない。

20

【0010】

信頼性がより高い生物学的効果を提供する方法の利点には、生物学的効果の一貫性を犠牲にすることなく、外因性化学物質の施用割合を低減する能力が含まれる。農業業界が感じる農薬、特に除草剤の使用量を低下させることへのプレッシャーは、Weed Science Society of Americaによって1993年に開催され、Weed Technology 8, 331-386(1994)に詳細に記録されているものなどの主題に関するシンポジウムによって十分に証明されている。使用割合を低下させると、環境的のみならず、処理される単位面積あたりのコスト低下など経済的にも報われる。

30

【0011】

葉施用用外因性化学物質は、多くの場合、両親媒性材料、特に、別様に界面活性剤として知られている両親媒性界面活性物質と併せて施用されてきた。界面活性剤は、多数の方法で葉施用用外因性化学物質の生物学的効果に影響を与えることができる。

【0012】

外因性化学物質の希釈水性組成物を通常の水圧噴霧によって茎葉に施用する時、希釈水性組成物中の界面活性剤の存在によって、噴霧液体粒子のサイズ分布を変える、典型的には、小さな液体粒子形態での噴霧量の割合を増加させ、大きな液体粒子形態での噴霧量の割合を低下させることができる。より小さな液体粒子は、より大きな液体粒子に比べて運動量が低いので、これらのより小さな液体粒子は、葉の表面からあまり跳ね返りそうでなく、従って、葉の表面により保留されそうである。噴霧の保留性は、噴霧液体粒子中の界面活性剤分子が葉の表面に付着することによっても助長される。この付着は、葉の表面からの跳ね返りばかりでなく、噴霧液体粒子の流出も低減する。界面活性剤は、噴霧液体粒子と葉の表面との間の接触領域を増大させ、多くの場合、外因性化学物質が葉の内部組織に到達するように、液体粒子から葉の表皮中への、および葉の表皮を通した浸透を向上させる傾向もある。

40

【0013】

これらおよびおそらくその他の効果によって、界面活性剤を含む両親媒性材料が外因性化学物質の生物学的効果を増大させることは、長く、知られている。従って、許容され得る物理的安定度または取扱適性のために、例えば乳化剤または懸濁剤または分散剤などの界面活性剤の存在が求められない処方においてでさえ、一つ以上の界面活性剤が、葉施用用

50

外因性化学物質に含まれることは珍しくない。

【0014】

生物学的効果を向上させる界面活性剤の役割という観点から、葉施用用アニオン性外因性化学物質の中で最も広範に研究されたものは、除草剤グリホサートである。殺草剤でもあるグリホサートは、植物成長調節物質として用いられてきた。

【0015】

グリホサート(N-ホスホノメチルグリシン)は、厳密な意味では酸化合物であるが、本明細書中では、文脈が別に指示しない限り、「グリホサート」という語をあまり限定的に意味では用いず、グリホサート酸のみならず、それらの塩、付加物およびエステル、ならびに植物組織内でグリホサートに転化されるか、別様にグリホサートイオンを提供する化合物を包含する。大多数のグリホサート市販製剤において、グリホサートは、水溶性塩として存在する。この点では、グリホサートは、酸であるかアニオンを形成する大多数の外因性化学物質の典型である。

10

【0016】

グリホサートの除草剤塩は、例えば、Franzの米国特許第3,799,758号、Franzの米国特許第3,853,530号、Prillの米国特許第4,140,513号、Largeの米国特許第4,315,765号、Franzの米国特許第4,405,531号、Prisbyllaの米国特許第4,481,026号およびBakelの米国特許第4,507,250号に開示されている。こうした塩の典型は、アルカリ金属、例えば、ナトリウムおよびカリウム塩；アンモニウム塩；および合計1~6個の炭素原子を含有する1~3個の有機基で置換されている、アンモニウム、スルホニウムまたはスルホキソニウムカチオンを有する多数の塩、例えば、ジメチルアンモニウム、イソプロピルアンモニウム、エタノールアンモニウムおよびトリメチルスルホニウム塩である。

20

【0017】

グリホサート塩の市販製剤には、例えば、イソプロピルアンモニウム塩を含有するMonsanto CompanyのRoundup(登録商標)、Accord(登録商標)、Roundup(登録商標)UltraおよびRoundup(登録商標)Xtra除草剤、アンモニウム塩を含有するMonsanto CompanyのRoundup(登録商標)DryおよびRival(登録商標)除草剤、ナトリウム塩を含有するMonsanto CompanyのRoundup(登録商標)Geoforce除草剤、およびトリメチルスルホニウム塩を含有するZenecaのTouchdown(登録商標)除草剤が挙げられる。

30

【0018】

除草剤としてのグリホサートは、多くの利点、特に、生分解性および低環境毒性を含む環境的な利点を有する。しかし、研究が示したきたように、現在使用されている大多数の生物学的に効果があるグリホサート製剤は、グリホサートが殺草作用を発揮する植物における部位に、グリホサートを効率的に送達していない。典型的には、施用される除草剤のうちほんの少しの割合しかこうした部位に到達しない。

【0019】

殺草作用部位に到達する施用されるグリホサートの割合が小さいということは、グリホサートが幾つかの障害を通り抜けなければならないという事実に関係する。これらの中で、最も重要なことの一つは、グリホサートが施用される葉の表面には親油性外皮があることであると考えられる。従って、親油性外皮と親水性グリホサートの間により大きな相溶性をもたらすことによって、外皮中への、および外皮を通したグリホサートの浸透を助長する両親媒性媒質にグリホサートを入れることが望ましいと理論付けた。類似の思考は、他の外因性化学物質、特に、水溶性塩として典型的に処方されるものに適用されている。

40

【0020】

外皮の浸透およびこのことによって向上する、例えばグリホサートの、生物学的効果に対する補助としての両親媒性媒質の概念が妥当であるということは、葉の吸収または効果が界面活性剤によって向上されたという多くの研究によって実証されている。Wyrill

50

& Burnside, Weed Science 25, 275-287, 1997  
 による広範な研究は、「有効な界面活性剤は、グリホサート噴霧混合物に不可欠な成分である」という結論を導いているが、もたらされる除草効果の向上度は、界面活性剤のタイプの間でかなり変わることが示されている。著者は、「界面活性剤混合物の効果は、かなり変化しやすく、予想しがたい」と、また「すでに界面活性剤を含有するグリホサート噴霧混合物への界面活性剤または湿潤剤の無分別な添加は避けるべきである」と警告している。Wyrill & Burnsideの研究には、一般に、施用されるグリホサートの割合に対して非常に高い割合で界面活性剤を施用することが含まれている。これらの条件のもとで、および彼等が研究した特定の植物種に関して、著者は、一般に、カチオン性界面活性剤は、非イオン性界面活性剤よりグリホサートの除草効果を大きく向上させることを見出した。高い界面活性剤レベルで、外因性化学物質、特にグリホサートが生物活性を向上させる時の界面活性剤の相対効果によって、本発明の範囲にあるような、さらになぜか低い界面活性剤レベルでの相対効果に対して信頼できる予想を行うことができないことは、当業者によく認められている。

10

## 【0021】

国際公開WO98/06259にじゃ、グリホサート組成物との混合物で、またはグリホサート組成物に続く順番で施用される多種多様なカチオン性、非イオン性、アニオン性および両性界面活性剤に関するデータが報告されている。

## 【0022】

界面活性剤の疎水性部分に関係して、本明細書中で用いる用語「アルキル」は、別様に文脈によって求められない限り、界面活性剤業界において通常適用されるような不飽和基、例えば、アルケニルおよびアルキニル基、ならびに飽和アルキル基を包含する脂肪族炭化水素という広い意味を有する。

20

## 【0023】

一つ以上のオキシエチレン鎖中に、一つ以上のプロトン化し得るアミノ基またはカチオン性アンモニウム基と共に合計1~約100個のオキシエチレン単位を含む親水性部分を有する界面活性剤は、グリホサートおよびその他のアニオン性外因性化学物質の配合に有用な界面活性剤の好ましい選択である。例えば、商品名Roundup(登録商標)で販売されている市販のグリホサート除草剤製品は、ポリオキシエチレン $C_8 \sim C_{22}$ アルキルアミンに基づく界面活性剤組成物と配合されている。例えば、Roundup(登録商標)除草剤の製剤に広範に用いられている界面活性剤組成物、Monsanto CompanyのMON 0818は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンタローアミンを含有する。

30

## 【0024】

多数の特許が、グリホサート、およびオキシエチレンまたはポリオキシエチレンアミンまたはアンモニウム界面活性剤を含む組成物を開示している。

## 【0025】

Forbesらの米国特許第5,668,085号は、グリホサート、および1分子あたり平均約12個以下のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン $C_8 \sim C_{22}$ アルキルアミン界面活性剤を含む組成物を開示している。オーストラリア特許出願第57565/90号は、グリホサートおよびポリオキシエチレン $C_8 \sim C_{22}$ アルキルジアミノプロパン界面活性剤を含む組成物を開示している。Kassebaum & Berkの米国特許第5,317,003号は、グリホサート、および1分子あたり約5~約50個のオキシエチレン単位を有する第四ポリオキシエチレン $C_6 \sim C_{14}$ アルキルメチルアンモニウム界面活性剤を含む組成物を開示している。Claudeらの米国特許第5,652,197号は、グリホサート、および1分子あたり2~20個のオキシエチレン単位を有する第四ポリオキシプロピレンオキシエチレントリ-( $C_1 \sim 3$ アルキル)アンモニウム界面活性剤を含む組成物を開示している。Nguyenの米国特許第5,118,444号は、グリホサート、および1分子あたり約5~約25個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン $C_6 \sim 20$ アルキルアミン酸化物界面活性剤を含む組成物を開示して

40

50

いる。Wrightの米国特許第5,750,468号は、グリホサートおよびポリオキシエチレン-t-アルキルエーテルアミン、ポリオキシエチレン第四アルキルエーテルアンモニウム、またはポリオキシエチレンアルキルエーテルアミンオキシド界面活性剤を含む組成物を開示している。フランス特許出願第2 648 316号は、グリホサートおよびポリオキシエチレンN-アルキル-1,3-ジアミノプロパン界面活性剤を含む組成物を開示している。

【0026】

ポリオキシエチレン $C_{16} \sim C_{22}$ アルキルエーテル界面活性剤は、あまり多くはないが、グリホサートを有する組成物中に、一般に、本発明の範囲外の界面活性剤対グリホサート重量比で開示されている。例えば、欧州特許第0 206 537号は、グリホサート、および1分子あたり平均約55個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン $C_{16} \sim C_{18}$ アルキルエーテル界面活性剤であるBASFのPlurafac(商標)A-39界面活性剤を含む固体組成物を開示している。その特許において、Plurafac(商標)A-39のグリホサート酸当量に対する最低重量比は、約1.16:1と計算することができる(引用特許の表IVの組成物12)。

10

【0027】

Wyriell & Burnsideは、前掲引用書中において、本発明の範囲から遠く離れた界面活性剤対グリホサート比で、グリホサート、およびPlurafac(商標)A-46として特定されるポリオキシエチレンアルキルエーテル界面活性剤と、ポリオキシエチレンアルキルアミン界面活性剤、AkzoのEthomeen(商標)T/15およびMonsantoのMON 0818との1:1混合物を含む植物処理用組成物を開示している。おそらく、組成物中の界面活性剤濃度が非常に高い(1重量%/容積)ため、混合物にアルキルアミン界面活性剤単独を超える有意な利点がないことは明白であった。

20

【0028】

ポリオキシエチレンアルキルアミンまたはアルキルアンモニウム界面活性剤と、アルキルエーテルが、国際公開WO95/16351の場合のように第二アルコールから、Warnerの米国特許第5,663,117号の場合のようにゲルベアルコールから、またはKassebaumらの米国特許第5,639,711号の場合のようにアセチレン性ジオールから誘導されるポリオキシエチレンアルキルエーテル界面活性剤との混合物に関して、より低い界面活性剤対グリホサート重量比で、グリホサート除草効果の強い向上が報告されている。欧州特許出願第0 582 561号は、ポリオキシエチレン第四アルキルアンモニウム界面活性剤(AkzoのEthoquad(商標)18/25)およびポリオキシエチレン $C_{13}$ アルキルエーテル界面活性剤(HenkelのTrycol(商標)5943)を含有する固体顆粒状グリホサート組成物を開示しているが、この組成物の除草効果は報告されていない。

30

【0029】

Townsonは、英国、ブリストル大学の彼女の博士論文、「Inperata cylindrica(L.)Rueschel(チガヤの一種)の調節に関するグリホサートおよびイマザピルの効能に関連して配合および施用を変えることの影響(Influence of formulation and application variables in relation to the performance of glyphosate and imazapyr for control of Inperata cylindrica(L.)Raeushel)」、312頁、1990年において、3、12および19個のオキシエチレン単位をそれぞれ有するポリオキシエチレン $C_{16} \sim C_{18}$ アルキルエーテルを、グリホサートおよびイマザピルの葉上保持、吸収、移行および除草効果の向上について比較している。比較は、より短いアルキル鎖長( $C_9 \sim 11$ 、 $C_{12} \sim 15$ および $C_{13} \sim 15$ )を有するポリオキシエチレンアルキルエーテルでも行っている。この研究には、さらに、ポリオキシエチレンアルキルアミン界面活性剤も含まれるが、アルキルエーテルとアミン界面活性剤の配合物は試験されていな

40

50

い。

【 0 0 3 0 】

本発明の目的は、植物の茎葉に施用する外因性化学物質、特にアニオン性外因性化学物質の生物学的効果を向上させる新規方法を提供することである。

【 0 0 3 1 】

本発明のもう一つの目的は、アニオン性外因性化学物質の生物学的効果を向上させるために既存の方法に代わる有用な方法を提供することである。

【 0 0 3 2 】

( 図面の簡単な説明 )

図 1 は、実施例 2 4 において説明するような、本発明の組成物 2 4 - 0 4 に関する場の勾配の二乗、「勾配<sup>2</sup>」に対するグリホサートプロトン NMR 共鳴振幅の自然対数「ln ( 振幅 )」のプロット図である。プロットしたデータは曲線を形成し、これは、二つの直線成分、グリホサートの遊離プールを表わすものとグリホサートの取込まれたプールを表わすものに分解することができる。

10

図 2 は、実施例 2 4 において説明するような、レシチン対 MON 0 8 1 8 の重量比に対する、取込まれたプールにおけるグリホサートの割合のプロット図である。

【 0 0 3 3 】

( 発明の開示 )

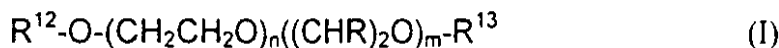
本発明の一つの実施態様において、

- ( i ) ( a ) 其中に溶解するか分散させる水；
- ( b ) 生物学的に有効な量のアニオン性外因性化学物質；
- ( c ) 式 ( I ) ；

20

【 0 0 3 4 】

【 化 5 】



( 式中、 $R^{12}$  は、約 1 6 ~ 約 2 2 個の炭素原子を有する脂肪族飽和または不飽和ヒドロカルビル基であり、 $n$  は、約 5 ~ 約 1 0 0 の平均数であり、 $m$  は、0 ~ 約 5 の平均数であり、各 - ( ( C H R )<sub>2</sub> O ) - 基における一方の R は水素であり、もう一方の R はメチルであり、 $R^{13}$  は、水素、 $C_{1-4}$  アルキルまたは  $C_{2-4}$  アシル基である )

30

を各々が有する一つ以上の界面活性剤から成るアルキルエーテル界面活性剤成分；および ( d ) ( 1 ) 0 ~ 約 7 個のエーテル結合によって共に結合されている一つまたは複数の独立して飽和または不飽和、枝分れまたは枝分れしていない脂肪族、脂環式または芳香族  $C_{3-20}$  ヒドロカルビルまたはヒドロカルビレン基を有し、合計約 8 ~ 約 2 4 個の炭素原子を有する疎水性部分、および

( 2 ) 直接それに結合した 1 ~ 3 個のオキシエチレン基またはポリオキシエチレン鎖を有する、カチオン性アミノ基、またはプロトン化によりカチオン性になり得るアミノ基を含む親水性部分であって、これらのオキシエチレン基およびポリオキシエチレン鎖が、界面活性剤 1 分子あたり平均 1 ~ 約 5 0 個のオキシエチレン単位を含み、疎水性部分がアミノ基に結合しているか、またはエーテル結合によってオキシエチレン単位に結合している親水性部分、を含む分子構造を各々が有する一つ以上の界面活性剤から成るアミン界面活性剤成分；を含む植物処理用組成物であって、

40

アルキルエーテル界面活性剤成分のアミン界面活性剤成分に対する重量比が、約 1 : 1 0 ~ 約 1 0 : 1 であり、アルキルエーテル界面活性剤成分およびアミン界面活性剤成分が、合計で、酸当量で表わされるアニオン性外因性化学物質の 1 重量部あたり約 0 . 0 5 ~ 約 0 . 5 重量部のアジュバント量で存在する植物処理用組成物を調製すること；および

( i i ) 生物学的に有効な量の植物処理用組成物を植物の茎葉に施用すること；を含む、植物の茎葉に対して施用するアニオン性外因性化学物質の生物学的効果を誘導するための方法を提供し、本方法によって、アルキルエーテル界面活性剤成分とアミン界面活性剤成分とが、相乗的に相互作用して、植物処理用組成物中、同じ全界面活性剤濃度で、いずれ

50

かの成分単独によって誘導されるより大きいアニオン性外因性化学物質の生物学的効果が誘導される。

【0035】

本発明のもう一つの実施態様において、

(i) すぐ上に記載したように植物処理用組成物を調製すること；および

(ii) 生物学的に有効な量の植物処理用組成物を、雨または植物に対する樹上灌水の起動前、約6時間以内に植物の茎葉に施用すること

を含む、植物の茎葉に施用するアニオン性外因性化学物質の生物活性を誘導するための方法を提供する。この実施態様において、本組成物の耐雨性は、多くの場合、驚くほど良好であることがわかった。

10

【0036】

本発明のさらにもう一つの実施態様において、

(i) (a) その中に溶解するか分散させる水；

(b) アニオン性であり、除草剤として有効な量で存在する第一除草剤；

(c) 茎葉に施用後約4日以内に目に見える殺草兆候を植物に誘導するために有効な量で存在する第二除草剤；

(d) すぐ上に記載したようなアルキルエーテル界面活性剤成分；および

(e) すぐ上に記載したようなアミン界面活性剤成分；

を含む植物処理用組成物であって、アルキルエーテル界面活性剤成分のアミン界面活性剤成分に対する重量比が、約1:10~約10:1であり、アルキルエーテル界面活性剤成分およびアミン界面活性剤成分は、合計で、酸当量で表わされる第一除草剤の1重量部あたり約0.05~約0.5重量部のアジュバント量で存在する植物処理用組成物を調製すること；および

20

(ii) 生物学的に有効な量の植物処理用組成物を植物の茎葉に施用すること；

を含む、植物の茎葉に施用するアニオン性除草剤の除草剤活性を誘導するための方法を提供する。この実施態様では、第二除草剤の存在によって、第一除草剤の除草効果に対して観察された拮抗作用のレベルは驚くほど低く、または拮抗作用が全く存在しないものさえ観察された。この実施態様で用いられる植物処理用組成物は、それ自体が本発明の実施態様である。

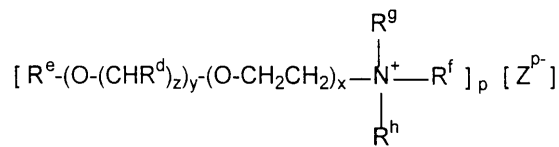
【0037】

好ましくは、本発明において有用なアミン界面活性剤は、約4のpHを有する水性媒質中に存在する時、式(II)：

30

【0038】

【化6】



(II)

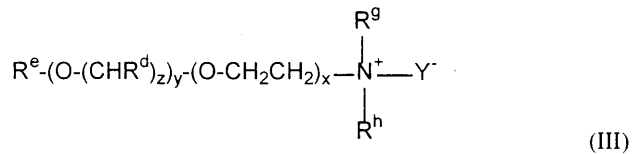
(式中、R<sup>e</sup>は、水素または直鎖もしくは枝分れしたC<sub>8-20</sub>脂肪族ヒドロカルビル基であり；各zは、独立して2または3であり；各R<sup>d</sup>は、水素またはメチルであり、zが2である場合、二つの-(CHR<sup>d</sup>)-基のうち少なくとも一つのR<sup>d</sup>は、メチルであり；yは、R<sup>e</sup>-(O-(CHR<sup>d</sup>)<sub>z</sub>)<sub>y</sub>-基中の炭素原子の合計数が8~24であるように、0~7であり；xは、0~5であり；R<sup>f</sup>は、水素、C<sub>1-4</sub>アルキルまたはベンジルであり；R<sup>g</sup>は、C<sub>1-4</sub>アルキルまたは-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-O)<sub>x</sub>・R<sup>c</sup>であり、R<sup>h</sup>は、C<sub>1-4</sub>アルキルまたは-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-O)<sub>x</sub>・R<sup>c</sup>であり、この場合、R<sup>c</sup>は、水素、C<sub>1-4</sub>アルキルまたはC<sub>2-4</sub>アシルであり、x'およびx''は、x+x'+x''(アミン界面活性剤の分子中のオキシエチレン単位の合計数)が1~約50であるような平均数であり；Z<sup>p-</sup>は、適するアニオンであり；pは、1または2である)または式(III)：

40

50

【0039】

【化7】



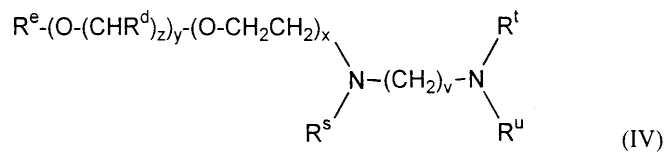
(式中、 $\text{R}^d$ 、 $\text{R}^e$ 、 $\text{R}^g$ 、 $\text{R}^h$ 、 $x$ 、 $y$ および $z$ は、すぐ上で定義したとおりであり、 $\text{Y}^-$ は、 $-\text{O}^-$ 、 $-(\text{CHR}^b)_w-\text{COO}^-$ および $-(\text{CHR}^b)_w-\text{SO}_3^-$ から選択されるアニオン基であり、この場合、 $w$ は、1~3であり、各 $\text{R}^b$ は、独立して水素、ヒドロキシ、 $\text{C}_{1-4}$ アルキルまたはヒドロキシ- $(\text{C}_{1-4}$ アルキル)である) 10  
 によって個々に表わすことができる化学構造を有する。

【0040】

その他の有用なアミン界面活性剤には、式(IV)

【0041】

【化8】



(式中、 $\text{R}^d$ 、 $\text{R}^e$ 、 $x$ 、 $y$ および $z$ は、すぐ上で定義したとおりであり、 $v$ は、2~6の数であり、 $\text{R}^s$ 、 $\text{R}^t$ および $\text{R}^u$ は、独立して $\text{C}_{1-4}$ アルキルまたは $-(\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_k\text{R}^c$ であり、この場合、 $\text{R}^c$ は、水素、 $\text{C}_{1-4}$ アルキルまたは $\text{C}_{2-4}$ アシルであり、各 $k$ は、アミン界面活性剤の分子中のオキシエチレン単位の合計数が1~約50であるような平均数である) 20

によって表わすことができるものが挙げられる。

【0042】

アルキルエーテル界面活性剤(複数を含む)およびアミン界面活性剤(複数を含む)は、指示した範囲内の比率の界面活性剤混合物として共に提供される時、一般に、以下の予期せぬ作用のうち少なくとも1つを有することがわかった: 30

(i) 界面活性剤は、植物処理用組成物を植物の茎葉に施用した時、アニオン性外因性化学物質の生物学的効果を向上させるように相乗的に相互作用する;

(ii) 植物処理組成物を植物の茎葉に施用し、施用後すぐ(例えば、約6時間以内)に雨が降るか、または樹上灌水を作動させた時、界面活性剤が協力して、驚くほど向上した耐雨性をもたらす;

(iii) 組成物中にさらに存在する第二外因性化学物質によって、特に、その外因性化学物質が除草剤である場合、界面活性剤が協力して、アニオン性外因性化学物質の生物学的効果に対する拮抗作用を予想外に低下させる。 40

【0043】

当業者において相乗効果に関するその他のあらゆる定義が適用されてはいるが、本発明では、一つ以上のアルキルエーテル界面活性剤と一つ以上のアミン界面活性剤の間の「相乗的な」相互作用は、以下の試験を満たすものであると考えていただきたい。この試験は、本明細書中で定義する「最適以下のアジュバント量」であるアルキルエーテルおよび/またはアミン界面活性剤の合計量を用いて行う。こうした合計量のアルキルエーテルおよびアミン界面活性剤の混合物が、共に施用されるアニオン性外因性化学物質の生物学的効果を誘導し、これが、同じ合計量のアミン界面活性剤が実質的に不在であるアルキルエーテル界面活性剤(複数を含む)によって、または同じ合計量のアルキルエーテル界面活性剤が実質的に不在であるアミン界面活性剤(複数を含む)によって誘導される生物学的効果 50

より大きい場合、混合物のアルキルエーテルおよびアミン界面活性剤成分は、相乗的な方式で相互作用していると考えられる。

【0044】

界面活性剤または界面活性剤混合物の「アジュバント量」とは、アニオン性外因性化学物質と共に植物茎葉に施用された時、いずれかの界面活性剤が不在の状態に施用されたアニオン性外因性化学物質によって提供されるより目立って大きい生物学的効果度を誘導するために十分な量である。界面活性剤または界面活性剤混合物の「最適以下のアジュバント量」とは、2回分の量の界面活性剤または界面活性剤混合物によって誘導されるより目立って小さい生物学的効果度を誘導するアジュバント量である。界面活性剤量は、水性植物処理用組成物中の重量/容積濃度、および液体または固体濃厚組成物中の重量/重量濃度として便利に表わされる。

10

【0045】

本発明が、界面活性剤混合物を最低以下のアジュバント量で用いる状況に限定されているとは、考えないでいただきたい。界面活性剤混合物のアルキルエーテルとアミン成分の間の相乗効果についての試験のみに、最適以下のアジュバント量での施用が求められる。

【0046】

さらに、本発明の組成物のアルキルエーテルとアミン界面活性剤の間の相乗的相互作用特性は、必ずしもすべての植物種において、または複合的な生物学的現象の標準的な可変性に服するすべての施用条件下で示されるわけではない。しかし、この相乗的相互作用から得られる一般的に優れた生物学的効果は、当業者における重大な前進を代表するべく十分な頻度および一貫性をもって示される。

20

【0047】

本明細書において「耐雨性」とは、外因性化学物質を含有する植物処理組成物の葉への施用後間もなく雨が降るか、または樹上灌水を作動させた時、外因性化学物質の生物学的効果が維持される程度を意味する。耐雨性は、雨または樹上灌水を伴う生物学的効果と伴わない生物学的効果を比較することによって測定することができる。耐雨性についての適する試験には、植物処理用組成物を施用した約5分から約6時間後に開始して、約10～約100mm/時の割合で約2.5～約25mmの量の樹上灌水をスプリンクラーまたは噴霧システムによって処理植物に施すこと、およびこうした樹上灌水を受けていない処理植物との比較による生物学的効果を記録することが含まれる。

30

【0048】

本明細書における「拮抗作用」とは、施用された時に、植物処理用組成物中の第一外因性化学物質の生物学的効果を低下させる作用を意味し、こうした低下は、同じ植物処理用組成物中に、第二外因性化学物質を含むことによってもたらされる。

【0049】

本発明の方法に有用な植物処理用組成物は、「すぐに使用できる」製品として市場生産者または配合者が最終使用者に提供することができる。別法として、植物処理用組成物は、最終使用者が、アニオン性外因性化学物質を含有する第一濃厚組成物、界面活性剤混合物のアルキルエーテル成分を含有する第二濃厚組成物、および界面活性剤混合物のアミン成分を含有する第三濃厚組成物を水に溶解、分散または希釈することによって調製することができる。さらなる別法として、植物処理用組成物は、最終使用者が、アニオン性外因性化学物質を含有する第一濃厚組成物と、界面活性剤混合物を含有する第二濃厚組成物とを水に溶解、分散または希釈することによって調製することができる。なおさらなる別法として、植物処理用組成物は、最終使用者が、アニオン性外因性化学物質および界面活性剤混合物を含有する単一濃厚組成物とを水に溶解、分散または希釈することによって調製することができる。植物処理用組成物を調製するためのその他の方法は、当業者には明らかであろう。

40

【0050】

濃厚組成物が適する量の水に溶解、分散または希釈する時、上で提供したような本発明の方法に有用な植物処理用組成物が生成されるような、酸当量(a.e.)で表わされる約

50

10 ~ 約90重量%のアニオン性外因性化学物質をアルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤と共に含む、茎葉に施用して、生物学的作用を誘導するための水性担体中の濃厚組成物も本発明の実施に有用である。こうした濃厚組成物は、固体であってもよいし、液体であってもよい。考慮する固体濃厚組成物は、約90重量% a . e . 以下の外因性化学物質を含有する。考慮する液体濃厚組成物は、酸当量 ( a . e . ) で表わされる約50重量%以下の外因性化学物質を含有する。

【0051】

(発明の詳細な説明)

アニオン性外因性化学物質

本発明の方法に有用な組成物に用いることができるアニオン性外因性化学物質の例には、化学農薬(除草剤、殺藻剤、殺真菌剤、殺菌剤、殺ウイルス剤、殺虫剤、アブラムシ用殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤および軟体動物駆除剤など)、植物成長調節剤、肥料および栄養剤、生殖体撲滅薬、枯葉剤、乾燥剤、およびそれらの混合物などが挙げられるが、それらに限定されない。本明細書における開示には、「一つアニオン性外因性化学物質」に関するところがあるが、所望とあらば、一つ以上のアニオン性外因性化学物質を含むことができることはご理解いただければよい。

10

【0052】

好ましいアニオン性外因性化学物質群は、通常、発生後に葉の茎葉に施用されるもの、すなわち、葉施用用アニオン性外因性化学物質から成る。特に好ましい葉施用用アニオン性外因性化学物質は、植物体全体にわたって浸透効果を発揮するもの、すなわち、植物の茎葉におけるそれらの侵入点から、所望の生物学的作用を有効に発揮することができるその他の部位へと、ある程度、移行するものから成る。

20

【0053】

除草剤、植物成長調節剤および殺線虫剤、特に、対イオンを除いて約300未満の分子量を有するものが、これらの中で特に好ましい。

【0054】

こうした化合物の中で、さらになお好ましいカテゴリーは、米国特許第5,389,680号に開示されているものなどの殺線虫剤から成る。この特許は、本明細書中に引例として包含する。この群の中で好ましい殺線虫剤は、3,4,4-トリフルオロ-3-ブテン酸、またはN-(3,4,4-トリフルオロ-1-オキソ-3-ブテニル)グリシンである。

30

【0055】

一つの実施態様において、アニオン性外因性化学物質は、除草剤である。適する除草剤には、アシフルオルフェン、アシュラム、ベナゾリン、ベンタゾン、ピラナホス、プロマシル、プロモキシニル、カルフェントラゾン、クロラムベン、クロピラリド、2,4-D、2,4-DB、ダラボン、ジカンバ、ジクロロプロブ、ジクロホップ、エンドサール、フェナック、フェノキサプロブ、フラムプロブ、フルアジホップ、フルミクロラック、フルオログリコフェン、ホメサフェン、ホサミン、グルホシネート、グリホサート、ハロオキシホップ、イマザメス、イマザメタベンズ、イマザモクス、イマザピック、イマザピル、イマザキン、イマゼタピル、イオキシニル、MCPA、MCPB、メコプロブ、メチルアルソン酸、ナプタラム、ノナン酸、ピクロラム、キンクロラック、キザロホップ、スルファミン酸、2,3,6-TBA、TCA、トリクロピル、および農学上許容され得るそれらの塩が挙げられるが、それらに限定されない。特に好ましい除草剤は、アミン、カルボキシレート基をそれぞれ少なくとも一つ、およびホスホネートまたはホスフィネート官能基のいずれかを含む分子構造のものである。このカテゴリーには、除草剤N-ホスホノメチルグリシン(グリホサート)およびDL-ホモアラニン-4-イル(メチル)ホスフィネート(グルホシネート)が含まれる。別の好ましい除草剤群は、イマザメス、イマザメタベンズ、イマザモクス、イマザピック、イマザピル、イマザキンおよびイマゼタピルを含むイミダゾリノン類のものである。

40

【0056】

50

本明細書では、グリホサートを特に論及して本発明を説明する。グリホサートは3つの酸部位を有し、そのため三塩基塩を形成することができるが、好ましい水性組成物はpH値が約8以下であり、このpH値で三塩基塩として存在するグリホサートの割合は、無視してよいほど小さい。従って、本明細書では、pH8において有意に脱プロトン化される二つの酸部位のみを考慮する。これらのうちの一方は、グリホサート分子のホスホネート部分にあり、もう一方は、カルボキシレート部分にある。4～5付近のpHでは、一価のグリホサートアニオンが優勢である。

【0057】

本発明の方法に有用な植物処理用組成物において、そのすべての形態で存在するアニオン性外因性化学物質の量は、植物の茎葉に施用した時、望ましい生物活性を誘導するために十分な量である。こうした組成物は、時として、「噴霧組成物」、「噴霧可能組成物」または「すぐに使用できる組成物」と呼ばれ、また典型的には、酸当量(a.e.)で表わされる約0.02重量%～約2重量%のアニオン性外因性化学物質を含有する。一部の目的のために、こうした組成物は、約5重量% a.e.まで、または10重量% a.e.まででさえ含有することができる。

10

【0058】

本発明の実施に有用な濃厚組成物において、そのすべての形態で存在するアニオン性外因性化学物質の量は、適する量の水に希釈、溶解または分散すると、植物処理用組成物を生成し、植物処理用組成物を植物の茎葉に施用すると、所望の生物活性を誘導するために十分な量である。

20

【0059】

パッケージ型濃厚組成物のコストの有意な部分がパッケージング、輸送および保管についての容積関連コストである場合、組成物中の外因性化学物質の濃度または配合量を実施できる最大まで増大させることが望ましい。一般に、液体組成物の配合量を制限する因子は、保管条件の範囲のもとでの組成物の物理的安定度である。特に液体組成物における配合量の上限は、組成物中のその他の成分の性質および濃度に依存し、当業者において既知の手順を用いて、日常の経験から容易に決定することができる。

【0060】

アニオン性外因性化学物質は、その酸形態で存在することができるが、主として、塩または塩の混合物の形態で存在することが好ましい。好ましくは、こうしたそれぞれの塩は水溶性であり、約100より低い分子量のカチオン性対イオンを有する。特に好ましい水溶性塩において、カチオン性対イオンは一価であり、アルカリ金属カチオン、アンモニウムカチオン、および合計1～6個の炭素原子を有する有機アンモニウムおよびスルホニウムカチオンから選択される。

30

【0061】

詳細には、アニオン性外因性化学物質がグリホサートである場合、本発明の組成物に用いるために適するカチオン性対イオンの例は、ナトリウム、カリウム、アンモニウム、ジメチルアンモニウム、イソプロピルアンモニウム、モノエタノールアンモニウムおよびトリメチルスルホニウムカチオンである。

【0062】

この明細書を通して、アニオン性外因性化学物質に対するすべての論及は、一般に、別様に文脈によって指示されない限り、特に、グリホサートにあてはまると考えることができる。

40

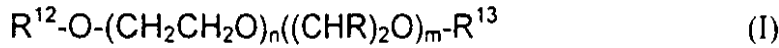
【0063】

アルキルエーテル界面活性剤

上に示したように、本発明の方法に有用な組成物のアルキルエーテル界面活性剤成分には、式(I)：

【0064】

【化9】



(式中、 $R^{12}$ は、約16～約22個の炭素原子を有する脂肪族飽和または不飽和ヒドロカルビル基であり、 $n$ は、約5～約100の平均数であり、 $m$ は、0～約5の平均数であり、各-(CHR)<sub>2</sub>O-基における一方のRは水素であり、もう一方のRはメチルであり、 $R^{13}$ は、水素、 $C_{1-4}$ アルキルまたは $C_{2-4}$ アシル基である)

をそれぞれ有する一つ以上の界面活性剤を含む。

【0065】

好ましくは、 $R^{12}$ は、直鎖、さらに好ましくは直鎖 $C_{16}$ または $C_{18}$ アルキル、アルケニルまたはアルカジエニル基、例えば、セチル、ステアリル、オレイルまたはリノレイル基である。有利には、アルキルエーテル界面活性剤成分は、種々の $R^{12}$ 基を有する界面活性剤の混合物である。例えば、 $R^{12}$ 基が、主としてセチルおよびステアリル基である、化粧品文献に「セテアレス」と記載されている製品であってもよい。あるいは、アルキルエーテル界面活性剤成分は、天然油または脂肪から誘導することができる。例えば、その原料が牛脂である場合、 $R^{12}$ 基は、主としてセチル、ステアリルおよびオレイルである。原料がトウモロコシ油またはダイズ油である場合、 $R^{12}$ 基は、主としてオレイルおよびリノレイルである。原料がパームオイルである場合、 $R^{12}$ 基は、主としてセチルおよびオレイルである。原料が綿実油である場合、 $R^{12}$ 基は、主としてセチル、オレイルおよびリノレイルである。

【0066】

好ましくは、 $n$ (オキシエチレン単位の平均数)は、約7～約50、さらに好ましくは約10～約40である。好ましくは、 $m$ は、0であり、 $R^{13}$ は、水素である。

【0067】

アルキルエーテル界面活性剤の中で、特に好ましいものには、例えば、ICIのBrij(商標)56として入手することができるセテス-10;例えば、ICIのBrij(商標)58として入手することができるセテス-20;例えば、ICIのBrij(商標)78、HenkelのEmthox(商標)5888-A、HetereneのSTA-20として入手することができるステアレス-20;例えば、HetereneのSTA-30として入手することができるステアレス-30;例えば、HetereneのHetoxol(商標)CS-20として入手することができるセテアレス-20;例えば、BASFのPlurrafac(商標)A-38として入手することができるセテアレス-27;および例えば、ICIのBrij(商標)98およびHenkelのTrycol(商標)5971として入手することができるオレス-20がある。

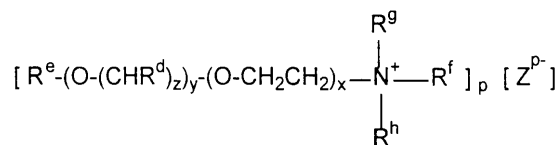
【0068】

アミン界面活性剤

上に示したように、本発明の方法に有用な組成物のアルキルエーテル界面活性剤成分は、好ましくは、式(II)：

【0069】

【化10】



または式(III)：

【0070】

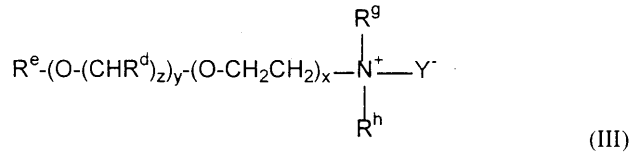
【化11】

10

20

30

40

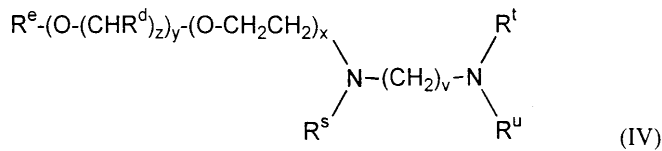


(式中、 $\text{R}^e$  は、水素、または直鎖もしくは枝分れした  $\text{C}_{8-20}$  脂肪族ヒドロカルビル基であり；各  $z$  は、独立して 2 または 3 であり；各  $\text{R}^d$  は、水素またはメチルであり、そのため  $z$  が 2 である場合、二つの  $-(\text{CHR}^d)-$  基のうち少なくとも一つの  $\text{R}^d$  は、メチルであり； $y$  は、 $\text{R}^e\text{-(O-(CHR}^d)_z)_y-$  基中の炭素原子の合計数が 8 ~ 24 であるように、0 ~ 7 であり； $x$  は、0 ~ 5 であり； $\text{R}^g$  は、水素、 $\text{C}_{1-4}$  アルキルまたはベンジルであり； $\text{R}^h$  は、 $\text{C}_{1-4}$  アルキルまたは  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_x\text{-R}^c$  であり、この場合、 $\text{R}^c$  は、水素、 $\text{C}_{1-4}$  アルキルまたは  $\text{C}_{2-4}$  アシルであり、 $x'$  および  $x''$  は、 $x + x' + x''$  (アミン界面活性剤の分子中のオキシエチレン単位の合計数) が 1 ~ 約 50 であるような平均数であり； $\text{Z}^p$  は、適するアニオンであり； $p$  は、1 または 2 であり、 $\text{Y}^-$  は、 $-\text{O}^-$ 、 $-(\text{CHR}^b)_w\text{-COO}^-$  および  $-(\text{CHR}^b)_w\text{-SO}_3^-$  から選択されるアニオン基であり、この場合、 $w$  は、1 ~ 3 であり、各  $\text{R}^b$  は、独立して水素、ヒドロキシ、 $\text{C}_{1-4}$  アルキルまたはヒドロキシ- $(\text{C}_{1-4}$  アルキル) である)

を約 4 の pH でそれぞれ有する一つ以上の界面活性剤を含む。その他の有用なアミン界面活性剤には、式 (IV) :

【0071】

【化12】



(式中、 $\text{R}^d$ 、 $\text{R}^e$ 、 $x$ 、 $y$  および  $z$  は、すぐ上で定義したとおりであり、 $v$  は、2 ~ 6 の数であり、 $\text{R}^s$ 、 $\text{R}^t$  および  $\text{R}^u$  は、独立して  $\text{C}_{1-4}$  アルキルまたは  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_k\text{-R}^c$  であり、この場合、 $\text{R}^c$  は、水素、 $\text{C}_{1-4}$  アルキルまたは  $\text{C}_{2-4}$  アシルであり、各  $k$  は、アミン界面活性剤の分子中のオキシエチレン単位の合計数が 1 ~ 約 50 であるような平均数である)

によって表わすことができるものが挙げられる。

【0072】

本明細書中で、最大または最小「平均数」がオキシエチレン単位などの構造的特徴を参照しながら述べる時、界面活性剤製品における個々の分子中のこうした単位の整数が、典型的には、最大「平均数」より大きく、最小「平均数」より小さい整数を含むみ得る範囲にわたって変化することは、当業者にはご理解いただけよう。「平均数」に規定される範囲外の整数のこうした単位有する個々の界面活性剤分子が組成物中に存在しても、その「平均数」が規定範囲内にあり、その他の要件を満たす限り、その組成物は、本発明の範囲から除外されない。

【0073】

本発明の方法に有用な組成物のアミン界面活性剤成分の一部またはすべてとして有用であり得る界面活性剤タイプの例には、以下のものが挙げられる：

(A)  $\text{R}^e$  が、 $\text{C}_{8-20}$  脂肪族、飽和または不飽和、直鎖もしくは枝分れしたヒドロカルビル鎖であり、 $y$  が、0 である式 (II) または (III) の界面活性剤。この群では、 $\text{R}^e$  のみが、界面活性剤の疎水性部分を形成し、アルキルアミンの場合のように直接アミンまたはアンモニウム基に結合しているか、または一定のアルキルエーテルアミンの場

10

20

30

40

50

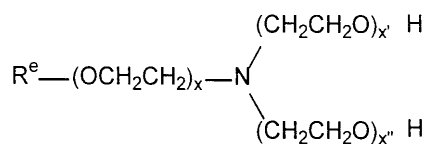
合のようにオキシエチレン基の酸素原子もしくはポリオキシエチレン鎖の末端酸素原子によって形成されるエーテル結合によってアミンまたはアンモニウム基に結合している。異なる親水性部分を有するサブタイプの例には以下のものが挙げられる：

## 【0074】

(A-1)  $R^g$  が、 $-(CH_2CH_2-O)_x \cdot H$  であり、 $R^h$  が、 $-(CH_2CH_2-O)_x \cdot H$  (この場合、 $x' + x''$  は、2~30の平均数である) であり、 $R^f$  が、水素またはメチルである式(II)の界面活性剤。このサブタイプには、当業者において既知の市販界面活性剤、すなわち本明細書中で「ポリオキシエチレンアルキルアミン」(この場合、 $x$  は、0であり、 $R^f$  は、水素である)、一定の「ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミン」(この場合、 $x$  は、1~5であり、 $R^f$  は、水素である)、および「ポリオキシエチレンN-メチルアルキルアンモニウム塩」、例えば塩化物(この場合、 $x$  は、0であり、 $R^f$  は、メチルであり、 $R^{p-}$  は、塩化物アニオンであり、 $p$  は、1である)、と呼ばれるものが含まれる。適する例には、アミン基がプロトン化されていない時、界面活性剤が、式：

## 【0075】

## 【化13】



(米国特許第5,750,468号に開示されているように、式中の $R^e$ は、 $C_{12-15}$ アルキルであり、 $x$ は、3であり、 $x' + x''$ は、約5の平均数である)に従う、例えば、Ethomeen(商標)C/12、Ethomeen(商標)T/15、Ethomeen(商標)C/20およびEthomeen(商標)T/25としてそれぞれAkzoから入手することができる、ポリオキシエチレン(2)ココアミン、ポリオキシエチレン(5)タローアミン、ポリオキシエチレン(10)ココアミン、およびポリオキシエチレン(15)タローアミン、ならびにEthoquad(商標)C/12、Ethoquad(商標)18/12、Ethoquad(商標)T/20およびEthoquad(商標)C/25としてそれぞれAkzoから入手することができる、ポリオキシエチレン(2)N-メチルココアンモニウムクロリド、ポリオキシエチレン(2)N-メチルステアシルアンモニウムクロリド、ポリオキシエチレン(10)N-メチルタローアンモニウムクロリド、およびポリオキシエチレン(15)N-メチルココアンモニウムクロリドがある。 $R^f$ が水素であるである場合、すなわち、第四アンモニウム界面活性剤に対して第三アミン界面活性剤では、アニオン $R^{p-}$ は、典型的に、界面活性剤と一緒に供給されない。しかし、約4~5のpHにおけるグリホサート含有処方では、アニオン $R^{p-}$ が、アニオン性外因性化学物質、例えば、グリホサートのアニオンであり得ることは、ご理解いただろう。

## 【0076】

(A-2)  $x$ が1~5であり、 $R^f$ 、 $R^g$ および $R^h$ が、独立して $C_{1-4}$ アルキルである式(II)の界面活性剤。このサブタイプには、一定の「ポリオキシエチレンN-メチルアルキルエーテルアンモニウム塩」、例えば塩化物(この場合、 $R^g$ および $R^h$ は、それぞれメチルであり、 $R^{p-}$ は、塩化物アニオンであり、 $p$ は、1である)が含まれる。

## 【0077】

(A-3)  $Y^-$ が、アニオン性酸化物基である式(III)の界面活性剤。このサブタイプには、当業者において既知の市販界面活性剤、すなわち本明細書中で「ポリオキシエチレンアルキルアミン酸化物」(この場合、 $x$ は、0であり、 $R^g$ は、 $-(CH_2CH_2-O)_x \cdot H$ であり、 $R^h$ は、 $-(CH_2CH_2-O)_x \cdot H$ であり、ここで、 $x' + x''$ は、2~30の平均数である)、および、一定の「ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミンオキシド」(この場合、 $x$ は、1~5であり、 $R^g$ は、 $-(CH_2CH_2-O)_x$

、Hであり、 $R^h$ は、 $-(CH_2CH_2-O)_x-H$ であり、ここで、 $x'+x''$ は、2~30の平均数である）と呼ぶものが含まれる。適する例には、Aromox（商標）C/12としてAkzoが販売しているポリオキシエチレン（2）ココアミンオキシド、および米国特許第5,118,444号に開示されているようなポリオキシエチレン（10~20）タローアミンオキシドがある。

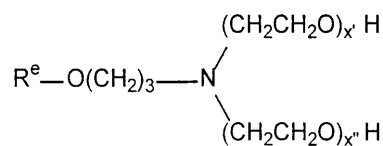
## 【0078】

(B)  $R^e$ が、 $C_{8-18}$ 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖もしくは枝分れしたヒドロカルビル鎖であり、 $y$ が、1であり、 $z$ が、3であり、 $R^d$ が、水素であり、 $n$ が、0である式(II)または(III)の界面活性剤。この群では、 $R^e-O(CH_2)_3-$ が、アミンまたはアンモニウム基に直接結合する界面活性剤の疎水性部分を形成する。これらの界面活性剤は、米国特許第5,750,486号に開示されているようなカテゴリーのアルキルエーテルアミンを成す。例となるサブタイプは、上記(A-1)および(A-3)に例示したような異なる親水性部分を有する。適する例は、そのアミン基がプロトン化されていない時、式：

10

## 【0079】

## 【化14】

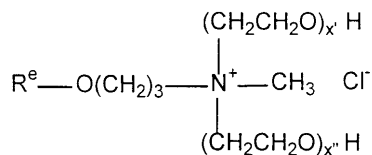


20

に従う界面活性剤、式：

## 【0080】

## 【化15】

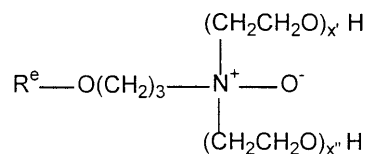


に従う界面活性剤、および式：

30

## 【0081】

## 【化16】



に従う界面活性剤であり、この場合、米国特許第5,750,468号に開示されているように、すぐ上の三つの式それぞれにおいて、 $R^e$ は、 $C_{12-15}$ アルキルであり、 $x'+x''$ は、約5の平均数である。

40

## 【0082】

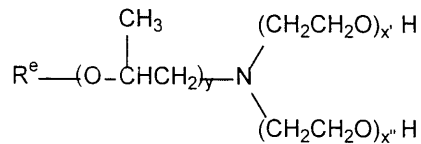
(C)  $R^e$ が、 $C_{8-18}$ 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖もしくは枝分れしたヒドロカルビル鎖であり、 $y$ が、1~5であり、各 $-O-(CHR^d)_z-$ が、 $-OCH(CH_3)CH_2-$ 基であり、 $x$ が、0である式(II)または(III)の界面活性剤。この群では、 $R^e$ が、一つまたは複数の $-OCH(CH_3)CH_2-$ 基と共にアミノ官能基に直接結合した界面活性剤の疎水性部分を形成する。これらの界面活性剤は、米国特許第5,750,468号に開示されているようなさらに進んだカテゴリーのアルキルエーテルアミンを成す。例となるサブタイプは、上の(A-1)および(A-3)に例示したような異なる親水性部分を有する。適する例は、そのアミン基がプロトン化されていない時、式：

:

50

【 0 0 8 3 】

【 化 1 7 】



に従う界面活性剤であり、米国特許第 5,750,468 号に開示されているように、式中の  $\text{R}^e$  は、 $\text{C}_{12} \sim 15$  アルキルであり、 $y$  は、2 であり、 $x' + x''$  は、約 5 の平均数である。

10

【 0 0 8 4 】

(D)  $\text{R}^e$  が、水素であり、 $y$  が、3 ~ 8 であり、各  $-\text{O}-(\text{CHR}^d)_z-$  が、 $-\text{OCH}(\text{CH}_3)\text{CH}_2-$  基であり、 $x$  が、1 ~ 3 である式 (II) の界面活性剤。この群では、 $-\text{OCH}(\text{CH}_3)\text{CH}_2-$  基のポリエーテル鎖 (ポリオキシプロピレン鎖) が、一つ以上のオキシエチレン単位を介してアミノ官能基に結合している界面活性剤の疎水性部分を形成する。この群の好ましい界面活性剤において、 $x$  は、1 であり、 $\text{R}^f$ 、 $\text{R}^g$  および  $\text{R}^h$  は、独立して  $\text{C}_{1-4}$  アルキルである。これらの界面活性剤は、米国特許第 5,652,197 号に開示されているポリオキシエチレン第四アンモニウム塩のサブクラスである。適する例において、 $y$  は、7 であり、 $x$  は、1 であり、 $\text{R}^f$ 、 $\text{R}^g$  および  $\text{R}^h$  は、それぞれメチルであり、 $\text{Z}^{p-}$  は、塩化物アニオンであり、 $p$  は、1 である。

20

【 0 0 8 5 】

(E)  $\text{R}^e$  が、 $\text{C}_{8-18}$  脂肪族、飽和または不飽和、直鎖もしくは枝分れしたヒドロカルビル鎖であり、 $x$  が、0 であり、 $y$  が、0 であり、 $\text{R}^s$ 、 $\text{R}^t$  および  $\text{R}^u$  が、独立して  $-(\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_k\text{H}$  基 (式中、 $k$  は、 $k$  が 1 ~ 約 50 であるような平均数である) である式 (IV) の界面活性剤。このタイプには、当業者において既知の、すなわち本明細書中でポリオキシエチレン  $N$ -アルキルアルキレンジアミンと呼ぶ界面活性剤が含まれる。例には、フランス特許出願第 2,648,316 号に開示されているような、1 分子あたり 3 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン  $N$ -オレイル-1,3-ジアミノプロパンがある。

【 0 0 8 6 】

式 (II) の界面活性剤において、 $\text{Z}^{p-}$  は、適するいずれのアニオンであってもよいが、好ましくは、塩化物、臭化物、硫酸塩、エト硫酸塩、リン酸塩、酢酸塩、プロピオン酸塩、コハク酸塩、乳酸塩、クエン酸塩、または酒石酸塩、あるいは上に示したような、アニオン性外因性化学物質、例えばグリホサートのアニオンである。

30

【 0 0 8 7 】

現在、本発明の組成物に用いるために最も好ましいアミン界面活性剤は、ポリオキシエチレン (2 ~ 20)  $\text{C}_{12-18}$  アルキルアミンおよびアルキルアンモニウムクロリドである。

【 0 0 8 8 】

#### アルキルエーテルおよびアミン界面活性剤の量および比率

40

本発明は、本明細書中で定義するようなアルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤の混合物の存在下でのグリホサート除草剤などのアニオン性外因性化学物質の生物学的効果が、同じ全界面活性剤濃度のアルキルエーテル界面活性剤単独またはアミン界面活性剤単独の存在下で得られるものより有意に大きく存在し得るという予想外の発見に一部基づく。この驚くべき相乗的相互作用を生じるアルキルエーテル界面活性剤成分のアミン界面活性剤成分に対する比率は、厳密には厳しいわけではなく、重量で約 1 : 10 ~ 約 10 : 1 の間である。しかし、一般に、約 1 : 5 ~ 約 5 : 1、例えば、約 1 : 3 ~ 約 3 : 1 の比率を提することが適することはおわかりになるであろう。特定の条件下での特定の界面活性剤と特定のアニオン性外因性化学物質についての最適な比率は、当業者が日常の経験から容易に決定することができる。

50

## 【0089】

本発明は、施用するアニオン性外因性化学物質の量に対する界面活性剤の量が相当低く、すなわち、酸当量で表わされるアニオン性外因性化学物質1重量部あたり約0.5重量部未満の界面活性剤であるという最大の利点を提供する。典型的には、より高い界面活性剤レベルでは、いずれか一方の界面活性剤成分のみが、高い度合いの生物学的効果を与え、混合物を用いることによって生ずるさらに大きな利点はない。アニオン性外因性化学物質1重量部あたり約0.05重量部未満の界面活性剤の割合では相乗的相互作用は明らかであるが、この界面活性剤の合計量では、通常、は有用な大きさの生物学的効果の向上をもたらすには不十分である。

## 【0090】

例えば、アニオン性外因性化学物質がグリホサートである場合、本発明の最も大きな利点は、典型的には約0.1:1~約0.4:1の界面活性剤対グリホサートa.e.重量比で実現する。

## 【0091】

本発明の方法に有用な植物処理用組成物において、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤を併せた濃度は、好ましくは、約7.5g/L以下であるが、所望とあらば、より高い濃度を用いることもできる。さらに好ましくは、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤を併せた濃度は、約0.5~約5g/L、例えば、約1~約3g/Lである。

## 【0092】

本発明の実施に有用な液体濃厚組成物において、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤を併せた濃度は、典型的には約25~約250g/L、さらに典型的には約50~約150g/Lである。本発明の実施に有用な固体濃厚組成物において、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤を併せた濃度は、典型的には約3重量%~約30重量%、さらに典型的には約6重量%~約18重量%である。

## 【0093】

その他の成分

本発明の方法に有用な組成物は、アニオン性外因性化学物質またはその塩、アルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤以外に農学上許容され得る材料を含有することができる。

## 【0094】

例えば、一つより多いアニオン性外因性化学物質を含むことができる。例えば、本発明のグリホサート組成物は、グリホサートに加え、任意に、本明細書中上で挙げたものから選択されるその他一切のアニオン性除草剤を含有することができる。

## 【0095】

本発明の特定の実施態様において、グリホサートは、通常、グリホサートの生物学的効果に拮抗する第二アニオン性除草剤と共に植物処理用組成物中に存在する。典型的には、第二アニオン性除草剤は、茎葉への施用後約4日以内に目に見える殺草兆候を処理植物にもたらすものである。この実施態様に有用な好ましい組成物において、第二アニオン性除草剤は、その一つまたは複数の塩の形態でのグルホシネートである。典型的には、グルホシネートは、グリホサートより急速に、処理植物に殺草兆候を誘導し、また二つの除草剤を先行技術の製剤またはタンク混合物の状態と共に施用すると、多くの場合、グリホサートの長期除草効果を拮抗する。驚くべきことに、また対照的に、一般に、グリホサートおよびグルホシネートが本発明に従ってアルキルエーテルおよびアミン界面活性剤を伴うと、こうした拮抗作用が実質的に低下することがわかった。拮抗作用の低下は、いずれか二つのアニオン性外因性化学物質(このうちの一つは、一般にはもう一方の生物学的効果を拮抗する)を含有する組成物の特徴であると考えられる。

## 【0096】

グリホサートおよび第二アニオン性除草剤を含有する本発明の方法に有用な組成物に関する例として、第二アニオン性除草物質、例えばグルホシネートのグリホサートに対するa

10

20

30

40

50

． e ．重量比は、約 1 : 1 ~ 約 1 : 30、好ましくは約 1 : 2 ~ 約 1 : 20 であり得る。

【 0 0 9 7 】

本発明の方法に有用な除草剤組成物は、グリホサートまたはその塩などのアニオン性除草剤化合物に加えて、任意に、例えば、アニオン性除草剤のエステル誘導体、またはアセトクロール、アクロニフェン、アラクロール、アメトリン、アミドスルフロン、アニロホス、アトラジン、アザフェニジン、アジムスルフロン、ベンフルラリン、ベンフルレサート、ベンスルフロン - メチル、ベンスリド、ベンゾフェナップ、ピフェノクス、プロモブチド、プロモフェノキシム、ブタクロール、ブタミホス、ブトラリン、ブトロキシジム、ブチレート、カフェンストロール、カルベタミド、カルフェンタラゾン - エチル、クロメトキシフェン、クロルプロムロン、クロリダゾン、クロリムロン - エチル、クロロトルロン、クロルニトロフェン、クロロトルロン、クロルプロファミン、クロルスルフロン、クロルサール - ジメチル、クロルチアミド、シンメチリン、シノスルフロン、クレソジム、クロジナホップ - プロパルジール、クロマゾン、クロメプロブ、クロラスラム - メチル、シアナジン、シクロエート、シクロスルファミン、シクロオキシジム、シハロホップ - ブチル、ダイムロン、デスメジファミン、デスメトリン、ジクロベニル、ジクロホップ - メチル、ジフルフェニカン、ジメフロン、ジメピペレート、ジメタクロール、ジメタメトリン、ジメテンアミド、ジニトラミン、ジノテルブ、ジフェナミド、ジチオピル、ジウロン、E P T C、エスプロカルブ、エタルフルラリン、エタメトスルフロン - メチル、エトフメサート、エトキシスルフロン、エトベンザニド、フェノキサプロブ - エチル、フェヌロン、フラムプロブ - メチル、フラザスルフロン、フルアジホップ - ブチル、フルクロラリン、フルメトスラム、フルミクロラク - ペンチル、フルミオキサジン、フルオメツロン、フルオロクロリドン、フルオログリコフェン - エチル、フルボキサム、フルレノール、フルリドン、フルロキシピル - 1 - メチルヘブチル、フルルタモン、フルチアセト - メチル、ホメサフェン、ハロスルフロン、ハロキシホップ - メチル、ヘキサジノン、イマゾスルフロン、インダノファン、イソプロツロン、イソウロン、イソオキサベン、イソオキサフルトール、イソオキサピリホップ、ラクトフェン、レナシル、リヌロン、メフェナセト、メタミトロン、メタザクロール、メタベンズチアズロン、メチルジムロン、メトベンズウロン、メトプロムウロン、メトラクロール、メトスラム、メトクスロン、メトリブジン、メトスルフロン、モリネート、モノリヌロン、ナプロアニリド、ナプロパミド、ナフタラム、ネブロン、ニコスルフロン、ノルフルラゾン、オルベンカルブ、オリザリン、オキサジアルジール、オキサジアゾン、オキサスルフロン、オキシフルオルフェン、ペブラート、ベンジメタリン、ペンタノクロール、ペントオキサゾン、フェンメジファミン、ピペロホス、プレチラクロール、ピリミスルフロン、プロジアミン、プロメトン、プロメトリン、プロバクロール、プロパニル、プロパキサホップ、プロバジン、プロファミン、プロブイソクロール、プロピザミド、プロスルホカルブ、プロスルフロン、プラフルフェン - エチル、ピラゾリネート、ピラゾスルフロン - エチル、ピラゾキシフェン、ピリブチカルブ、ピリデート、ピリミノバク - メチル、キンクロラック、キンメラック、キサロホップ - エチル、リムスルフロン、セトキシジム、シジュロン、シマジン、ジメトリン、スルコトリオン、スルフェントラゾン、スルホメツロン、スルホスルフロン、テブタム、テブチウロン、テルバシル、テルブメトン、テルブチラジン、テルブトリン、テニルクロール、チアゾピル、チフェンスルフロン、チオベンカルブ、チオカルバジール、トラルコキシジム、トリアラート、トリアスルフロン、トリベヌロン、トリエタジン、トリフルラリン、トリフルスルフロンおよびベルノラートから選択される除草剤などのアニオン性以外の除草剤化合物を任意に含有することができる。

【 0 0 9 8 】

本発明の特定の実施態様において、グリホサートは、アニオン性以外であり、通常、グリホサートの生物学的効果に拮抗する第二除草剤と共に植物処理用組成物中に存在する。典型的には、第二除草剤は、茎葉への施用後約 4 日以内に目に見える殺草兆候を処理植物にもたらずものである。この実施態様に有用な好ましい組成物において、第二除草剤は、カルフェンタラゾン - エチル、フルミクロラック - ペンチル、フルミオキサジン、フルオロ

10

20

30

40

50

グリコフェン - エチル、ホメサフェン、ラクトフェンおよびオキシフルオルフェンから選択される。驚くべきことに、先行技術組成物またはこれらの除草剤を伴うタンク混合物に多く見られるグリホサート除草効果に対する拮抗作用は、一般に、グリホサートおよび第二除草剤、例えば、オキシフルオルフェンが本発明に従ってアルキルエーテルおよびアミン界面活性剤を伴うと、実質的に低下することがわかった。

【0099】

グリホサートおよびアニオン性以外の第二除草剤を含有する本発明の組成物における例として、第二除草剤、例えば、カルフェントラゾン - エチルのグリホサート a . e . に対する重量比は、約 1 : 1 ~ 約 1 : 250 であり得る。第二除草剤、例えば、オキシフルオルフェンが、目に見える殺草兆候をもたらすために、より高い投与量で求められる場合、第二除草剤のグリホサート a . e . に対する重量比は、好ましくは約 1 : 1 ~ 約 1 : 30、さらに好ましくは約 1 : 2 ~ 約 1 : 20 である。

10

【0100】

本発明の組成物に有用な外因性化学物質は、The Pesticide Manual, 第11版、British Crop Protection Council (1997)、および Farm Chemicals Handbook '97, Meister Publishing Company (1997) などの標準的な参考図書に挙げられているものから選択することができる。

【0101】

それらの目的が、処理植物における外因性化学物質の生物学的効果に直接寄与するものであると、なかりと、農学上許容され得る多様なアジュバントまたは添加剤物質も含むことができる。例えば、外因性化学物質が除草剤である場合、液体窒素肥料または硫酸アンモニウムを組成物に含めることができる。硫酸アンモニウムおよび一定のその他の無機アンモニウム塩は、一定の植物種に対するグリホサートおよびその他の除草剤の除草効果を向上させることが知られている。

20

【0102】

本発明の方法に有用な組成物のその他の任意成分には、着、香り、粘度、ゲル化特性、凝固点、安定度または組織を変性する薬剤が挙げられる。

【0103】

一つ以上の界面活性剤、特に上で説明した種類の他のものも考慮する組成物に含めることができる。広範な界面活性剤を外因性化学物質の配合者から入手することができ、McCutcheon's Emulsifiers and Detergents, 1998年版, また MC Publishing Company, または Handbook of Industrial Surfactants, 第二版, Gower (1997) などの標準図書から容易に選択することができる。

30

【0104】

用いることができるこうした追加の界面活性剤のタイプまたは化学的種類に対する制限はない。非イオン性、アニオン性、カチオン性および両性タイプ、またはこれらのタイプの一つ以上の組み合わせは、特定の状況下では、すべて有用である。例えば、両性アシルホスファチジルクロリン界面活性剤を含有するダイズレシチンは、より詳細に以下に説明するように、一定の液体濃厚組成物の安定化に有用であることがわかった。

40

【0105】

本発明の方法に有用な組成物に有用であり得る別の種類の添加剤材料は、動物、植物または合成由来の脂肪酸のトリグリセリドエステル、パラフィン、ポリシロキサン、または脂肪酸などの油、またはそれらのエステルもしくはアミドである。天然トリグリセリド油は、精留されていてもよいし、されていなくてもよい。精留によって、一定の脂肪酸鎖長を除去して、融点を変更することができる。

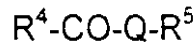
【0106】

本発明の特定の実施態様には、式 (V) :

【0107】

50

【化18】



(V)

(式中、 $R^4$ は、約5～約21個の炭素原子を有するヒドロカルビル基であり、 $R^5$ は、約1～約14個の炭素原子を有するヒドロカルビル基であり、 $R^4$ および $R^5$ 中の炭素原子の合計数は、約11～約27であり、Qは、OまたはNHである)

に対応する化学構造をそれぞれ有する一つ以上の油が含まれる。 $R^4$ および $R^5$ は、好ましくは直鎖ヒドロカルビルである。 $R^4$ は、好ましくは約11～約21個の炭素原子を有し、好ましくは天然飽和または不飽和脂肪酸から誘導される。 $R^5$ は、好ましくは1～約6個の炭素原子を有するアルキル基である。従って、式(V)の特に好ましい油は、脂肪酸の $C_{1-6}$ アルキルエステルまたは $C_{1-6}$ アルキルアミドである。

10

【0108】

一定の好ましい実施態様には、 $C_{12-18}$ 脂肪酸の $C_{1-4}$ アルキルエステル、好ましくは $C_{12-18}$ 飽和脂肪酸の $C_{1-4}$ アルキルエステルである油が含まれる。例には、オレイン酸メチル、オレイン酸エチル、ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピルおよびステアリン酸ブチルが挙げられる。ステアリン酸ブチルは、特に好ましい。

【0109】

存在する場合には、式(V)の一つ以上の油は、好ましくは、こうした油(複数を含む)の、全量の酸当量で表わされるアニオン性外因性化学物質の重量に対する比率が約1:100～約1:1で含まれるが、より多くのまたはより少ない量も特定の状況下では有用であることがわかる。

20

【0110】

存在する場合には、式(V)の油の適する濃度は、植物処理用組成物中では、約0.001重量%～約0.1重量%であり、液体濃厚組成物中では約0.05重量%～約5重量%である。より高いまたはより低い濃度も特定の条件下では有用であり得る。

【0111】

存在する場合には、油(複数を含む)は、アルキルエーテルおよび/またはアミン界面活性剤によって、組成物に乳化させることができる。所望とあらば、追加の界面活性剤(複数を含む)をこうした油(複数を含む)のための乳化剤(複数を含む)として含むことができる。

30

【0112】

グリコールは、本発明の方法に有用な組成物中に任意に存在することができる別の種類の添加剤を成す。例えば、ジエチレングリコールおよび/またはプロピレングリコールは、不凍液、流動点降下剤として、またはその他の何らかの役目で存在することができる。約200～約800、特に約400～約600の範囲の分子量を有するポリエチレングリコールなどのポリグリコールも、類似の役割のために、および/またはアミン界面活性剤のゲル化を阻害するするための助剤として有用である。

【0113】

本発明の実施に有用な非常に濃縮された水性組成物の調製において、一定のカップリング剤が安定度の向上に有益であることがわかる。これらには、エタノール、イソプロパノールおよびブタノール、ならびにジメチルスルホキシド(DMSO)、尿素および水酸化t-ブチルアンモニウムなどの低分子量アルコールが挙げられる。

40

【0114】

任意に存在することができるさらに別の種類の添加剤は、シリカなどの固体ミクロ粒子またはナノ粒子状物質であり、これは、液体濃厚組成物における安定化剤および/または増粘剤としての役割を果たすことができる。

【0115】

#### 濃厚組成物

上記の植物処理用組成物は、希釈水溶液または分散液として、植物の茎葉への施用直前にその場で調製することができるが、本発明の好ましい実施態様には、保管安定性濃厚組成

50

物の溶解、分散または希釈が含まれる。適する量の水に溶解または分散、または適する量の水で希釈すると、こうした濃厚組成物は、上記の本発明の方法に有用な植物処理用組成物となる。従って、本明細書中で植物処理用組成物のために定義する水以外の成分の比率は、濃厚組成物に等しく当てはまる。典型的には、植物処理用組成物の調製において、1重量部の濃厚組成物を約9～約99重量部の水に添加するが、より多いまたはより少ない量の水でも、特定の状況下では有用であり得る。

**【0116】**

本発明の実施に有用な濃厚組成物は、固体であってもよいし、または液体であってもよい。葉施用用アニオン性外因性化学物質に一般に適用すると当業者において知られている配合タイプは、本発明に有用である。これらには、濃縮水溶液および分散液、エマルジョン（水中油、油中水および水中油中水タイプを含む）、マイクロエマルジョン、懸濁濃縮物、乳剤濃縮物、サスポエマルジョン、水和剤、水溶性粉末および顆粒、水分散性粉末または顆粒などが挙げられるが、それらに限定されない。

10

**【0117】**

水溶性または水分散性顆粒剤などの、本発明の実施に有用な固体濃厚組成物は、合計で、酸当量で表わされる少なくとも約10重量%で約90重量%以下のアニオン性外因性化学物質を含有する。好ましくは、固体濃厚組成物中の外因性化学物質の含有率は、約25重量% a . e . ~ 約75重量% a . e . 、さらに好ましくは約50重量% a . e . ~ 75重量% a . e . である。固体組成物は、時として、「乾燥」製剤と呼ばれるが、このことを、こうした組成物が水またはその他の液体を全く含まないことを意味するものと取るべきではなく、単に、こうした組成物は、触ると乾いた感じがするということである。

20

**【0118】**

本発明の一つの実施態様に従って、固体濃厚組成物は、アニオン性外因性化学物質またはその塩、および本明細書中で定義したようなアルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤から本質的に成る。本発明の別の実施態様に従って、固体濃厚組成物は、これらと同じ成分と共にその他の添加剤も含む。本発明の特定の実施態様に従って、固体濃厚組成物は、アニオン性外因性化学物質またはその塩、本明細書中で定義したようなアルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤、および硫酸アンモニウムを含む。好ましい固体濃厚組成物は、水溶性または水分散性顆粒である。

**【0119】**

水溶液または分散液などの本発明の実施に有用な液体濃厚組成物は、合計で、酸当量で表わされる少なくとも約10重量%で約50重量%以上までのアニオン性外因性化学物質を含有する。好ましくは、液体濃厚組成物中のアニオン性外因性化学物質の含有率は、約15重量% a . e . ~ 約45重量% a . e . 、さらに好ましくは約20重量% a . e . ~ 40重量% a . e . である。重量/容積濃度は、液体組成物の比重に依存して変化するであろうが、典型的には、アニオン性外因性化学物質は、約180～540 g a . e . / L 、さらに好ましくは約240～480 g a . e . / L で存在する。

30

**【0120】**

好ましい液体濃厚組成物は、その水溶性塩の形態のアニオン性外因性化学物質が溶解した連続水性相を有し、水溶液を成す。典型的には、アルキルエーテル界面活性剤は、この水溶液に容易に溶解せず、代わりに分散相を形成する。アミン界面活性剤は、分散相と会合するか、水性相に分散するか（例えばミセルとして）、またはその両方である。こうした好ましい組成物中のアルキルエーテル界面活性剤分散は、アミン界面活性剤が役割を果たすことができる乳化系によって安定化する。一つの実施態様において、乳化系は、例えばダイズレシチンの形態のアシルホスファチジルコリン、およびステアリン酸ブチルなどの上記式(V)の油を含む。任意に、低分子量アルコール、DMSO、尿素または水酸化t-ブチルアンモニウムなどのカップリング剤を任意に含んで、安定性を向上することができる。このことは、アニオン性外因性化学物質の濃度を高レベルに上げることが望まれる時、例えば、約24重量% a . e . より多いグリホサートの場合に特に有益であることがわかる。

40

50

## 【0121】

例として、アニオン性外因性化学物質が、イソプロピルアンモニウム（IPA）塩の形態でのグリホサートであり、アルキルエーテル界面活性剤がセテアレス - 27（例えば、BASFのPlurafac（商標）A - 38）であり、およびアミン界面活性剤が、ポリオキシエチレン（15）タローアミン（例えば、AkzoのEthomeen（商標）T / 25）である、本発明のこの実施態様に有用な濃厚組成物は、以下の成分を有する（すべての百分率は、重量でのものある）：

グリホサート塩	24 ~ 48 % ( 18 ~ 36 % a . e . )	
セテアレス - 27	2 ~ 10 %	
ポリオキシエチレン（15）タローアミン	2 ~ 10 %	10
ダイズレシチン	1 ~ 10 %	
ステアリン酸ブチル	0.5 ~ 10 %	
カップリング剤	0 ~ 5 %	
水	100 %まで	

## 【0122】

本発明のこの実施態様に有用な液体濃厚組成物において、アニオン性外因性化学物質、例えば、グリホサートの一部は、典型的には、分散相と強く会合するか、またはこれに取込まれる。葉に施用するために組成物を水で希釈すると、分散相と会合するかまたはこれに取込まれた割合は穏かに減少するが、スプレーからの水が葉表面で蒸発すると、超分子界面活性剤構造との会合またはこれによる取込みが再び発生すると考えられる。

## 【0123】

この実施態様の液体濃厚組成物における超分子界面活性剤構造とグリホサートの会合は、組成物の物理的安定度と相関すると考えられる。あまり物理的に安定でない組成物、例えば、攪拌することなく20 ~ 25 で保管した時、24時間以内に相分離が発生するようなもの、特に、アミン界面活性剤のレシチンに対する重量比が比較的高いものは、典型的に、超分子界面活性剤構造とグリホサートの会合、または超分子界面活性剤構造によるグリホサートの取込みをより低い度合いで示す。

## 【0124】

理論に拘束されるわけではないが、本発明のこの実施態様の組成物における超分子界面活性剤構造とグリホサートとの間の強い会合は、葉の表皮を越えるグリホサートの吸収を高める役割を果たすと理論付けられる。会合または取込みは、NMRスペクトル技術によって容易に検出することができる。こうした技術のひとつには、以下に例示する手順が含まれる。

## 【0125】

好適には約200 ~ 約500  $\mu$ Lの液体濃厚組成物のサンプルをNMR管に入れる。20アンペアの電流パルスに対応してサンプルを横切る約250 Gauss/cmの線状場勾配を生じることができる勾配コイルを有する拡散プローブを用いる。プロトンNMRスペクトルは、場の勾配を増加させる画分として記録する。両極性パルスおよびLEDSパルス配列を用いてデータを採取し、Wu et al., Journal of Magnetic Resonance, A115, 260 - 264, 1995のパルス場勾配法によって拡散を測定する。

## 【0126】

本発明の手順で測定されるグリホサート共振は、グリホサート分子のホスホネート部分に隣接するメチレン基に関係するが、このことは、当業者においてよく知られている。各スペクトルにおいて、グリホサート共振の積分強度（振幅）を測定し、こうした振幅の自然対数を場の勾配の二乗に対してプロットする。こうしたプロットにおいて、直線になるデータは、共成分系において単分散を示す。図1の場合のように、二つの直線成分に分けることができる曲線になるデータは、異なる速度で拡散する二つのグリホサートプールを有する二成分系を示す。拡散が速い方のグリホサートは、「遊離」プール、すなわち、水性媒質に存在するグリホサートを表わし、拡散が遅い方のグリホサートは、「取込み」プー

10

20

30

40

50

ル、すなわち、界面活性剤によって形成される超分子配列と強く会合するかまたはこれに取込まれたグリホサートを表わす。二つのプールの相対サイズは、各直線成分の場の勾配ゼロ（図1の図内のy軸）に合わせた線を外挿することによって、概算することができる。プール中のグリホサートの量は、対応するy切片値の真数に比例する。

#### 【0127】

本発明の実施に有用な一定の水性濃厚組成物は、安定な分散液として説明することができる。この文脈における「安定な」とは、攪拌することなく、20～25℃で、24時間組成物を保管している間に、相分離が発生しないことを意味する。さらに望ましい水性濃厚組成物は、攪拌することなく、約10～約40℃の一定または変化する温度で、48時間、さらになお望ましくは約0～約50℃で7日間、最も望ましくは約-10～約60℃で30日間保管中に、相分離が発生しない分散液である。高温で短時間の安定性は、標準的な保管条件下での長期の安定性に対する良好な指標となるので、本発明の実施に有用な一定の濃厚組成物は、標準的な条件下で1年以上の期間にわたって安定であることが予想される。

#### 【0128】

##### 液体濃厚組成物を製造する方法

液体濃厚組成物は、適する容器内で成分を混合することによって製造することができる。当業者にはご理解いただけるのであるが、必要な攪拌の度合いは、正確な成分に依存する。従って、一定の成分には特定の処理が必要であることも、同様におわかりいただければよい。

#### 【0129】

上に記載したようなレシチンおよびステアリン酸ブチルを含有する水性濃厚組成物は、以下に例示する方法で調製することができる。

#### 【0130】

レシチンを適する容器内で水に添加し、例えば、最高電圧30%に設定したVariacミキサーを用いて、約10分間ファン混合する。これによって、レシチンが水和される。高温、例えば50℃付近でレシチンを水和することが好ましい。その後、水中の水和レシチンに、水溶性塩の形態のアニオン性外因性化学物質、アルキルエーテル界面活性剤、アミン界面活性剤およびステアリン酸ブチルを順不同で添加する。得られた混合物を収容する容器を、最初は中程度に、例えば、小規模製造の場合には手で振ることによって攪拌し、その後、均質になるまでより激しく混合する。これは、例えば、最高電圧30%に設定したVariacミキサーを用いて、約10分間ファン混合することによって達成することができる。あるいは、Turaxミキサーを20,000rpmで、約8分間用いて混合することによって、達成することもできる。任意に、組成物を、その後、例えば、Microfluidics International Corp.のModel M-110Fマイクロ流体ダイザーを15,000psi(69MPa)で5サイクル用いて、マイクロ流動化することができる。

#### 【0131】

本発明の実施に有用な液体濃厚組成物は、上記手順またはその変型によって調製されるものに限定されない。液体濃厚組成物を製造するために適するその他の手順は、実施例に説明し、あるいは当業者が日常の経験から開発することができる。

#### 【0132】

##### 固体濃厚組成物を製造する方法

本発明の実施に有用な固体濃厚組成物を製造するための方法は、固体粒状形態のアニオン性外因性化学物質もしくはその塩またはこうしたアニオン性外因性化学物質とその塩との混合物を、アルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤、および任意に、その他の望ましい成分、加えてすぐ下に記載するような後続の工程段階に適する粘稠度の湿潤配合物を形成するために十分な水と混合する第一段階を含む。アルキルエーテル界面活性剤は、粉末形態で用いてもよいし、湿潤配合物に添加する前に溶解してもよい。

#### 【0133】

こうした方法は、さらに、湿潤配合物を粒状化して、湿潤凝集性顆粒を形成する第二段階

10

20

30

40

50

、およびその顆粒を乾燥する第三段階を含む。外因性化学物質の水溶性または水分散性顆粒を製造するために適することが当業者において知られているあらゆる粒状化方法を用いることができるが、好ましい方法は、パン粒状化処理および押し出し粒状化処理である。英国特許出願第 1 4 3 3 8 8 2 号に記載されている押し出し法は、本発明の実施に有用な顆粒状組成物の製造に有用であり得る方法の一つの例である。外因性化学物質の水溶性または水分散性顆粒を製造するために適することが当業者において知られているあらゆる乾燥方法を用いることができるが、好ましい方法は、流動層乾燥である。

#### 【 0 1 3 4 】

本発明の実施に有用な固体濃厚組成物は、上記手順またはその変型によって調製されるものに限定されない。固体濃厚組成物を製造するために適するその他の手順は、当業者が日常の経験から開発することができる。

10

#### 【 0 1 3 5 】

##### 植物処理用組成物の茎葉への施用

外因性化学物質は、所望の効果をもたらすために十分な割合で植物に施用する。これらの施用割合は、通常、処理される単位面積あたりの外因性化学物質の量、例えば、ヘクタールあたりのグラム数 ( g / h a ) で表わされる。「所望の効果」が何かは、特定の種類の外因性化学物質を研究し、開発し、販売し、また使用する人の基準および経験によって変化する。例えば、除草剤の場合、成長の減少および枯死によって測定される植物種に対する少なくとも 8 5 % の調節を一貫して確実にもたらす、単位面積あたりの施用量を、多くの場合、商品として有効な割合を規定するために用いる。

20

#### 【 0 1 3 6 】

除草効果は、本発明によって向上させることができる生物作用の一つである。本明細書中で用いる「除草効果」とは、植物成長を調節する一切の観察可能な手段を指し、これは、( 1 ) 枯らすこと、( 2 ) 成長、繁殖または増殖の阻害、( 3 ) 植物の発生および活性を除去、破壊、または別様に低下させることのうちの一つ以上を含むことができる。

#### 【 0 1 3 7 】

特定のアニオン性外因性化学物質に対して生物学的に有効である施用割合の選択は、通常の農学科学者の技術の範囲内である。同様に、当業者には、個々の植物の状態、天候および成長条件、ならびに特定のアニオン性外因性化学物質および選択されるその組成物が、本発明の実施において達成される生物学的効果の程度に影響を及ぼすことは、ご理解いただ

30

#### 【 0 1 3 8 】

グリホサートの除草剤組生物またはその誘導体を用いて、世界中の非常に多種多様な植物を調節することができる。本発明によるグリホサート組成物は、除草剤として有効な量で植物に施用することができ、それらに限定されないが、次の一つ以上の属のうち、一つ以上の植物種を効果的に調節することができる： *A b u t i l o n*、*A m a r a n t h u s*、*A r t e m i s i a*、*A s c l e p i a s*、*A v e n a*、*A x o n o p u s*、*B o r r e r i a*、*B r a c h i a r i a*、*B r a s s i c a*、*B r o m u s*、*C h e n o p o d i u m*、*C i r s i u m*、*C o m m e l i n a*、*C o n v o l v u l u s*、*C y n o d o n*、*C y p e r u s*、*D i g i t a r i a*、*E c h i n o c h l o a*、*E l e u s i n e*、*E l y m u s*、*E q u i s e t u m*、*E r o d i u m*、*H e l i a n t h u s*、*I m p e r a t a*、*I p o m o e a*、*K o c h i a*、*L o l i u m*、*M a l v a*、*O r y z a*、*O t t o c h l o a*、*P a n i c u m*、*P a s p a l u m*、*P h a l a r i s*、*P h r a g m i t e s*、*P o l y g o n u m*、*P o r t u l a c a*、*P t e r i d i u m*、*P u e r a r i a*、*R u b u s*、*S a l s o l a*、*S e t a r i a*、*S i d a*、*S i n a p i*

40

50

s、Sorghum、Triticum、Typha、Ulex、Xanthium、およびZea。グリホサート組成物を用いる特に重要な一年生広葉種には、例えば以下の物が挙げられるが、それらに限定されない：イチビ(*Abutilon theophrasti*)、ヒユ・アカザの類(*Amaranthus spp.*)、ハリフタバ(*Borreaia spp.*)、脂肪油料種子ナタネ、カノーラ、カラシナなど(*Brassica spp.*)、ツククサ(*Commelina spp.*)、オランダフウロ(*Erodium spp.*)、ヒマワリ(*Helianthus spp.*)、アサガオ(*Ipomoea spp.*)、ニワクサ(*Kochia scopari*)、ゼニアオイ(*Malva spp.*)、ソバカズラ、タデなど(*Polygonum spp.*)、スベリヒユ(*Portulaca spp.*)、オカヒジキ(*Salsola spp.*)、キンゴジカ(*Sida spp.*)、ノハラガラシ(*Sinapis arvensis*)およびオナモミ(*Xanthium spp.*)。

10

## 【0139】

グリホサート組成物を用いるための特に重要な一年生狭葉樹種には、例えば以下の物が挙げられるが、それらに限定されない：カラスムギ(*Avena fatua*)、カーペットグラス(*Axonopus opp.*)、ウマノチャヒキ(*Bromus tectorum*)、メヒシバ(*Digitaria spp.*)、イヌビエ(*Echinochloa crus-galli*)、オヒシバ(*Eleusine indica*)、一年生ネズミムギ(*Lolium multiflorum*)、イネ(*Oryza sativa*)、*Ottochloa*(*Ottochloa nodosa*)、パヒアグラス(*Paspalum notatum*)、カナリアサード(*Phalaris spp.*)、オオズメノテッポウ(*Setaria spp.*)、コムギ(*Triticum aestivum*)およびトウモロコシ(*Zea mays*)。

20

## 【0140】

グリホサート組成物を用いるための特に重要な多年生広葉種には、例えば以下の物が挙げられるが、それらに限定されない：ヨモギ(*Artemisia spp.*)、トウワタ(*Asclepias spp.*)、エゾキツネノアザミ(*Cirsium arvense*)、セイヨウヒルガオ(*Convolvulus arvensis*)およびクズ(*Pueraria spp.*)。

## 【0141】

グリホサート組成物を用いるための特に重要な多年生狭葉樹種には、例えば以下の物が挙げられるが、それらに限定されない：ニクキビ属(*Brachiaria spp.*)、キョウギシバ(*Cynodon dactylon*)、キハマスゲ(*Cyperus esculentus*)、ムラサキハマスゲ(*C. rotundus*)、ヒバムギ、カモジグサの類(*Elymus repens*)、チガヤ(*Imperata cylindrica*)、ホソムギ(*Lolium perenne*)、ギニアキビ(*Panicum maximum*)、シマスズメノヒエ(*Paspalum dilatatum*)、ヨシ(*Phragmites spp.*)、ヒメモロコシ(*Sorghum halepense*)およびガマ(*Typha spp.*)。

30

## 【0142】

グリホサート組成物を用いるためのその他の特に重要な多年生種には、例えば以下の物が挙げられるが、それらに限定されない：トクサ(*Equisetum spp.*)、ワラビ(*Pteridium aquilinum*)、キイチゴ(*Rubus spp.*)およびハリエニシダ(*Ulex europaeus*)。

40

## 【0143】

このように、グリホサートがアニオン性外因性化学物質である本発明の方法は、上記の種のいずれにも有用である。特定の実施態様において、その一つ以上の塩の形態でグリホサートを含む本明細書で提供するような植物処理用組成物は、グリホサートの作用に耐えるように遺伝的に形質転換された農作物の茎葉およびこうした農作物に極めて近接して成育する雑草または望ましくない植物の茎葉に同時に施用する。この方法によって、農作物

50

が実質的には無傷のまま、雑草または望ましくない植物を制御することができる。グリホサートの作用に耐えるように遺伝的に形質転換された農作物には、その種子が、Monsantoによって、またはMonsantoの契約下で、商標Roundup Ready（登録商標）として販売されているものが挙げられる。これらには、綿、ダイズ、コーラおよびトウモロコシの変種が含まれる。

【0144】

植物処理用組成物の植物の茎葉への施用は、好ましくは、スプレーノズルまたは回転盤アトマイザーなどの液体を噴霧するための通常の手段いずれかを用いて噴霧することによって達成することができる。本発明の方法は、装置を用いて、畑の異なる部分に施用する外因性化学物質の量を、存在する特定の植物種、植物の成長段階、土壌水分状態などの可変要因に依存して変化させる精密な農業技術において用いることができる。こうした技術の一つの実施態様では、噴霧装置と共に作動する全地球位置把握システムを用いて、畑の異なる部分への所望の量での組成物施用を調節することができる。

10

【0145】

植物処理用組成物は、好ましくは、標準的な農業用噴霧装置を用いて容易に噴霧するために必要なだけ希釈する。本発明に適する施用割合は、関係する有効成分のタイプおよび濃度および植物種を含む多数の因子に依存して変化する。水性組成物を茎葉領域に施用するために有用な割合は、噴霧施用で、1ヘクタールあたり約25～約1,000リットル(L/ha)、好ましくは約50～約300L/haの範囲にわたり得る。

20

【0146】

実施例

以下の実施例は、説明のためのみに提供するものであって、本発明の範囲を制限するためのものではない。実施例によって、本発明をより理解し、実施におけるその利点および一定の変型を認識することができるであろう。

【0147】

別に指示しない限り、以下の手順を実施例の組成物を試験するために用いて、除草剤効果を決定した。

【0148】

85mm<sup>2</sup>のポットに入った、あらかじめ蒸気滅菌し、3.6kg/m<sup>3</sup>の割合で14-14-14 NPK緩効性肥料を施肥した土壌ミックスに、指示された植物種を播種した。このポットを地下灌漑した温室に配置した。出芽の約1週間後、一切の健康または正常でない植物の除去など、必要に応じて播種を間引きし、均質な系列の試験用ポットを造った。

30

【0149】

植物は、試験期間中ずっと温室内に置き、ここで、1日最低14時間は光を受けた。自然光が1日あたりの要求量に達するには不十分な場合、約475マイクロアインシュタインの強さの人工光を用いて、その差を埋めた。露光温度は、精密に調節しなかったが、平均して日中は約27、夜間は約18にした。植物には、試験を通して地下灌漑を施し、適切な土壌水分レベルを確保した。

【0150】

3つの複製を用いる完全にランダム化した実験計画のもとで、ポットを異なる処理に割当てた。1セットのポットは、対照として未処理のままにし、これと対照させることによって、後で処理の効果を評価することができた。

40

【0151】

グリホサート組成物の施用は、166kPaの圧力で93L/haの噴霧量を配給するように検量された9501Eノズルを装着するトラック噴霧器によって行った。処理後、評価の準備が整うまでポットを温室に戻した。

【0152】

処理は、希釈水性組成物を用いて行った。これらは、噴霧用組成物としてそれらの成分から直接、またはあらかじめ配合された濃厚組成物を水で希釈することによって調製するこ

50

とができる。すべての比較は、等しいグリホサート酸当量の割合で行った。植物処理用組成物を製造するために必要なグリホサート濃厚組成物についての希釈度は、次の方程式から計算した：

$$A = R S / V C$$

(式中、Aは、ミリリットル(mL)単位での、調製する植物処理用組成物に添加するグリホサート組成物の量であり、Rは、1ヘクタールあたりの酸当量のグラム数(g a . e . / h a )単位での、所望のグリホサートの割合であり、Sは、ミリリットル(mL)単位での、調製する植物処理用組成物の全量であり、Vは、1ヘクタールあたりのリットル(L / h a )単位での、植物処理用組成物の施用割合であり、通常「噴霧量」と呼ばれ、およびCは、1リットルあたりの酸当量のグラム数(g a . e . / L)単位での、グリホサート組成物中のグリホサートの濃度である)

10

から計算した。

#### 【0153】

除草剤効果を評価するために、試験では、すべての植物を一人の熟練技術者が試験し、阻害パーセント、未処理植物との比較による各処理の効果の視覚的測定を記録した。0%の阻害は、効果がないことを示し、100%の阻害は、すべての植物が完全に枯れたことを意味する。最も多くの場合、通常の除草剤用途には、85%以上の阻害が、許容され得ると考えられるが、実施例のもののような温室試験では、異なるレベルの効果を有する組成物の間の区別を容易にするので、85%未満の阻害をもたらす割合を含むことは普通である。

20

#### 【0154】

##### 実施例1

表1aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。HetereneのCS-20は、セテアレス-20(1分子あたり平均20個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンC<sub>16-18</sub>アルキルエーテル)である。BASFのPlurafac(商標)A-38は、セテアレス-27(1分子あたり平均27個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンC<sub>16-18</sub>アルキルエーテル)である。AkzoのEthomeen(商標)T/25は、1分子あたり平均15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンタローアミンである。用いたレシチンは、45%リン脂質を含有するAvantiのダイズレシチン製品である。この実施例のすべての組成物は、水中油エマルジョンであり、以下の手順によって調製した。

30

#### 【0155】

最初に、レシチンを水和し、パルス時間設定15秒、パルス間隔1分での、2.4cmのプロブチップを装着したFisher Sonic Dismembrator、Model 550を用いる超音波処理によって15重量%のストックとして水に分散させ、放置して冷却した。出力は、レベル8に設定した。超音波処理は、3分間(12パルス時間)継続した。

#### 【0156】

次に、必要ならば、追加の水と共に、必要量のステアリン酸ブチル、レシチンおよびアルキルエーテル界面活性剤および/またはアミン界面活性剤を徹底的に混合した。アルキルエーテル界面活性剤は、加熱して、混合前に流動可能な状態にした。その後、必要量のグリホサートIPA塩(MON 0139、グリホサートIPA塩の62重量%水溶液の形態で)を得られた混合物にさらに攪拌しながら添加した。必要量の水を添加して、グリホサートおよびその他の成分の濃度を所望のレベルにした。組成物は、最終的に、中間エマルゼースクリーンを装着したSilverson L4RT-Aミキサーを用いる高剪断混合に付し、3分間、7,000rpmで操作した。

40

#### 【0157】

##### 【表1】

表 1 a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%				
		レシチン	ステアリン酸 ブチル	Ethomeen T/25	CS-20	Plurafac A-38
1-01	220	0.75	0.75	1.5		
1-02	220	0.75	0.75	1.5		
1-03	220	0.75	0.75	3.0		
1-04	220	0.75	7.50	1.5		
1-05	220	0.75	7.50	3.0		
1-06	220	3.75	3.75	3.0		
1-07	220	1.50	1.50	3.0		
1-08	220	1.50	1.50	1.5		
1-09	220	3.75	3.75	1.5	1.5	
1-10	220	1.50	1.50	1.5	1.5	
1-11	220	3.75	7.50	1.5	1.5	
1-12	220	3.75	1.50	1.5	1.5	
1-13	220	0.75	3.75	1.5		1.5
1-14	220	0.75	7.50	1.5		1.5
1-15	220	0.75	3.75	3.0		3.0
1-16	220	0.75	7.50	3.0		3.0
1-17	220		7.50	3.0		
1-18	220	0.75	7.50			3.0

10

## 【 0 1 5 8 】

20

上記各組成物のグリホサート濃度は、約 20 重量% a . e . であった。従って、アルキルエーテル + アミン界面活性剤のグリホサート a . e . に対する重量比は、全アルキルエーテル + アミン界面活性剤濃度が 6 重量%である場合は約 0 . 3 : 1 であり、全アルキルエーテル + アミン界面活性剤濃度が 3 重量%である場合は約 0 . 1 5 : 1 であった。

イチビ ( *Abutilon theophrasti*、ABUTH) およびイヌビエ ( *Japanese millet* )、イヌビエ ( *barnyard grass* ) ( *Echinochloa crus-galli*、ECHCF) 品種、の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH および ECHCF の播種から 2 3 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 1 8 日後に行った。

標準比較処理として、二つの市販グリホサート濃縮剤を希釈し、施用した。これらは、水溶液形態での 4 8 0 g / L のグリホサート IPA 塩 ( 約 3 6 0 g a . e . / L ) から基本的に成る Monsanto の Accord ( 登録商標 ) 除草剤、および水溶液形態での 4 8 0 g / L のグリホサート IPA 塩 ( 約 3 6 0 g a . e . / L ) と併せて界面活性剤を含有する Monsanto の Roundup ( 登録商標 ) Ultra 除草剤であった。

30

## 【 0 1 5 9 】

各処理のすべての複製について平均した結果を表 1 b に示す。

## 【 0 1 6 0 】

## 【表 2】

表 1 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Accord®	100	12	62
	200	5	55
	300	23	63
	400	43	78
Roundup® Ultra	100	27	82
	200	62	98
	300	88	95
	400	96	99
1-01	100	13	79
	200	68	95
	300	82	99
	400	95	91
1-02	100	27	82
	200	60	97
	300	81	95
	400	87	99
1-03	100	37	77
	200	62	96
	300	78	98
	400	89	90
1-04	100	37	84
	200	57	95
	300	84	99
	400	89	100
1-05	100	33	77
	200	65	100
	300	78	97
	400	88	97

10

20

1-06	100	43	78
	200	62	95
	300	87	97
	400	95	96
1-07	100	48	78
	200	80	91
	300	90	99
	400	76	93
1-08	100	48	83
	200	67	89
	300	86	96
	400	93	97
1-09	100	62	84
	200	82	98
	300	85	99
	400	91	97
1-10	100	63	80
	200	75	96
	300	85	99
	400	99	99
1-11	100	42	75
	200	78	98
	300	92	99
	400	93	100
1-12	100	52	80
	200	73	93
	300	86	99
	400	97	97
1-13	100	55	83
	200	75	97
	300	97	99
	400	92	99
1-14	100	52	87
	200	73	95
	300	91	97
	400	87	98
1-15	100	57	83
	200	92	96
	300	98	100
	400	100	98
1-16	100	79	88
	200	87	97
	300	99	99
	400	97	94
1-17	100	58	83
	200	47	94
	300	88	98
	400	91	93
1-18	100	58	87
	200	75	91
	300	83	99
	400	91	98

10

20

30

40

## 【 0 1 6 1 】

アルキルエーテル界面活性剤 Plurafac (商標) A - 38 を 3% 含有する、組成物 1 - 18 は、顕著な除草効果を提供した。Ethomeen (商標) T / 25 を 3% 追加することによって、効果がさらに向上した (組成物 1 - 16)。驚くべきことに、アルキルエーテルおよびアミン界面活性剤の含有率をそれぞれ 1.5% に低下させた組成物 1 - 14 は、組成物 1 - 18 (アルキルエーテル 3%、アミンなし) と実質的に等しく作用し、組成物 1 - 05 (アルキルエーテルなし、アミン 3%) より良好に作用した。これらすべての組成物において、レシチンの含有率は 0.75% であり、ステアリン酸ブチルの含有率は 7.5% であった。

50

## 【0162】

アルキルエーテル界面活性剤によって誘導される除草効果が高すぎて、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤の間の真に相乗的な相互作用を観察することができなかったのは、おそらく、これらの組成物中のステアリン酸ブチルの濃度が比較的高かったためであろう。しかし、組成物1-14の卓越した効能は、こうした相互作用を強く暗示している。

## 【0163】

## 実施例2

表2aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。すべは水中油エマルジョンであり、実施例1で説明した方法によって調製したが、但し、組成物2-01から2-08、および2-11から2-17については、レシチンを水和し、超音波によってではなく、Microfluidics International Corp.のModel M-110F流動化装置を3サイクル用いるミクロ流動化によって分散させた。

## 【0164】

## 【表3】

表2a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%					
		レシチン	ステアリン酸ブチル	Ethomeen T/25	MON 0818	CS-20	Plurafac A-38
2-01	220	0.75	3.75	3.0			3.0
2-02	220	0.75	0.75	3.0			3.0
2-03	220	0.75	3.75	3.0		3.0	
2-04	220	0.75	0.75	3.0		3.0	
2-05	220	6.00	1.50	3.0		3.0	
2-06	220	6.00	1.50	3.0			3.0
2-07	220	4.00	1.00	3.0		3.0	
2-08	220	4.00	1.00	3.0			3.0
2-09	220	0.75	3.75	3.0			3.0
2-10	220	0.75	0.75	3.0			3.0
2-11	220	0.75	3.75	6.0			
2-12	220	0.75	3.75			6.0	
2-13	345	6.00	1.50	4.5	4.5		
2-14	345	6.00	1.50	6.0			3.0
2-15	345	6.00	1.50	6.0	6.0		
2-16	345	0.50	7.50	12.0			
2-17	345	6.00	1.50	4.5	4.5		3.0

## 【0165】

組成物2-01から2-12中のグリホサート濃度は、約20重量% a.e.であった。組成物2-13から2-17中のグリホサート濃度は、約30重量% a.e.であった。イチビ(Abutilon theophrasti、ABUTH)およびイヌビエ(Echinochloa crus-galli、ECHCF)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から19日後に行い、除草効果の評価は、施用から15日後に行った。

実施例1の場合のように、比較処理として、Accord(登録商標)およびRoundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表2bに示す。

## 【0166】

## 【表4】

表 2 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Accord®	150	45	82
	250	55	71
	350	80	72
	450	88	77
Roundup® Ultra	150	55	83
	250	89	88
	350	97	93
	450	99	93
2-01	150	92	83
	250	96	96
	350	99	96
	450	100	86
2-02	150	85	93
	250	97	78
	350	97	90
	450	99	90
2-03	150	87	85
	250	98	92
	350	99	95
	450	100	95
2-04	150	87	89
	250	97	92
	350	99	94
	450	99	91
2-05	150	87	77
	250	98	89
	350	99	93
	450	99	84
2-06	150	12	18
	250	96	73
	350	99	85
	450	99	84
2-07	150	82	89
	250	88	96
	350	96	98
	450	97	97
2-08	150	88	94
	250	95	90
	350	99	98
	450	99	98
2-09	150	94	94
	250	95	100
	350	97	99
	450	99	98

10

20

30

2-10	150	94	94
	250	98	99
	350	99	97
	450	99	96
2-11	150	83	81
	250	94	88
	350	98	93
	450	99	99
2-12	150	68	79
	250	95	96
	350	98	100
	450	99	98
2-13	150	86	98
	250	95	98
	350	99	100
	450	100	98
2-14	150	85	98
	250	98	98
	350	99	98
	450	100	98
2-15	150	86	95
	250	97	97
	350	99	95
	450	100	96
2-16	150	93	94
	250	98	98
	350	99	98
	450	100	97
2-17	150	95	96
	250	98	100
	350	100	100
	450	100	98

10

20

## 【 0 1 6 7 】

アミン界面活性剤 E t h o m e e n ( 商 標 ) T / 2 5 を 6 % 含有する組成物 2 - 1 1 は、顕著な除草効果を提供した。アルキルエーテル界面活性剤 C S - 2 0 を 6 % 含有する、組成物 2 - 1 2 は、最も低いグリホサート率において A B U T H に対する有効性がわずかに低かった。E t h o m e e n ( 商 標 ) T / 2 5 および C S - 2 0 をそれぞれ 3 % 含有する組成物 2 - 0 3 は、少なくとも組成物 2 - 1 1 と同じくらい有効であった。これらすべての組成物において、レシチン含有率は 0 . 7 5 % であり、ステアリン酸ブチル含有率は 3 . 7 5 % であった。

30

## 【 0 1 6 8 】

この試験では、アミン界面活性剤によって誘導される除草効果が高すぎて、アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤の間に相乗的な相互作用を観察することができなかった。しかし、組成物 2 - 0 3 の卓越した効能は、こうした相互作用を強く暗示している。

## 【 0 1 6 9 】

## 実施例 3

表 3 a に示すようなグリホサート I P A 塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。以下の方法によって、すべてを調製した。

アルキルエーテル界面活性剤 ( C S - 2 0 または P l u r a f a c ( 商 標 ) A - 3 8 ) およびアミン界面活性剤 ( E t h o m e e n ( 商 標 ) T / 2 5 ) を配合容器内で水に添加し、得られた混合物を振盪浴内で、2 時間、5 5 に加熱した。混合物を放置して冷却し、その後、穏かに攪拌しながら M O N 0 1 3 9 の形態のグリホサート I P A 塩を添加して、予備グリホサート / 界面活性剤混合物を生成した。その後、塊りを破壊するように攪拌しながらレシチン ( A v a n t i 、リン脂質 4 5 % ) をこの予備混合物に添加した。混合物を約 1 時間放置して、レシチンを水和させ、その後、さらに攪拌しながらステアリン酸

40

50

ブチルを添加した。相分離の発生がなくなるまで撹拌を継続した。その後、配合容器内の混合物をマイクロ流動化装置 (Microfluidics International Corp.、Model M-110F) に移し、3~5サイクル、10,000 psi (69 MPa) でマイクロ流動化した。各サイクルにおいて、容器を流動化混合物ですすいだ。最後のサイクルにおいて、完成組成物を清浄な容器に回収した。

【0170】

【表5】

表3a

濃厚組成物	g a.e./l	重量%				
		レシチン	ステアリン酸ブチル	Ethomeen T/25	CS-20	Plurafac A-38
3-01	220	1.5	1.5	3.0	3.0	
3-02	220	1.5	1.5	3.0		3.0
3-03	220	1.5	1.5	6.0	3.0	
3-04	220	1.5	1.5	6.0		3.0
3-05	220	3.0	1.5	3.0	3.0	
3-06	220	3.0	1.5	3.0		3.0
3-07	348	1.5	1.5	6.0	3.0	
3-08	348	3.0	1.5	3.0	3.0	

10

【0171】

組成物 3-01 から 3-06 中のグリホサート濃度は、約 20 重量% a.e. であった。組成物 3-07 および 3-08 中のグリホサート濃度は、約 30 重量% a.e. であった。

20

イチビ (Abutilon theophrasti、ABUTH) およびイヌビエ (Echinochloa crus-galli、ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH および ECHCF の播種から 17 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 18 日後に行った。

実施例 1 の場合のように、比較処理として、Accord (登録商標) および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 3b に示す。

【0172】

【表6】

30

表 3 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Accord®	100	28	32
	200	41	37
	300	73	64
	400	22	30
Roundup® Ultra	100	38	32
	200	82	73
	300	89	91
	400	97	89
3-01	100	51	40
	200	89	75
	300	96	92
	400	95	98
3-02	100	76	57
	200	98	81
	300	97	86
	400	96	98
3-03	100	69	60
	200	98	63
	300	95	82
	400	99	90
3-04	100	61	60
	200	94	84
	300	97	89
	400	99	97
3-05	100	64	53
	200	95	82
	300	96	90
	400	95	98
3-06	100	61	58
	200	94	78
	300	88	87
	400	100	94
3-07	100	56	61
	200	88	77
	300	91	82
	400	97	89
3-08	100	42	52
	200	82	80
	300	86	90
	400	97	92

10

20

30

## 【 0 1 7 3 】

本発明の組成物 3 - 0 1 から 3 - 0 8 は、Roundup (登録商標) Ultra によって設定された高い基準によってでさえ、ABUTH および ECHCF に対して非常に高い度合いの除草効果を示した。

## 【 0 1 7 4 】

## 実施例 4

表 4 a に示すようなグリホサート IPA 塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。ICI の Bri j (商標) 7 8 は、1 分子あたり平均 2 0 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンステアリルエーテルである。ICI の Bri j (商標) 7 0 0 は、1 分子あたり平均 1 0 0 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンステアリルエーテルである。Monsanto の MON 0 8 1 8 は、1 分子あたり平均 1 5 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンタローアミンに基づく界面活性剤である。

## 【 0 1 7 5 】

組成物 4 - 0 1 から 4 - 0 4、および 4 - 0 8 を以下のように調製した。MON 0 1 3

40

50

9の形態の所望の量のグリホサートIPA塩、計量したアルキルエーテルおよび/またはアミン界面活性剤に添加した。MON 0139を添加する前に、アルキルエーテル界面活性剤に熱をかけて、流動可能な状態にした。その後、必要量の水を添加して、グリホサートおよびその他の成分の濃度を所望のレベルにした。最後に、中間エマルゼンスクリーンを装着したSilverston L4RT-Aミキサーを用いて、3分間、7,000rpmで組成物を高剪断混合に付した。

【0176】

組成物4-05から4-07および4-09から4-18は、コロイド粒状シリカを含有し、以下のように調製した。必要量の選択したシリカを濃縮グリホサートIPA塩溶液(MON 0139)に懸濁させ、得られるグリホサート/シリカ混合物が確実に均一になるように冷却しながら攪拌した。アルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤も含有する組成物4-09から4-18の場合、必要重量の選択した界面活性剤を添加した。グリホサート/シリカ混合物に添加する前に、アルキルエーテル界面活性剤に熱をかけて、流動可能な状態にした。その後、必要量の水を添加して、グリホサートおよびその他の成分の濃度を所望のレベルにした。最後に、中間エマルゼンスクリーンを装着したSilverston L4RT-Aミキサーを用いて、組成物を高剪断混合に付し、これを7,000rpmで3分間作動させた。

【0177】

すべてDegussaからのものである以下のタイプのシリカを用いた：A = Aerosil (商標) 380；B = Aerosil (商標) MOX-80；C = Aerosil (商標) MOX-170。

【0178】

組成物4-01から4-03を除くこの実施例のすべての組成物は、許容され得る保管安定性を有した。

【0179】

【表7】

表4a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%				シリカの タイプ
		Brij 78	Brij 700	MON 0818	シリカ	
4-01	488	3.0				
4-02	488	4.5				
4-03	488	6.0				
4-04	488			3.0		
4-05	488				1.5	A
4-06	488				1.5	B+C (1:1)
4-07	488				3.0	A+B (1:1)
4-08	488		1.5			
4-09	488	3.0		3.0	1.5	A
4-10	488	4.5		3.0	1.5	A
4-11	488	6.0		3.0	1.5	A
4-12	488	3.0		3.0	1.5	B+C (1:1)
4-13	488	4.5		3.0	1.5	B+C (1:1)
4-14	488	6.0		3.0	1.5	B+C (1:1)
4-15	488	3.0		3.0	1.5	A+B (1:1)
4-16	488	4.5		3.0	1.5	A+B (1:1)
4-17	488	6.0		3.0	1.5	A+B (1:1)
4-18	488		4.5	3.0	1.5	B+C (1:1)

【0180】

すべての組成物中のグリホサート濃度は、約40重量% a.e.であった。

イチビ(Abutilon theophrasti、ABUTH)およびイヌビエ(Echinochloa crus-galli、ECHCF)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から16日後に行い、除草効果の評価は、施用から21日後に行った。

実施例 1 の場合のように、比較処理として、A c c o r d (登録商標) および R o u n d u p (登録商標) U l t r a を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 4 b に示す。

【 0 1 8 1 】

【表 8】

表 4 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Accord®	100	2	23
	200	18	50
	300	42	67
	400	63	80
Roundup® Ultra	100	20	47
	200	40	86
	300	83	98
	400	93	98
4-01	100	10	75
	200	62	83
	300	80	96
	400	93	99
4-02	100	40	60
	200	77	92
	300	87	97
	400	93	99
4-03	100	23	40
	200	38	63
	300	78	91
	400	97	91
4-04	100	20	38
	200	23	77
	300	43	94
	400	73	94
4-05	100	7	30
	200	25	37
	300	42	60
	400	67	63
4-06	100	7	30
	200	20	53
	300	52	67
	400	83	67
4-07	100	5	35
	200	20	63
	300	57	80
	400	43	85

10

20

30

4-08	100	22	83
	200	47	99
	300	86	98
	400	78	100
4-09	100	12	45
	200	25	77
	300	40	83
	400	37	95
4-10	100	13	53
	200	73	99
	300	85	98
	400	99	99
4-11	100	25	50
	200	60	88
	300	93	99
	400	99	99
4-12	100	25	45
	200	57	88
	300	85	97
	400	100	94
4-13	100	30	52
	200	68	87
	300	93	99
	400	100	92
4-14	100	40	45
	200	73	88
	300	81	98
	400	100	99
4-15	100	8	57
	200	33	96
	300	81	99
	400	95	99
4-16	100	10	62
	200	48	83
	300	99	98
	400	100	100
4-17	100	27	58
	200	65	92
	300	75	98
	400	93	99
4-18	100	5	40
	200	33	87
	300	55	98
	400	75	98

10

20

30

## 【0182】

## 実施例5

表5aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物5-12から5-14は、実施例4の組成物4-01から4-04および4-08と同じ方法で調製した。組成物5-01から5-11および5-15から5-17は、実施例4の組成物4-09から4-18と同じ方法で調製した。すべてDegussaからのものである以下のタイプのシリカを用いた：A = Aerosil (商標) 380；B = Aerosil (商標) MOX-80；C = Aerosil (商標) MOX-170。

40

## 【0183】

## 【表9】

表 5 a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%				シリカの タイプ
		Brij 78	Ethomeen T/25	プロピレン グリコール	シリカ	
5-01	488	3.0			0.8	A
5-02	488	6.0			1.5	B+C (1:1)
5-03	488	4.5			1.5	A
5-04	488	4.5	2.25	0.5	1.5	A+B (2:1)
5-05	488	4.5		0.5	1.5	A+B (2:1)
5-06	488	6.0		0.5	1.5	A+B (2:1)
5-07	488	3.0	1.50	0.5	1.5	A+B (2:1)
5-08	488	6.0	3.00	0.5	1.5	A+B (2:1)
5-09	488	3.0	1.50	0.5	1.5	A
5-10	488	4.5	2.25	0.5	1.5	A
5-11	488	6.0	3.00	0.5	1.5	A
5-12	488		1.50	0.5		
5-13	488		2.25	0.5		
5-14	488		3.00	0.5		
5-15	488		1.50	0.5	1.5	A+B (2:1)
5-16	488		2.25	0.5	1.5	A+B (2:1)
5-17	488		3.00	0.5	1.5	A+B (2:1)

10

## 【 0 1 8 4 】

すべての組成物中のグリホサート濃度は、約 40 重量% a . e . であった。

20

イチビ (*Abutilon theophrasti*、ABUTH) およびイヌビエ (*Echinochloa crus-galli*、ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH および ECHCF の播種から 16 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 20 日後に行った。

実施例 1 の場合のように、比較処理として、Accord (登録商標) および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 5 b に示す。

## 【 0 1 8 5 】

## 【表 10】

表 5 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Accord®	100	0	3
	200	10	12
	300	43	22
	400	47	27
Roundup® Ultra	100	13	15
	200	25	22
	300	58	53
	400	68	82
5-01	100	30	20
	200	60	53
	300	73	88
	400	87	96
5-02	100	40	23
	200	63	55
	300	88	87
	400	93	93
5-03	100	42	20
	200	72	55
	300	82	83
	400	90	88
5-04	100	60	32
	200	70	57
	300	90	88
	400	90	93
5-05	100	47	32
	200	67	57
	300	88	85
	400	94	88
5-06	100	33	37
	200	68	67
	300	82	80
	400	90	88

10

20

5-07	100	35	37
	200	67	70
	300	87	85
	400	97	93
5-08	100	32	35
	200	67	77
	300	85	92
	400	97	95
5-09	100	27	33
	200	57	67
	300	88	83
	400	93	95
5-10	100	13	33
	200	62	58
	300	80	80
	400	92	92
5-11	100	13	20
	200	60	57
	300	88	63
	400	93	82
5-12	100	10	27
	200	53	53
	300	70	67
	400	88	85
5-13	100	3	28
	200	50	57
	300	67	70
	400	90	82
5-14	100	3	28
	200	55	57
	300	70	83
	400	87	87
5-15	100	10	20
	200	58	43
	300	70	72
	400	83	85
5-16	100	12	22
	200	55	57
	300	73	77
	400	92	90
5-17	100	7	20
	200	53	55
	300	70	75
	400	85	88

10

20

30

## 【 0 1 8 6 】

## 実施例 6

表 6 a に示すようなグリホサート I P A 塩および添加剤成分を含有する植物処理用組成物を調製した。

組成物 6 - 0 1 から 6 - 0 8 は、93 L / h a での施用に際し、100、200、300、400 および 500 g a . e . / h a のグリホサート a . e . の割合を提供するように調製した 5 つの植物処理用組成物それぞれの代表である。全界面活性剤のグリホサート a . e . 割合に対する重量比は、5 つすべてのグリホサート a . e . の割合にわたって一定に保った。濃度 50 % で供給される Arquad (商標) C - 50 に関して表 6 a に示す比率は、「そのままの」界面活性剤を基準にするのではなく、「活性」界面活性剤を基準にしている。植物処理用組成物は、必要な希釈度で成分を水に単に混合することによって調製した。グリホサート I P A 塩は、MON 0139 として供給した。BASF の Plurafac (商標) A - 38 は、1 分子あたり平均約 27 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン C<sub>16-18</sub> アルキルエーテル界面活性剤である。Akzo の Arquad (商標) C - 50 は、オキシエチレン単位を有さない塩化第四ココアルキル

40

50

トリメチルアンモニウムである。MonsantoのMON 0818は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンタローアミンに基づく界面活性剤である。

【0187】

【表11】

表6a

組成物	全界面活性剤／グリホサート a. e. の重量比	界面活性剤 (重量比)
6-01	0.4:1	Plurafac A-38
6-02	0.4:1	Plurafac A-38 + Arquad C-50 (10:1)
6-03	0.4:1	Plurafac A-38 + Arquad C-50 (2:1)
6-04	0.4:1	Plurafac A-38 + Arquad C-50 (1:1)
6-05	0.4:1	Plurafac A-38 + Arquad C-50 (1:2)
6-06	0.4:1	Plurafac A-38 + Arquad C-50 (1:10)
6-07	0.4:1	Arquad C-50
6-08	0.4:1	Plurafac A-38 + MON 0818 (1:1)

10

【0188】

イチビ (*Abutilon theophrasti*, ABUTH) およびイヌビエ (*Echinochloa crus-galli*, ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から15日後に行い、除草効果の評価は、施用から19日後に行った。

20

比較処理として、MON 0139およびRoundup (登録商標) Ultraを希釈し、施用した。施用する最初と最後のセットの処理として、2セットの複製されたポットにRoundup (登録商標) Ultraを噴霧した。各処理のすべての複製について平均した結果を表6bに示す。

【0189】

【表12】

表 6 b

植物処理用組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
MON 0139	100	2	50
	200	3	30
	300	6	55
	400	6	65
	500	27	65
Roundup® Ultra 第一セット	100	12	0
	200	6	52
	300	47	65
	400	72	70
	500	83	73
Roundup® Ultra 第二セット	100	4	38
	200	5	42
	300	30	63
	400	60	78
	500	68	81
6-01	100	1	33
	200	9	57
	300	48	70
	400	73	70
	500	73	82
6-02	100	4	48
	200	11	63
	300	31	68
	400	68	78
	500	75	97
6-03	100	0	23
	200	5	57
	300	9	68
	400	62	82
	500	67	79
6-04	100	5	10
	200	17	63
	300	16	68
	400	67	68
	500	72	77
6-05	100	5	27
	200	7	53
	300	47	63
	400	63	73
	500	73	80
6-06	100	4	47
	200	6	53
	300	20	62
	400	50	68
	500	70	78
6-07	100	7	48
	200	4	52
	300	7	63
	400	15	88
	500	48	80
6-08	100	2	63
	200	12	72
	300	47	82
	400	68	86
	500	77	100

## 【 0 1 9 0 】

Wyrill & Burnsideの前掲引用書中のデータから明らかである、非常に高い界面活性剤対グリホサートa.e.比でのPlurafac(商標)A-46とArquad(商標)C-50の間の相乗的相互作用は、Wyrill & Burnside

10

20

30

40

50

eのものよりずっと低い本発明の範囲内の界面活性剤対グリホサート a . e . 比で Plurafac (商標) A - 38 および Arquad (商標) C - 50 を用いるこの試験において、はっきりとはわからなかった。

## 【0191】

## 実施例7

表7aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物7-01から7-05は、水に成分を混合し、50の振盪浴内で30分間、混合物を攪拌することによって調製した。AkzoのEthoquad (商標) C/25は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四N - メチルココアルキルアンモニウムクロリド界面活性剤である。AkzoのEthoquad (商標) 18/25は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四N - メチルステアリルアンモニウムクロリド界面活性剤である。

## 【0192】

## 【表13】

表7a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%		
		Plurafac A-38	Ethoquad C/25	Ethoquad 18/25
7-01	62	3.0		
7-02	62	2.1	0.9	
7-03	62	1.5	1.5	
7-04	62	2.1		0.9
7-05	62	1.5		1.5

## 【0193】

すべての組成物中のグリホサート濃度は、約6重量% a . e . であった。

イチビ (Abutilon theophrasti、ABUTH) およびイヌビエ (Echinochloa crus-galli、ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、3ポット2セットで施用するそれぞれの種の6つの複製ポットを各処理に付した。除草効果の評価は、施用から14日後に行った。

比較処理として、MON 0139 および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表7bに示す。

## 【0194】

## 【表14】

表7b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
MON 0139	100	6	40
	200	48	52
	300	65	62
	400	70	64
	500	85	68
Roundup® Ultra	100	63	56
	200	82	77
	300	91	84
	400	96	91
	500	97	96

7-01	100	76	61
	200	89	81
	300	96	94
	400	97	96
	500	99	97
7-02	100	77	72
	200	93	92
	300	97	96
	400	98	94
	500	99	96
7-03	100	78	68
	200	94	89
	300	96	95
	400	98	97
	500	98	97
7-04	100	80	71
	200	91	86
	300	97	90
	400	98	92
	500	98	94
7-05	100	79	71
	200	94	93
	300	96	94
	400	98	94
	500	98	96

10

20

## 【0195】

本発明が必要とするアルキルエーテル界面活性剤（Plurafac（商標）A-38）とアミン界面活性剤（Ethoquad（商標）C/25または18/25）の両方を含有する組成物7-02から7-05各々が、この試験において、アルキルエーテル成分しか含有しないが同じ全界面活性剤濃度の組成物7-01より大きな除草効果を示した。

## 【0196】

## 実施例8

表8aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物8-01から8-06は、水中に成分を混合し、50の振盪浴内で30分間、混合物を攪拌することによって調製した。HetereneのHetoxol（商標）CS-25は、1分子あたり平均約25個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン $C_{16-18}$ アルキルエーテル界面活性剤である。BASFのPlurafac（商標）A-38は、1分子あたり平均約27個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン $C_{16-18}$ アルキルエーテル界面活性剤である。AkzoのEthomeen（商標）T/25は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四タローアミン界面活性剤である。HenkelのTrymeen（商標）6617は、1分子あたり平均約50個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四タローアミン界面活性剤である。

30

## 【0197】

## 【表15】

40

表8a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%			
		Plurafac A-38	Hetoxol CS-25	Ethomeen T/25	Trymeen 6617
8-01	62	3.0			
8-02	62	1.5		1.5	
8-03	62		3.0		
8-04	62		1.5	1.5	
8-05	62		1.5		1.5
8-06	62				3.0

50

## 【 0 1 9 8 】

すべての組成物中のグリホサート濃度は、約 6 重量 % a . e . であった。

イチビ ( *Abutilon theophrasti*、ABUTH ) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、3 ポット 2 セットで施用する 6 つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH の播種から 15 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 14 日後に行った。

比較処理として、MON 0139 および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 8 b に示す。

## 【 0 1 9 9 】

## 【 表 1 6 】

10

表 8 b

濃厚組成物	グリホサート施用量	阻害%
	g a.e./ha	ABUTH
MON 0139	100	0
	200	5
	300	52
	400	71
	500	77
Roundup® Ultra	100	2
	200	42
	300	78
	400	84
	500	92

20

8-01	100	3
	200	52
	300	79
	400	88
	500	93
8-02	100	13
	200	58
	300	75
	400	96
	500	97
8-03	100	7
	200	57
	300	77
	400	89
	500	94
8-04	100	5
	200	49
	300	82
	400	90
	500	95
8-05	100	14
	200	60
	300	76
	400	91
	500	94
8-06	100	1
	200	21
	300	71
	400	83
	500	92

30

40

## 【 0 2 0 0 】

## 実施例 9

表 9 a に示すようなグリホサート IPA 塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物 9 - 0 1 から 9 - 0 4 は、水に成分を混合し、50 の振盪浴内で 30 分間、混合

50

物を攪拌することによって調製した。濃度50%で供給されるArquad(商標)T-50の濃度は、「そのままの」界面活性剤を基準とするのではなく、「活性」界面活性剤を基準にして、表9aに示す。AkzoのArquad(商標)T-50は、オキシエチレン単位を有さない塩化第四タロアルキルトリメチルアンモニウム界面活性剤である。AkzoのEthoquad(商標)C/25は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四N-メチルココアルキルアンモニウムクロリド界面活性剤である。AkzoのEthoquad(商標)18/25は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四N-メチルステアリルアンモニウムクロリド界面活性剤である。

【0201】

【表17】

10

表9a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%			
		Plurafac A-38	Arquad T-50	Ethoquad C/25	Ethoquad 18/25
9-01	62	3.0			
9-02	62	1.5	1.5		
9-03	62	1.5		1.5	
9-06	62	1.5			1.5

【0202】

すべての組成物中のグリホサート濃度は、約6重量% a.e.であった。

イチビ(Abutilon theophrasti、ABUTH)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し3ポット2セットで使用する6つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHの播種から19日後に行い、除草効果の評価は、施用から14日後に行った。

比較処理として、MON 0139およびRoundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表9bに示す。

【0203】

【表18】

20

表9b

濃厚組成物	グリホサート g a.e./ha	阻害%
		ABUTH
MON 0139	100	6
	200	12
	300	58
	400	72
	500	80
Roundup® Ultra	100	8
	200	64
	300	77
	400	81
	500	89

30

40

9-01	100	57
	200	76
	300	81
	400	83
	500	93
9-02	100	11
	200	75
	300	77
	400	86
	500	92
9-03	100	55
	200	76
	300	84
	400	91
	500	97
9-04	100	58
	200	76
	300	84
	400	92
	500	94

10

## 【0204】

アルキルエーテル界面活性剤 Plurafac (商標) A-38 と、オキシエチレン単位を有さないアミン界面活性剤 (Arquad (商標) T-50) との混合物 (組成物 9-02) は、ポリオキシエチレンアミン界面活性剤との類似の混合物 (Ethoquad (商標) C/25 または 18/25、それぞれ組成物 9-03 および 9-04) より有意に低いグリホサートでの除草効果を誘導した。

20

## 【0205】

## 実施例 10

表 10 a に示すようなグリホサート IPA 塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物 10-01 から 10-06 は、水に成分を混合し、50 の振盪浴内で 30 分間、混合物を撈拌することによって調製した。

## 【0206】

## 【表 19】

30

表 10 a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%	
		Hetoxol CS-25	Ethoquad 18/25
10-01	62	2.0	
10-02	62	1.6	0.4
10-03	62	1.4	0.6
10-04	62	1.0	1.0
10-05	62	0.6	1.4
10-06	62		2.0

40

## 【0207】

すべての組成物中のグリホサート濃度は、約 6 重量% a.e. であった。

イチビ (Abutilon theophrasti, ABUTH) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し 3 ポット 2 セットで施用する 6 つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH の播種から 23 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 14 日後に行った。

比較処理として、MON 0139 および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 10 b に示す。

## 【0208】

## 【表 20】

50

表 10 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%
		ABUTH
MON 0139	100	1
	200	10
	300	29
	400	49
	500	77
Roundup® Ultra	100	10
	200	60
	300	82
	400	86
	500	93
10-01	100	42
	200	78
	300	88
	400	95
	500	98
10-02	100	53
	200	83
	300	96
	400	98
	500	98

10

10-03	100	52
	200	82
	300	92
	400	98
	500	99
10-04	100	56
	200	84
	300	96
	400	98
	500	98
10-05	100	49
	200	82
	300	96
	400	97
	500	98
10-06	100	7
	200	55
	300	75
	400	92
	500	98

20

## 【 0 2 0 9 】

アルキルエーテル界面活性剤 ( H e t o x o l ( 商 標 ) C S - 2 5 ) と アミン界面活性剤 ( E t h o q u a d ( 商 標 ) 1 8 / 2 5 ) と の 混 合 物 を 含 有 す る 本 発 明 の 組 成 物 1 0 - 0 2 から 1 0 - 0 5 は、同じ全界面活性剤濃度の組成物 1 0 - 0 1 ( アルキルエーテルのみ ) または 1 0 - 0 6 ( アミンのみ ) のいずれかに比して大きな除草効果を示した。

30

40

## 【 0 2 1 0 】

## 実施例 1 1

表 1 1 a に 示 す よ う な グリホサート I P A 塩 お よ び 添 加 剤 成 分 を 含 有 す る 水 性 濃 厚 組 成 物 を 調 製 し た。

組成物 1 1 - 0 1 から 1 1 - 0 4 は、以下の順番でそれぞれを水に添加することによって調製した：アルキルエーテル P l u r a f a c ( 商 標 ) A - 3 8、次にダイズレシチン ( リン脂質 9 5 %、A v a n t i )、次にアミン界面活性剤 M O N 0 8 1 8、次にステアリン酸ブチル。カップリング剤を含める場合には、他の成分を添加する前、最初に P l u r a f a c ( 商 標 ) A - 3 8 に 添 加 し た。得られた混合物を 1 0 分間ファン混合し、その後、5 0 の振盪浴に 3 0 分間入れた。最後に、M O N 0 1 3 9 の形態でのグリホサー

50

トIPA塩を添加して、組成物を徹底的に混合した。

【0211】

【表21】

表11a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%					カップリング剤
		レシチン	ステアリン酸 ブチル	Plurafac A-38	MON 0818	カップ リング剤	
11-01	220	3.0	1.5	3.0	3.0		なし
11-02	357	5.0	2.5	4.5	4.5	2.5	エタノール
11-03	357	5.0	2.5	4.5	4.5	1.0	尿素
11-04	347	5.0	2.5	4.5	4.5	1.0	N(Bu) <sub>4</sub> OH*

\* 水酸化テトラブチルアンモニウム

【0212】

組成物11-01中のグリホサート濃度は、約20重量% a.e.であり、組成物11-02から11-04中のグリホサート濃度は、約30重量% a.e.であった。

イチビ(Abutilon theophrasti, ABUTH)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、3ポット2セットで施用する6つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHの播種から17日後に行い、除草効果の評価は、施用から14日後に行った。

比較処理として、MON 0139およびRoundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表11bに示す。

【0213】

【表22】

表11b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%
		ABUTH
MON 0139	100	22
	200	38
	400	74
	600	89
	800	92
Roundup® Ultra	100	46
	200	69
	400	96
	600	98
	800	100
11-01	100	66
	200	77
	400	96
	600	98
	800	100
11-02	100	62
	200	77
	400	97
	600	99
	800	100
11-03	100	65
	200	77
	400	96
	600	99
	800	99
11-04	100	58
	200	78
	400	97
	600	97
	800	100

10

20

30

40

50

## 【0214】

## 実施例12

表12aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物12-01から12-03は、以下の手順によって調製した。ダイズレシチン(リン脂質95%、Avanti)を水に添加し、30%の最大電圧で約10分間に設定したVariacミキサーを用いてファン混合して、レシチンを水和した。その後、水中の水和レシチンにアルキルエーテル界面活性剤Plurafac(商標)A-38、アミン界面活性剤MON 0818、ステアリン酸ブチル、カップリング剤およびMON 0139の形態でのグリホサートIPA塩を添加した。得られた混合物を最初は手で振って攪拌し、その後、Turraxミキサーを用いて、20,000rpmで約8分間混合した。

## 【0215】

## 【表23】

表12a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%					カップリング剤
		レシチン	ステアリン酸ブチル	Plurafac A-38	MON 0818	カップリング剤	
12-01	354	5.0	2.5	4.5	4.5	0.5	DMSO
12-02	330	4.0	2.0	6.5	6.0	1.0	ブタノール
12-03	353	4.0	2.0	8.5	4.5	1.0	ブタノール

## 【0216】

各組成物中のグリホサート濃度は、約30重量% a.e.であった。

イチビ(Abutilon theophrasti、ABUTH)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、3ポット2セットで施用する6つの複製ポットを各処理に付した。各処理の3ポット1セットは、植物処理用組成物の施用1時間後、頭上灌漑機を用いて6mmの量の模擬雨にさらした。植物処理用組成物の施用は、ABUTHの播種から18日後に行い、除草効果の評価は、施用から14日後に行った。

比較処理として、MON 0139およびRoundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表12bに示す。

## 【0217】

## 【表24】

表12b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		雨なし	ABUTH 雨
MON 0139	250	53	27
	500	82	42
	750	96	62
Roundup® Ultra	250	88	47
	500	99	70
	750	100	87
12-01	250	97	66
	500	99	83
	750	100	95
12-02	250	97	77
	500	99	90
	750	100	97
12-03	250	95	73
	500	100	86
	750	100	96

## 【0218】

組成物12-01および12-03は、グリホサートが超高分子配列と強く会合しているか、またはそれに取込まれていると考えられるようにアルキルエーテル界面活性剤および

アミン界面活性剤が共配合されている本発明の実施態様の代表である。この実施例の温室試験において、組成物12-01から12-03は、雨が降らない状態で市販の標準物質Roundup（登録商標）Ultraによってもたらされるものより有意に向上した除草効果を示したばかりでなく、さらに、大いに向上した耐雨性を示した。

【0219】

実施例13

表13aに示すようなグリホサートIPA塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物13-01は、コロイド粒状シリカ、DegussaのAerosil（商標）380を含有し、以下のように調製した。必要量のAerosil（商標）380を濃縮グリホサートIPA塩溶液（MON 0139）に懸濁させ、得られるグリホサート/シリカ混合物が確実に均質になるように冷却しながら撹拌した。アルキルエーテル界面活性剤Plurafac（商標）A-38を加熱して、流動可能な状態にし、その後、必要重量をグリホサート/シリカ混合物に添加した。その後、必要量の水を添加して、グリホサートおよびその他の成分の濃度を所望のレベルにした。最後に、中間エマルゼンスクリーンを装着したSilverston L4RT-Aミキサーを用いて組成物を高剪断混合に付し、これを7,000rpmで3分間作動させた。組成物13-02から13-05は、実施例12の手順によって調製した。

【0220】

【表25】

表13a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%					その他の成分
		レシチン	ステアリン酸 ブチル	Plurafac A-38	MON 0818	その他	
13-01	357			10.0		1.25	Aerosil 380
13-02	347	4.0	2.0	6.5	6.5	1.0	ブタノール
13-03	349	4.0	2.0	8.5	4.5	1.0	ブタノール
13-04	335	4.0	2.0	10.0	3.0	1.0	ブタノール
13-05	357	5.0	2.0	4.5	4.5	1.0	DMSO

【0221】

各組成物中のグリホサート濃度は、約30重量% a.e. であった。

イチビ（Abutilon theophrasti、ABUTH）の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、3ポット2セットで施用する6つの複製ポットを各処理に付した。各処理につき3ポット1セットは、植物処理用組成物の施用1時間後、頭上灌注機を用いて6mmの量の模擬雨にさらした。植物処理用組成物の施用は、ABUTHの播種から22日後に行い、除草効果の評価は、施用から14日後に行った。

比較処理として、MON 0139およびRoundup（登録商標）Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表13bに示す。

【0222】

【表26】

表 13 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		雨なし	ABUTH 雨
MON 0139	300	68	10
	600	93	35
	900	97	60
Roundup® Ultra	300	78	57
	600	98	70
	900	100	73
13-01	300	98	70
	600	99	86
	900	100	98
13-02	300	97	67
	600	99	93
	900	100	93
13-03	300	98	72
	600	100	82
	900	100	97
13-04	300	98	70
	600	99	85
	900	100	93
13-05	300	100	68
	600	98	94
	900	100	98

10

20

## 【 0 2 2 3 】

組成物 13 - 0 2 および 13 - 0 5 は、グリホサートが超高分子配列と強く会合しているか、またはそれに取込まれていると考えられるようにアルキルエーテル界面活性剤およびアミン界面活性剤が共配合されている本発明の実施態様の代表である。この実施例の温室試験において、組成物 13 - 0 2 から 13 - 0 5 は、雨がないうちでの市販の標準物質 Roundup (登録商標) Ultra によってもたらされるものより有意に向上した除草効果を示したばかりでなく、さらに、大いに向上した耐雨性を示した。アルキルエーテル界面活性剤を含有するが、アミン界面活性剤は含有しない組成物 13 - 0 1 も卓越した除草効果および耐雨性を示した。

30

## 【 0 2 2 4 】

## 実施例 1 4

表 1 4 a に示すようなグリホサート IPA 塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物を調製した。

組成物 14 - 0 1 は、コロイド粒子状シリカ (Degussa の Aerosil (商標) 380 と Aerosil (商標) MOX - 80 の重量比 9 : 1 での配合物) をグリホサート IPA 塩溶液 (MON 0139) に添加し、Turrax ミキサーを用いて、氷上、20, 500 rpm で約 8 分間混合して、グリホサート/シリカ混合物を生成することによって、調製した。その後、アルキルエーテル界面活性剤、BASF の Plurafac (商標) A - 38 をグリホサート/シリカ混合物に添加し、得られた組成物を Turrax ミキサーを用いて、氷上、20, 500 rpm でさらに 5 分間混合した。組成物 14 - 0 2 から 14 - 0 5 は、実施例 1 2 の手順によって調製した。

40

## 【 0 2 2 5 】

## 【 表 2 7 】

表 14 a

濃厚 組成物	グリホサート g a.e./l	重量%					その他の成分
		レシチン	ステアリン 酸ブチル	Plurafac A-38	MON 0818	その他	
14-01	472			13.5		2.5	コロイダルシリカ
14-02	351	5.0	2.5	4.5	4.5	0.5	DMSO
14-03	354	6.0	2.5	6.5	6.5	0.5	DMSO
14-04	335	5.0	2.5	6.5	4.5 <sup>1</sup>	0.5	ブタノール
14-05	357	5.0	2.5	6.5 <sup>2</sup>	8.5	1.0	尿素

1 この組成物では、MON0818の代わりにAkzoのEthoquad (商標) 18/25を用いた。

2 この組成物では、Plurafac (商標) A-38の代わりにHeterene のHetoxol (商標) CS-25を用いた。

10

## 【0226】

組成物 14 - 01 中のグリホサート濃度は、約 40 重量% a . e . であり、組成物 14 - 02 から 14 - 05 中のグリホサート濃度は、約 30 重量% a . e . であった。

イチビ ( *Abutilon theophrasti*、ABUTH ) およびイヌビエ ( *Echinochloa crus-galli*、ECHCF ) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、それぞれの種について、3ポット2セットで施用する6つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から18日後に行い、除草効果の評価は、施用から15日後に行った。

比較処理として、MON 0139 および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 14 b に示す。

20

## 【0227】

## 【表 28】

表 1 4 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
MON 0139	100	1	4
	200	5	32
	300	45	45
	400	56	50
	500	2	59
Roundup® Ultra	100	31	44
	200	74	56
	300	88	72
	400	97	77
	500	99	86
14-01	100	53	43
	200	74	48
	300	88	64
	400	94	78
	500	99	86
14-02	100	45	40
	200	73	52
	300	92	65
	400	97	77
	500	99	89
14-03	100	55	37
	200	79	58
	300	94	72
	400	95	74
	500	99	94
14-04	100	57	41
	200	81	61
	300	93	76
	400	96	80
	500	99	88
14-05	100	57	43
	200	81	60
	300	94	79
	400	98	82
	500	99	91

10

20

30

【 0 2 2 8 】

実施例 1 5

表 1 5 a に示すような水性濃厚組成物 1 5 - 0 1 から 1 5 - 0 5 を組成物 1 4 - 0 1 から 1 4 - 0 5 とそれぞれ全く同様に調製した。

【 0 2 2 9 】

【 表 2 9 】

表 1 5 a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%					その他の成分
		レシチン	ステアリン酸 ブチル	Plurafac A-38	MON 0818	その他	
15-01	472			13.5		2.5	コロイダルシリカ
15-02	351	5.0	2.5	4.5	4.5	0.5	DMSO
15-03	354	6.0	2.5	6.5	6.5	0.5	DMSO
15-04	335	5.0	2.5	6.5	4.5 <sup>1</sup>	0.5	ブタノール
15-05	357	5.0	2.5	6.5 <sup>2</sup>	8.5	1.0	尿素

1 この組成物では、MON0818の代わりにAkzoのEthoquad (商標) 18/25を用いた。

2 この組成物では、Plurafac (商標) A-38の代わりにHeterene のHetoxol (商標) CS-25を用いた。

【 0 2 3 0 】

イチビ (Abutilon theophrasti、ABUTH)、アサガオ (Ipomoea sp.、IPOSS) およびアメリカキンゴジカ (Sida dpinosa

40

50

、S I D S P)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、それぞれの種について、3ポット2セットで施用する6つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、I P O S Sの播種から13日後、A B U T Hの播種から20日後およびS I D S Pの播種から24日後に行い、除草効果の評価は、施用から15日後に行った。比較処理として、M O N 0 1 3 9およびRoundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表15bに示す。

【0231】

【表30】

表15b

濃厚組成物	グリホサート g a.e./ha	阻害%		
		ABUTH	IPOSS	SIDSP
MON 0139	100	1	0	13
	200	29	17	30
	400	62	63	58
	600	70	68	68
	800	81	79	73
Roundup® Ultra	100	46	6	45
	200	75	60	68
	400	90	75	84
	600	98	84	83
	800	99	94	92
15-01	100	71	11	8
	200	81	46	78
	400	93	71	84
	600	98	82	90
	800	99	91	88
15-02	100	61	5	48
	200	81	67	66
	400	94	81	82
	600	97	91	88
	800	98	94	91
15-03	100	66	8	51
	200	83	59	69
	400	94	75	84
	600	98	85	90
	800	99	92	93
15-04	100	71	20	57
	200	83	69	77
	400	96	81	85
	600	98	92	92
	800	99	98	94
15-05	100	68	17	68
	200	84	54	78
	400	97	81	86
	600	98	88	92
	800	99	95	94

【0232】

実施例16

表16aに示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

組成物16-01から16-13は、すべて以下の手順によって調製した。選択した一つまたは複数の界面活性剤は、必要ならばまず加熱して、流動可能な状態にした。乾燥アンモニウムグリホサート粉末(MondantoのMON 8750)を少量の水(典型的には、他のすべての成分100gにつき約5g)および選択した界面活性剤(複数を含む)と混合して、湿潤配合物を製造し、均質で滑らかなドウ様ペーストを生ずるまでこれを混練した。1mmのオリフィスを有するスクリーンを装着したラジアル押出機にこのペーストを移し、これらのオリフィスを通して押出した。得られた押し出し物のストランドが、

10

20

30

40

50

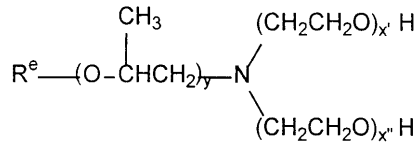
自然に切れて、短い円筒状顆粒を形成した後、これを流動層乾燥器内で乾燥した。

【0233】

この実施例の組成物に用いた界面活性剤は、アルキルエーテル界面活性剤、BASFのPlurafac(商標)A-38と、アミン界面活性剤A、BおよびC、それぞれ、ポリオキシエチレン(20)タローアミン、ポリオキシエチレン(10)N-メチルタローアンモニウムクロリド(AkzoのEthoquad(商標)T/20)および米国特許第5,750,468号に開示されているような、式：

【0234】

【化19】



(式中、R<sup>e</sup>は、C<sub>12</sub>~<sub>15</sub>アルキルであり、yは、2であり、x' + x''は、約5の平均数である)

の界面活性剤であった。

【0235】

【表31】

表16a

顆粒組成物	重量%				
	グリホサート a.e.	Plurafac A-38	アミン 界面活性剤A	アミン 界面活性剤B	アミン 界面活性剤C
16-01	68.0	21.4			
16-02	68.0	16.0	5.4		
16-03	68.0	10.7	10.7		
16-04	68.0	5.5	16.0		
16-05	68.0		21.4		
16-06	68.0	16.0		5.4	
16-07	68.0	10.7		10.7	
16-08	68.0	5.5		16.0	
16-09	68.0			21.4	
16-10	68.0	16.0			5.4
16-11	68.0	10.7			10.7
16-12	68.0	5.5			16.0
16-13	68.0				21.4

【0236】

イチビ(Abutilon theophrasti、ABUTH)およびイヌビエ(Echinochloa crus-galli、ECHCF)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から17日後に行い、除草効果の評価は、施用から20日後に行った。

比較処理として、Roundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表16bに示す。

【0237】

【表32】

10

20

30

40

表 16 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Roundup® Ultra	50	3	10
	100	50	53
	200	85	88
	300	90	100
	500	100	97
16-01	50	33	5
	100	70	53
	200	93	83
	300	98	92
	500	100	100
16-02	50	30	13
	100	70	67
	200	93	87
	300	100	96
	500	100	99
16-03	50	23	27
	100	68	70
	200	98	89
	300	99	95
	500	100	99
16-04	50	10	33
	100	67	73
	200	98	93
	300	99	99
	500	100	98
16-05	50	0	20
	100	33	57
	200	87	82
	300	95	93
	500	100	97
16-06	50	42	28
	100	72	60
	200	94	83
	300	100	95
	500	100	98
16-07	50	38	45
	100	75	70
	200	99	85
	300	100	99
	500	100	100

10

20

30

16-08	50	30	47
	100	75	70
	200	99	85
	300	99	99
	500	100	94
16-09	50	0	17
	100	33	67
	200	87	83
	300	98	94
	500	100	92
16-10	50	32	40
	100	70	57
	200	94	83
	300	100	95
	500	100	100
16-11	50	17	43
	100	67	65
	200	97	97
	300	100	97
	500	100	98
16-12	50	10	30
	100	60	65
	200	88	85
	300	98	90
	500	100	95
16-13	50	0	20
	100	10	55
	200	65	83
	300	95	83
	500	100	100

10

20

## 【0238】

この実施例の組成物のアルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤成分の間の相乗的相互作用に関する明確な証拠は見られなかった。アミン界面活性剤 A および C の場合、E C H C F に対して相乗作用は明らかであり、界面活性剤 B の場合、A B U T H および E C H C F の両方に対して相乗作用は明らかであった。

## 【0239】

## 実施例 17

表 17 a に示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水性顆粒組成物を調製した。

組成物 17 - 0 1 から 17 - 1 0 は、実施例 16 に記載した手順によって調製した。組成物 17 - 0 6 から 17 - 1 0 は、グリホサートアンモニウム塩および界面活性剤（複数を含む）に加えて、硫酸アンモニウムも含有した。これを混練中に湿潤配合物に添加した。

## 【0240】

## 【表 3 3】

表 17 a

顆粒組成物	重量%			
	グリホサート a.e.	Plurafac A-38	アミン 界面活性剤A	硫酸 アンモニウム
17-01	68.0	21.0		
17-02	68.0	15.8	5.2	
17-03	68.0	10.5	10.5	
17-04	68.0	5.2	15.8	
17-05	68.0		21.0	
17-06	34.0	10.3		50.0
17-07	34.0	7.8	2.5	50.0
17-08	34.0	5.2	5.2	50.0
17-09	34.0	2.5	7.8	50.0
17-10	34.0		10.3	50.0

40

50

## 【 0 2 4 1 】

オランダフウロ (*Erodium* sp、EROSS) および一年生イチゴツナギ (*Poa annua*、POAAN) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、EROSSおよびPOAANの播種から41日後に行い、除草効果の評価は、施用から21日後に行った。

比較処理として、Roundup (登録商標) Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表17bに示す。

## 【 0 2 4 2 】

## 【 表 3 4 】

表 1 7 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		EROSS	POAAN
Roundup® Ultra	400	50	30
	600	75	43
	800	88	60
	1000	97	75
17-01	400	77	40
	600	87	63
	800	88	68
	1000	95	70
17-02	400	70	22
	600	85	42
	800	95	53
	1000	90	75
17-03	400	78	30
	600	90	45
	800	93	65
	1000	95	68
17-04	400	72	37
	600	88	53
	800	93	53
	1000	93	67
17-05	400	52	28
	600	67	42
	800	83	42
	1000	95	63
17-06	400	68	38
	600	90	45
	800	92	48
	1000	97	62
17-07	400	80	40
	600	88	45
	800	97	62
	1000	95	68
17-08	400	82	48
	600	92	63
	800	98	60
	1000	97	78
17-09	400	73	53
	600	88	60
	800	90	63
	1000	97	88
17-10	400	55	37
	600	80	48
	800	85	48
	1000	92	62

## 【 0 2 4 3 】

10

20

30

40

50

EPOSSおよびPOAANに対するこの実施例の組成物のアルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤成分の間の相乗的相互作用は、硫酸アンモニウムを含有する組成物17-07から17-09に関して明らかであった。

【0244】

実施例18

表18aに示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

組成物18-01から18-05は、実施例16に記載した手順によって調製した。これらは組成物17-01から17-05とそれぞれ同一のものであった。

【0245】

【表35】

表18a

顆粒組成物	重量%			
	グリホサート a.e.	Plurafac A-38	アミン 界面活性剤A	硫酸 アンモニウム
18-01	68.0	21.0		
18-02	68.0	15.8	5.2	
18-03	68.0	10.5	10.5	
18-04	68.0	5.2	15.8	
18-05	68.0		21.0	

【0246】

イチビ(Abutilon theophrasti、ABUTH)およびイヌビエ(Japanese millet)、イヌビエ(Echinochloa crus-galli、ECHCF)の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から18日後に行い、除草効果の評価は、施用から17日後に行った。

比較処理として、Roundup(登録商標)Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表18bに示す。

【0247】

【表36】

表18b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Roundup® Ultra	100	18	35
	200	83	70
	300	90	82
	400	98	90
	600	98	90
18-01	100	53	35
	200	85	73
	300	97	85
	400	100	94
	600	100	98

18-02	100	68	47
	200	94	77
	300	99	87
	400	100	95
	600	100	99
18-03	100	60	50
	200	95	80
	300	97	93
	400	100	95
	600	100	98
18-04	100	40	50
	200	85	78
	300	98	90
	400	99	95
	600	100	99
18-05	100	10	27
	200	78	58
	300	83	77
	400	90	87
	600	99	93

10

## 【0248】

この実施例の組成物のアルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤成分の間の相乗的相互作用は、A B U T HおよびE C H C Fに対して明らかであった。

## 【0249】

20

## 実施例19

表19aに示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

## 【0250】

組成物19-01から19-10は、実施例16に記載した手順によって調製した。組成物19-06から19-10は、グリホサートアンモニウム塩および界面活性剤（複数を含む）に加えて、硫酸アンモニウムも含有した。これを混練中に湿潤配合物に添加した。組成物19-01から19-10は、組成物17-01から17-10と同一のものであった。

## 【0251】

30

## 【表37】

表19a

顆粒組成物	重量%			
	グリホサート a.e.	Plurafac A-38	アミン 界面活性剤A	硫酸 アンモニウム
19-01	68.0	21.0		
19-02	68.0	15.8	5.2	
19-03	68.0	10.5	10.5	
19-04	68.0	5.2	15.8	
19-05	68.0		21.0	
19-06	34.0	10.3		50.0
19-07	34.0	7.8	2.5	50.0
19-08	34.0	5.2	5.2	50.0
19-09	34.0	2.5	7.8	50.0
19-10	34.0		10.3	50.0

40

カラシナ (*Brassica juncea*、BRSJU) およびウマノチャヒキ (*Bromus tectorum*) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、BTSJUおよびBROTEの播種から25日後に行い、除草効果の評価は、施用から18日後に行った。

比較処理として、Roundup (登録商標) Ultraを希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表19bに示す。

50

【 0 2 5 2 】

【 表 3 8 】

表 1 9 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		BRSJU	BROTE
Roundup® Ultra	300	48	90
	400	62	93
	600	65	97
	800	88	99
19-01	300	42	52
	400	60	67
	600	80	85
	800	83	90
19-02	300	43	53
	400	75	88
	600	77	98
	800	88	99
19-03	300	50	82
	400	82	93
	600	90	97
	800	92	100

10

19-04	300	52	80
	400	75	94
	600	85	98
	800	92	100
19-05	300	52	63
	400	68	90
	600	87	98
	800	87	98
19-06	300	57	65
	400	58	85
	600	78	93
	800	85	99
19-07	300	47	57
	400	73	83
	600	83	97
	800	90	100
19-08	300	52	88
	400	82	94
	600	85	98
	800	92	99
19-09	300	62	80
	400	78	87
	600	92	99
	800	90	100
19-10	300	47	60
	400	63	87
	600	83	97
	800	92	99

20

30

40

【 0 2 5 3 】

この実施例の組成物のアルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤成分の間の相乗的相互作用は、BRSJUおよびBROTEに対して明らかであった。

【 0 2 5 4 】

実施例 2 0

表 2 0 a に示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

組成物 2 0 - 0 1 から 2 0 - 0 4 は、実施例 1 6 に記載した手順によって調製した。これらの組成物は、グリホサートアンモニウム塩および界面活性剤（複数を含む）に加えて、約 8 0 0 0 の平均分子量を有するポリエチレングリコール（PEG 8 0 0 0）を含有し

50

た。これを加熱して流動可能な状態にし、混練中に湿潤配合物に添加した。この実施例の組成物に用いる界面活性剤は、以下のアルキルエーテル界面活性剤であった：1分子あたり平均約10個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンステアリルエーテル（ステアレス-10、ICIのBr i j（商標）76）および1分子あたり平均約20個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンステアリルエーテル（ステアレス-20、HenkelのEmthox（商標）5888）。比較のために、その他の非イオン性界面活性剤：1分子あたり平均約10個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンドデシルフェノール（POE（10）ドデシルフェノール）または1分子あたり平均約20個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンソルビタンラウリルエステル（ICIのTwee n（商標）20）を含有する組成物を含めた。すべての組成物において、アミン界面活性剤は、1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンN-メチルタローアンモニウムクロリド（AkzoのEthoquad（商標）T/25）または1分子あたり平均約15個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンN-メチルステアリルアンモニウムクロリド（AkzoのEthoquad（商標）18/25）のいずれかであった。これら二つのアミン界面活性剤は非常に類似しており、Ethoquad（商標）18/25ではタローアルキル基の水素添加によって、ステアリル部分が生じることしか異なることはお判りいただけよう。

【0255】

【表39】

表20a

顆粒組成物	重量%				非イオン性界面活性剤
	グリホサート a.e.	非イオン性界面活性剤	Ethoquad T/25	PEG 8000	
20-01	64.5	10.0	20.0	10.0	Tween 20
20-02	64.5	10.0	20.0 <sup>1</sup>	10.0	POE(10)ドデシルフェノール
20-03	64.5	10.0	20.0	10.0	ステアレス-10
20-04	64.5	10.0	20.0	10.0	ステアレス-20

<sup>1</sup> Ethoquad（商標）T/25の代わりにEthoquad（商標）18/25を用いた。

【0256】

イチビ（Abutilon theophrasti、ABUTH）およびイヌビエ（Japanese millet）、イヌビエ（Echinochloa crus-galli、ECHCF）の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTHおよびECHCFの播種から18日後に行い、除草効果の評価は、施用から17日後に行った。

比較処理として、Roundup（登録商標）Ultraを希釈し、施用した。実施例16の16-05も比較処理として含めた。各処理のすべての複製について平均した結果を表20bに示す。

【0257】

【表40】

表 20 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Roundup® Ultra	100	20	30
	200	78	65
	300	97	72
	500	100	96
16-05	100	5	30
	200	63	63
	300	85	70
	500	100	77
20-01	100	2	43
	200	72	67
	300	96	73
	500	100	82
20-02	100	5	13
	200	67	68
	300	85	75
	500	99	77
20-03	100	12	40
	200	88	67
	300	96	73
	500	99	92
20-04	100	75	45
	200	98	73
	300	99	77
	500	100	90

10

20

## 【 0 2 5 8 】

本発明の組成物 20 - 03 および 20 - 04 は、特に A B U T H に対して、組成物 20 - 01 または 20 - 02 各々より大きな除草効果を示した。アルキルエーテル界面活性剤ステアレス - 20 およびアミン界面活性剤 E t h o q u a d ( 商 標 ) T / 2 5 を含有する組成物 20 - 04 の優れた除草効果が特に注目された。

## 【 0 2 5 9 】

## 実施例 2 1

表 2 1 a に示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

30

組成物 21 - 01、21 - 03 および 21 - 04 は、実施例 16 に記載した手順によって調製した。これらは、組成物 20 - 01、20 - 03 および 20 - 04 とそれぞれ同一のものであった。

## 【 0 2 6 0 】

## 【 表 4 1 】

表 2 1 a

顆粒組成物	重量%				非イオン性界面活性剤
	グリホサート a.e.	非イオン性 界面活性剤	Ethoquad T/25	PEG 8000	
21-01	64.5	10.0	20.0	10.0	Tween 20
21-03	64.5	10.0	20.0	10.0	ステアレス-10
21-04	64.5	10.0	20.0	10.0	ステアレス-20

40

## 【 0 2 6 1 】

ニワクサ ( K o c h i a s c o p a r i a、K C H S C )、ウマノチャヒキ ( B r o m u s t e c t o r u m ) および冬コムギ ( T r i t i c u m a e s t i v u m、T R Z A W ) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、K C H S C については、6つの複製ポットを各処理に付した。植物処理用組成物の施用は、K C H S C の播種から 35 日後、B R O T E の播種から 27 日後、および T R Z A W の播種から 14 日後に行った。除草効果の評価は、K C H S C に施用から 15 日後、B R O T E および T R Z A

50

Wに施用から21日後に行った。

比較処理として、Roundup（登録商標）Ultraを希釈し、施用した。実施例16の16-05も比較処理として含めた。各処理のすべての複製について平均した結果を表21bに示す。

【0262】

【表42】

表21b

濃厚組成物	グリホサート施用量			
	g a.e./ha	KCHSC	BROTE	TRZAW
Roundup® Ultra	100	37	46	33
	200	83	86	76
	400	99	92	97
	600	100	99	97
16-05	100	36	12	50
	200	82	63	81
	400	98	82	99
	600	100	100	100
21-01	100	35	28	59
	200	84	74	87
	400	99	92	100
	600	100	98	100
21-03	100	43	36	56
	200	77	90	94
	400	96	99	98
	600	100	100	99

10

21-04	100	44	43	37
	200	92	73	91
	400	100	99	100
	600	100	100	100

20

【0263】

実施例22

表22aに示すようなグリホサートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

30

組成物22-01から22-17は、実施例16に記載した手順によって調製した。すべての組成物は、実施例16のアミン界面活性剤を含有した。この実施例の組成物に用いたアルキルエーテル界面活性剤は、1分子あたり平均約4個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>12</sub>アルキル）エーテル（ラウレス-4、ICIのBrij（商標）30）、1分子あたり平均約12個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>12</sub>アルキル）エーテル（ラウレス-12、HenkelのTrycol（商標）5967）、1分子あたり平均約23個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>12</sub>アルキル）エーテル（ラウレス-23、HenkelのTrycol（商標）5964）、1分子あたり平均約5個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>18</sub>アルキル）エーテル（ステアレス-5）、1分子あたり平均約10個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>18</sub>アルキル）エーテル（ステアレス-12、ICIのBrij（商標）76）、1分子あたり平均約20個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>18</sub>アルキル）エーテル（ステアレス-20、HenkelのEmthox（商標）5888）、1分子あたり平均約30個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>18</sub>アルキル）エーテル（ステアレス-30、HetereneのSTA-30）、および1分子あたり平均約23個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン（C<sub>16-18</sub>アルキル）エーテル（セテアレス-23、BASFのPlurafac（商標）A-38）であった。

40

【0264】

【表43】

50

表 2 2 a

顆粒組成物	重量%			アルキルエーテル 界面活性剤
	グリホサート a.e.	アルキルエーテル 界面活性剤	アミン 界面活性剤A	
22-01	68.0	21.4		ラウレス-4
22-02	68.0	10.7	10.7	ラウレス-4
22-03	68.0	21.4		ラウレス-1 2
22-04	68.0	10.7	10.7	ラウレス-1 2
22-05	68.0	21.4		ラウレス-2 3
22-06	68.0	10.7	10.7	ラウレス-2 3
22-07	68.0	21.4		ステアレス-5

10

22-08	68.0	10.7	10.7	ステアレス-5
22-09	68.0	21.4		ステアレス-1 0
22-10	68.0	10.7	10.7	ステアレス-1 0
22-11	68.0	21.4		ステアレス-2 0
22-12	68.0	10.7	10.7	ステアレス-2 0
22-13	68.0	21.4		ステアレス-3 0
22-14	68.0	10.7	10.7	ステアレス-3 0
22-15	68.0	21.4		ステアレス-2 3
22-16	68.0	10.7	10.7	ステアレス-2 3
22-17	68.0		21.4	なし

## 【 0 2 6 5 】

20

イチビ (A butilon theophrasti、ABUTH) およびイヌビエ (E chinochloa crus-galli、ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH および ECHCF の播種から 17 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 15 日後に行った。

比較処理として、Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 2 2 b に示す。アルキルエーテル界面活性剤とアミン界面活性剤の配合物が誘導する除草効果が、同じ全界面活性剤濃度のアルキルエーテル界面活性剤単独またはアミン界面活性剤単独のものと同程度からそれより良好なものである場合、その配合物についての平均阻害パーセント nn は、\* \* nn \* \* というように強調する。

30

## 【 0 2 6 6 】

## 【 表 4 4 】

表 2 2 b

濃厚組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%	
		ABUTH	ECHCF
Roundup® Ultra	100	50	28
	200	85	40
	300	99	57
	500	100	89
22-01	100	0	3
	200	10	8
	300	70	33
	500	80	45
22-02	100	0	** 37 **
	200	63	22
	300	80	55
	500	90	** 90 **

40

22-03	100	0	30
	200	60	38
	300	82	53
	500	90	90
22-04	100	** 27 **	** 33 **
	200	78	40
	300	** 92 **	55
	500	98	** 93 **
22-05	100	5	33
	200	73	43
	300	90	57
	500	95	92
22-06	100	2	** 35 **
	200	73	42
	300	87	** 73 **
	500	94	** 100 **
22-07	100	0	8
	200	8	27
	300	32	43
	500	55	47
22-08	100	3	** 37 **
	200	** 85 **	** 48 **
	300	** 96 **	** 70 **
	500	** 99 **	** 95 **
22-09	100	5	20
	200	78	32
	300	88	47
	500	92	97
22-10	100	** 55 **	** 38 **
	200	** 83 **	** 47 **
	300	** 93 **	** 73 **
	500	** 99 **	** 100 **
22-11	100	53	35
	200	87	47
	300	96	75
	500	99	98
22-12	100	** 78 **	** 35 **
	200	** 93 **	45
	300	** 98 **	** 87 **
	500	** 100 **	97
22-13	100	73	30
	200	87	38
	300	97	57
	500	99	95
22-14	100	** 77 **	** 33 **
	200	** 87 **	** 47 **
	300	** 97 **	** 62 **
	500	** 99 **	** 95 **
22-15	100	75	28
	200	89	45
	300	98	77
	500	100	95
22-16	100	** 77 **	** 35 **
	200	88	** 47 **
	300	** 98 **	** 88 **
	500	99	** 99 **
22-17	100	13	27
	200	80	42
	300	83	60
	500	99	73

10

20

30

40

## 【 0 2 6 7 】

組成物 22 - 0 1 から 22 - 0 6 の場合のようにアルキルエーテル界面活性剤が比較的短鎖 ( C <sub>1 2</sub> ) のアルキル部分を有する場合、アミン界面活性剤 A との配合物がアルキルエ

50

ーテルまたはアミンのものと少なくとも同等からそれより良好な除草効果を誘導するという幾つかの突発的な例が観察されたことは、表 2 2 b から気付かれよう。しかし、より長鎖 (C<sub>16</sub> - C<sub>18</sub>) のアルキルエーテルに関して、アミン界面活性剤 A との配合物の同等から勝った効能 (いずれかの界面活性剤単独のものと比較して) は、例外ではなく法則であった。一部の例には、非常に劇的な相乗的相互作用の証拠があった。最も大きな度合いの除草効果は、1 分子あたり 20 個以上のオキシエチレン単位を有する C<sub>16</sub> - C<sub>18</sub> アルキルエーテルで得られた。

【0268】

実施例 2 3

表 2 3 a に示すようなグリホサート IPA 塩および添加剤成分を含有する水性濃厚組成物 23 - 01 および 23 - 02 を調製した。Shell の Neodol (商標) 25 - 9 は、1 分子あたり平均約 9 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン C<sub>13</sub> アルキルエーテル界面活性剤である。ICI の Brij (商標) 56 は、1 分子あたり平均約 10 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレンセチルエーテル界面活性剤である。Rhodia の Rhodaquat (商標) DAET は、オキシエチレン単位を有さない第四ジタローアルキルアンモニウム界面活性剤である。Akzo の Ethoquad (商標) T/25 は、1 分子あたり平均約 15 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン第四タローアルキルトリメチルアンモニウムクロリド界面活性剤である。組成物 23 - 01 および 23 - 02 は、得られる混合物が均質になるまで加熱および攪拌しながら成分を混合することによって調製した。組成物 23 - 01 は、比較だけのために含めた。

【0269】

【表 4 5】

表 2 3 a

濃厚組成物	グリホサート g a.e./l	重量%			
		Neodol 25-9	Brij 56	Rhodaquat DAET	Ethoquad T/25
23-01	345	7.5		7.5	
23-02	349		7.5		7.5

【0270】

各組成物 23 - 01 および 32 - 02 中のグリホサート濃度は、約 30 重量% a . e . であった。

イチビ (Abutilon theophrasti、ABUTH) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理したが、但し、3 ポット 2 セットで施用する 6 つの複製ポットを各処理に付した。各処理の 3 ポット 1 セットは、植物処理用組成物の施用 1 時間後、頭上灌注機を用いて 6 mm の量の模擬雨にさらした。植物処理用組成物の施用は、ABUTH の播種から 18 日後に行い、除草効果の評価は、施用から 14 日後に行った。

組成物 23 - 01 および 32 - 02 に加えて、実施例 12 の組成物 12 - 01 をこの実施例に含めた。比較処理として、MON 0139 および Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。比較処理として、MON 0139 を希釈し、0.5 重量% のオルガノシロキサン界面活性剤、Witco Corp. の O Si Specialties Group の Silwet (商標) L - 77 とのタンク混合物の状態で施用する処理も含めた。各処理のすべての複製について平均した結果を表 2 3 b に示す。

【0271】

【表 4 6】

10

20

30

40

表 2 3 b

組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%		ABUTH
		雨なし	雨	
MON 0139	250	19	0	
	500	63	0	
	750	78	9	
Roundup® Ultra	250	78	43	
	500	98	50	
	750	98	69	
MON 0139 + Silwet L-77	250	75	69	
	500	94	95	
	750	98	97	
12-01	250	82	53	
	500	98	80	
	750	99	80	
23-01	250	60	10	
	500	92	46	
	750	98	62	
23-02	250	84	68	
	500	98	94	
	750	98	98	

10

## 【 0 2 7 2 】

本発明の組成物 2 3 - 0 2 は、この試験において、耐雨性基準、MON 0 1 3 9 + S i l w e t ( 商 標 ) L - 7 7 のものと同等の著しく高い耐雨度を示した。本発明の組成物 1 2 - 0 1 も市販標準物質、Roundup ( 登録商標 ) U l t r a のものより著しく優れた耐雨性を示した。比較組成物 2 3 - 0 1 は、非常に劣った耐雨性を示した。この実施例の試験を繰り返した。A B U T H の播種から 1 8 日後に植物処理用組成物の施用を再び行い、施用から 1 4 日後に除草効果の評価を行った。各処理のすべての複製について平均した結果を表 2 3 c に示す。

20

## 【 0 2 7 3 】

## 【 表 4 7 】

表 2 3 c

組成物	グリホサート施用量 g a.e./ha	阻害%		ABUTH
		雨なし	雨	
MON 0139	250	2	0	
	500	73	0	
	750	81	2	
Roundup® Ultra	250	87	53	
	500	98	65	
	750	98	67	
MON 0139 + Silwet L-77	250	88	93	
	500	99	98	
	750	99	99	
12-01	250	78	55	
	500	97	81	
	750	99	91	
23-01	250	84	12	
	500	98	63	
	750	87	63	
23-02	250	87	67	
	500	98	94	
	750	99	96	

30

40

## 【 0 2 7 4 】

この反復試験の結果は、表 2 3 b に示した最初の試験の結果と一致した。

## 【 0 2 7 5 】

実施例 2 4

50

7つの液体水性濃厚組成物24-01から24-07のサンプルをWuらの前掲引用書中のパルス場傾斜法を用いて、プロトンNMR分光分析法により試験した。組成物の添加剤成分は、表24に列挙するとおりであった。各組成物は、グリホサートイソプロピルアンモニウム塩を30重量% a.e. の濃度で含有した。組成物は、本明細書中、上で説明した手順によって調製した。組成物24-04の3つの異なる調合および組成物24-05の2つの異なる調合を研究した。アルキルエーテル界面活性剤は、すべての組成物においてBASFのPlurafac(商標)A-38であったが、但し、24-01では、非常に類似したHetereneのHetroxol(商標)CSを用いた。すべての組成物において、アミン界面活性剤は、MonsantoのMON 0818であった。カップリング剤は、すべての組成物においてDMSOであったが、24-01は、DMSOの代わりに尿素を用いた。

10

【0276】

【表48】

表24

濃厚組成物	重量%				
	アルキルエーテル界面活性剤	アミン界面活性剤	ダイズレシチン	ステアリン酸ブチル	カップリング剤
24-01	4.5	8.5	5.0	2.5	1.0
24-02	6.0	6.0	6.0	2.5	0.5
24-03	4.5	6.0	6.0	2.5	0.5
24-04	4.5	4.5	5.0	2.5	0.5
24-05	4.5	4.5	6.0	3.0	0.5
24-06	4.5	4.5	6.0	2.5	0.5

20

24-07	6.0	4.5	6.0	2.5	0.5
-------	-----	-----	-----	-----	-----

【0277】

20アンペアの電流パルスに対応して約250 Gauss/cmのサンプルを横断する線状の場の勾配を生ずることができる拡散コイルを有するNalorac拡散プローブを用いて、各組成物のサンプル200~500 μLを拡散測定用NMR管に入れた。Varian Unity 400分光器のコンソール内のPerforma勾配ドライバーによって、電流パルスを発生させた。プロトンNMRスペクトルは、二極性パルスおよびLEDSPパルス配列を用いて増加する場の勾配の関数として記録した。

30

【0278】

グリホサート共振振幅を各スペクトルにおいて測定し、振幅の自然対数を場の勾配の二乗に対してプロットした。組成物24-04に関するこうしたプロットの例図を図1に示す。グリホサートの「遊離」プールおよび「取込まれた」プールに対応する二つの直線成分は、「取込まれた」プールを測定することができなかった24-01を除き、すべての組成物ではっきりと区別することができた。「取込まれた」プールを有する組成物において、このプールの拡散係数は、 $10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ 程度の極めて低いものであった。これは、これらの組成物における超分子構造によるグリホサートの強い結合または取込みを示している。組成物24-01を除き、「取込まれた」プールには、存在するすべてのグリホサートの約20%~約80%が含まれた。

40

【0279】

「取込まれた」プールにおけるグリホサートの割合は、レシチンのMON 0818に対する重量比に相関することがわかった。図2に示すように、レシチンのMON 0818に対する比率が高いほど、「取込まれた」プールにおけるグリホサートの割合が大きかった。

【0280】

実施例25

表25aに示すようなグリホサートアンモニウム塩、グリホシネートアンモニウム塩および添加剤成分を含有する固体水溶性顆粒組成物を調製した。

50

組成物 25-01 から 20-06 は、所望の量のグルホシネートアンモニウム塩の湿潤配合物への添加を伴う実施例 16 に記載した手順によって調製した。

【0281】

【表49】

表 25 a

顆粒組成物	重量%			
	グリホサート a.e.	グルホシネート a.e.	Plurafac A-38	アミン 界面活性剤 A
25-01	66.1	2.0		21.0
25-02	66.1	2.0	10.5	10.5
25-03	66.1	2.0	5.3	15.7
25-04	65.0	3.0		21.0
25-05	65.0	3.0	10.5	10.5
25-06	65.0	3.0	5.3	15.7

10

【0282】

イチビ (*Abutilon theophrasti*, ABUTH) およびイヌビエ (*Echinochloa crus-galli*, ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH および ECHCF の播種から 17 日後に行った。初期害徴の評価は、施用から 3 日後 (days after application: DAA) に行い、除草効果の評価は、施用から 17 日後に行った。

20

比較処理として、Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 25 b に示す。

【0283】

【表50】

表 25 b

濃厚組成物	グリホサート及びグルホシネート 施用量 g a.e./ha	阻害%			
		ABUTH		ECHCF	
		3 DAA	17 DAA	3 DAA	17 DAA
Roundup® Ultra	100 + 0	0	34	0	37
	200 + 0	0	81	0	76
	400 + 0	0	97	0	93
	600 + 0	0	99	0	94
25-01	100 + 3	0	30	0	36
	200 + 6	0	76	0	75
	400 + 12	2	96	0	86
	600 + 18	14	98	6	93
25-02	100 + 3	0	71	0	44
	200 + 6	0	92	0	77
	400 + 12	10	95	1	88
	600 + 18	16	96	6	91
25-03	100 + 3	0	66	0	49
	200 + 6	0	89	0	81
	400 + 12	12	97	8	98
	600 + 18	17	99	14	93

30

40

25-04	100+4.5	0	32	0	35
	200+9	0	80	0	77
	400+18	12	92	4	83
	600+27	17	91	9	85
25-05	100+4.5	0	67	0	47
	200+9	5	86	0	75
	400+18	13	91	9	88
	600+27	20	94	17	92
25-06	100+4.5	0	70	0	53
	200+9	8	90	0	83
	400+18	14	91	11	85
	600+27	18	91	15	88

10

## 【0284】

本発明の組成物25-02および25-03は、アミン界面活性剤Aを含有したがアルキルエーテル界面活性剤Plurafac(商標)A-38は含有しなかった組成物25-01より優れた除草効果をもたらした。同様に、本発明の組成物25-05および25-06は、組成物25-04より優れた除草効果をもたらした。

## 【0285】

## 実施例26

表26aに示すようなグリホサートイソプロピルアンモニウム塩、オキシフルオルフェンおよび界面活性剤を含有する水性懸濁組成物を調製した。Surfactant Jは、Roundup(登録商標)Ultraの配合に用いられるタローアミン系界面活性剤である。

20

## 【0286】

組成物26-01および26-02を以下の手順によって調製した。最初に、Surfactant Jの10重量%水溶液を調製した。広口ビン内のこの溶液に、計算した量のオキシフルオルフェン粉末、工業銘柄(95%)を添加して、オキシフルオルフェン活性成分(a.i.)の41重量%懸濁液を生じた。その後、このビンの代わりにEigermilを用いて、10の冷却浴中で、このミル内の懸濁液を2時間、3000rpmで粉碎した。得られた粉碎オキシフルオルフェンの粒子サイズ分析は、2.5μmの体積平均径および1.7μmの体積中央径を示した。この場合の界面活性剤、Surfactant Jは、粉碎操作を助長するために存在した。

30

## 【0287】

MON 0139(46重量%グリホサートa.e.)の形態でのグリホサートイソプロピルアンモニウム塩は、12:1のグリホサートa.e.対オキシフルオルフェンa.i.の重量比で、上記のように調製した41%粉碎オキシフルオルフェンと混合した。(粉碎オキシフルオルフェンが約6重量%のSurfactant Jを含有する時、少量のこの界面活性剤は、オキシフルオルフェンと共に最終組成物に与えられるが、この量は、除草効果に与える影響が無視できるほど少ないものと考えられる。)表26aに示すような選択された界面活性剤、コロイド粒子状シリカ(DegussaのAerosil(商標)380とAerosil(商標)MOX-80の配合物)、ポリエチレングリコール、亜硫酸ナトリウムおよび水も、下記の量(百分率は、重量でのものである)で添加した

40

MON 0139(46%グリホサートa.e.)	67.00%
オキシフルオルフェン(41%粉碎)	6.30%
Aerosil(商標)380	1.45%
Aerosil(商標)MOX-80	0.25%
界面活性剤(複数を含む)およびカップリング剤	(表26a参照)
亜硫酸ナトリウム	0.20%
水	100.00%まで

上記成分を5分間または均質な懸濁液を生成するまで徹底的に攪拌した。AkzoのEthoquad(商標)T/20は、1分子あたり平均10個のオキシエチレン単位を有す

50

るポリオキシエチレン第四タロ-アルキルメチルアンモニウムクロリドである。B A S F の P l u r a f a c ( 商 標 ) A - 3 8 は、1 分子あたり平均 2 7 個のオキシエチレン単位を有するポリオキシエチレン C<sub>16-18</sub> アルキルエーテルである。組成物 2 6 - 0 1 は、比較のみのために含めた。

【 0 2 8 8 】

【 表 5 1 】

表 2 6 a

濃厚組成物	重量%					
	グリホサート a.e.	オキシフル オルフェン a.i.	Plurafac A-38	Ethoquad T/20	Surfactant J <sup>1</sup>	カップ リング剤
26-01	30.8	2.6			14.5	0.2 <sup>2</sup>
26-02	30.8	2.6	3.0	7.0		1.0 <sup>3</sup>

1 粉砕中にオキシフルオルフェンに添加される少量は除外する。

2 モノエタノールアミン

3 プロピレングリコール

【 0 2 8 9 】

オランダフウ口 ( E r o d i u m s p、E R O S S ) および一年生イチゴツナギ ( P o a a n n u a、P O A A N ) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、E R O S S および P O A A N の播種から 3 6 日後に行った。初期害徴の評価は、施用から 4 日後 ( d a y s a f t e r a p p l i c a t i o n : D A A ) に行い、除草効果の評価は、施用から 2 0 日後に行った。

比較処理として、単独、およびオキシフルオルフェンの乳剤である R o h m & H a a s . の G o a l ( 登 録 商 標 ) 2 X L 除草剤とのタンク混合物の両方の状態の R o u n d u p ( 登 録 商 標 ) U l t r a を希釈し、施用した。タンク混合物は、1 2 : 1 のグリホサート a . e . 対オキシフルオルフェン a . i . 重量比を得るように調製した。各処理のすべての複製について平均した結果を表 2 6 b に示す。

【 0 2 9 0 】

【 表 5 2 】

表 2 6 b

濃厚組成物	グリホサート及びオキシフルオルフェン 施用量 g a.e., a.i./ha	阻害%			
		EROSS		POAAN	
		4 DAA	20 DAA	4 DAA	20 DAA
Roundup® Ultra	400 + 0	0	57	0	50
	600 + 0	0	72	0	63
	800 + 0	3	93	0	78
	1000 + 0	8	93	2	88
Roundup® Ultra + Goal® 2XL タンクミックス	400 + 33	10	33	12	63
	600 + 50	17	45	13	65
	800 + 67	20	65	17	68
	1000 + 83	20	72	18	75
26-01	400 + 33	8	22	5	48
	600 + 50	18	53	10	73
	800 + 67	22	82	10	75
	1000 + 83	30	92	10	75
26-02	400 + 33	10	50	8	58
	600 + 50	15	60	8	68
	800 + 67	20	90	8	77
	1000 + 83	25	93	8	83

【 0 2 9 1 】

オキシフルオルフェンの添加を伴うこの試験では、特に E R O S S に対して、グリホサートの除草効果への有意な拮抗作用が見られた。本発明の組成物 2 6 - 0 2 は、タンク混合物に比べて拮抗作用を大いに低下させると共に、組成物 2 6 - 0 1 に比べて小さい拮抗作用も示した。

【 0 2 9 2 】

10

20

30

40

50

## 実施例 27

表 26 a に示すようなグリホサートアンモニウム塩、オキシフルオルフェンおよび界面活性剤を含有する固体水分散性顆粒組成物を調製した。

組成物 27 - 01 および 27 - 02 を以下の手順によって調製した。フードミキサー内で、表 27 a に示すような乾燥アンモニウムグリホサート粉末 (Monsanto の MON 8750)、少量の水 (その他すべての成分 100 g につき約 5 g)、界面活性剤および硫酸アンモニウム、ならびに実施例 26 で説明したように調製した 41% 粉砕オキシフルオルフェンを配合した。グリホサート a . e . のオキシフルオルフェン a . i . に対する重量比は、12 : 1 であった。完全に配合した後、実施例 16 で説明したように、得られた湿潤配合物を押し出し、乾燥した。

## 【0293】

組成物 27 - 03 および 27 - 04 を類似の手順で調製したが、但し、41% 粉砕オキシフルオルフェンの代わりに、オキシフルオルフェン (工業銘柄、95%) を溶解して、湿潤配合物に添加した。添加した水の量は、その他すべての成分 100 g につき 7 ~ 8 g に増量した。

## 【0294】

## 【表 53】

表 27 a

顆粒組成物	重量%				
	グリホサート a.e.	オキシフル オルフェン a.i.	Plurafac A-38	Ethoquad T/20	硫酸 アンモニウム
27-01	37.0	3.1	6.25	6.25	40.5
27-02	37.0	3.1	3.12	9.38	40.5
27-03	37.0	3.1	6.25	6.25	40.5
27-04	37.0	3.1	3.12	9.38	40.5

## 【0295】

イチビ (Abutilon theophrasti、ABUTH) およびイヌビエ (Echinochloa crus-galli、ECHCF) の草を栽培し、上記の標準手順によって処理した。植物処理用組成物の施用は、ABUTH および ECHCF の播種から 18 日後に行った。初期害徴の評価は、施用から 2 日後 (days after application : DAA) に行い、除草効果の評価は、施用から 18 日後に行った。

比較処理として、単独、およびオキシフルオルフェンの乳剤である Rohm & Haas . の Goal (登録商標) 2XL 除草剤とのタンク混合物の両方の状態の Roundup (登録商標) Ultra を希釈し、施用した。タンク混合物は、12 : 1 のグリホサート a . e . 対オキシフルオルフェン a . i . 重量比を得るように調製した。この試験には、実施例 26 の組成物 26 - 01 (比較処理として) および 26 - 02 も含めた。各処理のすべての複製について平均した結果を表 27 b に示す。

## 【0296】

## 【表 54】

表 27 b

濃厚組成物	グリホサート及びオキシフルオルフェン施用量 g a.e.. a.i./ha	阻害%			
		ABUTH		ECHCF	
		2 DAA	18 DAA	2 DAA	18 DAA
Roundup® Ultra	100 + 0	0	53	0	37
	200 + 0	0	83	0	72
	400 + 0	0	96	0	78
	600 + 0	0	100	0	87
Roundup® Ultra + Goal® 2XL タンクミックス	100 + 8	12	17	8	10
	200 + 17	18	57	12	70
	400 + 33	27	72	18	77
	600 + 50	32	77	25	82
26-01	100 + 8	10	47	7	30
	200 + 17	15	70	10	73
	400 + 33	18	85	17	78
	600 + 50	20	87	18	87
26-02	100 + 8	8	70	7	70
	200 + 17	13	90	10	75
	400 + 33	15	98	13	82
	600 + 50	17	99	20	90
27-01	100 + 8	7	53	5	68
	200 + 17	12	78	7	75
	400 + 33	13	88	12	82
	600 + 50	18	90	17	94
27-02	100 + 8	5	67	5	72
	200 + 17	8	83	12	75
	400 + 33	12	95	15	85
	600 + 50	15	96	15	90
27-03	100 + 8	10	45	3	65
	200 + 17	18	78	10	75
	400 + 33	22	85	15	80
	600 + 50	22	93	18	83
27-04	100 + 8	7	80	3	72
	200 + 17	10	90	10	75
	400 + 33	13	98	12	82
	600 + 50	15	99	17	89

10

20

## 【 0 2 9 7 】

オキシフルオルフェンの添加を伴うこの試験では、特に A B U T H に対して、グリホサートの除草効果への有意な拮抗作用が見られた。本発明の組成物 26 - 02 および 27 - 01 から 27 - 04 は、タンク混合物に比べて拮抗作用を大いに低下させると共に、組成物 26 - 01 に比べて小さい拮抗作用も示した。

30

## 【 0 2 9 8 】

本発明の特定の実施態様に関する上記記載が、本発明の可能なすべての実施態様の完全に網羅しているとは考えていない。当業者には、本発明の範囲内で、本明細書に記載した特定の実施態様に変更を施すことができることはお分かりいただけよう。

## 【 図面の簡単な説明 】

【 図 1 】 実施例 24 において説明するような、本発明の組成物 24 - 04 に関する場の勾配の二乗、「勾配<sup>2</sup>」に対する m グリホサートプロトン NMR 共鳴振幅の自然対数「ln ( 振幅 )」のプロット図である。プロットしたデータは曲線を形成し、これは、二つの直線成分、グリホサートの遊離プールを表わすものとグリホサートの取込まれたプールを表わすものに分解することができる。

40

【 図 2 】 実施例 24 において説明するような、レシチン対 MON 0818 の重量比に対する、取込まれたプールにおけるグリホサートの割合のプロット図である。

【図1】

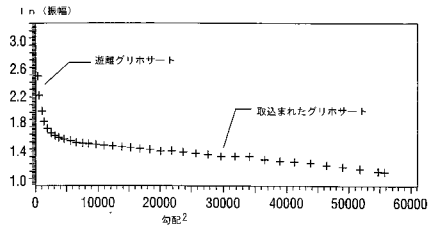


FIG. 1

【図2】

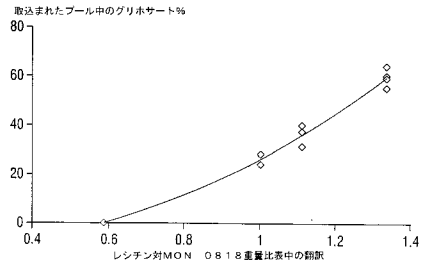


FIG. 2

フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

A 0 1 P 13/00

- (72)発明者 デイシユレブスキ, アンドリユー・デー  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 0 4 3、メリーランド・ハイツ、オータム・デイル・コート・1  
2 2 1
- (72)発明者 ジョーンズ, クロード・アール  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 1 4 6、セント・ルイス、クレストッド・ビュー・ドライブ・1  
2 0 6
- (72)発明者 クレイマー, リチャード・エム  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 0 1 7、チエスタフィールド、キングズマン・サークル・1 5 2  
3 8
- (72)発明者 パラス, ノーマン・アール  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 0 3 4、フロリサント、ジエイムズタウン・ファーム・ドライブ  
・ 2 1
- (72)発明者 ラドキー, ロドニー・オー  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 3 0 3、セント・チャールズ、グラン・プリ・ドライブ・1 1 1  
9
- (72)発明者 ワード, アンソニー・ジエイ・アイ  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 1 3 1、フロントナツク、ファイアスロン・ドライブ・2 0 5 6
- (72)発明者 ギレスピ, ジェーン・エル  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 1 3 0、セント・ルイス、コーネル・7 2 2 9
- (72)発明者 シュイ, シヤオトン・ツイ  
アメリカ合衆国、ミズーリ・6 3 1 4 6、セント・ルイス、マストン・レーン・1 2 4 4 5

審査官 今井 周一郎

- (56)参考文献 国際公開第9 8 / 0 1 7 1 0 9 (WO, A 1)  
国際公開第9 8 / 0 1 7 1 0 8 (WO, A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A01N 57/20