(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第4076582号
(P4076582)
(45)発行日　平成20年4月16日(2008.4.16)　(24)登録日　平成20年2月8日(2008.2.8)

(51)Int.Cl.		F I		
A01N 37/34	*(2006.01)*	A01N	37/34	107
A01N 33/18	*(2006.01)*	A01N	33/18	B
A01N 33/22	*(2006.01)*	A01N	33/22	
A01P 13/02	*(2006.01)*	A01P	13/02	

請求項の数 8　(全 17 頁)

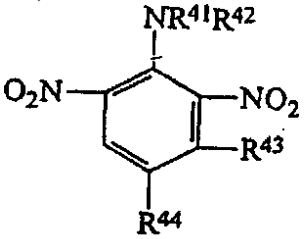
(21)出願番号	特願平9-523292
(86)(22)出願日	平成8年12月18日(1996.12.18)
(65)公表番号	特表2000-502113(P2000-502113A)
(43)公表日	平成12年2月22日(2000.2.22)
(86)国際出願番号	PCT/EP1996/005678
(87)国際公開番号	WO1997/023134
(87)国際公開日	平成9年7月3日(1997.7.3)
審査請求日	平成15年11月14日(2003.11.14)
(31)優先権主張番号	9526436.2
(32)優先日	平成7年12月22日(1995.12.22)
(33)優先権主張国	英国(GB)

(73)特許権者
ローヌ・プーラン・アグリカルチヤー・リミテツド
イギリス国、エセツクス・シー・エム・５・０・エイチ・ダブリユ、オンガー、フアイフイールド・ロード（番地なし）
(74)代理人
弁理士　川口　義雄
(74)代理人
弁理士　伏見　直哉

最終頁に続く

(54)【発明の名称】新規除草剤組成物

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
所定場所に相乗的除草有効量の
（ａ）２－シアノ－３－シクロプロピル－１－（２－メチルスルホニル－４－トリフルオロメチルフェニル）プロパン－１，３－ジオン、又はその農業的に許容可能な塩、金属錯体若くはエノール性互変異性形；並びに
（ｂ）２，６－ジニトロアニリン除草剤、２－クロロ－Ｎ－エトキシメチル－６′－エチルアセト－ｏ－トルイジド（アセトクロール）、及び２－クロロ－６′－エチル－Ｎ－（２－メトキシ－１－メチルエチル）アセト－ｏ－トルイジド（メトラクロール）からなる群の少なくとも１種を施用することを含んでなる、上記場所の雑草成長を抑制する方法。
【請求項２】
２，６－ジニトロアニリン除草剤が式IV



(IV)

［式中、R^{41}は
１つ又は複数のハロゲン原子又はシクロアルキル基により置換されてよい１２個以下の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキル又はアルケニルを表し；
R^{42}は水素又は上記に定義された基R^{41}（R^{41}とR^{42}は同じか又は異なる）を表し；
R^{43}は水素又はハロゲン；
１つ又は複数のハロゲン原子により置換されてよい１～１２個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキル；
又は無置換のアミノ基を表し；
R^{44}はハロゲン；
１つ又は複数のハロゲン原子により置換されてよい１～１２個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキル；
１つ又は複数のハロゲン原子により置換されてよい１～１２個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキルスルホニル；
又はスルファモイルを表す］
の化合物である請求項１に記載の方法。
【請求項３】
２，６－ジニトロアニリン除草剤が、Ｎ－（１－エチルプロピル）－３，４－ジメチル－２，６－ジニトロベンゼンアミン（ペンジメタリン）である請求項２に記載の方法。
【請求項４】
該場所が作物栽培用に使用されている又は使用される予定の地域である請求項１～３のいずれか１項に記載の方法。
【請求項５】
作物がトウモロコシ又はサトウキビである請求項４に記載の方法。
【請求項６】
相乗的除草有効量の
（ａ）２－シアノ－３－シクロプロピル－１－（２－メチルスルホニル－４－トリフルオロメチルフェニル）プロパン－１，３－ジオン又はその農業的に許容可能な塩、金属錯体若くは又はエノール性互変異性形；並びに
（ｂ）２，６－ジニトロアニリン除草剤、２－クロロ－Ｎ－エトキシメチル－６′－エチルアセト－ｏ－トルイジド（アセトクロール）、及び２－クロロ－６′－エチル－Ｎ－（２－メトキシ－１－メチルエチル）アセト－ｏ－トルイジド（メトラクロール）を少なくとも１種
を含んでなる組成物。
【請求項７】
２，６－ジニトロアニリン除草剤が請求項２又は３で定義される通りのものである請求項６に記載の組成物。
【請求項８】
相乗的除草有効量の
（ａ）２－シアノ－３－シクロプロピル－１－（２－メチルスルホニル－４－トリフルオロメチルフェニル）プロパン－１，３－ジオン、又はその農業的に許容可能な塩、金属錯体若しくはエノール性互変異性形；並びに
（ｂ）２，６－ジニトロアニリン除草剤、２－クロロ－Ｎ－エトキシメチル－６′－エチルアセト－ｏ－トルイジド（アセトクロール）、及び２－クロロ－６′－エチル－Ｎ－（２－メトキシ－１－メチルエチル）アセト－ｏ－トルイジド（メトラクロール）からなる群の少なくとも１種
を、作物栽培場所における雑草成長を抑制するために、同時に、個別に又は連続的に使用するための組合せ調製物として含む製品。
【発明の詳細な説明】
本発明は２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と他の除草剤を含む新しい除草活性組成物に関する。

欧州特許公開第０４９６６３０号、第０４９６６３１号、第０６２５５０５号及び第０６２５５０８号は、除草性を有する或る１－フェニル－２－シアノ－１，３－ジオン誘導体を開示する。欧州特許公開第０２１３８９２号は除草活性エノールを開示する。これら化合物の多くは良い除草活性水準を有するが、栽培作物（例えばトウモロコシ又はサトウキビ）用に使用される又は使用されるべき所定の地域に発生する雑草を防除するに十分広い活性スペクトルを有していない。作物栽培地域に発生する多くの雑草を防除する多くの除草剤が知られている。これらは、アメトリン（N^2－エチル－N^4－イソプロピル－６－メチルチオ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジアミン）、アトラジン（６－クロロ－N^2－エチル－N^4－イソプロピル－１，３，５－トリアジン－２，４－ジアミン）、テルブトリン（N^2－ｔｅｒｔ－ブチル－N^4－エチル－６－メチルチオ－１，３，５－トリアジン－２，４－ジアミン）、及びメトリブジン（４－アミノ－６－ｔｅｒｔ－ブチル－３－メチルチオ－１，２，４－トリアジン－５（４Ｈ）－オン）のごとき１，３，５－トリアジン及び１，２，４－トリアジノン除草剤（以後、トリアジン除草剤と呼ぶ）；アラクロール（２－クロロ－２′，６′－ジエチル－Ｎ－メトキシメチルアセトアニリド）、アセトクロール（２－クロロ－Ｎ－エトキシメチル－６′－エチルアセト－ｏ－トルイジド）、メトラクロール［２－クロロ－６′－エチル－Ｎ－（２－メトキシ－１－メチルエチル）アセト－ｏ－トルイジド］、プロパクロール（２－クロロ－Ｎ－イソプロピルアセトアニリド）及びジメテンアミド（dimethenamid）［２－クロロ－Ｎ－（２，４－ジメチル－３－チエニル）－Ｎ－（２－メトキシ－１－メチルエチル）アセトアミド］のごときクロロアセトアミド除草剤；ペンジメタリン［Ｎ－（１－エチルプロピル）－３，４－ジメチル－２，６－ジニトロベンゼンアミン］及びトリフルラリン［２，６－ジニトロ－Ｎ，Ｎ－ジプロピル－４－（トリフルオロメチル）ベンゼンアミン］のごとき２，６－ジニトロアニリン除草剤；アクロニフェン（２－クロロ－６－ニトロ－３－フェノキシアニリン）、ジウロン［３－（３，４－ジクロロフェニル）－１，１－ジメチルウレア］；及びブロモキシニル［３，５－ジブロモ－４－ヒドロキシベンゾニトリル］及びアイオキシニル［４－ヒドロキシ－３，５－ジヨードベンゾニトリル］のごときヒドロキシベンゾニトリル系除草剤を含み，それぞれ”Ｔｈｅ　Ｐｅｓｔｉｃｉｄｅ　Ｍａｎｕａｌ”，１０ｔｈ　ｅｄｉｔｉｏｎ（Ｂｒｉｔｉｓｈ　Ｃｏｒｐ　Ｐｒｏｔｅｃｔｉｏｎ　Ｃｏｕｎｃｉｌ），１９９４に開示されている。

研究と実験の結果、一つ又は複数のこれら除草剤を特定の２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と組合わせて使用することで、除草活性スペクトルが拡張されることを発見した。従って、この様な組合わせは重要な技術的進歩を表す。本明細書で使われる用語「組合わせ」は２－シアノ－１，３－ジオン誘導体とその相手除草剤の「組合わせ」を指す。

驚くべきことに、更に、アキノエノコログサ（Ｓｅｔａｒｉａ　ｆａｂｅｒｉ）、エノコログサ（Ｓｅｔａｒｉａ　ｖｉｒｉｄｉｓ）、又はイヌビエ（Ｅｃｈｉｎｏｃｈｌｏａ　ｃｒｕｓ－ｇａｌｌｉ）のごとき重要な雑草種の防除に対する２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と他の特定の除草剤を組み合わせた場合の除草活性は、ある条件下で、作物に対する植物毒性の容認できない増加なしに、予測したより高いことが見いだされた。換言すれば、当該混合物は、Ｌｉｍｐｅｌ，Ｌ．Ｅ．，Ｐ．Ｈ．Ｓｃｈｕｌｄｔ及びＤ．Ｌａｍｏｎｔ，１９６２，１．Ｐｒｏｃ．ＮＥＷＣＣ　１６，４８－５３において、Ｃｏｌｂｙ式（Ｃｏｌｂｙ　Ｓ．Ｒ．，１９６７，Ｗｅｅｄｓ　１５，２０－２２）として知られる式：

Ｅ＝Ｘ＋Ｙ－ＸＹ／１００

（式中、

Ｅ＝所定薬量の２除草剤ＡとＢの混合物による成長阻害予測百分率

Ｘ＝所定薬量の除草剤Ａによる成長阻害百分率

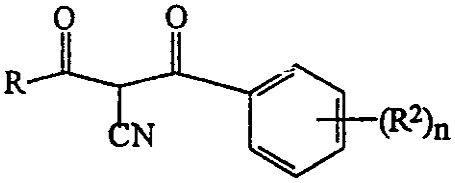
Ｙ＝所定薬量の除草剤Ｂによる成長阻害百分率

である。）

により定義される相乗性を示す。

混合物による阻害の観察百分率が上の式を使った期待値Ｅより大きい時はその組合わせは

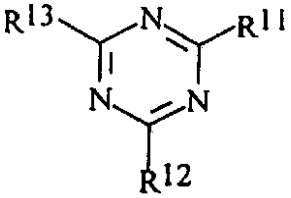
相乗的である。
この予測しなかった相乗的効果は、多くの作物種と競合する雑草を防除する際の信頼性を改善し、雑草防除のために要求される活性成分量の相当な削減に寄与する。
この注目すべき相乗的効果はいくつかの雑草種の防除の信頼性を改善し、使用される活性成分量の削減を可能とする。
これら雑草の高水準の防除は、
１）競合及び／又は収穫の困難に伴う収量損失；
２）貯蔵及び清掃を困難にする作物汚染；及び
３）許容できない雑草の種の土壌への復帰；
を防止するために望ましい。
本発明により、所定場所に除草有効量の
（ａ）２－シアノ－１，３－ジオン除草剤、又はその農業的に許容可能な塩、金属錯体又はエノール性互変異性形；及び
（ｂ）トリアジン除草剤、クロロアセトアミド除草剤、２，６－ジニトロアニリン除草剤、アクロニフェン、ジウロン、及びヒドロキシベンゾニトリル除草剤からなる群の少なくとも１つを施用することを含んでなる、該場所の雑草成長を抑制する方法が提供される。
この目的で、２－シアノ－１，３－ジオンと相手除草剤は通常、除草剤組成物の形で（すなわち除草剤的に許容可能な希釈剤又は担体及び／又は界面活性剤と共に）、例えば以下に記述するごとく使用される。本明細書の記述において用語「相手除草剤」はトリアジン除草剤、クロロアセトアミド除草剤、２，６－ジニトロアニリン除草剤、アクロニフェン、ジウロン、及びヒドロキシベンゾニトリル除草剤からなる群の少なくとも１種を意味すると解釈されるであろう。
好ましくは、２－シアノ－１，３－ジオン誘導体は式（Ｉ）



(I)

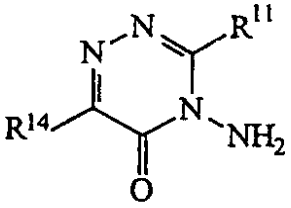
（式中、
R^1は任意に$C_{1\sim6}$アルキルを有する$C_{3\sim6}$シクロアルキル又は$C_{1\sim6}$アルキルであり；
R^2はハロゲン、－Ｓ（Ｏ）$_p$Ｍｅ及び$C_{1\sim6}$アルキル又はハロアルキルから選択され；
ｎは２又は３；ｐは０、１、又は２である）
を有する。
上記の式Ｉの化合物は、エノール性二重結合の周囲に幾何異性体を生じ得るエノール性互変異性形で存在することができる。更に、ある場合には基R^1とR^2は立体異性体及び幾何異性体を生じ得る。全てのかくのごとき異性形は本発明に含まれるものである。
「農業的に許容可能な塩」は、そのカチオン又はアニオンが農業又は園芸用途のための塩形成に当業界技術で公知であり許容される塩を意味する。好ましくはこれらの塩は水溶性である。塩基との適切な塩は、アルカリ金属（例えばナトリウムとカリウム）、アルカリ土類金属（例えばカルシウムとマグネシウム）、アンモニウム及びアミン（例えばジエタノールアミン、トリエタノールアミン、オクチルアミン、モルホリン及びジオクチルメチルアミン）塩である。アミノ基を含む式（Ｉ）の化合物で形成される適切な酸添加塩は、無機酸との塩、例えば塩酸塩、硫酸塩、燐酸塩及び硝酸塩、及び有機酸例えば酢酸との塩を含む。
用語「金属錯体」は１，３－ジオンの１つ又は両方の酸素原子が金属カチオンにキレート剤として作用する化合物を意味する。かかるカチオンの例は、亜鉛、マンガン、第二銅、第一銅、第二鉄、第一鉄、チタン及びアルミニウムを含む。以下の記述において、２－シアノ－１，３－ジオンの呼称はその農業的に許容可能な塩、金属錯体又はエノール性互変異性形を含むと解釈される。

上記の式（Ｉ）において、好ましくはR^1は１－メチルシクロプロピル又は、更に好ましくはシクロプロピルである。
上記の式（Ｉ）において、ｎが３で（R^2）$_n$基がベンゾイル環の２，３及び４－位を占める化合物；又はｎが２で（R^2）$_n$基がベンゾイル環の２及び４－位を占める化合物が好ましい。
上記の式（Ｉ）において、R^2は好ましくはハロゲン（好ましくは塩素または臭素）、－Ｓ（Ｏ）$_p$Ｍｅ及びトリフルオロメチルから選択される。
上記の式（Ｉ）において、好ましくはR^2基の１つは－Ｓ（Ｏ）$_p$Ｍｅである。
上記の式（Ｉ）で最も好ましい化合物は、２－シアノ－３－シクロプロピル－１－（２－メチルスルホニル－４－トリフルオロメチルフェニル）プロパン－１，３－ジオンであり、以後化合物Ａと呼ぶ。
トリアジン除草剤は好ましくは式II



(II)

（式中、R^{11}は塩素又は１～６個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキルチオ又はアルコキシを表し；R^{12}は、アルキル又はシクロアルキル部がシアノ及びアルコキシから選択された１つ又は複数の置換基で任意に置換されてもよいアジド、モノアルキルアミノ、ジアルキルアミノ又はシクロアルキルアミノを表し；R^{13}は１～６個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のＮ－アルキルアミノを表す）
の化合物であるか；又は、
式IIa：



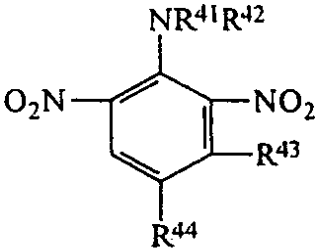
(IIa)

（式中、R^{14}は１～６個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキルを表す）
の化合物である。
上記の式IIの好ましい化合物は、R^{11}が塩素を表し、R^{13}がＮ－エチルアミノを表し、R^{12}がＮ－エチルアミノ、Ｎ－（２－メチルプロパンニトリル）アミノ又はＮ－イソプロピルアミノを表す化合物であり、それぞれシマジン、シアナジン及びアトラジンとして知られる。これらの中で、アトラジンが最も好ましい。上記の式（II）の他の好ましい化合物はR^{11}がメチルチオ、R^{12}がＮ－イソプロピルアミノ、そしてR^{13}がＮ－エチルアミノを表す化合物であり、これはアメトリンである。アメトリンの使用は、本発明の方法がサトウキビの栽培用に或る場所で使われ又は使われるべきときに特に好ましい。
上記の式IIaの好ましい化合物はR^{11}がメチルチオを表し、R^{14}がｔｅｒｔ－ブチルを表す化合物であり、メトリブジンとして知られている。
クロロアセトアミド除草剤は好ましくは式（III）

Ａｒ－Ｎ（R^{31}）ＣＯＣＨ$_2$Ｃｌ　　（III）

（式中、R^{31}は水素、Ｃ$_{1～6}$アルキル、ハロアルキル、アルコキシ又はアルコキシアルキル；６個以下の炭素原子を有するアルケニル、ハロアルケニル、アルキニル、ハロアルキニル又はアシルアミドアルキルを表し；
Ａｒはハロゲン、アミノ、Ｃ$_{1～6}$アルキル、ハロアルキル、アルコキシ及びアルコキシア

ルキルからなる群から選択された１つ又は複数の基で任意に置換されたチエニル又はフェニルを表す）
の化合物である。
基Ｒ[31]は光学異性体及び／又は立体異性体を生じ得、本明細書の定義においては、この化合物のラセミ及びエナンチオマー形を共に含むと解釈されるであろう。
また、Ａｒが、エチル及びメチルから選択された同じ又は異なってよい１つ又は好ましくは２つの基で任意に置換されたフェニル又はチエニルを表す上記の式（III）の化合物が好ましい。
好ましい式（III）の化合物はＲ[31]がメトキシメチルを表し、Ａｒが２，６－ジエチルフェニルを表す化合物であり、アラクロールとして知られる。
他の好ましい式（III）の化合物はＲ[31]がエトキシメチルを表し、Ａｒが２－エチル－６－メチルフェニルを表す化合物であり、アセトクロールとして知られる。
他の好ましい式（III）の化合物はＲ[31]が２－メトキシ－１－メチルエチルを表し、Ａｒが２－エチル－６－メチルフェニルを表す化合物であり、メトラクロールとして知られる。メトラクロールのラセミ形及びアルファ－メトラクロールとして知られる部分分割形共に好ましく、及びその混合物が好ましい。
他の好ましい式（III）の化合物はＲ[31]が１－メチルエチルを表し、Ａｒがフェニルを表す化合物であり、プロパクロールとして知られる。
他の好ましい式（III）の化合物はＲ[31]が２－メトキシ－１－メチルエチルを表し、Ａｒが３－（２，４－ジメチル）チエニルを表す化合物であり、ジメテンアミドとして知られる。ジメテンアミドのラセミ形及びＳ－ジメテンアミドとして知られる部分分割（Ｓ－）形共に好ましく、及びその混合物が好ましい。
２，６－ジニトロアニリン除草剤は、好ましくは式IV



(IV)

［式中、Ｒ[41]は
１つ又は複数のハロゲン原子又はシクロアルキル基により置換されてよい１２個以下の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキル又はアルケニルを表し；
Ｒ[42]は水素又は上記に定義された基Ｒ[41]（Ｒ[41]とＲ[42]は同じか又は異なる）を表し；
Ｒ[43]は水素又はハロゲン；
１つ又は複数のハロゲン原子により置換されてよい１～１２個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキル；又は
無置換のアミノ基を表し；
Ｒ[44]はハロゲン；
１つ又は複数のハロゲン原子により置換されてよい１～１２個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキル；
１つ又は複数のハロゲン原子により置換されてよい１～１２個の炭素原子を有する直鎖又は分岐鎖のアルキルスルホニル；又は
スルファモイルを表す］
の化合物である。
好ましい式（IV）の化合物はＲ[41]がエチル、プロピル、ブチル、１－エチルプロピル、２－メチル－１－プロペニル、シクロプロピルメチル及び２－クロロエチルからなる群から選択された化合物を含む。
好ましい式（IV）の化合物はＲ[42]が水素、エチル及びプロピルから選択された化合物を含

む。
好ましい式（IV）の化合物はR^{43}が水素、メチル及び無置換アミノから選択された化合物を含む。
好ましい式（IV）の化合物はR^{44}がメチル、ｔｅｒｔ－ブチル、イソプロピル及びトリフルオロメチルから選択された化合物を含む。
特に好ましい式（IV）の化合物は：
２，６－ジニトロ－Ｎ，Ｎ－ジプロピル－４－（トリフルオロメチル）ベンゼンアミン及びＮ－（１－エチルプロピル）－３，４－ジメチル－２，６－ジニトロベンゼンアミンであり、それぞれトリフルラリン及びペンジメタリンとして知られている。ペンジメタリンが最も好ましい。
ヒドロキシベンゾニトリル除草剤は、好ましくはブロモキシニル又はアイオキシニルであり、親フェノール（酸当量（acid equivalent）：ａ．ｅ．）、農業的に許容可能なその塩又はエステル、好ましくは農業的に許容可能な金属又はアミン塩、又は農業的に許容可能な２～１０個の炭素原子を有するアルカン酸とのエステル、又はそれらの混合物の形で提供される。特に、ブチレート、オクタノエート及びヘプタノエートエステル、又はそれらの混合物が好ましく、オクタノエートエステルが最も好ましい。
２－シアノ－１，３－ジオンと他の除草剤の施薬量は存在する雑草とその個体数、使用組成物、施用時期、気候及び土壌条件、及び（作物栽培地域の雑草成長を抑制するのに使用する時は）処理作物に依って変化する。一般的にはこれらの因子を考慮して、次に述べる薬量が使用される。しかし、遭遇する雑草防除の問題に依ってより高い又はより低い施用量を使うことができることが理解されるであろう。作物栽培地域に施用する時、施用量は作物に実質的に永続的な被害を与えることなく、雑草成長を抑制するのに十分でなければならない。
上記の方法は作物に実質的に永続的な被害を与えることなく、作物（例えばトウモロコシ又はサトウキビ）中で非常に広いスペクトルの一年生広葉雑草とイネ科雑草を防除するために使用することができる。上記の組合わせ使用は茎葉処理活性及び残効性を提供し、作物育成の長い期間（すなわち雑草及び作物の発生前から雑草及び作物の発生後に至る）に亘り使用することができる。本発明の方法において、トウモロコシ又はサトウキビにおけるイネ科雑草を防除するために（ａ）と（ｂ）の組合わせ使用が好ましい。（ｂ）がクロロアセトアミド除草剤、２，６－ジニトロアニリン除草剤、アクロニフェン及びヒドロキシベンゾニトリル除草剤からなる群の一つである場合、この方法はトウモロコシのイネ科雑草を防除するために使うのが好ましい。（ｂ）がジウロンである場合、この方法は好ましくはサトウキビのイネ科雑草を防除するために使うのが好ましい。相手除草剤がトリアジン除草剤、クロロアセトアミド除草剤、２，６－ジニトロアニリン除草剤、アクロニフェン及びジウロンからなる群の一つである場合、当該除草剤は一般的に雑草の発生前に（例えば表面施用及び特に植付け前土壌混和施用）施用され、また作物の植付け後（植付ける場合）；又は雑草と作物の発生後早期に施用することができる。最も好ましくは、これらの除草剤は（ａ）と組合せて作物植付け後で雑草の発生前に、又は植付け前に土壌混和施用される。相手除草剤がヒドロキシベンゾニトリルの場合、（ａ）との組合わせは一般的に雑草の発生後に、最も好ましくは発生後早期に施用される。
通常の方法（及び本発明によるより好ましい方法）に従って、使用に先立ち、個別の除草剤成分のそれぞれの製剤を組合せて庭先混合物を調製することができる。
相手除草剤がトリアジン除草剤の場合、１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン５～５００ｇとトリアジン除草剤２５０～５０００ｇの施用量で一般的に良い結果が得られる。作物栽培用に使われる又は使われる予定の雑草発生地域における雑草の選択的防除に対しては、施用量は１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン５～５００ｇとトリアジン除草剤２５０～５０００ｇが特に適切であり、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２５～２００ｇとトリアジン除草剤５００～１５００ｇである。
トリアジン除草剤がアメトリンの場合、２－シアノ－１，３－ジオンと組合せて、好ましくは１ヘクタール当りアメトリン２５０～４０００ｇ、より好ましくは１ヘクタール当り

５００～２０００ｇの施用量で使用される。
相手除草剤がクロロアセトアミド除草剤の場合、１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン０．５～５１２ｇとクロロアセトアミド除草剤８～４０００ｇの施用量で一般的に良い結果が得られる。作物栽培に使用している又は使用予定の雑草発生地域における雑草の選択的防除に対しては、施用量は１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン０．５～５１２ｇとクロロアセトアミド除草剤２０～４０００ｇが特に適切であり、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２０～２００ｇとクロロアセトアミド除草剤２００～３０００ｇであり、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２５～１５０ｇとクロロアセトアミド除草剤３５０～２０００ｇ（特には４５０～２０００ｇ）である。
相手除草剤が２，６－ジニトロアニリン除草剤の場合、１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン０．５～５１２ｇと２，６－ジニトロアニリン除草剤８～３０００ｇの施用量で一般的に良い結果が得られる。作物栽培に使用している又は使用予定の雑草発生地域における雑草の選択的防除に対しては、施用量は１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン５～５１２ｇと２，６－ジニトロアニリン除草剤１５０～３０００ｇが特に適切であり、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２０～２００ｇと２，６－ジニトロアニリン除草剤１５０～２０００ｇであり、最も好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２５～１５０ｇと２，６－ジニトロアニリン除草剤２５０～１０００ｇである。
相手除草剤がアクロニフェンの場合、１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン１～５００ｇとアクロニフェン３０～２５００ｇの施用量で良い結果が得られ、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン１０～２００ｇとアクロニフェン５００～１０００ｇである。
相手除草剤がジウロンの場合、１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン０．５～５００ｇとジウロン１００～３０００ｇの施用量で良い結果が得られ、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２５～１５０ｇとジウロン５００～２０００ｇである。
相手除草剤がヒドロキシベンゾニトリル（ＨＢＮ）除草剤の場合、１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン５～５００ｇとＨＢＮ除草剤３０～６００ｇ酸当量（ａ．ｅ．）の施用量で良い結果が得られ、より好ましくは１ヘクタール当り２－シアノ－１，３－ジオン２０～３００ｇとＨＢＮ６０～２００ｇ（ａ．ｅ．）である。
本発明の方法は最も好ましくは作物栽培に使用される又は使用されるべき場所での雑草防除に使用する。作物栽培地域に施用する時、施用量は作物に実質的に永続的な被害を与えることなく、雑草成長を抑制するのに十分でなければならない。使用される組合せの薬量は一般的に当該場所に施用後或る期間は雑草を防除するに十分な活性の持続水準を提供すべきである。好ましくは処理は施用後４５～６０日間持続すべきである。
本発明の混合物はまた、作物栽培地域ではないが雑草の防除が望ましい場所における雑草成長を抑制するために使うこともできる。かかる非作物栽培地域は、空港の離着陸場所、工業用地、鉄道、道路の縁、河川の縁、灌漑及び他の水路の縁、低木地及び休閑地又は非耕地、特に火災の危険を無くするために雑草成長を抑制することが望ましい場所である。
完全な除草効果がしばしば望まれるかかる目的で使用する場合は、活性成分は通常、今まで述べた作物栽培地域で使用されるより高い薬量で施用される。正確な薬量は処理する植生の性質と求められる効果に依存する。
次の非限定的実施例により本発明を説明する。以下の記述において次の商標を使用する：Ｌａｓｓｏ、Ｆｒｏｎｔｉｅｒｅ、Ｄｕｅｌｏｒ、Ｈａｒｎｅｓｓ Ｐｌｕｓ、Ｐｒｏｗｌ、Ｐｒｏｐｉｘｉｎｅ、Ｂｕｃｔｒｉｌ。略語「ａ．ｉ．」は活性成分（ａｃｔｉｖｅ ｉｎｇｒｅｄｉｅｎｔ）を示す。また、所定の雑草と作物はＢａｙｅｒコードにより示される。

実施例１

アキノエノコログサ（Ｓｅｔａｒｉａ ｆａｂｅｒｉ）、エノコログサ（Ｓｅｔａｒｉａ

ｖｉｒｉｄｉｓ）又はイヌビエ（Ｅｃｈｉｎｏｃｈｌｏａ　ｃｒｕｓ－ｇａｌｌｉ）の種子を７ｃｍ×７ｃｍのプラスチック植物ポットに容れた非殺菌の埴壌土土壌に播種した。ポットに潅漑し且排水口を設けた。所定範囲の濃度の、化合物Ａ、ペンジメタリン、メトラクロール、アセトクロール、アクロニフェン、アトラジン又はジウロンのいずれかの単独、又は化合物Ａとこれら除草剤のいずれかとの混合物を５０／５０（重量／重量）のアセトン／水に溶解して土壌表面に散布した。全ての事例で工業用原体を使った。土壌表面上４３ｃｍから２９０リットル／ヘクタール相当量をデリバリーするトラック散布機を使い、当該溶液を散布した。４度の反覆試験を実施し、処理されたポットをガラスハウス内に無作為に配置して収容し、明所で湿毛細管マット上に置き、日に３回頭上から潅水した。

処理後２週間に植物成長の低下百分率を無処理対照と比較して測定し、それぞれの施用量に対する平均結果を求めた。Ｃｏｌｂｙ式を結果に適用して除草剤の混合物間の相互作用の性質を決定した。次の表でカッコ内に示された数字はＣｏｌｂｙ式により求めた除草剤混合物による成長の予測低下を表す。

結果：

表１

Setaria faberiに対する化合物Ａとペンジメタリン

		ペンジメタリン			
	薬量 (g/ha)	0	8	16	32
化合物Ａ	0	-	0.0	7.5	57.5
	8	32.5	73.8(32.5)	57.5(37.6)	86.3(71.3)
	16	68.8	82.5(68.8)	82.5(71.1)	93.8(86.7)

表２

Echinochola crus-galliに対する化合物Ａとペンジメタリン

		ペンジメタリン				
	薬量 (g/ha)	0	8	16	32	64
化合物Ａ	0	-	0.0	3.8	0.0	16.3
	8	10.0	40.0(10.0)	58.8(13.4)	53.8(10.0)	55.0(24.7)

表３

Setaria viridisに対する化合物Ａとメトラクロール

メトラクロール

化合物Ａ	薬量 (g/ha)	0	4	8	16
	0	-	18.8	27.5	60.0
	16	25	46.3(39.1)	61.3(45.6)	77.5(70.0)

表４

Setaria viridisに対する化合物Ａとアセトクロール

アセトクロール

化合物Ａ	薬　量 (g/ha)	0	3.75	15	30
	0	-	0.0	33.8	80.0
	16	25	50.0(25.0)	60.0(40.0)	91.3(81.3)

表５

Echinochola crus-galliに対する化合物Ａとアクロニフェン

アクロニフェン

化合物Ａ	薬　量 (g/ha)	0	31	62	124
	0	-	0.0	5.0	0.0
	8	41.3	40.0(41.3)	56.3(44.2)	63.8(41.3)
	16	57.5	77.5(57.5)	96.3(59.6)	73.8(57.5)

表６

Echinochola crus-galliに対する化合物Ａとアトラジン

アトラジン

	薬量 (g/ha)	0	31	62	124	250
化	0	-	7.5	17.5	61.3	77.5
合	8	41.3	31.3(45.7)	67.5(51.6)	88.8(77.3)	96.3(86.6)
物	16	57.5	73.8(60.7)	97.5(64.9)	96.5(83.6)	98.8(90.4)
A	32	91.3	98.8(92.0)	100(92.8)	100(96.6)	100(98.0)

表７

Echinochola crus-galliに対する化合物Ａとジウロン

ジウロン

	薬量 (g/ha)	0	62	125	250	500
化	0	-	10.0	15.0	77.5	93.8
合	8	41.3	50.0(47.2)	85.0(50.1)	92.5(86.8)	100(96.4)
物	16	57.5	83.8(61.8)	81.3(63.9)	97.5(90.4)	96.3(97.4)
A	32	91.3	96.3(92.2)	98.8(92.6)	100(98.8)	100(99.5)

実施例２

次の圃場試験は、化合物Ａ（重量で５０％ａ．ｉ．を含有する水和剤として製剤した）を各種の相手除草剤と共に使い、作物及び雑草の発生前に実施した。試験は米国、Ｒａｙｍｏｎｄｖｉｌｌｅ（埴壌土土壌；以後「ＵＳ１区」と呼ぶ）及び南アフリカ、Ｐｒｅｔｏｒｉａ（埴壌土土壌；以後「ＺＡ１区」と呼ぶ）で、化合物Ａ単独及び、化合物Ａとアラクロール（市販製剤物「Ｌａｓｓｏ」、４８０ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する乳剤）、ジメテンアミド（市販製剤物「Ｆｒｏｎｔｉｅｒｅ」、９００ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する乳剤）、メトラクロール（市販製剤物「Ｄｕｅｌｏｒ」、９６０ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する乳剤）、ペンジメタリン（市販製剤物「Ｐｒｏｗｌ」、４００ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する懸濁剤）、アトラジン（市販製剤物「Ｐｒｏｐｉｘｉｎｅ」、５００ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する懸濁剤）及びアセトクロール（市販製剤物「Ｈａｒｎｅｓｓ　Ｐｌｕｓ」、８４０ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する乳剤）との組合せで実施した。相手除草剤もそれぞれ単独で散布した。２度の反覆試験を実施した。処理後３４日（ＵＳ１区で）又は処理後５２日（ＺＡ１区で）に植物毒性百分率を無処理対照と比較して測定した。次の結果を得た。

表８：ＵＳ１の結果

（発生前処理、処理３４日後）

活性成分 (g/ha)						雑草種									作物
化合物A	プラクロール	メタゾクロル	ベンスルフロン			SETVI	SETFA	PANMI	DIGSA	SETLU	AMARE	ABUTH	DATST	ZEAMX
12.5						0	3	0	0	0	0	0	0	0
	500					90	90	67	97	99	98	30	17	0
12.5	500					98	96	93	100	100	93	70	65	0
				Colby		90	90	67	97	99	98	30	17	0
	375					100	99	94	100	100	98	47	50	0
12.5	375					100	99	98	100	100	99	60	60	0
				Colby		100	99	94	100	100	98	47	50	0
		180				99	95	83	99	98	73	63	65	0
12.5		180				68	77	74	88	90	92	65	83	0
				Colby		99	95	83	99	98	73	63	65	0

表９：ＺＡ１の結果
（発生前処理、処理５２日後）

活性成分 (g/ha)					雑草種											
化合物A	アセト クロール	ダイヤジン	メトラクロール		AMACH	BIDPI	DATST	DIGSA	EPHHL	HITBR	PANMA	SCKPI	SETIT	XANST		
12.5					92	48	13	77	35	72	82	47	57	7		
	375				27	0	12	87	0	0	90	3	88	3		
12.5	375				97	88	47	100	78	82	93	92	100	18		
				Colby	94	48	23	97	35	72	98	49	95	10		
		375			90	67	27	28	18	57	23	73	22	13		
12.5		375			97	95	45	83	78	95	88	93	63	33		
				Colby	99	83	36	83	47	88	86	86	66	19		
			375		10	0	0	87	0	0	83	2	68	0		
12.5			375		93	78	22	98	77	87	90	63	90	27		
				Colby	93	48	13	97	35	72	97	48	86	7		

実施例３

次の圃場試験はＵＳ１区及び米国、Ｗａｖｅｒｌｅｙ（シルトローム土壌、以後「ＵＳ２区」と呼ぶ）で、化合物Ａ（実施例２で使用したものと同様）単独又は、化合物Ａとブロ

モキシニル（オクタノエートエステル、市販製剤物「Ｂｕｃｔｒｉｌ　２ＥＣ」、２４０ｇ／ｌａ．ｉ．を含有する乳剤）を庭先混合で組合せて使用して実施した。後者除草剤の単独散布も実施した。当該化合物を春作物で見られる春雑草（spring-sown weeds）の発生後早期に施用した。植物毒性百分率をＵＳ２区の３４ＤＡＴ（処理後日数）及びＵＳ１区の３７ＤＡＴに無処理対照と比較して評価した。２度の反覆試験を実施した。得られた結果を表１０及び１１に示した。これらの表でカッコ内の数字はＣｏｌｂｙ式による雑草防除の予測水準を示す。「Ｂｒｏｍ」はブロモキシニルを意味する。

結果

表１０　ＵＳ２の結果（発生後早期処理、３４ＤＡＴ）

a.i.	薬量 (g/ha)	AMARE	ABUTH	ECHCG	ZEAMX (作物)
化合物Ａ	10	0	0	0	0
化合物Ａ	20	0	20	0	0
Ｂｒｏｍ	60	40	0	0	0
Ｂｒｏｍ	120	0	78	0	0
化合物Ａ＋Ｂｒｏｍ	10+60	20(40)	70(0)	25(0)	0
化合物Ａ＋Ｂｒｏｍ	10+120	10(0)	95(78)	0(0)	0
化合物Ａ＋Ｂｒｏｍ	20+60	45(40)	78(20)	94(0)	0
化合物Ａ＋Ｂｒｏｍ	20+120	20(0)	99(82)	99(0)	0

表１１　ＵＳ１の結果（発生後早期処理、３７ＤＡＴ）

a.i.	薬量 (g/ha)	AMARE	ABUTH	CHEAL	AMATA	ECHCG	HELAN
化合物Ａ	20	0	0	0	0	0	0
Ｂｒｏｍ	120	45	60	94	72	0	85
化合物Ａ＋Ｂｒｏｍ	20+120	83(45)	65(60)	100(94)	98(72)	20(0)	100(85)

本発明の更なる特徴により、

（ａ）上記に定義した２－シアノ－１，３－ジオン誘導体又はその農業的に許容可能な塩、金属錯体又はエノール性互変異性形；及び

（ｂ）トリアジン除草剤、クロロアセトアミド除草剤、２，６－ジニトロアニリン除草剤、アクロニフェン、ジウロン、及びヒドロキシベンゾニトリル除草剤からなる群の少なくとも１種；

を、１種又は複数の適合性のある除草剤的に許容可能な希釈剤又は担体及び／又は界面活性剤（換言すれば、通常当業界で除草剤組成物の用途に適切であると許容されているタイプであり且つ２－シアノ－１，３－ジオン誘導体及び上記他の除草剤と適合性である希釈剤又は担体又は界面活性剤）と共に、好ましくはそれらに均一に分散して含有する除草剤組成物が提供される。用語「均一に分散して」は、上記除草剤の組合せが他の成分に溶解

している組成物を含んで使用される。用語「除草剤組成物」は、除草剤としてそのまま使用可能な組成物のみではなく、使用前に希釈されるべき濃縮物をも含む広い意味で使用される。
好ましくは、当該組成物は重量で０．０５～９０重量％の２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と相手除草剤を含有する。
除草剤組成物は希釈剤又は担体及び界面活性剤（例えば湿潤剤、分散剤、又は乳化剤）のいずれをも含有することができる。本発明の除草剤組成物に含有させることができる界面活性剤はイオン性又は非イオン性タイプでもよく、例えばスルホリシノレエート類、エチレンオキシドとノニル－又はオクチル－フェノールとの縮合物に基く生成物、又は遊離ヒドロキシのエチレンオキシドとの縮合によるエーテル化により可溶化した無水ソルビトールのカルボン酸エステル、ジノニル－及びジオクチル－ナトリウムスルホノ－スクシネートのごとき硫酸エステル及びスルホン酸のアルカリ及びアルカリ土類金属塩、並びに、ナトリウム及びカルシウムリグノスルホネートのごとき高分子量スルホン酸誘導体のアルカリ及びアルカリ土類金属塩であり得る。適切な固体希釈剤又は担体の例は、珪酸アルミニウム、タルク、か焼マグネシア、珪藻土、燐酸三カルシウム、粉末コルク、吸収剤カーボンブラック並びにカオリン及びベントナイトのごとき粘土である。固体組成物（粉剤、粒剤又は水和剤の形態をとり得る）は好ましくは２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と相手除草剤を固体希釈剤と共に粉砕するか又は２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と相手除草剤の揮発性溶媒中の溶液で固体希釈剤又は担体を含浸し、溶媒を蒸発させ、必要な場合には、粉末を得るために生成物を粉砕して製造する。粒剤は２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と相手除草剤（揮発性溶媒に溶解したもの）を顆粒状の固体希釈剤又は担体上に吸収させた後溶媒を蒸発させるか、又は上記のごとく得られた粉末形の組成物を造粒して製造することができる。固体除草剤組成物、特に水和剤は湿潤剤又は分散剤（例えば上記のタイプのもの）を含有することができ、それらは固体の場合希釈剤又は担体としての役割も果たすこともできる。
本発明による液体組成物は水性－有機溶液、懸濁液及び乳濁液の形態をとることができ、界面活性剤を加えることができる。液体組成物に加える適切な液体希釈剤は、水、アセトフェノン、シクロヘキサノン、イソホロン、トルエン、キシレン並びに鉱油、動物油及び植物油（及びこれら希釈剤の混合物）を含む。液体組成物中に含有させ得る界面活性剤はイオン性又は非イオン性（例えば、上記タイプのもの）であり得、それらは液体の場合希釈剤又は担体としての役割をも果たすことができる。
濃縮物の形の水和剤及び液体組成物は水又は他の適切な希釈剤、例えば特に希釈剤又は担体が油である液体濃縮物の場合には、鉱油又は植物油で希釈して、すぐに使用し得る組成物とすることができる。望ましい場合は、２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と相手除草剤からなる組成物は、活性物質と適合性の乳化剤に溶解した活性物質を含有する自己乳化性濃縮物（単に水を添加するだけですぐに使用し得る組成物を生成する）の形態で使用することができる。
希釈剤又は担体が油である液体濃縮物は静電気噴霧技術を使い、更に希釈することなく使用することができる。
本発明による除草剤組成物はまた、望ましい場合は、粘着剤、保護コロイド、増粘剤、浸透剤、安定剤、金属イオン封鎖剤、固化防止剤、着色剤及び腐食防止剤のごとき汎用の補助剤を含有し得る。これらの補助剤は担体又は希釈剤としての役割も果たし得る。
本発明による好ましい除草剤組成物は水性懸濁剤；水和剤；顆粒水和剤；液体水溶剤；液体乳化性懸濁剤；粒剤又は乳剤の形態である。
更に、上記組成物はゲルの形態で提供することができる。これは例えば、欧州特許公開第０５７７７０２号、及び第０６０８３４０号、並びに米国特許第５，２２２，５９５号；第５，２２４，６０１号；第５，３５１，８３１号；及び第５，３２３，９０６号に記述されるごとく、上記組成物を水溶性バック中に包装することを意図する場合に特に有用である。
欧州特許公開第０４９６６３０号、第０４９６６３１号、第０６２５５０５号、及び第０

６２５５０８号に記述される方法を用いて除草剤２－シアノ－１，３－ジオン誘導体を製造することができる。
本発明による除草剤組成物は、また２－シアノ－１，３－ジオン誘導体と相手除草剤を、１種又は複数の農薬活性化合物及び、望ましい場合は、１種又は複数の適合性のある農薬的に許容可能な希釈剤又は担体、又は界面活性剤、又は上記のごとき汎用の補助剤と共に、好ましくはそれらに均一分散して含むことができる。本発明の組合せの好ましい相手除草剤は、トリアジン除草剤（例えばアトラジン、メトリブジン又はシアナジン）、クロロアセトアミド除草剤（例えばアラクロール、メトラクロール、アセトクロール又はジメテンアミド）、２，６－ジニトロアニリン除草剤（例えばペンジメタリン又はトリフルラリン）、アクロニフェン、及びジウロンから成る群の１種又は複数の他の化合物を含む。また、該組合せは、スルホニル尿素類、イミダゾリノン類、チアゾール類、尿素類、並びに芳香族及びヘテロ環式ジ－及びトリ－ケトン類などのごとき他のクラスの除草剤を含めて使用することができる。
本発明の更なる特徴により、
（ａ）上記に定義した２－シアノ－１，３－ジオン誘導体又はその農業的に許容可能な塩、金属錯体又はエノール性互変異性形；及び
（ｂ）トリアジン除草剤、クロロアセトアミド除草剤、２，６－ジニトロアニリン除草剤、アクロニフェン、ジウロン、及びヒドロキシベンゾニトリル除草剤の少なくとも１種
を含む生成物が、
例えば所定場所（例えば作物栽培場所）の雑草成長の抑制における同時、別個又は連続使用のための組合せ調製物として提供される。

フロントページの続き

(72)発明者　ヒユエツト，リチヤード・ヘンリー
イギリス国、エセツクス・シー・エム・５・０・エイチ・ダブリユ、オンガー、フアイフイールド・ロード、ローヌ・プーラン・アグリカルチヤー・リミテツド（番地なし）
(72)発明者　ガンブリン，アラン
イギリス国、エセツクス・シー・エム・５・０・エイチ・ダブリユ、オンガー、フアイフイールド・ロード、ローヌ・プーラン・アグリカルチヤー・リミテツド（番地なし）
(72)発明者　レロウクス，バーナード
アメリカ合衆国、ノースカロライナ・２７７０９、リサーチ・トライアングル・パーク、テイー・ダブリユ・アレキサンダー・ドライブ・２、ローヌ・プーラン・アグリカルチヤー・リミテツド（番地なし）
(72)発明者　ロンサン，シルビー
フランス国、エフー６９００５・リヨン、アブニユ・ドユ・ポワン―ドユ―ジユール・２１

審査官　太田　千香子

(56)参考文献　特開平０５－００４９６０（ＪＰ，Ａ）
特開平０４－３１２５６５（ＪＰ，Ａ）
特開平０６－３２９６２０（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－０７００３９（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
A01N 37/34
A01N 33/18
A01N 33/22