

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2012-505182

(P2012-505182A)

(43) 公表日 平成24年3月1日(2012.3.1)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
AO1N 25/04 (2006.01)	AO1N 25/04	2B121
AO1N 47/24 (2006.01)	AO1N 47/24 G	4H011
AO1P 3/00 (2006.01)	AO1P 3/00	
AO1M 1/20 (2006.01)	AO1M 1/20 A	
AO1M 21/00 (2006.01)	AO1M 21/00 Z	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 46 頁)

(21) 出願番号 特願2011-530498 (P2011-530498)
 (86) (22) 出願日 平成21年10月9日 (2009.10.9)
 (85) 翻訳文提出日 平成23年5月12日 (2011.5.12)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2009/063197
 (87) 国際公開番号 W02010/040835
 (87) 国際公開日 平成22年4月15日 (2010.4.15)
 (31) 優先権主張番号 08166375.9
 (32) 優先日 平成20年10月10日 (2008.10.10)
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 508020155
 ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア
 BASF SE
 ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフェン (番地なし)
 D-67056 Ludwigshafen, Germany
 (74) 代理人 100091096
 弁理士 平木 祐輔
 (74) 代理人 100118773
 弁理士 藤田 節
 (74) 代理人 100122389
 弁理士 新井 栄一

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 液体ピラクロストロピン含有作物保護製剤

(57) 【要約】

本発明は、a)ピラクロストロピン;b)20 で2g/L未満の水溶解度を有する、少なくとも1種類の有機溶媒S1;c)20 で少なくとも2g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の有機溶媒S2 (該S2は、20 で200g/Lより高い水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒S2.1および適宜に20 で2から200g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒S2.2を含む);d)少なくとも1種類のアニオン系界面活性物質SA1;e)少なくとも1種類のノニオン系界面活性物質SA2;およびf)水を含む新規な作物保護用液体製剤に関するものである。本発明はさらに、植物および種子の処理における前記作物保護製剤の使用および相当する方法に関するものでもある。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

- a) ピラクロストロビン；
 b) 20 で2g/L未満の水溶解度を有する、少なくとも1種類の有機溶媒LM1；
 c) 20 で少なくとも2g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の有機溶媒LM2（該LM2は、20 で200g/Lより高い水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒LM2.1および適宜に20 で2から200g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒LM2.2を含む）；
 d) 少なくとも1種類のアニオン系界面活性剤OS1；
 e) 少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤OS2；および
 f) 水

を含む作物保護用液体製剤。

【請求項 2】

LM2が少なくとも1種類の溶媒LM2.2を含む請求項1に記載の製剤。

【請求項 3】

LM2.2が20 で2から100g/Lの水溶解度を有する溶媒から選択される請求項1および2のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 4】

LM2が20 で200g/Lより高い水溶解度を有する少なくとも2種類の溶媒LM2.1を含む請求項1～3のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 5】

前記溶媒LM2.1が、ジメチルスルホキシド、C₂-C₄-アルキレンカーボネート類、N,N -ジメチル-C₃-C₄-アルキレン尿素類、C₃-C₅-ラクトン類、N-メチル-C₃-C₅-ラクタム類、リン酸トリ-C₁-C₄-アルキル類、C₁-C₃-アルカノール類、モノ、ジおよびトリ-(C₁-C₄-アルキルオキシ)-C₁-C₄-アルカノール類、脂肪族C₂-C₈-ジオール類、脂肪族C₃-C₁₂-トリオール類、少なくとも一つのヒドロキシル基を有するC₄-C₈-アルカンカルボン酸エステル類およびテトラヒドロフルフリルアルコールからなる群から選択される請求項1～4のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 6】

少なくとも1種類の溶媒LM2.1が、C₃-C₅-ラクトン類、ヒドロキシル化(C₄-C₈)-アルカンカルボン酸エステル類、C₁-C₃-アルカノール類、C₂-C₈-アルカンジオール類およびC₃-C₁₂-アルカントリオール類からなる群から選択される請求項1～5のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 7】

前記溶媒LM2.2が、C₅-C₁₂-アルカンカルボン酸アルコキシアルキル類、C₅-C₉-アルカンカルボン酸アルキル類、ジカルボン酸C₅-C₉-ジアルキル類、C₅-C₉-ケトン類、C₅-C₉-アルカンジオールアルカノエート類、C₅-C₉-アルカントリオールアルカノエート類、C₄-C₇-アルカノール類、脂肪族C₇-C₁₀-ジオール類、脂肪族C₁₁-C₁₅-トリオール類、C₅-C₉-シクロアルキルアルコール類、C₅-C₉-アリールアルキルアルコール類およびC₅-C₉-アリールオキシアルキルアルコール類からなる群から選択される請求項1～6のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 8】

前記少なくとも1種類の溶媒LM2.2が、C₅-C₉-ケトン類およびC₅-C₉-アリールアルキルアルコール類からなる群から選択される請求項1～7のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 9】

前記少なくとも1種類の溶媒LM1が、100から310 の沸点を有する脂肪族、芳香族およびシクロ脂肪族炭化水素、C₈-C₂₀-アルキルフェノール類、C₈-C₂₀-アルカノール類、C₁₀-C₂₀-アルカンカルボン酸アルキル類、C₁₂-C₂₈-シクロアルカンカルボン酸アルキル類、C₁₂-C₂₈-シクロアルカンジカルボン酸ジアルキル類、ジカルボン酸C₁₀-C₁₅-ジアルキル類、C₂₅-C₃₅-アルカントリオールアルカノエート類、N-C₈-C₂₀-アルキルピロリドン、C₈-C₂₆-脂肪酸類、それらのジアルキルアミド類およびそれらのアルキルエステル類からなる群から

10

20

30

40

50

選択される請求項1～8のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項10】

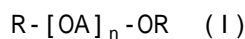
前記少なくとも1種類の溶媒LM1が、100から310 の沸点を有する脂肪族、芳香族およびシクロ脂肪族炭化水素からなる群から選択される請求項9に記載の製剤。

【請求項11】

前記少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤OS2が、ポリヒドロキシル化合物のモノ脂肪酸エステル類および少なくとも1個のオリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキシド基を有する化合物からなる群から選択される請求項1～10のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項12】

前記少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤OS2が、C₂-C₄-アルキレンオキシドのホモまたはコオリゴマー類、オリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキシドC₁-C₁₆-アルキルベンゼンエーテル類、オリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキシドモノ-、ジ-もしくはトリスチリルフェニルエーテル類、ソルビタンモノ脂肪酸エステル類、C₂-C₄-アルコキシルソルビタンモノ脂肪酸エステル類および下記式Iの化合物：



[式中、

nは、2から50の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を指し、

各Aは各場合で独立に、エタンジイル、プロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,2-ジイルまたは2-メチルプロパン-1,2-ジイルであり、

Rは、直鎖もしくは分岐のC₈-C₂₄-アルキルまたはC₈-C₂₄-アルケニルであり、

R は、H、C₁-C₈-アルキル、CHOまたはC₁-C₈-アルキルカルボニルである。]

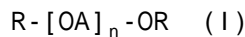
からなる群から選択される請求項11に記載の製剤。

【請求項13】

OS2が、高くとも13のHLB値を有する少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤および13より高いHLB値を有する少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤を含む請求項1～12のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項14】

OS2が、ソルビタンモノ脂肪酸エステル類および下記式Iの化合物：



[式中、

nは、2から20の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を指し、

各Aは各場合で独立に、エタンジイル、プロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,2-ジイルまたは2-メチルプロパン-1,2-ジイルであり、

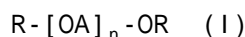
Rは、C₈-C₂₄-アルキルまたはC₈-C₂₄-アルケニルであり、

R は、H、C₁-C₈-アルキル、CHOまたはC₁-C₈-アルキルカルボニルである。]

からなる群から選択される高くとも13のHLB値を有する少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤を含む請求項12または13に記載の製剤。

【請求項15】

OS2が、C₂-C₄-アルキレンオキシドのホモ-もしくはコオリゴマー類、オリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキシドC₁-C₁₆-アルキルベンゼンエーテル類、オリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキシドモノ-、ジ-もしくはトリスチリルフェニルエーテル類、C₂-C₄-アルコキシルソルビタンモノ脂肪酸エステル類および下記式Iの化合物：



[式中、

nは、8から50の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を指し、

各Aは各場合で独立に、エタンジイルまたはプロパン-1,2-ジイルであり、

Rは、C₈-C₂₄-アルキルまたはC₈-C₂₄-アルケニルであり、

R は、H、C₁-C₈-アルキル、CHOまたはC₁-C₈-アルキルカルボニルである。]

からなる群から選択される13より高いHLB値を有する少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤を含む請求項12から14のうちのいずれか1項に記載の製剤。

10

20

30

40

50

【請求項 16】

- a)1から40重量%のピラクロストロピン；
 b)3から30重量%の20 で2g/L未満の水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒LM1；
 c)5から35重量%の20 で少なくとも2g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒LM2
 ；
 d)1から25重量%の少なくとも1種類のアニオン系界面活性剤；
 e)1から25重量%の少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤；および
 f)100重量%までの水

を含む、請求項1～15のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 17】

前記少なくとも1種類の溶媒LM2が20 で少なくとも4g/Lの水溶解度を有する請求項1～16のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 18】

前記少なくとも1種類の溶媒LM1が20 で1g/L未満の水溶解度を有する請求項1～17のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 19】

少なくとも1種類の有機着色剤をさらに含む請求項1～18のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 20】

殺菌剤、殺虫剤および除草剤からなる群から選択される少なくとも1種類の別の農薬をさらに含む請求項1～19のうちのいずれか1項に記載の製剤。

【請求項 21】

植物または種子の処理のための請求項1～20のうちのいずれか1項に記載の製剤の使用。

【請求項 22】

植物または種子を、有効量の請求項1から20のうちのいずれか1項に記載の製剤で処理する、植物または種子の処理方法。

【請求項 23】

植物病害生物、植物、土壌または植物が成長する環境を有効量の請求項1から20のうちのいずれか1項に記載の製剤と接触させる段階を有する、植物病害生物の防除方法。

【請求項 24】

前記製剤を水で希釈してから、植物または種子の処理を行う、請求項22から24のうちのいずれか1項に記載の方法。

【請求項 25】

前記処理または接触を噴霧によって行う請求項22から24のうちのいずれか1項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ピラクロストロピンの液体作物保護製剤に関する。さらに本発明は、植物および種子の処理における作物保護製剤の使用ならびに相当する方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

ピラクロストロピン(メチルN-[[[1-(4-クロロフェニル)ピラゾール-3-イル]オキシ]-o-トリル]-N-メトキシカーバメート)は、植物病原菌を防除するための活性化合物である(例えばWO96/01256およびHerms, S., Seehaus, K., Koehle, H., and Conrath, U. (2002)

Pyraclostrobin-More than just a Fungicide Phytomedizin 32:17を参照する)。ピラクロストロピンは、低い融点を有する非晶質物質である。この特性のため、粉碎装置が粉碎時に固まって止まることから、この物質は、従来の方法で水系懸濁濃縮剤を製造するには適さない。そのため、ピラクロストロピンは非常に多くの場合、乳剤の形態で製剤される。これまでに、ピラクロストロピンの結晶改変も知られており、それによって、当該

10

20

30

40

50

物質の製剤を懸濁濃縮剤として行うことが可能となる(WO06/136357を参照する)。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】WO96/01256

【特許文献2】WO06/136357

【非特許文献】

【0004】

【非特許文献1】Herms, S., Seehaus, K., Koehle, H., and Conrath, U. (2002) Pyr
aclostrobin-More than just a Fungicide Phytomedizin 32:17. 10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、ピラクロストロピンのそのような製剤には、乳剤(EC)および懸濁濃縮剤(SC)に関連する問題が伴う。従って、ピラクロストロピンを含む水系懸濁濃縮剤は、相当する乳剤と比較して良好な環境適合性および作業衛生によって区別されるが、施用特性は良好ではない。さらに、ピラクロストロピンのSC製剤とEC製剤のいずれの抗菌活性も不十分であり、各場合とも、多量の補助剤を加えることによるのみ満足なレベルに上げることが可能である。

【0006】 20

懸濁濃縮剤および乳剤に代わるものとして、マイクロエマルジョン(ME)がある。マイクロエマルジョンは、ME製剤とも称される活性化合物含有マイクロエマルジョンの場合、水および水との混和性があったとしても低い少なくとも1種類の有機溶媒を含む液体多相系であり、分散相と連続相を含み、分散相が液滴または小胞を形成するか、そうでなければ複雑な構造を形成することができるものである。通常、乳濁液と比較して、マイクロエマルジョンでは、界面の平均距離、通常は分散相の平均粒径もしくは液滴径(Z =光散乱によって測定される平均直径)は、少なくとも5倍小さく、通常は500nmを超えず、特には300nmまたは200nmを超えないが、乳濁液中の液滴はマイクロメートルの範囲の平均直径を有する。さらに別の際だった特徴として、マイクロエマルジョンは熱力学的に安定であり、乳濁液に必要とされる高いエネルギー投入なしに形成される。分散相の粒径(液滴径)は、小さ 30

【0007】

マイクロエマルジョンの形態での有機農薬の製剤は通常、製剤されるべき活性化合物に加えて、水、少なくとも1種類の界面活性剤および少なくとも1種類の共溶媒もしくは界面活性剤(通常は有機溶媒もしくは低分子量のポリアルキレンエーテルである)を含む。ME製剤は水を含むことから、施用時には、乳剤と比較して、可燃性、毒性、環境に対する損害およびコストなどのリスクが低い。しかしながら、液滴径、均一性および活性化合物の結晶化傾向に関して永久的に安定な形で、水溶性に乏しい活性化合物のマイクロエマルジョンを製剤することは困難である。さらに、水による希釈で得られる乳濁液またはマイクロエマルジョンは、安定な状態に留まり、できるだけ小さい液滴径を有するものでなければ 40

【0008】

WO02/45507には、疎水性農業化学物質、第1の溶媒としてアルカン酸アルキル、第2の溶媒としての多価アルコールもしくは多価アルコールの縮合物および界面活性剤を含むマイクロエマルジョン濃縮液が開示されている。

【0009】

WO08/017378には、農業化学的に活性な化合物(通常は除草剤)、少なくとも5個の炭素原子を有するアルコール系溶媒、非アルコール系溶媒ならびにアニオン系およびノニオン系界面活性剤を含むマイクロエマルジョン濃縮液が記載されている。

【0010】 50

従って、本発明の目的は、作物および種子の処理用のピラクロストロピンを含み、有利な特性を有する作物保護製剤を提供することにある。特に、それは、良好な施用特性、良好な水(特に硬水)による希釈性、高い安定性、均一な活性化合物分布および高い抗菌活性によって区別されるべきものである。

【課題を解決するための手段】

【0011】

驚くべきことに、これらおよび他の目的は、下記に記載の液体製剤によって達成される。

【0012】

従って本発明は、

- a) ピラクロストロピン;
- b) 20 で2g/L未満、特に1g/L未満、または最大で0.5g/Lの水溶解度を有する、少なくとも1種類の有機溶媒LM1;
- c) 20 で少なくとも2g/L、特に少なくとも4g/Lまたは少なくとも0.5g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の有機溶媒LM2(該LM2は、20 で200g/Lより高い、特に少なくとも300g/Lまたは少なくとも400g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒LM2.1および適宜に20 で2から200g/L、特に4から150g/Lまたは5から100g/Lの水溶解度を有する少なくとも1種類の溶媒LM2.2を含む);
- d) 少なくとも1種類のアニオン系界面活性剤OS1;
- e) 少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤OS2;および
- f) 水

を含む液体製剤を提供する。

【0013】

従って、本発明の別の主題は、植物または種子の処理への本発明による製剤の使用、ならびに相当する方法に関するものである。

【0014】

本発明による製剤は特に、植物および種子の処理のための、好ましくは殺菌剤および殺虫剤からなる群から選択される作物保護のための他の水不溶性有機活性化合物と組み合わせても良いピラクロストロピンの安定な水系製剤を提供する。

【0015】

代表的には、本発明による製剤はマイクロエマルジョンである。すなわち成分が、少なくとも一つの有機相および一つの水相を有する多相系を形成しており、界面の平均距離、概して分散相の平均粒子直径もしくは液滴径(Z =光散乱によって測定される平均直径)が500nm以下、特に300nmまたは200nm以下である。懸濁濃縮剤とは対照的に、本発明の製剤中の活性化合物(ピラクロストロピン)は固体ではなく、溶解形態である。従って、本発明による製剤は、ME製剤と称することもできる。

【発明を実施するための形態】

【0016】

本発明は、多くの利点を有する。そこで、本発明による製剤は、長期保存であっても安定で、固体を形成する傾向を持たない光学的に透明な均一製剤である。概して、それは-10 までの温度で液体状態に留まり、その有利な特性を失わない。

【0017】

本発明による製剤の動粘性率は、0.5Pa・s(20 で)の値を超えず、20 では非常に多くの場合、1から500mPa・sの範囲であり、特に2から200mPa・sの範囲である。

【0018】

さらに、本発明による製剤は、粒径を500nmより大きくすることなく、水で希釈することができる。最終的に、その製剤は高い抗菌活性によって区別される。施用に先だって、本発明による製剤は、例えば、単純に、多量の水により、例えば製剤1部当たり5から100部の水、特に製剤1部当たり10から500部の水によって希釈することもできる。その希釈液は通常、高い物理的安定性を有する。すなわち、例えば室温で24時間などの長期間の保

10

20

30

40

50

存であってもクリーム分離や沈降物生成は認められない。この文脈において、希釈に使用される水の性質はあまり重要ではなく、それは例えば水道水や湧水を用いることが可能であることを意味する。水で希釈すると、本発明による製剤は濁った液体または透明な液体を生成し、それは中で分散している液滴/粒子が非常に小さいことを示すものである。液滴/粒子の平均直径は、通常は500nm以下であり、非常に多くの場合で200nm以下であり、特に100nm以下であり、具体的には50nm以下である。それは、10nm以下であることもできる。長期保存後であっても小さい粒径が維持され、例えば室温で24時間後の粒径は通常、なおも500nm未満である。

【0019】

本明細書で言及される平均粒子直径は、光散乱によって測定可能な粒子直径のZ平均を表す。当業者であれば習熟している関連の方法は、文献(例えば、H. Wiese (D. Distler、著者), Waessrige Polymerdispersionen [Aqueous polymer dispersions], Wiley-VCH 1999、第4.2.1章、p.40ffおよびそこで引用されている文献;H. Auweter, D. Horn, J. Colloid Interf. Sci. 105 (1985), p. 399;D. Lilge, D. Horn, Colloid Polym. Sci. 269 (1991), p. 704およびH. Wiese, D. Horn, J. Chem. Phys. 94 (1991), p. 6429)に記載されている。水で希釈した後に粒径が小さいため、生物学的利用能、従って生理活性が従来の製剤と比較して高くなる場合が非常に多い。

【0020】

下記で使用される「アルキル」、「アルケニル」、「アルキレン」、「アリール」という用語は、各場合で、特定の有機基の総称である。この文脈において、接頭辞 C_n-C_m は各場合で、個々の有機基の炭素原子の総数を示す。溶媒に関しては、接頭辞 C_n-C_m は各場合で、個々の有機溶媒の炭素原子の総数を示すが、例外として、接頭辞 C_n-C_m が各場合で複素環の炭素原子の総数を示すN-メチルラクタム類およびN-メチル-もしくはN,N-ジメチル尿素類などのN-メチル置換複素環系溶媒があり、別の例外として接頭辞 C_n-C_m が各場合で、個々のアルキル基もしくはアルカンジイル基の炭素原子の数を示すトリアルキルホスフェート類ならびにモノ、ジおよびトリアルキルオキシアルカノール類もある。

【0021】

「アルキル」という用語は、接頭辞で言及される炭素原子数を有する飽和の直鎖、分岐もしくは環状炭化水素基を指す。従って、 C_1-C_7 -アルキルは、1から7個の炭素原子を有する飽和の直鎖、分岐もしくは環状炭化水素基を指し、例としてはメチル、エチル、プロピル、1-メチルエチル、ブチル、1-メチルプロピル、2-メチルプロピル、1,1-ジメチルエチル、ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、2,2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、シクロペンチル、ヘキシル、1,1-ジメチルプロピル、1,2-ジメチルプロピル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1,1-ジメチルブチル、1,2-ジメチルブチル、1,3-ジメチルブチル、2,2-ジメチルブチル、2,3-ジメチルブチル、3,3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1,1,2-トリメチル-プロピル、1,2,2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、ヘブチル、1-メチルヘキシル、2-メチルヘキシル、3-メチルヘキシル、4-メチルヘキシル、1,1,3-トリメチルブチル、1,2-ジメチルペンチル、1,3-ジメチルペンチル、2,2-ジメチルペンチル、2,3-ジメチルペンチル、3,3-ジメチルペンチル、3,4-ジメチルペンチル、1-エチルペンチル、2-エチルペンチル、1,1,2-トリメチルブチル、1,2,2-トリメチルブチル、1-エチル-1-メチルブチル、1-エチル-2-メチルブチル、メチルシクロヘキシル、1,2-ジメチルシクロペンチル、1,3-ジメチルシクロペンチルおよびエチルシクロペンチルなどがある。

【0022】

「 C_2-C_4 -アルキレン」という用語は、2、3もしくは4個の炭素原子を有する飽和で2価の直鎖もしくは分岐の炭化水素基を指し、例としてはエタン-1,2-ジイル、プロパン-1,3-ジイル、プロパン-1,2-ジイル、2-メチルプロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,4-ジイル、ブタン-1,3-ジイル(=1-メチルプロパン-1,3-ジイル)、ブタン-1,2-ジイルおよびブタン-2,3-ジイルなどがある。

10

20

30

40

50

【0023】

「アリール」という用語は、OおよびNからなる群から選択される1個もしくは2個のヘテロ原子を有するヘテロ芳香族基を含む芳香族基を指し、例としてはフェニル、ナフチル、アントラセニル、ピリジル、ピリル、ピラジニル、ピリミジニル、プリニル、インドリル、キノリル、イソキノリル、イミダゾリル、ピラゾリル、インダゾリル、フリル、ベンゾフリル、イソベンゾフリル、モルホリニル、オキサゾリル、ベンゾオキサゾリル、イソオキサゾリルおよびベンゾイソオキサゾリルなどがある。

【0024】

本発明による製剤は、20 で水溶解度が2g/L未満、好ましくは1g/L未満、特に0.5g/L以下である少なくとも1種類の溶媒LM1を含む。溶媒LM1は、例えば脂肪族もしくは芳香族炭化水素、植物油、脂肪酸およびそれらの誘導体などの非常に多様な非極性溶媒から選択することができる。溶媒LM1は好ましくは、沸点が100から310 である脂肪族、芳香族および脂環式炭化水素、C₈-C₂₀-アルキルフェノール類、C₈-C₂₀-アルカノール類、C₁₀-C₂₀-アルカンカルボン酸アルキル類、C₉-C₂₀-ヒドロキシアルカンカルボン酸アルキル類、C₁₂-C₂₈-シクロアルカンカルボン酸アルキル類、C₁₂-C₂₈-シクロアルカンジカルボン酸ジアルキル類、C₁₀-C₁₅-ジアルキルジカルボキシレート類、C₂₅-C₃₅-アルカントリオールアルカノエート類、N-オクチルピロリドン、C₈-C₂₆-脂肪酸類、特にC₁₂-C₂₀-脂肪酸類、それらのジアルキルアミド類、例えばそれらのジ-C₁-C₄-アルキルアミド類(例:ジメチルアミド類)、およびそれらのアルキルエステル類、例えばそれらのC₁-C₈-アルキルエステル類(例:メチルエステルおよびエチルエステル)からなる群から選択される。

【0025】

本発明の文脈において、100から310 、特に120から280 (大気圧で)の沸点を有する脂肪族炭化水素は特に、7から約18個の炭素原子を有し、大気圧で上記の範囲の沸点を有する直鎖および分岐のアルカン類またはアルケン類を指し、特にこれら脂肪族炭化水素の混合物も指す。そのような混合物は、例えばエクソール(Exxsol)の商品名で市販されており、それは主として芳香族の構成成分が取り除かれた石油を含む製品であり、例えばエクソールD30、エクソールD40、エクソールD80、エクソールD100、エクソールD120およびエクソールD220/230がある。

【0026】

本発明の文脈において、100から310 、特に120から280 (大気圧で)の沸点を有する芳香族炭化水素は、1以上の脂肪族もしくは芳香族脂肪族(araliphatic)置換基、特にアルキル基もしくはアリールアルキル基が結合していても良く、大気圧で上記の範囲の沸点を有する単環式もしくは多環式芳香族を意味するものと理解される。これは好ましくは、上記沸点範囲で特に鉱油製品の蒸留における画分として得られる芳香族炭化水素の混合物を意味するものと理解され、例えば商品名ソルベッソ(Solvesso;登録商標)、特にソルベッソ(登録商標)100、ソルベッソ(登録商標)150、ソルベッソ(登録商標)200、ソルベッソ(登録商標)150ND、ソルベッソ(登録商標)200ND、アロマティック(Aromatic;登録商標)、特にアロマティック(登録商標)150およびアロマティック(登録商標)200、ヒドロゾル(Hydrosol;登録商標)、特にヒドロゾル(登録商標)A200およびヒドロゾル(登録商標)A230/270、カロマックス(Caromax;登録商標)、特にカロマックス(登録商標)20およびカロマックス(登録商標)28、アロマト(Aromat)K150、アロマトK200、シェルゾル(Shellsol;登録商標)、特にシェルゾル(登録商標)A100およびシェルゾル(登録商標)A150、およびフィン(Fin)FAS-TX、特にフィンFAS-TS150およびフィンFAS-TX200によって知られる市販製品などがある。特に好ましいものは、発癌物質である可能性があるナフタレンが除去されている混合物ソルベッソ(登録商標)150NDおよびソルベッソ(登録商標)200ND(Exxon Mobil Chemical)である。従って、ソルベッソ(登録商標)150NDは、主として、175から209 の範囲で沸騰し、特にアルキルベンゼン類である10個もしくは11個の炭素を有する芳香族炭化水素を含み、ソルベッソ(登録商標)200NDは、235から305 の範囲で沸騰し、特にアルキルナフタレン類である10から14個の炭素を有する主として芳香族炭化水素を含む。本明細書で言及される芳香族炭化水素のさらに別の例は、1-フェニル-1-キシリルエ

10

20

30

40

50

タンおよび1-フェニル-1-エチルフェニルエタンの混合物である商品名ハイソル(Hisol)SA S-296下で知られる製品である。

【0027】

本発明の文脈において、100から310、特に120から280（大気圧で）の沸点を有する脂環式炭化水素は、非芳香族炭素環を有する飽和および不飽和の炭化水素およびそのような炭化水素の混合物を意味するものと理解される。1例としてリモネンがある。

【0028】

C_8 - C_{20} -アルキルフェノールという用語は、少なくとも1個のアルキル基によって環において置換されたフェノールを指し、 C_8 - C_{20} -アルキルフェノールは8から20個の炭素原子を含む。例としてはエチルフェノール、2-メチル-4-エチルフェノール、ジヘプチルフェノールおよびドデシルフェノールがある。

10

【0029】

C_8 - C_{20} -アルカノール類は、本明細書において、8から20個、特に8から14個の炭素原子を有するアルカノール(= C_8 - C_{14} -アルカノール)を意味するものと理解される。例としては、オクタノール、ドデカノール、トリデカノール、ノナノール、イソノナノール、2-プロピルヘプタノール、イソトリデカノールおよびエチルヘキサノールがある。

【0030】

C_{10} - C_{20} -アルカンカルボン酸アルキルは、本明細書において、特に、炭素原子の総数が10から20である、アルカノールでエステル化された C_1 - C_9 -アルカンカルボン酸を意味するものと理解される。例としては、酢酸エチルヘキシル、酢酸n-ノニル、酢酸イソボルニル、イソプロピオン酸プロピルヘプチル、酪酸n-デシル、ヘキサノ酸tert-ブチル、オクタノ酸n-ペンチル-4-エチルおよびノナン酸エチルがある。

20

【0031】

C_9 - C_{20} -ヒドロキシアルカンカルボン酸アルキルは、本明細書において、特に炭素原子の総数が9から20であるアルカノールでエステル化されたヒドロキシル化アルカンカルボン酸、特にエステル化された乳酸(乳酸エステル)を意味するものと理解される。そのアルキル基は非常に多くの場合、3から10個の炭素原子を有する。例としては、3-ヒドロキシデカン酸tert-ブチル、4-ヒドロキシオクタノ酸n-プロピル、4-ヒドロキシオクタノ酸イソプロピルヘキシル、3-プロピル-4-ヒドロキシヘキサノ酸エチル、4-ヒドロキシ酪酸n-ペンチル、3-ヒドロキシ酪酸エチルヘキシル、乳酸2-エチル-ペンチル、乳酸デシル、乳酸エチルヘキシル、ヒドロキシ酢酸n-ヘプチル、ヒドロキシ酢酸シクロヘキシルエチルおよびヒドロキシ酢酸3-イソプロピルシクロペンチルがある。

30

【0032】

C_{12} - C_{28} -シクロアルカンカルボン酸アルキルおよび C_{12} - C_{28} -シクロアルカンジカルボン酸ジアルキルは、本明細書において、炭素原子の総数が12から28である、それぞれ1個および2個のアルカノールによってエステル化された、それぞれ1個および2個のカルボキシル基によって置換されているシクロアルカンの意味するものと理解される。例としては、シクロペンタンカルボン酸ヘキシル、シクロヘキサノカルボン酸ペンチル、シクロヘキサノカルボン酸3-イソプロピルヘキシル、1,2-シクロペンタンジカルボン酸ジブチル、1,3-シクロペンタンジカルボン酸エチルブチル、1,2-シクロヘキサノジカルボン酸ジデシル、1,4-シクロヘキサノジカルボン酸メチルオクチルおよびシクロヘキサノジカルボン酸ジイソノニルがある。

40

【0033】

ジカルボン酸 C_{10} - C_{15} -ジアルキルは、本明細書において、炭素原子の総数が10から15である、2個のアルカノールを有するアルカンジカルボン酸のジエステルを意味するものと理解される。そのアルキル基は非常に多くの場合、各場合で2から8個の炭素原子を有する。例としては、シュウ酸ブチルヘキシル、シュウ酸ジペンチル、マロン酸ジイソブチル、マロン酸ジヘキシル、マロン酸エチルペンチル、コハク酸ジプロピル、コハク酸ジイソプロピル、コハク酸ジイソブチル、コハク酸ジペンチル、グルタル酸ジイソプロピル、グルタル酸ジイソブチル、グルタル酸エチルペンチル、グルタル酸ジシクロペンチル、アジピ

50

ン酸ジイソブチル、アジピン酸エチルプロピル、ピメリン酸ジイソブチルおよびピメリン酸ジエチルがある。

【0034】

アルカン酸 C_{25} - C_{35} -アルカントリオールは、本明細書において、3個のアルカン酸によってエステル化されたアルカントリオールを意味するものと理解され、アルカン酸 C_{25} - C_{35} -アルカントリオールは25から35個の炭素原子を有する。1例を挙げるとミリトール(Myritol;登録商標)312(Cognis)があり、それは C_8 - C_{10} -脂肪酸基を有するトリグリセリド類の混合物である。

【0035】

本発明の文脈において、 C_8 - C_{26} -脂肪酸は、8から26個の炭素原子を有する脂肪酸を意味するものと理解される。例としては、飽和脂肪酸であるカプリル酸、カプリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、マルガリン酸、ステアリン酸、アラキン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸およびセロチン酸;ならびにモノ不飽和脂肪酸であるウンデシレン酸、パルミトレイン酸、オレイン酸、エライジン酸、バクセン酸、イコセン酸、鯨油酸、エルカ酸およびネルボン酸;ならびに多価不飽和脂肪酸であるリノール酸、 γ -リノレン酸、 α -リノレン酸、アラキドン酸、ティムノドン酸、クルパノドン酸およびセルボン酸がある。 C_8 - C_{26} -脂肪酸のジアルキルアミドの例には、それらのジ- C_1 - C_4 -アルキルアミド類があり、例えば上記脂肪酸のジメチルアミド類、ジエチルアミド類、ジプロピルアミド類、ジイソプロピルアミド類、ジブチルアミド類、ジイソブチルアミド類、メチルエチルアミド類、メチルプロピルアミド類、メチルイソブチルアミド類、メチル-tert-ブチルアミド類、エチルプロピルアミド類、エチルイソプロピルアミド類、エチルブチルアミド類、エチルイソブチルアミド類、プロピルイソプロピルアミド類、プロピルブチルアミド類およびプロピルイソブチルアミド類であり、ジメチルアミド類が特に好ましい。 C_8 - C_{26} -脂肪酸のアルキルエステル類の例には、それらの C_1 - C_8 -アルキルエステル類があり、例えば上記脂肪酸のメチルエステル類、エチルエステル類、プロピルエステル類、イソプロピルエステル類、ブチルエステル類、イソブチルエステル類、tert-ブチルエステル類、1-メチルプロピルエステル類、ペンチルエステル類、1-メチルブチルエステル類、2-メチルブチルエステル類、3-メチルブチルエステル類、ヘキシルエステル類、1-メチルペンチルエステル類、2-メチルペンチルエステル類、1-エチルブチルエステル類および1,2-ジメチルブチルエステル類、ヘプチルエステル類、1-メチルヘキシルエステル類、2-メチルヘキシルエステル類、3-メチルヘキシルエステル類、4-メチルヘキシルエステル類、5-メチルヘキシルエステル類、1-エチルペンチルエステル類、2-エチルペンチルエステル類、3-エチルペンチルエステル類、4-エチルペンチルエステル類、1,2-ジメチルペンチルエステル類、1,3-ジメチルペンチルエステル類、1,4-ジメチルペンチルエステル類、2,3-ジメチルペンチルエステル類およびエチル2-メチルブチルエステル類であり、メチルおよびエチルエステル類が特に好ましい。

【0036】

好ましい実施形態によれば、本発明による製剤は、 C_8 - C_{26} -脂肪酸類、それらのジ- C_1 - C_4 -アルキルアミド類(例えば、ジメチルアミド類)、ジカルボン酸 C_{10} - C_{15} -ジアルキル類、 C_9 - C_{20} -ヒドロキシアルカンカルボン酸アルキル類から選択される少なくとも1種類の溶媒LM1を含み、特には大気圧で100から310 の範囲の沸点を有する合計で9から20個の炭素原子を有する乳酸エステルおよび芳香族炭化水素である。特に好ましい実施形態によれば、本発明による製剤は、 C_{12} - C_{20} -脂肪酸類、例えば市販品のエデノール(Edenor;登録商標)T105(Cognis)(製造者によれば、高オレイン酸含有率の脂肪酸混合物である)、 C_{12} - C_{20} -脂肪酸のジメチルアミド類、例えば市販品のアグニーク(Agnique;登録商標)KE3658、アグニーク(登録商標)KE3308、アグニーク(登録商標)AMD10、アグニーク(登録商標)810(Cognis)、ゲナゲン(Genagen)4166、ゲナゲン4296(Clariant)、ハルコミド(Hallcomid)M-10およびハルコミドM-8-10(Stepan)(脂肪酸ジメチルアミド類またはこれらの混合物である)、大気圧で120から280 の範囲の沸点を有する芳香族炭化水素、例えばソルベッソ(Solvesso;登録商標)150NDおよびソルベッソ(登録商標)200NDおよび匹敵する製品、乳酸2-エチルヘキ

10

20

30

40

50

シルなどの合計9から13個の炭素原子を有する C_6 - C_{10} -アルキル乳酸エステル類、ならびに合計で10から15個の炭素原子を有するジカルボン酸ジイソブチル類、例えばコハク酸、グルタル酸およびアジピン酸のジイソブチルエステル類の工業的混合物からなる群から選択される少なくとも1種類の溶媒LM1を含む。

【0037】

本発明の製剤に含まれる溶媒LM1の合計量は、ピラクロストロピン、界面活性剤OS1およびOS2、溶媒LM2および適宜の別の成分の量、ならびにそれらの特性によって決まる。溶媒LM1のピラクロストロピン合計量に対する重量比は、通常、0.05:1から20:1の範囲、好ましくは0.1:1から10:1の範囲、特に0.5:1から5:1の範囲である。未希釈製剤の総重量に基づいて、溶媒LM1の割合は、通常は0.5から40重量%、好ましくは3から30重量%、特に5から20重量%である。

【0038】

本発明による製剤はさらに、水溶解度が20 で少なくとも2g/L、好ましくは少なくとも4g/L、特に少なくとも5g/Lである少なくとも1種類の溶媒LM2を含み、LM2は水溶解度が20 で200g/Lより高い、好ましくは少なくとも300g/L、特に少なくとも400g/Lである少なくとも1種類の溶媒LM2.1および適宜に1種類以上の水溶解度が20 で2から200g/L、好ましくは4から150g/L、特に5から100g/Lである溶媒LM2.2を含む。

【0039】

溶媒LM2は、非常に多数の弱極性ないし極性の有機溶媒から選択することができる。それは好ましくは、 C_5 - C_{12} -アルカンカルボン酸アルコキシアシル類、ジメチルスルホキシド(DMSO)、 C_3 - C_6 -アルキレンカーボネート類、N,N -ジメチル- C_3 - C_4 -アルキレン尿素類、 C_3 - C_5 -ラクトン類、N-メチル- C_3 - C_5 -ラクタム類、リン酸トリ- C_1 - C_4 -アルキル類、 C_5 - C_9 -アルカンカルボン酸アルキル類、ジカルボン酸 C_5 - C_9 -ジアルキル類、 C_5 - C_9 -ケトン類、アルカン酸 C_5 - C_9 -アルカンジオール類、アルカン酸 C_5 - C_9 -アルカントリオール類、 C_1 - C_7 -アルカノール類、 C_5 - C_9 -シクロアルキルアルコール類、モノ、ジおよびトリ-(C_1 - C_4 -アルキルオキシ)- C_1 - C_4 -アルカノール類、脂肪族 C_2 - C_{10} -ジオール類、脂肪族 C_3 - C_{15} -トリオール類、 C_5 - C_9 -アリーラルキルアルコール類、 C_5 - C_9 -アリーラルオキシアシルアルコール類、ヒドロキシル化 C_5 - C_8 -アルカンカルボン酸エステル類およびテトラヒドロフルフリルアルコールからなる群から選択される。

【0040】

従って、溶媒LM2.1は好ましくは、DMSO、 C_3 - C_5 -アルキレンカーボネート類、N,N -ジメチル- C_3 - C_4 -アルキレン尿素類、 C_3 - C_5 -ラクトン類、N-メチル- C_3 - C_5 -ラクタム類、リン酸トリ- C_1 - C_4 -アルキル類、 C_1 - C_3 -アルカノール類、モノ、ジおよびトリ-(C_1 - C_4 -アルキルオキシ)- C_1 - C_4 -アルカノール類、脂肪族 C_2 - C_8 -ジオール類、脂肪族 C_3 - C_{12} -トリオール類、ヒドロキシル化 C_4 - C_8 -アルカンカルボン酸エステル類およびテトラヒドロフルフリルアルコールからなる群から選択される。特に好ましくは、LM2.1は、 C_3 - C_5 -ラクトン類、ヒドロキシル化 C_5 - C_8 -アルカンカルボン酸エステル類、 C_1 - C_3 -アルカノール類、脂肪族 C_2 - C_8 -ジオール類および脂肪族 C_3 - C_{12} -トリオール類からなる群から選択され、特に γ -ブチロラクトン、乳酸n-プロピル、2-メチル-2,4-ペンタンジオール(ヘキシレングリコール)、テトラヒドロフルフリルアルコールおよびプロピレングリコールからなる群から選択される。

【0041】

同様に、溶媒LM2.2は好ましくは、 C_5 - C_{12} -アルカンカルボン酸アルコキシアシル類、 C_5 - C_9 -アルカンカルボン酸アルキル類、ジカルボン酸 C_5 - C_9 -ジアルキル類、 C_5 - C_9 -ケトン類、 C_5 - C_9 -アルカンジオールアルカン酸エステル類、 C_5 - C_9 -アルカントリオールアルカン酸エステル類、 C_4 - C_7 -アルカノール類、脂肪族 C_7 - C_{10} -ジオール類、脂肪族 C_{11} - C_{15} -トリオール類、 C_5 - C_9 -シクロアルキルアルコール類、 C_5 - C_9 -アリーラルキルアルコール類および C_5 - C_9 -アリーラルオキシアシルアルコール類からなる群から選択される。特に好ましくは、LM2.2は、 C_5 - C_9 -ケトン類および C_5 - C_9 -アリーラルキルアルコール類からなる群から選択される。

10

20

30

40

50

【0042】

C₅-C₁₂-アルカンカルボン酸アルコキシアルキル類は、本明細書において、炭素原子の総数が5から12であるアルカンカルボン酸のアルコキシアルカノールとのエステルと理解される。例としては、ギ酸イソプロポキシメチル、エチレングリコールエチルエーテルホルメート、エチレングリコールブチルエーテルホルメート、エチレングリコール2-メチルブチルエーテルホルメート、エチレングリコールペンチルエーテルホルメート、ギ酸イソプロポキシメチル、ギ酸イソプロポキシエチル、ギ酸イソプロポキシ-tert-ブチル、酢酸エトキシメチル、酢酸イソプロポキシメチル、エチレングリコールメチルエーテルアセテート、エチレングリコールエチルエーテルアセテート、エチレングリコールプロピルエーテルアセテート、エチレングリコールブチルエーテルアセテート、エチレングリコールtert-ブチルエーテルアセテート、プロピレングリコールメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールエチルエーテルアセテート、プロピレングリコールプロピルエーテルアセテート、プロピレングリコールイソプロピルエーテルアセテート、酢酸メトキシプロピル、酢酸エトキシプロピル、酢酸プロポキシプロピル、酢酸イソプロポキシプロピル、エチレングリコールメチルエーテルブチレート、エチレングリコールエチルエーテルブチレート、プロピレングリコールメチルエーテルブチレート、プロピレングリコールメチルエーテル2-メチルプロピレート、酪酸イソプロポキシメチル、tert-酪酸プロポキシメチル、酪酸メトキシプロピル、2-メチルプロパン酸メトキシプロピル、エチレングリコールメチルエーテルペンタノエート、エチレングリコールメチルエーテル3-メチルブチレート、プロピオン酸プロポキシプロピル、酪酸ブトキシエチル、プロピレングリコールペンチルエーテルアセテート、プロピレングリコールブチルエーテルペンタノエートおよび酪酸ペントキシプロピルがある。

【0043】

ここで、C₃-C₅-アルキレンカーボネート類とは、特に、3、4または5個の合計炭素原子を有するカルボン酸の環状ジエステル類を指し、例えばエチレンカーボネート、1,2-プロピレンカーボネート、1,3-プロピレンカーボネート、1,2-、1,3-、1,4-および2,3-ブチレンカーボネートである。

【0044】

本発明の文脈において、「少なくとも一つのヒドロキシル基を有するC₄-C₈-アルカンカルボン酸エステル」および「ヒドロキシル化C₄-C₈-アルカンカルボン酸エステル」という用語は、アルカノールでエステル化されたアルカンカルボン酸のエステル類であって、酸由来のアルキル基またはアルコール由来のアルキル基のいずれかが少なくとも一個のヒドロキシル基によって置換されており、炭素原子の総数が4から8であるものを指す。ヒドロキシル基の総数は代表的には1または2であり、特に1である。ヒドロキシル化アルカンカルボン酸類の例には5-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシ吉草酸、2-ヒドロキシ吉草酸、4-ヒドロキシ酪酸、3-ヒドロキシ酪酸、2-ヒドロキシ酪酸、3-ヒドロキシプロピオン酸、乳酸およびヒドロキシ酢酸がある。ヒドロキシル化アルカノール類の例には、ペンタン-1,5-ジオール、ペンタン-1,3-ジオール、ペンタン-2,4-ジオール、シクロペンタン-1,2-ジオール、ブタン-1,4-ジオール、ブタン-2,3-ジオール、プロパン-1,2-ジオール、2-(ヒドロキシメチル)ブタノール、2-(ヒドロキシエチル)プロパノール、2-(ヒドロキシメチル)プロパノールおよびエタン-1,2-ジオールがある。ヒドロキシル化C₅-C₈-アルカンカルボン酸エステル類の例には、4-ヒドロキシ酪酸n-ブチル、3-ヒドロキシ酪酸イソブチル、4-ヒドロキシ酪酸n-プロピル、4-ヒドロキシ酪酸イソプロピル、3-ヒドロキシ酪酸イソプロピル、4-ヒドロキシ酪酸メチル、4-ヒドロキシ酪酸エチル、乳酸2-エチルプロピル、乳酸2-メチルプロピル、乳酸n-プロピル、乳酸イソプロピル、乳酸n-ブチル、乳酸イソブチル、乳酸エチル、乳酸メチル、乳酸シクロペンチル、ヒドロキシ酢酸n-ヘキシル、ヒドロキシ酢酸シクロヘキシル、ヒドロキシ酢酸3-メチルシクロペンチル、ヒドロキシ酢酸n-ペンチル、ヒドロキシ酢酸2-メチルペンチル、ヒドロキシ酢酸n-ブチル、ヒドロキシ酢酸tert-ブチル、ヒドロキシ酢酸n-プロピル、ヒドロキシ酢酸イソプロピル、酢酸5-ヒドロキシペンチル、プロピオン酸3-ヒドロキシシクロペンチル、酢酸3-ヒドロキシブチル、酢酸3-

ヒドロキシプロピル、プロピオン酸3-ヒドロキシペンチル、プロピオン酸3-ヒドロキシシクロペンチル、プロピオン酸2-ヒドロキシメチルブチル、プロピオン酸3-ヒドロキシプロピル、プロピオン酸2-ヒドロキシエチル、酪酸2-ヒドロキシメチルプロピル、酪酸3-ヒドロキシプロピル、酪酸2-ヒドロキシエチル、吉草酸3-ヒドロキシプロピルおよび吉草酸2-ヒドロキシエチルがある。

【0045】

本発明の文脈において、脂肪族 C_2 - C_{12} -ジオールは、2個のヒドロキシル基を有する脂肪族で直鎖もしくは分岐の炭化水素を意味するものと理解され、例としては、グリコール、1,2-プロパングジオール、1,2-ブト-3-エンジオール、1,5-ペンタンジオール、2,4-ペンタンジオール、2-メチル-2,4-ペンタンジオール(ヘキシレングリコール)、1,6-ヘキサングジオール、2,5-ヘキサングジオール、1,6-ヘクス-3-エンジオール、3-メチル-2,4-ヘキサングジオール、1,7-ヘプタンジオール、2,6-ヘプタンジオール、1,8-オクタンジオール、2,7-オクタンジオール、1,3-シクロヘキサングジオール、1,2-シクロ-ヘキサングジオール、1,2-シクロヘクス-4-エンジオール、1,4-シクロヘキサングジオール、1,2-シクロヘプタンジオール、4-プロピル-5-エチル-1,2-シクロヘプタンジオール、2-メチル-4,6-デカンジオールおよび1,2-ドデカンジオールがある。

10

【0046】

本発明の文脈において、脂肪族 C_3 - C_{18} -トリオールは、3個のヒドロキシル基を有する脂肪族直鎖もしくは分岐の炭化水素を意味するものと理解され、例えばグリセリン、1,2,4-ブタントリオール、1,2,3-ペンタントリオール、2,3,4-ペンタントリオール、1,2,3-ヘキサントリオール、1,2,5-ヘキサントリオール、1,2,3-ヘプタントリオール、1,6,7-ヘプタントリオール、2,3,6-ヘプタントリオール、1,2,3-オクタントリオール、1,2,3-オクト-5-エントリオール、2,3,4-オクタントリオール、1,2,8-オクタントリオール、2,3,7-オクタントリオール、1,2,3-シクロヘキサントリオール、1,3,5-シクロヘキサントリオール、1,2,4-シクロヘキサントリオール、1,2,3-シクロヘプタントリオール、1,2,6-シクロヘプタントリオール、1,2,3-ノナントリオール、2,5,10-ドデカントリオール、2,4,6-トリメチル-1,8,12-ドデカントリオール、8-ヘプチル-1,2,3-ウンデカントリオールがある。

20

【0047】

リン酸トリ- C_1 - C_4 -アルキルは、互いに独立に選択される3個の C_1 - C_4 -アルカノールを有するリン酸のトリエステルを意味するものと理解され、例としてはリン酸トリメチル、リン酸トリエチル、リン酸トリ-n-プロピル、リン酸トリエチル、リン酸トリ-n-ブチル、リン酸トリエチル、リン酸メチルジエチル、リン酸ジメチルエチル、リン酸メチルジ-n-プロピル、リン酸メチルエチルn-プロピル、リン酸エチル2-メチルプロピルメチル、リン酸ジエチルn-プロピル、リン酸ジメチルイソブチル、リン酸ジエチルn-ブチル、リン酸n-プロピルイソブチルn-ブチルおよびリン酸ジメチルtert-ブチルがある。

30

【0048】

C_5 - C_9 -アルカンカルボン酸アルキルは、本明細書において、特に炭素原子の総数が5から9である、アルカノールでエステル化されたアルカンカルボン酸を意味するものと理解される。例としては、酢酸イソプロピル、酢酸n-プロピル、酢酸イソブチル、酢酸tert-ブチル、酢酸n-ペンチル、酢酸シクロペンチル、酢酸n-ヘキシル、酢酸3-メチルシクロペンチル、酢酸シクロヘキシル、酢酸n-ヘプチル、酢酸3-メチルシクロヘキシル、プロピオン酸n-プロピル、プロピオン酸イソプロピル、プロピオン酸n-ブチル、プロピオン酸tert-ブチル、プロピオン酸n-ペンチル、イソプロピオン酸n-プロピル、プロピオン酸シクロプロピル、イソプロピオン酸シクロプロピル、イソプロピオン酸イソプロピル、イソプロピオン酸n-ブチル、イソプロピオン酸tert-ブチル、イソプロピオン酸n-ペンチル、プロピオン酸n-ヘキシル、プロピオン酸シクロヘキシル、酪酸エチル、酪酸n-プロピル、酪酸イソプロピル、酪酸n-ブチル、酪酸tert-ブチル、tert-酪酸エチル、tert-酪酸n-プロピル、tert-酪酸イソプロピル、tert-酪酸n-ブチル、tert-酪酸tert-ブチル、酪酸n-ペンチル、ペンタン酸メチル、ペンタン酸エチル、ペンタン酸プロピル、ペンタン酸イソプロピル、ペンタン酸n-ブチル、ヘキサン酸メチル、ヘキサン酸エチル、ヘキサン酸イソプロ

40

50

ピル、ヘプタン酸メチル、ヘプタン酸エチルおよびオクタン酸メチルがある。

【0049】

ここで、モノ、ジまたはトリ-(C₁-C₄-アルキルオキシ)-C₁-C₄-アルカノールとは、C₁-C₄-アルカノール、C₁-C₄-アルキルオキシ-C₁-C₄-アルカノールまたはC₁-C₄-アルキルオキシ-C₁-C₄-アルキルオキシ-C₁-C₄-アルカノールでエーテル化されたC₁-C₄-アルカンジオールを指す。例としては、エチレングリコールメチルエーテル、エチレングリコールエチルエーテル、プロピレングリコールエチルエーテル、ジエチレングリコールメチルエーテル、ジプロピレングリコールエチルエーテル、トリエチレングリコールメチルエーテルおよびトリプロピレングリコールブチルエーテルがある。

【0050】

ジカルボン酸C₅-C₉-ジアルキルは、本明細書において、炭素原子の総数が5から9、特に5、6、7または8である、互いに独立に選択される2個のアルカノールを有するアルカンジカルボン酸のジエステルを意味するものと理解される。例としては、シュウ酸エチルメチル、シュウ酸ジエチル、シュウ酸エチルプロピル、シュウ酸エチルイソプロピル、シュウ酸ジプロピル、シュウ酸プロピルイソプロピル、シュウ酸エチルブチル、シュウ酸メチルペンチル、シュウ酸プロピルブチル、マロン酸ジメチル、マロン酸メチルエチル、マロン酸ジエチル、マロン酸プロピルエチル、マロン酸イソプロピルエチル、マロン酸メチルプロピル、マロン酸メチルイソプロピル、マロン酸ジプロピル、コハク酸ジメチル、コハク酸エチルメチル、コハク酸ジエチル、コハク酸メチルプロピル、コハク酸メチルイソプロピル、コハク酸エチルプロピル、グルタル酸ジメチル、グルタル酸エチルメチル、グルタル酸ジエチル、アジピン酸ジメチル、アジピン酸エチルメチルおよびピメリン酸ジメチルがある。

【0051】

本発明の文脈において、「C₅-C₉-ケトン類」という用語は、5から9個の炭素原子を有するアルコキシ化されていても良い脂肪族、シクロ脂肪族および芳香族脂肪族ケトン類を含み、それには例えば、2-ペンタノン、3-ペンタノン、2-ヘキサノン、3-ヘキサノン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2-オクタノン、3-オクタノン、4-オクタノン、4-メチル-2-ペンタノン、5-メチル-2-ヘキサノン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、シクロヘプタノン、シクロオクタノン、シクロヘキシルカルボキシメタン、アセトフェノンおよびメトキシアセトフェノンなどがある。

【0052】

C₅-C₉-アリールアルキルアルコール(=C₅-C₉-アリールアルカノール)は、アリール基によって置換されているアルカノールであって、C₅-C₉-アリールアルキルアルコールが合計で5から9個の炭素原子を有するものを意味するものと理解される。例としては、ベンジルアルコール、2-フェニルエタノール、1-フェニルエタノール、フェニルプロパノール、ピリジン-1-イルメタノール、ピリジン-3-イルメタノール、1-ピリジン-3-イルエタノール、ピリジニルブタノール、ピリミジン-1-イルメタノール、ピリミジン-1-イルエタノール、2-ピリミジン-3-イルプロパノール、フラン-2-イルメタノール、2-フラン-2-イルエタノール、3-フラン-3-イルプロパノールおよび4-フラン-2-イルブタノールがある。

【0053】

C₅-C₉-アリールオキシアルキルアルコール(=C₅-C₉-アリールオキシアルカノール)は、本明細書において、アリールオキシ基によって置換されたアルカノールであって、C₅-C₉-アリールオキシアルキルアルコールが合計で5から9個の炭素原子を有するものを意味するものと理解される。例としては、フェノキシメタノールおよびフェノキシイソプロパノールがある。

【0054】

ここで、C₅-C₉-シクロアルキルアルコール類とは、5から9個の炭素原子を有する環状アルカノール類を指し、例えばシクロペンタノール、シクロヘキサノール、シクロヘプタノールおよびシクロオクタノールなどがある。

【0055】

10

20

30

40

50

C₅-C₉-アルカンジオールアルカノエートは、本明細書において、2個のアルカン酸でエステル化されたアルカンジオールであって、C₅-C₉-アルカンジオールアルカノエートが合計で5から9個の炭素原子を有するものを意味するものと理解される。例としては、ジアセチン、グリコールジアセテート、グリコールジプロピオネート、グリセリンジプロピオネートおよびプロピレングリコールジアセテートがある。

【0056】

C₅-C₉-アルカントリオールアルカノエートは本明細書において、3個のアルカン酸でエステル化されたアルカントリオールであって、C₅-C₉-アルカントリオールアルカノエートが5から9個の炭素原子を有するものを意味するものと理解される。1例としては、トリアセチンである。

10

【0057】

N,N -ジメチル-C₃-C₄-アルキレン尿素は、環に3または4個の炭素原子を有する環状尿素の二重にN-メチル化された誘導体を意味するものと理解される。N,N -ジメチル-C₃-C₄-アルキレン尿素の1例は、N,N -ジメチルエチレン尿素(1,3-ジメチルインダゾリン-2-オン)である。

【0058】

C₃-C₅-ラクトンは、環中に3、4または5個の炭素原子を有するヒドロキシカルボン酸の環状エステルを意味するものと理解される。C₃-C₅-ラクトンの1例には、 γ -ブチロラクトンがある。

20

【0059】

N-メチル-C₃-C₅-ラクタムは、環中に3、4または5個の炭素原子を有するラクタムのN-メチル化誘導体を意味するものと理解される。N-メチル-C₃-C₅-ラクタムの例にはN-メチルピロリドンおよびN-メチルピペリドンがある。

【0060】

好ましい実施形態では、本発明による製剤は、水溶解度が20 で2から100g/Lである少なくとも1種類の溶媒LM2.2を含み、それは例えば、C₇-C₁₂-アルカンカルボン酸アルコキシアルキル類、C₅-C₉-アルカンカルボン酸アルキル類、ジカルボン酸C₅-C₉-ジアルキル類、C₆-C₉-ケトン類、C₅-C₉-アルカンジオールアルカノエート類、C₅-C₉-アルカントリオールアルカノエート類、C₄-C₇-アルカノール類、脂肪族C₈-C₁₀-ジオール類、脂肪族C₁₂-C₁₅-トリオール類、C₅-C₉-シクロアルキルアルコール類、C₅-C₉-アリールアルキルアルコール類およびC₅-C₉-アリーロキシアルキルアルコール類からなる群から選択され、好ましくはC₆-C₉-ケトン類およびC₅-C₉-アリールアルキルアルコール類からなる群から選択され、特にアセトフェノン、シクロヘキサノン、2-ヘプタノンおよびベンジルアルコールからなる群から選択される。

30

【0061】

別の好ましい実施形態では、本発明による製剤は、20 で水溶解度が200g/Lより高い、好ましくは少なくとも300g/L、特に少なくとも400g/Lである少なくとも2種類の溶媒LM2.1を含む。特に好ましい実施形態によれば、これら2種類の溶媒LM2.1のうちの1種類は完全に水溶性であり、特別に好ましい実施形態によれば、対象となる両方の溶媒LM2.1は完全に水溶性である。そのような完全に水溶性の溶媒LM2.1は、例えばDMSO、C₂-C₄-アルキレンカーボネート類、C₃-C₅-ラクトン類、N-メチル-C₃-C₅-ラクタム類、C₁-C₃-アルカノール類、モノ、ジおよびトリ-(C₁-C₃-アルキルオキシ)-C₁-C₃-アルカノール類、脂肪族C₂-C₆-ジオール類、脂肪族C₃-C₉-トリオール類、ヒドロキシ化C₅-C₈-アルカンカルボン酸エステル類およびテトラヒドロフルフリルアルコールからなる群から選択することができる。特に γ -ブチロラクトン、乳酸n-プロピル、DMSO、2-メチル-2,4-ペンタンジオールおよびプロピレングリコールからなる群から選択することができる。最後に言及した実施形態による2種類の完全水溶性溶媒LM2.1の例には、プロトン性溶媒LM2.1、好ましくは脂肪族C₂-C₆-ジオールもしくは脂肪族C₃-C₉-トリオールとヒドロキシ化C₅-C₈-アルカンカルボキシレートまたはC₃-C₅-ラクトンなどの非プロトン性溶媒LM2.1の組み合わせがある。これらの組み合わせのうち、プロピレングリコールまたはヘキシレングリコールおよび

40

50

-ブチロラクトンまたは乳酸n-プロピルからなるものが好ましい。

【0062】

さらに別の好ましい実施形態によれば、本発明による製剤は、低温安定性を高めるための不凍剤として働くこともできる少なくとも1種類の溶媒LM2.1を含む。そのような溶媒LM2.1の例には、脂肪族C₂-C₆-ジオール類がある。

【0063】

本発明の製剤中に含まれる溶媒LM2の総量は通常、ピラクロストロピン、界面活性剤OS1およびOS2、溶媒LM1および適宜の別の成分の量ならびにそれらの特性によって決まる。溶媒LM2およびピラクロストロピンの総量の重量比は、通常は0.05:1から30:1の範囲であり、好ましくは0.1:1から10:1の範囲であり、特に0.15:1から5:1の範囲である。未希釈の製剤の総重量に基づく、溶媒LM2の割合は、通常は1から60重量%、好ましくは5から35重量%、特に10から30重量%である。

10

【0064】

好ましい実施形態では、本発明による製剤は、少なくとも1種類の溶媒LM1および少なくとも1種類の、例えば1種類または2種類の溶媒LM2.1を含む。さらに別の好ましい実施形態によれば、それらはさらに、溶媒LM2.2を含む。

【0065】

本発明による製剤は、少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤OS2および少なくとも1種類のアニオン系界面活性剤OS1を含む。界面活性剤という用語は、表面活性物質を指し、以下においては乳化剤もしくは洗剤とも称される。界面活性剤の目的は、連続相と分散相の間の表面張力を低下させることで、分散相の粒子/液滴を安定化させることにある。界面活性剤は、ピラクロストロピンおよび作物保護のための適宜の別の有機活性化合物を可溶化させる上でも役立つ。当業者であれば、例えばマカッチャン(McCutcheon, Detergents and Emulsifiers, Int. Ed., Ridgewood, New York)を通じて、マイクロエマルジョンを製剤する上で好適な界面活性剤については熟知している。界面活性剤は、ポリマー性または非ポリマー性界面活性剤であることができる。好ましくは、マイクロエマルジョンに存在する界面活性剤の主要な部分、特に少なくとも90%、具体的には全てが、乳化剤とも称される非ポリマー性界面活性剤の群から選択される。通常、非ポリマー性界面活性剤(乳化剤)は、9000ダルトン以下、特に150から6000ダルトン、好ましくは200から3000ダルトンの平均分子量(数平均)を有する。

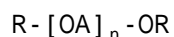
20

30

【0066】

ノニオン系界面活性剤の群には特に、
-C₂-C₄-アルキレンオキサイドのホモポリマーおよびコポリマー、特にエチレンオキサイドのホモポリマー、エチレンオキサイドのC₃-C₄-アルキレンオキサイドとのコポリマー、特にエチレンオキサイド/プロピレンオキサイドコポリマー(この文脈では、「ホモポリマーおよびコポリマー」という用語は、通常は少なくとも5個の繰り返し単位を有するオリゴマー物質も含む)；

-下記式の化合物：



[式中、

nは、2から50の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を指し、

各Aは各場合で独立に、エタンジイル、プロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,2-ジイルまたは2-メチルプロパン-1,2-ジイルであり、

Rは、直鎖もしくは分岐のC₈-C₂₄-アルキルまたはC₈-C₂₄-アルケニルであり、

R は、H、C₁-C₈-アルキル、CHOまたはC₁-C₈-アルキルカルボニルである。

【0067】

(これらの例は、オリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキサイドC₈-C₂₂-アルキルエーテル類、特に直鎖および分岐のC₈-C₂₂-アルカノールのエトキシレート類およびエトキシレート-コ-プロポキシレート類、好ましくは脂肪族アルコールのエトキシレート類およびエトキシレート-コ-プロポキシレート類およびオキシアルコールのエトキシレート類があり、例え

40

50

ば、ラウリルアルコールエトキシレート、イソトリデカノールエトキシレート、セチルアルコールエトキシレート、ステアリルアルコールエトキシレートおよびそれらのエステル類(例えば、酢酸エステル類)である。)];

-オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドアリールエーテル類およびオリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキサイドC₁-C₂₂-アルキルアリールエーテル類、例えば、オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドC₁-C₁₆-アルキルベンゼンエーテル類、特にC₁-C₂₂-アルキルフェノールのエトキシレート類、例えば、ノニルフェノール、デシルフェノール、イソデシルフェノール、ドデシルフェノールまたはイソトリデシルフェノールのエトキシレートなど;

-オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドモノ、ジもしくはトリスチリルフェニルエーテル類、特にモノ、ジおよびトリスチリルフェノールのエトキシレート類、およびそれらのホルムアルデヒドとの縮合物、ならびにそれらのエステル類、例えば酢酸エステルなど;

-C₆-C₂₂-アルキルグルコシド類およびC₆-C₂₂-アルキルオリゴグルコシド類;

-C₆-C₂₂-アルキルグルコシドのエトキシレート類およびC₆-C₂₂-アルキルオリゴグルコシドのエトキシレート類;

-脂肪酸のエトキシレート類およびヒドロキシル脂肪酸のエトキシレート類;

-多価アルコールのC₆-C₂₂-アルカン酸による部分エステル類、特にグリセリンのモノおよびジエステル類およびソルビタンのモノ、ジおよびトリエステル類、例えばグリセリンモノステアレート、ソルビタンモノドデカノエート、ソルビタンジオレエートおよびソルビタントリステアレート;

-多価アルコールのC₆-C₂₂-アルカン酸との部分エステルのエトキシレート類、特にグリセリンのモノおよびジエステルのエトキシレート類およびソルビタンのモノ、ジおよびトリエステルのエトキシレート類、例えば、グリセリンモノステアレートのエトキシレート類、ソルビタンモノオレエートのエトキシレート類、ソルビタンモノステアレートのエトキシレート類およびソルビタントリステアレートのエトキシレート類など;

-植物油または動物脂肪のエトキシレート類、例えばトウモロコシ油エトキシレート、ヒマシ油エトキシレート、トール油エトキシレートなど;

-例えば、2,4,7,9-テトラメチル-4,7-ジヒドロキシ-5-デシンなどのアセチレングリコール類;

-エチレンオキサイド/プロピレンオキサイドブロックコポリマー;および

-脂肪族アミンまたは脂肪酸ジエタノールアミドのエトキシレート類

などがある。

【0068】

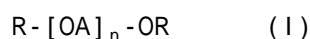
オリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキサイドエーテルまたはオリゴ-C₂-C₄-アルキレンオキサイドという用語は、エチレンオキサイド、プロピレンオキサイド(=1-メチルオキシラン)、1,2-ブチレンオキサイド(=1-エチルオキシラン)および2-メチルプロピレンオキサイド(=1,1-ジメチルオキシラン)などのC₂-C₄-アルキレンオキサイドから誘導されるオリゴエーテル基を指す。従って、オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドエーテルという用語は、エチレンオキサイドおよびプロピレンオキサイドなどのC₂-C₃-アルキレンオキサイドから誘導されるオリゴエーテル基を指す。エトキシレートという用語は、エチレンオキサイドから誘導されるオリゴエーテル基を指す。同様に、オリゴエチレンオキサイド・コ-オリゴプロピレンオキサイドという用語は、エチレンオキサイドとプロピレンオキサイドの混合物から誘導されるポリエーテル基を指す。オリゴエーテル基における繰り返し単位の数は、通常は2から120であり、非常に多くの場合で4から80であり、特に5から60である。

【0069】

上記のノニオン系界面活性剤の中では、下記のもの:

-C₂-C₃-アルキレンオキサイド類のホモポリマーまたはコポリマー;

-下記式Iの化合物:



[式中、

nは、2から50の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を指し、

10

20

30

40

50

各Aは各場合で独立に、エタンジイル、プロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,2-ジイルまたは2-メチルプロパン-1,2-ジイルであり、

Rは、直鎖もしくは分岐のC₈-C₂₄-アルキルまたはC₈-C₂₄-アルケニルであり、

R は、H、C₁-C₈-アルキル、CHOまたはC₁-C₈-アルキルカルボニルである。];

-オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドC₁-C₁₆-アルキルベンゼンエーテル類;

-オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドモノ、ジまたはトリスチリルフェニルエーテル類

;

-グリセリンまたはソルビタンの脂肪酸との部分エステル類;および

-ソルビタンのモノ脂肪酸エステルのエトキシレート類

が好ましく、そして

上記で言及したノニオン系界面活性剤の混合物も好ましい。

【0070】

本発明の文脈において特に好ましいノニオン系界面活性剤には、オリゴエチレンオキサイドC₈-C₂₂-アルキルエーテル類、オリゴエチレンオキサイド・コ-オリゴプロピレンオキサイドC₈-C₂₂-アルキルエーテル類、エチレンオキサイド/プロピレンオキサイドブロックコポリマー類、ソルビタンのモノ脂肪酸エステル類、エトキシ化ソルビタンモノ脂肪酸エステル類およびモノ、ジもしくはトリスチリルフェノールエトキシレート類、およびこれらの混合物などがある。

【0071】

本発明の好ましい実施形態では、製剤の成分OS2は、異なるHLB値を有する少なくとも2種類のノニオン系界面活性剤を含む。特に好ましい実施形態によれば、その少なくとも2種類のノニオン系界面活性剤は、

OS2.1: 高くとも13、特に5から13、具体的には6から12のHLB値を有する少なくとも1種類の界面活性剤;および

OS2.2: 13より高い、特に13.5から18、具体的には14から17のHLB値を有する少なくとも1種類の界面活性剤

である。

【0072】

本発明の文脈において、「HLB値」(「親水性-親油性バランス」)という用語は、界面活性剤の親水性と親油性の程度の尺度である。HLB値は、分子の界面活性剤特性を予測するのに用いることができる。デビースの方法(Davies, J.T., Proceedings of the International Congress of Surface Activity, 1957, 426-438)の方法によれば、この値は、下記式を用いて計算される。

【0073】

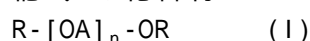
$$HLB=7+m \cdot H^h+n \cdot H^l$$

式中、

mは分子の親水性基の数を表し、H^hは親水性基の特異的な親水的特徴に相当する値であり、nは分子の親油性基の数を表し、H^lは親油性基の特異的な親水的特徴に相当する値である。

【0074】

高くとも13のHLB値を有するノニオン系界面活性剤OS2.1は、高くとも13、特に5から13、または6から12のHLB値を有する上記で言及した全てのノニオン系界面活性剤の中から選択することができる。好適な界面活性剤OS2.1は、特にオリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドC₈-C₂₂-アルキルベンゼンエーテル類、ソルビタンのモノ脂肪酸エステル類、オリゴ-C₂-C₃-アルキレンオキサイドモノ、ジもしくはトリスチリルフェニルエーテル類および下記式Iの化合物:



[式中、

nは、2から20の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を指し、

各Aは各場合で独立に、エタンジイル、プロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,2-ジイルまた

10

20

30

40

50

は2-メチルプロパン-1,2-ジイルであり、

Rは、直鎖もしくは分岐の C_8-C_{24} -アルキルまたは C_8-C_{24} -アルケニルであり、

R は、H、 C_1-C_8 -アルキル、CHOまたは C_1-C_8 -アルキルカルボニルである。]を含む。

【0075】

好ましくは前記少なくとも1種類のノニオン系界面活性剤OS2.1は、ソルビタンのモノ脂肪酸エステルまたは

nが、2から20の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を示し、

各Aが各場合で独立に、エタンジイル、プロパン-1,2-ジイル、ブタン-1,2-ジイルまたは2-メチルプロパン-1,2-ジイルであり、

Rが、直鎖もしくは分岐の C_8-C_{24} -アルキルまたは C_8-C_{24} -アルケニルであり、

R が、H、 C_1-C_8 -アルキル、CHOまたは C_1-C_8 -アルキルカルボニルである式Iの化合物である。

【0076】

特に好ましいものは、直鎖もしくは分岐の C_8-C_{22} -アルカノールのエトキシレート類およびエトキシレート-コ-プロポキシレート類からなる群から選択される式Iのノニオン系界面活性剤OS2.1である。そのような好ましい界面活性剤の例には、商品名ルテンゾル(Lutensol;登録商標)T03、ルテンゾル(登録商標)T05およびルテンゾル(登録商標)T07(BASF)で市販されている分岐 C_{13} -アルコールのエトキシレート類があり、商品名プルラファク(Plurafac)LF300、プルラファクLF401およびプルラファクLF1200(BASF)で市販されている脂肪族アルコールのエトキシレート-コ-プロポキシレート類もある。

【0077】

13より高いHLB値を有するノニオン系界面活性剤OS2.2は、13より高い、特に13.5から18または14から17のHLB値を有する上記の全てのノニオン系界面活性剤の中から選択することができる。好適な界面活性剤OS2.2には、特に C_2-C_3 -アルキレンオキシドのホモオリゴマーおよびコオリゴマー類、オリゴ- C_2-C_3 -アルキレンオキシド C_8-C_{22} -アルキルベンゼンエーテル類、オリゴ- C_2-C_3 -アルキレンオキシドモノ、ジもしくはトリスチリルフェニルエーテル類ならびに下記式Iの化合物:



[式中、

nは、8から50の範囲の繰り返し単位[OA]の平均数を示し、

各Aは各場合で独立に、エタンジイルまたはプロパン-1,2-ジイルであり、

Rは、直鎖もしくは分岐の C_8-C_{24} -アルキルまたは C_8-C_{24} -アルケニルであり、

R は、H、 C_1-C_8 -アルキル、CHOまたは C_1-C_8 -アルキルカルボニルである。]

などがある。

【0078】

特に好ましいものは、プロピレンオキシド/エチレンオキシドブロックコポリマー類、オリゴエチレンオキシドトリスチリルフェニルエーテル類および直鎖もしくは分岐の C_8-C_{22} -アルカノールのエトキシレート類である式Iの化合物からなる群から選択される界面活性剤OS2.2である。そのような好ましい界面活性剤の例には、商品名ソプロホル(Soprophor;登録商標)(Rhodia)、特にソプロホル(登録商標)S25およびソプロホル(登録商標)S40で市販されているトリスチリルフェニルのエトキシレート類、または商品名プルロニク(Pluronic;登録商標)PE(BASF)、特にプルロニク(登録商標)PE6200およびプルロニク(登録商標)PE6400で市販されているプロピレンオキシド/エチレンオキシドブロックコポリマー類、または商品名ルテンゾル(登録商標)(BASF)、特にルテンゾル(登録商標)T015で市販されている分岐 C_{13} -アルコールのエトキシレート類がある。

【0079】

本発明に従って好適なアニオン系界面活性剤OS1には特に、

-例えば、ラウリルスルホネートおよびイソトリデシルスルホネートなどの C_6-C_{22} -アルキルスルホネート類;

-例えば、ラウリルサルフェート、イソトリデシルサルフェート、セチルサルフェート

10

20

30

40

50

およびステアリルサルフェートなどの C_6 - C_{22} -アルキルサルフェート類；

-アリアルスルホネート類、特に、例えばクミルスルホネート、オクチルベンゼンスルホネート、ノニルベンゼンスルホネートおよびドデシルベンゼンスルホネート、ナフチルスルホネート、モノおよびジ- C_1 - C_{16} -アルキルナフチルスルホネート類(例えば、ジブチルナフチルスルホネートなど)などの C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンスルホネート；

-例えば、ドデシルジフェニルエーテルジスルホネートなどのモノおよびジ- C_1 - C_{16} -アルキルジフェニルエーテル(ジ)スルホネート類；

-脂肪酸および脂肪酸エステル類のサルフェート類およびスルホネート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_8 - C_{22} -アルキルエーテルサルフェート類、特に C_8 - C_{22} -アルカノールのエトキシレートのサルフェート類、例えば、ラウリルアルコールのエトキシレートのサルフェート類など；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンエーテルサルフェート類、特に C_1 - C_{16} -アルキルフェノールのエトキシレートのサルフェート類；

-スルホコハク酸のジ- C_4 - C_{18} -アルキルエステル類(または C_4 - C_{18} -ジアルキルスルホンスクシネート)、例えばジオクチルスルホスクシネートなど；

-ナフタレンスルホン酸、 C_1 - C_{16} -アルキルナフタレンスルホン酸またはフェノールスルホン酸のホルムアルデヒドとの縮合物(または C_1 - C_{16} -ナフタレンスルホネート/ホルムアルデヒド縮合物、 C_1 - C_{16} -アルキルナフタレンスルホネート/ホルムアルデヒド縮合物およびフェノールスルホネート/ホルムアルデヒド縮合物)；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイドモノ、ジおよびトリスチリルフェニルエーテルサルフェート類、特にモノ、ジおよびトリスチリルフェノールのエトキシレート類；

-モノおよびジ- C_8 - C_{22} -アルキルサルフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_8 - C_{22} -アルキルエーテルホスフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンエーテルホスフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイドモノ、ジおよびトリスチリルフェニルエーテルホスフェート類；

-オリゴエチレンオキサイドポリカルボキシレート類、特に3から8個の炭素原子を有するモノエチレン不飽和モノもしくはジカルボン酸のホモおよびコオリゴマー類(コオリゴマーはさらに、オリゴエチレンオキサイド側鎖を有する)；

-例えばステアリン酸などの脂肪酸類；および

-例えば、ヘキサメタホスフェート類およびトリホスフェート類(またはトリポリホスフェート類)などのポリホスフェート類；

ならびにこれらの混合物のナトリウム塩、カリウム塩、カルシウム塩およびアンモニウム塩などがある。

【 0 0 8 0 】

上記のアニオン系界面活性剤の中から、好ましいものは、

- C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンスルホネート類；

- C_1 - C_{16} -アルキルナフタレンスルホネート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_8 - C_{22} -アルキルエーテルサルフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_8 - C_{22} -アルキルエーテルホスフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンエーテルサルフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンエーテルホスフェート類；

- C_8 - C_{22} -アルキルサルフェート類；

- C_4 - C_{18} -ジアルキルスルホスクシネート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイドモノ、ジおよびトリスチリルフェニルエーテルサルフェート類；

-オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイドモノ、ジおよびトリスチリルフェニルエーテルホ

10

20

30

40

50

スフェート類；

-オリゴエチレンオキサイドポリカルボキシレート類；および

-ポリホスフェート類；および

これらの混合物のナトリウム塩、カリウム塩、カルシウム塩およびアンモニウム塩である。

【0081】

特に好ましいアニオン系界面活性剤OS1には、 C_1 - C_{16} -アルキルベンゼンスルホネート類、オリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイドモノ、ジおよびトリスチリルフェニルエーテルサルフェート類、 C_4 - C_{18} -ジアルキルスルホスクシネート類およびオリゴ- C_2 - C_3 -アルキレンオキサイド C_8 - C_{22} -アルキルエーテルホスフェート類の塩、特にナトリウム塩、カリウム塩、カルシウム塩およびアンモニウム塩などがある。そのような好ましい界面活性剤の例には、商品名ウェットル(Wettol；登録商標)EM1(BASF)下で販売されているドデシルベンゼンスルホネート、それぞれ商品名ソプロホル(Soprophor)DSS15およびソプロホル4D384(Rhodia)下で市販されている15または16個のエトキシル単位を有するエトキシル化ジおよびトリスチリルフェノールサルフェート、商品名ルテンシト(Lutensit)A-B0で入手可能なジオクチルスルホスクシネート、および18から20個のアルキレンオキサイド基(エトキシル単位とプロポキシル単位の比は約2:1である)を有するアルコキシル化 C_{13} -および C_{15} -脂肪族アルコールの酸性リン酸エステル類である市販品ルテンシト(登録商標)A-EP(BASF)がある。

10

【0082】

本発明による製剤中のアニオン系界面活性剤OS1およびノニオン系界面活性剤OS2の重量比は、好ましくは0.1:1から10:1の範囲、特に好ましくは0.25:1から4:1の範囲である。

20

【0083】

好ましい実施形態によれば、本発明による製剤は、好ましくは2種類のアニオン系物質OS1と1種類のノニオン系物質OS2または2種類のノニオン系物質OS2と1種類のアニオン系物質OS1のいずれかである3種類の界面活性剤を含む。2種類の物質OS2が存在する後者の場合、これらは好ましくは、異なるHLB値を有する物質であり、特にHLB値が高くとも13である物質OS2.1およびHLB値が13より高い少なくとも1種類のノニオン系物質OS2.2である。

【0084】

本発明の製剤に含まれる界面活性剤OS1およびOS2の総量は概して、ピラクロストロピン、適宜の別の作物保護用活性化合物および溶媒LM1およびLM2の量、ならびにそれらの特性によって決まる。界面活性剤の総量のピラクロストロピンなどの作物保護用の活性化合物の総量に対する重量比は、通常は0.3:1から30:1の範囲、好ましくは0.5:1から20:1の範囲、特に1:1から7:1の範囲である。希釈されていない製剤の総重量に基づくと、界面活性剤の割合は、通常は5から55重量%、好ましくは10から50重量%、特に12から45重量%である。

30

【0085】

希釈されていない製剤の総重量に基づくと、アニオン系界面活性剤OS1の割合は、通常は0.5から30重量%であり、好ましくは1から25重量%であり、特に6から22.5重量%である。

40

【0086】

希釈されていない製剤の総重量に基づくと、ノニオン系界面活性剤OS2の割合は、通常は0.5から30重量%であり、好ましくは1から25重量%であり、特に6から22.5重量%である。

【0087】

本発明の製剤に含まれる界面活性剤OS1およびOS2ならびに溶媒LM1およびLM2(=有機溶媒)の総量は、通常は使用されるピラクロストロピンの量ならびに適宜の別の作物保護用有機活性化合物の種類および量によって決まる。界面活性剤OS1およびOS2と有機溶媒LM1およびLM2のピラクロストロピンなどの作物保護用活性化合物に対する重量比は、通常は50:1から0.5:1の範囲であり、好ましくは30:1から1:1の範囲であり、特に15:1から2:1の範

50

囲である。希釈されていない製剤の総重量に基づくと、界面活性剤+溶媒の割合は、通常は10から95重量%であり、好ましくは20から85重量%であり、特に40から80重量%である。

【0088】

本発明による製剤は、製剤の総重量に基づいて1から50重量%、非常に多くの場合1から40重量%、特に2から25重量%または5から20重量%の濃度でピラクロストロピンを含む。ピラクロストロピンに加えての作物保護用の1以上の別の活性化合物の場合、作物保護用の活性化合物の合計濃度は、製剤の総重量に基づいて通常は1から50重量%の範囲、非常に多くの場合1から50重量%の範囲、特に2から25重量%の範囲または5から20重量%の範囲である。

10

【0089】

本発明による製剤は、水も含む。希釈されていない製剤の総重量に関して、水の量は、基本的に1から80重量%の範囲であり、非常に多くの場合5から50重量%の範囲であり、特に10から40重量%の範囲であり、好ましくは15から30重量%の範囲である。水の量および残りの成分の量で合計100重量%となることは明らかである。

【0090】

本発明の好ましい実施形態において、本発明による製剤は、

a) 1から50重量%、非常に多くの場合1から40重量%、特に2から25重量%または5から20重量%のピラクロストロピン；

b) 0.5から40重量%、非常に多くの場合3から30重量%、特に5から20重量%の少なくとも1種類の上記で定義の溶媒LM1、特に好ましいもしくは特に好ましいものとして言及した溶媒LM1のうちの少なくとも1種類；

c) 1から60重量%、非常に多くの場合5から35重量%、特に10から30重量%の少なくとも1種類の上記で定義の溶媒LM2、特に好ましいもしくは特に好ましいものとして言及した溶媒LM2のうちの少なくとも1種類；

d) 0.5から30重量%、非常に多くの場合0.5から27.5重量%または1から25重量%、特に6から22.5重量%の少なくとも1種類の上記で定義のアニオン系界面活性剤OS1、特に好ましいもしくは特に好ましいものとして言及した界面活性剤OS1のうちの少なくとも1種類；

e) 0.5から30重量%、非常に多くの場合0.5から27.5重量%または1から25重量%、特に6から22.5重量%の少なくとも1種類の上記で定義のノニオン系界面活性剤OS2、特に好ましいもしくは特に好ましいものとして言及した界面活性剤OS2のうちの少なくとも1種類；

f) 100重量%までの、例えば1から80重量%の範囲、非常に多くの場合5から50重量%の範囲、特に10から40重量%の範囲、特別には15から30重量%の範囲の量での水を含む。

【0091】

記載の重量%は、各場合で、本発明による製剤の総重量に基づいたものである。

【0092】

成分a)からe)の比に関して、特に界面活性剤d)+e)の総量に関して、溶媒b)+c)の総量に関して、界面活性剤d)+e)と溶媒b)+c)の総量に関して、界面活性剤d)+e)の総量のピラクロストロピン+可能な別の作物保護用活性成分に対する比に関して、界面活性剤d)+e)の総量の溶媒b)+c)の総量に対する比に関して、そして界面活性剤d)+e)および溶媒b)+c)の総量のピラクロストロピン+可能な別の作物保護用活性成分に対する比に関して、上記で言及した内容が当てはまる。

40

【0093】

ピラクロストロピンに加えて、本発明による製剤は、活性上昇および/または施用スペクトラムの拡大を目的として、作物保護用の別の活性化合物を含むことができる。しかしながら通常、ピラクロストロピンが唯一の活性化合物であるか、製剤中に含まれる活性化合物の少なくとも80重量%を構成している。

【0094】

50

さらに、本発明の製剤は、例えば、泡止め剤(消泡剤)、保存剤(殺細菌剤)、安定剤、増粘剤および水系農薬製剤で一般に使用される他の物質などの従来の補助剤を含むことができる。これら補助剤の合計量は、通常は希釈されていない製剤の重量の15重量%以下であり、特に10重量%以下である。個々の補助剤の量は、不凍剤を除き、5重量%、特に3重量%を超えない。

【0095】

好適な泡止め剤は、例えばポリジメチルシロキサンなどのポリシロキサン類、長鎖アルコール類、有機フッ素化合物、脂肪酸およびそれらの塩、ならびにこれらの混合物を含む。泡止め剤は通常、製剤1リットル当たり0.1から5gの量で用いられる。

【0096】

本発明による組成物の細菌感染を防止するための好適な保存剤には、ホルムアルデヒド、パラ-ヒドロキシ安息香酸のアルキルエステル類、安息香酸ナトリウム、2-プロモ-2-ニトロプロパン-1,3-ジオール、オルト-フェニルフェノール、ジクロロフェン、ベンジルアルコール・ヘミホルマール、例えばアルキルイソチアゾリノン類およびベンゾイソチアゾリノン類などのチアゾリノンおよびイソチアゾリノン誘導体、5-クロロ-2-メチル-4-イソチアゾリノン、ペンタクロロフェノール、2,4-ジクロロベンジルアルコール、ならびにこれらの混合物などがある。好適な市販の殺細菌剤製品の例には、プロキセル(Proxel;登録商標)(ICI)、アクチサイド(Acticide;登録商標)RS(Thor Chemie)、カトン(Kathon;登録商標)(Rohm & Haas)およびアクチサイドMBS(Thor Chemie)がある。概して、保存剤の量は、製剤1リットル当たり0.1から10gとなる。

【0097】

好適な安定剤には、例えば、桂皮酸エステル類、3,3-ジフェニル-2-シアノアクリレート類、ヒドロキシルおよび/またはアルコキシ置換されたベンゾフェノン類、N-(ヒドロキシフェニル)-ベンゾトリアゾール類、ヒドロキシフェニル-s-トリアジン類、オキサリ amid 類およびサリチル酸誘導体などのUV吸収剤、例えばUVINUL(登録商標)3000、3008、3040、3048、3049、3050、3030、3035、3039、3088、UVINUL(登録商標)MC80、ならびに例えばアスコルビン酸、クエン酸、立体障害アミン類(sterically hindered amines)(HALS化合物と称される)などのフリーラジカル捕捉剤、例えばUVINUL(登録商標)4049H、4050H、5050Hなど、ならびにビタミンEなどの酸化防止剤などがある。好ましい実施形態において、安定剤はクエン酸またはアスコルビン酸である。通常、安定剤の量は、製剤1リットル当たり0.01から10gの範囲となる。

【0098】

増粘剤(すなわち、製剤に対して流動挙動の変化、すなわち静止時の高粘度および攪拌状態での低粘度を付与する化合物)の例には、キサンタンガム(Kelzan;登録商標、Kelco)、ロドポール(Rhodopol;登録商標)23(Rhone Poulenc)またはビーガム(Veegum;登録商標)(R.T.Vanderbilt)などの多糖類ならびにアッタクレ(Attaclay;登録商標)(Engelhardt)などの有機および無機層ミネラルがある。

【0099】

好適な不凍剤には、例えば、エタノール、イソプロパノール、n-ブタノール、イソブタノールなどのC₁-C₄-アルカノール類、およびグリセリン、エチレングリコール、ヘキシレングリコールおよびプロピレングリコールなどのC₂-C₆-ポリオール類、ならびにこれらの混合物がある。

【0100】

本発明による製剤を種子の処理に用いる場合、その製剤は、例えば粉衣またはコーティングを目的とした種子の処理で使用されるさらなる一般的成分を含むことができる。上記の成分に加えて、これには、特に着色剤および粘着付与剤などがある。

【0101】

着色剤の例には、水に難溶である顔料と水に可溶である染料の両方がある。挙げることができる例には、ローダミンB、C.I.ピグメントレッド112およびC.I.ソルベントレッド1、さらにはピグメントブルー15:4、ピグメントブルー15:3、ピグメントブルー15:2、ピグ

10

20

30

40

50

メントブルー15:1、ピグメントブルー80、ピグメントイエロー1、ピグメントイエロー13、ピグメントレッド112、ピグメントレッド48:2、ピグメントレッド48:1、ピグメントレッド57:1、ピグメントレッド53:1、ピグメントオレンジ43、ピグメントオレンジ34、ピグメントオレンジ5、ピグメントグリーン36、ピグメントグリーン7、ピグメントホワイト6、ピグメントブラウン25、ベーシックバイオレット10、ベーシックバイオレット49、アシッドレッド51、アシッドレッド52、アシッドレッド14、アシッドレッドブルー9、アシッドイエロー23、ベーシックレッド10、ベーシックレッド108の名称で知られる染料がある。

【0102】

増粘剤または粘着付与剤および接着剤の例には、エチレンオキサイドまたはプロピレンオキサイドブロックポリマー系界面活性剤ならびにポリビニルアルコール類、ポリ酢酸ビニル類、部分加水分解ポリ酢酸ビニル類、ポリビニルピロリドン類、ポリアクリレート類、ポリメタクリレート類、ポリブテン類、ポリイソブテン類、ポリスチレン類、ポリエチレンアミン類、ポリエチレンアミド類、ポリエチレンジイミン類(ルパソール(Lupasol;登録商標)、ポリミン(Polymin;登録商標))、ポリエーテル類および上記のポリマーから誘導されるコポリマーがある。

10

【0103】

上記の一般的な補助剤は、本発明による組成物の調製時に、あるいは即時使用組成物の調製における水による希釈の際もしくはその後に加えることができる。

【0104】

概して、本発明のマイクロエマルジョンは、見かけ上均質な液体が生成するまで、構成成分を単純に混合することで調製することができる。構成成分を加える順序は、あまり重要ではないのが普通である。例えば、構成成分を容器に入れればよく、そうして得られた混合物を、例えば攪拌によって、均質液体が生成するまで均質化する。しかしながら、最初に溶媒LM1および/またはLM2のうち少なくとも一つまたは界面活性剤OS1および/またはOS2のうち少なくとも一つとこれら溶媒の混合物に作物保護用の有機活性化合物を溶解させ、例えば溶液を水に加えたり、水を溶液に加えることで、得られた溶液を水および残りの構成成分と混合することも可能である。混合時の温度およびさらに別の混合条件は、あまり重要ではない。通常、構成成分の混合は、10 から90、特に10 から60の温度で実施する。例えば35 または45 またはそれ以上という比較的高い温度が、マイクロエマルジョンの形成を加速する上で好都合である可能性がある。他方、混合は原則として、比較的低い温度、約10 から35で行うこともできる。

20

30

【0105】

ピラクロストロピン以外にさらに存在する可能性がある作物保護用の活性化合物の性質に応じて、本発明による製剤は、多数の害虫を防除する上で有用であり、植物作物および種子ならびに無生物材料の処理と家庭用の目的の両方に用いることができる。

【0106】

本発明の文脈において、「病害生物」または「有害生物」は、作物保護用の有機活性化合物、すなわち農薬、特に殺菌剤および殺菌剤の他の農薬との混合物を用いて駆除するかまたは防除することのできるあるゆる種類の病害生物を意味するものと理解される。従って、病害生物という用語は、植物病原性生物、特に有害菌類およびそれらの孢子だけでなく、有害な昆虫、クモ類、線虫および有害植物も含む。「防除」という用語は、治療的処理、すなわち感染した植物の本発明による製剤による処理と予防的処理、すなわち病害生物による感染に対する予防のための植物の処理の両方を含む。

40

【0107】

従って本発明は、

-病害生物、特に植物病害生物の防除への本明細書に記載の製剤の使用;ならびに
-有害生物、特に植物病害生物の防除方法であって、有害生物、その生息場所、その宿主(植物および種子など)および土壌、それが成長するか成長すると考えられる区域および環境、さらには植物病原性生物による攻撃または感染から保護されるべき資材、植

50

物、種子、土壌、表面もしくは空間を、有効量の本発明による製剤と接触させる段階を有する方法

に関するものでもある。

【0108】

本発明の別の態様は、種子などの植物を保護する上での、特に有害生物、特に有害菌類による攻撃に対して有用な植物を保護する上での本明細書に記載の製剤の使用に関するものである。従って本発明は、例えば有害な菌類、昆虫、クモ類、線虫および有害植物などの植物病害生物の防除、特に有害菌類の防除のための当該製剤の使用に関するものでもある。

【0109】

作物保護において、本発明による製剤は、特に自体公知の方法で、茎葉処理殺菌剤、種子粉衣殺菌剤および土壌処理殺菌剤として植物病原菌の防除に使用することができる。

【0110】

それらは、コムギ、ライムギ、オオムギ、ライコムギ、カラスムギ、イネ、トウモロコシ、イネ科草本(grass)、バナナ、ワタ、ダイズ、コーヒー、サトウキビ、ブドウ、果実および観賞植物および野菜(キュウリ、マメ、トマト、ジャガイモおよびカボチャ等)等の各種作物植物、ならびにこれらの植物の種子での多数の菌類類を防除するのに特に重要である。

【0111】

特に、ピラクロストロピンの本発明による製剤により、原則的に、ピラクロストロピンの公知の製剤で防除可能でもある有害菌類によって引き起こされる全ての病害の防除が可能である。存在していても良い個々の混合相手に応じて、その病害は例えば、下記の植物病害である。

【0112】

-野菜、ナタネ、甜菜、ダイズ、穀類、ワタ、果物およびイネに対するアルタナリア(*Alternaria*)種(例えば、ジャガイモおよび他の植物に対するアルタナリア・ソラニ(*A. solani*)またはアルタナリア・アルタルナタ(*A. alternata*))、

-甜菜および野菜に対するアフアノミセス(*Aphanomyces*)種、

-ワタおよびイネに対するアスコチタ(*Ascochyta*)種、

-トウモロコシ、穀類、イネおよび芝生に対するビポラリス(*Bipolaris*)種およびドレクスレラ(*Drechslera*)種(例えば、オオムギに対するドレクスレラ・テレス(*D. teres*)、コムギに対するドレクスレラ・トリトシ・レペンティス(*D. tritici-repentis*))、

-穀類に対するブルメリア・グラミニス(*Blumeria graminis*)(ウドンコ病)、

-イチゴ、野菜、花およびブドウに対するボトリティス・シネレア(*Botrytis cinerea*)(灰色カビ病)、

-ワタに対するボトリオジプロジア(*Botryodiplodia*)種、

-レタスに対するブレミア・ラクツカエ(*Bremia lactucae*)、

-トウモロコシ、ダイズ、イネおよび甜菜に対するセルコスボラ(*Cercospora*)種(例えば、甜菜に対するセルコスボラ・ベチクラ(*C. beticola*))、

-トウモロコシ、穀類、イネに対するコクリオボラス(*Cochliobolus*)種(例えば、穀類に対するコクリオボラス・サチプス(*Cochliobolus sativus*)、イネに対するコクリオボラス・ミヤベアヌス(*Cochliobolus miyabeanus*))、

-ダイズ、ワタおよび他の植物に対するコリネスボラ(*Corynespora*)種、

-ダイズ、ワタおよび他の植物に対するコレトトリクム(*Colletotricum*)種(例えば、各種植物に対するコレトトリクム・アクタツム(*C. acutatum*))、

-穀類およびイネに対するクルブラリア(*Curvularia*)種、

-穀類およびイネに対するディプロディア(*Diplodia*)種、

-トウモロコシに対するエクセロヒルム(*Exserohilum*)種、

-ウリ科植物に対するエリシフェ・シコラセアルム(*Erysiphe cichoracearum*)およびスファエロテカ・フリギネア(*Sphaerotheca fuliginea*)、

10

20

30

40

50

- 各種植物に対するフザリウム (*Fusarium*) 種およびベルチシリウム (*Verticillium*) 種 (例えば、ベルチシリウム・ダーリエ (*V. dahliae*)) (例：コムギに対するフザリウム・グラミネアルム (*F. graminearum*))、
- 穀類に対するゲウマノミセス・グラミニス (*Gaeumanomyces graminis*)、
- 穀類およびイネに対するギベレラ (*Gibberella*) 種 (例えば、イネに対するギベレラ・フジクロイ (*Gibberella fujikuroi*))、
- イネに対する穀粒着色複合体、
- トウモロコシおよびイネに対するヘルミントスポリウム (*Helminthosporium*) 種 (例えば、ヘルミント・グラミニコラ (*H. graminicola*))、
- ダイズおよびワタに対するマクロフォミナ (*Macrophomina*) 種、
- ミクロドキウム (*Microdochium*) 種 (例：穀類に対するミクロドキウム・ニバレ (*M. nivale*))、
- 穀類、バナナおよび落花生に対するマイコスフェレラ (*Mycosphaerella*) 種 (コムギに対するマイコスフェレラ・グラミニコラ (*M. graminicola*)、バナナに対するマイコスフェレラ・フィジエシス (*M. fijiesis*))、
- ダイズに対するフェオイサリプシス (*Phaeoisariopsis*) 種、
- ファコプサラ (*Phakopsara*) 種 (例：ダイズに対するファコプサラ・パキリジ (*P. pachyrhizi*) およびファコプサラ・メイボミアエ (*P. meibomiae*))、
- ダイズに対するフォマ (*Phoma*) 種、
- ダイズ、ヒマワリおよびブドウに対するフォモプシス (*Phomopsis*) 種 (ブドウに対するフォモプシス・ビチコラ (*P. viticola*)、ヒマワリに対するフォモプシス・ヘリアンチイ (*P. helianthii*))、
- ジャガイモおよびトマトに対するフィトフトラ・インフェスタンス (*Phytophthora infestans*)、
- ブドウに対するプラスモパラ・ビチコラ (*Plasmopara viticola*)、
- ダイズおよびワタに対するペネシリウム (*Penecilium*) 種、
- リンゴに対するポドスフェラ・ロイコトリカ (*Podosphaera leucotricha*)、
- 穀類に対するシュードセルコスポレラ・ヘルポトリコイデス (*Pseudocercospora helipotrichoides*)、
- ホップおよびウリ科植物に対するシュードペロノスポラ (*Pseudoperonospora*) 種 (例えば、キュウリに対するシュードペロノスポラ・クベニス (*P. cubensis*))、
- 穀類、トウモロコシおよびアスパラガスに対するプシニア (*Puccinia*) 種 (コムギに対するプシニア・トリチシナ (*P. tritricina*) およびプシニア・ストリホルミス (*P. striiformis*))、アスパラガスに対するプシニア・アスパラギ (*P. asparagi*))、
- 穀類に対するピレノフォラ (*Pyrenophora*) 種、
- イネに対するピリクラリア・オリザエ (*Pyricularia oryzae*)、コルチシウム・ササキイ (*Corticium sasakii*)、サロクラジウム・オリザエ (*Sarocladium oryzae*)、サロクラジウム・アテヌアツム (*S. attenuatum*)、エンチロマ・オリザエ (*Entyloma oryzae*)、
- 芝生および穀類に対するピリクラリア・グリセア (*Pyricularia grisea*)、
- 芝生、イネ、トウモロコシ、ワタ、ナタネ、ヒマワリ、甜菜、野菜および他の植物に対するピチウム (*Pythium*) 種、
- ワタ、イネ、ジャガイモ、芝生、トウモロコシ、ナタネ、ジャガイモ、甜菜、野菜および他の植物に対するリゾクトニア (*Rhizoctonia*) 種 (例えば、リゾクトニア・ソラニ (*R. solani*))、
- イネおよび穀類に対するリンコスポリウム (*Rynchosporium*) 種 (例：リンコスポリウム・セカリス (*R. secalis*))、
- ナタネ、ヒマワリおよび他の植物に対するスクレロチニア (*Sclerotinia*) 種 (例えば、スクレロチニア・スクレロチオルム (*S. sclerotiorum*))、
- コムギに対するセプトリア・トリチシ (*Septoria tritici*) およびスタゴノスポラ・ノドルム (*Stagonospora nodorum*)、

10

20

30

40

50

-ブドウに対するエリシフェ(Erysiphe)(同義語：ウンシヌラ・ネカトル(Uncinula necator))、

- トウモロコシおよび芝生に対するセトスパエリア(Setospaeria)種、
- トウモロコシに対するスファセロテカ・レイリニア(Sphacelotheca reilinia)、
- ダイズおよびワタに対するチエバリオブシス(Thievaliopsis)種、
- 穀類に対するチレチア(Tilletia)種、
- 穀類、トウモロコシおよび甜菜に対するウスチラゴ(Ustilago)種、および
- リンゴおよびナシに対するベンチュリア(Venturia)種(赤カビ病)(例えば、リンゴに対するベンチュリア・イナエクアリス(V. inaequalis))。

【0113】

本発明による製剤は、他の作物保護用の活性化化合物の製剤と併用して、活性上昇および/または施用スペクトラムの拡大を行うことができる。ここで、「作物保護用の活性化化合物」という用語は、広く解釈すべきものであり、有害生物による攻撃に対して植物を保護する物質、植物に損傷を与える生物を殺すか、その成長を防止する物質、ならびに植物の健康状態を改善するのに役立つ物質を含む、有用な植物の成長に対する効果、すなわち成長を促進または低下させる効果を有する物質を含む。作物保護用の活性化化合物には、例えば

- 殺菌剤、すなわち植物病原菌を殺すか、その成長を防止するか、そのような植物病原菌による有用植物の感染を低下させる活性化化合物；
- 殺虫剤、殺ダニ剤および殺線虫剤、すなわち植物に害を与える節足動物もしくは線虫を殺すか、有用植物への侵入が効果的に防止されるか、これらの有害生物による植物への侵入を低下させるような形でそれら動物の発育を妨害する活性化化合物；
- 除草剤、すなわち有害な植物を殺すか、その成長を低下もしくは防止する活性化化合物；
- 成長調節剤、すなわち植物の成長を促進または低下させる活性化化合物；
- 薬害軽減剤、すなわち有用植物に対して上記物質が引き起こす植物毒性効果を低下もしくは防止する活性化化合物；および
- 肥料

などがある。

【0114】

好適な作物保護用活性化化合物は、例えばW. Kramer and U. Schirmer (編) Modern Crop Protection Compounds Vol. 2, Wiley-VHC 2007、C.D.S. Tomlin, The Pesticide Manual, 13th Edition, British Crop Protection Council (2003)、および The Compendium of Pesticide Common Names, <http://www.alanwood.net/pesticides/>から公知である。

【0115】

本発明による製剤とともに施用しても良い好適な作物保護用活性化化合物は特には、ピラクロストロピンと通常併用されるものである。

【0116】

- ピラクロストロピンの代表的な殺菌性の混合相手は、例えば、
- ・ベナラキシル、メタラキシル、オフレース、オキサジキシルなどのアシルアラニン類、
 - ・アルジモルフ、ドジン、ドデモルフ、フェンプロピモルフ、フェンプロピジン、グアザチン、イミノクタジン、スピロキサミン、トリデモルフなどのアミン誘導体、
 - ・ピリメタニル、メパニピリムまたはシプロジニルなどのアニリノピリミジン類、
 - ・シクロヘキシミド、グリセオフルピン、カスガマイシン、ナタマイシン、ポリオキシンまたはストレプトマイシンなどの抗生物質、
 - ・ピテルタノール、プロモコナゾール、シプロコナゾール、ジフェノコナゾール、ジニオコナゾール(diniconazole)、エポキシコナゾール、フェンブコナゾール、フルキンコナゾール、フルシラゾール、ヘキサコナゾール、イマザリル、メトコナゾール、ミクロブ

10

20

30

40

50

タニル、ペンコナゾール、プロピコナゾール、プロクロラズ、プロチオコナゾール、テブコナゾール、トリアジメホン、トリアジメノール、トリフルミゾール、トリチコナゾールなどのアゾール類、

・イプロジオン、ミクロゾリン、プロシミドン、ピンクロゾリンなどのジカルボキシイミド類、

・ファーバム、ナーバン、マンネブ、マンコゼブ、メタム、メチラム、プロピネブ、ポリカーバメート、チラム、ジラム、ジネブなどのジチオカーバメート類、

・アニラジン、ベノミル、ボスカリド、カルベンダジム、カルボキシシン、オキシカルボキシシン、シアゾファミド、ダゾメット、ジチアノン、ファミキサドン、フェンアミドン、フェナリモル、フベリダゾール、フルトラニル、フラメトピル、イソプロチオラン、メプロニル、ヌアリモル、プロベナゾール、プロキナジド(proquinazid)、ピリフェノックス、ピロキロン、キノキシフェン、シルチオフアム、チアベンダゾール、チフルザミド、チオファネート-メチル、チオファネート-エチル、チアジニル、トリシクラゾール、トリホリンなどの複素環化合物、

・ビナパクリル、ジノカップ、ジノブトン、ニトロフタル-イソプロピルなどのニトロフェニル誘導体、

・フェンピクロニルまたはフルジオキソニルなどのフェニルピロール類、

・硫黄、

・アシベンゾラル-S-メチル、ベンチアバリカルブ、カルプロバミド、クロロタロニル、シモキサニル、ジクロメジン、ジクロシメット、ジエトフェンカルブ、エジフェンホス、エタボキサム、フェンヘキサミド、酢酸フェンチン、フェノキサニル、フェリムゾン、フルアジナム、ホセチル、ホセチル-アルミニウム、イプロバリカルブ、ヘキサクロロベンゼン、メトラフェノン、ペンシクロン、プロパモカルブ、フタリド、トルクロホス-メチル、キントゼン、ゾキサミドなどの他の殺菌剤、

・カプタホル、キャプタン、ジクロフルアニド、ホルベット、トリルフルアニドなどのスルフェン酸誘導体、

・ジメトモルフ、フルメトバー(flumetover)またはフルモルフ(flumorph)などのシンナミド類および類縁体、

・例えばWO98/46608、WO99/41255またはWO03/004465において、各場合で一般式Iによって記載される6-アリアル[1,2,4]トリアゾロ[1,5-a]ピリミジン類、

・シフルフェナミドおよび(Z)-N-[(シクロプロピルメトキシイミノ)-2,3-ジフルオロ-6-(ジフルオロメトキシ)ベンジル]-2-フェニルアセトアミドなどのアミド系殺菌剤である。

【0117】

ピラクロストロピンの好ましい殺菌性混合相手は、メトラキシル、ドデモルフ、フェンプロピモルフ、フェンプロピジン、グアザチン、スピロキサミン、トリデモルフ、ピリメタニル、シプロジニル、ピテルタノール、プロモコナゾール、シプロコナゾール、ジフェノコナゾール、ジニトロコナゾール、エボキシコナゾール、フェンプロコナゾール、フルキンコナゾール、フルシラゾール、ヘキサコナゾール、イマザリル、メトコナゾール、ミクロブタニル、ペンコナゾール、プロピコナゾール、プロクロラズ、プロチオコナゾール、テブコナゾール、トリアジメホン、トリアジメノール、トリフルミゾール、トリチコナゾール、イプロジオン、ピンクロゾリン、マンネブ、マンコゼブ、メチラム、チラム、ボスカリド、カルベンダジム、カルボキシシン、オキシカルボキシシン、シアゾファミド、ジチアノン、ファミキサドン、フェンアミドン、フェナリモル、フルトラニル、キノキシフェン、チオファネート-メチル、チオファネート-エチル、トリホリン、ジノカップ、ニトロフタル-イソプロピル、フェンピクロニルまたはフルジオキソニルなどのフェニルピロール類、アシベンゾラル-S-メチル、ベンチアバリカルブ、カルプロバミド、クロロタロニル、シフルフェナミド、シモキサニル、フェンヘキサミド、酢酸フェンチン、フェノキサニル、フルアジナム、ホセチル、ホセチル-アルミニウム、イプロバリカルブ、メトラフェノン、ゾキサミド、キャプタン、ホルベット、ジメトモルフ、アゾキシストロピン、ジモ

10

20

30

40

50

キシストロビン、フルオキサストロビン、クレソキシム-メチル、メトミノストロビン、オリサストロビン、ピコキシストロビン、またはトリフロキシストロビンである。

【0118】

特に好ましい殺菌性混合相手は、メタラキシル、フェンプロピモルフ、フェンプロピジン、グアザチン、スピロキサミン、ピリメタニル、シプロジニル、シプロコナゾール、ジフェノコナゾール、エポキシコナゾール、フェンプロコナゾール、フルキンコナゾール、フルシラゾール、ヘキサコナゾール、メトコナゾール、マイクロブタニル、プロピコナゾール、プロクロラズ、プロチオコナゾール、テブコナゾール、トリチコナゾール、イプロジオン、ピンクロゾリン、ボスカリド、カルベンダジム、カルボキシニル、オキシカルボキシニル、シアゾファミド、ジチアノン、キノキシフェン、チオファネート-メチル、チオファネート-エチル、ジノカップ、ニトロフタル-イソプロピル、フェンピクロニルまたはフルジオキソニル、ベンチアパリカルブ、カルプロパミド、フェンヘキサミド、フェノキサニル、フルアジナム、イプロバリカルブ、メトラフェノン、ゾキサミド、ジメトモルフ、アゾキシストロビン、ジモキシストロビン、フルオキサストロビン、クレソキシム-メチル、メトミノストロビン、オリサストロビン、ピコキシストロビンまたはトリフロキシストロビンである。

10

【0119】

非常に好ましい殺菌性混合相手は、フェンプロピモルフ、シプロコナゾール、ジフェノコナゾール、エポキシコナゾール、フェンプロコナゾール、フルキンコナゾール、フルシラゾール、ヘキサコナゾール、メトコナゾール、マイクロブタニル、プロピコナゾール、プロクロラズ、プロチオコナゾール、テブコナゾール、トリチコナゾール、ボスカリド、ジチアノン、キノキシフェン、チオファネート-メチル、チオファネート-エチル、ジノカップ、フェンピクロニルまたはフルジオキソニル、ベンチアパリカルブ、カルプロパミド、フェンヘキサミド、フェノキサニル、フルアジナム、イプロバリカルブ、メトラフェノン、ゾキサミド、ジメトモルフ、アゾキシストロビン、ジモキシストロビン、フルオキサストロビン、クレソキシム-メチル、メトミノストロビン、オリサストロビン、ピコキシストロビンまたはトリフロキシストロビンである。

20

【0120】

本発明による製剤は、殺虫活性化合物、殺ダニ活性化合物または殺線虫活性化合物とともに施用することもできる。特に、例えば

30

・鞘翅目、特にフィロファガ・クヤバナ(*Phyllophaga cuyabana*)などのフィロファガ(*Phyllophaga*)種、ステルネクス・ピングシ(*Sternechus pingusi*)、ステルネクス・サブシグナツス(*Sternechus subsignatus*)などのステルネクス(*Sternechus*)種、プロメコプス・カリニコリス(*Promecops carinicornis*)などのプロメコプス(*Promecops*)種、アラカントス・モレイ(*Aracanthus morei*)などのアラカントス(*Aracanthus*)種、およびジアプロティカ・スペシオサ(*Diabrotica speciosa*)、ジアプロティカ・ロンギコルニス(*Diabrotica longicornis*)、ジアプロティカ・12-プンクタタ(*Diabrotica 12-punctata*)、ジアプロティカ・ビルギフェラ(*Diabrotica virgifera*)などのジアプロティカ(*Diabrotica*)種、オリゾファガス(*Oryzophagus*)種、

40

・鱗翅目、特にエラスモバルプス・リグノセルス(*Elasmopalpus lignosellus*)などのエラスモバルプス(*Elasmopalpus*)種、ディロボデルス(*Diloboderus*)種、

・等翅目、特にリノテルミチダ(*Rhinotermitida*)、

・同翅目属、特にダルブルス・マイディス(*Dalbulus maidis*)

からの刺咬昆虫、噛む昆虫、刺す昆虫または吸汁昆虫および他の節足動物に対して、

または根こぶ線虫、例えばメロイドギン・ハブラ(*Meloidogyne hapla*)、メロイドギン・インコグニタ(*Meloidogyne incognita*)、メロイドギン・ジャネヴィカ(*Meloidogyne javanica*)および他のメロイドギン種などのメロイドギン(*Meloidogyne*)種；グロボデラ・ロストキエンシス(*Globodera rostochiensis*)および他のグロボデラ類などの包囊形成線虫類；ヘテロデラ・アベナエ(*Heterodera avenae*)、ヘテロデラ・グリシンス(*Heterodera glycines*)、ヘテロデラ・シャキティー(*Heterodera schachtii*)、ヘテロデラ・トリフォリ

50

ー(Heterodera trifolii)および他のヘテロデラ類;アングイナ(Anguina)類などのこぶ(gall)線虫類;アフェレンコイデス(Aphelenchoides)種などの茎線虫類および葉線虫類などの線虫に対して作用する少なくとも1種類の活性化化合物との併用でピラクロストロピンを用いることが有利であることが認められた。

【0121】

チオファネート-メチルまたは-エチルを含む製剤と併用される本発明による製剤は、例えば下記の有害菌類:

- 穀類、ワタ、果物およびイネに対するアルタナリア(Alternaria)種、
- ワタおよびイネに対するアスコチタ(Ascochyta)種、
- ワタに対するボトリオジプロジア(Botryodiplodia)種、
- トウモロコシ、ダイズ、イネおよび他の植物に対するセルコスボラ(Cercospora)種、
- ダイズ、ワタおよび他の植物に対するコリネスボラ(Corynespora)種、
- ダイズ、ワタおよび他の植物に対するコレトトリクム(Colletotricum)種
- 穀類およびイネに対するクルブラリア(Curvularia)種、
- 穀類およびイネに対するディプロディア(Diplodia)種、
- 穀類およびイネに対するドレクスレラ(Drechslera)種、
- 穀類、ダイズおよびワタに対するフザリウム(Fusarium)種、
- 穀類およびイネに対するギベレラ(Gibberella)種、
- ダイズおよびワタに対するマクロフォミナ(Macrophomina)種、
- ダイズおよびワタに対するペネシリウム(Penicillium)種、
- ダイズに対するフェオイサリプシス(Phaeoisaripsis)種、
- ダイズに対するフォマ(Phoma)種、
- ダイズに対するフォモプシス(Phomopsis)種、
- ダイズおよびワタに対するピチウム(Pythium)種、
- ピレノフォラ(Pyrenophora)種、
- イネに対するピリクラリア(Pyricularia)種、
- ダイズ、イネおよびワタに対するリゾクトニア(Rhizoctonia)種、
- イネに対するリンコスפורウム(Rynchosporium)種、
- ダイズに対するセプトリア(Septoria)種、
- 穀類およびイネに対するチレチア(Tilletia)種、
- 穀類に対するウスチラゴ(Ustilago)種

を防除するのに用いることができる。

【0122】

チオファネート-メチルまたは-エチルおよびフィプロニルまたはアセトプロール、エンドスルファン、エチプロール、バニリプロール(vaniliprole)、ピラフルプロールもしくはピリプロールなどの別のGABA拮抗薬を含む製剤と併用される本発明による製剤は例えば

- ・ 鞘翅目、特にフィロファガ・クヤバナ(Phyllophaga cuyabana)などのフィロファガ(Phyllophaga)種、ステルネクス・ピングシ(Sternechus pingusi)、ステルネクス・サブシグナツス(Sternechus subsignatus)などのステルネクス(Sternechus)種、プロメコプス・カリニコリス(Promecops carinicollis)などのプロメコプス(Promecops)種、アラカントラス・モレイ(Aracanthus morei)などのアラカントラス(Aracanthus)種、およびジアプロティカ・スペシオサ(Diabrotica speciosa)、ジアプロティカ・ロンギコルニス(Diabrotica longicornis)、ジアプロティカ・12-プンクタタ(Diabrotica 12-punctata)、ジアプロティカ・ビルギフェラ(Diabrotica virgifera)などのジアプロティカ(Diabrotica)種、オリゾファガス(Oryzophagus)種、
- および

・ 鱗翅目、特にエラスモパルプス・リグノセルス(Elasmopalpus lignosellus)などのエラスモパルプス(Elasmopalpus)種、ディロボデルス(Diloboderus)種などの昆虫の同時防除を行いながら、上記の有害菌類の防除を行うのに用いることができ

10

20

30

40

50

る。

【0123】

エポキシコナゾールを含む製剤と併用される本発明による製剤は例えば、下記の有害菌類：

- 穀類に対するミクロドキウム(Michrodochium)種、
- 穀類およびイネに対するチレチア(Tilletia)種、
- 穀類に対するウスチラゴ(Ustilago)種

を防除するのに用いることができる。

【0124】

トリチコナゾールおよびプロクロラズまたはプロクロラズ-CuClを含む1または2種類の製剤と併用される本発明による製剤は例えば、下記の有害菌類：

- 穀類に対するミクロドキウム(Michrodochium)種、
- 穀類およびイネに対するチレチア(Tilletia)種、
- 穀類に対するウスチラゴ(Ustilago)種

を防除するのに用いることができる。

【0125】

本発明による製剤は、未希釈で使用することができるか、水による希釈液として使用することができる。通常、それは製剤1部に基づいて少なくとも1部の水で、好ましくは10部の水で、特に少なくとも100部の水で、例えば1から10000、好ましくは100から5000、特に好ましくは500から2000部の水で希釈する。

【0126】

希釈は通常、本発明によるマイクロエマルジョンを水へ投入することで行う。通常、濃縮物を水と急速に混和するには、例えば攪拌などのかき混ぜ動作を用いる。しかしながら、概してかき混ぜは必要ない。希釈プロセスには温度はあまり重要な要素ではないが、希釈は通常、0 から50 、特に10 から30 の範囲の温度で、または室温で行う。

【0127】

希釈に用いられる水は、水道水である。しかしながら、その水は、例えば養分、肥料または農薬などの植物保護で用いられる水溶性化合物をすでに含んでいても良い。

【0128】

本発明のマイクロエマルジョンは、従来の方法で、通常は上記の水系希釈液の形態で施用することができる。製剤補助剤を含まない純粋な活性化合物の必要な施用量は、病害生物による侵入の程度、植物の発育段階、施用場所での気象条件および施用方法によって決まる。概して、施用量は1ヘクタール当たりで0.001から3kg、好ましくは0.005から2kg、特に0.01から1kg、特別には50から500gの範囲の活性化合物であり、この場合の活性化合物はピラクロストロピン+適宜の別の活性化合物である。

【0129】

通常希釈される本発明の製剤は、主として噴霧により、特に葉への噴霧によって施用される。施用は、当業者には公知の噴霧技術を用いて、例えば担体としての水を用いて、かつ約100から1000リットル/ヘクタール、例えば300から400リットル/ヘクタールの噴霧液量で行うことができる。

【0130】

本発明の別の態様は、種子処理に関するものである。種子処理という用語は、例えば種子粉衣、種子コーティング、種子浸漬、種子フィルムコーティング、種子多層コーティング、種子皮覆、種子滴下、種子粉付けおよび種子ペレット化などの種子処理に関して当業者に公知の全ての好適な方法を含む。

【0131】

種子処理の第1の実施形態によれば、種子、すなわち播種を意図した繁殖することができる植物部分を、本発明による製剤またはその水系希釈液で処理する。ここで、種子という用語は、種子、種子粒、種子の部分、稚樹、果実、塊茎、穀粒、切り枝など、特に穀粒および種子などのあらゆる種類の増殖が可能な種子および植物部分を含む。

10

20

30

40

50

【0132】

あるいは、種子は、播種時に本発明による植物保護製剤で処理することもできる。本発明による種子処理または土壌処理の別の実施形態では、種子を蒔く前または蒔いた後のいずれかに、本発明による製剤で畝間を処理する。

【0133】

本発明に従って処理された種子は、従来のように処理された種子と比較して有利な特性によって区別されることから、本願の主題の一部を形成するものである。

【0134】

本発明のさらに別の態様によれば、植物、種子または土壌を製剤で予防的に処理して、例えば病害生物による攻撃に対して保護を行ったり、病害生物による予想される攻撃を予防することが可能である。

【0135】

概して、本発明による製剤の施用の形態および性質は、個々の所期の目的によって決まるものであり、各場合でそれは、製剤に含まれる作物保護用活性化化合物の可能な限り最も微細な分布を確保するものでなければならない。

【0136】

以上の新規ピラクロストロピン含有作物保護製剤は、植物および種子の処理において有利な特性を有するものである。特にそれらは、良好な施用特性、高い安定性および高い殺菌活性を有する。

【0137】

下記の実施例は、本発明を説明する上で役立つものである。

【実施例】

【0138】

1. 製剤の調製(一般的プロトコール)

表1に挙げた成分を用いた。

【表1】

表1:表2に挙げた製剤用の群AからEの成分

A*	B*	C**	D	E
γ-ブチロラクトン(混和性)	アセトフェノン (5.5g/L)	ソルベッソ (登録商標)150ND	乳化剤 1、2、3、4、 5および6	乳化剤 15、16、17 および18
プロピレングリコール(混和性)	ベンジルアルコール (39g/L)	ソルベッソ (登録商標)200ND	乳化剤 9	
ヘキシレングリコール(混和性)	シクロヘキサノン (24g/L)	アグニーク (登録商標)KE3658	乳化剤 10、11、12、 13および14	
プラソルブ(Purasolv;登録商標)NPL (乳酸 n-プロピル)(混和性)	2-ヘプタノン (4.3g/L)	エデノール (登録商標)TI05		
DMSO(混和性)				

*20°Cでの水における個々の溶媒の溶解度を括弧内に示してある。「混和性」という用語は、水との完全な混和性を意味する。

**群Cの全ての溶媒は、20°Cで0.1g/L未満の水溶解度を有する。

【0139】

A:20 で少なくとも200g/Lの水溶解度を有する有機溶媒(本発明の製剤の溶媒LM2.1に相当);

B:20 で2から200g/Lの水溶解度を有する有機溶媒(本発明の製剤の溶媒LM2.2に相当);

C:20 で2g/L未満の水溶解度を有する有機溶媒(本発明の製剤の溶媒LM1に相当);

D:本発明の製剤のノニオン系界面活性剤(成分eに相当);

E:本発明の製剤のアニオン系界面活性剤(成分dに相当)。

【0140】

商品名の説明

エデノール(登録商標)TI05:高オレイン酸含有率を有する脂肪酸混合物(Cognis);

アグニーク(登録商標)KE3658:脂肪酸ジメチルアミド類(Cognis);

ソルベッソ(登録商標)150ND:主として沸点範囲175から209 を有するC₁₀-およびC₁₁-アルキルベンゼン類、ナフタレン欠乏品(ExxonMobil Chemical);

ソルベッソ(登録商標)200ND:主として沸点範囲235から305 を有するC₁₀-およびC₁₄-ア

ルキルナフタレン類、ナフタレン欠乏品(ExxonMobil Chemical);

乳化剤1:5個のエチレンオキサイド(EO)単位を有するC13-オキソアルコールオリゴエトキシレート、HLB値:10.5;

乳化剤2:10個のEO単位を有するC13-オキソアルコールオリゴエトキシレート、HLB値:13.5;

乳化剤3:11個のEO単位を有するC13-オキソアルコールオリゴエトキシレート、HLB値:14.0;

乳化剤4:15個のEO単位を有するC13-オキソアルコールオリゴエトキシレート、HLB値:15.5;

乳化剤5:5個のEO単位を有する2-プロピルヘプタノールオリゴエトキシレート、HLB値11.5; 10

乳化剤6:14個のEO単位を有する2-プロピルヘプタノールオリゴエトキシレート、HLB値:16.0;

乳化剤7:7個のEO単位を有するC10-オキソアルコールオリゴエトキシレート、HLB値:13.0;

乳化剤8:25個のEO単位を有するトリスチリルフェノールオリゴエトキシレート、HLB値:14.5(ソプロホル(登録商標)S25、Rhodia);

乳化剤9:ソルビタン・モノ脂肪酸エステル(主としてモノドデカン酸エステル)、HLB値:8.0;

乳化剤10:約20個のEO単位を有するエトキシ化ソルビタン・モノラウリン酸エステル、HLB値:16.7; 20

乳化剤11:脂肪族アルコールアルコキシレート(プルラファクLF300、BASF);

乳化剤12:脂肪族アルコールアルコキシレート(プルラファクLF401、BASF);

乳化剤13:脂肪族アルコールアルコキシレート(プルラファクLF1200、BASF);

乳化剤14:約40%のEOを含むプロピレンオキサイド/エチレンオキサイドブロックポリマー(プルロニクPE6400、BASF);

乳化剤15:ナトリウム2-スルホニルジオクチル・スクシネート;

乳化剤16:18から20個のアルキレンオキサイド基を有するアルコキシ化C₁₃/C₁₅-脂肪族アルコールの酸性リン酸エステル(エチレンオキサイド/プロピレンオキサイド比約2:1); 30

乳化剤17:15個のEO単位を有するエトキシ化ジスチリルフェノールサルフェート(ソプロホル(登録商標)DSS15、Rhodia);

乳化剤18:16個のEO単位を有するエトキシ化トリスチリルフェノールアンモニウムサルフェート(ソプロホル(登録商標)4D384、Rhodia)。

【0141】

製剤1から44を表2に挙げてある。表2には、個々の製剤を調製するのに用いた成分とそれらの量も示してある。調製は、下記に記載の方法に従って実施し、全ての段階を室温(RT)で行った。ピラクロストロピンおよび適宜に別の活性化化合物を最初に容器に入れ、3以上の成分A、BおよびC(表1参照)を加えた後、ピラクロストロピンができるだけ完全に溶解するまで混合物を撹拌した。注意深く撹拌した後、2種類以上の成分DおよびE(表1参照)を加え、できるだけ均一な溶液が得られるまで撹拌を続けた。その後、蒸留水を撹拌しながら加え、混合物を透明製剤が得られるまで撹拌した。 40

【0142】

II. 製剤の安定性試験

調製した製剤について、低温および高温での安定性、そして水による希釈後の安定性を調べた。次に、各場合で、それらの肉眼的外観を調べた。均質かつ透明な液体は、安定状態に留まったマイクロエマルジョンを示しており、不透明、濁った、ひどく濁った、そして2相の混合物は、その順に液滴径または相分離が大きくなっていることを示していた。ここで、濁った外観からひどく濁り乳濁状の外観への移行は、マイクロエマルジョンから従来の乳濁液への移行にほぼ相当するものであった。ある場合では、低温でサンプルの凍 50

結も認められた。

【0143】

希釈試験:各場合で、製剤を100部の水で希釈し、2時間放置し、それらの肉眼的外観を上述のように調べた。表3に例示的に示したように、24時間の期間にわたり、例示の製剤で沈降物形成を示したものはなかった。

【0144】

温度試験:製剤を-10 または54 で14日間保存し、それらの肉眼的外観を調べた。これらの安定性試験の結果を、例示的に表3に同様に示してある。

【0145】

表3で用いた略称は、下記のように理解される。

10

【表2】

ch	透明、均質
oh	不透明、均質
th	濁り、均質
e	ひどく濁った乳濁液
固体	均質固体(凍結)

【0146】

III. 殺菌作用に関する試験

下記の試験に関して、本発明による製剤を水で希釈して、それぞれ濃度200、400および600ppmならびに63、250および1000ppmとした(活性化合物含有量に関して)。比較を目的として、溶媒、ピラクロストロピンおよび界面活性剤を含む先行技術によるEC(乳濁濃縮液)製剤(標準製剤)を水で希釈して所定の濃度とした。

20

【0147】

播種から6から7日後、栽培品種「カンツラー(Kanzler)」のコムギ幼苗の葉に、赤さび病(プッシュニア・レコンジタ(Puccinia recondita))の孢子懸濁液を接種した。接種から48時間後、感染植物に、記載の活性化合物濃度(200L/ha)で上記の水系活性化合物調製物を噴霧した。この処理から8日後、葉上のさび病菌感染進行の範囲を測定した。各試験を3回繰り返し、植物感染の平均を計算した。本発明による製剤の選択に関するこれらの試験の結果は表4に示してある。その表中、殺菌活性は、本発明による個々の例示的製剤EWで処理した後の感染ならびに言及したEC製剤で処理した後の感染の比EW/ECとして表している。従って、1は、EC製剤の活性に匹敵する活性を示し、1未満の値はEC製剤の活性より良好な活性を示し、0は感染がないことを示す。

30

【表 3】

表 2: 製剤(数値はグラム単位の量である)

実施例	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
ピラクロストロピン	100.0	100.0	100.0	100.0	125.0	100.0	100.0	125.0	125.0	100.0	100.0	100.0	100.0
ソルベツソ 200ND			175.0	175.0	108.0	175.0	175.0	108.0	108.0	175.0	175.0	175.0	
ソルベツソ 150ND	175.0	175.0											175.0
ベンジアルアルコール			175.0			175.0	175.0			175.0	175.0	175.0	
アセトフェノン	175.0	175.0			108.0			108.0	108.0				175.0
γ-ブチロラクトン					108.0			108.0	108.0				
ブタンジオール				175.0									
乳化剤 15	72.0			72.0	44.0								72.0
乳化剤 18		108.0	108.0					88.0	132.0	108.0	108.0	108.0	
乳化剤 17						108.0	108.0						
乳化剤 1		36.0	36.0		44.0	36.0		132.0	44.0				
乳化剤 5						-	36.0				36.0		
乳化剤 9						-				72.0			
乳化剤 3					132.0				44.0				
乳化剤 4	108.0	36.0	36.0										
乳化剤 6							36.0				36.0		
乳化剤 10												72.0	
乳化剤 8				108.0		36.0							108.0
ヘキシレングリコール	150.0	150.0	150.0	150.0	130.0	150.0	150.0	130.0	130.0	150.0	150.0	150.0	150.0
プロピレングリコール													
脱イオン水	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0
合計	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0	1019.0	1000.0	1000.0	1019.0	1019.0	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0

10

20

30

40

【表 4】

表 2(続き)

実施例	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29
ピラクロストロビン	125.0	125.0	125.0	125.0	150.0	150.0	125.0	150.0	125.0	125.0	125.0	125.0	125.0	125.0	125.0	125.0
ソルベツソ 200ND	162.5	162.5	162.5	162.5	180.0	180.0	162.5	180.0	108.0	108.0	108.0	108.0	115.0	115.0	115.0	115.0
ソルベツソ 150ND																
ベンジルアルコール	162.5	162.5	162.5	162.5	120.0	120.0										
アセトフェノン									108.0	108.0	108.0	108.0	110.0	110.0	110.0	110.0
γ-ブチロラクトン									108.0		108.0		100.0	100.0	100.0	100.0
ブラスンPL							162.5	120.0		108.0		108.0				
乳化剤 15							88.0	80.0		220.0	88.0					
乳化剤 16																
乳化剤 18			132.0	132.0	120.0	120.0			220.0			176.0	176.0	121.0	110.0	121.0
乳化剤 17	108.0	132.0														
乳化剤 1			88.0	44.0	80.0	40.0					132.0		22.0	66.0	66.0	44.0
乳化剤 5	72.0	88.0				-										
乳化剤 3													11.0	16.5	22.0	27.5
乳化剤 4				44.0		40.0						44.0	11.0	16.5	22.0	27.5
乳化剤 8							132.0	120.0								
ヘキシレンジグリコール	150.0	80.0	80.0	80.0	80.0	80.0		80.0	130.0	130.0	130.0	130.0	130.0	130.0		130.0
プロピレンジグリコール																
脱イオン水	220.0	250.0	250.0	250.0	270.0	270.0	330.0	270.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0	220.0
合計	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0	1000.0	1019.0	1019.0	1019.0	1019.0	1020.0	1020.0	1020.0	1020.0

10

20

30

40

【表 5】

表 2 (続き)

実施例	30	31	32	33	34	35	36	37	38	39	40	41	42	43	44
ピラクロストロビン	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
ソルベツソ 200ND	125.2	100.1	125.2	100.1	125.2	125.2	100.1	125.2	121.7	100.1	100.1	100.1	100.1	125.2	100.0
ソルベツソ 150ND															
ベンジルアルコール															
アセトフェノン	87.6	100.1	87.6	100.1	87.6	87.6	100.1	87.6	89.0	100.1	100.1	100.1	100.1	87.6	100.0
γ-ブチロラクトン	87.6	100.1	87.6	100.1	87.6	87.6	100.1	87.6	89.0	100.1	100.1	100.1	100.1	87.6	100.0
ブラスソルブ NPL															
乳化剤 15															
乳化剤 16	87.4	124.8	87.4	124.8		87.4	25.0		90.7	25.0	25.0	25.0	25.0	87.4	25.0
乳化剤 18			87.4		87.4	87.4	124.8	87.4	90.7	124.8	124.8	124.8		87.4	175.0
乳化剤 11			75.0		75.0				68.8			100.0			
乳化剤 12	75.0			100.0							100.0				
乳化剤 7								75.0		100.0			50.0	75.0	
乳化剤 13															50.0
乳化剤 2		100.0				75.0	100.0								
乳化剤 14	87.4				87.4			87.4							
乳化剤 8		25.0		25.0									174.8		
プロピレングリコール	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0	150.0
脱イオン水	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0	250.0
合計	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0	1050.0

10

20

30

40

【表 6】

表 3: 希釈安定性および貯蔵安定性

実施例	濃縮物	-10℃	54℃	希釈 1:100、2h
1	ch	ch	ch	ch
2	ch	ch	ch	e
3	ch	ch	ch	oh
4	ch	ch	ch	e
6	ch	ch	ch	th
7	ch	ch	ch	th
10	ch	ch	ch	ch
11	ch	ch	ch	th
12	ch	ch	ch	e
13	ch	ch	ch	ch
16	ch	ch	ch	th
18	ch	固体	ch	th
5	ch	ch	ch	e
8	ch	ch	ch	th
9	ch	ch	ch	e
22	ch	ch	ch	e
23	ch	ch	ch	e
24	ch	ch	ch	e
25	ch	ch	ch	e
36	ch	ch	ch	e
39	ch	ch	ch	e
40	ch	ch	ch	e
41	ch	ch	ch	e
43	ch	ch	ch	e

10

20

30

【表 7】

表 4:殺菌作用に関する試験

実施例番号	殺菌作用(例示製剤と標準製剤の相対感染 EW/EC)		
	200 ppm	400 ppm	600 ppm
1	0.34	0.03	0.02
2	0.28	0.12	0.10
3	0.36	0.18	0.14
4	0.38	0.18	0.10
5	0.71	0.11	0.13
8	0.81	0.16	0.13
9	0.81	0.19	0.07
24	0.81	0.26	0.07
	63 ppm	250 ppm	1000 ppm
36	0.56	0.14	0.05
39	0.69	0.17	0.05
40	0.81	0.33	0.08
41	0.71	0.19	0.05
43	0.58	0.09	0.00

10

20

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2009/063197

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. A01N25/02 A01N25/04 A01N25/30 A01N47/24 A01P3/00 ADD.		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) A01N		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2008/017378 A2 (BAYER CROPSCIENCE AG [DE]; MAIER THOMAS [DE]; HAASE DETLEV [DE]; SCHNA) 14 February 2008 (2008-02-14) the whole document	1-25
A	WO 2006/002984 A1 (BASF AG [DE]; FINCH CHARLES W [US]; BYRNE THOMAS [US]; OLOUMI-SADEGHI) 12 January 2006 (2006-01-12) the whole document	1-25
E	WO 2010/010005 A2 (BASF SE [DE]; SOWA CHRISTIAN [DE]; LEVY TATJANA [DE]; VOGEL RALF [DE];) 28 January 2010 (2010-01-28) the whole document	1-25
	----- -/-	
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *Z* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report	
11 November 2010	22/11/2010	
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Kamdzhilov, Yavor	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2009/063197

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E	WO 2010/052178 A1 (BASF SE [DE]; SOWA CHRISTIAN [DE]) 14 May 2010 (2010-05-14) the whole document -----	1-25
L	WO 2010/040834 A2 (BASF SE [DE]; SCHLOTTERBECK ULF [DE]; TARANTA CLAUDE [DE]; LURTZ RALF) 15 April 2010 (2010-04-15) the whole document -----	1-25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2009/063197

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2008017378	A2	14-02-2008	AR 062169 A1 22-10-2008
			AU 2007283110 A1 14-02-2008
			CA 2660023 A1 14-02-2008
			CN 101562968 A 21-10-2009
			EA 200900280 A1 28-08-2009
			EP 1886560 A1 13-02-2008
			EP 2048945 A2 22-04-2009
			JP 2010500299 T 07-01-2010
			KR 20090038032 A 17-04-2009
			US 2010234227 A1 16-09-2010
			ZA 200900778 A 30-12-2009
WO 2006002984	A1	12-01-2006	AR 049665 A1 23-08-2006
			AU 2005259394 A1 12-01-2006
			BR PI0513023 A 22-04-2008
			CA 2570358 A1 12-01-2006
			CN 1980572 A 13-06-2007
			EC SP077128 A 26-04-2007
			EP 1773121 A1 18-04-2007
			JP 2008505150 T 21-02-2008
			KR 20070029242 A 13-03-2007
			NL 1029431 C2 24-07-2006
			NL 1029431 A1 09-01-2006
			PA 8638401 A1 02-06-2006
			RU 2358427 C2 20-06-2009
			UY 29005 A1 24-02-2006
			ZA 200701037 A 27-08-2008
WO 2010010005	A2	28-01-2010	NONE
WO 2010052178	A1	14-05-2010	NONE
WO 2010040834	A2	15-04-2010	NONE

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2009/063197

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES		
INV. A01N25/02	A01N25/04	A01N25/30
ADD.	A01N47/24	A01P3/00
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RESEARCHIERTE GEBIETE		
Recherchiertes Mindestprüfstoß (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)		
A01N		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoß gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)		
EPO-Internal, WPI Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 2008/017378 A2 (BAYER CROPSCIENCE AG [DE]; MAIER THOMAS [DE]; HAASE DETLEV [DE]; SCHNA) 14. Februar 2008 (2008-02-14) das ganze Dokument	1-25
A	WO 2006/002984 A1 (BASF AG [DE]; FINCH CHARLES W [US]; BYRNE THOMAS [US]; OLOUMI-SADEGHI) 12. Januar 2006 (2006-01-12) das ganze Dokument	1-25
E	WO 2010/010005 A2 (BASF SE [DE]; SOWA CHRISTIAN [DE]; LEVY TATJANA [DE]; VOGEL RALF [DE];) 28. Januar 2010 (2010-01-28) das ganze Dokument	1-25
	-/-	
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
<p>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</p> <p>"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</p> <p>"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</p> <p>"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</p> <p>"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</p> <p>"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</p> <p>"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden</p> <p>"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</p> <p>"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</p>		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts
11. November 2010		22/11/2010
Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Kamdzhilov, Yavor

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2009/063197

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
E	WO 2010/052178 A1 (BASF SE [DE]; SOWA CHRISTIAN [DE]) 14. Mai 2010 (2010-05-14) das ganze Dokument	1-25
L	WO 2010/040834 A2 (BASF SE [DE]; SCHLOTTERBECK ULF [DE]; TARANTA CLAUDE [DE]; LURTZ RALF) 15. April 2010 (2010-04-15) das ganze Dokument	1-25

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2009/063197

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2008017378 A2	14-02-2008	AR 062169 A1	22-10-2008
		AU 2007283110 A1	14-02-2008
		CA 2660023 A1	14-02-2008
		CN 101562968 A	21-10-2009
		EA 200900280 A1	28-08-2009
		EP 1886560 A1	13-02-2008
		EP 2048945 A2	22-04-2009
		JP 2010500299 T	07-01-2010
		KR 20090038032 A	17-04-2009
		US 2010234227 A1	16-09-2010
		ZA 200900778 A	30-12-2009
WO 2006002984 A1	12-01-2006	AR 049665 A1	23-08-2006
		AU 2005259394 A1	12-01-2006
		BR PI0513023 A	22-04-2008
		CA 2570358 A1	12-01-2006
		CN 1980572 A	13-06-2007
		EC SP077128 A	26-04-2007
		EP 1773121 A1	18-04-2007
		JP 2008505150 T	21-02-2008
		KR 20070029242 A	13-03-2007
		NL 1029431 C2	24-07-2006
		NL 1029431 A1	09-01-2006
		PA 8638401 A1	02-06-2006
		RU 2358427 C2	20-06-2009
		UY 29005 A1	24-02-2006
		ZA 200701037 A	27-08-2008
WO 2010010005 A2	28-01-2010	KEINE	
WO 2010052178 A1	14-05-2010	KEINE	
WO 2010040834 A2	15-04-2010	KEINE	

フロントページの続き

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

(74)代理人 100111741

弁理士 田中 夏夫

(72)発明者 トロップマン, ウルリケ

ドイツ連邦共和国 6 7 1 0 5 シファーシュタット, バーンホフシュトラッセ 1 4

(72)発明者 マイアー, ヴォルフガング

ドイツ連邦共和国 6 7 1 1 7 リンブルガーホフ, マインシュトラッセ 8

(72)発明者 オエッター, ギュンター

ドイツ連邦共和国 6 7 2 2 7 フランケンタール, ハンス - フォン - マレーズ - シュトラッセ 2 1

(72)発明者 シュタインブレンナー, ウルリヒ

ドイツ連邦共和国 6 7 4 3 5 ノイシュタット, ミュラー - トウルガウ - ヴェーク 2 0

(72)発明者 レヴィ, タチアナ

ドイツ連邦共和国 6 8 1 6 5 マンハイム, ベートーヴェンシュトラッセ 1 5

(72)発明者 モンターク, ユーリス

ドイツ連邦共和国 6 7 1 1 7 リンブルガーホフ, ヤーンシュトラッセ 2 4

(72)発明者 ブルンナー, タンヤ

ドイツ連邦共和国 6 7 2 8 3 オブリクハイム, ハウプトシュトラッセ 1 1 2

(72)発明者 ヴァイラー, ライナー

ドイツ連邦共和国 6 7 3 6 1 フライスバッハ, ビルケンシュトラッセ 4

Fターム(参考) 2B121 AA11 AA19 AA20 CC02 CC03 CC05 CC31

4H011 BB13 DA14 DD03