

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4303472号
(P4303472)

(45) 発行日 平成21年7月29日 (2009. 7. 29)

(24) 登録日 平成21年5月1日 (2009. 5. 1)

(51) Int. Cl.

F I

AO 1 N 35/04	(2006. 01)	AO 1 N 35/04
AO 1 N 25/02	(2006. 01)	AO 1 N 25/02
AO 1 N 25/08	(2006. 01)	AO 1 N 25/08
AO 1 N 37/52	(2006. 01)	AO 1 N 37/52
AO 1 P 3/00	(2006. 01)	AO 1 P 3/00

請求項の数 7 (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2002-562152 (P2002-562152)
 (86) (22) 出願日 平成14年1月17日 (2002. 1. 17)
 (65) 公表番号 特表2004-521896 (P2004-521896A)
 (43) 公表日 平成16年7月22日 (2004. 7. 22)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2002/000414
 (87) 国際公開番号 W02002/062140
 (87) 国際公開日 平成14年8月15日 (2002. 8. 15)
 審査請求日 平成17年1月12日 (2005. 1. 12)
 (31) 優先権主張番号 101 02 281.6
 (32) 優先日 平成13年1月18日 (2001. 1. 18)
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)

(73) 特許権者 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】 ベンゾフェノン類およびオキシムエーテル誘導体を含む殺菌性組成物

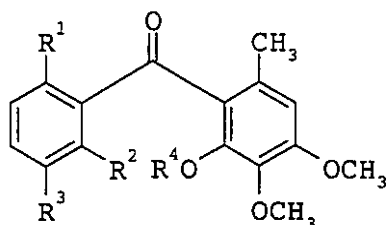
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

殺菌性混合物であって、

a) 式 I :

【化 1】



I

10

[式中、

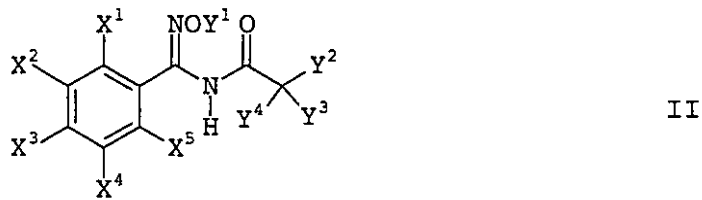
R¹は、塩素、メチル、メトキシ、アセトキシ、ピバロイルオキシまたはヒドロキシルであり；R²は、塩素またはメチルであり；R³は、水素、ハロゲンまたはメチルであり；R⁴は、C₁-C₆-アルキルまたはベンジルであり、ベンジル基のフェニル部分はハロゲンまたはメチル置換基を有していてもよい]

20

で表されるベンゾフェノン類、および

b) 式II:

【化2】



II

10

[式中、置換基 $X^1 \sim X^5$ および $Y^1 \sim Y^4$ は、下記に定義する通りである:]

X^1 は、ハロゲン、 C_1 - C_4 -ハロアルキルまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシであり;

$X^2 \sim X^5$ は、互いに独立に、水素、ハロゲン、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -ハロアルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシであり;

Y^1 は、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_2 - C_6 -アルケニル、 C_2 - C_6 -アルキニル、 C_1 - C_4 -アルキル- C_3 - C_7 -シクロアルキルであり、これらの基は、ハロゲン、シアノおよび C_1 - C_4 -アルコキシから成る群より選択される置換基を有していてもよく;

Y^2 は、フェニル基、またはN、OおよびSから成る群より選択される少なくとも1つのヘテロ原子を有する5員または6員の飽和もしくは不飽和ヘテロシクリル基であり、該環状基は、ハロゲン、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシ、 C_1 - C_4 -ハロアルキル、 C_1 - C_4 -ハロアルコキシ、 C_1 - C_4 -アルコキシ- C_2 - C_4 -アルケニル、 C_1 - C_4 -アルコキシ- C_2 - C_4 -アルキニルから成る群より選択される1個~3個の置換基を有していてもよく;

20

Y^3 、 Y^4 は、互いに独立に、水素、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシ、 C_1 - C_4 -アルキルチオ、N- C_1 - C_4 -アルキルアミノ、 C_1 - C_4 -ハロアルキルまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシである]

で表されるオキシムエーテル誘導体、
を相乗的有効量で含む、上記殺菌性混合物。

【請求項2】

式I中、

R^1 がメトキシ、アセトキシまたはヒドロキシルであり;

R^2 がメチルであり;

R^3 が水素、塩素または臭素であり;

R^4 が C_1 - C_4 -アルキルである、

請求項1に記載の殺菌性混合物。

30

【請求項3】

式IIで表されるオキシムエーテル誘導体に対するベンゾフェノン類Iの重量比が20:1~1:20である、請求項1に記載の殺菌性混合物。

【請求項4】

有害な菌類を防除する方法であって、

有害な菌類、その生育環境、またはそれらが存在しないように保たれるべき植物、種子、土壌、区域、物質若しくは空間を、請求項1に記載の式Iで表されるベンゾフェノン類および請求項1に記載の式IIで表されるオキシムエーテル誘導体で処理するステップを含み、請求項1に記載の式Iで表されるベンゾフェノン類および請求項1に記載の式IIで表されるオキシムエーテル誘導体を同時に、すなわち一緒にまたは別々のいずれかで施用する、上記方法。

40

【請求項5】

請求項1に記載の式Iで表されるベンゾフェノン類を、0.08~3.0 kg/haの量で施用する、請求項4に記載の方法。

【請求項6】

請求項1に記載の式IIで表されるオキシムエーテル誘導体を、0.02~2.0 kg/haの量で施

50

用する、請求項 4 または 5 に記載の方法。

【請求項 7】

2 部になっており、一方の部が固体または液体担体中に請求項 1 に記載の式 I で表されるベンゾフェノン類を含み、もう一方の部が固体または液体担体中に請求項 1 に記載の式 II で表されるオキシムエーテル誘導体を含む殺菌性組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

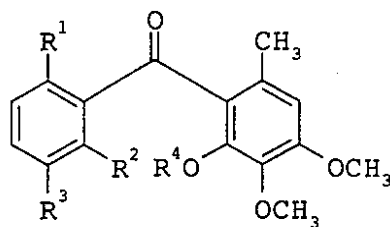
【0001】

本発明は、殺菌性混合物であって、

a) 式 I :

10

【化 1】



I

20

[式中、

R¹は、塩素、メチル、メトキシ、アセトキシ、ピバロイルオキシまたはヒドロキシルであり；

R²は、塩素またはメチルであり；

R³は、水素、ハロゲンまたはメチルであり；

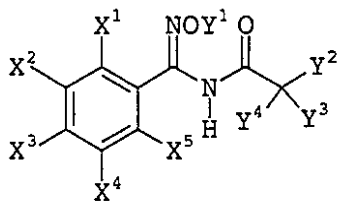
R⁴は、C₁-C₆-アルキルまたはベンジルであり、ベンジル基のフェニル部分はハロゲンまたはメチル置換基を有していてもよい]

で表されるベンゾフェノン類、および

b) 式 II :

【化 2】

30



II

[式中、置換基X¹~X⁵およびY¹~Y⁴は、下記に定義する通りである：

X¹は、ハロゲン、C₁-C₄-ハロアルキルまたはC₁-C₄-ハロアルコキシであり；

40

X²~X⁵は、互いに独立に水素、ハロゲン、C₁-C₄-アルキル、C₁-C₄-ハロアルキル、C₁-C₄-アルコキシまたはC₁-C₄-ハロアルコキシであり；

Y¹は、C₁-C₄-アルキル、C₂-C₆-アルケニル、C₂-C₆-アルキニル、C₁-C₄-アルキル-C₃-C₇-シクロアルキルであり、これらの基は、ハロゲン、シアノおよびC₁-C₄-アルコキシから成る群より選択される置換基を有していてもよく；

Y²は、N、OおよびSから成る群より選択される少なくとも1つのヘテロ原子を有している5員または6員の飽和もしくは不飽和ヘテロシクリル基またはフェニル基であり、該環状基は、ハロゲン、C₁-C₄-アルキル、C₁-C₄-アルコキシ、C₁-C₄-ハロアルキル、C₁-C₄-ハロアルコキシ、C₁-C₄-アルコキシ-C₂-C₄-アルケニル、C₁-C₄-アルコキシ-C₂-C₄-アルキニルから成る群より選択される1個~3個の置換基を有していてもよく；

50

Y^3 、 Y^4 は、互いに独立に、水素、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシ、 C_1 - C_4 -アルキルチオ、 N - C_1 - C_4 -アルキルアミノ、 C_1 - C_4 -ハロアルキルまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシである]

で表されるオキシムエーテル誘導体、
を相乗的有効量で含む、上記殺菌性混合物に関する。

【0002】

さらに、本発明は、化合物IおよびIIの混合物を用いて有害な菌類を防除する方法および化合物IおよびIIを含む組成物に関する。

【背景技術】

【0003】

式Iで表される化合物、その調製および有害な菌類に対するその作用は、文献により公知となっている(EP-A 727 141 ; EP-A 897 904 ; EP-A 899 255 ; EP-A 967 196)。

【0004】

式Iで表されるベンゾフェノン類と他の殺菌活性化合物の混合物は、EP-A 1 023 834により公知となっている。

【0005】

式IIで表される化合物およびその調製方法は、WO-A 96/19442、EP-A 1 017 670およびEP-A 1 017 671に記載されている。

【0006】

DE-A 197 22 223は、式IIで表される化合物とストロビルリン系活性化合物との混合物について記載している。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明の目的は、有害な菌類を防除するため、および特に特定の適応のための、特に有用な混合物を提供することである。

【0008】

本発明の目的は、施用する活性化合物の総量が少ない、有害な菌類に対する作用を改良した混合物(相乗的混合物)を提供することであって、既知の化合物IおよびIIの施用率の減少並びに活性スペクトルの改良を目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明者らは、この目的が、最初に定義した混合物により達成されることを発見した。さらに、本発明者らは、化合物Iおよび化合物IIを同時に、すなわち一緒に、または別々に施用するか、または化合物Iおよび化合物IIを順次施用すれば、個々の化合物をそのみで施用するよりも、有害な菌類をよりよく防除できることを発見した。

【発明の効果】

【0010】

本発明の混合物は、相乗的に作用し、このため有害な菌類、特に穀物、野菜、果実、観葉植物およびブドウのうどんこ病菌を防除するのに特に適している。

【発明を実施するための最良の形態】

【0011】

式Iで表される下記化合物は好ましい混合成分であり、それぞれの好ましい成分を、単独で、または組み合わせて施用する。

【0012】

好ましいものとして、 R^1 が塩素、メトキシ、アセトキシまたはヒドロキシルである化合物Iが挙げられ、特に好ましいものとして、 R^1 がメトキシ、アセトキシまたはヒドロキシルである化合物が挙げられる。非常に特に好ましいものとして、 R^1 がメトキシである化合物が挙げられる。

【0013】

10

20

30

40

50

R^2 が塩素またはメチルである化合物Iを含む混合物は、本発明にしたがった混合物である。好ましいものとして、 R^2 がメチルである化合物Iが挙げられる。

【0014】

好ましいものとしてさらに、 R^3 が水素、メチル、塩素または臭素、特に好ましくは水素、塩素または臭素である化合物Iが挙げられる。

【0015】

この他に、好ましいものとして、 R^4 が C_1 - C_4 -アルキルまたはベンジルであり、ベンジル基のフェニル部分がハロゲンまたはメチル置換基を有していてもよい化合物Iが挙げられる。特に好ましいものとして、 R^4 が C_1 - C_4 -アルキル、好ましくはメチルである式Iで表される化合物が挙げられる。

10

【0016】

式Iで表される好ましい化合物としてさらに、置換基 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 が下記に定義する通りである化合物が挙げられる：

R^1 がメトキシ、アセトキシまたはヒドロキシルであり；

R^2 がメチルであり；

R^3 が水素、塩素または臭素であり；

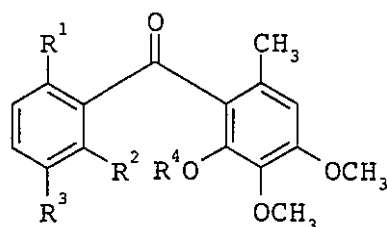
R^4 が C_1 - C_4 -アルキルである。

【0017】

この他に、特に好ましいものとして、置換基が下記表1で定義する通りである式Iで表される化合物が挙げられる：

20

【化3】



I

【表 1】

No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
I-1	メトキシ	Cl	H	メチル
I-2	メトキシ	Cl	メチル	メチル
I-3	メトキシ	Cl	H	n-プロピル
I-4	メトキシ	Cl	H	n-ブチル
I-5	メトキシ	Cl	H	ベンジル
I-6	メトキシ	Cl	H	2-フルオロベンジル
I-7	メトキシ	Cl	H	3-フルオロベンジル
I-8	メトキシ	Cl	H	4-フルオロフェニル
I-9	メトキシ	Cl	H	2-メチルフェニル
I-10	メトキシ	Cl	H	3-メチルフェニル
I-11	メトキシ	Cl	H	4-メチルフェニル
I-12	メトキシ	Cl	Br	メチル
I-13	メトキシ	Cl	Br	n-プロピル
I-14	メトキシ	Cl	Br	n-ブチル
I-15	メトキシ	Cl	Br	ベンジル
I-16	メトキシ	Cl	Br	2-フルオロベンジル
I-17	メトキシ	メチル	H	メチル
I-18	メトキシ	メチル	Cl	メチル
I-19	メトキシ	メチル	H	n-プロピル
I-20	メトキシ	メチル	H	n-ブチル
I-21	メトキシ	メチル	H	ベンジル
I-22	メトキシ	メチル	H	2-フルオロベンジル
I-23	メトキシ	メチル	H	3-フルオロベンジル
I-24	メトキシ	メチル	H	4-フルオロフェニル
I-25	メトキシ	メチル	H	2-メチルフェニル
I-26	メトキシ	メチル	H	3-メチルフェニル
I-27	メトキシ	メチル	H	4-メチルフェニル
I-28	メトキシ	メチル	Br	メチル
I-29	メトキシ	メチル	Br	n-プロピル
I-30	メトキシ	メチル	Br	n-ブチル
I-31	メトキシ	メチル	Br	ベンジル
I-32	メトキシ	メチル	Br	2-フルオロベンジル
I-33	アセトキシ	メチル	H	メチル
I-34	アセトキシ	メチル	Cl	メチル
I-35	アセトキシ	メチル	Br	メチル
I-36	ヒドロキシ	メチル	H	メチル

10

20

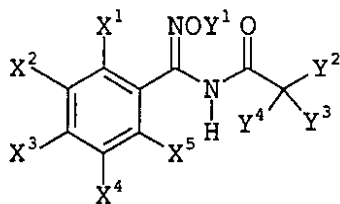
30

40

I-37	ヒドロキシ	メチル	Cl	メチル
I-38	ヒドロキシ	メチル	Br	メチル
I-39	ピバロイルオキシ	メチル	H	メチル
I-40	ピバロイルオキシ	メチル	Cl	メチル
I-41	ピバロイルオキシ	メチル	Br	メチル
I-42	Cl	Cl	H	メチル
I-43	Cl	Cl	H	n-プロピル
I-44	Cl	Cl	H	n-ブチル
I-45	Cl	Cl	H	ベンジル
I-46	Cl	Cl	H	2-フルオロベンジル
I-47	Cl	Cl	H	3-フルオロベンジル
I-48	Cl	Cl	H	4-フルオロフェニル
I-49	Cl	Cl	H	2-メチルフェニル
I-50	Cl	Cl	H	3-メチルフェニル
I-51	Cl	Cl	H	4-メチルフェニル
I-52	Cl	Cl	Br	メチル
I-53	Cl	Cl	Br	n-プロピル
I-54	Cl	Cl	Br	n-ブチル
I-55	Cl	Cl	Br	ベンジル
I-56	Cl	Cl	Br	2-フルオロベンジル
I-57	メチル	メチル	H	メチル
I-58	メチル	メチル	H	n-プロピル
I-59	メチル	メチル	H	n-ブチル
I-60	メチル	メチル	H	ベンジル
I-61	メチル	メチル	H	2-フルオロベンジル
I-62	メチル	メチル	H	3-フルオロベンジル
I-63	メチル	メチル	H	4-フルオロフェニル
I-64	メチル	メチル	H	2-メチルフェニル
I-65	メチル	メチル	H	3-メチルフェニル
I-66	メチル	メチル	H	4-メチルフェニル
I-67	メチル	メチル	Br	メチル
I-68	メチル	メチル	Br	n-プロピル
I-69	メチル	メチル	Br	n-ブチル
I-70	メチル	メチル	Br	ベンジル
I-71	メチル	メチル	Br	2-フルオロベンジル

混合成分b)は、式II:

【化 4】



II

10

[式中、置換基 $X^1 \sim X^5$ および $Y^1 \sim Y^4$ は、下記に定義する通りである:]

X^1 は、ハロゲン、 C_1 - C_4 -ハロアルキルまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシであり;

$X^2 \sim X^5$ は、互いに独立に水素、ハロゲン、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -ハロアルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシであり;

Y^1 は、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_2 - C_6 -アルケニル、 C_2 - C_6 -アルキニル、 C_1 - C_4 -アルキル- C_3 - C_7 -シクロアルキルであり、これらの基は、ハロゲン、シアノおよび C_1 - C_4 -アルコキシから成る群より選択される置換基を有していてもよく;

Y^2 は、N、OおよびSから成る群より選択される少なくとも1つのヘテロ原子を有している5員または6員の飽和もしくは不飽和ヘテロシクリル基またはフェニル基であり、該環状基は、ハロゲン、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシ、 C_1 - C_4 -ハロアルキル、 C_1 - C_4 -ハロアルコキシ、 C_1 - C_4 -アルコキシ- C_2 - C_4 -アルケニル、 C_1 - C_4 -アルコキシ- C_2 - C_4 -アルキニルから成る群より選択される1個~3個の置換基を有していてもよく;

20

Y^3 、 Y^4 は、互いに独立に、水素、 C_1 - C_4 -アルキル、 C_1 - C_4 -アルコキシ、 C_1 - C_4 -アルキルチオ、N- C_1 - C_4 -アルキルアミノ、 C_1 - C_4 -ハロアルキルまたは C_1 - C_4 -ハロアルコキシである]

で表されるオキシムエーテル誘導体である。

【0019】

化合物IIの中で、以下に挙げるものが好ましい:

X^1 が、塩素、ジフルオロメトキシまたはトリフルオロメチルであり;

30

X^2 および X^3 が水素であり;

X^4 が水素またはフッ素であり;

X^5 が、塩素、フッ素、トリフルオロメチルまたはジフルオロメトキシであり;

Y^1 がメチレンシクロプロピルであり;

Y^2 が、置換されていないか、または置換されたフェニル、チエニル、ピラゾリル、ピロリル、イミダゾリル、チアゾリル、フリル、ピリダジニルまたはピリミジニルである。これらの環系上の好ましい置換基は、ハロゲン(特にFおよびCl)、 C_1 - C_4 -アルコキシ(特にメトキシ)および C_1 - C_4 -アルキル(特にメチル)である。環の置換基の数は、1個~3個、特に1個または2個であり得る。置換されていないフェニルまたは4位でフッ素、メチル、トリフルオロメチルまたはメトキシにより置換されているフェニルが特に好ましく;

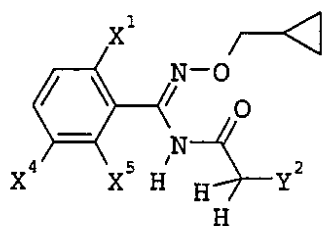
40

Y^3 および Y^4 が水素である。

【0020】

式IIで表される好ましい化合物は、下記表2にしたがう化合物である。

【化 5】



II.1

【表 2】

表 2 :

No.	X ¹	X ⁴	X ⁵	Y ²
II-1	Cl	H	F	Ph
II-2	Cl	H	F	Ph-2-F
II-3	Cl	H	F	Ph-2,4-F ₂
II-4	Cl	H	F	Ph-2-F-3-Me
II-5	Cl	H	F	Ph-2-F-4-OMe
II-6	Cl	H	F	Ph-3,5-Me ₂
II-7	Cl	H	F	3-メチルピラゾール-1-イル
II-8	Cl	H	F	3-メチル-2-チエニル
II-9	Cl	H	F	2-チエニル
II-10	Cl	H	Cl	Ph
II-11	Cl	H	Cl	Ph-2,4-F ₂
II-12	Cl	H	CF ₃	2-チエニル
II-13	Cl	H	CF ₃	Ph-4-Me
II-14	Cl	H	CF ₃	Ph-4-OMe
II-15	Cl	H	CF ₃	Ph
II-16	OCHF ₂	H	F	Ph
II-17	OCHF ₂	H	F	Ph-2-F
II-18	OCHF ₂	H	F	Ph-4-F
II-19	OCHF ₂	H	F	Ph-4-CF ₃
II-20	OCHF ₂	H	F	Ph-4-OMe
II-21	OCHF ₂	H	F	Ph-4-Me
II-22	OCHF ₂	H	F	3-メチルピラゾール-1-イル
II-23	OCHF ₂	H	F	3-メチル-2-チエニル
II-24	OCHF ₂	H	F	2-チエニル
II-25	OCHF ₂	H	Cl	Ph
II-26	OCHF ₂	H	Cl	Ph-2,4-F ₂
II-27	OCHF ₂	H	CF ₃	2-チエニル
II-28	OCHF ₂	H	CF ₃	Ph-4-Me
II-29	OCHF ₂	H	CF ₃	Ph-4-OMe
II-30	OCHF ₂	H	CF ₃	Ph
II-31	OCHF ₂	H	OCHF ₂	Ph-4-OMe
II-32	OCHF ₂	H	OCHF ₂	Ph
II-33	OCHF ₂	H	OCHF ₂	Ph-4-Me
II-34	OCHF ₂	H	OCHF ₂	Ph-4-Cl
II-35	CF ₃	H	F	Ph
II-36	CF ₃	H	F	Ph-2-F

10

20

30

40

II-37	CF ₃	H	F	Ph-4-F
II-38	CF ₃	H	F	Ph-4-Me
II-39	CF ₃	H	F	Ph-4-OMe
II-40	CF ₃	H	F	Ph-4-CF ₃
II-41	CF ₃	H	F	3-メチルピラゾール-1-イル
II-42	CF ₃	H	F	3-メチル-2-チエニル
II-43	CF ₃	H	F	2-チエニル
II-44	CF ₃	H	Cl	Ph
II-45	CF ₃	H	Cl	Ph-2,4-F ₂
II-46	CF ₃	H	CF ₃	2-チエニル
II-47	CF ₃	H	CF ₃	Ph-4-Me
II-48	CF ₃	H	CF ₃	Ph-4-OMe
II-49	CF ₃	H	CF ₃	Ph
II-50	CF ₃	H	OCHF ₂	Ph-4-OMe
II-51	CF ₃	H	OCHF ₂	Ph
II-52	CF ₃	H	OCHF ₂	Ph-4-Me
II-53	CF ₃	H	OCHF ₂	Ph-4-Cl
II-54	CF ₃	Cl	F	2-チエニル
II-55	CF ₃	Cl	F	Ph-2-F
II-56	CF ₃	Cl	F	Ph
II-57	CF ₃	Cl	F	Ph-2-F-5-Me
II-58	CF ₃	Cl	Cl	Ph-3,5-Me ₂
II-59	OCHF ₂	F	F	Ph
II-60	OCHF ₂	F	F	3-メチルピラゾール-1-イル
II-61	OCHF ₂	F	F	3-メチル-2-チエニル
II-62	OCHF ₂	F	F	Ph-4-Me
II-63	OCHF ₂	F	F	Ph-2-F-4-OMe
II-64	OCHF ₂	F	F	Ph-2-F-5-Me
II-65	OCHF ₂	F	F	Ph-4-F
II-66	OCHF ₂	F	F	Ph-4-CF ₃
II-67	OCHF ₂	F	F	Ph-4-OMe
II-68	OCHF ₂	F	F	Ph-4-Cl
II-69	CF ₃	F	F	Ph
II-70	CF ₃	F	F	3-メチルピラゾール-1-イル
II-71	CF ₃	F	F	3-メチル-2-チエニル
II-72	CF ₃	F	F	Ph-4-Me
II-73	CF ₃	F	F	Ph-2-F-4-OMe
II-74	CF ₃	F	F	Ph-2-F-5-Me

10

20

30

40

II-75	CF ₃	F	F	Ph-4-F
II-76	CF ₃	F	F	Ph-4-CF ₃
II-77	CF ₃	F	F	Ph-4-OMe
II-78	CF ₃	F	F	Ph-4-Cl

【 0 0 2 1 】

好ましいものとして、成分a)として化合物：I-33、I-35、I-42、I-44、I-46、I-60、または好ましくはI-18、I-28、I-37のうちの1つ、および成分b)として化合物：II-15、II-32、II-62、II-68または、好ましくはII-59、II-69のうちの1つを含む殺菌性混合物が挙げられる。

10

【 0 0 2 2 】

化合物IおよびIIの量的比率は、広い範囲で変化させることができる；活性化合物は、好ましくは20:1～1:20、好ましくは10:1～1:10、特に好ましくは5:1～1:5の範囲の重量比で用いられる。

【 0 0 2 3 】

混合物を調製する場合、純粋な活性化合物IおよびIIを用いることが好ましく、そこに有害な菌類またはその他の害虫（例えば昆虫、クモ形類動物または線虫）に対して活性のある別の化合物、または他の除草活性成分若しくは生長調節活性成分または肥料を混合することができる。

20

【 0 0 2 4 】

化合物IおよびIIの混合物、または同時に、一緒にもしくは別々に施用される化合物IおよびIIは、広い範囲の植物病原菌（特に子囊菌類、担子菌類、藻菌類および不完全菌類）に対して顕著な活性を示す。これらのものの中には、全身に作用し、そのため葉および土壌に作用する殺菌剤としても用いることができるものがある。

【 0 0 2 5 】

これらは、様々な作物、例えば綿、野菜種（例えばキュウリ、豆、トマト、ジャガイモおよびウリ）、オオムギ、グラス、カラスムギ、バナナ、コーヒー、トウモロコシ、果実種、コメ、ライ麦、大豆、ブドウ、コムギ、観賞植物、サトウキビ、および様々な種子などの種々の穀物において、多数の菌類を防除するために特に重要である。

30

【 0 0 2 6 】

これらは、次の植物病原菌類を防除するのに特に適している：穀類のうどんこ病菌（*Erysiphe graminis*）（うどんこ病）、ウリ科植物のうどんこ病菌（*Erysiphe cichoracearum*）およびウリ科のうどんこ病菌（*Sphaerotheca fuliginea*）、リンゴのうどんこ病菌（*Podosphaera leucotricha*）、ブドウのうどんこ病菌（*Uncinula necator*）、穀物のさび病菌（*Puccinia species*）、綿、コメおよび芝生のリゾクトニア菌（*Rhizoctonia species*）、穀物およびサトウキビの黒穂菌（*Ustilago species*）、リンゴの黒星病菌（*Venturia inaequalis*）（黒星病）、穀物の褐条葉枯病菌（*Helminthosporium species*）、コムギのセプトリア・ノドラム（*Septoria nodorum*）、イチゴ、野菜、観賞植物およびブドウのボトリチス・シネレア菌（*Botrytis cinerea*）（灰色かび病）、落花生類のセロスポラ・アラキジコラ（*Cercospora arachidicola*）、コムギおよびオオムギのコムギ眼紋病菌（*Pseudocercospora herpotrichoides*）、コメのイネいもち病菌（*Pyricularia oryzae*）、ジャガイモおよびトマトの胴枯れ病菌（*Phytophthora infestans*）、ブドウのべと病菌（*Plasmopara viticola*）、ホップおよびキュウリのシュードペロナスボラ菌（*Pseudoperonospora species*）、野菜および果物のアルタナリア菌（*Alternaria species*）、バナナのマイコスファエレラ菌（*Mycosphaerella species*）およびまたフザリウム菌（*Fusarium*）およびパーティシリウム菌（*Verticillium species*）。

40

【 0 0 2 7 】

さらに、それらは、例えばペシロミセス・ヴァリオテイ（*Paecilomyces variotii*）に

50

対する物質の保護（例えば木の保護）のために用いることができる。

【0028】

化合物IおよびIIは、同時に、すなわち一緒若しくは別々のいずれかに、または順次に施用することができ、別々に施用する場合の順番は、一般に防除測定の結果に影響を及ぼさない。

【0029】

所望する効果の種類に応じて、本発明の混合物の施用率は、特に農業栽培下の区域の場合、0.01～10 kg/ha、好ましくは0.1～5 kg/ha、特に0.2～3.0 kg/haである。

【0030】

化合物Iの施用率は、0.005～6.0 kg/ha、好ましくは0.08～3.0 kg/ha、特に0.12～2.0 kg/haである。

10

【0031】

化合物IIの施用率は、対応して、0.005～4.0 kg/ha、好ましくは0.02～2.0 kg/ha、特に0.08～1.0 kg/haである。

【0032】

種子の処理のための混合物の施用率は、一般に、種子1kg当たり0.001～250 g、好ましくは0.01～100 g、特に0.01～50 gである。

【0033】

植物病原菌類を防除する場合、化合物IおよびIIの別々若しくは一緒での施用または化合物IおよびIIの混合物の施用は、植物の播種前または播種後、または植物発生前または植物発生後に、種子、植物または土壤にスプレーするかまたはダスティングすることにより達成される。

20

【0034】

本発明の殺菌性相乗的混合物、または化合物IおよびIIは、例えば直接スプレーできる溶液、粉末および懸濁液または高濃度の水性、油性若しくはその他の懸濁液、分散液、エマルジョン、油分散液、ペースト、ダスト、散布用物質または顆粒の形態に製剤することが可能であり、またスプレー、噴霧、ダスティング、散布および散水により施用することができる。使用形態は、意図する目的による；いずれの場合であっても、本発明の混合物の分散をできるだけ細かく均一にするべきである。

【0035】

製剤は、既知の方法、例えば活性化合物を溶媒および/または担体により、所望であれば乳化剤および分散剤を用いて増量することにより調製される。希釈剤として水を用いる場合は、補助溶媒として別の有機溶媒を用いることもできる。本発明の目的に適した補助剤は、主に：溶媒、例えば芳香族化合物（例えばキシレン）、塩素化芳香族化合物（例えばクロロベンゼン）、パラフィン類（例えば鉱油画分）、アルコール類（例えばメタノール、ブタノール）、ケトン類（例えばシクロヘキサノン）、アミン類（例えばエタノールアミン、ジメチルホルムアミド）および水など；担体、例えば粉末状天然鉱物（例えばカオリン、クレー、タルク、チョーク）および粉末状合成鉱物（例えば微細シリカ、シリケート）など；乳化剤、例えば非イオン乳化剤およびアニオン乳化剤（例えばポリオキシエチレン脂肪アルコールエーテル、アルキルスルホネートおよびアリアルスルホネート）など、および分散剤、例えばリグノ亜硫酸廃液類またはメチルセルロースなどである。

30

40

【0036】

適当な界面活性剤は、芳香族スルホン酸類（例えばリグノスルホン酸、フェノールスルホン酸、ナフタレンスルホン酸およびジブチルナフタレンスルホン酸）および脂肪酸類のアルカリ金属塩類、アルカリ土類金属塩類およびアンモニウム塩類、アルキルスルホネート類およびアルキルアリアルスルホネート類、アルキル、ラウリルエーテルおよび脂肪アルコールサルフェート、および硫酸化ヘキサデカノール類、ヘプタデカノール類およびオクタデカノール類の塩類、または脂肪アルコールグリコールエーテル類の塩類、スルホン化ナフタレンおよびその誘導体とホルムアルデヒドとの縮合物、ナフタレンまたはナフタレンスルホン酸類とフェノールおよびホルムアルデヒドとの縮合物、ポリオキシエチレン

50

オクチルフェノールエーテル、エトキシ化イソオクチルフェノール、オクチルフェノールまたはノニルフェノール、アルキルフェニルポリグリコールエーテル類、トリブチルフェニルポリグリコールエーテル類、アルキルアリアルポリエーテルアルコール類、イソトリデシルアルコール、脂肪アルコールノエチレンオキシド縮合物、エトキシ化ヒマシ油、ポリオキシエチレンアルキルエーテル類またはポリオキシプロピレンアルキルエーテル類、ラウリルアルコールポリグリコールエーテルアセテート類、ソルビトールエステル類、リグノ亜硫酸廃液類またはメチルセルロースである。

【0037】

粉剤、散布用物質およびダストは、化合物IもしくはII、または化合物IおよびIIの混合物を固体担体とともに混合するか、または一緒に粉砕することにより調製することができる。

10

【0038】

顆粒（例えばコーティングした顆粒、含浸させた顆粒、または均一な顆粒）は、通常、活性化化合物を固体担体と結合させることにより調製する。

【0039】

充填剤または固体担体は、例えば、鉱物土、例えばシリカ類、シリカゲル、シリケート、タルク、カオリン、石灰石、石灰、チョーク、粘土、黄土、クレー、ドロマイト、珪藻土、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、酸化マグネシウム、粉末合成物質、および肥料（例えば硫酸アンモニウム、リン酸アンモニウム、硝酸アンモニウム、尿素）、並びに野菜由来の生成物、例えば穀類ミール、樹皮ミール、木のミールおよび殻のミール、セルロース粉末、または他の固体担体である。

20

【0040】

製剤は一般に、0.1～95重量%、好ましくは0.5～90重量%の化合物IおよびIIのうちの一つ、または化合物IおよびIIの混合物を含む。活性化化合物を（NMRスペクトルまたはHPLCにしたがって）純度90%～100%、好ましくは95%～100%で用いる。

【0041】

化合物IもしくはIIまたは混合物、または対応する製剤を、有害な菌類、その生育環境または該菌類が存在しないように保たれるべき植物、種子、土壌、区域、物質若しくは空間を、殺菌的に有効量の混合物または別々に施用する場合は化合物IおよびIIにより処理することにより施用する。

30

【0042】

施用は、有害な菌類による感染の前または後に行うことができる。

【実施例】

【0043】

使用例

本発明の混合物の相乗的活性を、以下の実験により示した：

別々または一緒に、活性化化合物を、63重量%のシクロヘキサノンと27重量%の乳化剤の混合物中で10%エマルジョンとして製剤し、所望の濃度になるまで水で希釈した。

【0044】

評価は、感染した葉の区域をパーセントで測定することにより行った。これらのパーセンテージを効力に変換した。効力(W)を、次のアボットの式を用いて計算した：

40

$$W = (1 - \quad) \cdot 100 /$$

は、処理した植物の菌類感染（%）に対応し、

は、未処理の植物（対照）の菌類感染（%）に対応する。

【0045】

効力0とは、処理した植物の感染レベルが未処理の対照植物の感染レベルに相当することを意味し；効力100とは、処理した植物が感染しなかったことを意味する。

【0046】

活性化化合物の混合物の予想効力を、コルビーの式[R.S. Colby, Weeds 15, 20-22 (1967)]を用いて決定し、測定効力と比較した。

50

【 0 0 4 7 】

コルビーの式: $E = x + y - x \cdot y / 100$

Eは、活性化合物AおよびBを濃度aおよびbで用いた場合の混合物の期待効力であり、未処理対照の%で表し、

xは、活性化合物Aを濃度aで用いた場合の効力であり、未処理対照の%で表し、

yは、活性化合物Bを濃度bで用いた場合の効力であり、未処理対照の%で表す。

【 0 0 4 8 】

使用例1: うどんこ病菌(*Sphaerotheca fuliginea*)を原因とするキュウリのうどんこ病に対する保護活性

栽培品種「Chinese snake」の鉢植えのキュウリの苗の葉に、子葉段階において、10%の活性化合物、85%のシクロヘキサノンおよび5%の乳化剤を含む保存液から調製した活性化合物の水性調製液を流れ出すまでスプレーした。スプレーコーティングが乾燥してから20時間後、この植物に、キュウリのうどんこ病菌(*Sphaerotheca fuliginea*)の遊走子懸濁水を接種した。その後植物を温室中20~24℃、相対大気湿度60~80%で7日間栽培した。その後、うどんこ病の感染範囲を、子葉領域の感染%で視覚的に観察した

感染した葉の領域のパーセンテージとしての視覚的な観察値を、未処理の対照の%として、効力に変換した。効力0とは、未処理の対照における感染と同程度であることを意味し、効力100とは、感染が0%であることを意味する。活性化合物の組み合わせの期待効力をコルビーの式[Colby, S. R. (除草剤の組み合わせの相乗的および拮抗的反應の計算), Weeds 15, p 20-22, 1967]を用いて測定し、実測した効力と比較した。

【 表 3 】

表A

活性化合物	スプレー液中の活性化合物の濃度[ppm]	未処理対照の効力 (%)
対照 (未処理)	(83%感染)	0
化合物 I-28	0,125 0,06	52 3
化合物 I-37	0,25 0,125 0,06	3 3 3
化合物 II-59	0,025 0,0125 0,006	82 70 58

【 0 0 4 9 】

【表 4】

表B

本発明の組み合わせ	測定効力	計算効力*)
化合物 I-28 + 化合物 II-59 0,125 + 0,0125 ppm 混合物 10 : 1	100	85
化合物 I-28 + 化合物 II-59 0,06 + 0,006 ppm 混合物 10 : 1	99	59
化合物 I-28 + 化合物 II-59 0,06 + 0,0125 ppm 混合物 4,8 : 1	94	71
化合物 I-28 + 化合物 II-59 0,06 + 0,025 ppm 混合物 2,4 : 1	96	71

10

20

化合物 I-28 + 化合物 II-59 0,125 + 0,006 ppm 混合物 21 : 1	100	80	10
化合物 I-37 + 化合物 II-59 0,125 + 0,0125 ppm 混合物 10 : 1	96	71	
化合物 I-37 + 化合物 II-59 0,06 + 0,006 ppm 混合物 10 : 1	100	59	
化合物 I-37 + 化合物 II-59 0,06 + 0,0125 ppm 混合物 4,8 : 1	100	71	20
化合物 I-37 + 化合物 II-59 0,06 + 0,025 ppm 混合物 2,4 : 1	100	71	30
化合物 I-37 + 化合物 II-59 0,125 + 0,006 ppm 混合物 21 : 1	100	59	
化合物 I-37 + 化合物 II-59 0,25 + 0,006 ppm 混合物 42:1	100	59	

*) コルビーの式を用いて計算した。

【 0 0 5 0 】

試験結果より、全ての混合比について、測定効力は、コルビーの式 (Synerg 166A. XLS より) を用いて予め計算したものよりも高いことが示されている。

フロントページの続き

- (72)発明者 アイケン, カール
ドイツ連邦共和国 6 7 1 5 7 ワッヘンハイム, アム ヒューテンヴィンガート 1 2
- (72)発明者 ローゼ, インゴ
ドイツ連邦共和国 6 8 1 5 9 マンハイム, 1 0, ベー 5
- (72)発明者 アメルマン, エベルハルト
ドイツ連邦共和国 6 4 6 4 6 ヘッペンハイム, フォン - ガーゲルン - シュトラーセ 2
- (72)発明者 スティール, ラインハルト
ドイツ連邦共和国 6 7 1 1 2 ムッターシュタット, ギンスターシュトラーセ 1 7
- (72)発明者 ローレンツ, ギーゼラ
ドイツ連邦共和国 6 7 4 3 4 ハンバッハ, エルレンヴェーク 1 3
- (72)発明者 ストラトマン, ジーグフリード
ドイツ連邦共和国 6 7 1 1 7 リンブルガーホッフ, ドネルスベルクシュトラーセ 9
- (72)発明者 シェラー, マリア
ドイツ連邦共和国 7 6 8 2 9 ランダウ - ゴッドラムシュタイン, ヘルマン ユールゲンス シ
ュトラーセ 3 0
- (72)発明者 シェルベルガー, クラウス
ドイツ連邦共和国 6 7 1 6 1 ゲーンハイム, トラミネルヴェーク 2
- (72)発明者 ハーデン, エゴン
ドイツ連邦共和国 6 7 2 5 9 クラインニーデシャ임, レーメルシュトラーセ 1

審査官 櫛引 智子

- (56)参考文献 欧州特許出願公開第01023834 (EP, A1)
特表2003-501448 (JP, A)
国際公開第97/046096 (WO, A1)
国際公開第97/046097 (WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A01N 35/04
A01N 37/52
CAplus(STN)
REGISTRY(STN)