

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4652573号
(P4652573)

(45) 発行日 平成23年3月16日(2011.3.16)

(24) 登録日 平成22年12月24日(2010.12.24)

(51) Int.Cl.

F I

A O 1 N 57/20 (2006.01)
 A O 1 N 25/22 (2006.01)
 A O 1 N 25/30 (2006.01)
 A O 1 P 13/00 (2006.01)

A O 1 N 57/20 G
 A O 1 N 25/22
 A O 1 N 25/30
 A O 1 P 13/00

請求項の数 20 (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願2000-583350 (P2000-583350)
 (86) (22) 出願日 平成11年11月19日(1999.11.19)
 (65) 公表番号 特表2002-530305 (P2002-530305A)
 (43) 公表日 平成14年9月17日(2002.9.17)
 (86) 国際出願番号 PCT/US1999/027602
 (87) 国際公開番号 W02000/030452
 (87) 国際公開日 平成12年6月2日(2000.6.2)
 審査請求日 平成18年11月14日(2006.11.14)
 (31) 優先権主張番号 60/109,532
 (32) 優先日 平成10年11月23日(1998.11.23)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(73) 特許権者 501231613
 モンサント テクノロジー エルエルシー
 アメリカ合衆国 ミズーリ州 セントルイス
 ス ノース リンドバーグ プールバード
 800
 (74) 代理人 100081422
 弁理士 田中 光雄
 (74) 代理人 100084146
 弁理士 山崎 宏
 (74) 代理人 100116311
 弁理士 元山 忠行
 (74) 代理人 100122301
 弁理士 富田 憲史

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高濃度水性グリホサート組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

40重量%以上のN - ホスホノメチルグリシン酸等価物濃度の、N - ホスホノメチルグリシンのモノエタノールアンモニウム塩の水性溶液を含むことを特徴とする、除草剤組成物。

【請求項 2】

40 ~ 48重量%のN - ホスホノメチルグリシン酸等価物を含むことを特徴とする、請求項1記載の除草剤組成物。

【請求項 3】

組成物1リットル当たり、総量20 ~ 200gの1種以上の界面活性剤からなる、水に溶解または安定に懸濁している界面活性剤成分をさらに含み、ここで、組成物が50以上の曇点を有するように界面活性剤成分が選択されるものである、請求項1または請求項2に記載の組成物。

【請求項 4】

グリホサート(glyphosate)濃度が、全てのグリホサートが代わりにイソプロピルアンモニウム塩として存在する場合に許容される保存安定性を提供し得る最大濃度より高いものである、請求項1 ~ 3いずれか1項に記載の組成物。

【請求項 5】

全てのグリホサートが代わりにイソプロピルアンモニウム塩として存在する以外同様の組成物よりも低い粘度を有する、請求項1 ~ 4いずれか1項に記載の組成物。

10

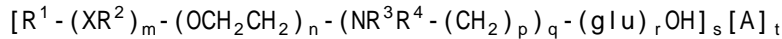
20

【請求項 6】

0 以上の温度で 7 日までの期間保存した場合に、組成物が該 N - ホスホノメチルグリシンまたはその塩の結晶化を示さないように界面活性剤成分が選択される、請求項 3 記載の組成物。

【請求項 7】

該界面活性剤成分が、4 の pH レベルで、式：



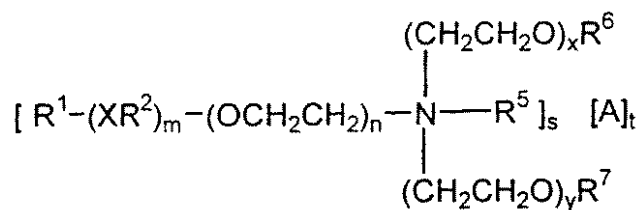
〔式中、 R^1 は C_{1-18} の脂肪族、飽和または不飽和の、直鎖または分枝鎖のヒドロカルビル鎖、各 X はエーテル、チオエーテル、スルホキシド、エステル、チオエステルまたはアミド結合、各 R^2 は独立して C_{3-6} ヒドロカルビルデン、m は 0 ~ 8、 $R^1-(XR^2)_m$ における炭素原子の合計数は 8 ~ 24、n は 0 ~ 5、 R^3 および R^4 は独立して水素または C_{1-4} アルキル、p は 2 ~ 4、q は 0、glu はグリコシド単位、r は 1 ~ 2、A はアニオン性物質、ならびに s は 1 および t は 0 を意味する〕

を有する 1 種以上の化合物からなる、請求項 3 または請求項 6 に記載の組成物。

【請求項 8】

該界面活性剤成分が、4 の pH レベルで、式：

【化 1】



〔式中、 R^1 は水素または C_{1-18} ヒドロカルビル、各 X はエーテル、チオエーテル、スルホキシド、エステル、チオエステルまたはアミド結合、各 R^2 は独立して C_{3-6} ヒドロカルビルデン、m は 0 ~ 8、 $R^1-(XR^2)_m$ における炭素原子の合計数 J は 8 ~ 24、n は 0 ~ 5、 R^5 は水素、 C_{1-4} アルキル、アニオン性オキシド基またはアニオン性基- $(CH_2)_uC(O)O$ (u は 1 ~ 3)、 R^6 および R^7 は独立して水素または C_{1-4} アルキル、x および y は、 $x + y + n$ が $E = 25 - J$ である数 E 以下であるような平均数、A はアニオン性物質、ならびに電気的中性を維持するように s は 1 ~ 3 の整数および t は 0 または 1 を意味する〕

を有する 1 種以上の化合物からなる、請求項 3 または請求項 6 に記載の組成物。

【請求項 9】

R^1 が C_{8-18} の脂肪族、飽和または不飽和の、直鎖または分枝鎖のヒドロカルビル鎖であり、および m が 0 である、請求項 8 記載の組成物。

【請求項 10】

R^1 が C_{8-18} の脂肪族、飽和または不飽和の、直鎖または分枝鎖のヒドロカルビル鎖であり、m が 1 ~ 5 であり、各 - XR^2 - 基が - $OCH(CH_3)CH_2$ - であり、および n が 0 である、請求項 8 記載の組成物。

【請求項 11】

R^1 が C_{8-18} の脂肪族、飽和または不飽和の、直鎖または分枝鎖のヒドロカルビル鎖であり、m が 1 であり、X がエーテル結合であり、 R^2 が n - プロピレンであり、および n が 0 である、請求項 8 記載の組成物。

【請求項 12】

x および y が 0 であり、 R^5 、 R^6 および R^7 が独立して C_{1-4} アルキルであり、ならびに t が 1 である、請求項 9 ~ 11 いずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 13】

$x + y$ が 2 以上であり、 R^6 および R^7 が水素であり、ならびに t が 1 である、請求項 9 ~ 11 いずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 14】

10

20

30

40

50

R^5 がアニオン性オキシド基であり、および t が 0 である、請求項 9 ~ 11 いずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 15】

R^5 がアニオン性基 $-CH_2C(O)O$ であり、 x および y が 0 であり、ならびに t が 0 である、請求項 9 ~ 11 いずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 16】

R^1 が C_{8-18} の脂肪族、飽和または不飽和の、直鎖または分枝鎖のヒドロカルビル鎖であり、 m が 1 であり、 X がアミド結合であり、 R^2 が n -プロピレンであり、 n が 0 であり、 x および y が 0 であり、 R^5 が水素または C_{1-4} アルキルであり、 R^6 および R^7 が独立して C_{1-4} アルキルであり、ならびに t が 1 である、請求項 8 記載の組成物。

10

【請求項 17】

R^1 が水素であり、 m が 3 ~ 8 であり、各 $-XR^2-$ が $-OCH(CH_3)CH_2-$ であり、 x および y が 0 であり、 R^5 、 R^6 および R^7 が独立して C_{1-4} アルキルであり、ならびに t が 1 である、請求項 8 記載の組成物。

【請求項 18】

A が塩化物、臭化物、ヨウ化物、硫酸、エト硫酸、リン酸、酢酸、プロピオン酸、コハク酸、乳酸、クエン酸、酒石酸または N -ホスホノメチルグリシン・アニオンであり、および t が 1 である、請求項 7 または 8 記載の組成物。

【請求項 19】

20

$g/1$ で表した界面活性剤濃度が、全てのグリホサートが代わりにイソプロピルアンモニウム塩として存在する場合に達成され得る最大濃度より高いものである、請求項 3 または 6 ~ 18 いずれか 1 項に記載の組成物。

【請求項 20】

請求項 1 ~ 19 いずれか 1 項に記載の組成物の除草剤有効量を適宜の容量の水で希釈して適用組成物を調製し、次いで、該適用組成物を植物または植物類の葉に適用することを含む、除草方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

発明の分野

30

本発明は、農業および関連産業において有用な除草剤組成物に関する。最も詳細には、本発明は、除草剤グリホサート (N -ホスホノメチルグリシン) の塩を有効成分として含有する水性濃縮組成物、ならびにかかる組成物を用いて望ましくない植生を殺しあるいは制御する方法に関する。

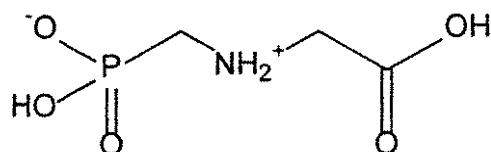
【0002】

発明の背景

グリホサートは、発芽後に葉に適用される除草剤として当該分野においてよく知られている。その酸形態において、グリホサート (glyphosate) は式 (I) :

【化 2】

40



(I)

で示される構造を有し、あまり水に溶解しない (25 °C において 1.16%)。このため、典型的には、それは水溶性の塩として処方される。

グリホサートの一塩基、二塩基および三塩基塩を製造することができる。しかしながら、一般的には、グリホサートを一塩基塩として処方し、植物に適用することが好ましい。最も広範に使用されるグリホサートの塩はモノ (イソプロピルアンモニウム) であり、しばしば IPA 塩と略称される。グリホサートの IPA 塩を有効成分として含有する Monsan

50

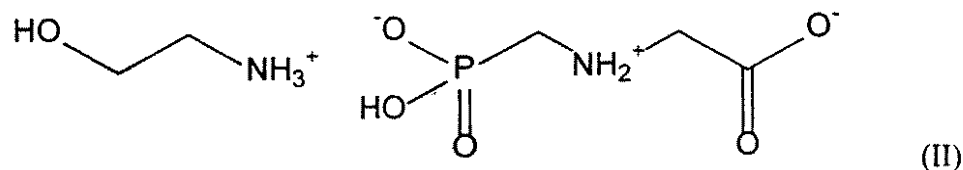
to Companyの市販除草剤としてはRoundup（登録商標）、Roundup Ultra（登録商標）、Roundup（登録商標）XtraおよびRodeo（登録商標）除草剤等がある。これらのすべては水溶液濃縮物（SL）処方であり、一般的には、植物の葉に適用する前に使用者が水で希釈するものである。SL処方として市販されている他のグリホサート塩はモノ（トリメチルスルホニウム）を包含し、それはしばしばTMSと略称され、例えば、ZenecaのTouchdown（登録商標）除草剤等がある。

グリホサートの種々の塩、グリホサートの塩の製造法、グリホサートまたはその塩の配合、ならびに雑草および他の植物の除草および抑制におけるグリホサートまたはその塩の使用法が、Bakerの米国特許第4,507,250号、Prisbyllaの米国特許第4,481,026号、Franzの米国特許第4,405,531号、Largeの米国特許第4,315,765号、Prillの米国特許第4,140,513号、Franzの米国特許第3,977,860号、Franzの米国特許第3,853,530号、およびFranzの米国特許第3,799,758号に開示されている。

【0003】

文献において知られているが、優先日前には市販されていないグリホサートの水溶性塩としては、下式（II）：

【化3】



で示されるモノエタノールアンモニウム（MEA）塩があり、約pH4の水溶液中に主にイオン化形態として存在する。この塩は、例えば、上記米国特許4,405,531において、除草剤として有用なグリホサートの有機アンモニウム塩の非常に長いリストの一員として、そしてモノアルカノールアンモニウム塩の一例として、Franzにより開示されており、該特許において「特に好ましい」化合物に含められている。ほぼ同モル量のグリホサート酸およびモノエタノールアミンを水性媒体中で反応させることによりグリホサートのMEA塩の水溶液を得ることができる。該反応は発熱性である。

MEA塩として市販されている除草剤はごくわずかである。商標Lontrel（登録商標）としてDowElancoにより販売されているある種の除草剤製品中に、クロピラリド（3,6-ジクロロ-2-ピリジンカルボン酸）がMEA塩として処方されている。グリホサートMEA塩は分子量230であり、グリホサートIPA塩（228）と非常に類似している。

グリホサートMEAの水に対する溶解度は先行技術において記録されていないと確信されるが、当業者になじみの方法により容易に決定される。同様に、約4重量%以上のグリホサートMEA塩の水溶液は特に開示されていないと確信されるので、かかる溶液の普通でなく予期されない特性は公に知られていない。本明細書において重量%として示される濃度は、100重量部の溶液あたりの塩または酸等価物の重量部に関するものである。

【0004】

グリホサートMEA塩は20において純水に対して約64重量%の溶解度、すなわち酸等価物（a.e.）として約47%であることを、今回、示すことができる。これはIPA塩の溶解度と非常に類似している。よって、Monsanto CompanyからMON 0139として市販されている水溶液濃縮物のごとき市販グリホサートIPA塩に匹敵する、例えば約46重量% a.e.のグリホサートMEA塩の単純な水溶液濃縮物を得ることができる。

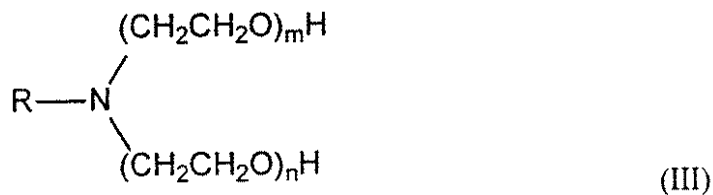
他のグリホサート塩に優るIPA塩の主な利点は、広範な界面活性剤と組み合わせられた場合の、その塩の水溶液濃縮物に対する適合性である。一般的には、グリホサート塩は、最良の除草品質を発揮するためには適当な界面活性剤の存在を必要とする。界面活性剤は水溶液濃縮物中に入れることができ、あるいは最終消費者が希釈スプレイ組成物に添加する

こともできる。界面活性剤の選択は、除草剤の品質に大きく影響する。例えば、Weed Science, 1997年, 第25巻, 275～287頁において、WyrillおよびBurnsideは、IPA塩として適用されたグリホサートの除草効果を向上させる能力において広範な界面活性剤を見出している。

いくつかの広範な一般化にもかかわらず、グリホサートの除草有効性を向上させる異なる界面活性剤の相対的能力は非常に予測しがたい。

グリホサートの除草有効性を最も有用に向上させる傾向のある界面活性剤は、一般的には、カチオン性界面活性剤に限られず、グリホサートの一塩基塩のSL処方に特徴的な約4～5のpHレベルの水溶液または分散物中でカチオンを形成する界面活性剤も含まれる。例としては、長鎖（典型的にはC₁₂ないしC₁₈）第3級アルキルアミン界面活性剤および第4級アルキルアンモニウム界面活性剤がある。界面活性剤の構造を説明する際に本明細書において慣用的に使用される用語「アルキル」は、不飽和ならびに飽和ヒドロカルビル鎖を包含する。グロホセートIPA塩の水溶液濃縮物処方に使用される特に普通の第4級アルキルアミン界面活性剤は、非常の親水性の界面活性剤ポリオキシエチレン（15）タロワミン（tallowamine）、すなわち、式（III）

【化4】



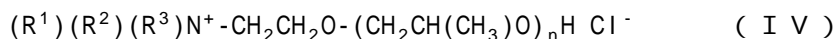
【式中、Rはタロウ（tallow）に由来する主にC₁₆およびC₁₈アルキルおよびアルケニル鎖の混合物であり、m+nは平均約15である】

に示すように、アミン基に結合した2本のポリマー化エチレンオキシド鎖となった全部で約15分子のエチレンオキシドを有するタロワミンである。

特定の適用例において、いくぶん疎水性の低いアルキルアミン界面活性剤、例えば、Fordesらの米国特許第5668085号に示唆されたような約10分子未満のエチレンオキシドを有するもの、例えばポリオキシエチレン（2）ココアミン（cocoamine）を用いることが望ましいことがわかっている。該特許は、グリホサートのIPA、アンモニウムまたはカリウム塩と一緒に使ったかかる界面活性剤を含有する典型的な水性組成物を開示している。

【0005】

広範な第4級アンモニウム界面活性剤が、グリホサートIPA塩の水溶液濃縮物処方の成分として開示されている。典型例は、欧州特許第0274369号に開示されたポリオキシエチレン（2）ココアンモニウムクロリド、米国特許第5317003号に開示されたポリオキシエチレン（15）ココアンモニウムクロリド、および米国特許第5464807号に開示された式（IV）：



【式中、R¹、R²およびR³はそれぞれC₁₋₃アルキル基であり、nは平均2ないし20の数である】

を有する種々の第4級アンモニウム化合物である。

PCT公開WO97/16969には、第4級アンモニウム界面活性剤および第1級、第2級もしくは第3級アルキルアミン化合物を含有する、IPA、メチルアンモニウムおよびジアンモニウム塩の形態のグリホサートの水溶液濃縮物組成物が開示されている。

グリホサート塩の水溶液濃縮物組成物として有用であることが示されている他のカチオン性界面活性剤としては、WO95/33379に開示されたもの等がある。さらに、これらと同じ界面活性剤のうち特定のものをを用いて、組成物の安定性を向上させる一定の成分をさらに添加することによりグリホサート塩の高濃度水溶液組成物を得ることができるといことが、WO97/32476に開示されている。その中で例示されたグリホサート

塩はIPA塩ならびにモノおよびジアンモニウム塩である。

【0006】

グリホサートIPA塩の水溶液濃縮物処方の有用成分であると報告された両親媒性または両性イオン界面活性剤は、米国特許第5118444号に開示されたポリオキシエチレン(10-20)タロワミンオキシドのごときアルキルアミンオキシドである。

一般的には、非イオン性界面活性剤は、グリホサートIPA塩のSL処方の単一界面活性剤成分として使用した場合、カチオン性または両親媒性界面活性剤よりも除草活性を向上させることにおいてあまり有効でないと報告されている。ただし、例えば、オーストラリア特許第627503に開示されたある種のアルキルポリグルコシドならびにPCT公開WO98/17109に開示されたポリオキシエチレン(10-100)C₁₆₋₂₂アルキルエーテルは例外である。米国特許第5389598号および米国特許第5703015号に開示されたようなカチオン性界面活性剤との組み合わせを除き、一般的にアニオン性界面活性剤はグリホサートIPA塩のSL処方においては興味を持たれていない。

【0007】

上記の界面活性剤のいくつかのタイプは、一般的にはグリホサート塩の組成物において有用なものとして開示されているが、グリホサートMEA塩との関連において特に開示されたものはない。最近、アルキルエーテルアミン、アルキルエーテルアンモニウム塩およびアルキルエーテルアミンオキシド界面活性剤が、MEA塩を包含する種々のグリホサート塩の水溶液濃縮物処方の調製に適していることが米国特許第5750468号に開示された。グリホサート塩との水性組成物中に使用した場合、主題の界面活性剤の利点は、これらの界面活性剤が組成物のグリホサート濃度を非常に高いレベルにできることであるということが、特定のグリホサート塩への言及なしに該特許に開示されている。しかしながら、この点において、使用グリホサート塩がMEA塩である場合の特別な利点は何ら示唆されていない。

【0008】

グリホサートMEA塩を除草有効成分として重視することは、この塩を好ましい界面活性剤タイプと一緒にして非常に濃縮されたSL製品として処方することが比較的困難であったために、これまで限定されていた可能性がある。グリホサートMEA塩と界面活性剤とを処方することに関する問題の説明としては、グリホサートIPA塩組成物中にこれまで最も広く用いられてきた界面活性剤、すなわち上記式(III)のポリオキシエチレン(15)タロワミンがグリホサートMEA塩含有水溶液に比較的適合しにくいということである。

例えば、濃縮水溶液中の界面活性剤/塩適合性に関する1の便利で実際に有用なインジケータは「曇点(cloud point)」である。これは、一定濃度の界面活性剤および塩を含有する一定の水性成分が単一相溶液を形成する最大温度の測定値である。曇点以上では、界面活性剤は、先ず、霞がかかったあるいは雲ったような分散物として溶液から分離し、次いで、放置すると、明確な相となり、通常は溶液の表面上に上昇する。通常には、組成物温度を連続的にモニターしながら溶液が濁るまで組成物を加熱し、次いで、攪拌しながら組成物を冷却することにより組成物の曇点が決定される。溶液が透明になる時の温度の読みが曇点の測定値である。

通常には、50 またはそれ以上の曇点は、グリホサートSL処方の大部分の市販目的に適合すると考えられる。下表1に示すように、50 またはそれ以上の曇点を維持しながら、濃度31重量% a . e . のグリホサートIPA塩の水溶液に15重量%までのポリオキシエチレン(15)タロワミンを負荷することができるが、同じa . e . 濃度のグリホサートMEA塩の水溶液は、曇点を50 以下に降下させない場合には、わずか4重量%までの同じ界面活性剤にしか耐えることできない。8重量%またはそれ以上のポリオキシエチレン(15)タロワミン濃度において、該界面活性剤は室温(20~25)においてさえ31重量% a . e . のグリホサートMEA塩水溶液に不溶である。約0.1%またはそれ以上の界面活性剤濃度が希釈適用組成物中で維持されるように除草剤が極端に低い水体积中に適用される状況を除いては、31重量% a . e . またはそれ以上のグリホサー

10

20

30

40

50

ト濃度を有する濃縮組成物中への4%またはそれ以下の界面活性剤負荷によっては、グリホサート除草剤の使用者が欲する除草有効性を提供できそうにない。

【0009】

表1．種々の濃度のポリオキシエチレン(15)タロワミン界面活性剤¹を含有するグリホサート塩溶液の曇点

【表1】

界面活性剤濃度 (重量%)	曇点 (°C)	
	IPA 塩, 31 重量% a.e.	MEA 塩, 31 重量% a.e.
2	88	67
4	84	49
6	79	45
8	75	20~25°Cにおいて不溶
10	70	20~25°Cにおいて不溶
15	50	20~25°Cにおいて不溶
20	40	20~25°Cにおいて不溶

¹Akzo の EthomeenTMT/25

【0010】

31重量% a . e . 以上のグリホサート a . e . 濃度において、許容できる高い曇点を維持しつつ組成物中に含ませることのできるポリオキシエチレン(15)タロワミン量は同様に少ない。

農耕学的に有用な界面活性剤含量を有するグリホサートの保存安定水溶液濃縮物を提供すること、あるいは界面活性剤を「十分に負荷された(fully loaded)」組成物であるが、グリホサートIPA塩に基づく相当量の界面活性剤を含有する組成物または界面活性剤を「十分に負荷された(fully loaded)」組成物よりも多くの濃縮物単位体積あたりのグリホサート有効成分を雑草防除従事者に提供する組成物を提供することが望まれる。

【0011】

「農業経済学的に有用な界面活性剤成分」という語句は、界面活性剤不含の同様の組成物と比較して、有利な除草剤有効性を使用者にもたらすタイプおよび量の1種またはそれ以上の界面活性剤を意味する。「十分に負荷された」とは、水で慣用的に希釈され、葉に適用した場合、希釈組成物にさらに界面活性剤を添加する必要なく、Roundup(登録商標)除草剤のような現在市販されているグリホサートIPA塩処方の除草剤有効性に少なくとも匹敵する、1種またはそれ以上の重要な雑草種に対して除草有効性を提供するに適した界面活性剤の十分な濃度を意味する。

【0012】

「保存安定」は、さらに界面活性剤を含むグリホサート塩の水溶液濃縮組成物の場合には、約50℃までの温度に曝露した場合に相分離を起こさず(すなわち、組成物は約50℃またはそれ以上の曇点を有していなければならない)、好ましくは、約0℃またはそれ以下の温度に約7日間曝露した場合にグリホサートまたはその塩の結晶を形成しないことを意味する。理想的には、曇点は60℃またはそれ以上であるべきで、組成物は、グリホサート塩の種結晶が存在する場合においてさえ、約-10℃よりも低い温度で約7日間、結晶を形成せずに保存されなければならない。

【0013】

特定の界面活性剤およびグリホサート a . e . 濃度においてグリホサート塩に「適合する」と本明細書に記載される界面活性剤は、特定濃度でその界面活性剤および塩を含有する前記に規定した保存安定性組成物を与える界面活性剤である。

【0014】

液体除草剤の使用者は一般に重量ではなく容量で投与量を計量し、そのような処方は一

10

20

30

40

50

般に、単位面積当たりの容量、例えば1ヘクタール当たりのリットル (l / ha) または1エーカー当たりの液体オンス ($oz / acre$) で示される好適な使用量についての指示がラベルに記載されている。従って、使用者にとって重要な除草剤有効成分の濃度は、重量%ではなく、単位容量当たりの重量、例えば、1リットル当たりのグラム (g / l) または1ガロン当たりのポンド (lb / gal) である。グリホサート塩の場合は、1リットル当たりの酸等価物 ($g a . e . / l$) として濃度を示す場合が多い。

【0015】

慣習的に、Monsanto CompanyのRoundup (登録商標) およびRoundup (登録商標) Ultra 除草剤のような界面活性剤含有グリホサートIPA塩処方、約 $360 g a . e . / l$ のグリホサート濃度で処方されるが最も一般的である。Zenecaの界面活性剤含有グリホサートTMS塩処方Touchdown (登録商標) は、約 $330 g a . e . / l$ のグリホサート濃度で処方されている。より低いa.e.濃度、即ちより希釈された処方も市販されているが、それらが含有するグリホサート1単位当たりのコストが高く、主に梱包、輸送、および保存コストに反映される。

【0016】

さらなる利益はコスト節約および使用者に対する便利さにおけるものであり、「十分に負荷された」水溶液濃縮物組成物、あるいは農業経済学的に有用な界面活性剤成分を含む組成物が、 $360 g a . e . / l$ よりも有意に高いグリホサート濃度、例えば約 $420 g a . e . / l$ またはそれ以上、あるいは約 $480 g a . e . / l$ またはそれ以上のグリホサート濃度で提供されるならば、かかる利益が可能となる。

これらのような非常に高いグリホサートa.e.濃度において、通常には、重大な問題が生じる。これは濃縮物が高粘度のために生じる水溶液濃縮物の注液および/またはポンピングの困難性であり、特に低温時に明らかである。それゆえ、同じグリホサートa.e.重量/体積濃度においてIPA塩水溶液よりも粘度の低いグリホサート塩の非常に濃縮された水溶液を有することが非常に望ましい。

以下の開示から明らかなように、これらの利益および他の利益が本発明により提供される。

【0017】

発明の概要

本発明は、グリホサートMEA塩の濃縮水溶液のこれまで未知であった驚くべき特性、すなわち、同じグリホサートa.e.濃度において、IPA塩を包含するグリホサートの他の大部分の有機アンモニウム塩の水溶液と比較して、かかる溶液が非常に高い比重を有するという事を利用するものである。したがって、一定の重量%濃度において、グリホサートMEA塩の水溶液濃縮物組成物は、グリホサートIPA塩の対応組成物よりも組成物単位体積あたり有意に重い有効成分を使用者に提供する。

それゆえ、本発明の1の具体例において、N-ホスホノメチルグリシン酸等価物として約30ないし約48重量パーセント、好ましくは約40ないし約48重量パーセントの濃度の、主にモノエタノールアンモニウム塩の形態のN-ホスホノメチルグリシンの水溶液を含む除草組成物を提供する。

かかる組成物は、その比較的高い比重により、同じ酸等価物重量濃度のN-ホスホノメチルグリシンのイソプロピルアンモニウム塩の対応組成物よりも小さい体積を占める。

【0018】

本発明の関連具体例において、組成物1リットルあたり約360ないし約600グラムの濃度のN-ホスホノメチルグリシン酸等価物の、主にモノエタノールアンモニウム塩の形態のN-ホスホノメチルグリシンの水溶液を含む除草組成物を提供する。

かかる組成物は、同じ酸等価物重量/体積濃度において、N-ホスホノメチルグリシンのイソプロピルアンモニウム塩の対応組成物よりも有意に低い粘度を有する。

【0019】

本発明の他の実施態様において、農業経済学的に有効な量の界面活性剤の存在下に、濃縮水溶液中にグリホサートMEA塩の極めて高い重量/容量濃度が得られることを見い出

10

20

30

40

50

した。界面活性剤の選択が、このような結果を得るのに重要であることが分かった。

【0020】

従って、さらなる具体例において、本発明は、

(1) 水、

(2) 組成物 1 リットル当り、約 360 ~ 約 570 g 酸等価物の量で上記水に溶解している、主にモノエタノールアンモニウム塩の形の N - ホスホノメチルグリシン、および

(3) 組成物 1 リットル当り、総量約 20 ~ 約 200 g の 1 種以上の界面活性剤からなる、上記水に溶解または安定に懸濁している界面活性剤成分を含み、組成物が約 50 より低くない曇点を有し、好ましくは、約 0 よりも低い温度で約 7 日間保存された場合に、グリホサートまたはその塩の結晶化を実質的に示さないように当該界面活性剤成分を選択することを特徴とする除草剤組成物を提供する。

10

【0021】

上の文脈において、「主として」なる語は、a . e . として表した場合少なくとも約 50 重量%、好ましくは少なくとも約 75 重量%、より好ましくは少なくとも約 90 重量%のグリホサートが MEA 塩として存在することを意味する。曇点および非結晶特性が示された限度内にあるかぎり、そのバランスは他の塩および/またはグリホサート酸から成り立つものであってもよい。

【0022】

本発明のさらなる態様において、前記の濃度におけるグリホサート MEA 塩への相溶性が予想外に高い特定の種類の界面活性剤を確認した。従って、本発明の具体例は、上記の界面活性剤含有除草剤組成物であって、界面活性剤成分が、主として、各々、

20

(1) エーテル、チオエーテル、スルホキシド、エステル、チオエステルおよびアミド結合から選択される 0 ~ 約 7 つの結合で一緒になった、1 つまたは複数の独立した飽和または不飽和の分枝または非分枝の、脂肪族、脂環式または芳香族 C_{3-18} ヒドロカルビルまたはヒドロカルビリデン基を有し、合計で約 8 ~ 約 24 個の炭素原子の数 J を有する疎水性部分、および

(2) (i) 0 ~ 3 個のオキシエチレン基またはポリオキシエチレン鎖が直接結合した、カチオン性であるか、カチオン性となるようにプロトン化できるアミノ基であって、該オキシエチレン基およびポリオキシエチレン鎖が、平均して $E + J = 25$ 以下となるような界面活性剤分子当たりのオキシエチレン単位の数 E を含み、および/または

30

(ii) 平均して、界面活性剤分子当たり約 2 以下のグリコシド単位を含むグリコシドまたはポリグリコシド基を含む親水性部分を含む除草剤組成物である。

かかる界面活性剤において、該疎水性部分は、(a) 該親水性部分のアミノ基と直接、(b) 該オキシエチレン基または該ポリオキシエチレン鎖の 1 つの末端オキシエチレン単位の 1 つの酸素原子を取り込むエーテル結合によって該親水性部分と、または (c) 該グリコシド単位の 1 つとのエーテル結合によって該親水性部分と結合している。

【0023】

界面活性剤含有量に関して、「主として含む」なる用語は、少なくとも約 50 重量%、好ましくは少なくとも約 75 重量%、より好ましくは少なくとも約 90 重量%の界面活性剤成分が、特定の分子構造を有する界面活性剤から構成されることを意味する。本明細書に規定される界面活性剤の重量または濃度は、水、イソプロパノール、または他の溶剤、あるいはグリコール (例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール等) のような、界面活性剤成分と一緒に導入される場合がある本質的に非界面活性剤の化合物を含まない。

40

【0024】

ポリオキシエチレンアミン界面活性剤における E と J の関係をさらに説明すると、驚くことに、グリホサート MEA 塩との適切な相溶性に関して、疎水性成分が大きいほど (即ち、J の数値が大きいほど)、より少ないオキシエチレン単位が存在する (即ち、E の数

50

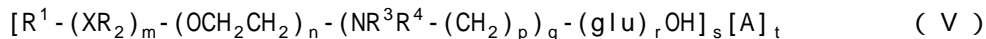
値が小さい)ことが見い出された。例えば、ポリオキシエチレンタロワミンにおけるように、Jが約18の平均値を有する場合に、オキシエチレン単位の最大数は約7である。しかしながら、ポリオキシエチレンココアミンにおけるように、Jが約12の平均値を有する場合に、Eは約13である。

【0025】

いかなる方法においても本発明の範囲を限定するものではないが、下式(V)および(VI)で示される2種類の界面活性剤が、本発明の組成物に特に有用である。

【0026】

本発明の1の具体例は上記除草剤濃縮組成物であって、該組成物において、界面活性剤がpHレベル約4において式(V)：



[式中：

R¹は、水素またはC₁₋₁₈ヒドロカルビルであり；

各Xは、独立して、エーテル、チオエーテル、スルホキシド、エステル、チオエステル、またはアミド結合であり；

各R²は、独立して、C₃₋₆ヒドロカルビルデンであり；

mは、0～約8の平均数であり；

R¹-(XR²)_mにおける炭素原子の合計数は、約8～約24であり；

nは、0～約5の平均数であり；

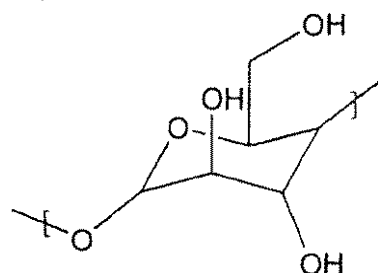
R³およびR⁴は、独立して、水素またはC₁₋₄アルキルであり；

pは、2～4であり；

qは、0または1であり；

gluは、式：

【化5】



で示される単位(本明細書において、グルコシド単位と称する)であり；

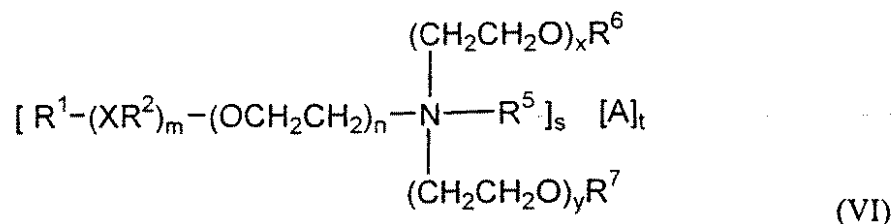
rは、1～約2の平均数であり；

Aは、アニオン成分であり；および

電気的中性が維持されるように、sは1～3の整数であり、tは0または1である]を有する1種またはそれ以上の界面活性剤を主として含んでいる。

【0027】

本発明の他の具体例は上記除草剤濃縮組成物であって、該組成物において、界面活性剤成分が約4のpHレベルにおいて式(VI)：



[式中：

R¹は、水素またはC₁₋₁₈ヒドロカルビルであり；

10

20

30

40

50

各 X は、独立して、エーテル、チオエーテル、スルホキシド、エステル、チオエステル、またはアミド結合であり；

各 R^2 は、独立して、 C_{3-6} ヒドロカルビリデンであり；

m は、0 ~ 約 9 の平均数であり；

$R^1 - (X R^2)_m$ における炭素原子の合計数 J は、約 8 ~ 約 24 であり；

n は、0 ~ 約 5 の平均数であり；

R^5 は、水素、 C_{1-4} アルキル、ベンジル、アニオンオキシド基、またはアニオン基 - $(CH_2)_u C(O)O$ [u は 1 ~ 3 である]；

R^6 および R^7 は、独立して、水素、 C_{1-4} アルキルまたは C_{2-4} アシルであり；

x および y は、 $x + y + n$ が前記に定義される数 E より大きくならないような平均数であり；

A は、アニオン成分であり；および

電気的中性が維持されるように、 s は 1 ~ 3 の整数であり、 t は 0 または 1 である]
を有する 1 種またはそれ以上の界面活性剤を主として含んでいる。

【0028】

前記の式 (V) または (VI) で示される界面活性剤は、オキシエチレン単位が存在する場合に、界面活性剤分子 1 個当たりのオキシエチレン単位の平均数が 25 - J 以下 (J は前記に定義した通りである) であり、グルコース単位が存在する場合に、界面活性剤分子 1 個当たりのグルコース単位の平均数が約 2 以下である、アルキルポリグルコシド、アルキルアミノグルコシド、ポリオキシエチレンアルキルアミン、ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミン、アルキルトリメチルアンモニウム塩、アルキルジメチルベンジルアンモニウム塩、ポリオキシエチレン N - メチルアルキルアンモニウム塩、ポリオキシエチレン N - メチルアルキルエーテルアンモニウム塩、アルキルジメチルアミンオキシド、ポリオキシエチレンアルキルアミンオキシド、ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミンオキシド、アルキルベタイン、アルキルアミドプロピルアミン等のように記載しうる非限定的な界面活性剤を包含する。このパラグラフに使用される「アルキル」という用語は、当分野で一般的な意味を有し、 C_{8-18} 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖または分枝鎖ヒドロカルビルを意味する。

【0029】

オキシエチレン単位またはグルコシド単位のような界面活性剤の構造特性に関して、最大または最小「平均数」という用語が本明細書で使用される場合に、界面活性剤の個々の分子のそのような単位の整数が一般に、最大「平均数」より大きい整数または最小「平均数」より小さい整数を包含する範囲で変化すると理解すべきものとする。「平均数」の所定範囲外のそのような単位の整数を有する個々の界面活性剤分子の組成物における存在は、「平均数」が所定の範囲であり、他の条件が満たされている限り、その組成物を本発明の範囲から除外しない。

【0030】

さらに、本発明は、本明細書で得られる除草的に効果的な容量の組成物を適宜の容量の水で希釈して適用組成物を調製し、該適用組成物を植物または植物類の葉に適用することを特徴とする除草方法を提供する。

【0031】

(発明を実施するための最良の態様)

上記したように、意外にも、グリホサート MEA 塩の濃縮水溶液が、極めて大きい比重を有することが見い出された。表 2 は、一例として、現在のまたは以前の商業的に関心のある有機アンモニウム塩および他の塩と比較して、グリホサートの MEA 塩の 30 重量%グリホサート a.e. 溶液について測定した比重を示す。比重は、Mettler DA-300 Density/Specific Gravity Meter を使用して測定される。

【0032】

表 2 30 重量% のグリホサート a.e. - 塩基性塩溶液の比重 (20 / 15.6)

【表 2】

10

20

30

40

50

塩	比重
モノエタノールアンモニウム (MEA)	1. 2357
イソプロピルアンモニウム (IPA)	1. 1554
n-プロピルアンモニウム	1. 1429
メチルアンモニウム	1. 1667
エチルアンモニウム	1. 1599
アンモニウム	1. 1814
トリメチルスルホニウム (TMS)	1. 1904

10

【0033】

従って、1リットルの20 での30重量% a. e. グリホサートMEA塩溶液は、約376 gのグリホサートa. e. / lを含有し、一方、1リットルの20 での30重量% a. e. グリホサートIPA塩溶液は、約347 g グリホサートa. e. / lを含有する。言い換えれば、同じa. e. 重量濃度において、MEA塩溶液は、1リットルにつき約7%多いグリホサートa. e. をデリバリーする。

【0034】

高比重のMEA塩の溶液は、MEA塩の水中溶解性の範囲だけでなく、界面活性剤の相溶性の範囲によっても、グリホサート最大濃度が抑えられる、界面活性剤含有溶液において特に価値のあるものとなる。かかる溶液での、MEA塩の利点は、(a) IPA塩を同じ界面活性剤濃度の同じ相溶性の界面活性剤の存在下にて用いるよりも、より高いグリホサートa. e. の最大重量/容量濃度が得られること、(b) IPA塩を同じグリホサートa. e. の重量/容量濃度で用いるよりも、より高い相溶性の界面活性剤濃度が得られること、(c) グリホサートa. e. および界面活性剤の所定の重量/容量濃度で、IPA塩を用いて調製された対応する組成物よりも改良された保存安定性が得られること、(d) グリホサートa. e. および界面活性剤の所定の重量/容量濃度で、比重が低い結果として、IPA塩を用いて調製された対応する組成物よりも改良された注ぎ特性およびポンピング特性が得られることである。

20

【0035】

本発明の組成物の利点はグリホサート濃度が減少するにつれて小さくなり、酸等価物が約360 g / lより低い、すなわち、ラウンドアップ(Roundup) (登録商標) 除草剤などの市販されているグリホサートIPA塩製品に配合されている濃度よりも低いグリホサート濃度では下限ぎりぎりではない。本発明の好ましい組成物においては、グリホサート濃度は420 g a. e. / lより小さくなく、または約420 g a. e. / lではなく、特に好ましい組成物においては、約480 g a. e. / l、例えば、約480ないし約540 g a. e. / lより小さくはない。本発明の保存安定性のある界面活性剤含有の組成物中のグリホサート濃度の上限は約570 g a. e. / lであり、この上限はグリホサートMEA塩の水中における溶解度限界の結果であり、界面活性剤が配合されていることでさらに限界が低下した結果であると考えられる。

30

40

【0036】

グリホサート濃度の上限と同様に、配合しうる界面活性剤の量は低濃度のグリホサート濃度よりも低い。大抵の目的には、この少量の界面活性剤ではグリホサートの除草剤の効能を許容できる程度に信頼できる強化を得るのに不相当であると思われる。しかし、一の容量で、例えば、約10ないし約50リットル/ヘクタールの容量で植物を処理するために、組成物を比較的少量の水で希釈しなければならない、ある特定の目的に用いる場合、本発明の濃縮組成物中の組成物濃度は、通常、約20 g / lと低くすることができる。このような特異的な目的の適用はローブ-ウィック塗布および超低容量の空中散布を包含する。一般的な目的の適用には、典型的には、約50ないし約1000リットル/ヘクタールの、最も好ましくは約100ないし約400リットル/ヘクタールの水で希釈した後に散

50

布することにより、本発明の濃縮組成物の界面活性剤濃度は、好ましくは、約 60 ないし約 200 g / l である。

【0037】

本発明の組成物に有効であることが見い出された代表的な界面活性剤の型は、下記のものを含む：

(A) R^1 が C_{8-18} 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖または分枝鎖ヒドロカルビル鎖であり、 m 、 n 、および q が 0 であり、 s が 1 であり、 t が 0 である式 (V) に対応する界面活性剤。この群は当分野で包括的に既知であるか、または本明細書中「アルキルポリグルコシド」または「APG」と称される、いくつかの市販の界面活性剤を含む。好適な例は、Henkel によって市販されている Agrimul™ PG-2069 および Agrimul™ PG-2076 である。

10

【0038】

(B) R^1 が C_{8-18} 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖または分枝鎖ヒドロカルビル鎖であり、 m が 0 である式 (VI) に対応する界面活性剤。この群において、 R^1 が単独で界面活性剤の疎水性成分を形成し、アルキルアミンにおけるように直接的に、またはある種のアルキルエーテルアミンにおけるようにオキシエチレン基の酸素原子またはポリオキシエチレン鎖の末端酸素原子によって形成されるエーテル結合によって、アミノ官能基に結合している。種々の親水性成分を有する例示的な下位の種類は、下記のものを含む：

【0039】

20

(B-1) x および y が 0 であり、 R^5 および R^6 が独立して C_{1-4} アルキルであり、 R^7 が水素であり、 t が 1 である界面活性剤。この下位の種類は、(R^5 および R^6 がそれぞれメチルである) 当分野で既知であるかまたは本明細書中「アルキルジメチルアミン」と称されるいくつかの市販の界面活性剤を含む。好適な例は、Akzo によって Armeen™ DM12D として市販されているドデシルジメチルアミン、ならびに Ceca によって Noram™ DMC D および Noram™ DMS D としてそれぞれ市販されているココジメチルアミンおよびタロージメチルアミンである。そのような界面活性剤は一般に非プロトン化形態で市販されており、アニオン A はこの界面活性剤と一緒に供給されない。しかし、約 4 ~ 5 の pH のグリホサート MEA 塩処方においては、界面活性剤がプロトン化され、アニオン A が二塩基性塩を形成しうるグリホサートであることができることが分かる。

30

【0040】

(B-2) x および y が 0 であり、 R^5 、 R^6 、および R^7 が独立して C_{1-4} アルキルであり、 t が 1 である、界面活性剤。この下位の種類は、(R^5 、 R^6 、および R^7 がそれぞれメチルであり、A がクロリドイオンである) 当分野で既知であるかまたは本明細書中「アルキルトリメチルアンモニウムクロリド」と称されるいくつかの市販の界面活性剤を含む。好適な例は、Akzo によって Arquad™ C として市販されているココアルキルトリメチルアンモニウムクロリドを含む。

【0041】

(B-3) $x + y$ が 2 またはそれ以上であり、 R^6 および R^7 が水素であり、 t が 1 である界面活性剤。この下位の種類は、当分野で既知であるかまたは本明細書中「ポリオキシエチレンアルキルアミン」(n が 0 であり、 R^5 が水素である)、ある種の「ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミン」(n が 1 ~ 5 であり、 R^5 が水素である)、「ポリオキシエチレン N - メチルアルキルアンモニウムクロリド」(n が 0 であり、 R^5 がメチルである)、ある種の「ポリオキシエチレン N - メチルアルキルエーテルアンモニウムクロリド」(n が 1 ~ 5 であり、 R^5 がメチルである) と称される市販の界面活性剤を含む。好適な例は、Akzo によって Ethomeen™ C/12、Ethomeen™ T/15、および Ethomeen™ C/20 としてそれぞれ市販されているポリオキシエチレン (2) ココアミン、ポリオキシエチレン (5) タロワミン、およびポリオキシエチレン (10) ココアミン；アミン基がプロトン化されていない場合に、米国特許第 5,750,468 号に開示されている式 (VI

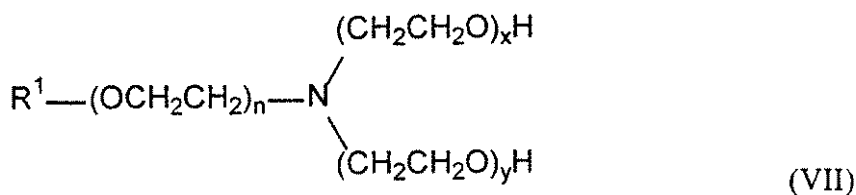
40

50

I) :

【 0 0 4 2 】

【 化 7 】

[式中、 R^1 は C_{12-15} アルキルであり、 $x + y$ は 5 である]

で示される界面活性剤；ならびに、AkzoによってEthoquad™ C/12およびEthoquad™ 18/12としてそれぞれ市販されているポリオキシエチレン(2)N-メチルココアンモニウムクロリドおよびポリオキシエチレン(2)N-メチルステアリルアンモニウムクロリドである。 R^5 が水素である、即ち第四級アンモニウム界面活性剤ではなく第三級である場合に、アニオンAは一般に界面活性剤に含有されない。しかし、約4~5のpHのグリホサートMEA塩処方においては、アニオンAが二塩基性塩の形成能を有するグリホサートであり得ることが分かるであろう。

【 0 0 4 3 】

(B-4) R^5 がアニオンオキシド基であり、 t が0である界面活性剤。この下位の種類は、当分野で既知であるかまたは本明細書中「アルキルジメチルアミンオキシド」(n 、 x 、および y が0であり、 R^6 および R^7 がメチルである)、ある種の「アルキルエーテルジメチルアミンオキシド」(n が1~5であり、 x および y が0であり、 R^6 および R^7 がメチルである)、「ポリオキシエチレンアルキルアミンオキシド」(n が0であり、 $x + y$ が2またはそれ以上であり、 R^6 および R^7 が水素である)、およびある種の「ポリオキシエチレンアルキルエーテルアミンオキシド」(n が1~5であり、 $x + y$ が2またはそれ以上であり、 R^6 および R^7 が水素である)と称される市販の界面活性剤を包含する。好適な例は、AkzoによってAromox™ DMCとして市販されているココジメチルアミンオキシド、およびAkzoによってAromox™ C/12として市販されているポリオキシエチレン(2)ココアミンオキシドである。

【 0 0 4 4 】

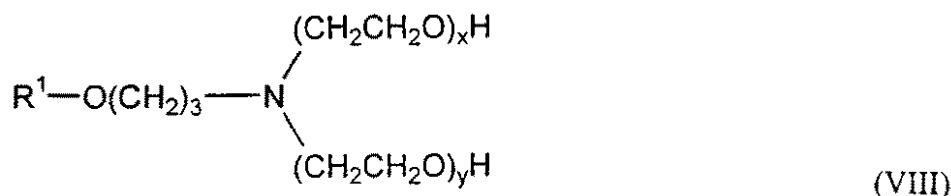
(B-5) R^5 がアニオン基- $\text{CH}_2\text{C}(\text{O})\text{O}$ (アセテート)であり、 x および y が0であり、 t が0である界面活性剤。この種類は、「アルキルベタイン」(n が0であり、 R^5 がアセテートであり、 R^6 および R^7 がメチルである)、およびある種の「アルキルエーテルベタイン」(n が1~5であり、 R^5 がアセテートであり、 R^6 および R^7 がメチルである)として当分野で既知であるかまたは本明細書においてそのように称される市販の界面活性剤を包含する。好適な例は、HenkelによってVelvetex™ AB-45として市販されているココベタインである。

【 0 0 4 5 】

(C) R^1 が C_{8-18} 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖または分枝鎖ヒドロカルビル鎖であり、 m が1であり、 X がエーテル結合であり、 R^2 が n -プロピレンであり、 n が0である式(VI)に対応する界面活性剤。この群において、 R^1 が OR^2 と一緒にあって、 R^2 結合によってアミノ官能基に直接に結合している界面活性剤の疎水性成分を形成する。これらの界面活性剤は、米国特許第5,750,468号に開示されているアルキルエーテルアミンの下位の種類である。例示的な下位の種類は、前記(B-1)~(B-5)に例示される種々の親水性成分を有する。好適な例は、アミン基がプロトン化されていない場合に、米国特許第5,750,468号に開示されているような、式(VIII)：

【 0 0 4 6 】

【 化 8 】



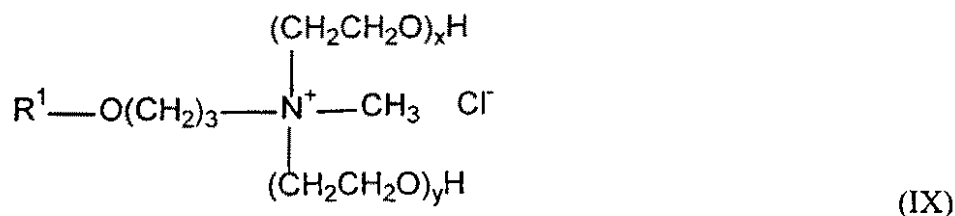
に従う界面活性剤、

【 0 0 4 7 】

式 (I X) :

【 化 9 】

10



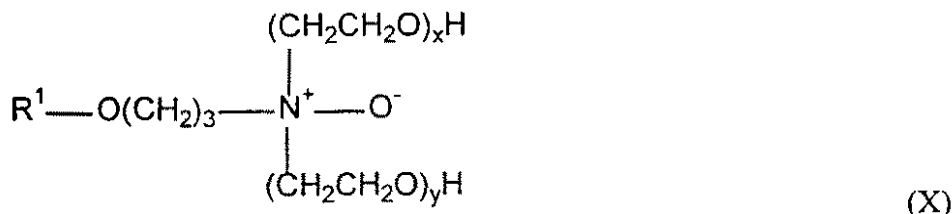
に従う界面活性剤、および

【 0 0 4 8 】

式 (X) :

【 化 1 0 】

20



に従う界面活性剤、ここで各式 (VIII)、(IX)、および (X) において、 R^1 は C_{12-15} アルキルであり、 $x + y$ は 5 である。

【 0 0 4 9 】

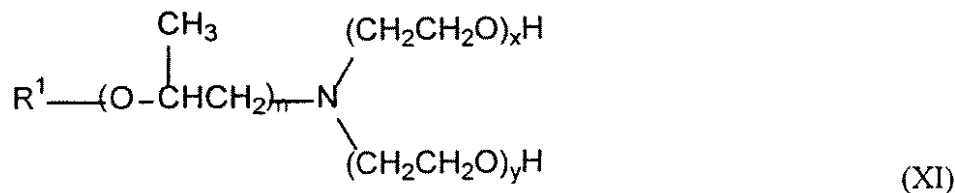
30

(D) R^1 が C_{8-18} 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖または分枝鎖ヒドロカルビル鎖であり、 m が 1 ~ 5 であり、各 X R_2 が $-\text{OCH}(\text{CH}_3)\text{CH}_2-$ 基であり、 n が 0 である式 (VI) に対応する界面活性剤。この群において、 R^1 が $-\text{OCH}(\text{CH}_3)\text{CH}_2-$ 基と一緒にあって、アミノ官能基に直接的に結合している界面活性剤の疎水性成分を形成する。これらの界面活性剤も、米国特許第 5,750,468 号に開示されているアルキルエーテルアミンの種類である。例示的な種類は、前記 (B - 1) ~ (B - 5) に例示される種々の親水性成分を有する。好適な例は、アミン基がプロトン化されていない場合に、米国特許第 5,750,468 号に開示されているような、式 (X I) :

【 0 0 5 0 】

【 化 1 1 】

40



[式中、 R^1 は C_{12-15} アルキルであり、 m は 2 であり、 $x + y$ は 5 である]
で示される界面活性剤である。

【 0 0 5 1 】

(E) R^1 が C_{8-18} 脂肪族、飽和または不飽和、直鎖または分枝鎖ヒドロカルビル

50

鎖であり、 m が1であり、 X がアミド結合であり、 R^2 が n -プロピレンであり、 n が0である式(VI)に対応する界面活性剤。この群において、 R^1 が $X R^2$ と一緒にあって、 R^2 結合によってアミノ官能基に直接に結合している界面活性剤の疎水性成分を形成する。この群の好ましい界面活性剤において、 x および y は0であり、 R^5 は水素または C_{1-4} アルキルであり、 R^6 および R^7 は独立して C_{1-4} アルキルであり、 t は1である。好適な例は、McIntyreによってMackaleneTM 117として市販されているココアミドプロピルジメチルアミンプロピオネートである。

【0052】

(F) R^1 が水素であり、 m が3~8であり、各 $X R^2$ が $-OCH(CH_3)CH_2-$ 基である式(VI)に対応する界面活性剤。この群において、 $-OCH(CH_3)CH_2-$ 基のポリエーテル鎖(ポリオキシプロピレン鎖)が、直接的にかあるいは1個またはそれ以上のオキシエチレン単位を介してアミノ官能基に結合している界面活性剤の疎水性成分を形成する。この群の好ましい界面活性剤において、 x および y は0であり、 R^5 、 R^6 、および R^7 は独立して C_{1-4} アルキルであり、 t は1である。これらの界面活性剤は、米国特許第5,652,197号に開示されているポリオキシプロピレン第四級アンモニウム界面活性剤の種類である。好適な例において、 m は7であり、 n は1であり、 R^5 、 R^6 、および R^7 はそれぞれメチルであり、 A はクロリドである。

【0053】

t が1である界面活性剤において、 A はいずれかの適切なアニオンであり得るが、好ましくは塩化物、臭化物、ヨウ化物、硫酸、エト硫酸、リン酸、酢酸、プロピオン酸、コハク酸、乳酸、クエン酸、酒石酸・アニオン、または上記のようにグリホサート・アニオンである。

【0054】

本発明の1つの実施態様において、組成物は米国特許第5,750,468号に開示されるアルキルエーテルアミンのクラスの界面活性剤を含有する。さらなる実施態様において、存在する界面活性剤は米国特許第5,750,468号に開示されるアルキルエーテルアミン以外である。

【0055】

本発明の特定の実施態様は、グリホサート濃度(g a . e . / lで表される)が、全てのグリホサートが代わりにIPA塩として存在する場合に許容される保存安定性を提供する最高濃度より高い上記のようなグリホサートMEA塩組成物である。再び、許容される保存安定性によって、約50以上の曇点を有し、好ましくは、約0以上の温度に約7日間までの期間曝露した場合にグリホサートまたはその塩の結晶の形成を実質的に示さないことが意味される。

【0056】

本発明の別の特定の実施態様は、全てのグリホサートが代わりにIPA塩の形態である以外同様な組成物より低い粘性を有する上記のようなグリホサートMEA塩組成物である。より低い粘性が、低温(例えば、約-10~約10)における改善された注液性(pourability)および/またはポンパビリティとして表される場合、特に有用である。驚くべきことに、グリホサートIPA塩の対応する組成物に比較した場合、低下した粘性が実質的に全てのグリホサートMEA塩の水性濃縮組成物の特徴であることが見出された。この知見は、本明細書中の実施例4、特にこの実施例の一部をなす表6中のデータによって特に良く示されている。

【0057】

水性濃縮組成物において、グリホサート塩の濃度および/または界面活性剤の濃度が、MEA塩を用いてさえも粘性が許容されない高さであるほど高い場合、それでもなおMEA塩はIPAを上回る有意な利点を提供する。そのような組成物において、少量の水を添加すると、代表的には、グリホサートがIPA塩ではなくMEA塩として存在する場合、粘性はずっと大きく低下される。いずれかの所望されるレベルに粘性を低下させるために必要とされる水の量は、IPA塩の場合よりMEA塩の場合で有意に少ない。

【 0 0 5 8 】

界面活性剤含有水溶液濃縮組成物中でグリホサート I P A 塩をグリホサート M E A 塩で置換すると、目に対する刺激性を低下させるというさらなる利点を提供することができることが予想外に見出された。これは特に驚くべきことである。なぜなら、示されるいずれもの目の刺激性の主な原因になっているのは、そのような組成物の界面活性剤成分である（特に、優勢な界面活性剤がアミンベースの界面活性剤である場合）ことが知られているからである。従って、本発明のさらなる特定の実施態様は、全てのグリホサートが代わりに I P A 塩の形態である以外同様な組成物より低い目の刺激性を有する上記のようなグリホサート M E A 塩組成物である。

【 0 0 5 9 】

本発明は主に、グリホサートの M E A 塩の水溶液濃縮処方物に関するが、そのような水溶液濃縮処方物には所望により、限定するものではないが、水溶性形態の以下を包含する 1 個以上のさらなる水溶性除草有効成分をさらに含めることができる：アシフルオルフェン（acifluorfen）、アシュラム、ベナゾリン（benazolin）、ペンタゾン、ピアラホス、ビスピリバック（bispribac）、プロマシル、プロモキシニル、カルフェントラゾン（carfentrazone）、クロラムベン（chloramben）、クロピラリド（clopyralid）、2, 4 - D、2, 4 - D B、ダラポン（dalapon）、ジカンバ（dicamba）、ジクロルプロップ、ジクロホップ（diclofop）、ジフェンゾクワット（difenzoquat）、ジクワット、エンドタール（endothall）、フェナック（fenac）、フェノキサプロップ、フラムプロップ（flamprop）、フルアジホップ、フルオログリコフェン（fluoroglycofen）、フルオロキシビル（fluoroxypyr）、ホメサフェン（fomesafen）、ホサミン、グルホシネート、ハロキシホップ（haloxyfop）、イマザメス（imazameth）、イマザメタベンズ（imazamethabenz）、イマザモクス（imazamox）、イマザピック（imazapic）、イマザピル（imazapyr）、イマザキン（imazaquin）、イマゼタピル（imazethapyr）、アイオキシニル、M C P A、M C P B、メコプロップ（mecoprop）、メチルアルソン酸、ナプタラム（naptalam）、ノナン酸、パラコート、ピクロラム、スルファミン酸、2, 3, 6 - T B A、T C A およびトリクロピル。

。さらなる除草剤がグリホサートと同様にアニオン性である場合、さらなる除草剤が M E A 塩と同様に主として存在することが好ましい。

【 0 0 6 0 】

それゆえ、本発明の 1 つの実施態様は主としてその M E A 塩の形態のグリホサート、および主としてその M E A 塩の形態の第 2 のアニオン性除草剤を含む除草水溶液濃縮組成物であって、グリホサートおよび第 2 のアニオン性除草剤の合計濃度は約 3 6 0 ~ 約 5 7 0 g a . e . / l であり、組成物はさらに、約 2 0 ~ 約 2 0 0 g / l の濃度で、本発明に従って選択される界面活性剤成分を含む。

【 0 0 6 1 】

この実施態様において、第 2 のアニオン性除草剤に対するグリホサート a . e . の重量 / 重量比が約 1 : 1 以上、例えば、約 1 : 1 ~ 約 3 0 : 1 であることが好ましい。第 2 のアニオン性除草剤は好ましくは以下からなる群より選択される：アシフルオルフェン、ピアラホス、カルフェントラゾン、クロピラリド、2, 4 - D、2, 4 - D B、ジカンバ、ジクロルプロップ、グルホシネート、M C P A、M C P B、メコプロップ、メチルアルソン酸、ノナン酸、ピクロラム、トリクロピルならびにイマザメス、イマザメタベンズ、イマザモクス、イマザピック、イマザピル、イマザキンおよびイマゼタピルを含むイミダゾリノンクラスの除草剤。

【 0 0 6 2 】

グリホサートが主としてその M E A 塩の形態で存在する水相、および相対的に水不溶性の第 2 の除草有効成分を所望により含有する非水性相を有する液体濃縮処方物も本発明によって包含される。そのような処方物は例示的には乳濁物（マクロエマルジョンおよびマイクロエマルジョン、油中水、水中油および水中油中水タイプを包含する）、懸濁物ならびに懸濁乳濁物（suspoemulsion）を包含する。非水性相には所望によりマイクロカプセル

10

20

30

40

50

化成分、例えば、マイクロカプセル化除草剤を含めることができる。非水性相を有する本発明の処方物において、全体としての組成物中のグリホサート a . e . の濃度はそれでもなお水溶液濃縮処方物について本明細書中で記載する範囲内である。

【 0 0 6 3 】

そのような処方物中で使用できる例示的な水不溶性除草剤は以下を包含する：アセトクロール (acetochlor)、アクロニフェン (aclonifen)、アラクロール、アメトリン、アミドスルフロン (amidosulfuron)、アニロホス (anilofos)、アトラジン、アザフェニジン (azafenidin)、アジムスルフロン (azimsulfuron)、ベンフルラリン (benfluralin)、ベンフレセート (benfuresate)、ベンスルフロン - メチル、ベンスリド (bensulide)、ベンゾフェナップ、ピフェノックス、プロモブチド、プロモフェノキシム (bromofenoxim)、ブタクロール、ブタミホス、ブトラリン (butralin)、ブトロキシジム (butoxydim)、ブチレート (butylate)、カフェンストロール (cafenstrole)、カルベタミド (carbetamide)、カルフェントラゾン - エチル、クロメトキシフェン (chlomethoxyfen)、クロルプロムロン (chlorbromuron)、クロリダゾン (chloridazon)、クロリムロン - エチル (chlorimuron-ethyl)、クロルニトロフェン (chlornitrofen)、クロロトルロン (chlorotoluron)、クロルプロファム (chlorpropham)、クロルスルフロン (chlorsulfuron)、クロルタル - ジメチル (chlorthal-dimethyl)、クロルチアミド (chlorthi amid)、シンメチリン (cinmethylin)、シノスルフロン (cinosulfuron)、クレトジム (clethodim)、クロジナホップ - プロパルギル (clodinafop-propargyl)、クロマゾン (clomazone)、クロメプロップ (clomeprop)、クロランスラム - メチル (cloransulam-methyl)、シアナジン (cyanazine)、シクロエート (cycloate)、シクロスルファムロン (cyclosulfamuron)、シクロキシジム (cycloxydim)、シハロホップ - ブチル (cyhalofop-butyl)、ダイムロン (daimuron)、デスメジファム (desmedipham)、デスメトリン (desmetryn)、ジクロベニル (dichlobenil)、ジクロホップ - メチル、ジフルフェニカン (diflufenican)、ジメフロン (dimefuron)、ジメピペレート、ジメタクロール (dimethachlor)、ジメタメトリン、ジメテナミド (dimethenamid)、ジニトラミン (dinitramine)、ジノターブ (dinoterb)、ジフェナミド、ジチオピル (dithiopyr)、ジウロン (diuron)、E P T C、エスプロカルブ、エタルフルラリン (ethalfluralin)、エタメツルフロン - メチル (ethametsulfuron-methyl)、エトフメセート (ethofumesate)、エトキシスルフロン (ethoxysulfuron)、エトベンザニド (etpobenzanid)、フェノキサプロップ - エチル、フェヌロン (fenuron)、フラムプロップ - メチル (flamprop-methyl)、フラザスルフロン (flazasulfuron)、フルアジホップ - ブチル (fluazifop-butyl)、フルクロラリン (fluchloralin)、フルメツラム (flumetsulam)、フルミクロラック - ペンチル (flumiclorac-pentyl)、フルミオキサジン (flumioxazin)、フルオメツロン (fluometuron)、フルオロクロリドン (fluorochloridone)、フルオログリコフェン - エチル、フルボキサム (flupoxam)、フルレノール (flurenol)、フルリドン (fluridone)、フルロキシピル - 1 - メチルヘブチル、フルルタモン (flurtamone)、フルチアセト - メチル (fluthiacet-methyl)、ホメサフェン (fomesafen)、ハロスルフロン (halosulfuron)、ハロキシホップ - メチル (haloxyfop-methyl)、ヘキサジノン、イマゾスルフロン (imazosulfuron)、インダノファン (indanofan)、イソプロツロン (isoproturon)、イソウロン、イソキサベン (isoxaben)、イソキサフルトール (isoxaflutole)、イソキサピリホップ (isoxapyrifop)、ラクトフェン (lactofen)、レナシル、リニュロン、メフェナセット、メタミトロン (metamitron)、メタザクロール (metazachlor)、メタベンズチアズロン (methabenzthiazuron)、メチルジムロン (methylidymron)、メトベンズロン (methobenzuron)、メトプロムロン (metobromuron)、メトラクロール、メトスラム (metosulam)、メトキシロン (metoxuron)、メトリブジン、メツルフロン (metsulfuron)、モリネート、モノリヌロン (monolinuron)、ナプロアニリド、ナプロバミド、ナプタラム (naptalam)、ネブロン (neburon)、ニコスルフロン (nicosulfuron)、ノルフルラゾン (norflurazon)、オルベンカーブ、オリザリン (oryzalin)、オキサジアルギル (oxadiargyl)、オキサジアゾン、オキサスルフロン (oxasulfuron)、オ

10

20

30

40

50

キシフルオルフェン (oxyfluorfen)、ペブレート (pebulate)、ペンディメタリン、ペンタノクロール (pentanochlor)、ペントキサゾン (pentoxazone)、フェンメディファム、ピペロホス、プレチラクロール、プリミスルフロン (primisulfuron)、プロディアミン (prodiamine)、プロメトン (prometon)、プロメトリン、プロパクロール (propachlor)、プロパニル (propanil)、プロパキサホップ (propaquizafop)、プロパジン、プロファム (propham)、プロピソクロール (propisochlor)、プロピザミド (propyzamide)、プロスルホカルブ (prosulfocarb)、プロスルフロン (prosulfuron)、ピラフルフェン - エチル (pyraflufen-ethyl)、ピラゾリネート (pyrazolynate)、ピラゾスルフロン - エチル (pyrazosulfuron-ethyl)、ピラゾキシフェン、ピリブチカルブ (pyributicarb)、ピリデート (pyridate)、ピリミノバク - メチル (pyriminobac-methyl)、キンクロラック (quinclorac)、キンメラック (quinmerac)、キサロホップ - エチル (quizalofop-ethyl)、リムスルフロン (rimsulfuron)、セトキシジム、シデュロン、シマジン、シメトリン、スルコトリオン (sulcotrione)、スルフエントラゾン (sulfentrazone)、スルホメツロン (sulfometuron)、スルホスルフロン (sulfosulfuron)、テブタム (tebutam)、テブチウロン、ターバシル、ターブメトン (terbumeton)、ターブチラジン (terbuthylazine)、ターブトリン (terbutryn)、テニルクロール (thenylchlor)、チアゾピル (thiazopyr)、チフェンスルフロン (thifensulfuron)、チオベンカルブ、チオカルバジル (tiocarbazil)、トラルコキシジム (tralkoxydim)、トリアレート (triallate)、トリアスルフロン (triasulfuron)、トリベヌロン (tribenuron)、トリエタジン (trietazine)、トリフルラリン (trifluralin)、トリフルスルフロン (triflusulfuron) およびバーナレート。そのような水不溶性除草剤に対するグリホサート a . e . の重量 / 重量比が約 1 : 1 以上、例えば、約 1 : 1 ~ 約 30 : 1 であることが好ましい。

【0064】

組成物の曇点および非結晶特性が本発明に従ったままである限り、本発明の組成物中に上記で定義した界面活性剤成分以外の賦形剤成分を所望により存在させることができる。そのようなさらなる賦形剤成分は、色素、粘稠剤、結晶阻害剤、抗凍結剤 (グリコールを含む)、泡緩和剤 (foam moderating agent)、抗流動剤、混和剤 (compatibilizing agent) などのような従来の処方添加物を包含する。

【0065】

グリホサート処方物においてしばしば使用される賦形剤成分の型は、グリホサートの除草活性または除草活性の一貫性を増強させるために含まれる硫酸アンモニウムのような無機塩である。そのような増強を提供するために必要とされる処方物中の無機塩の含有量は代表的には相対的に高く、しばしば存在するグリホサートの量より高いので、本発明の組成物にそのような塩を添加することはめったに有用ではない。少なくとも 360 g a . e . / l の濃度でグリホサート ME A 塩を含有する保存安定水性組成物中に収容できる、例えば、硫酸アンモニウムの量は、実質的な利益をもたらさない程度に少ない。それゆえ、代替として、少量のシナージスト (synergist) (例えば、それぞれ国際公開第 WO 98 / 33384 号および WO 98 / 33385 号に開示されるようなアントラキノン化合物またはフェニル置換オレフィン化合物) を含める。

【0066】

本発明の組成物を使用する除草方法において、組成物を適宜の容量の水で希釈して、適用溶液を調製し、次いでこれを、所望の除草効果を与えるために十分な適用比率で、植物 (単数または複数) の葉に適用する。この適用比率は通常、単位処理面積当りのグリホサートの量、例えば、1 ヘクタール当りの酸等価物のグラム (g a . e . / ha) として表される。「所望の除草効果」を構成するのは、代表的および例示的には、グリホサートが処理植物においてその完全な除草または植物毒性効果を発揮する期間の後の、生育低下または死亡率によって測定した場合の、植物種のコントロールの 85 % である。植物種および生育条件によって、この期間は 1 週間程度の短かさである可能性はあるが、通常は、グリホサートがその完全な効果を発揮するためには、少なくとも 2 週間の期間が必要とされる。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 7 】

本発明の組成物について除草に有効な適用比率を選択することは、通常の農業科学者の技術範囲内である。当業者は同様に、個々の植物の状態、天候および生育条件ならびに特定の有効成分および組成物中のその重量比が本発明の実施において達成される除草有効性の程度に影響を及ぼすことを認識する。グリホサート組成物の使用に関しては、適切な適用比率についての多くの情報が知られている。20年にわたるグリホサートの使用およびその使用に関する公開された研究によって豊富な情報が提供されている。この情報から、雑草防除従業者は、特定の生育段階、特定の環境条件にある特定の種の除草に有効であるグリホサート適用比率を選択することができる。

【 0 0 6 8 】

グリホサート塩の除草組成物は世界中の多種多様な植物を防除するために使用されており、この点でMEA塩は他のグリホサート塩とは違いがないと考えられている。

【 0 0 6 9 】

本発明の組成物をその防除のために使用できる特に重要な一年生双子葉植物種としては、限定するものではないが、ベルベットリーフ (velvetleaf) (*Abutilon theophrasti*)、アカザ (*Amaranthus* spp.)、アメリカスズカケノキ (*Borreria* spp.)、アブラナ (oilseed rape)、アブラナ (canola)、カラシナなど (*Brassica* spp.)、ツユクサ (*Commelina* spp.)、フィラリー (filaree) (*Erodium* spp.)、ヒマワリ (*Helianthus* spp.)、ヒルガオ (*Ipomoea* spp.)、ハウキギ (*Kochia scoparia*)、ゼニアオイ (*Malva* spp.)、ソバカズラ、タデなど (*Polygonum* spp.)、スベリヒコ (*Portulaca* spp.)、オカヒジキ (*Salsola* spp.)、シダ (sida) (*Sida* spp.)、ノハラガラシ (*Sinapis arvensis*) およびオナモミ (*Xanthium* spp.) が例示される。

【 0 0 7 0 】

本発明の組成物をその防除のために使用できる特に重要な一年生単子葉植物種としては、限定するものではないが、野生カラスムギ (*Avena fatua*)、カーペットグラス (carpetgrass) (*Axonopus* spp.)、ダウニーブロム (downy brome) (*Bromus tectorum*)、メヒシバ (*Digitaria* spp.)、イヌビエ (*Echinochloa crus-galli*)、ヤエムグラ (*Eleusine indica*)、一年生ライグラス (*Lolium multiflorum*)、イネ (*Oryza sativa*)、オットクロア (ottochloa) (*Ottochloa nodosa*)、パヒアグラス (*Paspalum notatum*)、カナリアクサヨシ (*Phalaris* spp.)、エノコログサ (*Setaria* spp.)、コムギ (*Triticum aestivum*) およびトウモロコシ (*Zea mays*) が例示される。

【 0 0 7 1 】

本発明の組成物をその防除のために使用できる特に重要な多年生双子葉植物種としては、限定するものではないが、ヨモギ (*Artemisia* spp.)、トウワタ (*Asclepias* spp.)、エゾキツネアザミ (*Cirsium arvense*)、セイヨウヒルガオ (*Convolvulus arvensis*)、およびクズ (*Pueraria* spp.) が例示される。

【 0 0 7 2 】

本発明の組成物をその防除のために使用できる特に重要な多年生単子葉植物種としては、限定するものではないが、ニクキビ (brachiaria) (*Brachiaria* spp.)、ギョウギシバ (*Cynodon dactylon*)、黄色ハマスゲ (yellow nutsedge) (*Cyperus esculentus*)、ハマスゲ (*C. rotundus*)、シバムギ (*Elymus repens*)、チガヤ (*Imperata cylindrica*)、多年生ライグラス (*Lolium perenne*)、ギニアソウ (*Panicum maximum*)、シマスズメノヒエ (*Paspalum dilatatum*)、アシ (*Phragmites* spp.)、ヒメモロコシ (*Sorghum halepense*) およびガマ (*Typha* spp.) が例示される。

【 0 0 7 3 】

本発明の組成物をその防除のために使用できるその他の特に重要な多年生植物種としては、限定するものではないが、トクサ (*Equisetum* spp.)、ワラビ (*Pteridium aquilinum*)、クロイチゴ (*Rubus* spp.) およびハリエニシダ (*Ulex europaeus*) が例示される。

【 0 0 7 4 】

所望であれば、使用者は、適用組成物を調製するときに、1つ以上のアジュバントを本発

10

20

30

40

50

明の組成物および希釈水と混合することができる。そのようなアジュバントには、除草効力をさらに増強する目的でさらなる界面活性剤および/または無機塩（例えば、硫酸アンモニウム）を含めることができる。しかし、大部分の条件下では、本発明の除草剤使用法は、そのようなアジュバントなしで、許容される効力を与える。

【0075】

特定の意図する本発明の組成物の使用法において、水での希釈後、グリホサートに耐性であるように遺伝的に形質転換されたかまたは選択された作物植物の葉、および同時にそのような作物植物の付近に生育している雑草または所望されない植物の葉に組成物を適用する。この使用方法の結果、作物植物は実質的に無事のままで、雑草または所望されない植物が防除される。グリホサートに耐性であるように遺伝的に形質転換されたかまたは選択された作物植物は、Monsanto Companyによって、またはMonsanto CompanyからのライセンスのもとにRoundup Ready^Rの商標でその種が販売されているものを包含する。それらは、限定するものではないが、ワタ、ダイズ、アブラナ、テンサイおよびトウモロコシの変種を含む。

10

【0076】

本発明の濃縮組成物を水で希釈することによって植物処理組成物を調製することができる。植物処理組成物の葉への適用は、好ましくは、スプレーノズル、噴霧器などの液体噴霧用のいずれかの従来の手段を使用して噴霧することによって達成される。本発明の組成物を精密農業技術において使用することができる。この技術において、装置を用いて耕地の異なる部分に適用する殺虫剤の量を、存在する特定の植物種、土壌組成などの変量によって変動させる。そのような技術の1つの実施態様において、噴霧装置とともに作動される衛星航法システムを使用して所望の量の組成物を耕地の異なる部分に適用することができる。

20

【0077】

植物処理組成物は好ましくは、標準的な農業噴霧設備を使用して容易に噴霧するために十分に希薄である。本発明に有用な噴霧容積は、噴霧適用による、1ヘクタール当たり約10～約1000リットル（1/ha）の範囲であり得る。

【0078】

実施例

以下の実施例は、説明上の目的のためにのみ提供するものであり、本発明の範囲を制限することを意図するものではない。実施例により本発明がよりよく理解され、その利点および、所定の実施の変形がよりよく理解される。

30

【0079】

実施例 1

マグネチックスターラーを有する1リットルのガラス容器中に、テクニカルグレード（アッセイ96%）の479.2gのグリホサート酸、166.0gのモノエタノールアミンおよび水（1000gまで）を混合する。グリホサートMEA塩を形成する、グリホサート酸のモノエタノールアミンとの反応は発熱を伴う。反応混合液を室温まで冷却する。得られた46重量%のグリホサート酸等価物を含む62.6重量%のグリホサートMEA塩水溶液固有の比重（20/15.6）を測定し、1.32であることが分かる。25℃での溶液の濃度は1.31g/lであり、次いで、25℃での1000gのこの溶液の体積は763mlであり、グリホサートの重量/体積濃度は602g酸等価物（a.e.）/lである。比較のために、46.0重量%のグリホサート酸等価物をさらに含む62.1重量%のグリホサートIPA塩水溶液が、1.24の固有の比重を有することが見出される。25℃での該溶液の濃度は1.23g/lであり、次いで、25℃での1000gのこの比較溶液の体積は813mlであり、グリホサートの重量/体積濃度は565g酸等価物/lである。

40

【0080】

実施例 2

ある範囲のグリホサート酸等価物濃度を有する、一連のグリホサートMEA塩水溶液を実施例1の一般的方法により調製する。固有の比重を各溶液に関して測定する。

50

結果をグリホサート I P A 塩溶液との比較により図 1 に示す。全濃度において、M E A 塩溶液の固有の比重は対応する I P A 塩溶液のものよりも明らかに高いことが見出される。

【 0 0 8 1 】

実施例 3

4 6 重量% a . e . のグリホサート M E A 塩水溶液を実施例 1 に記載するように調製する。比較となる 4 6 重量% a . e . のグリホサート I P A 塩水溶液も調製する。

各溶液の粘度を、スピンドル # 1 8 を用いるブルックフィールド粘度メーターセットを 6 r p m で用いて 2 5 にて測定する。I P A 塩溶液は 1 6 5 c P s の粘度を有し、一方、M E A 塩は驚くべきことにわずか 8 8 c P s の粘度しか有しないことが見出される。

【 0 0 8 2 】

実施例 4

界面活性剤含有組成物 4 - 0 1 ~ 4 - 1 1 を以下に記載するように調製する。それぞれはグリホサート M E A 塩を含み、実施例 1 のように調製するその 4 6 重量% a . e . 、 6 0 2 g a . e . / l 水溶液を用いて調製する。各ケースの界面活性剤は、次の表 3 に示すリストから選択する。実施例 1 に記載するように、その 4 6 重量% a . e . 、 5 6 5 g a . e . / l 水溶液として添加するグリホサート I P A 塩を用いて比較組成物を調製する。

【 0 0 8 3 】

【表 3】

表 3 ; 実施例 4 の組成物で使用する界面活性剤

界面活性剤	化学的な説明	商品名および販売業者
A	ポリオキシエチレン(5)ココアミン	Ethomeen™ C/15 (Akzo)
B	N-ココアルキル-N-メチル-N, N-ジエタノールアンモニウムクロライド	Ethoquad C/12-W (Akzo)
C	N-ココアルキル-N, N-ジエタノールアミンオキシド	Aromox™ C/12(Akzo)
D	式中、R ¹ がイソトリデシルであり、x + y = 5 である式(VIII)の化合物	E-17-5(Tomah)
E	式中、R ¹ がイソデシルであり、x + y = 2 である式(IX)の化合物	Q-14-2(Tomah)
F	式中、R ¹ がC ₁₂₋₁₄ アルキルであり、n = 2 および x + y = 5 である式(XI)の化合物	商業的に入手不可能*

* この界面活性剤の製造方法は、イギリス特許第1,588,079号に開示されている。

【 0 0 8 4 】

式[グリホサート酸等価物] / [界面活性剤] (単位は g / l である) で次に示す、目標となる重量/体積濃度を設定する。実際の重量/体積濃度は、簡単のために成分を重量により測定するため、目標となる濃度からわずかに異なっている可能性がある。様々な目標濃度を提供するために混合した成分の量は、表 4 (本発明のグリホサート M E A 塩組成物に関して) および表 5 (比較となるグリホサート I P A 塩組成物に関して) に示す。

【 0 0 8 5 】

【表 4】

10

20

30

40

表 4 ; 実施例 4 のグリホサート M E A 塩組成物を調製する際に使用される成分の量

目標重量/体積濃度 (g/L)	4 6 % M E A 塩 溶液(g)	界面活性剤(g)	水(g)
490/100	82.94	8.00	9.06
480/120	81.24	10.00	8.76
480/80	81.45	6.40	12.15
480/60	81.45	4.80	13.75
445/110	76.46	8.86	14.68

10

【 0 0 8 6 】

【表 5】

表 5 ; 実施例 4 の比較グリホサート I P A 塩組成物を調製する際に使用される成分の量

目標重量/体積濃度 (g/L)	4 6 % I P A 塩 溶液(g)	界面活性剤(g)	水(g)
490/100	90.01	8.30	0.79
480/120	88.69	10.00	1.31
480/80	88.69	6.70	4.61
480/60	88.69	5.00	6.31
445/110	81.00	9.20	9.80

20

【 0 0 8 7 】

固有の比重(2 0 / 1 5 . 6)、 2 5 での粘度および曇点を、表 6 に示すように調製した各組成物に関して記す。

30

【 0 0 8 8 】

【表 6】

表 6 ; 実施例 4 の組成物のデータ

組成物 番号	目標濃度	界面活 性剤	グリホサー ト塩	固有の 比重	25℃での 粘度(cPs)	曇点 (℃)
4-01	480/120	A	MEA IPA	1.2561 1.2100	73 474	>95 >95
4-02	480/120	B	MEA IPA	1.2601 1.2096	35 126	>95 >95
4-03	480/120	C	MEA IPA	1.2509 1.1989	128 259	55 >95
4-04	480/120	D	MEA IPA	1.2613 1.2098	329 461	82 88
4-05	445/110	D	MEA IPA	1.2349 1.1899	70 210	73 92
4-06	480/120	E	MEA IPA	1.2479 1.2041	217 448	>95 >95
4-07	490/100	F	MEA IPA	1.2655 1.2152	83 349	71 78
4-08	480/120	F	MEA IPA	1.2593 1.2078	93 382	70 79
4-09	480/80	F	MEA IPA	1.2574 1.2105	54 185	71 76
4-10	480/60	F	MEA IPA	1.2613 1.2098	45 132	70 85
4-11	445/110	F	MEA IPA	1.2438 1.1939	49 157	>95 81

10

20

30

【 0 0 8 9 】

グリホサートMEA塩を含有する本発明の全組成物が、対応するIPA塩組成物よりも明らかに低い粘度を有することに注目すべきである。MEA塩組成物に都合のよいこの粘度の利点の大きさは、ある程度界面活性剤の選択および濃度に依存する。例えば、MEA塩の形態の480g/lのグリホサート酸等価物の目標濃度を有する本発明の組成物4-01および120g/lのポリオキシエチレン(5)ココアミン界面活性剤は、比較となるIPA塩組成物よりも特に大きな利点を示す。

表6に示す全部ではないいくつかの場合に、グリホサートMEA塩組成物は、対応するIPA塩組成物よりも低い曇点を示す。しかし、これらケースのうち、曇点が50より低いものはなく、1つのケース(組成物4-03)でのみ曇点は工業上許容できるこの低い限界に接近している。つまり一般に、曇点の低下がIPA塩のMEA塩による置換により生じる場合、この低下と引き換えに、そのような置換により可能となる、粘度およびそれゆえ、流動および吸水作用に関する大きな利点良好に得られる。

40

【 0 0 9 0 】

実施例 5

グリホサート塩を540g酸等価物/lで含む水溶性濃縮組成物に関して実際問題として得ることができる最大界面活性剤濃度を、MEAおよびIPA塩に関して比較する。これは、グリホサート重量/体積濃度がその初期レベル(IPA塩に関しては565g酸等価物/l、MEA塩に関しては602g酸等価物/l)から540g酸等価物/lに低下するまで、選択される界面活性剤を46重量% a.e.のグリホサート酸水溶液に増加しながら添加

50

することにより測定する。該試験は、前の表 3 の界面活性剤 A または界面活性剤 F のいずれかを用いて行う。最大の到達可能界面活性剤濃度に達したとき、粘度を 25 で測定する。結果を表 7 に示す。この方法により決定される最大の到達可能界面活性剤濃度を有する組成物が、曇点および/または結晶形成により測定されるような良好な安定性を必ずしも示さないことに注目されたい。

【 0 0 9 1 】

【表 7】

表 7 ; 540 g/l グリホサートトリホサート酸等価物濃度を有する水溶性濃縮組成物中で達成できる最大界面活性剤濃度

グリホサート塩	界面活性剤	達成できる最大界面活性剤濃度(g/L)	25℃での粘度(cPs)
MEA	A	116	210
IPA	A	46	384
MEA	F	119	210
IPA	F	46	362

10

【 0 0 9 2 】

表 7 のデータは、特に、表 1 に示すようなグリホサート IPA 塩組成物中に従来最も広く用いられてきたポリオキシエチレン (15) タロワミンと MEA 塩の相対的不適合性 (relative incompatibility) の観点において、グリホサート MEA 塩組成物の最も有益な驚くべき利点の一つを示す。表 7 に示すように、MEA 塩を用いて、540 g 酸等価物/l の非常に高いグリホサート酸等価物濃度で、IPA 塩を用いて得ることができる最大量の 2.5 倍以上の被選択界面活性剤の濃度を得ることが可能となる。さらに MEA 塩を用いて、界面活性剤/グリホサート酸等価物重量比は工業上許容される除草効力と一致するレベルである 1 : 5 よりも大きく、一方、IPA 塩を用いてこの比は 1 : 10 を優に下回る。同様に重要なことに、表 7 に示す界面活性剤は 1 : 5 またはそれ以上の界面活性剤/グリホサート酸等価物比でグリホサート除草効果を高めるのに高度に有効であることが当該分野で知られている (例えば、界面活性剤 A に関しては U.S. 特許第 5,668,085 を、界面活性剤 F に関しては U.S. 特許第 5,750,468 を参照されたい。)。つまり、そのような界面活性剤を利用することができる組成物は 540 g 酸等価物/l ものグリホサート酸等価物ローディングを提供し、これらの界面活性剤またはグリホサート MEA 塩に関するこれまでの知識からは予想することができなかった、当該分野における著しい進歩である。

20

30

【 0 0 9 3 】

より一層驚くべきことは、表 7 に示すように、MEA 塩を用いて得ることができる高い界面活性剤の濃度を用いてすら、MEA 塩組成物の粘度は IPA 塩組成物のものよりも低いという発見である。IPA 塩組成物は、工業上許容される除草効果を提供しそうにない低い界面活性剤濃度を、特に高い噴霧体積で有するだけでなく、工業上許容される流動または吸水作用を許容しそうにない高い粘度も、特に表 7 に例示するよりも低い温度で有する。比較により、MEA 塩組成物が良好な除草作用を果たすことを期待することができるだけでなく、注液またはポンピングの問題を示さない。

40

【 0 0 9 4 】

理論上は、46 重量 % a.e. よりもさらに濃縮されたグリホサート MEA または IPA 塩溶液を用いて出発することにより、本実施例に示すよりもわずかに高い界面活性剤濃度を達成することが可能である。しかし、得られた組成物のグリホサート塩濃縮物は、溶解度の限界に非常に接近しているので、実際問題として、組成物が許容される保存安定性を有しそうになく、および特に、グリホサートまたはその塩の結晶が特に低温で析出すると思われる。

50

【 0 0 9 5 】

実施例 6

低温での保存安定性を 4 個の組成物について比較する。組成物 6 - 0 1 は、5 4 0 g a . e . / l の濃度のグリホサート M E A 塩および 4 6 g / l の界面活性剤 A を含有する。組成物 6 - 0 2 は似ているが、4 6 g / l の界面活性剤 F を含有する。比較組成物は、各場合において、グリホサート M E A の代わりにグリホサート I P A を用いるが、同じ界面活性剤を同じ濃度 4 6 g / l (実施例 5 に示されるように I P A 塩を用いて達成可能な最大量) で用いて調製される。

【 0 0 9 6 】

組成物は、0 で 3 日間、冷蔵保存領域中のふたをしたガラス瓶中に入れる。次いで、組成物の調製に使用したのと同じグリホサート塩の種結晶を加え、組成物をさらに 7 日間保管する。この期間の終わりに、結晶成長について組成物を試験する。

【 0 0 9 7 】

M E A 塩組成物 6 - 0 1 および 6 - 0 2 について結晶成長がはっきりと判らないが、両方の比較 I P A 塩組成物において有意な結晶成長が見られる。このことは、高グリホサート濃度での本発明の組成物のさらなる利益、すなわち、改善された低温保存安定性を示す。

【 0 0 9 8 】

実施例 7

グリホサート M E A 塩組成物 7 - 0 1 および 7 - 0 2 を実質上、組成物 4 - 0 8 および 4 - 1 1 と同様に調製し、比較 I P A 塩組成物を同様に調製する。粘性を 2 5 および一連の低温で測定して、M E A 塩組成物の場合、2 5 で見られる低粘性という利点が、実際に大部分の注液およびポンピングの問題が見られるより低温においても有効であり続けることを示す。結果を表 8 に示す。

【 0 0 9 9 】

表 8 . 実施例 7 の組成物の低温における粘度

【表 8】

組成物番号	目標濃度	界面活性剤	グリホサート塩	粘度(cPs)、温度(°C)				
				25	20	15	10	0
7-01	480/120	F	MEA	110	118	170	229	456
			IPA	262	426	541	889	2300
7-02	445/110	F	MEA	45	nd	69	104	180
			IPA	122	nd	198	296	654

nd=調べず

【 0 1 0 0 】

表 8 に示されるように、対応する I P A 塩組成物を越える本発明のグリホサート M E A 塩組成物の低粘性という利点は、より低温ですっと有意になる。

【 0 1 0 1 】

実施例 8

4 8 0 g a . e . / l のグリホサート濃度を有するグリホサート M E A 塩組成物 8 - 0 1 を実質上、組成物 4 - 0 8 および 7 - 0 1 と同様に調製し、同じグリホサート濃度および同じ 1 2 0 g / l 濃度の同じ界面活性剤 F を有するグリホサート I P A 塩組成物を比較目的で調製する。

【 0 1 0 2 】

U.S. Environmental Protection Agency (EPA) 評価ガイドライン、サブセクション F、Hazard Evaluation: Human and Domestic Animals (Revised edition, 1984), Section 81-4, Primary Eye Irritation にしたがって、標準的な眼刺激試験をこれらの組成物におい

て行う。比較IPA塩組成物は、農薬処方の分類においてEPAによって用いられる最も激しい刺激物クラス（カテゴリーI）に該組成物を入れるのに十分な眼刺激を引き起こすことが見出される。比較すると、本発明の組成物8-01は、より低い程度の眼刺激を引き起こすことが見出され、該組成物はカテゴリーIIに入れられる。

【0103】

前記の本発明の特定の具体例は、本発明の全ての可能な具体例を完全に列挙しようとするものではない。当業者は、本明細書に記載の特定の具体例に本発明の範囲内で修飾を施すことができることを理解するであろう。

【図面の簡単な説明】

【図1】 図1は、グリホサートIPA塩およびMEA塩に関して、塩水溶液中のグリホサートa.e.の重量%濃度と水溶液の比重との間の関連性についての比較を示すグラフである。

10

【図1】

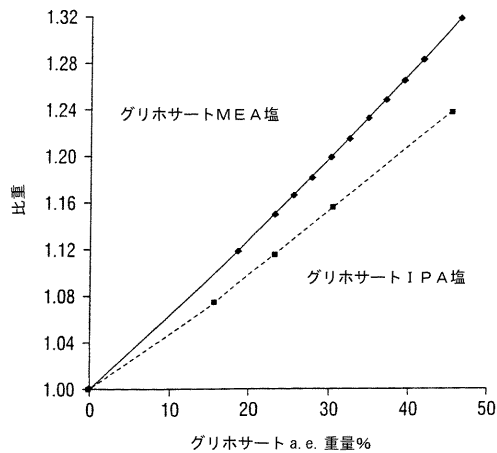


FIG. 1

フロントページの続き

(72)発明者 ダニエル・アール・ライト

アメリカ合衆国 6 3 1 0 9 ミズリー州セントルイス、クリフトン・アベニュー 5 9 1 1 番

審査官 馬籠 朋広

(56)参考文献 特開昭 4 7 - 0 3 9 5 3 8 (J P , A)

国際公開第 9 6 / 0 3 2 8 3 9 (W O , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

A01N 57/20

A01N 25/22

A01N 25/30

CA/REGISTRY(STN)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII)