

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷
A01N 61/00
A01N 47/34
/(A01N61/00,61 : 00,
57 : 20)(A01N47/34,
61 : 00,57 : 20,57 : 12,
47 : 36,37 : 46)



[12] 发 明 专 利 说 明 书

专利号 ZL 00817178.5

[45] 授权公告日 2005 年 11 月 2 日 [11] 授权公告号 CN 1225171C

[22] 申请日 2000.12.5 [21] 申请号 00817178.5
[30] 优先权
[32] 1999.12.15 [33] US [31] 09/461,383
[86] 国际申请 PCT/EP2000/012202 2000.12.5
[87] 国际公布 WO2001/043552 英 2001.6.21
[85] 进入国家阶段日期 2002.6.14
[71] 专利权人 巴斯福公司
地址 美国新泽西
[72] 发明人 J·R·埃文斯 R·R·埃文斯
A·L·阿雷尔 W·W·斯图尔特
D·L·金
审查员 兰 琪

[74] 专利代理机构 北京市中咨律师事务所
代理人 黄革生 林柏楠

权利要求书 2 页 说明书 12 页

[54] 发明名称 脱叶以及脱叶后植物再生长的减少
[57] 摘要

苗长素传送抑制剂与脱叶剂同时或顺序施用会协同改善农作物的脱叶和/或减少农作物在脱叶后的再生长。优选地，苗长素传送抑制剂是一种缩氨基脲化合物。脱叶剂可为乙烯响应或乙烯型响应剂，如膦酸衍生物。最优选的是，缩氨基脲化合物为氟吡草腓，膦酸衍生物为乙烯利(即，乙烯利(2-氯乙基)膦酸)。

I S S N 1 0 0 8 - 4 2 7 4

1. 一种使农作物脱叶并减少脱叶后再生长的方法，包括向需要脱叶的生长中的农作物的部位上施用有效量的茁长素传送抑制剂和脱叶剂，其中茁长素传送抑制剂为缩氨基脲，脱叶剂为乙烯响应或乙烯型响应诱导剂。

2. 根据权利要求1的方法，其中乙烯响应或乙烯型响应诱导剂为膦酸衍生物。

3. 根据权利要求2的方法，其中缩氨基脲为氟吡草胺，膦酸衍生物为乙烯利。

4. 根据权利要求3的方法，其中氟吡草胺和乙烯利同时施用至植物的部位上。

5. 根据权利要求4的方法，其中氟吡草胺和乙烯利以混合物的形式施用至植物的部位上。

6. 根据权利要求3的方法，其中首先向植物的部位处施用氟吡草胺，然后再施用乙烯利。

7. 根据权利要求6的方法，其中在将氟吡草胺施用至植物的部位上后，在3天或更多天内将乙烯利施用至植物的部位上。

8. 根据权利要求7的方法，其中在将氟吡草胺施用至植物的部位上后，在3天至21天内将乙烯利施用至植物的部位上。

9. 根据权利要求3-8任一项的方法，其中氟吡草胺在植物部位上的施用量为0.005-0.09 lb. ai/A，和其中乙烯利在植物的部位上的施用量为0.25-2.5 lb. ai/A。

10. 根据权利要求9的方法，其中氟吡草胺在植物部位上的施用量为0.01-0.05 lb. ai/A，和其中乙烯利在植物部位上的施用量为0.5-2.0 lb. ai/A。

11. 根据权利要求1的方法，其中植物选自棉花、四季豆和马铃薯。

12. 一种用于农作物脱叶并减少植物再生长的植物组合物，该组合物包含一种对植物脱叶再生长减少有效量的茁长素传送抑制剂和脱叶剂，和其中茁长素传送抑制剂为缩氨基脲，脱叶剂为乙烯响应或乙烯型响应诱导

剂, 其中缩氨基脲的用量为0.005-0.09 lb. ai/A, 和其中乙烯响应或乙烯型响应诱导剂的用量为0.25-2.5 lb. ai/A.

13. 根据权利要求12的组合物, 其中茁长素传送抑制剂为缩氨基脲, 乙烯响应或乙烯型响应诱导剂为膦酸衍生物。

14. 根据权利要求13的组合物, 其中缩氨基脲为氟吡草胺, 膦酸衍生物为乙烯利。

15. 根据权利要求12-14任一项的组合物, 其中氟吡草胺的用量为0.005-0.09 lb. ai/A, 和其中乙烯利的用量为0.25-2.5 lb. ai/A。

16. 根据权利要求15的组合物, 其中氟吡草胺的用量为0.01-0.05 lb. ai/A, 和其中乙烯利的用量为0.5-2.0 lb. ai/A。

脱叶以及脱叶后植物再生长的减少

本发明涉及农作物的脱叶方法。在优选的实施方式中，本发明具体涉及在农作物(如棉花)收获之前使农作物脱叶的组合物和方法，和/或涉及有效地防止脱叶后的农作物再生长的组合物。

棉花是最广泛使用的纺织品纤维，在世界各地均有生长。棉花植物(陆地棉(*Gossypium hirsutum*))是一种产自热带的多年生植物，其在温和的区域每年生长一次。

在生长季的末期，在其七至九片叶子的阶段，棉花植物连续产生果实(棉铃)。通常，与后期收获的棉铃相比，在生长季节的早期产生的棉铃的尺寸更大。在生长季的最后阶段产生棉铃之前，在生长季的开始阶段产生的棉铃将开放几天或几星期。但是，在开花后，由于不断地暴露于大气中，棉花的棉铃开始失去纤维质地。为此，在植物完全成熟之前，最好开始收获生长中的棉花。

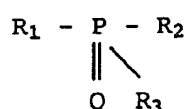
当机械收获棉花植物时，绿叶会残留于植物上，这样在收获过程中，经常会在棉花纤维上看见绿色污渍。这种绿色污渍会降低纤维在市场上的价值。因此，在进行机械收获之前，经常向棉花植物上施用脱叶剂。虽然棉花植物的脱叶在以前已得到实施，但仍然需要对其进行改进。

广义上说，本发明涉及这样一种发现，即植物生长调节剂(优选茁长素传送抑制剂)与脱叶剂(优选乙烯响应或乙烯型响应诱导剂)同时或顺序施用会协同改善农作物的脱叶和/或减少(如果不能完全防止的话)植物在脱叶后的再生长。茁长素传送抑制剂优选是一种缩氨基脲化合物，乙烯响应或乙烯型响应诱导剂为膦酸衍生物。最优选的缩氨基脲化合物为氟吡草酮(diflufenzopyr)，膦酸衍生物是乙烯利(即，乙烯利(2-氯乙基)膦酸)。

通过下述对优选实施方案的详细描述，本发明的其它方面和优点将变得更为清楚。

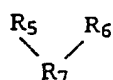
可用于实施本发明的优选的茁长素传送抑制剂包括取代的缩氨基脲和相关的化合物,如缩氨基硫脲和异缩氨基硫脲及其盐,如美国专利5,098,462和5,098,466所述(这两篇文献均引入本文作为参考)。这些化合物可通过使羰基化合物与氨基脲或氨基硫脲在室温及醇溶剂如甲醇或乙醇存在下一起反应来合成,所述反应采用或不采用酸性催化剂,得到可用于实施本发明的缩氨基脲。最优选用于实施本发明的缩氨基脲为氟吡草腓。

优选的乙烯响应或乙烯型响应诱导剂为具有下式的化合物:

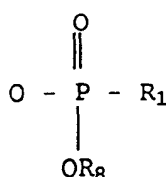


其中:

R_1 为卤乙基, R_2 和 R_3 选自(1) 氯原子和羟基, (2) 基团 $-\text{OR}_4$ 和基团 $-\text{O}-\text{CH}_2\text{R}_4$, 其中每一个 R_4 选自未取代的芳基、取代的芳基和杂环基团, (3) 基团 $-\text{OR}_4$ 和基团 $-\text{O}-\text{CH}_2\text{R}_4$, 其中每一个 R_4 是不同的, 选自氢、未取代的烷基、取代的烷基、未取代的环烷基、取代的环烷基、未取代的芳基、取代的芳基、杂环基团、烯和炔, 条件是当一个 R_4 选自未取代的烷基、取代的烷基、烯和炔时, 另一个 R_4 选自未取代的芳基、取代的芳基和杂环基团, (4) R_2 和 R_3 一起表示以下的基团:



其中, R_5 和 R_6 分别通过单键与磷原子连接, 和其中 R_5 和 R_6 之一为 $-\text{O}-$, 而另一个选自 $-\text{O}-$ 、 $-\text{OCH}_2-$ 、 $-\text{CO}-\text{O}-$ 和 $-\text{CONH}-$, R_7 表示环状基团, 选自苯、取代的苯、杂环和取代杂环, (5) R_2 和 R_3 之一为 $-\text{OR}_8$, 另一个为:



其中每一个 R_8 可相同或不同,选自氢、未取代的烷基、取代的烷基、未取代的芳基、取代的芳基和杂环基团,其中, R_1 如前定义。

具有如前所述定义的适宜的乙烯响应或乙烯型响应诱导剂在美国专利3,879,188、4,240,819、4,352,869、4,374,661、4,401,454和5,123,951中有述,这些文献均引入本文作为参考。最优选的乙烯诱导剂为2-氯乙基-膦酸,通称其为乙烯利及其中间体衍生物。

可用于实施本发明的具体的膦酸衍生物化合物包括:二(酰氯)或2-氯乙基膦酸、2-氯乙基膦酸的焦儿茶酚环酯、2-氯乙基膦酸的4-氯焦儿茶酚环酯、2-氯乙基-膦酸的混合乙基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基-膦酸的混合丁基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基膦酸的2-氯乙基单酯、2-溴乙基膦酸、2-氯乙基膦酸二(苯基)酯、2-氯乙基膦酸四氯焦儿茶酚环酯、2-碘乙基膦酸、2-氯乙基膦酸水杨醇环酯、2-氯乙基膦酸的水杨酸环酯、2-溴乙基膦酸乙基单酯、2-碘乙基膦酸丁基单酯、2-氯乙基膦酸3-羟基苯基单酯(以聚合形式存在),2-氯乙基膦酸二(2-氧代-吡咯烷基甲基)酯、2-氯乙基膦酸邻羟基苯基单酯、2-氯乙基膦酸的混合异丙基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基膦酸、2-氯乙基膦酸的混合辛基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基膦酸的混合十六烷基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基膦酸的混合十三烷基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基膦酸的酸酐、2-氯乙基膦酸、2-氯乙基膦酸的混合丁基和2-羟基苯基二酯和2-溴乙基膦酸2-溴乙基单酯。

其它符合上式的有用的膦酸衍生物化合物包括膦酰氨酸(phosphonamidic acid)的水杨酸环酯、2-氯乙基膦酸的混合苯基和2-羟基苯基二酯、2-氯乙基二氯膦、2-氯乙基膦酸二(五氯苯基)酯;2-氯丙基膦酸、2-苯硫基乙基膦酸、2-氯乙基膦酸2,3-吡啶二氧基(pyridinedio)环酯、2-氯乙基硫代膦酸、(2-溴,2-氯和2-碘)和2-氯乙基-2,3-二溴-4-羟基-2-丁烯基酯聚合物。也可采用本发明膦酸衍生物的盐。这种盐的实例包括钠盐、铝盐、锌盐、钾盐和锂盐。

其它可采用的优选脱叶剂为低氧化物(protox)抑制剂cinidon-乙基,或S,S,S-三丁基连三硫酸磷(商购自Bayer Corporation, Def[®]6)或苯基脲如thidiazuron(商购自Agro Evo, Dropp[®] 50WP)。

缩氨基脲施用至生长中的农作物的部位上,施用的比例为0.005-约0.09,更优选约0.01-0.05磅活性成分/英亩(lb. ai/A)。另一方面,乙烯响应或乙烯型响应诱导剂在植物部位上的最佳施用量为约0.25-2.5 lb. ai/A,更优选该量为约0.5-2.0 lb ai/A。活性成分可同时施用至植物上(例如,作为各成分槽式混合物的一部分),或者可顺序施用。如果顺序施用的话,最优选首先将缩氨基脲化合物施用至生长中的植物的部位上,随后在缩氨基脲化合物至少施用约3-21天内,施用乙烯响应或乙烯型响应诱导剂。当顺序施用时,各活性成分的施用量应在上面所述的范围内。

活性成分可以粉末、颗粒、溶液、乳液、可润湿粉末、可流动制剂和悬浮液的形式一起或顺序施用。作为活性成分的化合物的施用过程可按照常规过程进行,施用至需要所述化合物的植物的部位上,采用将在下面描述的每英亩的化合物的适宜用量。按照本发明,化合物施用至植物“部位”包括施用至植物,或施用至植物的局部,或植物生长的土壤中。

活性成分施用至植物的土地以上的部分。液体和颗粒状固体化合物和/或组合物施用至植物的土地以上的部分可采用常规方法完成,例如,喷杆(broom)和手工施用,包括喷雾器或喷粉器。如果需要的话,化合物和/或组合物可作为喷剂象空气一样施用。用于实施本发明的活性成分最优选以水溶液形式使用。溶液可以常规方式施用,例如通过喷雾、雾化或洒水至植物的部位上。

活性成分也可与现有技术中常规采用的其它成分或助剂一起施用。这些成分的实例包括:漂移控制剂、消泡剂、防腐剂、表面活性剂、肥料、植物毒素、除草剂、杀虫剂、杀昆虫剂、杀真菌剂、润湿剂、粘合剂、杀线虫剂、杀菌剂、痕量元素、增效剂、解毒剂和其混合物,以及在植物生长调节领域中公知的其它助剂。

通过下述非限定性实施例进一步说明本发明。

实施例

在下述实施例中,采用用于棉花和烟草的PREP™牌乙烯利(ETP),其商购自Rhône-Poulenc Ag 公司,其中活性成分乙烯利(2-氯乙基)膦酸的含量为55.4%。

实施例1

将ETP和氟吡草酮(DFP)施用至温室生长的单独的四季豆植物和棉花植物以及它们的组合混合物中。在处理3至14天(DAT)后,测量处理过的植物的脱叶百分比,在处理四季豆(kidney bean)植物后14天也测量再生长的百分比,对棉花则测量在处理14和28天时的再生长百分比。下表1A示出了四季豆植物的结果,而对棉花植物的实验结果见下表1B:

表1A

	lb. ai/A	%脱叶		% 再生长
		3 DAT	14 DAT	14 DAT
未处理	0	0	0	100
ETP	2.0	6	35	10
DFP	0.050	7	23	0
DFP	0.010	2	22	0
DFP	0.001	0	4	100
ETP+DFP	2.0+0.050	88	100	0
ETP+DFP	2.0+0.010	94	100	0
ETP+DFP	2.0+0.001	47	59	-

表1B

	lb. ai/A	%脱叶		%再生长	
		3 DAT	14 DAT	14 DAT	28 DAT
未处理	0	13	13	100	100
ETP	2.0	31	49	8	77
DFP	0.050	31	49	2	0
DFP	0.010	34	41	5	6
DFP	0.001	12	51	50	9
ETP+DFP	2.0+0.0050	71	83	0	0
ETP+DFP	2.0+0.010	53	67	2	8
ETP+DFP	2.0+0.001	44	76	8	30

表1A和1B的数据表明, 在温室中对四季豆和棉花植物进行的实验中, 单独采用乙烯利或氟吡草酮均仅能提供51%或更低的较差脱叶率。单独使用乙烯利会降低植物的高度, 并使一些叶子脱落。在比例为0.01和0.05 lb ai/A下, 氟吡草酮产生上偏生长(新生长的扭转和/或叶子杯状陷凹形成(cupping)), 并减少生长。由氟吡草酮产生的上偏生长对于四季豆来说是严重的。但是数据表明, 比例为0.01和0.05 lbs ai/A的乙烯利和氟吡草酮将比在温室实验中单独使用时提供更大程度的脱叶。乙烯利与高比例氟吡草酮的组合导致的再生长要低于当单独使用时由乙烯利产生的再生长。

实施例2

在密西西比州的大田研究中重复实施例1。检测植物的脱叶百分比, 结果示于下表2。

表2

	lb. ai/A	%脱叶	
		7 DAT	20 DAT
未处理	--	0	0
DFP	.005	23	40
DFP	.010	23	39
DFP	.020	21	39
DFP+ETP	.005+1.0	64	70
DFP+ETP	.010+1.0	76	80
DFP+ETP	.020+1.0	71	70
ETP	1.0	58	78

上述数据表明,与单独使用时的结果相比,特别是在处理后第七天时,乙烯利与氟吡草酮以0.005-0.020 lbs ai/A的比例组合时在脱叶性方面得到改善。

实施例3

温室生长的四季豆通过混合施用或者顺序施用DFP和ETP进行处理。在该实施例中,DFP的施用量为0.005 lb. ai/A。

对于顺序施用来说,在用ETP施用之前,以间隔3、14和21天施用DFP。ETP的施用量为0.1 lb ai/A和0.4 lb ai/A。下表3示出了结果。

表3

处理	施用技术	施用天数 (天)	%脱叶	
			0.1 lb/A ETP	0.4 lb/A ETP
ETP	na	0	18	20
DFP	混合槽	0	74	100
ETP		0		
DFP	顺序施用	0	68	76
ETP		3		
DFP	顺序施用	0	33	79
ETP		14		
DFP	顺序施用	0	56	83
ETP		21		

注释: (1) 所有处理均具有Dash® HC喷雾助剂, 含量为1% v/v。

表3的数据表明, 与单独使用乙烯利相比, 在温室中在施用乙烯利之前, 用氟吡草酮于第3、14和21天对四季豆进行预处理增强了脱叶。

实施例4

用温室生长的四季豆重复实施例3, 结果如下表4所示。

表4

处理	比例 lbs ai/A	施用日期	%脱叶 15 DAT
未处理	--	--	0
ETP	1.0	7	28
DFP	0.005	7	58
ETP	1.0	7	
DFP	0.005	0	59
DFP	0.005	0	73
ETP	1.0	7	

上述数据表明,在施用ETP之前于第七天用DFP预处理四季豆会增加ETP的脱叶活性。

实施例5

大田生长的马铃薯植物用DFP和ETP的混合物处理,其数量如下表5所示。检测在处理4天和18天时马铃薯植物的脱叶百分数,数据如下表5所示。

表5

处理	比例 lbs ai/A	%脱叶	
		4 DAT	15 DAT
未处理	--	0	29
DFP+ETP	0.02+1.0	39	63
DFP+ETP	0.04+1.0	45	79
DFP+ETP	0.06+1.0	45	85
DFP+ETP	0.02+0.5	34	66
DFP+ETP	0.04+0.5	39	66
DFP+ETP	0.06+0.5	36	60

注: (1) 所有DFP+ETP处理采用Dash[®] HC喷雾助剂,含量为1% v/v.

实施例6

采用在路易斯安那州(LA)、乔治亚州(GA)和北卡罗来纳州(NC)的大田生长棉花植物重复实施例2,使用0.03-0.09 lbs ai/A的DFP,使用或不使用ETP。在每种设备中处理(DAT)后,于选定的时间,检测植物的再生长百分比,数据如下表6所示。

表6

	比例 (lb. ai/A)	% 再生长			平均值
		LA 17 DAT	GA 15 DAT	NC 27 DAT	
未处理	--	76.3	40.3	60.0	59
DFP	0.030	2.5	18.0	1.7	7
DFP	0.060	1.8	13.0	5.0	7
DFP	0.090	0.5	17.8	0.0	6
DFP+ETP	0.030+1.0	50.0	34.0	6.7	30
DFP+ETP	0.060+1.0	36.3	33.8	0.0	23
DFP+ETP	0.090+1.0	12.5	10.0	3.3	9
ETP	1.0	83.8	8.5	60.0	51

上述数据表明,向ETP中加入DFP令人惊奇地将会减少再生长的数量。

实施例7

采用在密西西比州(MS)的大田生长棉花植物重复实施例6。在处理(20DAT)后20天测量脱叶后再生长的百分比,结果如表7所示。

表7

处理	比例 lbs ai/A	% 再生长 20 DAT
未处理	--	--
DFP	0.005	31.3
DFP	0.010	15.0
DFP	0.20	11.3
DFP+ETP	0.005+1.0	21.3
DFP+ETP	0.010+1.0	10.0
DFP+ETP	0.020+1.0	8.8
ETP	1.0	36.3

实施例8

采用DFP与其它如下所述脱叶剂或干燥剂组合进行温室四季豆研究:

cinidon-乙基(参见, 美国专利4,933,001和5,123,955, 这两篇文献引入本文作为参考)。

DEF[®] 6: a.i. S,S,S-三丁基连三硫酸磷脱叶剂, 商购自 Bayer Corporation.

DROPP[®] 50WP: thidiazuron棉花脱叶剂, 商购自AgroEvo.

在这些温室研究中, 在处理后的第七天(DAT)对六次重复中的四次从四季豆上剪下叶子, 以助长均匀的再生长。数据显示于下表8A-8C, 其中, 再生长百分由基于未处理的检测植物的百分比测定。

表8A

	DFP (lbs ai/A)			
	0	0.001	0.002	0.004
cinidon-乙基 (lbs ai/A)	% 再生长, 21 DAT			
0	100	12	4	3
0.03	124	17	1	0.0
0.06	110	12	3	0.0
0.12	73	4	6	0.0

表8B

	DFP (lbs ai/A)			
	0	0.001	0.002	0.004
DEF 6 (lbs ai/A)	% 再生长, 21 DAT			
0	100	60	20	0.0
0.375	190	55	8	0.0
0.75	252	57	5	0.0
0.12	200	75	0.0	0.0

表8C

	DFP (lbs ai/A)			
	0	0.001	0.002	0.004
DROPP[®] 50WP (lbs ai/A)	% 再生长, 21 DAT			
0	100	47	20	18
0.05	95	102	90	53
0.1	74	95	88	54
0.2	87	78	77	63

从上述数据可以看出, 与未处理的样品相比, 仅使用DFP会减少再生长。使用BASF 123W和DEF[®] 6会促进再生长。组合cinidon乙基或DEF[®] 6与DFP(0.004 lbs ai/A)会显著减少再生长。使用DROPP[®] 50WP会轻微地抑制再生长。与单独使用DROPP[®] 50WP相比, 组合DROPP[®] 50WP与DFP(0.004 lbs ai/A)会显著减少再生长。

在结合最为实际和优选的实施方案描述本发明的同时, 应当理解本发明并不受所公开的实施方案的限制, 与此相反, 本发明将覆盖包括在所附权利要求的精神和范围之内的各种改变和等同方式。