

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5166514号
(P5166514)

(45) 発行日 平成25年3月21日 (2013. 3. 21)

(24) 登録日 平成24年12月28日 (2012. 12. 28)

(51) Int. Cl.	F I
AO 1 N 43/653 (2006. 01)	AO 1 N 43/653 C
AO 1 N 47/38 (2006. 01)	AO 1 N 47/38 B
AO 1 P 3/00 (2006. 01)	AO 1 P 3/00
AO 1 N 25/02 (2006. 01)	AO 1 N 25/02
AO 1 N 25/08 (2006. 01)	AO 1 N 25/08

請求項の数 11 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2010-504604 (P2010-504604)	(73) 特許権者	508020155
(86) (22) 出願日	平成20年4月7日 (2008. 4. 7)		ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア
(65) 公表番号	特表2010-525004 (P2010-525004A)		ア
(43) 公表日	平成22年7月22日 (2010. 7. 22)		BASF SE
(86) 国際出願番号	PCT/EP2008/054132		ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフェン (番地なし)
(87) 国際公開番号	W02008/132021		D-67056 Ludwigshafen, Germany
(87) 国際公開日	平成20年11月6日 (2008. 11. 6)	(74) 代理人	100091096
審査請求日	平成23年4月5日 (2011. 4. 5)		弁理士 平木 祐輔
(31) 優先権主張番号	07106953.8	(74) 代理人	100096183
(32) 優先日	平成19年4月25日 (2007. 4. 25)		弁理士 石井 貞次
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)	(74) 代理人	100118773
			弁理士 藤田 節

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 殺菌混合物

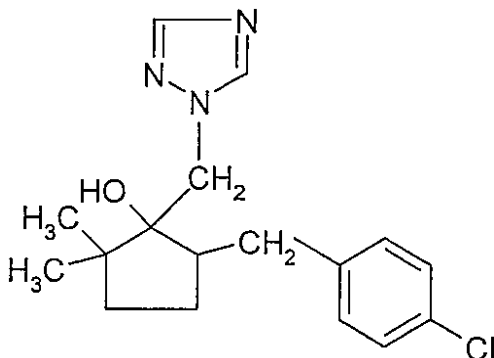
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

活性成分として：

1) 式Iのメトコナゾール

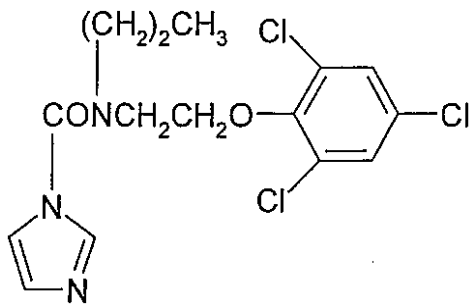
【化 1】



および

2) 式IIのプロクロラズ

【化 2】



II

を相乗効果を有する量で含む、殺菌混合物。

10

【請求項 2】

式Iの化合物と式IIの化合物を100:1~1:100の重量比で含む、請求項1に記載の殺菌混合物。

【請求項 3】

さらなる活性化化合物を含む、請求項1または2に記載の殺菌混合物。

【請求項 4】

液体または固体の担体、および請求項1~3のいずれか1項に記載の混合物を含む殺菌組成物。

【請求項 5】

植物病原性の有害な菌類を防除する方法であって、該菌類、その生育環境または菌類の攻撃から保護すべき植物、土壌もしくは種子を、相乗効果を有する量の請求項1に記載の化合物Iおよび化合物IIで処理することを含む、前記方法。

20

【請求項 6】

請求項1に記載の化合物IとIIを同時に、すなわち一緒にもしくは別々に、または連続して施用する、請求項5に記載の方法。

【請求項 7】

請求項1に記載の化合物IとII、または請求項1~4のいずれか1項に記載の混合物を5g/ha~2000g/haの量で施用する、請求項5または6に記載の方法。

【請求項 8】

請求項1に記載の化合物IとII、または請求項1~3のいずれか1項に記載の混合物を1~1000g/種子100kgの量で施用する、請求項5または6に記載の方法。

30

【請求項 9】

ファコプサラ(Phakopsara)属の種が防除される、請求項5または6に記載の方法。

【請求項 10】

請求項1~3のいずれか1項に記載の混合物を1~1000g/100kgの量で含む種子。

【請求項 11】

請求項4に記載の組成物の製造における、請求項1に記載の化合物IとIIの使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

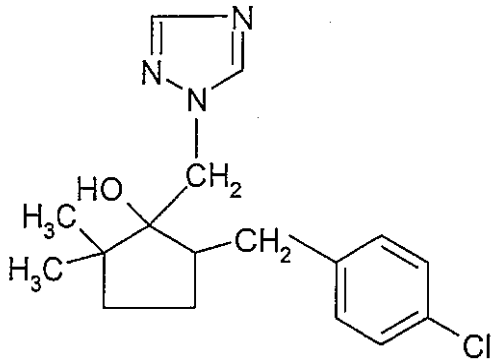
【0001】

40

本発明は、活性成分として

1) 式Iのメトコナゾール(metconazole)

【化1】



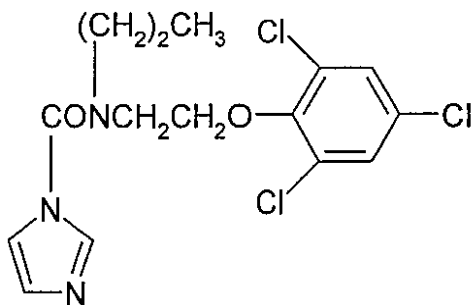
I

10

および

2) 式IIのプロクロラズ(prochloraz)

【化2】



II

20

を相乗効果を有する量で含む殺菌混合物に関する。

【0002】

さらに、本発明は化合物Iと化合物IIの混合物を用いて有害な菌類を防除する方法、およびそのような混合物の調製における化合物Iと化合物IIの使用に関し、ならびにこれらの混合物を含む組成物にも関する。

【背景技術】

【0003】

上記で成分1として言及したメトコナゾールは(1RS,5RS;1RS,5SR)-5-(4-クロロベンジル)-2,2-ジメチル-1-(1H-1,2,4-トリアゾール-1-イルメチル)シクロペンタノールであり、その調製法および有害な菌類に対するその作用は文献(EP-A 267 778)により公知である。

30

【0004】

上記で成分2として言及した活性化化合物プロクロラズはN-プロピル-N-[2-(2,4,6-トリクロロフェノキシ)エチル]イミダゾール-1-カルボキサミドであり、その調製法および有害な菌類に対するその作用は、同様に文献(US 3,991,071)により公知である。

【0005】

EP-A 0 951 831は、担体、アゾール(メトコナゾールも含む)、微細懸濁液としてのさらなる殺菌活性成分、可溶化剤および分散剤からなる濃縮液体殺菌組成物を開示している。言及されているさらなる殺菌活性成分は、プロクロラズも含む多数の殺菌剤である。唯一記載されている混合物は、メトコナゾールとクレソキシム-メチルおよびクロロタロニルとの混合物である。本願の基礎となる本発明の目的は、その濃縮された安定した共製剤(Ko-Formulierungen)であった。

40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

施量を減らし、既知の化合物の活性スペクトルを広くする観点から、本発明の目的は施用する活性化化合物の総量を減らしつつ、有害な菌類、特にある種の適応に対して改善された活性を示す混合物を提供することであった。

【課題を解決するための手段】

50

【0007】

従って、本発明者らは冒頭で定義した混合物を見出した。さらに、化合物Iと化合物IIを同時に、すなわち一緒にまたは別々に施用すると、あるいは化合物Iと化合物IIを連続して施用すると、個々の化合物よりも有害な菌類をより良く防除することがわかった（相乗的混合物）。化合物Iと化合物IIを同時に、すなわち一緒にまたは別々に施用することで、殺菌活性は超相加的に向上する。

【発明を実施するための形態】

【0008】

化合物Iと化合物IIの混合物、または化合物Iと化合物IIの同時、すなわち一緒にまたは別々の使用は、植物、特にマメ科植物の活性化および収量向上において著しい効果を奏し、また広いスペクトルの植物病原性の菌類、特に子嚢菌類(Ascomycetes)、不完全菌類(Deuteromycetes)、担子菌類(Basidiomycetes)および卵菌綱(Peronosporomycetes(異名: Oomycetes))のクラスに属する菌類に対する優れた効果を有する。それらのいくつかは全身的に有効であり、葉用の殺菌剤として、種子紛衣のための殺菌剤として、および土壌用の殺菌剤として作物保護に使用することができる。

10

【0009】

それらは、種々の作物植物、例えば、バナナ、ワタ、野菜（例えば、キュウリ、マメおよびウリ科植物）、オオムギ、牧草、オートムギ、コーヒー、ジャガイモ、トウモロコシ、果実植物、イネ、ライムギ、ダイズ、トマト、ブドウ、コムギ、観葉植物、サトウキビおよび多くの種子などにおける多くの菌類の防除に特に重要である。

20

【0010】

有利なことに、それらは下記の植物の病気の防除に適している。

【0011】

- ・野菜、アブラナ、サトウダイコンおよび果実およびイネのアルタナリア(*Alternaria*)属の種、例えば、ジャガイモおよびトマトの夏疫病菌(*A. solani*)または黒斑病菌(*A. alternata*)、
- ・サトウダイコンおよび野菜のアファノミセス(*Aphanomyces*)属の種、
- ・穀類および野菜のアスコキタ(*Ascochyta*)属の種、
- ・トウモロコシ、穀類、イネおよびシバのビポラリス(*Bipolaris*)およびドレクスレラ(*Drechslera*)属の種、例えば、トウモロコシのドレクスレラ・マイデイス(*D. maydis*)、
- ・穀物のブルメリア・グラミニス(*Blumeria graminis*) (うどん粉病)、
- ・イチゴ、野菜、花およびブドウのボトリティス・シネレア(*Botrytis cinerea*) (灰色カビ病)、
- ・レタスのべと病菌(*Bremia lactucae*)、
- ・トウモロコシ、ダイズ、イネおよびサトウダイコンのセルコスポラ(*Cercospora*)属の種、
- ・トウモロコシ、穀類、イネのコクリオボルス(*Cochliobolus*)属の種、例えば、穀類の斑点病菌(*Cochliobolus sativus*)、イネのごま葉枯病菌(*Cochliobolus miyabeanus*)、
- ・ダイズおよびワタのコレットリクム(*Colletotricum*)属の種、
- ・トウモロコシ、穀類、イネおよびシバのドレクスレラ(*Drechslera*)属の種、ピレノホラ(*Pyrenophora*)属の種、例えば、オオムギの網斑病菌(*D. teres*)またはコムギの黄斑病菌(*D. tritici-repentis*)、
- ・フェオアクレモニウム・クラミドスポリウム(*Phaeoacremonium chlamydosporium*)、フェオアクレモニウム・アレオフィルム(*Ph. Aleophilum*)およびホルミチポラ・プンクタタ(*Formitipora punctata*) (異名: チャアナタケモドキ(*Pheellinus punctatus*))により引き起こされるブドウのエスカ病、
- ・ブドウのエルシノエ・アンペリナ(*Elsinoe ampelina*)、
- ・トウモロコシのエクセロヒルム(*Exserohilum*)属の種、
- ・キュウリのエリシフェ・シコラセアルム(*Erysiphe cichoracearum*)およびスファエロセカ・フリギネア(*Sphaerotheca fuliginea*)、

30

40

50

- ・種々の植物のフサリウム(*Fusarium*)およびベルチシリウム(*Verticillium*)属の種、例えば、穀類の赤カビ病菌(*F. graminearum*もしくは*F. culmorum*)、または、例えばトマトなどの多くの植物の萎ちょう病菌(*F. oxysporum*)、
- ・穀類の立枯病菌(*Gaeumanomyces graminis*)、
- ・穀類およびイネのギベレラ属の種(例えば、イネのばか苗病菌(*Gibberella fujikuroi*))、
- ・ブドウおよびその他の植物のグロメレラ・シングラタ(*Glomerella cingulata*)、
- ・イネの穀物汚染複合体、
- ・ブドウのグイナルディア・ブドウエリ(*Guignardia budwelli*)、
- ・トウモロコシおよびイネのヘルミントスポリウム(*Helminthosporium*)属の種、
- ・ブドウのイサリオプシス・クラオビスポラ(*Isariopsis clavispora*)、
- ・穀類の紅色雪腐病菌(*Microdochium nivale*)、
- ・穀類、バナナおよびラッカセイのミコスフェレラ(*Mycosphaerella*)属の種、例えば、コムギのミコスフェレラ・グラニミコラ(*M. graminicola*)またはバナナのブラックシガトカ病菌(*M. fijiensis*)、
- ・キャベツおよび球根植物のペロノスポラ(*Peronospora*)属の種、例えば、キャベツのべと病菌(*P. brassicae*)またはタマネギのべと病菌(*P. destructor*)、
- ・ダイズのファコプサラ・パキリジ(*Phakopsara pachyrhizi*)およびファコプサラ・メイボミアエ(*Phakopsara meibomiae*)、
- ・ダイズおよびヒマワリのホモプシス(*Phomopsis*)属の種、ブドウのべと病菌(*P. viticola*)、
- ・ジャガイモおよびトマトの疫病菌(*Phytophthora infestans*)、
- ・種々の植物のフィトフトラ(*Phytophthora*)属の種、例えば、ピーマンの疫病菌(*P. capsici*)
- ・ブドウのべと病菌(*Plasmopara viticola*)、
- ・リンゴのうどん粉病菌(*Podosphaera leucotricha*)、
- ・穀類のコムギ眼紋病菌(*Pseudocercospora herpotrichoides*)、
- ・種々の植物のシュードペロノスポラ(*Pseudoperonospora*)属の種、例えば、キュウリのべと病菌(*P. cubensis*)またはホップのべと病菌(*P. humili*)、
- ・ブドウのシュードペジクラ・トラチェイフィライ(*Pseudopezizcula tracheiphilae*)、
- ・種々の植物のブクキニア(*Puccinia*)属の種、例えば、穀類のさび病菌(*P. triticulturae*)、ブクキニア・ストリホルミンズ(*P. striiformis*)、小さび病菌(*P. hordei*)または黒さび病菌(*P. graminis*)またはアスパラガスのさび病菌(*P. asparagi*)、
- ・イネのいもち病菌(*Pyricularia oryzae*)、紋枯病菌(*Corticium sasakii*)、葉鞘腐敗病菌(*Sarocladium oryzae*)、褐色米病菌(*S. attenuatum*)、黒しゅ病菌(*Entyloma oryzae*)、
- ・シバおよび穀類のイモチ病菌(*Pyricularia grisea*)、
- ・シバ、イネ、トウモロコシ、ワタ、アブラナ、ヒマワリ、サトウダイコン、野菜および他の植物のピチウム属の種(*Pythium* spp.)、例えば、種々の植物の苗立枯病(*P. ultimum*)、シバのピチウム・アファニデルマトム(*P. aphanidermatum*)、
- ・ワタ、イネ、ジャガイモ、シバ、トウモロコシ、アブラナ、ジャガイモ、サトウダイコン、野菜および種々の植物のリゾクトニア(*Rhizoctonia*)属の種、例えば、ビートおよび種々の植物のリゾクトニア・ソラニ(*R. solani*)、
- ・オオムギ、ライムギおよびライコムギの雲形病菌(*Rhynchosporium secalis*)、
- ・アブラナおよびヒマワリのスクレロチニア(*Sclerotinia*)属の種、
- ・コムギの葉枯病菌(*Septoria tritici*)およびスタゴノスポラ・ノドルム(*Stagonospora nodorum*)、
- ・ブドウのうどんこ病菌(*Erysiphe*(異名:*Uncinula*) *necator*)、
- ・トウモロコシおよびシバのセトスパエリア(*Setosphaeria*)属の種、
- ・トウモロコシのスファセロテカ・レイリニア(*Sphacelotheca reilina*)、
- ・ダイズおよびワタのチエバリオプシス(*Thievaliopsis*)属の種、

- ・ 穀類のチレチア(*Tilletia*)属の種、
- ・ 穀類、トウモロコシおよびサトウキビのウスティラーゴ(*Ustilago*)属の種、例えば、トウモロコシの黒穂病菌(*U. maydis*)、
- ・ リンゴおよびセイヨウナシのベントウリア(*Venturia*)属の種(黒星病)、例えば、リンゴの黒星病菌(*V. inaequalis*)。

【 0 0 1 2 】

化合物IおよびIIの混合物は、さらに、材料(例えば、木材、紙、塗料分散物、繊維または織物)の保護および貯蔵製品の保護における有害な菌類の防除にも適している。木材の保護においては、次の有害な菌類: オフィオストマ属の種(*Ophiostoma* spp.)、セラトシステイス属の種(*Ceratocystis* spp.)、黒酵母(*Aureobasidium pullulans*)、スクレロホマ属の種(*Sclerophoma* spp.)、ケトミウム属の種(*Chaetomium* spp.)、フミコーラ属の種(*Humicola* spp.)、ペトリエラ属の種(*Petriella* spp.)、トリクルス属の種(*Trichurus* spp.)などの子嚢菌類(Ascomycetes); イドタケ属の種(*Coniophora* spp.)、カワラタケ属の種(*Coriolus* spp.)、キカイガラタケ属の種(*Gloeophyllum* spp.)、マツオウジ属の種(*Lentinus* spp.)、ヒラタケ属の種(*Pleurotus* spp.)、ポリア属の種(*Poria* spp.)、セルプラ属の種(*Serpula* spp.)およびオシロイタケ属の種(*Tyromyces* spp.)などの担子菌類(Basidiomycetes); アスペルギルス属の種(*Aspergillus* spp.)、クラドスポリウム属の種(*Cladosporium* spp.)、ペニシリウム属の種(*Penicillium* spp.)、トリコデルマ属の種(*Trichoderma* spp.)、アルテルナリア属の種(*Alternaria* spp.)、ペシロミセス属の種(*Paecilomyces* spp.)などの不完全菌類(Deuteromycetes)、およびケカビ属の種(*Mucor* spp.)などの接合菌綱(Zygomycetes)が特に注意を要し、また、材料の保護においては次の酵母: カンジダ属の種(*Candida* spp.)およびサッカロミセス・セレビシエ(*Saccharomyces cerevisiae*)が特に注意を要する。

【 0 0 1 3 】

化合物IとIIの混合物は、遺伝子工学手法を含む品種改良により除草剤、殺菌剤または殺虫剤の作用に対して耐性を有する作物植物に対して追加的に使用することができる。

【 0 0 1 4 】

本発明の混合物は、例えば、スルホニル尿素、イミダゾリノン、グルホシネート-アンモニウムまたはグリホサート-イソプロピルアンモニウムおよび類似の活性化合物(EP-A 0 242 236、EP-A 0 242 246、WO 92/00377、EP-A 0 257 993、US 5,013,659)の群から選択される除草剤に対して耐性を有する遺伝子組み換え植物に対して使用することができる。あるいは、それらは遺伝子組み換え作物植物、例えば、バチルス・チューリンゲンシス毒(*Bacillus thuringiensis* toxins)(Bt毒)を生成する能力(これは植物に所定の害虫(*Schaefflingia*)に対する耐性を与える(EP-A 0 142 924、EP-A 0 193 259))を有するウール(Wolle)において使用することができる。

【 0 0 1 5 】

さらに、本発明の混合物は改良された性質を有する植物を処理するためにも用いることができる。それらは、例えば突然変異株を生じさせることによる従来の育種方法により創り出すことができる。また、植物内で合成されるデンプンを改質するための作物植物の遺伝子組み換えによる改良も知られている(WO 92/11376、WO 92/14827、WO 91/19806)。さらに、改質した脂肪酸を生成する作物植物(WO 91/13972)を本発明の混合物で処理することもできる。

【 0 0 1 6 】

化合物IおよびIIは、同時に、すなわち一緒にもしくは別々に、または連続して施用することが可能であり、別々の施用の場合、その順番は、通常防除手段の結果に何の影響も与えない。

【 0 0 1 7 】

所定の環境において、1種以上のさらなる活性化合物を活性化合物IおよびIIに加えることが有利となる場合がある。

【 0 0 1 8 】

10

20

30

40

50

以下の、本発明の化合物と共に用いることができる殺菌剤のリストは、可能な組み合わせを例示することを意図するものであって、これらに限定されるものではない：

【 0 0 1 9 】

アゾール類

- トリアゾール類：ピテルタノール(bitertanol)、ブロムコナゾール(bromuconazole)、シプロコナゾール(cyproconazole)、ジフェノコナゾール(difenoconazole)、ジニコナゾール(diniconazole)、エニルコナゾール(enilconazole)、エポキシコナゾール(epoxiconazole)、フェンブコナゾール(fenbuconazole)、フルシラゾール(flusilazole)、フルキンコナゾール(flquinconazole)、フルトリアホル(flutriafol)、ヘキサコナゾール(hexaconazole)、イミベンコナゾール(imibenconazole)、イブコナゾール(ipconazole)、ミクロブタニル(myclobutanil)、ペンコナゾール(penconazole)、プロピコナゾール(propiconazole)、プロチオコナゾール(prothioconazole)、シメコナゾール(simeconazole)、テブコナゾール(tebuconazole)、テトラコナゾール(tetraconazole)、トリアジメノール(triadimenol)、トリアジメホン(triadimefon)、トリチコナゾール(triti-conazole)；

- イミダゾール類：シアゾファミド(cyazofamid)、イマザリル(imazalil)、ペフラゾエート(pefurazoate)、トリフルミゾール(triflumizole)；

- ベンズイミダゾール類：ベノミル(benomyl)、カルベンダジム(carbendazim)、フベリダゾール(fuberidazole)、チアベンダゾール(thiabendazole)；

- その他：エタボキサム(ethaboxam)、エトリジアゾール(etridiazole)、ヒメキサゾール(hymexazole)；

【 0 0 2 0 】

ストロビルリン類

アゾキシストロビン(azoxystrobin)、ジモキシストロビン(dimoxystrobin)、エネストロブリン(enestroburin)、フルオキサストロビン(fluxastrobin)、クレソキシム-メチル(kresoxim-methyl)、メトミノストロビン(methominostrobin)、ピコキシストロビン(picoxystrobin)、ピラクロストロビン(pyraclostrobin)、トリフロキシストロビン(trifloxystrobin)、オリサストロビン(orysastrobin)、メチル(2-クロロ-5-[1-(3-メチルベンジルオキシイミノ)エチル]ベンジル)カルバメート、メチル(2-クロロ-5-[1-(6-メチルピリジン-2-イルメトキシイミノ)エチル]ベンジル)カルバメート、メチル2-(オルト-(2,5-ジ-メチルフェニルオキシメチレン)フェニル)-3-メトキシアクリレート；

【 0 0 2 1 】

カルボキサミド類

- カルボキサニリド類：ベナラキシル(benalaxyl)、ベノダニル(benodanil)、ボスカリド(boscalid)、カルボキシシン(carboxin)、メプロニル(mepronil)、フェンフラム(fenfuram)、フェンヘキサミド(fenhexamid)、フルトラニル(flutolanil)、フラメトピル(furametpyr)、メタラキシル(metalaxyl)、オフレース(ofurace)、オキサジキシル(oxadixyl)、オキシカルボキシシン(oxycarboxin)、ペンチオピラド(penthiopyrad)、チフルザミド(thifluza-mide)、チアジニル(tiadinil)、N-(4'-プロモピフェニル-2-yl)-4-ジフルオロメチル-2-メチルチアゾール-5-カルボキサミド、N-(4'-トリフルオロメチルピフェニル-2-イル)-4-ジフルオロメチル-2-メチルチアゾール-5-カルボキサミド、N-(4'-クロロ-3'-フルオロピフェニル-2-イル)-4-ジフルオロメチル-2-メチルチアゾール-5-カルボキサミド、N-(3',4'-ジクロロ-4-フルオロピフェニル-2-イル)-3-ジフルオロメチル-1-メチルピラゾール-4-カルボキサミド、N-(2-シアノフェニル)-3,4-ジクロロイソチアゾール-5-カルボキサミド；

- カルボン酸モルホリド類：ジメトモルフ(dimethomorph)、フルモルフ(flumorph)；

- ベンズアミド類：フルメトバー(flumetover)、フルオピコリド(ピコベンズアミド)(flupicolide(picobenzamid))、ゾキサミド(zoxamide)；

- その他のカルボキサミド類：カルプロパミド(carpropamid)、ジクロシメット(diclocymet)、マンジプロパミド(mandipropamid)、N-(2-(4-[3-(4-クロロフェニル)プロパ-2-イニルオキシ]-3-メトキシフェニル)エチル)-2-メタンシルホニルアミノ-3-メチルブチルアミ

10

20

30

40

50

ド、N-(2-(4-[3-(4-クロロフェニル)プロパ-2-イニルオキシ]-3-メトキシフェニル)エチル)-2-エタンスルホニルアミノ-3-メチルブチルアミド；

【0022】

窒素含有複素環式化合物類

- ピリジン類：ピリフェノックス(pyrifenoxy)、3-[5-(4-クロロフェニル)-2,3-ジメチルイソオキサゾリジン-3-イル]ピリジン；
- ピリミジン類：ブピリマート(bupirimate)、フェリムゾン(ferimzone)、フェナリモール(fenarimol)、メパニピリム(mepanipirim)、ヌアリモール(nuarimol)、ピリメタニル(pyrimethanil)；
- ピペラジン類：トリフォリン(triforine)；
- ピロール類：フルジオキサニル(fludioxonil)、フェンピクロニル(fenpiclonil)；
- モルホリン類：アルジモルフ(aldimorph)、ドデモルフ(dodemorph)、フェンプロピモルフ(fenpropimorph)、トリデモルフ(tridemorph)；
- ジカルボキシイミド類：イプロジオン(iprodione)、プロシミドン(procymidone)、ビンクロゾリン(vinclozolin)；
- その他：アシベンゾラル-S-メチル(acibenzolar-S-methyl)、アニラジン(anilazine)、キャプタン(captan)、キャプタホール(captafol)、ダゾメット(dazomet)、ジクロメジン(diclomezine)、フェノキサニル(fenoxanil)、フォルペット(folpet)、フェンプロピジン(fenpropidin)、ファミキサドン(famoxadone)、フェンアミドン(fenamidone)、オクチリノン(octhilinone)、プロベナゾール(probenazole)、プロキナジド(proquinazid)、ピロキロン(pyroquilon)、キノキシフェン(quinoxyfen)、トリシクラゾール(tricyclazole)、5-クロロ-7-(4-メチルピペリジン-1-イル)-6-(2,4,6-トリフルオロフェニル)-[1,2,4]トリアゾール[1,5-a]ピリミジン、2-プトキシ-6-ヨード-3-プロピルクロメン-4-オン、N,N-ジメチル-3-(3-プロモ-6-フルオロ-2-メチルインドール-1-スルホニル)-[1,2,4]トリアゾール-1-スルホンアミド；

10

20

【0023】

カルバメート類およびジチオカルバメート類

- ジチオカルバメート類：フェルバム(ferbam)、マンコゼブ(mancozeb)、マネブ(maneb)、メチラム(metiram)、メタム(metam)、プロピネブ(propineb)、チラム(thiram)、ジネブ(zineb)、ジラム(ziram)；
- カルバメート類：ジエトフェンカルブ(diethofencarb)、フルベンチアバリカルブ(flubenthiavalicarb)、イプロバリカルブ(iprovalicarb)、プロパモカルブ(propamocarb)、メチル3-(4-クロロフェニル)-3-(2-イソプロポキシカルボニルアミノ-3-メチルブチルアミノ)プロピオネート、4-フルオロフェニルN-(1-(1-(4-シアノフェニル)エタンスルホニル)ブタ-2-イル)カルバメート；

30

【0024】

他の殺菌剤

- グアニジン類：ドジン(dodine)、イミノクタジン(iminoctadine)、グアザチン(guazatine)；
- 抗生物質：カスガマイシン(kasugamycin)、ポリオキシン、ストレプトマイシン、バリダマイシンA(validamycin A)；
- 有機金属化合物：トリフェニルスズ(fentin)塩；
- 硫黄含有複素環式化合物：イソプロチオラン(isoprothiolane)、ジチアノン；
- 有機リン化合物：エディフェンホス(edifenphos)、ホセチル(fosetyl)、ホセチル-アルミニウム、イプロベンホス(iprobenfos)、ピラゾホス(pyrazophos)、トルクロホス-メチル(tolclofos-methyl)、亜リン酸およびその塩；
- 有機塩素化合物：チオフアネート-メチル(thiophanate-methyl)、クロロタロニル(chlorothalonil)、ジクロフルアニド(dichlofluanid)、トリルフルアニド(tolyfluanid)、フルスルファミド(flusulfamide)、フタリド(phthalide)、ヘキサクロロベンゼン、ペンシクロン(pencycuron)、キントゼン(quintozene)；

40

50

- ニトロフェニル誘導体：ピナパクリル(binapacryl)、ジノカップ(dinocap)、ジノブトン(dinobuton)；

- 無機活性化化合物：ボルドー液(Bordeaux mixture)、酢酸銅、水酸化銅、オキシ塩化銅、塩基性硫酸銅、硫黄；

- その他：スピロキサミン(spiroxamine)、シフルフェナミド(cyflufenamid)、シモキサニル(cymoxanil)、メトラフェノン(metrafenone)。

【0025】

活性化化合物は、その農業上許容される塩の形態で用いることもできる。この目的に好適なものは、一般に、アルカリまたはアルカリ土類金属の塩、例えばナトリウム、カリウムまたはカルシウムの塩である。

10

【0026】

化合物Iおよび化合物IIは、通常は100:1~1:100、好ましくは20:1~1:20、特に10:1~1:10の重量比で施用される。

【0027】

所望により、他の活性成分を、化合物Iに対して20:1~1:20の比で加える。

【0028】

化合物のタイプおよび所望の効果に応じて、本発明の混合物の施量は、5 g/ha~2000 g/ha、好ましくは50~900 g/ha、特に50~750 g/haである。

【0029】

同様に、化合物Iの施量は、一般的に1~1000 g/ha、好ましくは10~900 g/ha、特に20~750 g/haである。

20

【0030】

同様に、活性化化合物IIの施量は、一般的に1~2000 g/ha、好ましくは10~900 g/ha、特に40~500 g/haである。

【0031】

例えば、種子に散粉、被覆するか、または種子を浸漬することによる種子処理において用いる混合物の施量は、一般的に1~1000 g/種子100 kg、好ましくは1~750 g/100 kg、特に5~500 g/100 kgである。

【0032】

材料もしくは貯蔵製品の保護のために用いる場合、施用する活性化化合物の量は施用する領域の種類および所望の効果に依存する。材料の保護において通常施用される量は、例えば1立方メートルの処理された材料につき0.001 g~2 kg、好ましくは0.005 g~1 kgの活性化化合物である。

30

【0033】

有害な菌類を防除する方法は、植物の播種の前もしくは後、または植物の発芽の前もしくは後に、種子、植物または土壌に噴霧または散粉することにより、化合物Iおよび化合物IIを別々にもしくは一緒に施用すること、または化合物Iと化合物IIとの混合物を施用することにより実施される。

【0034】

本発明の混合物、または化合物Iおよび化合物IIは、通常の製剤、例えば、溶液、エマルジョン、懸濁液、ダスト、粉末、ペーストまたは顆粒に変換することができる。施用形態は個々の用途に依存するが、いずれの場合にも、それは本発明の化合物の微細で均一な分布を保證するものでなければならない。

40

【0035】

製剤は、それ自体は公知の方法により、例えば、活性化化合物を、所望により乳化剤および分散剤を用いて溶媒および/または担体により希釈することにより調製される。この目的に好適な溶媒/添加剤は基本的に次の通りである：

・水、芳香族溶媒（例えば、ソルベッソ(Solvesso(登録商標))製品、キシレン）、パラフィン（例えば、鉱油留分）、アルコール（例えば、メタノール、ブタノール、ペンタノール、ベンジルアルコール）、ケトン（例えば、シクロヘキサノン、ガンマ-ブチロラク

50

トン)、ピロリドン(NMP、NOP)、酢酸エステル(二酢酸グリコール)、グリコール、脂肪酸ジメチルアミド、脂肪酸および脂肪酸エステル。原則として、溶媒混合物も用いることができる。

・粉砕した天然鉱物(例えば、カオリン、粘土、タルク、白亜)および粉砕した合成鉱物(例えば、微粉シリカ、ケイ酸塩)などの担体;非イオンおよび陰イオン乳化剤(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)などの乳化剤、およびリグノ亜硫酸廃液およびメチルセルロースなどの分散剤。

【0036】

好適な界面活性剤は、リグノスルホン酸、ナフタレンスルホン酸、フェノールスルホン酸、ジブチルナフタレンスルホン酸、アルキルアリアルスルホネート、アルキルスルフェート、アルキルスルホネート、脂肪アルコールスルフェート、脂肪酸および硫酸化脂肪アルコールグリコールエーテルのアルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩およびアンモニウム塩である。さらに、スルホン化ナフタレンおよびナフタレン誘導体とホルムアルデヒドの縮合物、ナフタレンまたはナフタレンスルホン酸とフェノールおよびホルムアルデヒドの縮合物、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、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、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、トリブチルフェニルポリグリコールエーテル、トリステアリルフェニルポリグリコールエーテル、アルキルアリアルポリエーテルアルコール、アルコールおよび脂肪アルコール/エチレンオキシド縮合物、エトキシ化ひまし油、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、エトキシ化ポリオキシプロピレン、ラウリルアルコールポリグリコールエーテルアセタール、ソルビトールエステル、リグノ亜硫酸廃液およびメチルセルロースである。

【0037】

直接噴霧可能な溶液、エマルション、ペーストまたは油分散物の調製に好適なものは、灯油またはジゼル油などの中程度から高い沸点の鉱油留分、さらに、コールタール油および植物または動物由来の油、脂肪族、環式および芳香族炭化水素、たとえば、トルエン、キシレン、パラフィン、テトラヒドロナフタレン、アルキル化ナフタレンまたはその誘導体、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、シクロヘキサノール、シクロヘキサノン、イソホロン、極性の強い溶媒、たとえば、ジメチルスルホキシド、N-メチルピロリドン、および水である。

【0038】

粉末、散布用材料および散粉用製品は、活性物質を固体の担体と混合または同時に粉砕することにより調製することができる。

【0039】

顆粒、たとえば被覆顆粒、含浸顆粒および均一な顆粒は、活性化合物を固体の担体に結合することにより調製することができる。固体の担体の例は、シリカゲル、ケイ酸塩、タルク、カオリン、活性白土、石灰石、石灰、白亜、赤土、黄土、粘土、白雲石、珪藻土、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、酸化マグネシウムなどの鉱物、粉砕した合成材料、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、尿素などの肥料、および穀物の粗挽き粉、樹皮の粗挽き粉、木材の粗挽き粉および木の実の殻の粗挽き粉などの植物由来の製品、セルロース粉末および他の固体の担体である。

【0040】

一般的に、製剤は0.01~95重量%、好ましくは0.1~90重量%の活性化合物を含む。活性化合物は、90~100%、好ましくは95~100%の純度(NMRスペクトルによる)のものを使用する。

【0041】

以下に製剤の例を記載する:

1. 水により希釈する製品

A 水溶性濃縮物(SL、LS)

10重量部の活性化合物を90重量部の水または水溶性溶媒に溶解する。あるいは、湿潤剤

10

20

30

40

50

または他の添加剤を加える。活性化合物は水により希釈すると溶解する。これにより10重量%の活性化合物含有量を有する製剤が得られる。

【0042】

B 分散性濃縮物(DC)

20重量部の活性化合物を、10重量部の分散剤、たとえばポリビニルピロリドンを加えて70重量部のシクロヘキサノンに溶解する。水により希釈すると分散物が得られる。活性化合物含有量は20重量%である。

【0043】

C 乳化性濃縮物(EC)

15重量部の活性化合物を、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウムおよびエトキシ化ひまし油(それぞれ5重量部)を加えて75重量部のキシレンに溶解する。水により希釈するとエマルションが得られる。製剤は15重量%の活性化合物含有量を有する。

【0044】

D エマルション(EW、EO、ES)

25重量部の活性化合物を、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウムおよびエトキシ化ひまし油(それぞれ5重量部)を加えて35重量部のキシレンに溶解する。この混合物を乳化機(例えばUltraturrax)を用いて30重量部の水に導入し、均一なエマルションを作る。水により希釈するとエマルションが得られる。製剤は25重量%の活性化合物含有量を有する。

【0045】

E 懸濁液(SC、OD、FS)

攪拌したボールミル中で、20重量部の活性化合物を、10重量部の分散剤および湿潤剤ならびに70重量部の水または有機溶媒を加えて粉碎して、微細な活性化合物の懸濁液を得る。水により希釈すると、活性化合物の安定な懸濁液が得られる。製剤中の活性化合物含有量は20重量%である。

【0046】

F 水分散性顆粒および水溶性顆粒(WG、SG)

50重量部の活性化合物を、50重量部の分散剤および湿潤剤を加えて微細に粉碎し、技術機器(たとえば、押出機、噴霧塔、流動床)を用いて水分散性または水溶性顆粒を調製する。水により希釈すると活性化合物の安定な分散物または溶液が得られる。製剤は50重量%の活性化合物含有量を有する。

【0047】

G 水分散性粉末および水溶性粉末(WP、SP、SS、WS)

75重量部の活性化合物を、25重量部の分散剤、湿潤剤およびシリカゲルを加えてローターステーターミル(Rotor-Strator Muehle)中で粉碎する。水により希釈すると活性化合物の安定な分散物または溶液が得られる。製剤の活性化合物含有量は75重量%である。

【0048】

H ゲル製剤(GF)

ボールミル中で、20重量部の活性化合物、10重量部の分散剤、1重量部のゲル化剤、および70重量部の水もしくは有機溶媒を、微細懸濁液が得られるまで粉碎する。水で希釈すると、20重量%の活性化合物含有量を有する安定な懸濁液が得られる。

【0049】

2. 希釈せずに施用する製品

I 散粉用粉末(DP、DS)

5重量部の活性化合物を微細に粉碎し、95重量部の微細に粉碎したカオリンと緊密に混合する。これにより、5重量%の活性化合物含有量を有する散粉用製品が得られる。

【0050】

J 顆粒(GR、FG、GG、MG)

0.5重量部の活性化合物を微細に粉碎し、99.5重量部の担体と結合させる。現在の方法は押出、噴霧乾燥および流動床である。これにより、0.5重量%の活性化合物含有量を有

10

20

30

40

50

する希釈せずに施用する顆粒が得られる。

【0051】

K ULV溶液(UL)

10重量部の活性化化合物を90重量部の有機溶媒、たとえばキシレンに溶解する。これにより、10重量%の活性化化合物含有量を有する希釈せずに施用する製品が得られる。

【0052】

種子の処理用には、水溶性濃縮物(LS)、懸濁液(FS)、散布用粉末(DS)、水分散性および水溶性粉末(WS、SS)、エマルジョン(ES)、乳化性濃縮物(EC)、及びゲル製剤(GF)が通常用いられる。これらの製剤は、希釈しない形態で、または好ましくは希釈して、種子に施用することができる。施用は播種に先立って行うことができる。

10

【0053】

活性化化合物は、そのまま、それらの製剤の形で、またはその製剤から調製された使用形態で、例えば、直接噴霧できる溶液、粉末、懸濁液もしくは分散物、エマルジョン、油分散物、ペースト、散粉用製品、散布用材料、または顆粒の形で、スプレー、噴霧、散粉、散布または散水により使用することができる。使用形態は意図される目的に完全に依存するが、それらは常に本発明の活性化化合物の可能な限り微細な分布を保障するものでなければならない。

【0054】

水性の使用形態は、乳化可能な濃縮物、ペーストまたは湿潤性粉末(噴霧用粉末、油分散物)に水を加えることにより調製することができる。エマルジョン、ペーストまたは油分散物を調製するために、物質を、そのまま、または油または溶媒に溶解して、湿潤剤、粘着付与剤、分散剤または乳化剤を用いて水中に均一化することができる。しかしながら、活性物質、湿潤剤、粘着付与剤、分散剤または乳化剤、および場合により溶媒または油を含む濃縮物を調製することも可能であり、これは水による希釈に適している。

20

【0055】

そのまま使える製剤における活性化化合物濃度は比較的広い範囲内で変化し得る。一般的に、上記濃度は0.0001~10%、好ましくは0.01~1%である。

【0056】

活性化化合物は、超微量散布法(Ultra-Low-Volume-Verfahren)(ULV)にも成功裏に使用することができる。この方法により、95重量%以上の活性化化合物を有する製剤を施用すること、または添加剤を含まない活性化化合物を施用することさえも可能である。

30

【0057】

適切な場合には、種々のタイプの油、湿潤剤、補助剤、除草剤、殺菌剤、他の殺虫剤および殺バクテリア剤を、使用の直前に活性化化合物に加えることもできる(タンクミックス)。これらの薬剤は、本発明の組成物に、1:100~100:1、好ましくは1:10~10:1の重量比で加えることができる。

【実施例】

【0058】

使用例

化合物および混合物の殺菌作用は以下の試験により実証することができる：

40

【0059】

活性化化合物の調製

活性化化合物を、一緒にまたは別々に、アセトンおよび/またはDMSOと乳化剤Wettol EM31(エトキシ化アルキルフェノールをベースとする乳化および分散作用を有する湿潤剤)の溶媒/乳化剤の体積比が99:1である混合物を用いて、25 mgの活性化化合物を含む10 mlの原液として調製した。次に、混合物に水を加えて100 mlとした。この原液を、記載された溶媒/乳化剤/水混合物により希釈して、下記の活性化化合物濃度とした。

【0060】

使用例1 - ボトリティス・シネレアにより発生するピーマン(Paprikablaettern)の葉の灰色かび病に対する活性、1日の保護的施用

50

ピーマンの苗に、2~3枚の葉が十分成長した後、以下に示された活性化合物濃度を有する水性懸濁液を流出点までスプレーした。その翌日、処理した植物にボトリティス・シネレアの2%濃度バイオモルト(Biomalzlösung)溶液中の孢子懸濁液を接種した。次いで試験植物を22~24℃、暗く高大気湿度の人工気候室(Klimakammer)に置いた。5日後、葉における菌の感染の程度を視覚的に%で測定することができた。

【表1】

表1

活性化合物/ 活性化合物の 組み合わせ	濃度 (ppm)	比率	観察された 効果 (%)	コルビーの 式を用いて 求めた効果 (%)	相乗効果	相乗効果 の程度 (%)
メトコナゾール	0.016		0			
プロクロラズ	0.25		0			
メトコナゾール プロクロラズ	0.016 0.25	1 : 16	50	0	あり	50

10

【0061】

使用例2 - コムギにおけるプクキニア・レコンディタ(*Puccinia recondita*) (コムギ赤さび病菌) に対する保護活性

鉢植えのコムギの苗の葉に、以下に示された活性化合物濃度を有する水性懸濁液を流出点までスプレーした。その翌日、処理した植物にコムギ赤さび病菌(*Puccinia recondita*)の孢子懸濁液を接種した。植物を高大気湿度(90~95%)、20~22℃の部屋に24時間置いた。この間に孢子が発芽し、発芽管が葉組織中に侵入する。翌日、試験植物を温室に戻し、20~22℃の温度および65~70%の相対湿度でさらに7日間栽培した。その後、葉におけるさび病菌の発達の程度を視覚的に測定した。

20

【表2】

表2

活性化合物/ 活性化合物の 組み合わせ	濃度 (ppm)	比率	観察された 効果 (%)	コルビーの 式を用いて 求めた効果 (%)	相乗効果	相乗効果 の程度 (%)
メトコナゾール	0.25		13			
プロクロラズ	4		0			
メトコナゾール プロクロラズ	0.25 4	1 : 16	38	13	あり	25

30

【0062】

視覚的に測定した感染した葉の面積のパーセンテージを、未処理の対照に対する%で表した効果に変換した。

【0063】

効果(E)は、アボット(Abbot)の式を用いて次のように計算する：

$$E = (1 - \frac{A}{B}) \cdot 100$$

Aは、%で表した処理された植物の菌類感染であり、

Bは、%で表した未処理(対照)の植物の菌類感染である。

40

【0064】

効果0は、処理された植物の感染のレベルが未処理の対照植物と一致することを意味しており、効果100は処理した植物が感染しなかったことを意味する。

【0065】

活性化合物の組み合わせの予想される効果をコルビー(Colby)の式(Colby, R.S. 「除草剤の組合せの相乗的および拮抗的反應の計算」(Calculating synergistic and antagonis

50

tic responses of herbicide Combinations), Weeds 15, 20-22 (1967))を用いて決定し、観察された効果と比較した。

【 0 0 6 6 】

コルビーの式：

$$E = x + y - x \cdot y / 100$$

E 濃度aおよびbの活性化合物AおよびBの混合物を用いた場合の、未処理の対照に対する%で表した予想される効果；

x 濃度aの活性化合物Aを用いた場合の、未処理の対照に対する%で表した効果；

y 濃度bの活性化合物Bを用いた場合の、未処理の対照に対する%で表した効果。

【 0 0 6 7 】

表1および2に示した試験の結果は、本発明の混合物の活性は、相乗効果により、コルビーの式を用いて予想されるものよりもかなり高かったことを示している。

フロントページの続き

- (74)代理人 100122389
弁理士 新井 栄一
- (74)代理人 100125508
弁理士 藤井 愛
- (72)発明者 ヴォエステ, デイルク
ドイツ連邦共和国 6 7 1 1 7 リンブルガーホフ, ベルリナー プラッツ 1 1
- (72)発明者 ライネッケ, カロラ
ドイツ連邦共和国 6 7 1 1 7 リンブルガーホフ, ハーデンプルクシュトラーゼ 9
- (72)発明者 ヴェルナー, フランク
ドイツ連邦共和国 6 7 4 3 4 ノイシュタット, エアシークヴェーク 9
- (72)発明者 ハーデン, エゴン
ドイツ連邦共和国 6 7 0 6 1 ルートヴィヒスハーフェン, バイエルンシュトラーゼ 5 5

審査官 吉住 和之

- (56)参考文献 国際公開第2005/122772(WO, A2)
特開2000-1407(JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- A01N 43/653
 - A01N 25/02
 - A01N 25/08
 - A01N 47/38
 - A01P 3/00
 - CAPlus/REGISTRY(STN)