

Ausschliessungspatent

Erteilt gemaeß § 5 Absatz 1 des Aenderungsgesetzes  
zum Patentgesetz

ISSN 0433-6461

(11)

0152 902

Int.Cl.<sup>3</sup>

3(51) A 01 N 43/78

## AMT FUER ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veroeffentlicht

(21) AP A 01 N/ 223 460  
(31) 68993(22) 22.08.80  
(32) 23.08.79(44) 16.12.81  
(33) US

(71) siehe (73)  
 (72) D'AMICO, JOHN;MARVEL, JOHN;US;  
 (73) MONSANTO COMPANY, ST. LOUIS, US  
 (74) PATENTANWALTSBUERO BERLIN, 1130 BERLIN, FRANKFURTER ALLEE 286

## (54) PFLANZENWACHSTUMSREGULATOR

(57) Die Erfindung betrifft eine Zusammensetzung zur Regulierung des Wachstums von Huelsenfruechten, die als Wirkstoff 5 bis 95 Gew.-Teile einer Verbindung der Formel I enthaelt. In der Formel I bedeuten T Halogen oder Trifluormethyl, n 0, 1 oder 2 und Y Sauerstoff oder Schwefel. Die restlichen Gewichtsteile sind geeigrete Hilfsstoffe, Streckmittel oder Traegerstoffe. Bei den Verbindungen der Formel I, die saemtlich 2-Oxo-3-benzo-thiazolaethanimidamide darstellen, ist T bevorzugt Halogen und Y bevorzugt Schwefel.  
 - Formel I -

GZ 14030 55

**Pflanzenwachstumsregulator**

**Anwendungsgebiet der Erfindung:**

Die Erfindung betrifft einen Pflanzenwachstumsregulator, der als Wirkstoff bestimmte Benzothiazoläthanimidamide enthält.

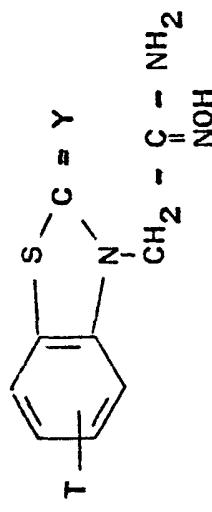
**Charakteristik der bekannten technischen Lösungen:**

Zu nützlichen Lösungsmitteln sind niedere Alkohole, z. B. diejenigen mit bis zu vier Kohlenstoffatomen, Tetrahydrofuran, Dimethylformamid, Dimethylsulfoxid und dergleichen zu zählen.

Nützliche Basen umfassen Ammoniumhydroxid, Alkalimetallcarbonate und Alkalimetallhydroxide, z. B. Natrium- und Kaliumhydroxid und tertiäre Amine.

Das Verfahren zur Herstellung des Acetonitrilvorläufers ist bekannt und wurde in den US-PS 4.049.419 und 3.993.468 dargelegt. Außerdem wird in der gleichfalls anhängigen Anmeldung, Anmeldeaktezeichen Nr. 055.104, eingereicht am 5. Juli 1979, mit dem Titel "Derivatives of 2-Thioxo-3-benzothiazoline Acetonitrile and their Use as Leguminous Plant Growth Regulants" (Derivate von 2-Thioxo-3-benzothiazolin-acetonitril und ihre Anwendung als Pflanzenwachstumsregulatoren für Leguminosen) die Herstellung des Acetonitrilvorläufers, worin Y Schwefel ist, erläutert. Zur Erläuterung des obigen Prozesses zur Herstellung der erfindungsgemäßen Verbindungen wurde folgende Verfahrensweise angewandt:

Eine gerührte Aufschlammung, die 0,1 Mol des entsprechend substituierten Acetonitrils in 700 bis 900 ml Äthylalkohol enthielt, wurde auf 60 °C erhitzt und anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt. Zu diesem gerührten Gemisch wurde eine Lösung von 7 g (0,1 Mol) Hydroxylaminhydrochlorid in 25 ml Wasser als eine Portion gegeben, und das Rühren wurde sechs Stunden lang bei 25 bis 30 °C fortgesetzt. Eine Lösung von 6,4 g (0,06 Mol) Kaliumcarbonat in 25 ml Wasser wurde zugesetzt und das Rühren 18 Stunden lang bei 25 bis 30 °C fortgesetzt. Nach der Zugabe von 500 bis 1000 ml Wasser wurde bei 25 bis 30 °C noch weitere 30 Minuten lang gerührt. Der Feststoff wurde mit Hilfe der Filtration gesammelt, mit Wasser bis zur Neutralität gewaschen und bei 25 bis 30 °C luftgetrocknet. Die Daten sind in Tabelle I zusammengefaßt.

Tabelle I

Bei- spiel Nr.	T	Y	F.P. $^{\circ}\text{C}$	Aus- beu- te		% C		% H		% N		% S	
				ber.	gef.	ber.	gef.	ber.	gef.	ber.	gef.	ber.	gef.
1	H	O	202-3 <sup>a</sup>	90	48,42	48,36	4,86	4,06	18,82	18,82	14,36	14,34	
2	5-Cl	O	222-3	87	41,95	41,98	3,13	3,16	16,31	16,30	12,44	12,46	
3	6-Br	O	216-7 <sup>b</sup>	80	35,78	35,75	2,67	2,68	13,91	13,91	10,61	10,65	
4	H	S	191-2 <sup>c</sup>	86	45,17	45,19	3,79	3,83	17,56	17,52	26,80	26,77	

(a) Rekristallisation aus Isopropylalkohol/DMF (1:1)

(b) Rekristallisation aus DMF

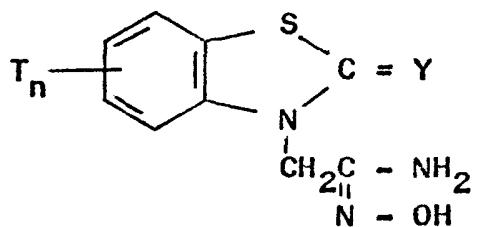
(c) Rekristallisation aus Äthylacetat.

Ziel der Erfindung:

Mit der Erfindung werden neue, verbesserte Pflanzenwachstumsregulatoren, insbesondere für Leguminosen zur Verfügung gestellt.

Darlegung des Wesens der Erfindung:

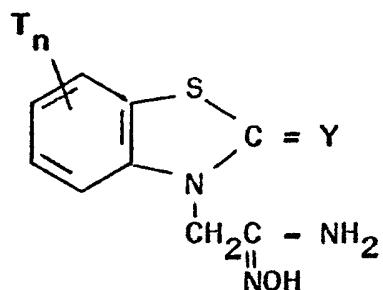
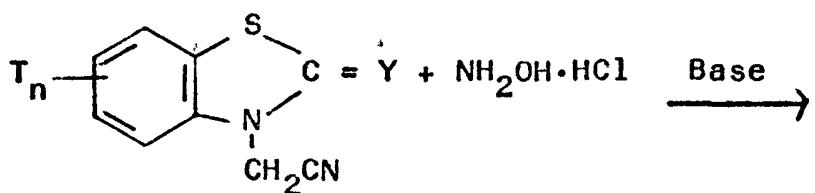
Der erfindungsgemäße Pflanzenwachstumsregulator enthält als Wirkstoff eine Verbindung der Formel:



worin T Halogen oder Trifluormethyl ist, n 0, 1 oder 2 ist und Y Sauerstoff oder Schwefel ist. Bevorzugt werden diejenigen Verbindungen, in denen Y Sauerstoff, n 0 oder 1 und T Halogen ist.

Unter der Bezeichnung "Halogen" sind Chlor, Fluor, Brom und Jod zu verstehen.

Die Verbindungen der oben stehenden Formel können durch die Umsetzung des entsprechend substituierten Acetonitrils mit Hydroxylaminhydrochlorid in einem geeigneten Lösungsmittel nach folgender Gleichung hergestellt werden:



In Übereinstimmung mit den neuartigen erfindungsgemäßen Aspekten sind die Verbindungen der vorstehenden Formel wirksame Pflanzenwachstumsregulatoren, vor allem für die Regulierung von Leguminosepflanzen.

Die in dieser Anmeldung gebrauchte Bezeichnung "Pflanzenregulator" oder "Pflanzenwachstumsregulator" kennzeichnet ein Material, das zur Modifizierung der normalen schrittweisen Entwicklung einer behandelten Pflanze bis zur landwirtschaftlichen Reife dient. Eine derartige Modifizierung kann sich aus der Wirkung des Materials auf die physiologischen Prozesse der Pflanze oder aus der Wirkung dieses Materials auf die Morphologie der Pflanze ergeben. Außerdem ist zu beachten, daß sich diese Modifizierungen auch aus einer Kombination oder einer Aufeinanderfolge von physiologischen und morphologischen Faktoren ergeben können.

Die Modifizierungswirkungen eines Pflanzenregulators sind

wahrscheinlich am ehesten in Form von Veränderungen in Größe, Gestalt, Farbe oder Struktur der behandelten Pflanze oder eines ihrer Teile zu beobachten. Ähnlich sind Veränderungen in der Menge der Pflanzenfrüchte oder Blüten durch eine visuelle Inspektion ganz leicht zu erkennen. Die oben genannten Veränderungen können sich als Beschleunigung oder Verzögerung des Pflanzenwachstums wie einer Erhöhung oder Verminderung der Trockenmasseansammlung, Wuchsverkleinerung, Blatt- oder Blattwerkveränderung, verstärkte Verzweigung, Endtriebinhibition, verstärktes Blühen oder verstärkter Fruchtansatz zeigen.

Modifikationen der normalen schrittweisen Entwicklung einer behandelten Pflanze bis zur landwirtschaftlichen Reife können auch durch verminderte Transpiration oder verstärkte Kohlenhydratablagerung oder erhöhten Proteingehalt nachgewiesen werden.

Es ist klar, daß jede Reaktion in Verbindung mit anderen Reaktionen auftreten kann, aber auch einzeln erfolgen kann. Beispielsweise zeigen die unten angeführten Daten in Abhängigkeit von verschiedenen Faktoren, die dem Fachmann zur Erzielung von Aktivität bekannt sind, daß die erfindungsgemäßigen Verbindungen manchmal die Blattmorphologie verändern, obwohl der Wuchs der Pflanzen nicht reduziert ist.

Die erfindungsgemäße Regulierung von Pflanzen umfaßt nicht die vollständige Inhibition oder die Vernichtung derartiger Pflanzen. Wenn auch phytotoxische Mengen der hier offenbarsten Stoffe zur Erzielung einer herbiziden (abtötenden) Wirkung angewandt werden können, so ist doch hier beabsichtigt, nur das Pflanzenwachstum regulierende Mengen solcher Stoffe

zur Modifizierung der normalen schrittweisen Entwicklung der behandelten Pflanze bis zur landwirtschaftlichen Reife einzusetzen. Die Anwendung einer Pflanzenregulierungsmenge kann auf die Pflanzen nacheinander in verschiedenen Entwicklungsstadien der Pflanze zur Erzielung verschiedener erwünschter Reaktionen erfolgen. Wie zu erwarten ist und wie dem Fachmann bekannt ist, werden derartige Pflanzenregulierungsmengen nicht nur je nach dem gewählten Material variieren, sondern auch in Abhängigkeit von dem beabsichtigten Modifizierungseffekt, der Pflanzenspezies und ihres Entwicklungsstadiums, dem Pflanzenkultursubstrat und davon, ob eine Dauer- oder zeitweise Wirkung vorgesehen ist. Zur Erläuterung der Vielseitigkeit der beobachteten regulierenden Reaktionen wurden die erfindungsgemäßen Verbindungen in Übereinstimmung mit folgender Verfahrensweise getestet.

Eine Anzahl von Sojabohnenpflanzen wird aus Samen in Plastetöpfen im Gewächshaus über einen Zeitraum von einer Woche gezogen, worauf die Pflanzen auf eine Pflanze pro Topf verringert werden. Nach der vollständigen Entwicklung des zweiten dreiblättrigen Blattes werden die Pflanzen mit einer Lösung des Wirkstoffes in Aceton und Wasser behandelt. Als oberflächenaktives Mittel wird wäßriges Tween 20 verwendet.

Wenn das fünfte dreiblättrige Blatt der Kontrollpflanzen voll entwickelt ist, werden die behandelten Pflanzen mit den un behandelten Kontrollpflanzen verglichen und die Beobachtungen notiert.

Folgende Beobachtungen konnten bei der Behandlung von Sojabohnen in den angegebenen Mengen mit den Verbindungen der oben stehenden Formel gemacht werden.

Verbindung von Bei- spiel Nr.	Menge (kg/ha)	Beobachtungen
1	0,112	Blattveränderung bei neuem Wuchs, Inhibition der Trockenmasse
	0,56	Blattveränderung bei neuem Wuchs, Blattinhibition
	2,8	Blattveränderung bei altem und neuem Wuchs, Blattinhibition, verändertes Blattwerk, Chlorose, Inhibition der Trockenmasse
2	0,112	Inhibition der Trockenmasse
	0,56	Blattveränderung bei neuem Wuchs, Inhibition der Trockenmasse
	2,8	Blattveränderung bei neuem Wuchs, Inhibition der Trockenmasse
4	0,112	Keine
	0,56	Blattveränderung bei neuem Wuchs, Blattinhibition
	2,8	Wuchsverkleinerung, Blattveränderung von altem und neuem Wuchs, Blatt- inhibition.

Aus den obigen Daten geht hervor, daß die erfundungsgemäßigen Verbindungen besonders wirksam für die Veränderung der Blattmorphologie von Sojabohnenpflanzen sind.

Die Veränderung der Blattmorphologie von Leguminosepflanzen ist wichtig, da Leguminosepflanzen Blattwerk besitzen, das es wirksam verhindert, daß das Sonnenlicht an die tieferen Blätter gelangt. Beispielsweise erhalten nur 50 % der Blätter einer Sojabohnenpflanze Licht für die Photosynthese. Etwa 85 % des Lichtes werden durch die äußere Schicht der Blät-

ter absorbiert. Viele Wissenschaftler sind der Meinung, daß durch Veränderung der Morphologie der Blätter, durch die das Blattwerk verändert wird, Licht tiefer in das Blattwerk ein- dringen kann und dadurch die Erträge erhöht werden können. Weber stellt in "Field Crop Abstracts" Bd. 21, Nr. 4 auf den Seiten 313 bis 317 fest, daß "größere Lichteindringung, die dazu führt, daß ein größerer Teil des (Sojabohnen)-Pflanzenblattwerks einer Lichtintensität von über 150 f.c. ausgesetzt wird, im allgemeinen zu höheren Saaterträgen führt". Johnson, u. a. behauptet in "Crop Science", Bd. 9, Seiten 577 - 581, daß "durch erhöhte Lichteinwirkung die Erträge an den unteren, mittleren und oberen Blattwerkpositionen von (Sojabohnen)Pflanzen um 30, 20 bzw. 2 % erhöht würden. Somit wäre es sehr vorteilhaft, wenn eine Methode gefunden werden könnte, durch die die Blätter derartiger Pflanzen so verändert werden könnten, daß eine größere Anzahl von Blättern Licht erhalten würde.

Bei der praktischen Anwendung der erfindungsgemäßen Pflanzenwachstumsregulierungsmethoden kann der Wirkstoff alleine oder in Verbindung mit einem im Fachgebiet als Zusatzmittel bezeichneten Material in flüssiger oder fester Form verwendet werden. Die erfindungsgemäßen Pflanzenwachstumsregulierungszusammensetzungen werden durch Vermischen des Wirkstoffes mit einem Zusatzmittel wie Verdünnungsmitteln, Streckmitteln, Trägermitteln und Konditioniermitteln hergestellt, um Zusammensetzungen in Form von feinverteilten Feststoffen, Granulaten, Pellets, oberflächenaktiven Pulvern, Stäubemitteln, Lösungen und wässrigen Emulsionen oder Dispersionen zu erhalten. So kann der Wirkstoff mit einem Zusatzmittel wie einem feinverteilten Feststoff, einer Lösungsmittelflüssigkeit organischen Ursprungs, Wasser, einem Benetzungsmittel, Dispergiermittel oder Emulgiermittel oder irgendeiner geeigneten Kombination dieser Mittel verwendet werden.

Für die Aufbringung des Wirkstoffes auf Leguminosepflanzen sind nützliche feinverteilte feste Trägermittel und Streckmittel beispielsweise Talkarten, Tone, Bimsstein, Siliziumdioxid, Diatomeenerde, Quarz, Fullererde, Schwefel, pulverisierter Kork, pulverisiertes Holz, Wallnußmehl, Kreide, Tabakstaub, Holzkohle u. dgl. anwendbar. Zu typischen flüssigen Verdünnungsmitteln, die sich für die Aufbringung des Wirkstoffes auf Leguminosepflanzen eignen, gehören zum Beispiel Stoddard-Lösungsmittel, Aceton, Alkohole, Glycole, Äthylacetat, Benzol und ähnliche. Solche Zusammensetzungen zur Regulierung des Wachstums von Leguminosepflanzen, vor allem Flüssigkeiten und oberflächenaktive Pulver, enthalten gewöhnlich als Konditioniermittel ein oder mehrere oberflächenaktive Mittel in solchen Mengen, daß dadurch eine bestimmte Zusammensetzung leicht in Wasser oder Öl dispergiert werden kann. Unter dem Begriff oberflächenaktives Mittel sind auch Netzmittel, Dispergiermittel, Suspendiermittel und Emulgiermittel zu verstehen. Solche oberflächenaktiven Mittel sind allgemein bekannt, es wird auf die US-PS 2.547.724, Spalten 3 und 4 hinsichtlich ausführlicher Beispiele verwiesen.

Erfindungsgemäße Zusammensetzungen enthalten im allgemeinen etwa 5 bis 95 Teile Wirkstoff, etwa 1 bis 50 Teile oberflächenaktives Mittel und etwa 4 bis 94 Teile Lösungsmittel, wobei alle Teile Masseteile in bezug auf die Gesamtmasse der Zusammensetzung darstellen.

Eine beabsichtigte Modifizierung von Leguminosepflanzen kann durch Aufbringen der oben beschriebenen Pflanzenregulatoren auf den Standort der Pflanze erzielt werden. Unter dem Begriff "Pflanzenstandort" sind das Pflanzenkultursubstrat wie der Boden sowie die Samen, auflaufende Sämlinge, Wurzeln,

Stengel, Blätter, Blüten, Früchte oder andere Pflanzenteile zu verstehen.

Die Aufbringung flüssiger oder feinverteilter fester Zusammensetzungen des Wirkstoffes kann mit Hilfe herkömmlicher Techniken erfolgen, z. B. mit Sprühvorrichtungen, Motorverstäubern, Feldspritzrohren und Handspritzrohren sowie Nebelspritzgeräten. Die Zusammensetzungen können auch von Flugzeugen aus als Staub oder Spray verteilt werden. Auf Wunsch kann die Anwendung der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen für Leguminosepflanzen durch Einarbeiten der Zusammensetzung in den Boden oder ein anderes Substrat in dem Bereich, in dem die Modifikation der Pflanzen beabsichtigt ist, erfolgen.

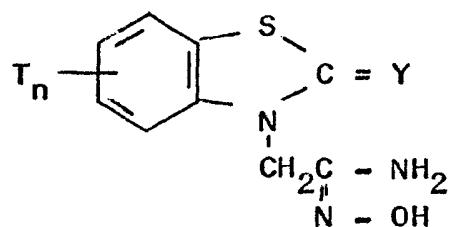
Bei der Auswahl der betreffenden nicht-toxischen Anwendungsmenge des Wirkstoffes für Leguminosepflanzen wird man feststellen, daß die genauen Mengen ebenfalls von der Art der Aufbringung wie Einarbeiten in den Boden, Bandaufbringung, Vorbehandlung der Samen, beabsichtigtes Ergebnis und verschiedenen anderen, dem Fachmann bekannten Faktoren abhängig sind. Bei der Aufbringung auf den Bodenstandort gekeimter Samen, auflaufender Sämlinge und vorhandener Vegetation werden die Wirkstoffe für die Regulierung des Pflanzenwachstums in zwischen etwa 0,056 und 22,4 Kilo/Hektar liegenden Mengen aufgebracht. Aufbringung auf das Laubwerk ist besonders vorteilhaft und wird vor allem in Mengen von 0,112 bis etwa 3,36 Kilo/Hektar bevorzugt.

Wenn auch die Erfindung unter Hinweis auf spezifische Modifikationen beschrieben wurde, so sind doch ihre Einzelheiten nicht als Einschränkungen aufzufassen, denn es ist klar, daß

verschiedene Äquivalente, Veränderungen und Modifikationen möglich sind, ohne vom Inhalt und Geltungsbereich abzuweichen, und daher werden solche äquivalente Ausführungsformen hier mit einbezogen.

Erfindungsanspruch:

1. Pflanzenwachstumsregulator, gekennzeichnet dadurch, daß er zwischen etwa 5 und etwa 95 Masseteile einer Verbindung der folgenden Formel:



enthält, worin T Halogen oder Trifluormethyl ist, n 0, 1 oder 2 ist und Y Sauerstoff oder Schwefel ist; wobei die restlichen Teile aus einem oder mehreren geeigneten Zusatzmitteln, Verdünnungsmitteln oder Trägermitteln gebildet werden.

2. Pflanzenwachstumsregulator nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, daß es sich bei Y um Sauerstoff handelt.

3. Pflanzenwachstumsregulator nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, daß n 0 ist.

4. Pflanzenwachstumsregulator nach Punkt 2, gekennzeichnet dadurch, daß n 0 ist.

5. Pflanzenwachstumsregulator nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, daß es sich bei Y um Schwefel handelt.

6. Pflanzenwachstumsregulator nach Punkt 5, gekennzeichnet dadurch, daß  $n = 0$  ist.

7. Pflanzenwachstumsregulator nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, daß es sich bei  $T$  um Halogen handelt und  $n = 1$  ist.