

[19]中华人民共和国国家知识产权局

[51]Int. Cl⁷

A01N 43/56



[12] 发 明 专 利 说 明 书

[21] ZL 专利号 96194995.3

[45]授权公告日 2003 年 1 月 8 日

[11]授权公告号 CN 1098034C

[22]申请日 1996.4.22 [21]申请号 96194995.3

[30]优先权

[32]1995.4.28 [33]US [31]08/430,499

[32]1996.1.29 [33]US [31]08/593,418

[86]国际申请 PCT/EP96/01673 1996.4.22

[87]国际公布 WO96/33614 英 1996.10.31

[85]进入国家阶段日期 1997.12.24

[73]专利权人 罗纳-普朗克农业公司

地址 法国里昂

[72]发明人 里德·N·罗亚尔蒂 尼古恩·D·朗

迈克尔·T·派拉托

尼古拉斯·M·哈蒙 尼哥蒂·亚马德

德乔科·P·萨斯托萨托莫

[56]参考文献

EP167028A 1986.1.8 A01N43/56

EP235558A 1987.9.9 A01N29/10

EP295117A 1988.12.14 C07D231/44

EP347382A 1992.12.20 A01N43/56

EP500209A 1992.8.26 C07D401/04

JP62138475A 1987.6.22 A01N43/56

JP63174905A 1988.7.19 A01N43/56

审查员 毕雯倩

[74]专利代理机构 上海专利商标事务所

代理人 章鸣玉

权利要求书 4 页 说明书 9 页

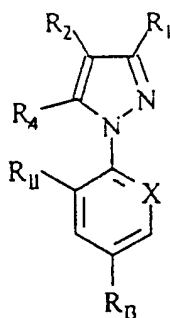
[54]发明名称 N-芳基吡唑或 N-杂芳基吡唑化合物调节植物生长的应用

[57]摘要

本发明涉及一种新的植物生长调节方法,通过该方法将 1-苯基吡唑施用于作物或种子。

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

1. 一种调节植物生长的方法，这种方法包括向所述植物或长出该植物的种子以及其生长的地点施用式(I)化合物，



(I)

5

其中

R₁ 是 CN；和/或

R₂ 是 S(O)_nR₃；和/或

10 R₃ 是是烷或卤代烷基；和/或

R₄ 是-NR₅R₆；和/或

R₅ 和 R₆ 独立地选自氢原子、烷基、卤代烷基；和/或

R₇ 选自烷基或卤代烷基；和/或

R₈ 选自烷基、卤代烷基或氢原子；和/或

15 R₉ 选自氢原子或烷基；和/或

R₁₀ 选自苯基或杂芳基，它们任选由一或多个羟基、卤原子、-O-烷基、-S-烷基、氰基，或烷基或其组合取代；和/或

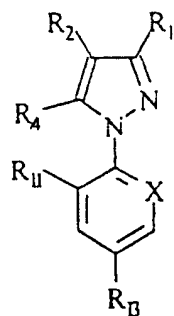
X 选自 C-R₁₂ 基团；和/或

R₁₁ 和 R₁₂ 独立地选自卤原子或氢原子；和/或

20 R₁₃ 选自卤原子、卤代烷基、卤代烷氧基、-SF₅；且

m、n、q、r 独立地选自 0、1 和 2。

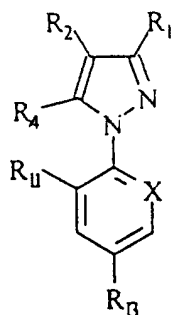
2. 一种在某一地点调节植物生长的方法，在该地点没有昆虫，或者预计其不在该地点，或者预计其在该地不通过、往返、栖息、侵袭或飞行，该方法包括对该地点或长出植物的种子施用式(I)化合物，



(I)

其中，所有取代基如权利要求 1 中所定义。

3. 一种调节植物生长的方法，它包括在播种所述种子前对长出所述植物的种子施用式(I)化合物，

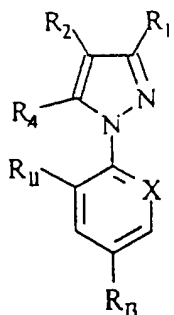


(I)

5

其中，所有取代基如权利要求 1 中所定义。

4. 一种调节植物生长的方法，该植物选自水稻、玉米、谷物、蔬菜和大豆植株以及草皮，该方法包含对该植物、长出该植物的种子以及该植物生长的地点施用式(I)化合物，



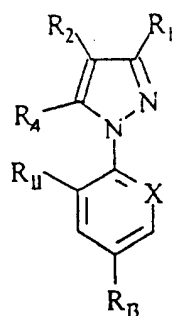
(I)

10

其中，所有取代基如权利要求 1 中所定义。

5. 一种调节大豆植物生长的方法，包括在播种所述种子前对长出大豆植物的种子施用式(I)化合物，

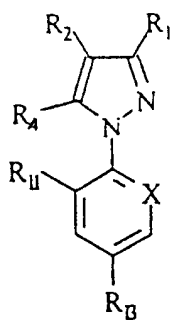
15



(I)

其中，所有取代基如权利要求 1 中所定义。

6. 一种处理需要生长调节的植物的方法，该方法包含对所述植物以及生长出该植物的种子或该植物生长的地点施用式(I)化合物，



(I)

5

其中，所有取代基如权利要求 1 中所定义。

7. 根据前述权利要求中任一项所述的方法，其中：

R_1 是 CN；

R_4 是 $-NR_5R_6$ ；

10 R_5 和 R_6 独立地选自氢原子、烷基、卤代烷基、 $-C(O)$ 烷基、 $-C(O)OR_7$ ；

X 是 $C-R_{12}$ ；

R_{13} 选自卤素原子、卤代烷基、卤代烷氧基或 $-SF_5$ ；

8. 根据前述权利要求中任一项所述的方法，其中式(I)化合物是 5-氨基-3-氰基-1-(2,6-二氯-4-三氟甲基苯基)-4-三氟甲基亚磺酰基吡唑。

15 9. 根据前述权利要求中任一项所述的方法，其中所施用式 (I)化合物的量足以提供至少一种选自下列调节效果的植物生长调节效果：

a. 植物根系更发达

b. 分蘖增加

c. 株高增加

20 d. 叶片增大

e. 基部叶片死亡减少

f. 分蘖更强

- g. 叶色更绿
- h. 需肥量减少
- i. 种子用量减少
- j. 有效分蘖增多
- 5 k. 第三级无效分蘖减少
- l. 开花早
- m. 籽实成熟早
- n. 植株倒伏较少
- o. 穗更长
- 10 p. 枝条生长增加
- q. 植株生活力增强
- r. 萌发早
- s. 果实更多或果实产量（重量）更大
- 11. 根据前述权利要求中任一项所述的方法，其中式(I)化合物以粒剂的形式
- 15 施用到所述植株或其生长的地点，施用量为 0.01kg/ha 到 0.2kg/ha。
- 12. 根据前述权利要求中任一项所述的方法，其中式(I)化合物以每公担种子 26.7 至 50g 的剂量率施用到所述种子上。

N-芳基吡唑或 N-杂芳基吡唑
化合物调节植物生长的应用

5

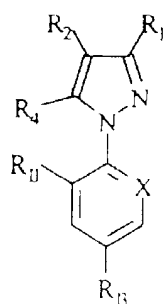
本发明涉及一种处理植物来诱导植物生长调节反应的新方法。

术语“调节植物生长的方法”或术语“生长调节过程”或“生长调节”一词的使用或本说明书中所用的其它使用“调节”的术语，都与试图改善植物的一些特征的多种植物反应有关，与农药的作用不同，农药作用的目的是破坏或阻碍植物或生物的生长，由于这个原因，以对被处理植物无植物毒性的量来使用用于本发明实践中的化合物。

植物生长调节剂是一种合乎要求的促进植物和作物生长以便获得更好的植物和农业实践条件的方式。

本发明提供了一种调节植物生长的方法，该方法包括向所述的植物、长出所述植物的种子或它们生长的地点施用无植物毒性的、植物生长调节有效量的下式化合物，

20



(I)

其中

25

R₁ 是 CN 或甲基；

R₂ 是 S(O)_nR₃；

R₃ 是烷基或卤代烷基；

R₄ 选自氢原子，卤原子，以及可以是 -NR₅R₆、-C(O)OR₇、-S(O)_mR₇、烷基、卤代烷基、-OR₈ 或者 N-C(R₉)(R₁₀) 的基团；

30

R₄ 优选是氨基，该氨基是未取代或可以有一个或二个选自烷基、卤代烷基、酰基和烷氧羰基的取代基；

R_5 和 R_6 独立地选自氢原子、烷基、卤代烷基、 $-C(O)$ 烷基、 $-S(O)_rCF_3$ ；
或者 R_5 和 R_6 一起形成一个可由一至多个杂原子插入的二价基团；

R_7 选自烷基或卤代烷基；

R_8 选自烷基、卤代烷基或氢原子；

5 R_9 选自氢原子或烷基；

R_{10} 选自苯基或杂芳基，任选由一或多个羟基、卤原子、 $-O$ -烷基、 $-S$ -烷基、氰基，或烷基或其组合取代；

X 选自氮原子和 $C-R_{12}$ 基团；

R_{11} 和 R_{12} 独立地选自卤原子或氢原子；

10 R_{13} 选自一个卤原子、卤代烷基、卤代烷氧基、 $-S(O)_qCF_3$ 、 $-SF_5$ ，优选选自卤原子、卤代烷基、卤代烷氧基、 $-SF_5$ ；

m 、 n 、 q 、 r 是独立地选自 0、1、和 2，

其前提条件是，当 R_1 是甲基时， R_3 是卤代烷基， R_4 是 NH_2 ， R_{11} 是 Cl ， R_{13} 是 CF_3 和 X 是 N 。

15 式(I)的烷基或烷氧基优选为具有 1-4 个碳原子的低级烷基和烷氧基。同样，卤代烷基和卤代烷氧基基团也优选具有 1-4 个碳原子。卤代烷基和卤代烷氧基可有 1 或多个卤原子，这种类型的优选基团包括 $-CF_3$ 和 $-OCF_3$ 。

用于本发明中的优选的一组调节植物生长的 1-苯基吡唑是式(I)的那些化合物，其中：

20 R_1 是 CN ；和/或

R_4 是 $-NR_5R_6$ ；和/或

R_5 和 R_6 独立地选自氢、烷基或卤代烷基、 $-C(O)$ 烷基、 $-C(O)OR_7$ ；和/或

X 是 $C-R_{12}$ ；和/或

25 R_{13} 选自卤素、卤代烷基、卤代烷氧基或 $-SF_5$ 。

用于本发明中的特别优选的一组调节植物生长的 1-苯基吡唑是式(I)的那些化合物，其中：

R_1 是 CN ；

R_4 是 $-NR_5R_6$ ；

30 R_5 和 R_6 独立地选自氢原子、烷基或卤代烷基、 $-C(O)$ 烷基、 $-C(O)OR_7$ ；

X 是 $C-R_{12}$ ；

R_{13} 选自卤原子、卤代烷基、卤代烷氧基, 或-SF₅。

属于本发明范围内的在调节植物生长方法中可用的具体吡唑类衍生物包括 5-氨基-3-氰基-1-(2, 6-二氯-4-三氟甲基苯基)-4-三氟甲基亚磺酰基吡唑。这些特别优选的用于本发明的植物生长调节剂以下被称作化合物 A。

- 5 依据本发明的另一特征, 提供了一种在一地点调节植物生长的方法, 该地点没有昆虫、或者说预计昆虫不存在或预计昆虫不通过、往返、栖息、侵袭或飞行。该方法包含对该植物或长出植物的种子施用无植物毒性的、植物生长调节有效量的式(I)化合物。

- 10 本发明的另一方面是调节植物生长的方法, 该植物选自水稻、玉米、谷物、蔬菜类和大豆类植株以及草皮等。该方法包括对所述的植物、长出该植物的种子以及该植物生长的地点施用无植物毒性的、植物生长调节有效量的式(I)化合物。

- 15 本发明的另一方面是一种调节大豆植株生长的方法, 该方法包括在播种前对长出大豆植株的种子施用无植物毒性的、植物生长调节有效量的式(I)化合物。

本发明的另一方面是一种在需要生长调节时处理植物的方法, 该方法包括对植物、长出该植物的种子或植物生长的地点施用无植物毒性的、植物生长调节有效量的式(I)化合物。当植株或长出该植株的种子弱小、衰弱或受胁迫或在不适合植物生长的条件下生长时, 对生长调节的需要是相当大的。

- 20 式(I)化合物的制备可按照国际专利公开 WO87/03781、WO93/06089 和 WO94/21606, 以及欧洲专利公开号 0295117、0403300、0385809 和 0679650, 德国专利公开 19511269 和美国专利 5,232,940 和 5,236,938 中所公开的任一种方法进行。

- 25 用在本发明方法中的式(I)的 1-苯基吡唑, 归于先前描述为杀虫剂的一组更宽的化合物。现出人意外地发现, 式(I)化合物特别是大多数化合物 A, 依据使用浓度、使用剂型及被处理植物的种类, 而表现出多种调节植物生长的特征。

由于实践本发明, 包括下列生长反应的多种植物生长调节反应可被诱导出来:

- 30 a. 植物根系更发达
b. 分蘖增加

- c. 株高增加
- d. 叶片增大
- e. 基部叶片死亡减少
- f. 分蘖更强
- 5 g. 叶色更绿
- h. 需肥量减少
- i. 种子用量减少
- j. 有效分蘖增加
- k. 第三级无效分蘖减少(less third non productive tillers)
- 10 l. 开花早
- m. 籽实成熟早
- n. 植株倒伏较少
- o. 穗增长
- p. 枝条生长增加
- 15 q. 植株生活力增强
- r. 萌发早
- s. 果实更多及果实的产量(重量)更大

在本说明书中所用“植物生长调节方法”或“植物的生长调节方法”术语，意指达到在前面提到的十九种反应类型中的任一种，或者是植株、种子、果实或营养体的其它变化(不论果实、营养体收获与否)，只要净结果是可与任何农药作用相区别，可促进生长或有利于植株、种子、果实或营养体的任一特性(除非本发明是与农药联合或在有农药如除草剂存在的情况下使用)。在本说明书中所用“果实”这一术语，可以理解成由植物产生的任一有经济价值的东西。

适合于植物生长调节组合物的制剂是已知的。可用于本发明方法中适合的制剂的描述可以在国际专利出版物 WO87/3781，93/6089 和 94/21606 中找到，也可在欧洲专利公开号为 295117 和美国专利 5232940 中找到。所述现有技术中的制剂主要是用于杀虫的目的。用于植物生长调节剂用途的制剂或组合物可用类似的方法制成，如果需要，可调节其成分以制成更适合于植物或土壤的制剂。

式(I)中的 1-苯基吡唑可用于植物生长调节的目的,施用于植物的叶片或植物生长的土壤中。土壤施用,通常是以颗粒剂的形式足量使用,使活性成分的比率通常为 0.005 千克/公顷(kg /ha)-0.5kg/ha ,优选在 0.01 kg /ha 到 0.2kg /ha 之间。

- 5 本发明优选的实施方案是一种调节植物生长的方法,该方法包含在播种前对长出所述植株的该种子施用无植物毒性的、植物生长调节有效量的式(I)化合物。特别是,种子可以通过包衣或包埋或浸透或泡种或浸渍在本身已知的液体中或糊剂中进行处理,处理过的种子随后干燥。种子包含 2-1000 克/夸托(g/q), 优选 5-800g/q , 更优选 5-250g/q 的式(I)化合物,特别适用于这一目的。

有利地是,式(I)化合物,也可以配制成可流动组合物、可湿性粉剂、微乳剂以及类似剂型。所有剂型适用于土壤、水和/或叶片施用,并且能提供必要的植物生长调节功能。这些剂型也包括本发明中的化合物与惰性的农业可接受的固体或液体稀释剂混合而成的混合物。

- 15 制剂中也可包含除式(I)化合物以外的其它活性成分。例如,可以使用与杀真菌的活性成分混用的混和物。

用在本发明方法中的可湿性粉剂和颗粒剂可以用式(I)化合物 1-苯基吡唑与 1 %-20 % 重量的固体阴离子表面活性剂研制制得。硫代琥珀酸钠的二辛酯是一种合适的阴离子表面活性剂。重量为 85 %-95 % 的惰性的固体稀释剂如蒙脱石、美国活性白土、白垩、滑石、高岭土、硅藻土、石灰石、硅酸盐或类似物也可被包含在这类制剂中,也可有前面提到的其它的辅助剂。

- 20 除了上述的粒剂和可湿性粉剂外,可以应用可流动剂型,因为其易在水中分散且可被应用在那些需要植物生长调节功能的特定位置。

用在本发明方法中的吡唑类可被应用衍生物在水中的溶解度低,但可在低剂量下使用。因此,它们仍可以以含水溶液或乳液或优选以悬浮液用在植物上,优选的悬浮液包含有水,也可优选地包含其它的助剂。部分水介质包括那些由水和如丙酮或甲基乙基酮组成的含水介质,任何液体介质都可以使用,只要其对植物无毒性,最好是对环境也无毒性。在任何具体的吡啶衍生物不溶于水的情况下,可以通过使用助溶剂或润湿剂使其增溶溶解,或者通过

25 30 过可以和例如表面活性剂以及展布剂的分散剂同时使用而使其悬浮。本领域的熟练技术人员也会想到包括固体介质如滑石的其他介质。在本发明的过程

中使用的化合物可以首先被吸附在固体载体, 如蛭石、 attaclay、滑石以及类似物上。稀释的含水制剂或固体的施用是用本领域中已知的常规设备完成。

如将在本说明书相关于实施例来说明的, 关于多种植物, 活性吡唑类化合物以不同浓度用在本发明中在调节植物生长和发育方面都是有效的。

意欲使用的吡唑类化合物的精确剂量将取决于特别是被处理的特定的植物种类。合适的剂量可由本领域技术人员依照常规实验确定。植物反应将取决于所用的化合物的总量、也取决于被处理的特定的植物种类; 当然, 吡唑类化合物的剂量对被处理的植物应该是无植物毒性的。

尽管通常用在本发明过程中的化合物的施用的优选方法是直接对植株的叶片和茎干施用, 但化合物也可施用于植物生长的土壤。依照本发明的所述内容, 这类化合物将通常由根吸收到一个充足程度以便引起植物反应。

正如本说明书的多个实施例中所指出的, 本发明的方法通常优选在生长的植株上进行。不过, 本发明的方法作为种子处理(如, 水稻种子、莴苣种子、燕麦种子和大豆种子)来实施是有利的。

下列实施例是对本发明植物生长调节方法的说明, 但不应理解为限制本发明, 因为对材料和方法的修改对本领域技术人员而言是显而易见的。所有的植物生长调节效果的测量是用未处理种子和/或植株作对照来确定。

实施例 1

通过将含有 5 % (重量比) 的化合物(A)的悬浮剂与种子混合来处理水稻种子。这种混合的结果是包裹种子, 将被包裹的种子立即播种在 1000m² 的土地上, 使有 30g/ha 的活性成分。从出苗到收获观察结果, 存在一些昆虫且被杀死。播种 35 天后观察结果。观察到产量增加 5.4%, 并具有下列植物生长调节效果: 植物更绿, 植株更高, 基部叶片死亡较少, 叶片更大, 早两天开花。

实施例 2

重复实施例 1。在播种 60 天后观察结果。观察到产量增加 7 %, 并具有下列植物生长调节效果: 植物更绿, 植株更高, 基部叶片死亡较少, 叶片增大, 早两天开花, 穗增长, 谷粒颜色更亮。

实施例 3

重复实施例 1 但应用 40g/ha 的活性成分。获得同样的结果, 而且观察

到较少的植物倒伏，也观察到分蘖更强。

实施例 4

重复实施例 1 但应用 50g/ha 的活性成分。获得同样的结果，而且产量增加 9.5%，生长分蘖也增加 15 %。

5

实施例 5

播种水稻种子且用浓度为 5 % (重量比) 的化合物 A 的悬浮剂喷雾处理(土壤处理)苗床(酸性硫酸盐土壤)。处理后，照常进行水稻移栽。在移栽前 24 天处理苗床。观察到下列植物生长调节效果：幼苗更强壮，开花早 6 天，分蘖增加 25 %，收获早 6 天，产量增加 100 %。

10

实施例 6

播种水稻种子且对被水淹没的苗床撒施含有 0.3%(重量比)的化合物 A 的颗粒剂进行处理(土壤处理)。处理后，水稻照常移栽。水稻移栽前 11 天处理苗床。观察到下列植物生长调节效果：幼苗强壮，分蘖增加 50 %，每公顷肥料需要量尿素减少 40kg，过磷酸钙减少 50kg，产量增加 7 %。

15

实施例 7

把玉米种子播种在 3.5 升的盆里(每盆 6 株)。播种后立即将含有化合物 A 的颗粒剂撒入盆中土壤内。颗粒剂含有 1.5%(重量比)的活性成分且撒入土壤的剂量中有 120g/ha 的有效成分。植株定时浇水。一个月零一周后，测定干根重。处理盆内的根重约 42g，未处理的盆内的根重为 30g。

20

实施例 8

水稻种子在 30°C 下于水中发芽 48 小时后播在盆中。出苗后，以 200g/ha 和 100g/ha 的比率将含有 0.3%(重量比)的化合物 A 的颗粒施到土壤中。观察到任一剂型和比率均无植株毒性。定期收获各组盆并测定干根重。处理后 28 天时，吡唑处理使每盆植株的干根重比未处理幼苗的干根重平均增加 36%。

25

实施例 9

大豆种子用含有杀虫活性化合物与杀真菌活性化合物的混和物处理。大豆种子播种在实验区内，播种量为 60kg/ha，栽培后，每实验区有 1000 株。种子萌发和植株生长，到收获。在这段时间内一直进行观察。

下表的结果清楚地表明了化合物 A 的植物生长调节活性不能被简单的归于它的杀虫活性。其它可比较的杀虫剂没有产生植物生长调节作用，然而，从用化合物 A 获得的结果来看，清楚地证明了植物生长调节效果。

应用了下列活性成分及剂量:

杀虫剂	杀真菌剂	杀虫剂的剂量 (g/ha)	杀真菌剂的 剂量(g/ha)	收获量 (kg/250株)	豆荚数/株 (平均数)
化合物 A	苯菌灵	30	150	4.87	26
化合物 A	克菌丹	30	300	6.21	26.7
丁硫克百威	苯菌灵	300	150	3.46	19.6
丁硫克百威	克菌丹	300	300	2.18	16.8
硫双威	苯菌灵	675	150	3.27	16.5
硫双威	克菌丹	675	300	2.15	21.1
灭多虫	苯菌灵	225	150	1.85	16.2
灭多虫	克菌丹	225	300	3.57	22.7

注:“丁硫克百威”的英文名称为 Carbosulfan;“硫双威”的英文名称为 Thiodicarb

- 5 接下来进行观察:用化合物 A 和丁硫克百威对豆蝇的防治效果高于 95 %。在播种后的第一个月,用化合物 A 处理的植物生长加快很多,用化合物 A 处理的植株较高,更健康,叶片更宽,更绿,更光亮,枝条强壮,分枝更多,植株株冠发育较其它处理快,以致于只有较少的杂草。

- 10 用化合物 A 处理的大豆每株的豆荚数比用丁硫克百威处理的高 24 % 到 37 %。用化合物 A 处理的大豆的产量也高得多。用化合物 A 处理的大豆的产量和每株平均豆荚数也比用硫双威和灭多虫处理的高。

实施例 10

- 15 水稻种子用化合物 A 的制剂进行处理,处理比率为 40g/ha,田间播种量为 150kg/ha,并盖上一薄层土。然后使种子萌发生长成熟并收割水稻,发现产量较正常条件(不播用化合物 A 处理的种子)增加了 660kg/ha。节省肥料量如下:氮,18kg/ha,也就是说比标准方案减少 18 %,磷酸盐 7kg/ha,也就是说比标准方案减少 16 %。

- 20 在预计没有昆虫存在或通过或栖息、侵袭或飞行的地点重复实施例 1 至实施例 10 的试验条件时,得到了同样的结果:化合物 A 对植物生长调节的效果与所述地点在有昆虫存在的条件下一样。不管怎样,可以通过施用化合物 A 除去昆虫,当预计没有昆虫存在时,也就没有理由将化合物 A 作为

一种杀虫活性成分或组合物去应用，为植物生长调节的目的，应用化合物 A 产生如在实施例 1 到 10 中所述的效果。

当通过一系列不同的优选的实施方案描述本发明时，熟练技术人员可以认识到在不偏离本发明的实质的情况下可以进行各种改进、替代、省略和改变。因此，本发明的范围旨在只受到以下权利要求书(包括其等同描述)范围的限制。