



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201200020 A1

(43)公開日：中華民國 101 (2012) 年 01 月 01 日

(21)申請案號：100121862

(22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 06 月 22 日

(51)Int. Cl. : A01N43/56 (2006.01)

(30)優先權：2010/06/24 日本 2010-143553

(71)申請人：住友化學股份有限公司 (日本) SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD. (JP)
日本

(72)發明人：松崎雄一 MATSUZAKI, YUICHI (JP)；阪口裕史 SAKAGUCHI, HIROSHI (JP)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：0 共 35 頁

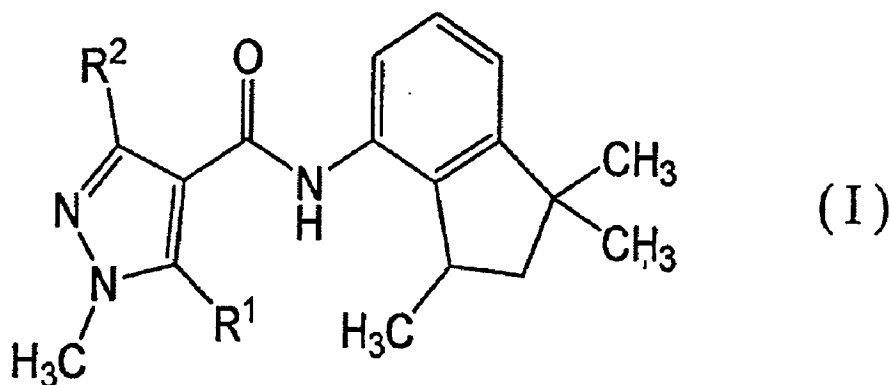
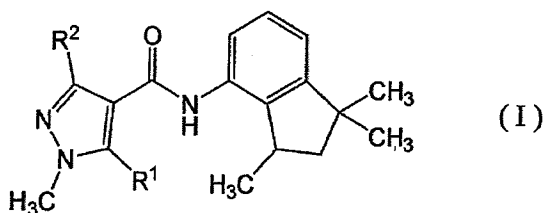
(54)名稱

防治植物疾病之組合物及防治植物疾病之方法

PLANT DISEASE CONTROL COMPOSITION AND METHOD OF CONTROLLING PLANT DISEASE

(57)摘要

本發明係關於一種防治植物疾病之組合物，其包含由式(I)表示之羧醯胺化合物，其中該羧醯胺化合物之 R 型/S 型對映異構體比例為 80/20 或以上，及具有卓越的植物疾病防治活性。





(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201200020 A1

(43)公開日：中華民國 101 (2012) 年 01 月 01 日

(21)申請案號：100121862

(22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 06 月 22 日

(51)Int. Cl. : A01N43/56 (2006.01)

(30)優先權：2010/06/24 日本 2010-143553

(71)申請人：住友化學股份有限公司 (日本) SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD. (JP)
日本

(72)發明人：松崎雄一 MATSUZAKI, YUICHI (JP)；阪口裕史 SAKAGUCHI, HIROSHI (JP)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：0 共 35 頁

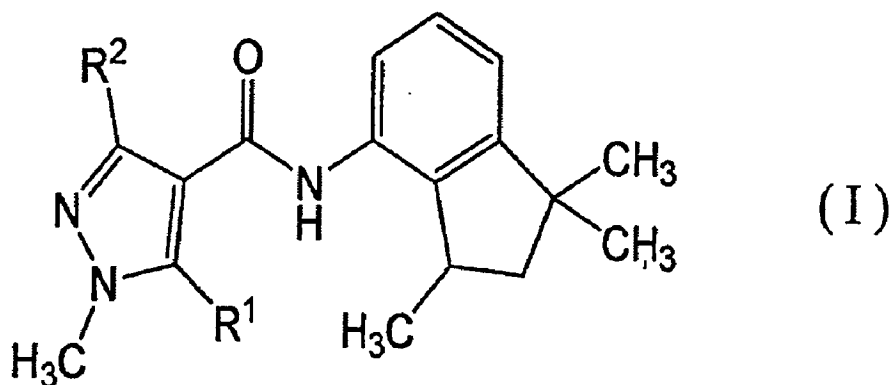
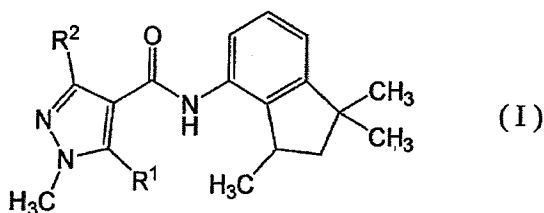
(54)名稱

防治植物疾病之組合物及防治植物疾病之方法

PLANT DISEASE CONTROL COMPOSITION AND METHOD OF CONTROLLING PLANT DISEASE

(57)摘要

本發明係關於一種防治植物疾病之組合物，其包含由式(I)表示之羧醯胺化合物，其中該羧醯胺化合物之 R 型/S 型對映異構體比例為 80/20 或以上，及具有卓越的植物疾病防治活性。



六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種防治植物疾病之組合物及防治植物疾病之方法。

【先前技術】

防治植物疾病之組合物及使用該組合物防治植物疾病之方法係已知者(例如：專利案 WO 86/02641 與 WO 92/12970)。

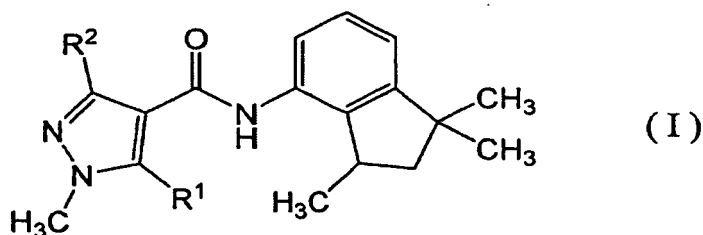
【發明內容】

本發明之目的在於提供一種對植物疾病具有卓越防治效果之組合物。

本發明者已經研究發現一種對植物疾病具有卓越防治效果之組合物，並因而發現一種包含由如下所述之化學式(I)表示之羧醯胺化合物的組合物，其中該羧醯胺化合物之光學活性R型及光學活性S型均以預定之對映異構體比例存在，該組合物對植物疾病具有卓越的防治效果，從而完成本發明。

亦即，本發明如下所述。

[1]一種植物疾病防治組合物，其包含由式(I)表示之羧醯胺化合物：



，其中

R^1 表示氫或甲基，

R^2 表示甲基、二氟甲基或三氟甲基，

且該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上。

[2]根據[1]之植物疾病防治組合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為90/10至10000/1。

[3]根據[1]之植物疾病防治組合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為95/5至10000/1。

[4]根據[1]之植物疾病防治組合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為98/1至1000/1。

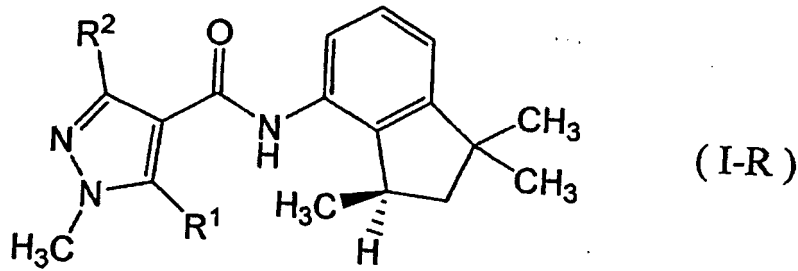
[5]根據[1]至[4]中任一項之植物疾病防治組合物，其中在式(I)中， R^1 為甲基及 R^2 為甲基。

[6]根據[1]至[4]中任一項之植物疾病防治組合物，其中在式(I)中， R^1 為氫及 R^2 為二氟甲基。

[7]根據[1]至[4]中任一項之植物疾病防治組合物，其中在式(I)中， R^1 為氫及 R^2 為三氟甲基。

[8]一種防治植物疾病之方法，其包括利用有效量之如[1]至[7]中任一項之植物疾病防治組合物處理植物或植物生長的土壤的步驟。

[9]一種由式(I-R)表示之羧醯胺化合物



，其中

R^1 表示氫或甲基，

R^2 表示甲基、二氟甲基或三氟甲基。

[9-2]根據[9]之羧醯胺化合物，其中該羧醯胺化合物為呈R絕對組態之基本上純異構體。

[9-3]根據[9]之羧醯胺化合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上。

[10]根據[9]之羧醯胺化合物，其中 R^1 為甲基及 R^2 為甲基。

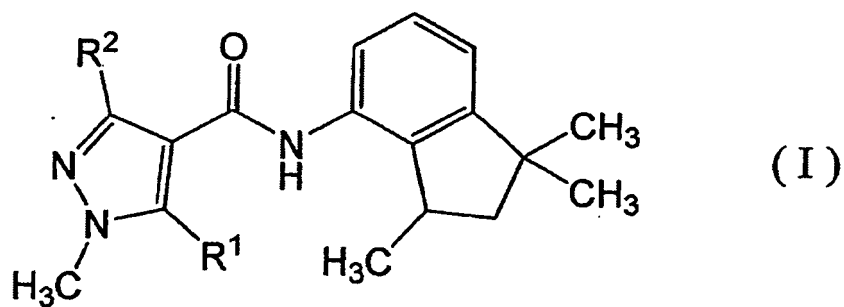
[11]根據[9]之羧醯胺化合物，其中 R^1 為氫及 R^2 為二氟甲基。

[12]根據[9]之羧醯胺化合物，其中 R^1 為氫及 R^2 為三氟甲基。

在本發明中，「羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上」表示基於RS混合物，富含R異構體之羧醯胺化合物包含80%或以上R異構體。

【實施方式】

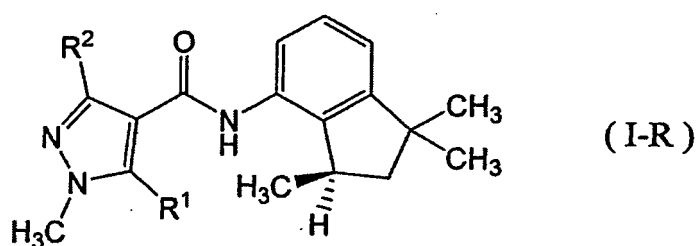
本發明之植物疾病防治組合物(下文中以本發明組合物表示)為包含由式(I)表示之羧醯胺化合物之植物疾病防治



組合物：

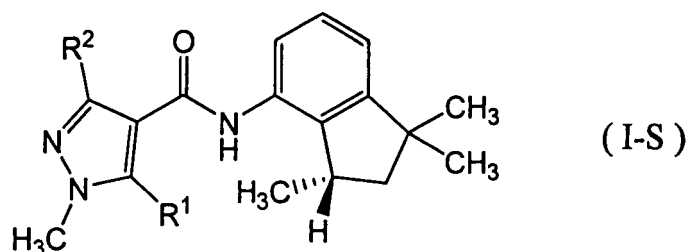
其中 R^1 及 R^2 與如上述之相同定義，

且其中基於羧醯胺化合物中的不對稱碳，由式(I-R)表示之R型



其中 R^1 及 R^2 如上述之相同定義，

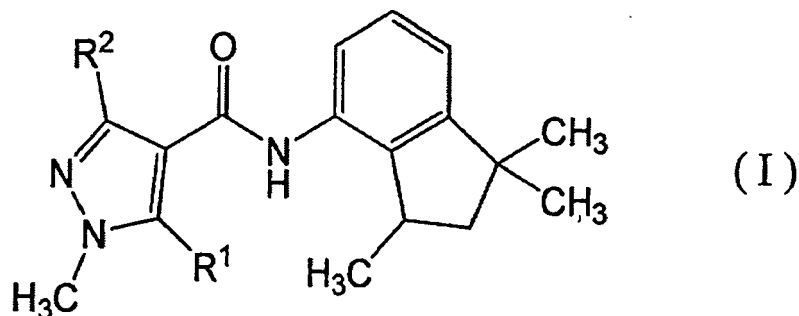
與由式(I-S)表示之S型



其中 R^1 及 R^2 如上述之相同定義，

R型/S型對映異構體比例為80/20或以上。

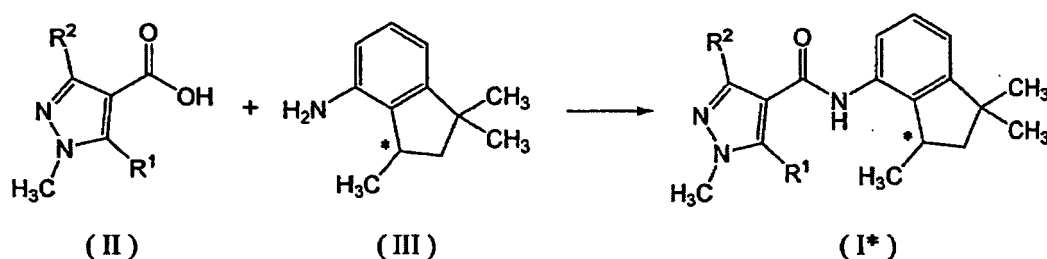
用於本發明之由式(I)表示之羧醯胺化合物



，其中 R^1 及 R^2 如上述之相同定義，且該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上(下文中以羧醯胺化合物表示)係藉由下列製備方法獲得。

製備方法1

該羧醯胺化合物可以在脫水縮合劑之存在下，藉由化合物(II)與化合物(III)(R型/S型對映異構體比例為80/20或以上)反應製備。



其中 R^1 及 R^2 如上述之相同定義。基於由*表示之不對稱碳的對映異構體比例(=R型/S型)為80/20或以上。

該反應通常在溶劑之存在下進行。

用於該反應之溶劑實例包括醚類，如：四氫呋喃(下文中可稱為THF)、乙二醇二甲醚，及第三丁基甲醚(下文中可稱為MTBE)；脂族烴，如：己烷、庚烷及辛烷；芳香烴，如：甲苯，及二甲苯；鹵化烴，如：氯苯；酯類，如：醋酸丁酯，及乙酸乙酯；腈類，如：乙腈；羧醯胺，如：N,N-二甲基甲醯胺；亞砜，如：二甲亞砜；含氮芳香族化合物，如：吡啶；及其混合物。

用於反應中之脫水縮合劑包括碳化二亞胺，如：1-乙

基-3-(3-二甲基氨基丙基)碳化二亞胺鹽酸鹽，及1,3-二環己基碳化二亞胺；及(苯并三唑-1-基氧基)參(二甲基氨基)六氟磷酸鎘等。

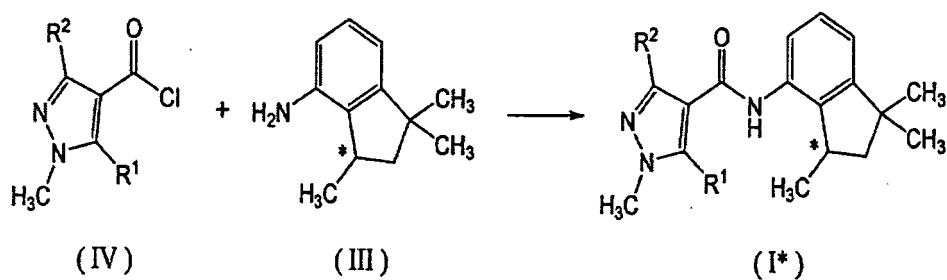
相對於1 mol化合物(II)，常用之化合物(III)的比例為0.5至3 mol及常用之脫水縮合劑的比例為1至5 mol。

反應之反應溫度通常在 -20°C 至 140°C 範圍，及其反應時間通常在1至24小時。

反應完成後，若添加水至反應混合物後有固體沉澱時，可以藉由過濾法分離該羧醯胺化合物，若沒有固體沉澱時，該羧醯胺化合物可以藉由處理後操作法分離，例如以有機溶劑提取反應混合物、乾燥有機層，及濃縮。分離之該羧醯胺化合物亦可進一步藉由層析法、再結晶法等純化。

(製備方法2)

該羧醯胺化合物亦可在鹼之存在下，藉由化合物(IV)與化合物(III)(R型/S型對映異構體比例為80/20或以上)反應製備。



其中 R^1 及 R^2 如上述之相同定義。基於由*表示之不對稱碳的對映異構體比例(=R型/S型)為80/20或以上。

該反應通常在溶劑之存在下進行。

用於該反應之溶劑實例為醚類，如：THF、乙二醇二甲醚，及MTBE；脂族烴，如：己烷、庚烷及辛烷；芳香烴，如：甲苯，及二甲苯；鹵代烴，如：氯苯；酯類，如：醋酸丁酯，及乙酸乙酯；腈類，如：乙腈；及其混合物。

用於該反應之鹼包括鹼金屬碳酸鹽，如：碳酸鈉，及碳酸鉀；三級胺，如：三乙胺，及二異丙基乙胺；含氮芳香族化合物，如：吡啶，及4-二甲基胺基吡啶；等。

相對於1 mol化合物(IV)，化合物(III)的常用比例為0.5至3 mol及鹼的常用比例為1至5 mol。

該反應之反應溫度通常在 -20°C 至 100°C 範圍，及其反應時間通常在0.1至24小時。

反應完成後，若在添加水至反應混合物後有固體沉澱時，可以藉由過濾法分離該羧醯胺化合物，及若沒有固體沉澱時，該羧醯胺化合物可以藉由處理後操作法分離，如：以有機溶劑提取反應混合物、乾燥有機層及濃縮等。分離之該羧醯胺化合物亦可進一步藉由層析法、再結晶法等純化。

作為反應中間產物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上之化合物(III)可以藉由例如如下方法獲得。

方法(1)：4-胺基-1,1,3-三甲基節烷，其中R型/S型對映異構體比例為例如30/70至80/20，可經利用光學活性羧酸產生非對映異構體鹽，然後分離晶體，如進一步需要，則

進行再結晶，獲得非對映異構體鹽。所得非對映異構體鹽使用鹼(如：氫氧化鈉)分解，獲得R型/S型對映異構體比例為80/20或以上之化合物(III)。

方法(2)：4-氨基-1,1,3-三甲基節烷，其中R型/S型對映異構體比例為例如30/70至80/20，可以藉由使用光學活性材料用作填充劑成份以分離光學異構體的管柱進行光學離析法，從而獲得R型/S型對映異構體比例為80/20或以上之化合物(III)。

該羧醯胺化合物之實例如下。

一種式(1)之羧醯胺化合物，其中R型/S型對映異構體比例為80/20或以上；

一種式(1)之羧醯胺化合物，其中R型/S型對映異構體比例為90/10至10000/1；

一種式(1)之羧醯胺化合物，其中R型/S型對映異構體比例為95/5至10000/1；

一種式(1)之羧醯胺化合物，其中R型/S型對映異構體比例為98/1至1000/1。

由式(1)表示之羧醯胺化合物之光學活性材料包括下列材料：

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R¹為氫；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R¹為甲基；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R²為甲基；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R²為二氟甲基；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R²為三氟甲基；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R¹為甲基及R²為甲基；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R¹為氫及R²為二氟甲基；

一種式(1-R)之羧醯胺化合物，其中R¹為氫及R²為三氟甲基。

本發明組合物為一種調配物，如：添加固定劑、分散劑、穩定劑等等，及將混合物製成可濕性粉劑、粒狀可濕性粉劑、流動性調配物、顆粒、乾式流動性調配物、濃縮乳劑、含水液體調配物、油溶液、發煙劑、氣霧劑，或微膠囊，其中由該羧醯胺化合物與固體載體、液體載體、氣體載體、表面活性劑等及若必要時使用之助劑混合。本發明組合物通常包含0.1至99%，較佳係0.2至90%重量比之該羧醯胺化合物。

固體載體實例包括細粉末及由粘土組成的顆粒(例如：高嶺土、矽藻土、合成之水合二氧化矽、空氣淘析黏土(Fubasami clay)、皂土、酸性粘土)、滑石、其他無機礦物(例如：絹雲母、石英粉、硫粉、活性碳、碳酸鈣、水合氧化矽)，及液體載體之實例包括水；醇類(例如：甲醇、乙醇)、酮類(例如：丙酮、甲基乙基酮)、芳香族烴(例如：苯、甲苯、二甲苯、乙苯、甲基萘)、脂族烴(例如：正己烷、煤油)、酮類(例如環己酮)、酯類(例如：乙酸乙酯、醋酸丁酯)、腈類(例如：乙腈、異丁腈)、醚類(例如：二噁烷、二異丙醚)、羧醯胺(例如：二甲基甲醯胺、

二甲基乙醯胺)、鹵化烴(例如：二氯乙烷、三氯乙烯、四氯化碳)。

表面活性劑之實例包括硫酸烷基酯、磺酸烷基酯、磺酸烷基芳基酯、烷基芳基醚及其聚氧乙烯化物質、聚氧乙二醇醚、多元醇酯，及糖醇衍生物。

用於調配之其他助劑實例包括固定劑及分散劑，明確而言，酪蛋白、明膠、多醣(例如：澱粉、阿拉伯樹膠、纖維素衍生物、藻酸)、木質素衍生物、皂土、糖類、合成性水可溶性聚合物(例如：聚乙烯醇、聚乙烯吡咯烷酮、聚丙烯酸)、PAP(酸性磷酸異丙基酯)、BHT(2,6-二-第三丁基-4-甲基苯酚)、BHA(2-第三丁基-4-甲氧基苯酚及3-第三丁基-4-甲氧基苯酚之混合物)、植物油、礦物油，及其脂肪酸或酯。

本發明之組合物可用於防護植物免受植物疾病的影響。

本發明組合物可以防治之植物疾病實例包括下列疾病。

稻疾病：水稻稻瘟病菌(*Magnaporthe grisea*)、稻胡麻葉斑病菌(*Cochliobolus miyabeanus*)、紋枯病菌(*Rhizoctonia solani*)、串珠镰孢(*Gibberella fujikuroi*)。

小麥疾病：禾白粉菌(*Erysiphe graminis*)、镰刀菌屬(*Fusarium sp.*)(禾穀镰刀菌(*F. graminearum*)、燕麥镰孢(*F. avenacerum*)、黃色镰孢(*F. culmorum*)、雪黴球腔菌(*Microdochium nivale*))、柄锈菌屬真菌(*Puccinia sp.*)(根腐镰刀菌(*P. striiformis*)、麥類稈锈病菌(*P. graminis*)、小麥葉锈菌(*P. recondita*、*P. triticina*))、紅色雪腐病菌

(*Micronectriella nivale*)、雪腐小粒菌核病菌(*Typhula* sp.)、小麥散黑粉菌(*Ustilago tritici*)、小麥網腥黑粉菌(*Tilletia caries*)、眼紋病菌(*Pseudocercospora herpotrichoides*)、小球殼屬葉枯病菌(*Mycosphaerella graminicola*)、葉枯病菌(*Stagonospora nodorum*)、小麥黃斑病菌(*Pyrenophora triticirepentis*)。

大麥疾病：禾白粉菌(*Erysiphe graminis*)、鐮刀菌屬(*Fusarium* sp.)(禾穀鐮刀菌(*F. graminearum*)、紅色鐮刀菌(*F. avenacerum*)、黃色鐮刀菌(*F. culmorum*)、雪黴葉枯病菌(*Microdochium nivale*))、柄銹菌屬(*Puccinia* sp.)(條銹病(*P. striiformis*)、麥類稈銹病(*P. graminis*)、大麥對銹病(*P. hordei*))、大麥散黑穗病(*Ustilago nuda*)、禾草雲斑病(*Rhynchosporium secalis*)、網斑病菌(*Pyrenophora teres*)、大麥斑點病(*Cochliobolus sativus*)、大麥條紋病(*Pyrenophora graminea*)、紋枯病菌(*Rhizoctonia solani*)。

玉米疾病：玉米黑粉菌(*Ustilago maydis*)、異旋孢腔菌(*Cochliobolus heterostrophus*)、玉米豹紋病菌(*Gloeocercospora sorghi*)、多堆柄銹菌(*Puccinia polysora*)、玉米灰斑病菌(*Cercospora zeae-maydis*)、紋枯病菌(*Rhizoctonia solani*)。

桔樹疾病：柑桔沙皮病菌(*Diaporthe citri*)、瘡痂病菌(*Elsinoe fawcetti*)、青黴屬(*Penicillium* spl.)(柑橘綠黴病菌(*R. digitatum*)、青黴病菌(*P. italicum*))、煙草黑脛病菌(*Phytophthora parasitica*)、柑桔褐腐疫黴(*Phytophthora citrophthora*)。

蘋果樹疾病：花腐病菌(*Monilinia mali*)、蘋果樹腐爛病菌(*Valsa ceratosperma*)、蘋果白粉病菌(*Podosphaera leucotricha*)、煙草赤星病菌蘋果病變型(*Alternaria alternata* apple pathotype)、黑星病菌(*Venturia inaequalis*)、辣椒炭疽病菌(*Colletotrichum acutatum*)、惡疫黴(*Phytophthora cactorum*)。

梨樹疾病：梨黑星病菌(*Venturia nashicola*、*Venturia pirina*)、梨黑斑病菌(*Alternaria alternata* Japanese pear pathotype)、梨膠銹菌(*Gymnosporangium haraeaeum*)、惡疫黴菌(*Phytophthora cactorum*)；

桃樹疾病：褐腐病菌(*Monilinia fructicola*)、李瘡痂病菌(*Cladosporium carpophilum*)、擬莖點黴屬(*Phomopsis* sp.)。

葡萄樹疾病：痂囊腔菌(*Elsinoe ampelina*)、炭疽病菌(*Glomerella cingulata*)、表白粉病菌線蟲屬(*Uncinula necator*)、葡萄多層銹菌(*Phakopsora ampelopsidis*)、葡萄白粉病菌(*Guignardia bidwellii*)、葡萄霜黴病菌(*Plasmopara viticola*)。

柿樹疾病：柿炭疽病菌(*Gloeosporium kaki*)、角斑病菌(*Cercospora kaki*)(圓斑病菌(*Mycosphaerella nawae*))。

葫蘆疾病：瓜類炭疽菌(*Colletotrichum lagenarium*)、白粉病菌(*Sphaerotheca fuliginea*)、蔓枯病菌(*Mycosphaerella melonis*)、番薯莖裂病菌(*Fusarium oxysporum*)、黃瓜霜黴病菌(*Pseudoperonospora cubensis*)、香石竹疫病菌(*Phytophthora* sp.)、白絹病菌(*Pythium* sp.)；

番茄疾病：番茄早疫病菌 (*Alternaria solani*)、黃枝孢 (*Cladosporium fulvum*)、番茄晚疫病菌 (*Phytophthora infestans*)。

茄子疾病：茄褐紋病菌 (*Phomopsis vexans*)、二孢白粉菌 (*Erysiphe cichoracearum*)。

甘藍田族疾病：鏈格孢菌 (*Alternaria japonica*)、白菜白斑病菌 (*Cercospora brassicae*)、甘藍根腫菌 (*Plasmodiophora brassicae*)、霜黴屬寄生類 (*Peronospora parasitica*)。

大蔥疾病：銹病菌 (*Puccinia allii*)、霜黴病菌 (*Peronospora destructor*)。

大豆疾病：大豆紫斑病菌 (*Cercospora kikuchii*)、大豆黑痘病菌 (*Elsinoe glycines*)、大豆黑點病菌 (*Diaporthe phaseolorum* var. *sojae*)、斑枯病菌 (*Septoria glycines*)、灰斑病菌 (*Cercospora sojae*)、大豆銹病菌 (*Phakopsora pachyrhizi*)、大豆疫黴根腐病菌 (*Phytophthora sojae*)、紋枯病菌 (*Rhizoctonia solani*)、靶斑病菌 (*Corynespora casiiicola*)、菌核病菌 (*Sclerotinia sclerotiorum*)。

菜豆疾病：炭疽病菌 (*Colletotrichum lindemthianum*)。

花生疾病：花生尾孢菌 (*Cercospora personata*)、花生褐斑病菌 (*Cercospora arachidicola*)、齊整小核菌 (*Sclerotium rolfsii*)。

豌豆疾病：豌豆白粉菌 (*Erysiphe pisi*)。

馬鈴薯疾病：番茄早疫病菌 (*Alternaria solani*)、番茄晚

疫病菌 (*Phytophthora infestans*)、赤腐疫黴 (*Phytophthora erythroseptica*)、馬鈴薯粉痂病菌 (*Spongospora subterranean* f. sp. *subterranea*)。

草莓疾病：草莓白粉病菌 (*Sphaerotheca humuli*)、炭疽病菌 (*Glomerella cingulata*)。

茶樹疾病：外擔菌 (*Exobasidium reticulatum*)、白星病菌 (*Elsinoe leucospila*)、茶蘆生柱銹重寄生菌 (*Pestalotiopsis* sp.)、茶炭疽病菌 (*Colletotrichum theaesinensis*)。

煙草疾病：煙草赤星病菌 (*Alternaria longipes*)、煙草白粉病菌 (*Erysiphe cichoracearum*)、煙草刺盤孢 (*Colletotrichum tabacum*)、霜黴病菌 (*Peronospora tabacina*)、煙草疫黴 (*Phytophthora nicotianae*)。

油菜籽疾病：菌核病菌 (*Sclerotinia sclerotiorum*)、紋枯病菌 (*Rhizoctonia solani*)。

棉花疾病：紋枯病菌 (*Rhizoctonia solani*)。

甜菜葉斑病：甜菜褐斑病菌 (*Cercospora beticola*)、瓜亡革菌 (*Thanatephorus cucumeris*)、絲囊黴 (*Aphanomyces cochlioides*)。

玫瑰樹疾病：薔薇雙殼菌 (*Diplocarpon rosae*)、薔薇白粉病菌 (*Sphaerotheca pannosa*)、露菌病菌 (*Peronospora sparsa*)。

菊花及紫菀科植物疾病：萵苣盤梗黴 (*Bremia lactucae*)、褐斑病菌 (*Septoria chrysanthemi-indici*)、白銹病菌 (*Puccinia horiana*)。

不同農作物之疾病：由屬白絹病病菌(*Pythium* sp.)(瓜果腐黴(*Pythium aphanidermatum*)、猝倒病菌(*Pythium debarianum*)、腐黴菌(*Pythium graminicola*)、不規則腐黴(*Pythium irregulare*)、終極腐黴(*Pythium ultimum*))、灰葡萄孢(*Botrytis cinerea*)、菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)所引起之疾病

蘿蔔疾病：黑斑病菌(*Alternaria brassicicola*)。

結縷草疾病：草坪草幣斑病菌(dollar spot disease)(核盤菌(*Sclerotinia homeocarpa*))、褐塊疾病菌(brown patch disease)及大斑疾病菌(large patch disease)(紋枯病菌(*Rhizoctonia solani*))。

香蕉樹疾病：香蕉葉斑病菌(*Mycosphaerella fijiensis*)、褐緣灰斑病菌(*Mycosphaerella musicola*)。

向日葵疾病：向日葵霜黴病菌(*Plasmopara halstedii*)。

種子疾病及不同農作物在生長初期由麴菌屬(genus *Aspergillus*)、青黴菌屬(genus *Penicillium*)、鐮刀菌屬(genus *Fusarium*)、赤黴菌屬(genus *Gibberella*)、木黴屬(genus *Tricoderma*)、根串珠黴屬(genus *Thielaviopsis*)、酒麴菌屬(genus *Rhizopus*)、毛黴屬(genus *Mucor*)、膏藥蕈屬(genus *Corticium*)、莖點黴屬(genus *Phoma*)、絲核菌屬(genus *Rhizoctonia*)及色二孢屬真菌屬(genus *Diplodia fungi*)等引起的疾病。

由多黏芽孢桿菌屬(genus *Polymixa*)或油壺菌屬(genus *Olpidium*)等引起的不同農作物的病毒疾病。

可使用本發明化合物之植物實例包括下列植物。

農作物：玉米、稻、小麥、大麥、裸麥、燕麥、高粱、棉花、大豆、花生、蕎麥、糖用甜菜、油菜籽、向日葵、甘蔗、煙草、等；

蔬菜：茄科蔬菜(茄子、番茄、青椒、辣椒、馬鈴薯等)、葫蘆科蔬菜(黃瓜、南瓜(pumpkin)、綠櫛瓜、西瓜、甜瓜、南瓜(squash)、等)、十字花科蔬菜(日本蘿蔔、蕪菁、辣根、大頭菜、中國捲心菜、捲心菜、黑芥、青花菜、白花椰菜、等)、紫菀科的蔬菜(牛蒡、茼蒿、朝鮮薊、萵苣等)、百合科蔬菜(大蔥、洋蔥、大蒜、蘆筍等)、傘形科蔬菜(胡蘿蔔、歐芹、芹菜、歐洲防風草等)、藜科蔬菜(菠菜、瑞士甜菜、等)、唇形花科蔬菜(日本羅勒、薄荷、羅勒、等)、草莓、甘薯、山藥、芋頭等。；

開花植物；

觀葉植物；

結縷草；

果樹：仁果類(蘋果、西洋梨、日本梨、木瓜、榲桲等)、核果(桃、李子、油桃、日本李、櫻桃、杏、梅等)、柑桔(桔、橙、檸檬、萊姆、葡萄柚等)、堅果類(栗、胡桃、榛果、杏仁、開心果、腰果、澳洲堅果等)、漿果類(藍莓、蔓越莓、黑莓、覆盆子等)、葡萄樹、柿樹、橄欖、枇杷、香蕉、咖啡、棗、椰子樹、油棕櫚等。

果樹之外的樹：茶樹、桑樹、花樹、行道樹(白臘樹、樺木、山茱萸、桉樹、銀杏、紫丁香、楓樹、橡樹、白

楊、紫荊、楓香樹、懸鈴樹、光葉檫樹、鮮柏、樅樹、日本鐵杉、杜松、松樹、雲杉、紫杉)等。

上述植物亦可為具有經基因工程技術產生抗性之植物。

本發明組合物亦可與其他殺真菌劑、殺昆蟲劑、殺蟎劑、殺線蟲劑、除草劑、植物生長調節劑、肥料或土壤改良試劑混合使用或在不混合下同時使用。

本發明防治植物疾病之方法(下文中稱為本發明之防治法)係利用有效量之本發明組合物處理植物或有植物生長的土壤而進行。該類植物的實例包括植物莖及葉子，植物種子及植物球形根部。此處，球形根部包括鱗莖、球莖、地下莖、塊莖、塊根及根圍。

在該防治法中，本發明組合物之處理方法的實例包括莖部及葉部處理、土壤處理、根部處理及種子處理。

此等莖部及葉部處理的實例包括藉由在莖部及葉部噴灑及在樹幹上噴灑處理所栽種植物之表面的方法。

此等根部處理之實例包括將植物整體或根部浸入包含該羧醯胺化合物之藥物溶液中的方法，及讓包含該羧醯胺化合物及固體載體之固體調配物黏附於植物根部的的方法。

此等土壤處理之實例包括於土壤上噴灑、與土壤混合及將藥物溶液注入土壤。

此等種子處理之實例包括利用本發明組合物處理需要防護免受植物疾病影響之植物的種子或球形根部的處理法，及具體言之，將本發明組合物之懸浮液處理成氣霧並於種子表面或球形根部表面上噴灑該氣霧之噴灑處理法；將本

發明組合物之可濕性粉劑、濃縮乳劑或可流動性調配物包覆於種子或球形根部上或添加少量水至該等調配物並利用該等調配物包覆種子或球形根部之包覆處理法；將種子浸沒於本發明組合物之溶液中達一定時間之浸沒處理法；膜衣處理法；及丸粒包覆處理法。

在本發明防治方法中之本發明組合物的處理量依據待處理植物種類、作為防治對象之植物疾病的種類及發生頻率、調配物形式、處理週期、處理方法、處理地點、天氣條件等而變化，且當處理植物莖部及葉子或植物生長的土壤時，本發明組合物中該羧醯胺化合物用量通常為每1000 m²使用1至500 g，較佳言之2至200 g，更佳言之10至100 g。就該羧醯胺化合物之用量而言，本發明組合物在處理種子時之處理量通常為每公斤種子使用0.001至10 g，較佳言之0.01至1 g。

濃縮乳劑、可濕性粉劑或可流動性調配物等通常以水稀釋後噴灑處理。在該情形下，該羧醯胺化合物之濃度通常為0.0005至2重量%，較佳言之0.005至1重量%。塵粉、顆粒等通常無需稀釋即可用於處理。

實例

以下藉由參考製備實例、調配物實例、測試實例等，進一步闡釋本發明。

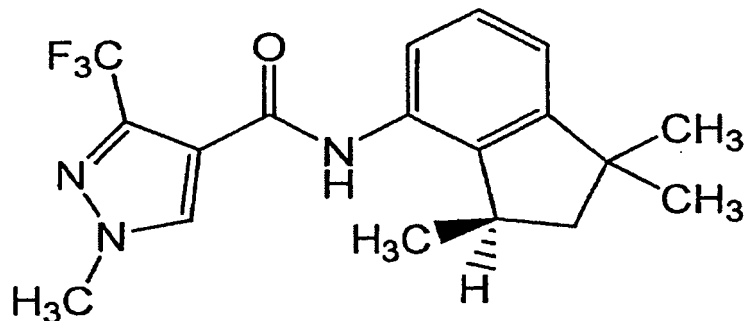
首先，說明該羧醯胺化合物之參考製備實例。

參考製備實例1

在冰冷卻下，將0.18 g 1-甲基-3-三氟甲基吡啶-4-羧基

氣溶於THF中之溶液滴加至由0.15 g (R)-1,1,3-三甲基-4-氨基茛菪烷 (光學純度: 99% ee)、0.13 g 三乙胺、5 mg 4-二甲基氨基吡啶及1 mL THF組成之溶液中。將混合物在室溫下攪拌達15分鐘，然後，將冰水加至反應混合物中，並以乙酸乙酯提取混合物。有機層依次以飽和碳酸氫鈉水溶液及飽和鹽水洗滌，然後在硫酸鎂上乾燥並在減壓下濃縮。所得殘質進行矽膠管柱層析法，獲得0.18 g (R)-(-)-N-(1,1,3-三甲基茛菪烷-4-基)-1-甲基-3-三氟甲基吡唑-4-甲醯胺(下文中稱為本發明羧醯胺化合物(1))(光學純度: 99% ee)。

本發明羧醯胺化合物(1)



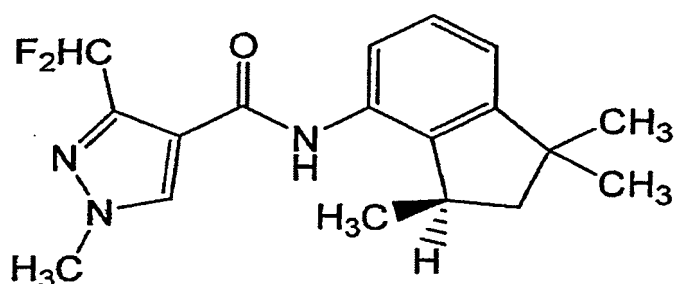
(1(R型))

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 1.25 (3H, s), 1.28 (3H, d, $J = 7.1$ Hz), 1.34 (3H, s), 1.67 (1H, dd, $J = 12.8, 4.3$ Hz), 2.24 (1H, dd, $J = 12.9, 8.5$ Hz), 3.29-3.37 (1H, m), 3.99 (3H, s), 7.00 (1H, d, $J = 6.8$ Hz), 7.23-7.27 (1H, m), 7.62 (1H, br s), 7.76 (1H, d, $J = 7.8$ Hz), 8.04 (1H, s).
 $[\alpha]_{\text{D}}^{23} = -54^\circ$ (CHCl_3 , $c1.02$)

參考製備實例2

在冰冷卻下，將0.17 g 1-甲基-3-二氟甲基吡唑-4-羧基氯溶於THF中之溶液滴加至由0.15 g (R)-1,1,3-三甲基-4-胺基節烷（光學純度：99% ee）、0.13 g三乙胺、5 mg 4-二甲基胺基吡啶及1 mL THF組成之溶液中。將混合物在室溫下攪拌達15分鐘，然後，將冰水加入反應混合物中，並以乙酸乙酯提取混合物。有機層依次以飽和碳酸氫鈉水溶液及飽和鹽水洗滌，然後在硫酸鎂上乾燥並在減壓下濃縮。所得殘質進行矽膠管柱層析法，獲得0.20 g (R)-(-)-N-(1,1,3-三甲基節烷-4-基)-1-甲基-3-二氟甲基吡唑-4-甲醯胺(下文中稱為本發明羧醯胺化合物(2))(光學純度：99% ee)。

本發明羧醯胺化合物(2)



(2(R型))

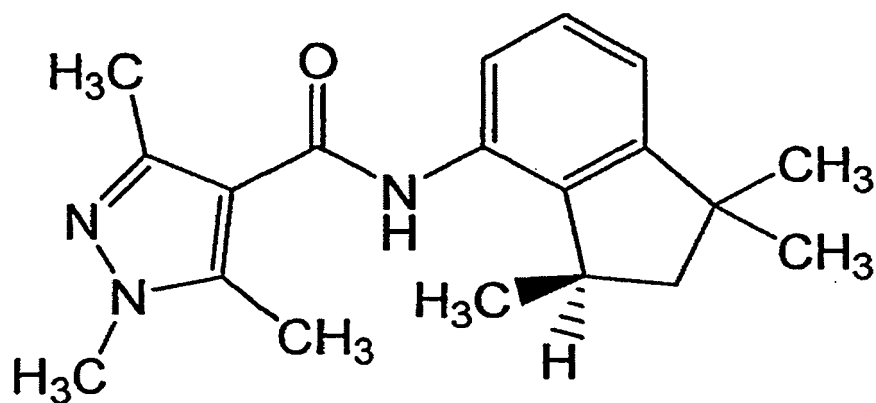
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 1.25 (3H, s), 1.28 (3H, d, $J = 7.1$ Hz), 1.34 (3H, s), 1.67 (1H, dd, $J = 12.9, 4.1$ Hz), 2.24 (1H, dd, $J = 12.9, 8.5$ Hz), 3.32-3.41 (1H, m), 3.94 (3H, s), 6.88 (1H, t, $J = 54.1$ Hz), 6.98 (1H, d, $J = 7.6$ Hz), 7.22-7.27 (1H, m), 7.79 (1H, d, $J = 7.8$ Hz), 7.96 (1H, br s), 8.02 (1H, s).

$[\alpha]_D^{23} = -62^\circ$ (CHCl_3 , $c0.99$)

參考製備實例3

在冰冷卻下，將0.15 g 1,3,5-三甲基吡唑-4-羧基氯溶於THF中之溶液滴加至由0.15 g (R)-1,1,3-三甲基-4-胺基節烷(光學純度: 99% ee)、0.13 g 三乙胺、5 mg 4-二甲基胺基吡啶及1 mL THF組成之溶液中。將混合物在室溫下攪拌達15分鐘，然後，將冰水加至反應混合物中，並以乙酸乙酯提取混合物。有機層依次以飽和碳酸氫鈉水溶液及飽和鹽水洗滌，然後在硫酸鎂上乾燥並在減壓下濃縮。所得殘質進行矽膠管柱層析法，獲得0.17 g (R)-(-)-N-(1,1,3-三甲基節烷-4-基)-1,3,5-三甲基吡唑-4-甲醯胺(下文中稱為本發明羧醯胺化合物(3))(光學純度: 99% ee)。

本發明羧醯胺化合物(3)



(3 (R型))

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 1.25 (3H, s), 1.32 (3H, d, $J = 7.1$ Hz), 1.34 (3H, s), 1.67 (1H, dd, $J = 12.7, 4.6$ Hz), 2.24 (1H, dd, $J = 12.9, 8.5$ Hz), 2.51 (3H, s), 2.53 (3H, s), 3.31-3.39 (1H, m), 3.76 (3H, s), 6.96 (1H, d, $J = 7.6$ Hz), 7.21-7.26 (2H, m), 7.76 (1H, d, $J = 7.8$ Hz).
 $[\alpha]_D^{23} = -57^\circ$ (CHCl_3 , $c1.01$)

接著，將說明本發明羧醯胺化合物的中間產物之製備。

參考製備實例 4

使用 HPLC，藉由以下條件分離 4.8 g 外消旋 1,1,3-三甲基-4-胺基茛菪烷產生兩種對映異構體，從而在稍後洗提出之峰值獲得 1.2 g (R)-1, 1,3-三甲基-4-胺基茛菪烷。

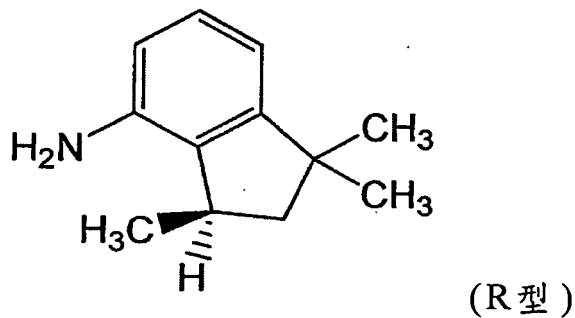
管柱：CHIRACEL(註冊商標)OD 光學活性管柱

管柱溫度：室溫

移動相：己烷及 2-丙醇之混合溶劑 (99 : 1)

流速：10 mL/min

(R)-1, 1,3-三甲基-4-胺基茛菪烷



$$[\alpha]_D^{25} = -33.7^\circ \text{ (CHCl}_3, c0.61)$$

參考製備實例 5

混合 300 g 外消旋 1,1,3-三甲基-4-胺基茛菪烷、128 g D-酒石酸及 260 ml 甲醇並將混合物保存在 70°C 下 1 小時。然後，將混合物冷卻至室溫，及與約 0.1 g 晶種混合，並將混合物靜置 2 天。濾出所得固體並以甲醇洗滌。所得固體自甲醇中再結晶 5 次，獲得 100 g 1,1,3-三甲基-4-胺基茛菪烷 D-酒石酸鹽。向 78 g 1,1,3-三甲基-4-胺基茛菪烷 D-酒石酸鹽中添加 5% 氫氧化鈉水溶液，直到 pH 達到 10 或以上，並以甲

基第三丁基醚提取混合物3次。所得油層依次以飽和鹽水及飽和碳酸氫鈉水溶液洗滌，然後在硫酸鎂上乾燥，並在減壓下濃縮，從而獲得38 g 1,1,3-三甲基-4-胺基莖烷之混合物，其中對映異構體比例(R型/S型)為99.6/0.4。

以下說明本發明組合物之調配物實例。份數為按重量計算。

調配物實例1

50份本發明羧醯胺化合物(1)至(3)中之任一種化合物、3份木質素磺酸鈣、2份月桂基硫酸鎂及45份合成水合物二氧化矽磨粉，並充分混合，獲得可濕性粉劑。

調配物實例2

20份本發明羧醯胺化合物(1)至(3)中之任一種化合物及1.5份三油酸山梨糖醇酐酯與28.5份包含2份聚乙烯醇之水溶液混合，及該混合物藉由濕磨法精細磨粉，然後，向其中添加40份包含0.05份黃原膠及0.1份矽酸鋁鎂的水溶液，另外，添加10份丙二醇，並攪拌混合，獲得調配物。

調配物實例3

將2份本發明羧醯胺化合物(1)至(3)中之任一種化合物、88份高嶺土及10份滑石磨粉，並充分混合以獲得塵粉。

調配物實例4

將5份本發明羧醯胺化合物(1)至(3)中之任一種化合物、14份聚氧乙烯苯乙基苯基醚、6份十二烷基苯磺酸鈣及75份二甲苯充分混合，得到調配物。

調配物實例5

將2份本發明羧醯胺化合物(1)至(3)中之任一種化合物、1份合成水合物二氧化矽、2份木質素磺酸鈣、30份皂土及65份高嶺土磨粉，並充分混合，然後，添加水及充分捏拌該混合物，並造粒，及乾燥獲得顆粒。

調配物實例6

將10份本發明羧醯胺化合物(1)至(3)中之任一種化合物、包含有50份聚氧乙烯烷基醚硫酸銨鹽之35份白炭及55份水混合，並藉由濕磨法精細磨粉，獲得調配物。

以下測試實例將說明本發明組合物適用於防治植物疾病。

防治效果係藉由目視觀察研究中之測試植物的病變面積，並比較利用測試組合物處理之植物的病變面積與未處理植物之病變面積。

測試實例1

預防小球殼屬球腔菌(*Mycosphaerella graminicola*)(小麥葉枯病(*Septoria tritici*))之效果測試

在塑料罐中填裝土壤，並種上小麥(品種：Apogee)，及使其在溫室生長10天。將本發明羧醯胺化合物(1)、(2)、(3)按照調配物實例6製備成調配物，然後，以水稀釋調配物至達到指定濃度(13 ppm)，並噴灑於葉面，到令人滿意地黏附在小麥葉子表面。噴灑後，植物風乾，兩天後，藉由噴灑法接種小麥葉枯病孢子之含水懸浮液。接種後，首先讓植物在潮濕條件、18°C下靜置3天，然後，在光照下靜置14至18天，繼而檢查病變面積。結果，利用本發明羧

醯胺化合物(1)、(2)、(3)處理之植物上的病變為未處理植物之病變面積之10%或更小。

進行相同測試，除了施用濃度不同外，改用外消旋 N-(1,1,3-三甲基節烷-4-基)-1-甲基-3-三氟甲基吡啶-4-甲醯胺(下文中稱為外消旋化合物 (A))代替本發明羧醯胺化合物。結果，利用50 ppm外消旋化合物 (A)處理之植物的病變面積為未處理植物之病變面積之75%或以上。

測試實例2

預防小麥葉銹菌(*Puccinia triticina*)之效果測試

在塑料罐中填裝土壤，並種上小麥(品種：Shirogane)，及使其在溫室生長10天。將本發明羧醯胺化合物(1)、(2)、(3)按照調配物實例6製備成調配物，然後，以水稀釋調配物至達到指定濃度(200 ppm)，並噴灑於葉面直到令人滿意地黏附在小麥葉子表面。五天後，藉由噴灑法接種小麥葉銹菌孢子。接種後，將植物在黑暗潮濕條件、18°C下靜置1天，然後，在光照下靜置9天，繼而檢查病變面積。結果，利用本發明羧醯胺化合物(1)、(2)、(3)處理之植物的病變面積為未處理植物之病變面積之10%或更小。

測試實例3

預防網斑病菌(*Pyrenophora teres*)之效果測試

在塑料罐中填裝土壤，並種上大麥(品種：Nishinohoshi)，及使其在溫室生長10天。將本發明羧醯胺化合物(1)、(2)、(3)按照調配物實例6製備成調配物，然後，以水稀釋調配物至達到指定濃度(200 ppm)，並噴灑

於葉面直到令人滿意地黏附在大麥葉子表面。五天後，藉由噴灑法接種網斑病菌孢子水溶液。接種後，將植物在潮濕條件、23°C下靜置3天，然後，在溫室靜置7天，繼而檢查病變面積。結果，利用本發明羧醯胺化合物(1)、(2)、(3)處理之植物的病變面積為未處理植物之病變面積之10%或更小。

測試實例4

對大豆銹病菌(*Phakopsora pachyrhizi*)之效果測試

在塑料罐中填裝土壤，並種上大豆(品種：Natto shoryu)，及使其在溫室生長直到展開單葉。將本發明羧醯胺化合物(1)按照調配物實例6製備成調配物，然後，以水稀釋調配物至達到指定濃度，並噴灑於葉面直到令人滿意地黏附在大豆葉子表面。大豆進而在溫室培養14天，並生長直到展開第一片三葉。藉由噴灑法接種大豆銹菌孢子水溶液。接種後，將植物在潮濕條件、23°C下靜置整夜，然後，在室溫靜置7天，繼而檢查第一片三葉之病變面積。

依據處理區塊及未處理區塊之病變面積，按照下式(1)計算處理區塊之效果。結果顯示於[表1]中。

效果(%)=(1-(處理區塊之病變面積)/(未處理區塊之病變面積))×100 式(1)

[表 1]

測試化合物	測試化合物之濃度(ppm)	效果(%)
本發明羧醯胺化合物(1)	50	98.1

測試實例 5

對大豆銹病菌 (*Phakopsora pachyrhizi*) 之效果測試

在塑料罐中填裝土壤，並種上大豆（品種：Natto shoryu），及使其在溫室生長直到展開單葉。將本發明羧醯胺化合物(2)及(3)及外消旋 N-(1,1,3-三甲基節烷-4-基)-1-甲基-3-二氟甲基吡唑-4-甲醯胺（下文中稱為外消旋化合物(B)）及外消旋 N-(1,1,3-三甲基節烷-4-基)-1,3,5-三甲基吡唑-4-甲醯胺（下文中稱為外消旋化合物(C)）按照調配物實例 6 製備成調配物，然後，以水稀釋調配物至達到指定濃度，並噴灑於葉面直到令人滿意地黏附在大豆葉子表面。大豆進而在室溫培養 14 天，並生長直到展開第一片三葉。藉由噴灑法在植物上接種大豆銹病菌孢子水溶液。接種後，將植物在潮濕條件、23°C 下靜置整夜，然後，在室溫靜置 7 天，繼而檢查第一片三葉之病變面積。

依據處理區塊及未處理區塊之病變面積，按照下式(1)計算處理區塊之效果。結果顯示於[表 2]中。

[表 2]

測試化合物	測試化合物 之濃度(ppm)	效果(%)
本發明羧醯胺化合物(2)	200	100
本發明羧醯胺化合物(2)	100	77.1
外消旋化合物(B)	200	46.7
本發明羧醯胺化合物(3)	200	100
本發明羧醯胺化合物(3)	100	98.4
外消旋化合物(C)	200	76.5

工業可應用性

根據本發明，得以防治植物疾病。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：100171862

※申請日：100.6.22

※IPC 分類：A01N 43/56(2006.01)

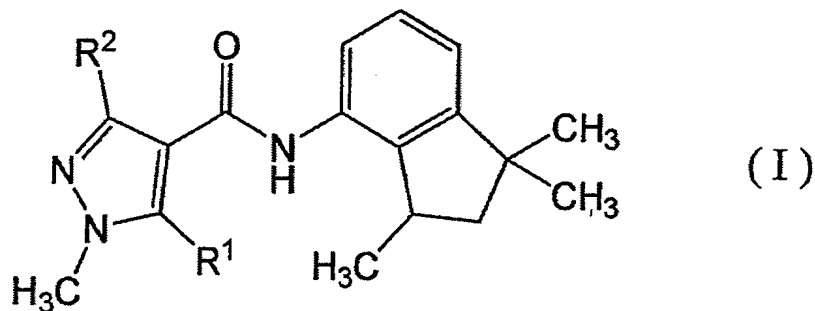
一、發明名稱：(中文/英文)

防治植物疾病之組合物及防治植物疾病之方法

PLANT DISEASE CONTROL COMPOSITION AND METHOD OF
CONTROLLING PLANT DISEASE

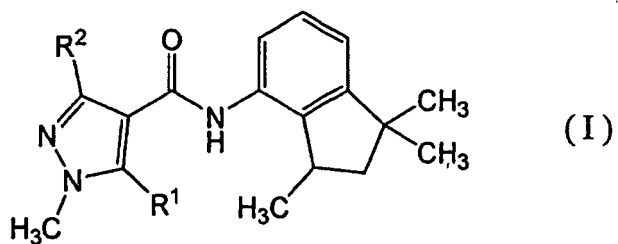
二、中文發明摘要：

本發明係關於一種防治植物疾病之組合物，其包含由式(I)表示之羧醯胺化合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上，及具有卓越的植物疾病防治活性。



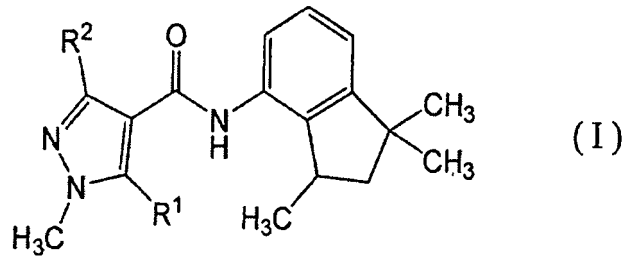
三、英文發明摘要：

A plant disease control composition comprising a carboxamide compound represented by formula (I) whose enantiomer ratio R form/S form of the carboxamide compound is 80/20 or more has an excellent plant disease controlling activity.



七、申請專利範圍：

1. 一種植物疾病防治組合物，其包含由式(I)表示之羧醯胺化合物：



，其中

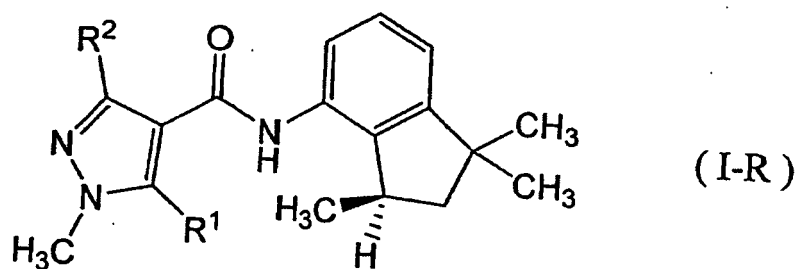
R^1 表示氫或甲基，

R^2 表示甲基、二氟甲基或三氟甲基，

且羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為80/20或以上。

2. 根據請求項1之植物疾病防治組合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為90/10至10000/1。
3. 根據請求項1之植物疾病防治組合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為95/5至10000/1。
4. 根據請求項1之植物疾病防治組合物，其中該羧醯胺化合物之R型/S型對映異構體比例為98/1至1000/1。
5. 根據請求項1之植物疾病防治組合物，其中在式(I)中， R^1 為甲基及 R^2 為甲基。
6. 根據請求項1之植物疾病防治組合物，其中在式(I)中， R^1 為氫及 R^2 為二氟甲基。
7. 根據請求項1之植物疾病防治組合物，其中在式(I)中， R^1 為氫及 R^2 為三氟甲基。

8. 一種防治植物疾病之方法，其包括利用有效量之根據請求項1之植物疾病防治組合物處理植物或植物生長的土壤的步驟。
9. 一種由式(I-R)表示之羧醯胺化合物



，其中

R^1 表示氫或甲基，

R^2 表示甲基、二氟甲基或三氟甲基。

10. 根據請求項9之羧醯胺化合物，其中 R^1 為甲基及 R^2 為甲基。
11. 根據請求項9之羧醯胺化合物，其中 R^1 為氫及 R^2 為二氟甲基。
12. 根據請求項9之羧醯胺化合物，其中 R^1 為氫及 R^2 為三氟甲基。

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：(無)

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

