



(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 104872144 B

(45)授权公告日 2017. 11. 28

(21)申请号 201510104521.6

(22)申请日 2009.08.08

(65)同一申请的已公布的文献号  
申请公布号 CN 104872144 A

(43)申请公布日 2015.09.02

(30)优先权数据  
102008037622.1 2008.08.14 DE

(62)分案原申请数据  
200980140901.8 2009.08.08

(73)专利权人 拜耳知识产权有限责任公司  
地址 德国蒙海姆

(72)发明人 E·哈克 C·沃尔德拉夫  
C·H·罗辛格 上野知惠子  
G·邦菲戈-皮卡德 S·施奈特尔  
白仓伸一

(74)专利代理机构 北京北翔知识产权代理有限公司 11285

代理人 钟守期 苏萌

(51)Int.Cl.  
A01N 43/66(2006.01)  
A01P 13/00(2006.01)  
A01G 13/00(2006.01)  
A01N 39/04(2006.01)

(56)对比文件  
WO 2007/079965 A2,2007.07.19,  
WO 2007/031208 A2,2007.03.22,  
审查员 曹慧

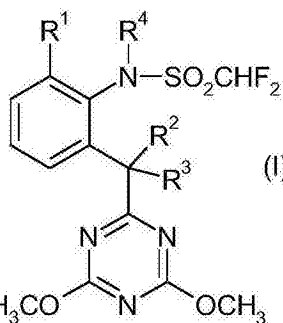
权利要求书1页 说明书34页

(54)发明名称

含有被二甲氧基三嗪基取代的二氟甲磺酰苯胺的除草结合物

(57)摘要

本发明涉及一种含有组分(A)和(B)的除草结合物,其中(A)表示一种或多种通式(I)所示的

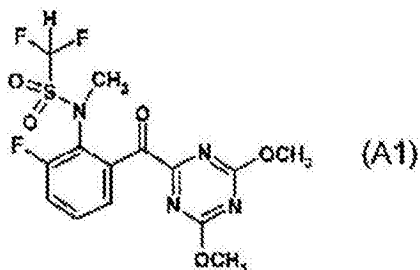


化合物或其盐:

表示卤素,优选氟或氯,R<sup>2</sup>表示氢,且R<sup>3</sup>表示羟基,或R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>与其所结合的碳原子一起表示羰基C=O,且R<sup>4</sup>表示氢或甲基;并且(B)表示一种或多种选自下列苯基醚类的除草剂:(B1-1)三氟羧草醚;(B1-2)苯草醚;(B1-3)乙羧氟草醚;(B1-4)氟磺胺草醚;(B1-5)乳氟禾草灵;(B1-6)乙氧氟草醚;(B2-1)甲羧除草醚;(B2-2)氟乳醚;(B3-1)氯

甲酰草胺;(B4-1)调果酸;(B4-2)2,4-滴丙酸;(B4-3)精2,4-滴丙酸;(B4-4)2甲4氯丙酸;(B4-5)精2甲4氯丙酸;(B5-1)4-氯苯氧乙酸;(B5-2)2,4-D;(B5-3)2甲4氯;(B5-4)酚硫杀;(B6-1)2,4-滴丁酸;(B6-2)2甲4氯丁酸;(B7-1)炔草酸;(B7-2)赛扶草;(B7-3)氯甲草;(B7-4)精恶唑禾草灵;(B7-5)吡氟禾草灵;(B7-6)精吡氟禾草灵;(B7-7)氟吡禾灵;(B7-8)吡氟氯禾灵;(B7-9)恶唑酰草胺;(B7-10)恶草酸;(B7-11)喹禾灵;(B7-12)精喹禾灵。

1. 一种含有组分 (A) 和 (B) 的除草剂结合物, 其中 (A) 表示一种由式 (A1) 所示的化合物或其盐:



并且

(B) 表示下列苯基醚类的除草剂:

(B7-2) 赛扶草;

其中组分 (A) 和 (B7-2) 的重量比 (A) : (B7-2) 在 4:75-12:25 范围内。

2. 权利要求 1 的除草剂结合物, 包括有效量的组分 (A) 和 (B), 并且另外还包括一种或多种选自不同类型的农化活性化合物、作物保护中常用的制剂助剂和添加剂的其它组分。

3. 一种防治有害植物的方法, 其中将权利要求 1 所定义的除草剂结合物中的组分 (A) 和 (B) 联合或分别施用于有害植物、其种子或无性繁殖器官、或这些植物生长的区域。

4. 权利要求 3 所要求保护的方法, 用于防治作物植物或牧草、草坪、果树种植园或非耕作区中的有害植物。

5. 权利要求 4 所要求保护的方法, 所述作物植物选自小麦、玉米、大豆、甜菜、甘蔗、棉花、稻、菜豆、亚麻、大麦、燕麦、黑麦、黑小麦、油菜、马铃薯、粟。

6. 权利要求 4 所要求保护的方法, 所述作物植物是稻作物。

7. 权利要求 5 所要求保护的方法, 所述小麦选自硬粒小麦和普通小麦。

8. 权利要求 1 所定义的除草剂结合物用于防治有害植物的用途。

## 含有被二甲氧基三嗪基取代的二氟甲磺酰苯胺的除草结合物

[0001] 本申请是2009年8月8日提交的名称为“含有被二甲氧基三嗪基取代的二氟甲磺酰苯胺的除草结合物”的200980140901.8发明专利申请的分案申请。

### 技术领域

[0002] 本发明涉及可用于防治有害植物的作物保护组合物的技术领域,例如通过播前法(掺入或不掺入)、通过芽前法或通过芽后法防治已种植或播种的作物植物例如小麦(硬粒小麦和普通小麦)、玉米、大豆、甜菜、甘蔗、棉花、稻(在旱地或水田条件下使用籼稻(indica)或粳稻(japonica)变种和杂交种/突变种/GMO而种植或播种的)、菜豆(例如矮菜豆和蚕豆)、亚麻、大麦、燕麦、黑麦、黑小麦、油菜、马铃薯、粟(高粱)、牧草、草坪/草地以及果树种植园(种植园作物)或在非耕作区(例如,住宅区或工厂的广场、铁路)中的有害植物。除了一次施用外,也可以连续施用。

[0003] 本发明涉及含有至少两种除草剂的除草剂结合物,并涉及其用于防治有害植物的用途,特别是含有N-{2-[4,6-二甲氧基-(1,3,5)三嗪-2(-羰基-或-羟甲基)]-6-卤代苯基}二氟甲磺酰胺或其N-甲基衍生物和/或其盐(下文中也称为“被二甲氧基三嗪基取代的二氟甲磺酰苯胺”)和选自苯基醚类的除草活性化合物的除草剂结合物。

### 背景技术

[0004] 已知经环状取代的磺酰胺类具有除草性质(例如WO 93/09099 A2、WO 96/41799 A1)。这些物质还包括苯基二氟甲磺酰胺,其也称为二氟甲磺酰苯胺。最后提及的化合物例如为单或多取代的苯基衍生物,尤其是被二甲氧基嘧啶基(例如WO 00/006553A1)或二甲氧基三嗪基取代,且还另外被卤素取代(例如WO 2005/096818 A1、WO 2007/031208 A2)。

[0005] 然而,选自N-{2-[4,6-二甲氧基-(1,3,5)三嗪-2(-羰基-或-羟甲基)]-6-卤代苯基}二氟甲磺酰胺(记载于WO 2005/096818 A1)和其N-甲基衍生物(首次与杀菌剂相关地记载于WO 2006/008159 A1以及作为除草剂记载于WO 2007/031208 A2和JP 2007-213330(未公布))的具体化合物,其除草性质并非在所有方面都完全令人满意。

[0006] 被二甲氧基三嗪基取代的二氟甲磺酰苯胺针对有害植物(阔叶杂草,禾本科杂草,莎草科植物;下文统称为“杂草”)的除草活性已经是高活性,但是其一般取决于施用率、所述剂型、每一种情况下待防治的有害植物或有害植物的种类范围、气候和土壤条件等等。与此相关的其它标准是除草剂的作用持续时间或分解速率、与一般作物植物的相容性和作用速率(起效更快)、对后作物的活性范围和作用(补植问题)或施用的一般适应性(各种生长阶段的杂草防治)。如果合适,还必须考虑有害植物的感病性变化,其可在除草剂的长期使用或在有限的地理区域(耐受性或抗性杂草物种的防治)中发生。在个别植物的情况下通过提高除草剂的施用率只可能在一定程度上补偿作用损失,例如因为该方法降低了除草剂的选择性,或者因为即使在更高施用率时作用仍未改善。

[0007] 因此,常需要针对特定杂草物种的目标协同活性、具有更好的整体选择性的杂草防治、用于获得相同良好防治结果的普遍更低含量的活性化合物以及减少活性化合物进入

环境以避免例如淋溶和残效。还需要开发只要一次施用以避免劳动力密集的多次施用,还需要开发用于控制作用速率的系统,其中除了一开始快速防治杂草之外,也需要较慢的残留防治。

[0008] 上述问题的一种可能解决方法可是提供这样一种除草剂结合物,即多种除草剂和/或提供需要的另外性质的选自不同类型农化活性化合物及作物保护中常用的制剂助剂和添加剂的其它组分的混合物。然而,在多种活性化合物的结合使用中,常有化学、物理或生物不相容性的现象,例如联合制剂缺乏稳定性、活性化合物分解或活性化合物生物活性的拮抗作用。针对这些理由,潜在合适的结合物必须以指定方式予以选择并针对其适合性予以进行实验测试,不可能确定地预期先前实验的负面或正面的结果。

[0009] 上述化合物的非-N-甲基衍生物的混合物原则上是已知的(例如W02007/079965 A2);然而,与其它除草剂的混合物的效力只在被二甲氧基嘧啶基取代的苯基衍生物的个别情况下被确认。另外,还有选自上述化合物中经选择的N-甲基衍生物与一些结合组分的混合物(PCT/EP2008/000870,未公布的)。

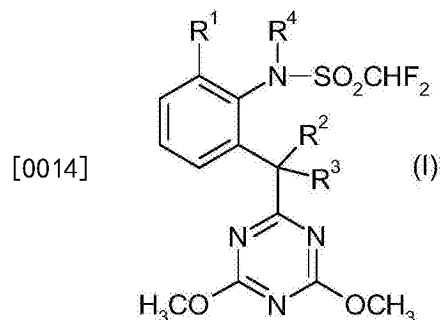
## 发明内容

[0010] 本发明的目的是提供作物保护组合物以作为现有技术的另一选择或其改良。

[0011] 出人意外地,现已发现此目的可以通过以下除草剂结合物实现:由被二甲氧基三嗪基取代的二氟甲磺酰苯胺与选自苯基醚类的结构上不同的除草剂结合组成的除草剂结合物,其以特别有利的方式一起作用,例如当其用于防治已播种和/或种植的作物植物例如小麦(硬粒小麦和普通小麦)、玉米、大豆、甜菜、甘蔗、棉花、稻(在旱地或水田条件下使用籼稻或粳稻变种和杂交种/突变种/GMO而种植或播种)、菜豆(例如矮菜豆和蚕豆)、亚麻、大麦、燕麦、黑麦、黑小麦、油菜、马铃薯、粟(高粱)、牧草、草坪/草地,以及果树种植园(种植园作物)或在非耕作区(例如,住宅区或工厂的广场、铁路)中的有害植物;特别是稻作物(在旱地或水田条件下使用籼稻或粳稻变种和杂交种/突变种/GMO而种植或播种)中的有害植物。

[0012] 选自苯基醚类的化合物作为用于防治有害植物的除草活性化合物是已知的,参见例如DE 2311638、US 4394159、EP 20052、EP 3416、US 3798276、GB 1232368、DE 394015、US 4465507、US 2957790、GB820180、US 3708278、CA 570065、GB 758980、US 4713109、US 4894085、DE 2136828、GB 2042503、GB 1599121、GB 2055802、W0 200005956、EP 52798、GB 2042539、EP 133034和上述公布文本中引用的文献。

[0013] 因此,本发明提供含有组分(A)和(B)的除草剂结合物,其中(A)表示一种或多种选自通式(I)所示的化合物或其盐:



[0015] 其中

- [0016] R<sup>1</sup>是卤素,优选氟或氯,
- [0017] R<sup>2</sup>是氢,且R<sup>3</sup>是羟基,或
- [0018] R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>与其所连接的碳原子一起为羰基C=O,且
- [0019] R<sup>4</sup>是氢或甲基;
- [0020] 且
- [0021] (B)表示一种或多种选自下列苯基醚类的除草剂:
- [0022] 由下列物质所组成的硝基苯基醚类亚组(亚组1):
- [0023] (B1-1)三氟羧草醚(acifluorfen,PM#8),例如5-[2-氯-4-(三氟甲基)苯氧基]-2-硝基苯甲酸;还包括其盐,特别是钠盐(例如5-[2-氯-4-(三氟甲基)苯氧基]-2-硝基苯甲酸钠)(施用率:10-800g AS/ha,优选20-500g AS/ha;重量比A:B=1:800-50:1,优选1:100-10:1);
- [0024] (B1-2)苯草醚(aclonifen,PM#9),例如2-氯-6-硝基-3-苯氧基苯胺;还包括其盐,特别是钠盐(施用率:10-5000g AS/ha,优选80-3000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:600-3:1);
- [0025] (B1-3)乙羧氟草醚(fluoroglycofen,PM#393),例如5-[2-氯-4-(三氟甲基)苯氧基]-2-硝基苯甲酸羧甲酯;还包括其盐和酯类,特别是乙酯(例如乙羧氟草醚(fluoroglycofen-ethyl))(施用率:1-600g AS/ha,优选2-500g AS/ha;重量比A:B=1:600-500:1,优选1:100-100:1);
- [0026] (B1-4)氟磺胺草醚(fomesafen,PM#413),例如5-[2-氯-4-(三氟甲基)苯氧基]-N-(甲磺酰基)-2-硝基苯甲酰胺;还包括其盐,特别是钠盐(例如氟磺胺草醚(fomesafen-sodium))(施用率:10-5000g AS/ha,优选20-4000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-10:1);
- [0027] (B1-5)乳氟禾草灵(lactofen,PM#503),例如(±)5-[2-氯-4-(三氟甲基)苯氧基]-2-硝基苯甲酸2-乙氧基-1-甲基-2-酮基乙酯(施用率:10-500g AS/ha,优选20-400g AS/ha;重量比A:B=1:500-50:1,优选1:80-10:1);
- [0028] (B1-6)乙氧氟草醚(oxyfluorfen,PM#628),例如2-氯-1-(3-乙氧基-4-硝基苯氧基)-4-(三氟甲基)苯(施用率:10-4000g AS/ha,优选20-3000g AS/ha;重量比A:B=1:4000-50:1,优选1:600-10:1);
- [0029] 由下列物质所组成的二苯基醚类的亚组(亚组2):
- [0030] (B2-1)甲羧除草醚(bifenox,PM#77),例如5-(2,4-二氯苯氧基)-2-硝基苯甲酸甲酯(施用率:10-5000g AS/ha,优选50-3000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:600-4:1);
- [0031] (B2-2)氟乳醚(HC-252,PM#441,ethoxyfen-ethyl),例如0-[2-氯-5-(2-氯- $\alpha,\alpha$ , $\alpha$ -三氟-对-甲苯基氧基)苯甲酰基]-L-乳酸乙酯;还包括其酸(氟草醚(ethoxyfen))(施用率:10-5000g AS/ha,优选30-4000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-7:1);
- [0032] 由下列物质所组成的苯氧基除草剂的亚组(亚组3):
- [0033] (B3-1)氯甲酰草胺(clomeprop,PM#163),例如(±)-2-(2,4-二氯-3-甲基苯氧基)-N-苯基丙酰胺(施用率:10-5000g AS/ha,优选20-3000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-7:1);

[0034] 由下列物质所组成的苯氧基丙酰基除草剂的亚组(亚组4):

[0035] (B4-1) 调果酸(cloprop, PM#164), 例如(±)-2-(3-氯苯氧基)丙酸(施用率:10-5000g AS/ha, 优选20-3000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0036] (B4-2) 2,4-滴丙酸(dichlorprop, PM#239), 例如(±)-2-(2,4-二氯苯氧基)丙酸-外消旋物, 还包括酯类和盐类(例如2,4-滴丙酸-丁氧基乙酯(dichlorprop-butotyl)、2,4-滴丙酸-二甲基铵(dichlorprop-dimethylammonium)、2,4-滴丙酸-异辛酯(dichlorprop-isooctyl)、2,4-滴丙酸钾(dichlorprop-potassium)) (施用率:10-5000g AS/ha, 优选20-3000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0037] (B4-3) 精2,4-滴丙酸(dichlorprop-P, PM#240), 例如(+)-2-(2,4-二氯苯氧基)丙酸-只有具除草活性的(+)-异构体, 还包括酯类和盐类(例如精2,4-滴丙酸-二甲基铵(dichlorprop-P-dimethylammonium)、精2,4-滴丙酸-钾(dichlorprop-P-potassium)、精2,4-滴丙酸-钠(dichlorprop-P-sodium)) (施用率:10-5000g AS/ha, 优选20-3000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0038] (B4-4) 2甲4氯丙酸(mecoprop, PM#521), 又称为CMPP, 例如(±)-2-(4-氯-2-甲基苯氧基)丙酸-外消旋物, 还包括酯类和盐类(例如2甲4氯丙酸-丁氧基乙酯(mecoprop-butotyl)、2甲4氯丙酸钠(mecoprop-sodium)) (施用率:10-5000g AS/ha, 优选20-3000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0039] (B4-5) 精2甲4氯丙酸(mecoprop-P, PM#522), 又称为CMPP-P, 例如(+)-(R)-2-(4-氯-2-甲基苯氧基)丙酸-只有具除草活性的(R)-(+)-异构体, 还包括酯类和盐类(例如精2甲4氯丙酸-丁氧基乙酯(mecoprop-P-butotyl)、精2甲4氯丙酸-二甲基铵(mecoprop-P-dimethylammonium)、精2甲4氯丙酸-2-乙基己酯(mecoprop-P-2-ethylhexyl)、精2甲4氯丙酸钾(mecoprop-P-potassium)) (施用率:10-5000g AS/ha, 优选20-3000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0040] 由下列物质所组成的苯氧基乙酰基除草剂的亚组(亚组5):

[0041] (B5-1) 4-氯苯氧乙酸(4-CPA, PM#179), 例如(4-氯苯氧基)乙酸(施用率:10-5000g AS/ha, 优选30-4000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0042] (B5-2) 2,4-D (PM#214), 例如(2,4-二氯苯氧基)乙酸, 也包括其常用形式:2,4-D-丁氧基乙酯(2,4-D-butotyl)、2,4-D-丁酯(2,4-D-butyl)、2,4-D-二甲基铵(2,4-D-dimethylammonium)、2,4-D-二乙醇胺(2,4-D-diethanolamine, 2,4-D-diethanolammonium)、2,4-D-乙酯(2,4-D-ethyl)、2,4-D-2-乙基己酯(2,4-D-2-ethylhexyl)、2,4-D-异丁酯(2,4-D-isobutyl)、2,4-D-异辛酯(2,4-D-isooctyl)、2,4-D-异丙酯(2,4-D-isopropyl)、2,4-D-异丙基铵(2,4-D-isopropylammonium)、2,4-D-钠(2,4-D-sodium)、2,4-D-三异丙醇铵(2,4-D-triisopropanolammonium)、2,4-D-三乙醇胺(2,4-D-trolamine, 2,4-D-triethanolammonium) (施用率:10-5000g AS/ha, 优选30-4000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0043] (B5-3) 2甲4氯(MCPA, PM#517), 例如(4-氯-2-甲基苯氧基)乙酸, 也包括其常用的形式:2甲4氯-丁氧基乙酯(MCPA-butotyl)、2甲4氯-二甲基铵(MCPA-dimethylammonium)、2甲4氯-异辛酯(MCPA-isooctyl)、2甲4氯-钠(MCPA-sodium)、2甲4氯-钾(MCPA-potassium)、2甲4氯-2-乙基己酯(MCPA-2-ethylhexyl) (施用率:10-5000g AS/ha, 优选30-4000g AS/ha;

重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-7:1);

[0044] (B5-4) 酚硫杀(MCPA-thioethyl,PM#518),例如(4-氯-2-甲基苯氧基)硫代乙酸S-乙酯(施用率:10-5000g AS/ha,优选30-4000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-7:1);

[0045] 由下列物质所组成的苯氧基丁酰基除草剂的亚组(亚组6):

[0046] (B6-1) 2,4-滴丁酸(2,4-DB,PM#220),例如(2,4-二氯苯氧基)丁酸,也包括其常用的形式:2,4-滴丁酸-丁酯(2,4-DB-butyl)、2,4-滴丁酸-二甲基铵(2,4-DB-dimethylammonium)、2,4-滴丁酸-异辛酯(2,4-DB-isooctyl)、2,4-滴丁酸-钾(2,4-DB-potassium)、2,4-滴丁酸-钠(2,4-DB-sodium)(施用率:10-5000g AS/ha,优选30-4000gAS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-7:1);

[0047] (B6-2) 2甲4氯丁酸(MCPB,PM#519),例如(4-氯-2-甲基苯氧基)丁酸,也包括其常用的形式:2甲4氯丁酸-甲酯(MCPB-methyl)、2甲4氯丁酸-乙酯(MCPB-ethyl)、2甲4氯丁酸-钠(MCPB-sodium)(施用率:10-5000g AS/ha,优选30-4000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-50:1,优选1:800-7:1);

[0048] 由下列物质所组成的芳氧基苯氧基丙酰基除草剂亚组(亚组7):

[0049] (B7-1) 炔草酸(clodinafop,PM#160),例如(2R)-2-[4-[(5-氯-3-氟-2-吡啶基)氧基]苯氧基]丙酸,也包括其酯类,特别是炔丙酯(例如(2R)-2-[4-[(5-氯-3-氟-2-吡啶基)氧基]苯氧基]丙酸2-丙炔酯)(施用率:1-500g AS/ha,优选3-300g AS/ha;重量比A:B=1:500-500:1,优选1:60-70:1);

[0050] (B7-2) 赛扶草(cyhalofop,PM#198),例如(2R)-2-[4-(4-氰基-2-氟苯氧基)苯氧基]丙酸,也包括其盐和酯类,特别是丁酯,赛扶草丁酯(cyhalofop-butyl)(例如(2R)-2-[4-(4-氰基-2-氟苯氧基)苯氧基]丙酸丁酯)(施用率:1-800g AS/ha,优选3-500g AS/ha;重量比A:B=1:800-500:1,优选1:100-70:1);

[0051] (B7-3) 氯甲草(diclofop,PM#243),例如(±)-2-[4-(2,4-二氯苯氧基)苯氧基]丙酸,也包括其酯类,特别是氯甲草-甲酯(diclofop-methyl)(例如2-[4-(2,4-二氯苯氧基)苯氧基]丙酸甲酯),为外消旋物或异构体,特别是氯甲草-P-甲酯(diclofop-P-methyl)(PM#244;例如(+)-2-[4-(2,4-二氯苯氧基)苯氧基]丙酸甲酯(施用率:50-5000gAS/ha,优选100-3000g AS/ha;重量比A:B=1:5000-10:1,优选1:600-2:1);

[0052] (B7-4) 精恶唑禾草灵(fenoxaprop-P)和其酯类,例如乙酯(PM#351),例如(R)-2-[4-(6-氯苯并噁唑-2-基氧基)苯氧基]丙酸或(R)-2-[4-(6-氯苯并噁唑-2-基氧基)苯氧基]丙酸乙酯,也包括外消旋的恶唑禾草灵(fenoxaprop,fenoxaprop-ethyl,PM#1190)(施用率:2-800g AS/ha,优选5-500g AS/ha;重量比A:B=1:800-250:1,优选1:100-40:1);

[0053] (B7-5) 吡氟禾草灵(fluzafop)和其酯类,例如丁酯(PM#372),例如外消旋物形式的(RS)-2-[4-(5-三氟甲基吡啶基-2-基氧基)苯氧基]丙酸和(RS)-2-[4-(5-三氟甲基吡啶基-2-基氧基)苯氧基]丙酸丁酯(施用率:1-1000g AS/ha,优选2-800g AS/ha;重量比A:B=1:1000-500:1,优选1:800-100:1);

[0054] (B7-6) 精吡氟禾草灵(fluzafop-P)和其酯类,例如丁酯(PM#373),例如(R)-2-[4-(5-三氟甲基吡啶基-2-基氧基)苯氧基]丙酸和(R)-2-[4-(5-三氟甲基吡啶基-2-基氧基)苯氧基]丙酸丁酯(施用率:1-800g AS/ha,优选2-500g AS/ha;重量比A:B=1:800-500:

1, 优选1:100-100:1);

[0055] (B7-7) 氟吡禾灵 (haloxyfop) 和其酯类, 例如乙氧基乙酯 (etotyl ester) (PM# 439), 例如 (R,S)-2-[4-(3-氯-5-三氟甲基吡啶-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸和 (R,S)-2-[4-(3-氯-5-三氟甲基吡啶-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸乙氧基乙酯, 还有甲酯 (施用率: 1-800g AS/ha, 优选2-500g AS/ha; 重量比A:B=1:800-500:1, 优选1:100-100:1);

[0056] (B7-8) 吡氟氯禾灵 (haloxyfop-P) 和其酯类, 例如甲酯 (PM#440), 例如 (R)-2-[4-(3-氯-5-三氟甲基吡啶-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸和 (R)-2-[4-(3-氯-5-三氟甲基吡啶-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸甲酯, 还有乙氧基乙酯 (施用率: 1-800g AS/ha, 优选2-500g AS/ha; 重量比A:B=1:800-500:1, 优选1:100-100:1);

[0057] (B7-9) 恶唑酰草胺 (metamifop, PM#539), 例如 (R)-2-[4-[(6-氯-2-苯并噁唑基) 氧基] 苯氧基]-N-(2-氟苯基)-N-甲基丙酰胺 (施用率: 10-5000g AS/ha, 优选30-4000g AS/ha; 重量比A:B=1:5000-50:1, 优选1:800-7:1);

[0058] (B7-10) 恶草酸 (propaquizafop, PM#691), 例如2-[4-[(6-氯-2-喹啉基) 氧基] 苯氧基] 丙酸 (R)-2-[[ (1-甲基亚乙基) 氨基] 氧基] 乙酯 (施用率: 1-800g AS/ha, 优选2-500g AS/ha; 重量比A:B=1:800-500:1, 优选1:100-100:1);

[0059] (B7-11) 喹禾灵 (quizalofop) 和其酯类, 例如乙酯 (PM#737), 例如外消旋物形式的 (RS)-2-[4-(6-氯喹啉-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸和 (RS)-2-[4-[(6-氯喹啉-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸乙酯 (施用率: 1-800g AS/ha, 优选2-500g AS/ha; 重量比A:B=1:800-500:1, 优选1:100-100:1);

[0060] (B7-12) 精喹禾灵 (quizalofop-P) 和其酯类, 例如乙酯或四氢糠酯 (PM#738), 例如 (R)-2-[4-(6-氯喹啉-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸或 (R)-2-[4-(6-氯喹啉-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸乙酯或 (R)-2-[4-(6-氯喹啉-2-基氧基) 苯氧基] 丙酸四氢糠酯 (施用率: 1-800g AS/ha, 优选2-500g AS/ha; 重量比A:B=1:800-500:1, 优选1:100-100:1);

[0061] 其中排除记载于PCT/EP 2008/000870 (未公开) 的以下结合物:

[0062] 1. 通式(I) 的化合物, 其中R<sup>1</sup>是氟, R<sup>2</sup>和R<sup>3</sup>是羰基C=O, R<sup>4</sup>是甲基,

[0063] 和

[0064] 化合物B3-1 (氯甲酰草胺);

[0065] 2. 通式(I) 的化合物, 其中R<sup>1</sup>是氟, R<sup>2</sup>是氢, R<sup>3</sup>是羟基, R<sup>4</sup>是甲基,

[0066] 和

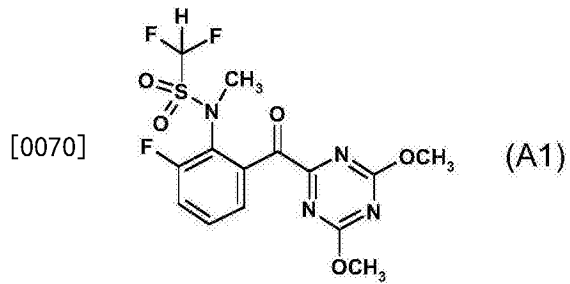
[0067] 化合物B3-1 (氯甲酰草胺)。

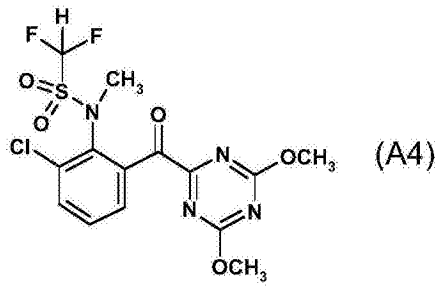
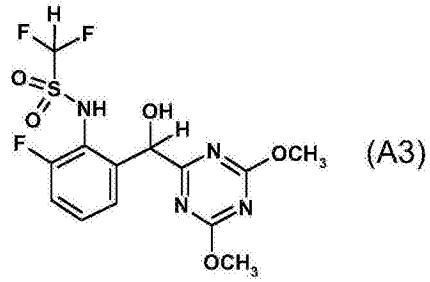
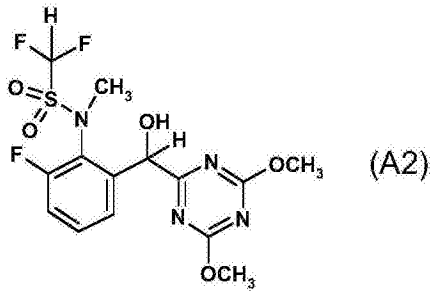
[0068] 以上组B中所提及的化合物依据国际标准化组织 (International Organization for Standardization, ISO) 以“通用名”命名或化学名称命名或以代号 (开发号) 命名; 如由例如以下来源可知:《农药手册 (The Pesticide Manual)》, 第14版2006/2007或者“农药手册电子版 (The e-Pesticide Manual)”, 版本4.0 (2006-07), 均由英国农作物保护委员会 (British Crop Protection Council) (缩写: “PM#..” 加上各自顺序登记编号) 出版, 和其中所引用的文献; “The Compendium of Pesticide Common Names” (缩写: “CPCN”; 互联网网址: <http://www.alanwood.net/pesticides/>) 和/或其它来源。除非未经更明确地定义, 否则上述名字的使用, 例如以“通用名”的简称, 包括每一种情况下所有使用形式 (衍生物), 例如酸类、盐类、酯类和异构体 (如立体异构体和旋光异构体)。组B中所提及的除草剂的市



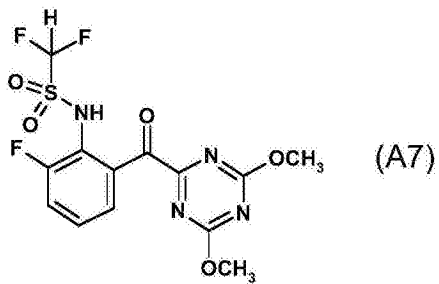
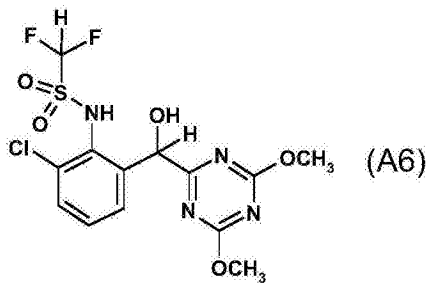
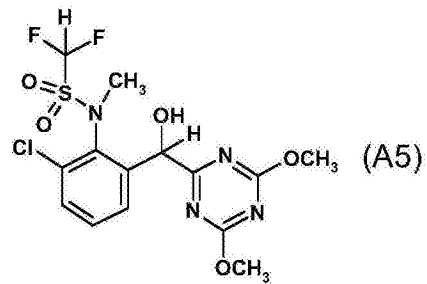
售使用形式是优选的。在此,以上缩写“AS/ha”是指“活性物质/公顷”且基于100%纯的活性化合物。

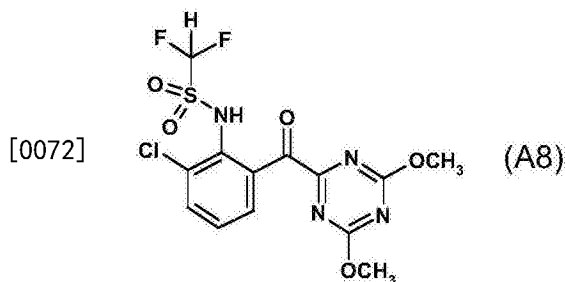
[0069] 优选的组分(A)是式(A1)、(A2)、(A3)、(A4)、(A5)、(A6)、(A7)和(A8)的以下化合物(A-1)至(A-8)或其盐:





[0071]





[0073] 特别优选作为组分(A)是化合物(A-1)、(A-2)和(A-3)。

[0074] 优选作为组分(B)的化合物是：

[0075] (B1-2) 苯草醚、(B1-4) 氟磺胺草醚、(B1-5) 乳氟禾草灵、(B1-6) 乙氧氟草醚、(B3-1) 氯甲酰草胺、(B4-3) 精2,4-滴丙酸、(B4-5) 精2甲4氯丙酸、(B5-2) 2,4-D、(B5-3) 2甲4氯、(B7-1) 炔草酸、(B7-2) 赛扶草、(B7-3) 氯甲草、(B7-4) 精恶唑禾草灵、(B7-8) 吡氟氯禾灵、(B7-9) 恶唑酰草胺、(B7-10) 恶草酸、(B7-12) 精喹禾灵,特别优选(B1-2) 苯草醚、(B1-5) 乳氟禾草灵、(B3-1) 氯甲酰草胺、(B4-3) 精2,4-滴丙酸、(B5-2) 2,4-D、(B7-1) 炔草酸、(B7-2) 赛扶草、(B7-3) 氯甲草、(B7-4) 精恶唑禾草灵。

[0076] 本发明的除草剂结合物可另外还包括其它组分：例如，不同类型的农化活性化合物和/或作物保护中常用的制剂助剂和/或添加剂；或者其可与这些物质一起使用。下文，术语“除草剂结合物”或“结合物”的使用也包括以此方式形成的“除草组合物”。

[0077] 式(I)化合物能形成盐。盐形成可由使碱作用于带有酸性氢原子的那些式(I)化合物而发生。合适的碱例如：有机胺类，例如三烷基胺；吗啉、哌啶或吡啶；且还有铵；碱金属或碱土金属的氢氧化物、碳酸盐和碳酸氢盐，特别是氢氧化钠和氢氧化钾、碳酸钠和碳酸钾以及碳酸氢钠和碳酸氢钾；碱金属或碱土金属的醇盐，特别是甲醇钠、乙醇钠、正丙醇钠、异丙醇钠、正丁醇钠、叔丁醇钠或甲醇钾、乙醇钾、正丙醇钾、异丙醇钾、正丁醇钾、叔丁醇钾。这些盐为其中酸性氢被农用适当的阳离子取代的化合物，例如：金属盐类，特别是碱金属盐或碱土金属盐，尤其是钠盐或钾盐；或者铵盐类、与有机胺的盐类或季铵盐类，如与式 $[NRR'R'']^+$ 阳离子，其中R至R''各自彼此独立地为有机基团(特别是烷基、芳基、芳烷基或烷芳基)。同样，合适的为烷基铊盐和烷基氧化铊盐，例如(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)-三烷基铊盐和(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)-三烷基氧化铊盐。通过适当的无机酸或有机酸，例如，无机酸如HCl、HBr、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>或HNO<sub>3</sub>，或者有机酸如羧酸(例如甲酸、乙酸、丙酸、草酸、乳酸或水杨酸)或磺酸(例如对甲苯磺酸)，与碱性基团(例如氨基、烷基氨基、二烷基氨基、哌啶子基、吗啉代或吡啶并)形成加成物，式(I)化合物也能形成盐。这些盐则包括该酸的共轭碱作为阴离子。

[0078] 下文中，术语“除草剂”、“单个除草剂”、“化合物”或“活性化合物”也同义用于文中的术语“组分”。

[0079] 在优选的实施方案中，本发明的除草剂结合物包括有效量的除草剂(A)和(B)，并且/或者具有协同作用。例如，当一起施用除草剂(A)和(B)时，例如以共同制剂或桶混物的形式，可以观察到协同作用；然而，当活性化合物在不同时间(分开)施用时也可以观察到协同作用。也可以多个部分施用(连续施用)除草剂或除草剂结合物，例如：芽前施用，接着芽后施用；或芽后早期施用，接着芽后中期或后期施用。优选在此所讨论的结合物中除草剂(A)和(B)联合或几乎同时施用，特别优选联合施用。

[0080] 协同效果使得单个除草剂的施用率可降低，在相同施用率时可有较高药效，可对

迄今为止尚未得以防治(缺口)的物种进行防治,可对单个除草剂或许多除草剂有耐受性或抗性的物种进行防治,施用周期可延长和/或单个施用所需要的次数可减少,且可因此为使用者提供在经济上和生态上更有利的杂草防治系统。

[0081] 例如,除草剂(A)+(B)的本发明结合物以显然且意外地超出使用单个除草剂(A)和(B)可产生的活性的方式使得活性协同增加。

[0082] 所述式(I)包括所有的立体异构体及其混合物,特别是外消旋混合物,和——如果对映异构体是可能的——具有生物活性的各种对映异构体。这也适用于式(I)可能的旋转异构体。

[0083] 组(A)的除草剂主要抑制植物内的乙酰乳酸合成酶(ALS)并从而抑制蛋白质的生物合成。除草剂(A)的施用率可以在宽范围内改变,例如0.1g至1000g AS/ha(下文,AS/ha指的是“活性物质/公顷”=基于100%纯的活性化合物)。当以播前、植前或者萌芽前或后的方法使用时,以施用率0.1g至1000g AS/ha施用,除草剂(A)——优选化合物(A-1)至(A-8)——防治相当宽种类范围的有害植物(例如一年生和多年生单-或双子叶阔叶杂草、禾本科杂草和莎草科)和有害的作物植物。对于本发明的结合物,施用率通常更低,例如0.1g至500g AS/ha,优选0.5g至200g AS/ha,特别优选1g至150g AS/ha。

[0084] 例如,组(B)的除草剂对原卟啉原氧化酶、植物生长激素作用和乙酰辅酶A羧化酶具有效果,并且其既适合于芽前施用也适合于芽后施用。除草剂(B)的施用率可以在宽范围内变化,例如1g至5000g AS/ha(下文,AS/ha指的是“活性物质/公顷”=基于100%纯的活性化合物)。当以芽前和芽后方法使用时,以施用率0.1g至5000g AS/ha施用,除草剂(B)——优选化合物(B1-2)、(B1-4)、(B1-5)、(B1-6)、(B3-1)、(B4-3)、(B4-5)、(B5-2)、(B5-3)、(B7-1)、(B7-2)、(B7-3)、(B7-4)、(B7-8)、(B7-9)、(B7-10)和(B7-12)——防治相当宽种类范围的有害植物(例如一年生和多年生单-或双子叶阔叶杂草、禾本科杂草和莎草科)和有害的作物植物。对于本发明的结合物,施用率通常更低,例如1g至5000g AS/ha,优选2g至4000g AS/ha,特别优选5g至3000g AS/ha。

[0085] 优选一种或多种除草剂(A)和一种或多种除草剂(B)的除草剂结合物。更优选除草剂(A)与一种或多种除草剂(B)的结合物。在此,根据本发明,结合物另外还包括一种或多种其它农化活性化合物,所述化合物不同于除草剂(A)和(B)但也可作为选择性除草剂起作用。

[0086] 对于三种或更多种活性化合物的结合物,下面所示例说明的优选条件——特别是针对本发明的二组分结合物的——基本上也适用,条件是其包括本发明的二组分结合物。

[0087] 例如,通过参考单个化合物的所述施用率可以获得化合物(A)和(B)的适当比例范围。在本发明的结合物中,施用率通常可降低。结合的除草剂(A):(B)于本发明的结合物中的优选混合比例是下面重量比:

[0088] 组分(A)和(B)的重量比(A):(B)通常在1:5000至500:1,优选1:4000至200:1,特别是1:2000至100:1范围内。

[0089] 特别令人关注的是具有下面化合物(A)+(B)的除草剂结合物的使用:

[0090] (A-1)+(B1-1), (A-1)+(B1-2), (A-1)+(B1-3), (A-1)+(B1-4), (A-1)+(B1-5), (A-1)+(B1-6), (A-1)+(B2-1), (A-1)+(B2-2), (A-1)+(B3-1), (A-1)+(B4-1), (A-1)+(B4-2), (A-1)+(B4-3), (A-1)+(B4-4), (A-1)+(B4-5), (A-1)+(B5-1), (A-1)+(B5-2), (A-1)+(B5-

3), (A-1) + (B5-4), (A-1) + (B6-1), (A-1) + (B6-2), (A-1) + (B7-1), (A-1) + (B7-2), (A-1) + (B7-3), (A-1) + (B7-4), (A-1) + (B7-5), (A-1) + (B7-6), (A-1) + (B7-7), (A-1) + (B7-8), (A-1) + (B7-9), (A-1) + (B7-10), (A-1) + (B7-11), (A-1) + (B7-12);

[0091] (A-2) + (B1-1), (A-2) + (B1-2), (A-2) + (B1-3), (A-2) + (B1-4), (A-2) + (B1-5), (A-2) + (B1-6), (A-2) + (B2-1), (A-2) + (B2-2), (A-2) + (B3-1), (A-2) + (B4-1), (A-2) + (B4-2), (A-2) + (B4-3), (A-2) + (B4-4), (A-2) + (B4-5), (A-2) + (B5-1), (A-2) + (B5-2), (A-2) + (B5-3), (A-2) + (B5-4), (A-2) + (B6-1), (A-2) + (B6-2), (A-2) + (B7-1), (A-2) + (B7-2), (A-2) + (B7-3), (A-2) + (B7-4), (A-2) + (B7-5), (A-2) + (B7-6), (A-2) + (B7-7), (A-2) + (B7-8), (A-2) + (B7-9), (A-2) + (B7-10), (A-2) + (B7-11), (A-2) + (B7-12);

[0092] (A-3) + (B1-1), (A-3) + (B1-2), (A-3) + (B1-3), (A-3) + (B1-4), (A-3) + (B1-5), (A-3) + (B1-6), (A-3) + (B2-1), (A-3) + (B2-2), (A-3) + (B3-1), (A-3) + (B4-1), (A-3) + (B4-2), (A-3) + (B4-3), (A-3) + (B4-4), (A-3) + (B4-5), (A-3) + (B5-1), (A-3) + (B5-2), (A-3) + (B5-3), (A-3) + (B5-4), (A-3) + (B6-1), (A-3) + (B6-2), (A-3) + (B7-1), (A-3) + (B7-2), (A-3) + (B7-3), (A-3) + (B7-4), (A-3) + (B7-5), (A-3) + (B7-6), (A-3) + (B7-7), (A-3) + (B7-8), (A-3) + (B7-9), (A-3) + (B7-10), (A-3) + (B7-11), (A-3) + (B7-12);

[0093] (A-4) + (B1-1), (A-4) + (B1-2), (A-4) + (B1-3), (A-4) + (B1-4), (A-4) + (B1-5), (A-4) + (B1-6), (A-4) + (B2-1), (A-4) + (B2-2), (A-4) + (B3-1), (A-4) + (B4-1), (A-4) + (B4-2), (A-4) + (B4-3), (A-4) + (B4-4), (A-4) + (B4-5), (A-4) + (B5-1), (A-4) + (B5-2), (A-4) + (B5-3), (A-4) + (B5-4), (A-4) + (B6-1), (A-4) + (B6-2), (A-4) + (B7-1), (A-4) + (B7-2), (A-4) + (B7-3), (A-4) + (B7-4), (A-4) + (B7-5), (A-4) + (B7-6), (A-4) + (B7-7), (A-4) + (B7-8), (A-4) + (B7-9), (A-4) + (B7-10), (A-4) + (B7-11), (A-4) + (B7-12);

[0094] (A-5) + (B1-1), (A-5) + (B1-2), (A-5) + (B1-3), (A-5) + (B1-4), (A-5) + (B1-5), (A-5) + (B1-6), (A-5) + (B2-1), (A-5) + (B2-2), (A-5) + (B3-1), (A-5) + (B4-1), (A-5) + (B4-2), (A-5) + (B4-3), (A-5) + (B4-4), (A-5) + (B4-5), (A-5) + (B5-1), (A-5) + (B5-2), (A-5) + (B5-3), (A-5) + (B5-4), (A-5) + (B6-1), (A-5) + (B6-2), (A-5) + (B7-1), (A-5) + (B7-2), (A-5) + (B7-3), (A-5) + (B7-4), (A-5) + (B7-5), (A-5) + (B7-6), (A-5) + (B7-7), (A-5) + (B7-8), (A-5) + (B7-9), (A-5) + (B7-10), (A-5) + (B7-11), (A-5) + (B7-12);

[0095] (A-6) + (B1-1), (A-6) + (B1-2), (A-6) + (B1-3), (A-6) + (B1-4), (A-6) + (B1-5), (A-6) + (B1-6), (A-6) + (B2-1), (A-6) + (B2-2), (A-6) + (B3-1), (A-6) + (B4-1), (A-6) + (B4-2), (A-6) + (B4-3), (A-6) + (B4-4), (A-6) + (B4-5), (A-6) + (B5-1), (A-6) + (B5-2), (A-6) + (B5-3), (A-6) + (B5-4), (A-6) + (B6-1), (A-6) + (B6-2), (A-6) + (B7-1), (A-6) + (B7-2), (A-6) + (B7-3), (A-6) + (B7-4), (A-6) + (B7-5), (A-6) + (B7-6), (A-6) + (B7-7), (A-6) + (B7-8), (A-6) + (B7-9), (A-6) + (B7-10), (A-6) + (B7-11), (A-6) + (B7-12);

[0096] (A-7) + (B1-1), (A-7) + (B1-2), (A-7) + (B1-3), (A-7) + (B1-4), (A-7) + (B1-5), (A-7) + (B1-6), (A-7) + (B2-1), (A-7) + (B2-2), (A-7) + (B3-1), (A-7) + (B4-1), (A-7) + (B4-2), (A-7) + (B4-3), (A-7) + (B4-4), (A-7) + (B4-5), (A-7) + (B5-1), (A-7) + (B5-2), (A-7) + (B5-3), (A-7) + (B5-4), (A-7) + (B6-1), (A-7) + (B6-2), (A-7) + (B7-1), (A-7) + (B7-2), (A-7) + (B7-3), (A-7) + (B7-4), (A-7) + (B7-5), (A-7) + (B7-6), (A-7) + (B7-7), (A-7) + (B7-8), (A-7) + (B7-9), (A-7) + (B7-10), (A-7) + (B7-11), (A-7) + (B7-12);

[0097] (A-8) + (B1-1), (A-8) + (B1-2), (A-8) + (B1-3), (A-8) + (B1-4), (A-8) + (B1-5), (A-8) + (B1-6), (A-8) + (B2-1), (A-8) + (B2-2), (A-8) + (B3-1), (A-8) + (B4-1), (A-8) + (B4-2), (A-8) + (B4-3), (A-8) + (B4-4), (A-8) + (B4-5), (A-8) + (B5-1), (A-8) + (B5-2), (A-8) + (B5-3), (A-8) + (B5-4), (A-8) + (B6-1), (A-8) + (B6-2), (A-8) + (B7-1), (A-8) + (B7-2), (A-8) + (B7-3), (A-8) + (B7-4), (A-8) + (B7-5), (A-8) + (B7-6), (A-8) + (B7-7), (A-8) + (B7-8), (A-8) + (B7-9), (A-8) + (B7-10), (A-8) + (B7-11), (A-8) + (B7-12)。

[0098] 本发明的除草剂结合物作为另外的其它组分还可以包括各种农化活性化合物,例如选自安全剂、杀菌剂、杀昆虫剂、杀螨剂、杀线虫剂、驱鸟剂、土壤结构改良剂、植物营养素(肥料),以及与除草剂(A)和(B)结构上不同的除草剂,以及植物生长调节剂;或者选自作物保护中常用的制剂助剂和添加剂。

[0099] 例如,可使用的合适的其他除草剂为,例如,与除草剂(A)和(B)结构不同的下述除草剂,优选其作用基于对例如以下酶或生物合成进行抑制的除草活性化合物:例如乙酰乳酸合成酶、乙酰辅酶A羧化酶、纤维素合成酶、5-烯醇丙酮酰莽草酸-3-磷酸合成酶、谷氨酰胺合成酶、对羟基苯基丙酮酸二氧酶、八氢番茄红素不饱和酶、光系统I、光系统II、原卟啉原氧化酶,如Weed Research 26, 441-445 (1986) 441-445,或者《农药手册》,第13版2003或第14版2006/2007;或者相应的“电子版农药手册”,版本4.0 (2006-07)中,均由英国农作物保护委员会出版;以及其中所引用的文献中所述的。通用名列表也可于互联网上的“The Compendium of Pesticide Common Names”中获得。此处,除草剂依据国际标准化组织(ISO)以“通用名”命名或化学名称命名或以代号命名,并且均包括所有使用形式,例如酸类、盐类、酯类和异构体(例如立体异构体和旋光异构体)。在此,例如在一个和于某些情况中,多个使用形式被涉及:

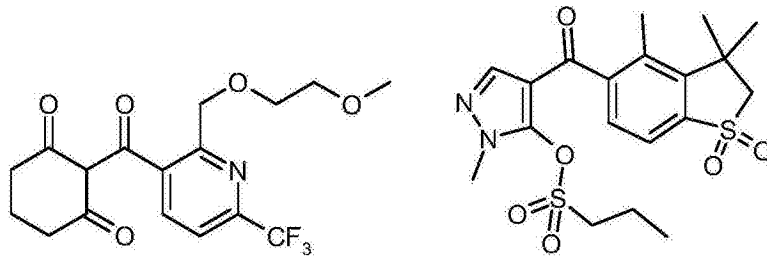
[0100] 乙草胺(acetochlor)、活化酯(acibenzolar)、苯并噻二唑(acibenzolar-S-methyl)、甲草胺(alachlor)、二丙烯草胺(allidochlor)、枯杀达(alloxydim)、禾草灭(alloxydim-sodium)、莠灭净(ametryn)、氨基磺草酮(amicarbazone)、先甲草胺(amidochlor)、酰嘧磺隆(amidosulfuron)、环丙嘧啶酸(aminocyclopyrachlor)、氨基草啶(aminopyralid)、杀草强(amitrole)、氨基磺酸铵(ammonium sulfamate)、环丙嘧啶醇(ancymidol)、莎稗磷(anilofos)、磺草灵(asulam)、莠去津(atrazine)、啶啉草酮(azafenidin)、四唑嘧磺隆(azimsulfuron)、叠氮津(aziprotryn)、BAH-043、BAS-140H、BAS-693H、BAS-714H、BAS-762H、BAS-776H、氟丁草胺(beflubutamid)、草除灵(benzolin, benzolin-ethyl)、bencarbazone、乙丁氟灵(benfluralin)、呋草黄(benfuresate)、地散磷(bensulide)、苄嘧磺隆(bensulfuron-methyl)、灭草松(bentazone)、双苄嘧草酮(benzfendizone)、双环磺草酮(benzobicyclon)、吡草酮(benzofenap)、氟磺胺草(benzofluor)、新燕灵(benzoylprop)、双丙氨膦(bilanafos)、双丙氨膦钠(bilanafos-sodium)、双草醚(bispyribac, bispyribac-sodium)、除草定(bromacil)、溴丁酰草胺(bromobutide)、溴酚肟(bromofenoxim)、溴苯腈(bromoxynil)、bromuron、特克草(buminafos)、羧草酮(busoxinone)、丁草胺(butachlor)、氟丙嘧草酯(butafenacil)、抑草磷(butamifos)、丁烯草胺(butenachlor)、仲丁灵(butralin)、丁苯草酮(butroxydim)、丁草敌(butylate)、啶草胺(cafenstrole)、双酰草胺(carbetamide)、啶草酯(carfentrazone, carfentrazone-ethyl)、甲氧除草醚(chlomethoxyfen)、草灭畏

(chloramben)、炔禾灵(chlorazifop、chlorazifop-butyl)、氯溴隆(chlorbromuron)、氯炔灵(chlorbufam)、伐草克(chlorfenac、chlorfenac-sodium)、燕麦酯(chlorfenprop)、氯甲丹(chlorflurecol、chlorflurecol-methyl)、氯草敏(chloridazon)、氯嘧磺隆(chlorimuron、chlorimuron-ethyl)、矮壮素(chlormequat chloride)、草枯醚(chlornitrofen)、chlorophthalim、氯酞酸甲酯(chlorthal-dimethyl)、绿麦隆(chlorotoluron)、氯磺隆(chlorsulfuron)、吡啶酮草酯(cinidon、cinidon-ethyl)、环庚草醚(cinmethylin)、醚磺隆(cinosulfuron)、烯草酮(clethodim)、苯哒酮酸(clofencet)、异恶草松(clomazone)、二氯吡啶酸(clopyralid)、氯酯磺草酸(cloransulam、cloransulam-methyl)、苜草隆(cumyluron)、氨基氰(cyanamide)、氰草津(cyanazine)、环丙酰胺酸(cyclanilide)、环草敌(cycloate)、环丙嘧磺隆(cyclosulfamuron)、噻草酮(cycloxydim)、环莠隆(cycluron)、莎草快(cyperquat)、环丙津(cyprazine)、环唑草胺(cyprazole)、杀草隆(daimuron/dymron)、茅草枯(dalapon)、丁酰肼(daminozide)、棉隆(dazomet)、正癸醇、甜菜安(desmedipham)、敌草净(desmetryn)、detosyl-pyrazolate (DTP)、燕麦敌(diallate)、麦草畏(dicamba)、敌草腈(dichlobenil)、双氯磺草胺(diclosulam)、乙酰甲草胺(diethatyl、diethatyl-ethyl)、枯莠隆(difenoxuron)、野燕枯(difenzoquat)、吡氟酰草胺(diflufenican)、氟吡草胺(diflufenzopyr、diflufenzopyr-sodium)、恶唑隆(dimefuron)、敌草克钠(dikegulac-sodium)、恶唑隆(dimefuron)、哌草丹(dimepiperate)、二甲草胺(dimethachlor)、异戊乙净(dimethetryn)、二甲吩草胺(dimethenamid)、dimethenamid-P、噻节因(dimethipin)、dimetrasulfuron、氨基灵(dinitramine)、地乐酚(dinoseb)、特乐酚(dinoterb)、双苯酰草胺(diphenamid)、异丙净(dipropetryn)、敌草快(diquat、diquat-dibromide)、氟硫草定(dithiopyr)、敌草隆(diuron)、DNOC、草止津(eglinazine-ethyl)、茵多酸(endothal)、EPTC、戊草丹(esprocarb)、乙丁烯氟灵(ethalfluralin)、胺苯磺隆(ethametsulfuron-methyl)、乙烯利(ethephon)、磺噻隆(ethidimuron)、乙噻草酮(ethiozin)、乙氧呋草黄(ethofumesate)、乙氧嘧磺隆(ethoxysulfuron)、乙氧苯草胺(etobenzanid)、F-5331,即N-[2-氯-4-氟-5-[4-(3-氟丙基)-4,5-二氢-5-氧-1H-四唑-1-基]苯基]乙磺酰胺、2,4,5-涕丙酸(fenoprop)、四唑酰草胺(fentrazamide)、非草隆(fenuron)、氟燕灵(flamprop)、强氟燕灵(flamprop-M-isopropyl)、甲氟燕灵(flamprop-M-methyl)、啶嘧磺隆(flazasulfuron)、双氟磺草胺(florasulam)、异丙吡草酯(fluzolate)、氟酮磺隆(flucarbazone、flucarbazone-sodium)、氟吡磺隆(flucetosulfuron)、氯乙氟灵(fluchloralin)、氟噻草胺(flufenacet (thiaflumamide))、氟吡啶草酯(flufenpyr、flufenpyr-ethyl)、氟节胺(flumetralin)、唑嘧磺草胺(flumetsulam)、酰亚胺苯氧乙酸(flumiclorac)、酰亚胺苯氧乙酸戊酯(flumiclorac-pentyl)、丙炔氟草胺(flumioxazin)、炔草胺(flumipropyn)、氟草隆(fluometuron)、三氟硝草醚(fluorodifen)、氟胺草唑(flupoxam)、flupropacil、四氟丙酸(flupropanate)、氟啶嘧磺隆(flupyrsulfuron、flupyrsulfuron-methyl-sodium)、茚丁酯(flurenol、flurenol-butyl)、氟啶草酮(fluridone)、氟咯草酮(flurochloridone)、氯氟吡氧乙酸(fluroxypyr)、氟氯胺啶(fluroxypyr-meptyl)、呋嘧醇(flurprimidol)、呋草酮(flurtamone)、氟噻乙草酯(fluthiacet、fluthiacet-methyl)、噻唑草酰胺(fluthiamide)、甲酰氨磺隆

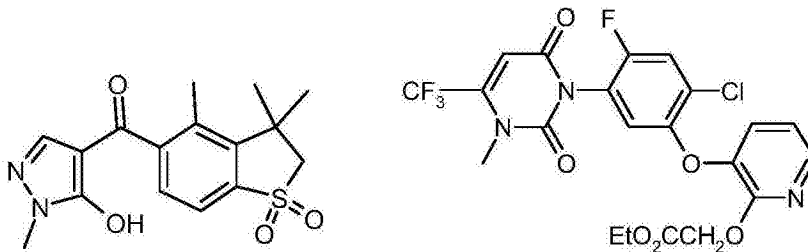
(foramsulfuron)、氯吡脲(forchlorfenuron)、杀木膦(fosamine)、呋氧草醚(furyloxyfen)、赤霉素(gibberellic acid)、草铵膦(glufosinate、glufosinate-ammonium)、草铵膦-P(glufosinate-P)、草铵膦-P-铵(glufosinate-P-ammonium)、草铵膦-P-钠(glufosinate-P-sodium)、草甘膦(glyphosate)、草甘膦异丙胺盐(glyphosate-isopropylammonium)、H-9201、氟硝磺酰胺(halosafen)、氯吡嘧磺隆(halosulfuron、halosulfuron-methyl)、环嗪酮(hexazinone)、HNPC-9908、HW-02、咪草酸(imazamethabenz、imazamethabenz-methyl)、甲氧咪草烟(imazamox)、甲咪唑烟酸(imazapic)、咪唑烟酸(imazapyr)、咪唑喹啉酸(imazaquin)、咪唑乙烟酸(imazethapyr)、唑吡嘧磺隆(imazosulfuron)、抗倒胺(inabenfide)、茚草酮(indanofan)、吲哚乙酸(IAA)、4-吲哚-3-基丁酸(IBA)、碘磺隆(iodosulfuron)、碘甲磺隆钠盐(iodosulfuron-methyl-sodium)、碘苯腈(ioxynil)、ipfencarbazone、丁脞酰胺(isocarbamid)、异丙乐灵(isopropalin)、异丙隆(isoproturon)、异恶隆(isouron)、异恶酰草胺(isoxaben)、异恶氯草酮(isoxachlortole)、异噁唑草酮(isoxaflutole)、异恶草醚(isoxapyrifop)、KUH-043、KUH-071、特胺灵(karbutilate)、ketospiradox、环草定(lenacil)、利谷隆(linuron)、抑芽丹(maleic hydrazide)、苯噻酰草胺(mefenacet)、氯磺酰草胺(mefluidide)、甲哌啶(mepiquat chloride)、甲磺胺磺隆(mesosulfuron、mesosulfuron-methyl)、甲基磺草酮(mesotrione)、甲基苯噻隆(methabenzthiazuron)、威百亩(metam)、苯噻草酮(metamitron)、吡唑草胺(metazachlor)、灭草唑(methazole)、苯草酮(methoxyphenone)、甲基杀草隆(methyldymron)、1-甲基环丙烯、异硫氰酸甲酯、吡喃隆(metobenzuron)、溴谷隆(metobromuron)、异丙甲草胺(metolachlor)、S-异丙甲草胺(S-metolachlor)、磺草唑胺(metosulam)、甲氧隆(metoxuron)、嗪草酮(metribuzin)、甲磺隆(metsulfuron)、甲磺隆甲酯(metsulfuron-methyl)、禾草敌(molinate)、庚酰草胺(monalide)、monocarbamide、甲酰胺硫酸盐(monocarbamide dihydrogensulfate)、绿谷隆(monolinuron)、单嘧磺隆(monosulfuron)、灭草隆(monuron)、MT 128、MT-5950,即N-[3-氯-4-(1-甲基乙基)苯基]-2-甲基戊酰胺,NGGC-011、萘丙胺(naproanilide)、敌草胺(napropamide)、萘草胺(naptalam)、NC 310,即4-(2,4-二氯苯甲酰基)-1-甲基-5-苯氧基吡唑、草不隆(neburon)、烟嘧磺隆(nicosulfuron)、氟氯草胺(nipyraclofen)、甲磺乐灵(nitralin)、除草醚(nitrofen)、硝基苯酚钠(异构体混合物)、硝氟草醚(nitrofluorfen)、壬酸、氟草敏(norflurazon)、坪草丹(orbencarb)、噻苯胺磺隆(orthosulfamuron)、氨磺乐灵(oryzalin)、丙炔恶草酮(oxadiargyl)、恶草酮(oxadiazon)、环氧嘧磺隆(oxasulfuron)、恶嗪草酮(oxaziclomefone)、多效唑(paclobutrazol)、百草枯(paraquat)、二氯百草枯(paraquat-dichloride)、壬酸、二甲戊灵(pendimethalin)、pendralin、五氟磺草胺(penoxsulam)、甲氯酰草胺(pentanochlor)、环戊恶草酮(pentoxazone)、黄草伏(perfluidone)、烯草胺(pethoxamid)、棉胺宁(phenisopham)、苯敌草(phenmedipham)、乙苯敌草(phenmedipham-ethyl)、氨基吡啶酸(picloram)、氟吡草胺(picolinafen)、唑啉草酯(pinoxaden)、哌草磷(piperophos)、pirifenop、pirifenop-butyl、丙草胺(pretilachlor)、氟嘧磺隆(primisulfuron、primisulfuron-methyl)、烯丙苯噻唑(probenazole)、氟唑草胺(profluzol)、环丙氰津(procyazine)、氨基乐灵(prodiamine)、环丙氟灵(prifluraline)、环苯草酮(profoxydim)、调环酸(prohexadione、prohexadione-



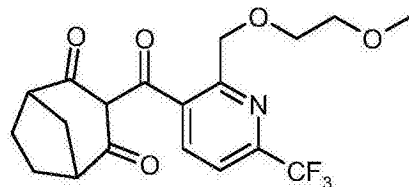
calcium)、茉莉酮(prohydrojasnone)、扑灭通(prometon)、扑草净(prometryn)、毒草胺(propachlor)、敌稗(propanil)扑灭津(propazine)、苯胺灵(propham)、异丙草胺(propisochlor)、丙苯磺隆(propoxycarbazone、propoxycarbazone-sodium)、炔苯酰草胺(propyzamide)、磺亚胺草(prosulfalin)、苄草丹(prosulfocarb)、氟磺隆(prosulfuron)、丙炔草胺(prynachlor)、双唑草腈(pyraclonil)、吡草醚(pyraflufen、pyraflufen-ethyl)、pyrasulfotole、吡唑特(pyrazolynate (pyrazolate))、吡嘧磺隆(pyrazosulfuron-ethyl)、苄草唑(pyrazoxyfen)、丙酯草醚(pyribambenz)、异丙酯草醚(pyribambenz-isopropyl)、嘧啶肟草醚(pyribenzoxim)、稗草丹(pyributicarb)、pyridafol、吡草特(pyridate)、环酯草醚(pyrifitalid)、嘧草醚(pyriminobac、pyriminobac-methyl)、pyrimisulfan、嘧草硫醚(pyriithiobac、pyriithiobac-sodium)、pyroxasulfone、甲氧磺草胺(pyroxulam)、二氯喹啉酸(quinclorac)、氯甲喹啉酸(quinmerac)、灭藻醌(quinoclamine)、砒嘧磺隆(rimsulfuron)、saflufenacil、仲丁通(secbumeton)、烯禾啶( Sethoxydim)、环草隆(siduron)、西玛津(simazine)、西草净(simetryn)、SN-106279、磺草酮(sulcotrione)、草克死(sulfallate (CDEC))、甲磺草胺(sulfentrazone)、甲嘧磺隆(sulfometuron、sulfometuron-methyl)、草硫膦(sulfosate (glyphosate-trimesium))、磺酰磺隆(sulfosulfuron)、SYN-449、SYN-523、SYP-249、SYP-298、SYP-300、牧草胺(tebutam)、丁噻隆(tebuthiuron)、四氯硝基苯(tecnacene)、tefuryltrione、tembotrione、吡喃草酮(tepraloxym)、特草定(terbacil)、特草灵(terbucarb)、特丁草胺(terbuchlor)、特丁通(terbumeton)、特丁津(terbutylazine)、特丁净(terbutryn)、TH 547、噻吩草胺(thenylchlor)、thiafluamide、噻氟隆(thiazafluron)、噻唑烟酸(thiazopyr)、噻二唑草胺(thidiazimin)、噻苯隆(thidiazuron)、thiencarbazone、thiencarbazone-methyl、噻吩磺隆(thifensulfuron)、噻吩磺隆甲酯(thifensulfuron-methyl)、禾草丹(thiobencarb)、仲草丹(tiocarbazil)、topramezone、三甲苯草酮(tralkoxydim)、野燕畏(triallate)、醚苯磺隆(triasulfuron)、三嗪氟草胺(triaziflam)、triazofenamide、苯磺隆(tribenuron)、苯磺隆甲酯(tribenuron-methyl)、三氯乙酸(TCA)、三氯吡氧乙酸(triclopyr)、灭草环(tridiphane)、草达津(trietazine)、三氟啶磺隆(trifloxysulfuron)、三氟啶磺隆钠(trifloxysulfuron-sodium)、氟乐灵(trifluralin)、氟胺磺隆(triflusulfuron、triflusulfuron-methyl)、三甲隆(trimeturon)、抗倒酯(trinexapac、trinexapac-ethyl)、三氟甲磺隆(tritosulfuron)、tsitodef、烯效唑(uniconazole)、高烯效唑(uniconazole-P)、灭草敌(vernolate)、ZJ-0166、ZJ-0270、ZJ-0543、ZJ-0862和以下化合物:



[0101]



[0102]



[0103] 特别令人关注的是选择性防治有用植物和观赏植物中的有害植物。虽然已经证明除草剂 (A) 和 (B) 对大量的作物具有十分良好至足够的选择性,但是,原则上对于一些作物,特别是在与其它选择性相对较小的除草剂的混合的情况下,在作物植物上仍可能存在植物毒性。就这点而言,特别令人关注的是包括根据本发明所结合的除草活性化合物和一种或多种安全剂的除草剂 (A) 和 (B) 的结合物。以解毒有效量使用的安全剂减少所使用的除草剂/杀虫剂的植物毒性副作用,例如对经济重要作物如谷物(小麦、大麦、黑麦、燕麦、玉米、稻、粟)、甜菜、甘蔗、油菜、棉花、大豆而言或对果树种植园(栽培作物)而言,优选是谷物,特别是稻。

[0104] 例如,以下组的化合物适合作为安全剂(包括可能的立体异构体和农业上常用的酯类或盐类):

- [0105] 解草嗪 (benoxacor)
- [0106] 解草酯 (cloquintocet (-mexyl))
- [0107] 解草胺腈 (cyometrinil)
- [0108] cyprosulfamide
- [0109] 烯丙酰草胺 (dichlormid)
- [0110] dicyclonon
- [0111] dietholate
- [0112] 乙拌磷 (disulfoton) (=0,0-二乙基S-2-乙基硫乙基二硫代磷酸酯)
- [0113] 解草唑 (fenchlorazole (-ethyl))
- [0114] 解草啞 (fenclorim)
- [0115] 解草胺 (flurazole)
- [0116] 氟草肟 (fluxofenim)

- [0117] 解草恶唑 (furilazole)
- [0118] 双苯恶唑酸 (isoxadifen (-ethyl))
- [0119] 吡唑解草酯 (mefenpyr (-diethyl))
- [0120] mephenate
- [0121] 萘二甲酸酐 (naphthalicanhydride)
- [0122] 解草腈 (oxabetrinil)
- [0123] “R-29148” (=3-二氯乙酰基-2,2,5-三甲基-1,3-噁唑烷),
- [0124] “R-28725” (=3-二氯乙酰基-2,2-二甲基-1,3-噁唑烷),
- [0125] “PPG-1292” (=N-烯丙基-N-[(1,3-二氧戊环-2-基)甲基]二氯乙酰胺),
- [0126] “DKA-24” (=N-烯丙基-N-[(烯丙基氨基羰基)甲基]二氯乙酰胺),
- [0127] “AD-67”或“MON4660” (=3-二氯乙酰基-1-氧-3-氮杂螺[4,5]癸烷),
- [0128] “TI-35” (=1-二氯乙酰基氮杂环庚烷),
- [0129] “哌草丹”或“MY-93” (=哌啶-1-硫代羧酸-S-1-甲基-1-苯基乙酯),
- [0130] “杀草隆”或“SK23” (=1-(1-甲基-1-苯乙基)-3-对甲苯基脲),
- [0131] “苄草隆”=“JC-940” (=3-(2-氯苯基甲基)-1-(1-甲基-1-苯乙基)脲),
- [0132] “苯草酮”或“NK049” (=3,3'-二甲基-4-甲氧基二苯甲酮),
- [0133] “CSB” (=1-溴-4-(氯甲基磺酰基)苯)
- [0134] “CL-304415” (=4-羧基-3,4-二氢-2H-1-苯并吡喃-4-乙酸;CAS登记号:31541-57-8)
- [0135] “MG-191” (=2-二氯甲基-2-甲基-1,3-二氧戊环)
- [0136] “MG-838” (=2-丙烯基1-氧-4-氮杂螺[4.5]癸烷-4-二硫代羧酸酯;CAS登记号:133993-74-5)
- [0137] (二苯基甲氧基)乙酸甲酯(CAS登记号:41858-19-9,已知于WO-A-1998/38856)
- [0138] [(3-氧代-1H-2-苯并噻喃-4(3H)-基亚基)甲氧基]乙酸甲酯(CAS登记号:205121-04-6,已知于WO-A-1998/13361)
- [0139] 1,2-二氢-4-羟基-1-甲基-3-(5-四唑基羰基)-2-喹诺酮(CAS登记号:95855-00-8,已知于WO-A-1999/000020)。
- [0140] 已知一些安全剂作为除草剂,因此,除了对有害植物具有除草作用外,还可以通过保护植物作物而起作用。
- [0141] 除草剂结合物与安全剂的重量比例通常取决于除草剂施用率和所述安全剂的有效性,并且其可以在宽范围内变化,例如在范围90000:1到1:5000,优选7000:1到1:1600,特别是3000:1到1:500。安全剂可类似于式(I)化合物或其与其它除草剂/杀虫剂的混合物予以配制,且以最终制剂或与除草剂的桶混物的形式提供和使用,或者以种子、土壤或叶面施用方式单独施用。
- [0142] 本发明的除草剂结合物(=除草组合物)对宽范围的经济上重要的单子叶和双子叶有害植物(例如阔草杂草、禾本科杂草或莎草科)具有很好的除草活性,所述植物包括对除草活性化合物具有抗性的物种;所述除草活性化合物,例如草甘膦、草铵膦、莠去津、咪唑啉酮除草剂、磺酰脲、(杂)芳氧基芳氧基烷基羧酸或苯氧基烷基羧酸(“fops”)、环己烷二酮肟(“dime”)或植物生长激素抑制剂。所述活性化合物也对由根茎、根状茎和其它多年生器

官长出幼芽且难以防治的多年生杂草有效。在此,所述物质可以由例如播前方法、芽前方法或芽后方法,以例如联合或分别的方式予以施用。优选例如由芽后方法施用,特别是施用于已出苗的有害植物。

[0143] 可提及一些代表性单子叶和双子叶杂草植物群的具体实例,其可以被本发明的化合物防治,且所述列举并非限制到某些物种。

[0144] 除草结合物有效作用的杂草物种的实例为:单子叶杂草物种中,一年生的燕麦属(*Avena* spp.)、看麦娘属(*Alopecurus* spp.)、*Apera* spp.、臂形草属(*Brachiaria* spp.)、雀麦属(*Bromus* spp.)、马唐属(*Digitaria* spp.)、黑麦草属(*Lolium* spp.)、稗属(*Echinochloa* spp.)、千金子属(*Leptochloa* spp.)、飘拂草属(*Fimbristylis* spp.)、黍属(*Panicum* spp.)、藨草属(*Phalaris* spp.)、早熟禾属(*Poa* spp.)、狗尾草属(*Setaria* spp.)以及莎草属(*Cyperus*);以及多年生物种中,冰草属(*Agropyron*)、狗牙根属(*Cynodon*)、白茅属(*Imperata*)和高粱属(*Sorghum*),以及多年生的莎草属物种。

[0145] 对于双子叶杂草物种,作用谱扩展至例如以下属:一年生杂草中,白麻属(*Abutilon* spp.)、苋属(*Amaranthus* spp.)、藜属(*Chenopodium* spp.)、菊花属(*Chrysanthemum* spp.)、拉拉藤属(*Galium* spp.)、番薯属(*Ipomoea* spp.)、地肤属(*Kochia* spp.)、野芝麻属(*Lamium* spp.)、母菊属(*Matricaria* spp.)、牵牛属(*Pharbitis* spp.)、蓼属(*Polygonum* spp.)、黄花稔属(*Sida* spp.)、白芥属(*Sinapis* spp.)、茄属(*Solanum* spp.)、繁缕属(*Stellaria* spp.)、婆婆纳属(*Veronica* spp.)、醴肠属(*Eclipta* spp.)、田菁属(*Sesbania* spp.)、田皂角属(*Aeschynomene* spp.)和堇菜属(*Viola* spp.)、苍耳属(*Xanthium* spp.);以及多年生杂草中,旋花属(*Convolvulus*)、薊属(*Cirsium*)、酸模属(*Rumex*)和苦艾属(*Artemisia*)。

[0146] 如果本发明除草剂结合物的活性化合物在萌芽前施用于土壤表面,则可完全阻止杂草幼苗萌发,或杂草生长至子叶期但然后停止生长且最终在2到4周之后完全死亡。

[0147] 如果活性化合物被芽后施用于植物的绿色部分,生长同样在处理之后非常短时间急速停止,且杂草植物保持在施用时间点的生长阶段或它们在一段时间后完全死亡,使得对作物植物有害的杂草竞争以此方式而在非常早期阶段以持久方式消除。对于稻的情况,活性化合物也可以施加于水中,且之后经由土壤、芽和根吸收。

[0148] 本发明的除草结合物以快速起效且持久的除草作用而著称。通常,本发明结合物中活性化合物的耐雨水冲刷能力是有利的。特别的优点是可以将该结合物中所使用的剂量以及化合物(A)和(B)的有效剂量调节至低至最理想地低土壤作用的程度。这首先不仅使其用于敏感作物,而且实际上避免地下水污染。本发明的活性化合物结合物可大大降低活性化合物的所需施用率。

[0149] 在一种优选实施方案中,本发明的除草剂(A)和(B)的除草剂结合物非常适合于稻作物中有害植物的选择性防治。这些包括在最多多样化条件下所有可能形式的稻耕种,例如高地耕种、旱地耕种或水田耕种,其中灌溉可以为天然(降雨)和/或人工(灌溉、漫灌)的。针对此目的所使用的稻可为常规栽培的种子、杂交种子,或可衍生自籼稻或粳稻变种或其杂种具有抗性——至少具有耐受性——的种子(经诱变或转基因获得的)。

[0150] 本发明的除草剂结合物可以由稻除草剂常用的所有施用方法予以施用。特别优选地,其可以由喷雾施用和/或由灌水施药法予以施用。在灌水施药法中,在施用,稻田水面

已覆盖土壤高至3-20cm。本发明的除草剂结合物之后直接置于稻田水面中,例如以颗粒形式。在世界各地,喷雾施用主要用于直接播种的稻,而灌水施药法主要用于移植稻。

[0151] 本发明的除草剂结合物涵盖了宽范围的杂草,其特别对于稻作物而言是有特效的。可很好地防治以下杂草:单子叶杂草中,属例如,稗属、黍属、早熟禾属、千金子属、臂形草属、马唐属、狗尾草属、莎草属、雨久花属(*Monochoria* spp.)、飘拂草属、慈菇属(*Sagittaria* spp.)、荸荠属(*Eleocharis* spp.)、莞草属(*Scirpus* spp.)、泽泻属(*Alisma* spp.)、水竹叶属(*Aneilema* spp.)、水筛属(*Blyxa* spp.)、谷精草属(*Eriocaulon* spp.)、眼子菜属(*Potamogeton* spp.)等;特别是以下种:水稗(*Echinochloa oryzicola*)、鸭舌草(*Monochoria vaginalis*)、牛毛毡(*Eleocharis acicularis*)、木贼状荸荠(*Eleocharis kuroguwai*)、红头草(*Cyperus difformis*)、水莎草(*Cyperus serotinus*)、矮慈菇(*Sagittaria pygmaea*)、窄叶泽泻(*Alisma canaliculatum*)、萤蔺(*Scirpus juncoides*)。对于双子叶杂草的情况,活性谱延伸至以下属:例如蓼属、蔊菜属(*Rorippa* spp.)、节节菜属(*Rotala* spp.)、母草属(*Lindernia* spp.)、鬼针属(*Bidens* spp.)、尖瓣花属(*Sphenoclea* spp.)、蛇眼属(*Dopatrium* spp.)、醴肠属、沟繁缕属(*Elatine* spp.)、水八角属(*Gratiola* spp.)、母草属(*Lindernia* spp.)、丁香蓼属(*Ludwigia* spp.)、水芹属(*Oenanthe* spp.)、毛茛属(*Ranunculus* spp.)、泽番椒属(*Deinostema* spp.)等。特别是可良好地防治以下种:例如节节菜(*Rotala indica*)、尖瓣花(*Sphenoclea zeylanica*)、陌上菜(*Lindernia procumbens*)、丁香蓼(*Ludwigia prostrate*)、眼子菜(*Potamogeton distinctus*)、沟繁缕(*Elatine triandra*)、水芹(*Oenanthe javanica*)。

[0152] 当组(A)的除草剂和组(B)的除草剂联合施用时,优选地存在超加和(=协同)效应。此时,结合物的活性比所使用的单个除草剂的活性的预期总和高。该协同效应使得施用率可降低,可防治更宽范围的阔叶杂草、禾本科杂草和莎草科,可使除草作用更快速开始,更长的持久性,以只进行一次或几次施用而能更好防治有害植物,并可使施用周期变宽。通过使用组合物,在某种程度上也可减少有害成分(例如氮或油酸)的量和其进入土壤的量。

[0153] 上述性质和优点对于杂草防治实践而言是必要的,所述杂草防治实际用以保持农业/林业/园艺农作物或绿地/草地无有害的竞争植物,而且从而从定性定量角度确保和/或增加产率水平。这些新的除草剂结合物的所述性质显著地超过了现有技术状态。

[0154] 由于其除草特性和植物生长调节特性,本发明的除草剂结合物可以用于防治已知植物作物或者仍待开发的耐受性或基因修饰作物和能源植物中的有害植物。一般地,转基因植物(GMO),除了对本发明的除草剂结合物有抗性之外,以特定的有利性质而著称,例如,以对植物病害或植物病害的致病生物——如某些昆虫或微生物(例如,真菌、细菌或病毒)——的抗性而著称。其它特定的性质涉及例如采收物的数量、品质、储存性和特定成分的组成。例如,已知的转基因植物的淀粉含量提高,或其淀粉品质改良,或其中采收物的脂肪酸组成不同或者维生素含量或能量性质提高。以相同方式,由于其除草和植物生长调节性质,活性化合物也可以用于防治以下作物中的有害植物:已知植物或仍待由突变选择而开发的植物及突变和转基因植物的杂交体。

[0155] 与迄今现有植物相比,产生具有改良性质的新植物的常规方法有例如传统的育种方法和产生突变体。或者,具有改良性质的新植物可以利用重组方法而产生(参见,例如,EP-A-0221044、EP-A-0131624)。例如,已有一些申请描述了下列方法:

[0156] ——为了使植物中合成的淀粉改性,通过重组技术而对作物植物进行修饰(例如,WO 92/11376、WO 92/14827、WO 91/19806),

[0157] ——对除草剂(如磺酰脲类)具有抗性的转基因作物植物(EP-A-0257993、US-A-5013659),

[0158] ——能产生苏云金芽孢杆菌(*Bacillus thuringiensis*)毒素(Bt毒素)的转基因作物植物,所述毒素使植物对某些害虫具有抗性(EP-A-0142924、EP-A-0193259),

[0159] ——具有改良脂肪酸组成的转基因作物植物(WO 91/13972)。

[0160] 许多分子生物学技术原则上是已知的,借助这些技术,可产生具有修饰特性的新的转基因植物;参见,例如,Sambrook等人,1989,*Molecular Cloning, A Laboratory Manual*,第2版,Cold Spring Harbor Laboratory Press,Cold Spring Harbor,NY;或Winnacker“Gene und Klone”,VCH Weinheim 1996年第2版或Christou,“Trends in Plant Science”1(1996)423-431)。为进行这类重组操作,可以将核酸分子引入质粒,所述核酸分子可使得通过重组DNA序列而发生突变或序列改变。例如,上述标准方法使得可以实施碱交换、移除子序列、或者添加天然或合成序列。为使DNA片段彼此连接,可向片段添加衔接头或连接体。

[0161] 例如,基因产物活性降低的植物细胞的产生可以通过以下方式实现:表达至少一种相应的反义DNA、正义DNA以造成共抑制效果,或表达至少一种对上述基因产物的转录物进行特异性裂解的适当建构的核酶。

[0162] 为此目的,可使用包括基因产物的整个编码序列的DNA分子(包括可能存在的任何旁侧序列)以及只包括部分编码序列的DNA分子,这些部分必须长得足以在细胞内具有反义作用。也可使用与基因产物的编码序列具有高度同源性但不完全与之相同的DNA序列。

[0163] 当在植物内表达核酸分子时,合成的蛋白质可以定位于植物细胞的任何需要的区室中。然而,为了实现定位于特定区室中,例如,可使编码区连接至确保定位于特定区室中的DNA序列。该序列为本领域技术人员所已知的(参见,例如,Braun等人,EMBO J.11(1992),3219-3227;Wolter等人,Proc.Natl.Acad.Sci.USA 85(1988),846-850;Sonnewald等人,Plant J.1(1991),95-106)。

[0164] 转基因植物细胞可以由已知技术再生以产生整株植物。原则上,转基因植物可以为任何需要的植物种的植物,即单子叶和双子叶植物。例如,可以得到具有由同源(=天然)基因或基因序列的过量表达、阻抑或抑制或者异源(=外源)基因或基因序列的表达而改变性质的转基因植物。

[0165] 此外,本发明还提供一种选择性防治有害植物的方法,优选作物植物中,特别是稻作物(在高地或水田条件下种植或播种的籼稻和/或粳稻变种和/或杂交种/突变种/GMO)中;该方法包括将作为本发明除草剂结合物的组分(A)和(B)的除草剂——例如一起或分别——施用于植物(例如有害植物如单子叶或双子叶阔叶杂草、禾本科杂草、莎草或有害的作物植物)、种子(如谷粒、种子或无性繁殖器官,如有芽的块茎或幼枝部分),或施用于植物生长的区域(例如栽种区域,其也可被水覆盖)。一种或多种除草剂(A)可在除草剂(B)之前、之后或同时施用于植物、种子或植物生长区域(例如栽培区域)。

[0166] 有害植物应理解为意指所有在不想要其生长的地方生长的植物。例如,这些可以是有害植物(如单子叶或双子叶杂草、禾本科杂草、莎草或有害的作物植物),包括例如对这

些除草活性化合物——如草甘膦、草铵膦、莠去津、咪唑啉酮除草剂、磺酰脲、(杂)芳氧基芳氧基烷基羧酸或苯氧基烷基羧酸(“fops”)、环己烷二酮肟(“dime”)或植物生长激素抑制剂——有抗性的那些。

[0167] 本发明的除草剂结合物用于选择性防治有害的植物,例如以下作物植物中:如农作物,例如单子叶农作物如谷物(例如小麦、大麦、黑麦、燕麦、稻、玉米、粟),或双子叶农作物例如甜菜、甘蔗、油菜、棉花、向日葵和豆科植物(例如大豆属(例如大豆(*Glycine max.*)),如非转基因大豆(例如传统栽培品种,如STS栽培品种)或转基因大豆(例如RR-大豆或LL-大豆)和其杂交种)、菜豆属(*Phaseolus*)、豌豆属(*Pisum*)、蚕豆属(*Vicia*)和花生属(*Arachis*),或来自多种植物组的蔬菜作物(例如马铃薯、韭菜、甘蓝、胡萝卜、番茄、洋葱)、果树种植园(栽培作物)、绿地、草地和牧草区域,或非作物区域(例如居住区或工业场所的广场、铁路),特别是稻作物(在山地或水田条件下种植或播种的籼稻或粳稻变种以及杂交种/突变种/GMO)。优选在有害植物萌芽前施用和施用至萌芽的有害植物(例如阔叶杂草、禾本科杂草、莎草科或有害的作物植物),与播种/种植作物的阶段无关。

[0168] 本发明还提供本发明的除草剂结合物的用途,其用于选择性防治有害的植物,优选在作物植物中,特别是在稻作物(在山地或水田条件下种植或播种的籼稻或粳稻变种以及杂交种/突变种/GMO)中。

[0169] 本发明的除草剂结合物可以由已知方法来制备,例如以单个组分的混合制剂的形式,如果适合与其它活性化合物、添加剂和/或常规的制剂助剂混合,然后将该结合物以常规方式用水稀释予以施用;或以桶混物的形式通过以水联合稀释成分、分别配制或分别部分配制。也可分别配制或部分分别配制的单个组分分开施用。也可以多个部分使用(连续施用)除草剂或除草剂结合物,例如,在以拌种施用后或播种前/种植前处理,或芽前施用然后芽后施用,或萌芽后的早期施用然后萌芽后中或晚期施用。在此优选所讨论的结合物的活性化合物联合或几乎同时使用,特别优选联合使用。

[0170] 除草剂(A)和(B)可以联合或分别转化成常规剂型,例如溶液剂、乳剂、悬浮剂、粉剂、泡沫剂、糊剂、颗粒剂、气雾剂、以活性化合物浸渍的天然和合成材料以及聚合材料中的微胶囊剂。也可提及专门针对稻栽培的制剂,例如,撒播用颗粒剂、大颗粒剂(jumbo granule)、飘浮颗粒剂(floating granule)、经由振荡瓶(shaker bottle)施用并溶于水田中和经由水田水分布的飘浮悬浮乳剂(floating suspoemulsion)。所述制剂可包括常规的助剂和添加剂。

[0171] 这些制剂以已知方式制备,例如通过混合活性化合物与填充剂(extender)(即液体溶剂、加压液化气体和/或固体载体),任选使用表面活性剂(即乳化剂和/或分散剂),和/或发泡剂。

[0172] 如果使用的填充剂为水,也可使用例如有机溶剂作为助溶剂。基本上,适合的液体溶剂为:芳香族化合物,如二甲苯、甲苯或烷基萘;氯化芳香烃和氯化脂族烃,如氯苯、氯乙烯或二氯甲烷;脂族烃,如环己烷或石蜡(如矿物油馏分)、矿物油和植物油;醇类(如丁醇或乙二醇)及其醚类和酯类;酮类,如丙酮、甲基乙基酮、甲基异丁酮或环己酮;强极性溶剂,如二甲基甲酰胺和二甲基亚砷,以及水。

[0173] 适合的固体载体例如:铵盐类和磨碎的天然矿物,如高岭土、粘土、滑石、白垩、石英、绿坡缕石、蒙脱土或硅藻土;磨碎的合成矿物,如高度分散的二氧化硅、氧化铝和硅酸

盐。用于颗粒剂的适合的固体载体为例如：破碎并分级的天然岩石，如方解石、大理石、浮石、海泡石和白云石；以及无机和有机粉的合成颗粒；和有机物（如锯屑、椰子壳、玉米穗轴和烟草茎）的颗粒。适合的乳化剂和/或发泡剂为例如：非离子性和阴离子性乳化剂，如聚氧乙烯脂肪酸酯、聚氧乙烯脂肪醇醚，例如烷基芳基聚乙二醇醚、磺酸烷基酯、硫酸烷基酯、磺酸芳基酯；和蛋白质水解产物。适合的分散剂为：例如，木素亚硫酸盐废液和甲基纤维素。

[0174] 增粘剂，例如羧甲基纤维素；粉末、颗粒或胶乳形式的天然和合成的聚合物，如阿拉伯树胶、聚乙烯醇和聚乙酸乙烯酯；和天然的磷脂如脑磷脂和卵磷脂，以及合成的磷脂，可以用于制剂中。其它可能的添加剂为矿物油和植物油。

[0175] 本发明除草剂结合物的除草作用可以例如通过表面活性剂来改善，优选通过选自脂肪醇聚乙二醇醚类的湿润剂。脂肪醇聚乙二醇醚类优选包括于脂肪醇基团中的10-18个碳原子和在聚乙二醇醚部分中的2-20个环氧乙烷单元。脂肪醇聚乙二醇醚可以非离子形式或离子形式存在，例如以脂肪醇聚乙二醇醚硫酸盐的形式存在，其可以如碱金属盐（例如钠盐和钾盐）或铵盐，或甚至以碱土金属盐类如镁盐类，例如C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-脂肪醇二甘醇醚硫酸钠（**Genapol**<sup>®</sup>LR0, Clariant GmbH）使用；参见，例如，EP-A-0476555、EP-A-0048436、EP-A-0336151或US-A-4,400,196以及Proc. EWRS Symp. “Factors Affecting Herbicidal Activity and Selectivity”, 227-232 (1988)。非离子性脂肪醇聚乙二醇醚类例如为：(C<sub>10</sub>-C<sub>18</sub>)——优选(C<sub>10</sub>-C<sub>14</sub>)——脂肪醇聚乙二醇醚类（例如异十三醇聚乙二醇醚），其包括例如2-20（优选3-15）个环氧乙烷单元；例如选自**Genapol**<sup>®</sup>X-系列的那些，如**Genapol**<sup>®</sup>X-030、**Genapol**<sup>®</sup>X-060、**Genapol**<sup>®</sup>X-080或**Genapol**<sup>®</sup>X-150（均来自Clariant GmbH）。

[0176] 本发明还包括组分(A)和(B)与选自脂肪醇聚乙二醇醚类的上述湿润剂的结合物，该脂肪醇聚乙二醇醚优选包括脂肪醇基团中的10-18个碳原子和聚乙二醇醚部分中的2-20个环氧乙烷单元，可以非离子形式或离子形式存在（例如以脂肪醇聚乙二醇醚硫酸盐的形式）。优选C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-脂肪醇二甘醇醚硫酸钠（**Genapol**<sup>®</sup>LR0, Clariant GmbH）和具有3-15个环氧乙烷单元的异十三醇聚乙二醇醚，例如选自**Genapol**<sup>®</sup>X-系列，如**Genapol**<sup>®</sup>X-030、**Genapol**<sup>®</sup>X-060、**Genapol**<sup>®</sup>X-080或**Genapol**<sup>®</sup>X-150（均来自Clariant GmbH）。

[0177] 此外，还已知脂肪醇聚乙二醇醚类，例如非离子的或离子的脂肪醇聚乙二醇醚类（例如脂肪醇聚乙二醇醚硫酸盐）也适合用作一些其它除草剂的渗透剂和活性增强剂（参见，例如，EP-A-0502014）。因此，本发明也包括与适当渗透剂和活性增强剂的结合物，优选市售可得形式。

[0178] 本发明的除草剂结合物也可以与植物油一起使用。术语“植物油”的含义应理解为指产油植物种的油，例如大豆油、菜籽油、玉米油、向日葵油、棉花籽油、亚麻籽油、椰子油、棕榈油、蓟油或蓖麻油，特别是菜籽油；及其酯交换产物，例如烷基酯，如菜籽油甲酯或菜籽油乙酯。

[0179] 植物油优选为C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-（更优选C<sub>12</sub>-C<sub>22</sub>-）脂肪酸酯。C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸酯类为例如：不饱和或饱和的C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸的酯类，所述酸特别是具有偶数个碳原子的那些，例如芥酸、月桂酸、棕榈酸，特别是C<sub>18</sub>-脂肪酸，如硬脂酸、油酸、亚油酸或亚麻酸。



[0180] C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸酯类的实例为：将丙三醇或乙二醇与——例如于产油植物种的油类中的——所含C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸反应而得到的酯类，或者C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-烷基-C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸酯类（其可以例如由上述的丙三醇-或乙二醇-C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸酯与C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-醇（例如甲醇、乙醇、丙醇或丁醇）的酯交换反应得到）。酯交换反应可以通过已知方法予以进行，所述方法如描述于例如**Römpp** Chemie Lexikon, 第9版, 卷2, 第1343页, Thieme Verlag Stuttgart中的。

[0181] 优选的C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-烷基-C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸酯类是甲酯类、乙酯类、丙酯类、丁酯类、2-乙基己酯类和十二烷基酯类。优选乙二醇-和丙三醇-C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸酯类为C<sub>10</sub>-C<sub>22</sub>-脂肪酸的相同或混合的乙二醇酯类和丙三醇酯类，所述酸特别是具有偶数个碳原子的脂肪酸类，例如芥酸、月桂酸、棕榈酸；以及特别是C<sub>18</sub>-脂肪酸，例如硬脂酸、油酸、亚油酸或亚麻酸。

[0182] 在本发明的除草组合物中，植物油可以以例如市售可得的含油制剂添加剂形式存在，特别是基于菜籽油的那些，例如**Hasten**<sup>®</sup> (Victorian Chemical Company, Australia, 下文称为Hasten, 主要成分：菜籽油乙酯)、**Actirob**<sup>®</sup> B (Novance, France, 下文称为ActirobB, 主要成分：菜籽油甲酯)、**Rako-Binol**<sup>®</sup> (Bayer AG, Germany, 下文称为Rako-Binol, 主要成分：菜籽油)、**Renol**<sup>®</sup> (Stefes, Germany, 下文称为Renol, 植物油成分：菜籽油甲酯) 或Stefes**Mero**<sup>®</sup> (Stefes, Germany, 下文称为Mero, 主要成分：菜籽油甲酯)。

[0183] 在另外的实施方案中，本发明还包括与上述植物油的结合物，所述植物油例如为菜籽油，优选为市售可得的含油制剂添加剂形式，特别是基于菜籽油的那些，例如**Hasten**<sup>®</sup> (Victorian Chemical Company, Australia, 下文称为Hasten, 主要成分：菜籽油乙酯)、**Actirob**<sup>®</sup> B (Novance, France, 下文称为ActirobB, 主要成分：菜籽油甲酯)、**Rako-Binol**<sup>®</sup> (Bayer AG, Germany, 下文称为Rako-Binol, 主要成分：菜籽油)、**Renol**<sup>®</sup> (Stefes, Germany, 下文称为Renol, 植物油成分：菜籽油甲酯) 或Stefes**Mero**<sup>®</sup> (Stefes, Germany, 下文称为Mero, 主要成分：菜籽油甲酯)。

[0184] 可使用着色剂，例如无机颜料，如氧化铁、氧化钛和普鲁士蓝；和有机着色剂，例如茜素着色剂、偶氮着色剂和金属酞菁着色剂；和微量营养素，如铁、锰、硼、铜、钴、钼和锌的盐类。

[0185] 通常，制剂包括0.1至95重量%的活性化合物，优选0.5至90重量%。

[0186] 就其本身或在其制剂中而言，除草剂(A)和(B)也可以与其它农化活性化合物（例如已知的除草剂）的混合物方式使用，用于防治有害的植物，例如防治杂草或防治有害的作物植物，其可为例如最终制剂或桶混物。

[0187] 也可与其它已知的活性化合物的混合，所述活性化合物例如杀菌剂、杀昆虫剂、杀螨剂、杀线虫剂、安全剂、驱鸟剂、植物营养素和改善土壤结构的药剂。

[0188] 除草剂(A)和(B)可以其本身、其制剂形式或以由其进一步稀释而制备的使用形式使用，例如即用的溶液剂、悬浮剂、乳剂、粉剂、糊剂和颗粒剂。其以常规方式予以使用，例如通过灌水、喷洒、雾化或撒播。

[0189] 活性化合物可以施用至植物（例如有害植物，如单子叶或双子叶阔草杂草、禾本科杂草、莎草科或有害的作物植物）、种子（例如谷粒、种子或无性繁殖器官，如有芽的块茎或

幼枝部分)或栽培区域(例如土壤),优选施用至绿色植物和植物的部位,如果适合,还有土壤。一种可能的使用是活性化合物以桶混物形式联合施用,其中单个活性化合物的最佳配制浓缩制剂与水一起与桶中混合,且施用所得到的喷洒液体。

[0190] 本发明的除草剂(A)和(B)的结合物的联合除草制剂具有易于施用的优点,因为组分的含量已经是最佳比例。此外,制剂中的助剂可以彼此最佳化地予以调整。

## 具体实施方式

[0191] 生物实施例

[0192] 针对杂草的芽后作用

[0193] 方法

[0194] 将单和双子叶有害和有用植物的种子或根茎块置于填有砂壤土的泥炭营养钵(直径4cm)中且然后用土壤覆盖。将该钵在温室内保持于最佳条件下。此外,将水稻栽培中所遇到的有害植物栽培于水位高于土壤表面2cm的钵中。

[0195] 开始栽培后约3个星期,供试植物在2到3叶期时予以处理。将配制成粉剂或液体浓缩物的除草剂单独或以本发明结合物的方式以各种剂量喷洒至植物的绿色部位,其中所使用的施用率为600l水/ha(换算后)。为了进一步栽培植物,然后将该钵再次于温室内保持于最佳条件下。

[0196] 除草效果的视觉评分在处理之后以至多21天的间隔予以进行。评分相对于未处理的对照植物组以百分比表示方式进行。0%=无除草活性,100%=完全的除草活性=完全除去。

[0197] 使用单独以除草剂(=单独施用)和以本发明的结合物(=混合物)处理的百分比以Colby方法计算相互作用。当该混合物的实测药效超出单独施用的试验值的形式总和时,其也超出了依据Colby使用下式计算得到的预期值(参考S.R.Colby;于Weeds 15(1967)第20至22页中)

[0198]  $E=A+B-(A \times B/100)$

[0199] 在此:

[0200] A、B=组分A和B分别在剂量为a和b g ai/ha(=g活性物质/公顷)时以百分比表示的活性。

[0201] E=在剂量为a+b g ai/ha时以%表示的预期值。

[0202] 结果

[0203] 本发明的选自组(A)的除草剂与选自组(B)的除草剂的结合物对宽范围的重要有害植物(禾本科杂草、阔叶杂草/莎草科)和有用植物进行试验:小麦(*Triticum aestivum*, TRZAS)、繁缕(*Stellaria media*, STEME)、多花黑麦草(*Lolium multiflorum*, LOLMU)、阿拉伯婆婆纳(*Veronica persica*, VERPE)、大穗看麦娘(*Alopecurus myosuroides*, ALOMY)、母菊(*Matricaria inodora*, MATIN)、欧洲油菜(*Brassica napus*, BRSNW)、三色堇(*Viola tricolor*, VIOTR)、野燕麦(*Avena fatua*, AVEFA)、反枝苋(*Amaranthus retroflexus*, AMARE)、玉米(*Zea mays*, ZEAMX)、圆叶牵牛(*Pharbitis purpurea*, PHBPU)、狗尾草(*Setaria viridis*, SETVI)、卷茎蓼(*Fallopia (ex Polygonum) convolvulus*, POLCO)、稗草(*Echinochloa*, ECHCG)、苘麻(*Abutilon theophrasti*, ABUTH)、油莎草(*Cyperus*

esculentus, CYPES)、水稻 (*Oryza sativa*, ORYSA)。

[0204] 特别令人关注的为下表 (Tab.) 所示的结果, 其中使用以下图解:

[0205] (1) 经处理植物的EPP0码 (前Bayer码) (参见上面)

[0206] (2) 评分时间: DAT (处理之后的天数)

[0207] (3) 供试组分A (识别编号)

[0208] (4) 供试组分B (识别编号)

[0209] (5) 剂量组分A [g ai/ha]

[0210] (6) 剂量组分B [g ai/ha]

[0211] (7) 实测活性%

[0212] (8) E值 (依据Colby计算的; 参见上面)

[0213] (9) 评注: “SYNERGY” = 协同增效相互作用 (E值 < 实测活性%);

[0214] “SAFENING” = 对有用植物的安全剂作用 (E值 > 实测活性%)

**Tab. 1: (1) ORYSA – (2) 10 DAT -  
(3) A-1 – (4) B1-5**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	10	-
(4)	-	30	40	-
(3)+(4)	12	30	30	46

(9) SAFENING

**Tab. 5: (1) TRZAS – (2) 10 DAT -  
(3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
(4)	-	210	0	-
(3)+(4)	12	210	10	0

(9) SYNERGY

20

**5 Tab. 2: (1) TRZAS – (2) 21 DAT -  
(3) A-1 – (4) B1-5**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
	4	-	0	-
(4)	-	30	20	-
(3)+(4)	12	30	30	20
	4	30	30	20

(9) SYNERGY

[0215]

**Tab. 6: (1) ZEAMX – (2) 10 DAT -  
(3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
	4	-	0	-
(4)	-	210	40	-
	-	70	0	-
(3)+(4)	12	210	50	40
	12	70	40	0
	4	210	60	40
	4	70	60	0

(9) SYNERGY

**Tab. 3: (1) LOLMU – (2) 21 DAT -**

10 (3) A-1 – (4) B1-5

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	0	-
(4)	-	30	20	-
(3)+(4)	4	30	30	20

(9) SYNERGY

**25 Tab. 7: (1) ALOMY – (2) 21 DAT -  
(3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	50	-
	4	-	40	-
(4)	-	210	0	-
	-	70	0	-
(3)+(4)	12	210	88	50
	12	70	70	50
	4	210	50	40
	4	70	50	40

(9) SYNERGY

**Tab. 4: (1) MATIN – (2) 21 DAT -**

(3) A-1 – (4) B1-5

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	50	-
(4)	-	30	80	-
(3)+(4)	4	30	100	90

15 (9) SYNERGY

**Tab. 8: (1) VIOTR – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	0	-
(4)	-	210	60	-
(3)+(4)	4	210	70	60

(9) SYNERGY

**Tab. 12: (1) CYPES – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	80	-
	4	-	80	-
(4)	-	70	0	-
(3)+(4)	12	70	95	80
	4	70	90	80

(9) SYNERGY

**5 Tab. 9: (1) AVEFA – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	10	-
(4)	-	210	0	-
	-	70	0	-
(3)+(4)	4	210	30	10
	4	70	30	10

(9) SYNERGY

20

**Tab. 13: (1) VERPE – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	60	-
(4)	-	75	0	-
(3)+(4)	12	75	70	60

(9) SYNERGY

[0216]

**10 Tab. 10: (1) AVEFA – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	30	-
(4)	-	210	0	-
(3)+(4)	12	210	50	30

(9) SYNERGY

**25 Tab. 14: (1) VIOTR – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	20	-
	4	-	20	-
(4)	-	75	0	-
(3)+(4)	12	75	40	20
	4	75	30	20

(9) SYNERGY

**Tab. 11: (1) ZEAMX – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B5-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	0	-
(4)	-	70	0	-
(3)+(4)	4	70	30	0

15 (9) SYNERGY

**30 Tab. 15: (1) AMARE – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	70	-
(4)	-	25	0	-
(3)+(4)	12	25	80	70

(9) SYNERGY

**Tab. 16: (1) ZEAMX – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
	4	-	0	-
(4)	-	25	70	-
(3)+(4)	12	25	80	70
	4	25	80	70

(9) SYNERGY

**5 Tab. 17: (1) PHBPU – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	60	-
(4)	-	75	20	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	4	75	80	68
	4	25	80	60

(9) SYNERGY

[0217]

**10 Tab. 18: (1) PHBPU – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	60	-
(4)	-	25	0	-
(3)+(4)	12	25	80	60

(9) SYNERGY

**Tab. 19: (1) POLCO – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	70	-
	4	-	70	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	80	70
	12	25	80	70
	4	75	80	70
	4	25	80	70

15 (9) SYNERGY

**Tab. 20: (1) VERPE – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	40	-
	4	-	30	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	50	40
	12	25	50	40
	4	75	40	30
	4	25	40	30

(9) SYNERGY

**20 Tab. 21: (1) ALOMY – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	50	-
	4	-	40	-
(4)	-	75	20	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	80	60
	12	25	65	50
	4	75	70	52
	4	25	60	40

(9) SYNERGY

**Tab. 22: (1) MATIN – (2) 21 DAT -**

**25 (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	60	-
	4	-	50	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	88	60
	12	25	90	60
	4	75	70	50
	4	25	80	50

(9) SYNERGY

**Tab. 23: (1) VIOTR – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	0	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	4	75	10	0
	4	25	10	0

(9) SYNERGY \_\_\_\_\_

**Tab. 27: (1) ZEAMX – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
	4	-	0	-
(4)	-	25	70	-
(3)+(4)	12	25	90	70
	4	25	95	70

(9) SYNERGY

20

**5 Tab. 24: (1) VIOTR – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	10	-
(4)	-	75	0	-
(3)+(4)	12	75	20	10

(9) SYNERGY

**Tab. 28: (1) PHBPU – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	65	-
	4	-	60	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	85	65
	12	25	90	65
	4	75	90	60
	4	25	90	60

(9) SYNERGY

[0218]

**Tab. 25: (1) AVEFA – (2) 21 DAT -**

10 (3) A-1 – (4) B7-2

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	30	-
	4	-	10	-
(4)	-	25	0	-
(3)+(4)	12	25	40	30
	4	25	40	10

(9) SYNERGY

**25 Tab. 29: (1) POLCO – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	70	-
	4	-	75	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	95	70
	12	25	95	70
	4	75	95	75
	4	25	95	75

(9) SYNERGY

**Tab. 26: (1) AMARE – (2) 21 DAT -**

(3) A-1 – (4) B7-2

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	75	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	95	75
	12	25	95	75

15 (9) SYNERGY

**Tab. 30: (1) ABUTH – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	85	-
	4	-	85	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	95	85
	12	25	95	85
	4	75	95	85
	4	25	95	85

(9) SYNERGY

**5 Tab. 31: (1) CYPES – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	80	-
	4	-	80	-
(4)	-	75	0	-
	-	25	0	-
(3)+(4)	12	75	95	80
	12	25	90	80
	4	75	90	80
	4	25	90	80

(9) SYNERGY

[0219]

**Tab. 32: (1) ORYSA – (2) 21 DAT - 10 (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	0	-
(4)	-	75	20	-
	-	25	10	-
(3)+(4)	4	75	10	20
	4	25	0	10

(9) SAFENING

**Tab. 33: (1) ORYSA – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-2**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	10	-
(4)	-	75	20	-
(3)+(4)	12	75	10	28

15 (9) SAFENING

**Tab. 34: (1) TRZAS – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
	4	-	0	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	20	0
	12	10	20	0
	4	30	30	0
	4	10	20	0

(9) SYNERGY

20

**Tab. 35: (1) LOLMU – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	10	-
	4	-	0	-
(4)	-	10	20	-
(3)+(4)	12	10	60	28
	4	10	50	20

(9) SYNERGY

**25 Tab. 36: (1) VERPE – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	60	-
(4)	-	10	0	-
(3)+(4)	12	10	70	60

(9) SYNERGY



**Tab. 37: (1) MATIN – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	60	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	4	30	70	60
	4	10	70	60

(9) SYNERGY

**Tab. 41: (1) AMARE – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	70	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	80	70
	12	10	80	70

(9) SYNERGY

**5 Tab. 38: (1) VIOTR – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	20	-
(4)	-	30	0	-
(3)+(4)	4	30	30	20

(9) SYNERGY

20

**Tab. 42: (1) ZEAMX – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	0	-
(4)	-	30	70	-
	-	10	30	-
(3)+(4)	4	30	80	70
	4	10	70	30

(9) SYNERGY

[0220]

**10 Tab. 39: (1) VIOTR – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	20	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	30	20
	12	10	40	20

(9) SYNERGY

**25 Tab. 43: (1) ZEAMX – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
(4)	-	10	30	-
(3)+(4)	12	10	60	30

(9) SYNERGY

**Tab. 40: (1) AVEFA – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	50	-
	4	-	40	-
(4)	-	10	0	-
(3)+(4)	12	10	65	50
	4	10	60	40

15 (9) SYNERGY

**30 Tab. 44: (1) PHBPU – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	60	-
	4	-	60	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	70	60
	12	10	70	60
	4	30	70	60
	4	10	70	60

(9) SYNERGY

**Tab. 45: (1) ABUTH – (2) 10 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	70	-
	4	-	70	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	80	70
	12	10	80	70
	4	30	80	70
	4	10	80	70

(9) SYNERGY

**5 Tab. 46: (1) LOLMU – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

[0221]

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	10	-
	4	-	0	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	40	10
	12	10	30	10
	4	30	30	0
	4	10	10	0

(9) SYNERGY

**10 Tab. 47: (1) VERPE – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	30	-
(4)	-	10	0	-
(3)+(4)	4	10	40	30

(9) SYNERGY

**Tab. 48: (1) VERPE – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	40	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	50	40
	12	10	50	40

15 (9) SYNERGY

**Tab. 49: (1) ALOMY – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	50	-
	4	-	40	-
(4)	-	30	30	-
	-	10	30	-
(3)+(4)	12	30	85	65
	12	10	80	65
	4	30	85	58
	4	10	70	58

(9) SYNERGY

20

**Tab. 50: (1) MATIN – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	60	-
	4	-	50	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	88	60
	12	10	80	60
	4	30	88	50
	4	10	80	50

(9) SYNERGY

**Tab. 51: (1) VIOTR – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	10	-
	4	-	0	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	20	10
	12	10	20	10
	4	30	10	0
	4	10	10	0

(9) SYNERGY

**5 Tab. 52: (1) AVEFA – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	30	-
	4	-	10	-
(4)	-	30	0	-
(3)+(4)	12	30	40	30
	4	30	20	10

(9) SYNERGY

[0222]

**Tab. 53: (1) AMARE – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	70	-
(4)	-	30	0	-
(3)+(4)	4	30	85	70

(9) SYNERGY

**Tab. 54: (1) AMARE – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	75	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	90	75
	12	10	90	75

15 (9) SYNERGY

**Tab. 55: (1) ZEAMX – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	0	-
	4	-	0	-
(4)	-	10	20	-
(3)+(4)	12	10	50	20
	4	10	70	20

(9) SYNERGY

**20 Tab. 56: (1) PHBPU – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	4	-	60	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	4	30	80	60
	4	10	90	60

(9) SYNERGY

**25 Tab. 57: (1) PHBPU – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	65	-
(4)	-	10	0	-
(3)+(4)	12	10	80	65

(9) SYNERGY

**Tab. 58: (1) POLCO – (2) 21 DAT - (3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	70	-
	4	-	75	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	95	70
	12	10	95	70
	4	30	95	75
	4	10	95	75

30 (9) SYNERGY

**Tab. 59: (1) ABUTH – (2) 21 DAT -  
(3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	85	-
	4	-	85	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	95	85
	12	10	95	85
	4	30	95	85
	4	10	95	85

(9) SYNERGY

5

[0223]

**Tab. 60: (1) CYPES – (2) 21 DAT -  
(3) A-1 – (4) B7-4**

	(5)	(6)	(7)	(8)
(3)	12	-	80	-
	4	-	80	-
(4)	-	30	0	-
	-	10	0	-
(3)+(4)	12	30	95	80
	12	10	90	80
	4	30	90	80
	4	10	90	80

(9) SYNERGY

10