



19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 361 400**

51 Int. Cl.:
A01N 25/30 (2006.01)
A01N 57/20 (2006.01)
A01N 43/56 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **02786157 .4**
96 Fecha de presentación : **19.12.2002**
97 Número de publicación de la solicitud: **1464221**
97 Fecha de publicación de la solicitud: **06.10.2004**

54 Título: **Composición herbicida y método de utilización de la misma.**

30 Prioridad: **19.12.2001 JP 2001-386057**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
16.06.2011

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
16.06.2011

73 Titular/es: **NIHON NOHYAKU Co., Ltd.**
2-5, Nihonbashi 1-chome
Chuo-ku, Tokyo 103-8236, JP

72 Inventor/es: **Shimizu, Toshiaki;**
Aoki, Miyako;
Ishimura, Isao y
Mabuchi, Tsutomu

74 Agente: **Sugrañes Moliné, Pedro**

ES 2 361 400 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

COMPOSICIÓN HERBICIDA Y MÉTODO DE UTILIZACIÓN DE LA MISMA

Campo de la invención

5 **[0001]** La presente invención se refiere a una composición herbicida que presenta una acción rápida, un efecto mejorado y una estabilidad de largo plazo de la preparación, y a un método de utilización de la composición herbicida.

Antecedentes de la técnica

10 **[0002]** Entre los compuestos herbicidas inducidos por la luz representados por la fórmula general (I), los derivados fenilpirazol 3-sustituídos representados por la fórmula general (I-1) son compuestos conocidos dados a conocer en las patentes japonesas abiertas al público Nos. Hei 3-163063 y Hei 4-211085, en las que se menciona que dichos compuestos presentan, como herbicidas para el tratamiento de las hojas, una actividad herbicida excelente sobre las malas hierbas de hoja ancha en general que resultan perjudiciales para la agricultura de montaña.

15 **[0003]** Es conocido que varios compuestos que presentan una estructura química global y configuración relativa de los sustituyentes análogos a una estructura química de fórmula general (I-1), muestran una actividad herbicida similar a la de los herbicidas inducidos por la luz (Anderson et al., ACS Symposium Series, vol. 559, Porphyrin Pesticides, S.O. Duke y C.A. Robeiz, editores, páginas 18 a 34, 1994). También es conocido que puede proporcionarse generalmente una resistencia frente a estos herbicidas inducidos por la luz a las plantas mediante la introducción de un gen específico en las mismas (solicitud de patente internacional WO 98/29554).

20 **[0004]** Por otra parte, los compuestos herbicidas organofosforados tales como la N-(fosfonometil)glicina o las sales de la misma dados a conocer en las patentes japonesas abiertas al público Nos. Sho 47-39538 y Sho 57-98994, la 4-[hidroxi(metil)fosfino]-DL-homoalanina o las sales de la misma, dados a conocer en la patente japonesa abierta al público No. Sho 57-26564 y la 4-[hidroxi(metil)fosfino]-L-homoalanil-L-alanil-L-alanina o las sales de la misma dados a conocer en la patente japonesa abierta al público No. Sho 50-23282, etc., son bien conocidos como herbicidas no selectivos para el tratamiento de las hojas.

25 **[0005]** Además, la patente japonesa abierta al público No. Hei 7-242510 da a conocer composiciones herbicidas que contienen un derivado fenilpirazol 3-sustituído y un compuesto herbicida organofosforado.

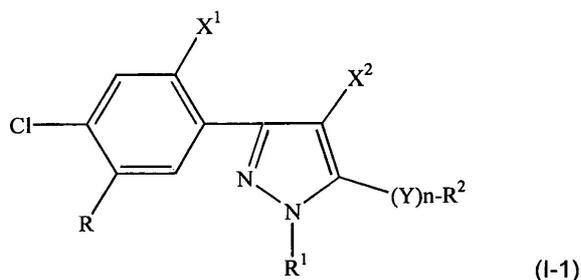
30 **[0006]** Además, Weed Sci. Soc. 25:275-287, 1977, se refiere a un efecto adyuvante de los alcoxilatos de alcohol alquílico sobre la N-(fosfonometil)glicina. Sin embargo, esta técnica resulta insuficiente en su efecto adyuvante y los alcoxilatos de alcohol alquílicos no son fácilmente compatibles con una solución acuosa de N-(fosfonometil)glicina. La patente JP 2001-131010, correspondiente a la patente EP 1 206 907, da a conocer determinadas composiciones herbicidas que comprenden alcoxilatos de etilendiamina y alcoxilatos de alcohol como surfactantes.

[0007] Por consiguiente, se ha solicitado la mejora adicional del efecto herbicida y la acción rápida de una composición herbicida que contenga un compuesto herbicida inducido por la luz, especialmente un derivado fenilpirazol 3-sustituído y un compuesto herbicida organofosforado.

35 Exposición de la invención

40 **[0008]** Los presentes inventores han llevado a cabo estudios extensivos con el objetivo de resolver los problemas anteriormente mencionados, encontrando que, mediante la adición de alcoxilatos de alcohol alquílico específicos y de alcoxilatos de alcohol alquílico específicos a modo de surfactantes a una composición herbicida específica, puede conseguirse una acción rápida excelente de la composición y puede mejorarse el efecto de la misma mediante la acción sinérgica de los ingredientes activos y los surfactantes; además, puede obtenerse una composición herbicida que mantenga una actividad herbicida estable durante un periodo de tiempo prolongado. Basándose en este resultado, se ha llevado a cabo la presente invención.

[0009] La presente invención se refiere a una composición herbicida según la reivindicación 1. Las composiciones comprenden un compuesto fenilpirazol de fórmula general:



en la que R es $\text{OCH}_2\text{COOCH}_2\text{CH}_3$, R^1 es CH_3 , R^2 es CHF_2 , X^1 es F, X^2 es Cl e $(\text{Y})_n$ es O. Este compuesto presenta un punto de fusión de $127,6^\circ\text{C}$.

Las composiciones también incluyen uno o más compuestos seleccionados de entre N-(fosfonometil)glicina o sales de la misma, tales como la sal isopropilamina de N-(fosfonometil)glicina (en lo sucesivo denominada "Compuesto A"), la sal amónica de N-(fosfonometil)glicina, la sal trimetilsulfonio de N-(fosfonometil)glicina, la sal potásica de N-(fosfonometil)glicina, la 4-[hidroxi(metil)fosfino]-DL-homoalanina o sales de la misma, tales como la sal amónica de 4-[hidroxi(metil)fosfino]-DL-homoalanina, 4-[hidroxi(metil)fosfino]-L-homoalanil-L-alanil-L-alanina o sales de la misma, tales como la sal sódica de 4-[hidroxi(metil)fosfino]-L-homoalanil-L-alanil-L-alanina, etc. Son compuestos herbicidas organofosforados preferentes las sales isopropilamina de N-(fosfonometil)glicina.

[0010] Los alcoxilatos de alcohol alquénico utilizados como surfactante en la presente invención son compuestos seleccionados de entre un aducto de alcohol oleílico y polioxietileno, un aducto de alcohol oleílico y polioxipropileno y un copolímero de alcohol oleílico, polioxietileno y polioxipropileno. Entre los ejemplos preferentes de los mismos se incluyen Noigen ET-89 (fabricado por Dai-ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.), Noigen ET-109 (fabricado por la compañía indicada anteriormente), Noigen ET-129 (fabricado por la compañía indicada anteriormente), Noigen ET-149 (fabricado por la compañía indicada anteriormente), Noigen ET-159 (fabricado por la compañía indicada anteriormente), Pegnol O-107 (fabricado por Toho Chemical Industry Co., Ltd.) y Emulgen 409P (fabricado por Kao Corporation). Puede seleccionarse una o más especies de entre los alcoxilatos de alcohol alquénico anteriormente indicadas y utilizarse.

[0011] Los alcoxilatos de alcohol alquílicos son compuestos seleccionados de entre etoxilatos de alcohol alquílico primario, propoxilatos de alcohol alquílico primario, propoxilatos de etoxilato de alcohol alquílico primario, etoxilatos de alcohol alquílico secundario, propoxilatos de alcohol alquílico secundario, propoxilatos de etoxilato de alcohol alquílico secundario, etoxilatos de alcohol alquílico terciario, propoxilatos de alcohol alquílico terciario y propoxilatos de etoxilato de alcohol alquílico terciario. Entre los ejemplos preferentes de los mismos se incluyen Noigen ET-165 (fabricado por Dai-ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.), Noigen ET-105 (fabricado por la compañía indicada anteriormente), Adekatol SO-135 (fabricado por Asahi Denka Co., Ltd.), NK (Newkalgen)-D-1107S (fabricado por Takemoto Oil & Fat Co., Ltd.), Lutensol T08 (fabricado por BASF AG), TO-347 (fabricado por Nippon Nyukazai Co., Ltd.), etc. Puede seleccionarse una o más especies de dichos alcoxilatos de alcohol alquílico y utilizarse.

[0012] En la composición herbicida de la presente invención, las proporciones de los ingredientes que la forman son las siguientes. Por cada 100 partes en peso de la composición herbicida, se utiliza el compuesto fenilpirazol en una cantidad de entre 0,01 y 10,0 partes en peso, y preferentemente de entre 0,1 y 2,0 partes en peso; el compuesto herbicida organofosforado se utiliza en una cantidad de entre 1,0 y 60,0 partes en peso, y preferentemente de entre 5,0 y 40,0 partes en peso; el alcoxilato de alcohol alquénico se utiliza en una cantidad de entre 0,1 y 20 partes en peso, y preferentemente de entre 5,0 y 15,0 partes en peso, y el alcoxilato de alcohol alquílico se utiliza en una cantidad de entre 0,1 y 20,0 partes en peso, y preferentemente de entre 5,0 y 15,0 partes en peso.

[0013] Las proporciones de alcoxilato de alcohol alquénico y alcoxilato de alcohol alquílico en la composición herbicida de la presente invención son de 5/1 a 1/5, preferentemente de 2/1 a 1/2 de peso de alcoxilato de alcohol alquénico/peso de alcoxilato alquílico.

[0014] Al utilizar la composición herbicida de la presente invención, la composición se prepara en una forma apropiada de acuerdo con el propósito según el método convencional en la preparación de pesticida, y seguidamente se utiliza. Por ejemplo, la composición se mezcla con un portador sólido, un portador líquido u otros adyuvantes necesarios, y la mezcla obtenida de esta manera se conforma en una forma de preparación tal como un concentrado en suspensión en el que los ingredientes activos existen en un estado de partículas finas suspendidas, o unos polvos humectables, o unos gránulos dispersables en agua, o similar, y seguidamente se utilizan.

[0015] Además, también resulta posible mezclar una composición preparada que contiene surfactantes que deben utilizarse en la presente invención, en una cantidad de entre 0,1 y 99,0 partes en peso, preferentemente de entre 25,0 y 75,0 partes en peso por cada parte en peso del compuesto herbicida inducido por luz de fórmula general (I), con una preparación comercialmente disponible que contiene un compuesto organofosforado a modo de ingrediente activo, en el momento de preparar una preparación líquida para ser pulverizada y posterior utilización.

5 **[0016]** Durante la utilización de un concentrado en suspensión o de unos gránulos dispersables en agua que contienen un material finamente pulverizado que comprende a modo de ingredientes activos entre 0,01 y 10 partes en peso del compuesto fenilpirazol representado por la fórmula general (I) y entre 1 y 50 partes en peso de un compuesto herbicida organofosforado y que no contiene surfactante, también resulta posible mezclar y disolver separadamente los surfactantes que deben utilizarse en la presente invención en el concentrado en suspensión o en los gránulos dispersables en agua durante la preparación de una mezcla líquida para la pulverización, en una proporción de entre 10 y 90 partes en peso de la solución de surfactante por cada parte en peso del compuesto fenilpirazol.

Mejor modo de poner en práctica la invención

10 **[0017]** Más abajo se presentan ejemplos típicos y ejemplos de ensayo de la presente invención. La presente invención no se encuentra en modo alguno limitada a estos ejemplos. Los términos "parte" y "partes" se refieren a parte en peso o partes en peso, respectivamente.

(Base)

[0018]

Compuesto de fórmula I-1	40,0 partes
Neocol YSK (fabricado por Dai-ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.)	1,0 parte
Sorpol 7425 (fabricado por Toho Chemical Industry Co., Ltd.)	3,0 partes
Propilenglicol	3,0 partes
Silicona KM-73 (fabricado por Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.)	0,5 partes
Proxel GXL (fabricado por Zeneca Japan)	0,1 partes
Rhodopol 23 (fabricado por Rhône-Poulenc)	0,02 partes
Agua	c.s.p. 100 partes
<hr/> Total	<hr/> 100 partes

15 **[0019]** Cada una de las mezclas que presentan las proporciones de compuestos anteriormente indicadas se pulverizó finamente por medio de un molino Dyno-Mill (fabricado por Bachofen AG) relleno de perlas cerámicas de 0,3 mm (Toreceram, fabricado por Toray Industries, Inc.) para preparar una composición en suspensión que contenía 40% de compuesto de fórmula I-1 en forma de partículas pequeñas, con un diámetro de partícula medio de 0,3 µm.

20 **[0020]** Las composiciones de los Ejemplos 1 a 10 se prepararon mediante la utilización, a modo de base, de la composición en suspensión obtenida de esta manera.

Ejemplo 1	
Base de compuesto de fórmula I-1 (40,0%)	0,44 partes
Compuesto A (solución acuosa al 62,0%)	50,80 partes
Noigen ET-129	10,00 partes
Lutenson T08	7,00 partes
Propilenglicol	5,00 partes
Soprophor DSS/7-60 (fabricado por Rhodia Nikka Co.)	1,83 partes
N-metil-2-pirrolidona	0,15 partes
Silicona KM-73	0,50 partes
Proxel GXL	0,10 partes
Attagel 50	0,50 partes
Rhodopol 23	0,10 partes
Agua	c.s.p. para 100 partes
<hr/> Total	<hr/> 100,00 partes

[0021] Una mezcla de la formulación anteriormente indicada se homogeneizó uniformemente utilizando un mezclador tal como Autohomomixer (fabricado por Tokushu Kika K.K.) o similar para obtener una composición en suspensión que contenía 0,16% de compuesto de fórmula I-1 y 30% de Compuesto A.

25 Ejemplos 2 a 10

[0022] Los concentrados en suspensión se prepararon mediante la repetición del Ejemplo 1, excepto en que el alcoxilato de alcohol alquénico y el alcoxilato de alcohol alquílico utilizados en el Ejemplo 1 se sustituyeron por los mostrados en la Tabla 2.

Tabla 2

Ejemplo	Alcoxilato de alcohol alquénílico Alcoxilato de alcohol alquílico	Proporción de compuesto (partes en peso)
2	Noigen ET-129 Noigen ET-165	10,0 7,0
3	Noigen ET-129 Noigen ET-115	10,0 7,0
4	Noigen ET-129 Adekatol SO-135	10,0 7,0
5	Noigen ET-129 TO-347	10,0 7,0
6	Pegmol O-107 NK-D1107S	10,0 7,0
7	Noigen ET-89 NK-D1107S	10,0 7,0
8	Noigen ET-109 NK-D1107S	10,0 7,0
9	Noigen ET-149 NK-D1107S	10,0 7,0
10	Noigen ET-159 NK-D1107S	10,0 7,0

Ejemplo comparativo 1

- 5 **[0026]** Se utilizó una preparación comercial que contenía Compuesto A como ingrediente activo (solución de sal isopropilamina de glifosato).

Ejemplo comparativo 2

[0027] Se preparó una composición mediante la repetición del Ejemplo 1, excepto en que no se utilizó el alcoxilato de alcohol alquílico.

- 10 Ejemplo comparativo 3

[0028] Se preparó una composición mediante la repetición del Ejemplo 1, excepto en que no se utilizó el alcoxilato de alcohol alquénílico.

Ejemplo de ensayo 1

- 15 **[0029]** Se cultivó hierba de corral (*Echinochloa crus-galli*) y bardana menor (*Xanthium strumarium*) en una maceta de plástico de 12 cm de diámetro. Tras alcanzar las plantas el estadio de 7 hojas o un estadio posterior, se pulverizó una solución de agente de ensayo ajustada a una concentración prescrita, y se evaluó a ojo desnudo el efecto herbicida el tercer y vigesimoprimer día después del tratamiento (0: efecto herbicida nulo; 100: marchitamiento).

[0030] Se resumen los resultados en la Tabla 3.

Tabla 3

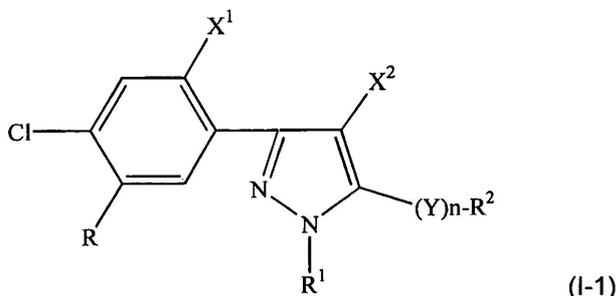
	Compuesto (g/ha)		3 días después		21 días después	
	I-1	Compuesto A	Hierba de corral	Bardana menor	Hierba de corral	Bardana menor
Ejemplo 1	5,3	1.000	70	95	100	100
Ejemplo 2	5,3	1.000	75	90	100	100
Ejemplo 3	5,3	1.000	75	95	100	100
Ejemplo 4	5,3	1.000	75	95	100	100
Ejemplo 6	5,3	1.000	75	90	100	100
Ejemplo 9	5,3	1.000	78	90	100	100
Ejemplo 10	5,3	1.000	78	90	100	100
Ejemplo comparativo 1	0,0	1.000	25	40	100	100
Ejemplo comparativo 2	5,3	1.000	60	75	100	100
Ejemplo comparativo 3	5,3	1.000	40	60	100	100

Aplicabilidad industrial

- 5 **[0031]** Se ha encontrado que, en una composición que comprende una mezcla de un derivado fenilpirazol específico y un compuesto herbicida organofosforado específico, puede conseguirse una excelente acción herbicida rápida y una mejora del efecto herbicida mediante la incorporación de un alcoxilato de alcohol alquénico específico y un alcoxilato de alcohol alquílico en la composición.

REIVINDICACIONES

1. Composición herbicida que contiene un compuesto fenilpirazol de fórmula general:



- 5 en la que R es OCH₂COOCH₂CH₃, R¹ es CH₃, R² es CHF₂, X¹ es F, X² es Cl e (Y)_n es O, y uno o más compuestos herbicidas organofosforados seleccionados de entre N-(fosfonometil)glicina o una sal de la misma, 4-[hidroxi(metil)fosfino]-DL-homoalanina o una sal de la misma, y 4-[hidroxi(metil)fosfino]-L-homoalanil-L-alanil-L-alanina o una sal de la misma, a modo de ingredientes activos de la misma, **caracterizada porque** contiene uno o más surfactantes alcoxilato de alcohol alquénico seleccionados de entre un aducto de alcohol oleílico con polioxietileno, un aducto de alcohol oleílico con polioxipropileno, y un copolímero de alcohol oleílico, polioxietileno y polioxipropileno, y uno o más surfactantes alcoxilato de alcohol alquílico seleccionados de entre etoxilatos de alcohol alquílico primario, propoxilatos de alcohol alquílico primario, propoxilatos de etoxilato de alcohol alquílico primario, etoxilatos de alcohol alquílico secundario, propoxilatos de alcohol alquílico secundario, propoxilatos de etoxilato de alcohol alquílico secundario, etoxilatos de alcohol alquílico terciario, propoxilatos de alcohol alquílico terciario y propoxilatos de etoxilato de alcohol alquílico terciario; que contienen el compuesto fenilpirazol en una cantidad de entre 0,01 y 10,0 partes en peso, el compuesto herbicida organofosforado en una cantidad de entre 1 y 60,0 partes en peso, el alcoxilato de alcohol alquénico en una cantidad de entre 0,1 y 20,0 partes en peso y el alcoxilato de alcohol alquílico en una cantidad de entre 0,1 y 20,0 partes en peso, todos por cada 100 partes en peso de la composición herbicida.
- 10
- 15
- 20 2. Composición herbicida según la reivindicación 1, en la que la proporción de peso de alcoxilato de alcohol alquénico/peso de alcoxilato de alcohol alquílico se encuentra comprendida entre 5/1 y 1/5.
3. Composición herbicida según la reivindicación 1 ó 2, en la que la composición herbicida es un concentrado en suspensión, gránulos dispersables en agua o una preparación acuosa.
- 25 4. Método para controlar las malas hierbas perjudiciales para las plantas de cultivo, **caracterizado por** el tratamiento de las malas hierbas o el suelo con una cantidad efectiva de la composición herbicida según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3.