

RAISBECK, LARA, RODRIGUEZ & RUEDA

MIEMBROS DE LA FIRMA

BAKER & McKENZIE

CALLE 35 No. 7-25, Piso 4

TELÉFONO: (57-1) 285-1400 / 570-0010

SANTA FE DE BOGOTÁ, D.C.

COLOMBIA

40
42
SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO

Radicación : 00005909 00000002

Folios: 92

Fecha (AMD): 2000-06-07 18:17:35

Trámite : 002 PATENTES 3 1 REGISTRO/ 444 REPUESTA

Dependencia: 2020 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

Señores

SUPERINTENDENCIA DE INDUSTRIA Y COMERCIO

DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

E. _____ S. _____ D. _____

Re: **Expediente No. 00.005.909**

Solicitud de Patente de Invención titulada :

“COMPOSICION HERBICIDA DE LIBERACION
RETARDADA QUE CONTIENE DERIVADOS DE
ISOXASOLES”.

Solicitante : AVENTIS AGRICULTURE LIMITED.

RESPUESTA AL AUTO NOTIFICADO POR ESTADO No. 032
DE FECHA 9 DE MARZO DE 2000, CONCEPTO TECNICO No. 301

CARLOS R. OLARTE, mayor de edad y vecino de Santafé de Bogotá, identificado tal como aparece al pie de mi firma en mi carácter de apoderado de la sociedad en referencia, me permito manifestar lo siguiente ante el auto emanado por ese Despacho, dentro del término de prórroga solicitado en mi memorial de fecha 25 de Abril de 2000:

1. En atención a la primera observación del Examinador Técnico dirigida al título de la invención manifiesto que el mismo ha sido modificado de manera que se

RAISBECK, LARA, RODRIGUEZ & RUEDA

MIEMBROS DE LA FIRMA

BAKER & MCKENZIE

CALLE 35 No. 7-25, PISO 4

TELÉFONO: (57-1) 285-1400

SANTA FE DE BOGOTÁ, D.C.

COLOMBIA

- 2 -

indica la composición de liberación retardada que contiene un herbicida de isoxasol. El nuevo título ahora lee: "COMPOSICION HERBICIDA DE LIBERACION RETARDADA QUE CONTIENE DERIVADOS DE ISOXASOLES". En consonancia con lo anterior adjunto un nuevo Extracto para la Publicación y nuevas Tarjetas del Archivo Temático y de Propietarios conteniendo el nuevo título de la invención.

2. En atención a la segunda observación del Examinador Técnico, adjunto un Capítulo Descriptivo Modificado en el cual las unidades de área han sido convertidas al Sistema Internacional. En el evento que se haya omitido accidentalmente alguna conversión, me permito suministrar el siguiente equivalente de conversión:

- 1 Hectárea = 0,01 Km².

3. En atención a la tercera observación del Examinador Técnico, dirigida a las Reivindicaciones 7, 8 y 10 manifiesto que estas han sido modificadas de acuerdo con las sugerencias del Examinador Técnico de manera que ahora señalan una composición de liberación retardada y no un método. Acordemente se modificó la Reivindicación 9.

4. Con respecto a la cuarta observación del Examinador Técnico, dirigida a las Reivindicaciones 11 y 13, respetuosamente difiero de la posición expuesta por éste ya que los otros componentes y proporciones son irrelevantes en cuanto concierne al objeto de la patente, es decir el solicitante pretende proteger todas las composiciones que contienen isoxazol, en donde la preparación de éste u otros componentes en dicha composición es irrelevante para la protección del objeto de la invención, y en donde dicha composición se caracteriza por una liberación retardada. De acuerdo con lo anterior insisto sobre la Reivindicación 11 en su forma original.

5. En atención a la quinta observación del Examinador Técnico dirigida a la Reivindicación 12 manifiesto que esta se ha modificado para incluir el ejemplo (I) al que se hace referencia en dicha reivindicación.

RAISBECK, LARA, RODRIGUEZ & RUEDA

MIEMBROS DE LA FIRMA

BAKER & McKENZIE

CALLE 35 No. 7-25, Piso 4

TELÉFONO: (57-1) 285-1400

SANTA FE DE BOGOTÁ, D.C.

COLOMBIA

- 3 -

6. a- En atención a la sexta observación del Examinador Técnico, dirigida al uso de la palabra "sustancial" en la Reivindicación 8, respetuosamente debo disentir de la posición expuesta, pues considero que al suprimir el uso de esta palabra se está obligando al solicitante a limitar de manera injustificada su protección. El propósito de la palabra "sustancial" en el texto es el de proporcionar una flexibilidad adecuada a la protección de la patente. Por consiguiente, considero que el término "sustancial" cumple una función importante en el texto de las Reivindicaciones, pues permite una interpretación expansiva y justa cuando las circunstancias así lo ameritan. En consecuencia, comedidamente insisto en el uso de este término en el texto de las Reivindicaciones.

No obstante lo anterior, si el Examinador Técnico insiste en su posición, ruego que simplemente considere eliminado el término sustancial de las Reivindicaciones objetadas, mas no que la presente contestación sea considerada como inadecuada y de lugar a un abandono.

Para facilidad del Examinador Técnico, el Capítulo Reivindicatorio Modificado adjunto contiene el término sustancial entre corchetes y tachado.

b- Con respecto a la Reivindicación 10 manifiesto que esta ha sido modificada de manera que incluye la Formula(I) a la que hace referencia.

c- Con respecto a la Reivindicación 13 manifiesto que modifiqué dicha Reivindicación debido a un error cometido por el remitente de la patente, de manera que ahora esta depende de la Reivindicación 11 y no de la 9 como se estipulaba erróneamente en las Reivindicaciones anteriores, por consiguiente adjunto un nuevo capítulo Reivindicatorio.

7. Atendiendo la séptima observación del Examinador Técnico con respecto al resumen del extracto, considero que éste contiene la información suficiente y necesaria con respecto a la composición de liberación retardada al mencionar que este contiene un herbicida de isozaxol y tanto su método de suministro como el lugar específico de aplicación de este. Por consiguiente no modifiqué el resumen del Extracto

RAISBECK, LARA, RODRIGUEZ & RUEDA

MIEMBROS DE LA FIRMA

BAKER & MCKENZIE

CALLE 35 No. 7-25, Piso 4
TELÉFONO: (57-1) 285-1400
SANTA FE DE BOGOTÁ, D.C.
COLOMBIA

- 4 -

8. Atendiendo la última observación del Examinador Técnico, adjunto el arte final de la fórmula estructural de los compuestos de fórmula I tamaño 12 x 12 cm por duplicado y uno de 6 x 6 cm.

9. a- Atendiendo la primera observación del Examinador Jurídico, adjunto los poderes necesarios en forma correcta acreditando la existencia y representación de la persona jurídica solicitante.

b- Atendiendo la segunda observación del Examinador Jurídico adjunto copias certificadas de los Documentos de Prioridad y la traducción de su Capítulo Reivindicatorio.

Atentamente,



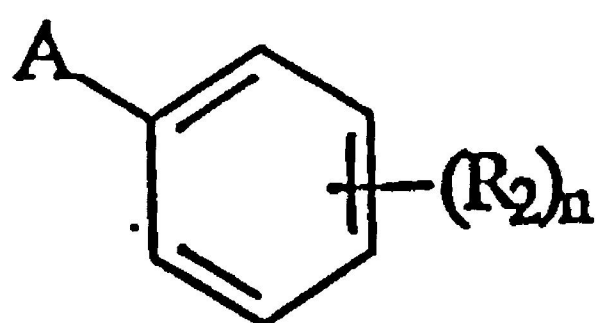
CARLOS R. OLARTE
C.C. No. 79.782.747 de Bogotá
T.P. 74.295

Anexos: Capítulo Descriptivo Modificado
 Copia certificadas de los Documentos de Prioridad y
 Traducción del Capítulo Reivindicatorio
 Nuevo Extracto para la Publicación
 Nuevas Tarjetas del Archivo Temático y de Propietarios
 Arte Final
 Poder

49 44

7

Retracto arte final
2002-07-24
202043



(I)



CONSULADO GENERAL DE COLOMBIA

3RD FLOOR, 15-19 GREAT TITCHFIELD STREET, LONDON W1P 7FB
TELEPHONE 020-7637 9893 • TELEFAX 020-7637 5604
E-MAIL consulco@consulco.demon.co.uk

La suscrita Primer Cónsul de Colombia en Londres, vistos los documentos presentados ante este Despacho,

CERTIFICA

Que, **RICHARD GRAHAM ROSSER**, Notario Público de Londres, Inglaterra, autenticó la firma del Documento precedente y su firma se encuentra registrada en este Consulado General.

Que, **AVENTIS AGRICULTURE LIMITED**, es una Sociedad constituida, organizada y existente en Ongar, Essex, Inglaterra, Gran Bretaña y que cumple con su objeto social de acuerdo con las leyes de este país.

Que, **CHARLES YVES BRACHOTTE**, en su calidad de Apoderado de la mencionada Sociedad debidamente autorizado, otorga el Documento precedente, y su firma se encuentra autenticada por **RICHARD GRAHAM ROSSER**, Notario Público de Londres, Inglaterra, Gran Bretaña.

La Primer Cónsul no asume responsabilidad por el contenido del mencionado documento.

Dado en Londres, Inglaterra, Gran Bretaña, a los veinte (20) días del mes de Marzo del 2000.

Certificación No. 03/0344

Derechos: US\$ 106,00 CANCELADOS

Ana Georgina Charry

ANA GEORGINA CHARRY
Primer Cónsul

IH



MINISTERIO DE RELACIONES
EXTERIORES
03/0344
17/03/00

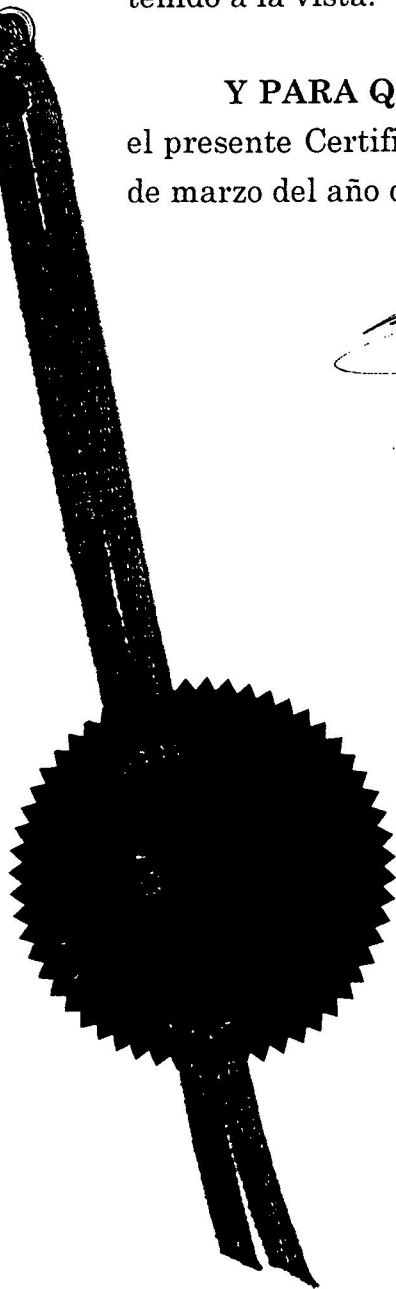
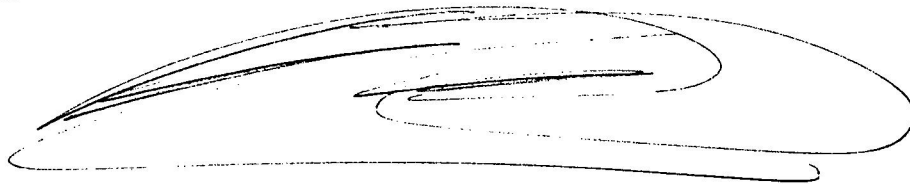
NO SE ASUME
RESPONSABILIDAD DEL PAIS
2000 MAR 28
JEFE DE LEGALIZACIONES
SANTAFE DE BOGOTA

COMO NOTARIA PORQUE DE ESTE CREGO
HAGO CONSTAR QUE ESTA FOTOCOPIA
COINCIDE CON EL ORIGINAL QUE HE
TENIDO A LA VISTA.
FECHA 31 MAR 2000
SANTAFE DE BOGOTA D.C. - COLOMBIA
ZULMA NAVARRO DE BAC

Yo, **RICHARD GRAHAM ROSSER**, Notario Público con vecindad y ejercicio en la Ciudad de Londres, Inglaterra, debidamente admitido y juramentado por la Autoridad Real,

DOY FE de que la firma suscrita en el poder adjunto es auténtica y del puño y letra de Don **CHARLES YVES BRACHOTTE**, cuya identidad me consta, Apoderado de la Sociedad con responsabilidad limitada denominada **AVENTIS AGRICULTURE LIMITED**, Sociedad debidamente constituida y existente de acuerdo con las leyes de Inglaterra, inscrita en la Oficina de Registro de Sociedades de Inglaterra y Gales bajo el número **2467733**, y con domicilio social en **Fyfield Road, Ongar, Essex, CM5 0HW, Inglaterra**, y debidamente autorizado al efecto bajo y en virtud de un Poder otorgado en su favor por la referida sociedad fechado 12 de junio de 1990, el original del cual he tenido a la vista.

Y PARA QUE CONSTE donde y como convenga y fuere necesario expido el presente Certificado que firmo y sello en dicha Ciudad de Londres, a dieciseis de marzo del año dos mil.



48-53

12

COLOMBIA

PODER

La abajo firmada.

AVENTIS AGRICULTURE LIMITED

domiciliada en
Fyfield Road
Ongar – Essex CM5 0HW
Englánd

declara por el presente otorgar a

**ALVARO CORREA ORDOÑEZ y/o
CARLOS REINALDO OLARTE
LUZ HELENA VILLAMIL y/o**

poder especial amplio y bastante para recabar de las oficinas y autoridades nacionales que correspondan, la obtención de :

Patentes de Invención, fusiones, cambios de nombre, traspasos, presentación y tramitación de oposiciones, cambios de dirección

a cuyo efecto los faculta para dar ante dichas autoridades, todos los pasos necesarios al objeto indicado, elevar solicitudes, formular descripciones, protestas, declaraciones, apelaciones y reclamos, oblar impuestos, solicitar testimonios, recibir documentos y valores, desistir y percibir. Se concede a los expresados mandatarios poder bastante para recibir notificaciones a nombre de la compañía, otorgar poderes a quienes vayan a representar a la compañía judicial y extrajudicialmente, **responder** en juicio a todas las reclamaciones o demandas que por motivo de las patentes se presentaren y hacer cuanto fuere necesario, ante las autoridades administrativas o judiciales de cualquier orden, dándoles asimismo facultad para sustituir el presente y en caso necesario revocar dichas sustituciones. Adicionalmente, la compañía por medio de la presente ratifica toda actuación tomada en representación suya y en relación con este poder.

Dado y firmado en Ongar, ~~Essex~~, Inglaterra,

A los 13 días de mes de marzo de 2000

x19

CHARLES BRACHOTTE

AUTHORIZED REPRESENTATIVE

REPRESIÓN DE MALEZAS

Esta invención se refiere a un método para reprimir el crecimiento de malezas por la aplicación progresiva, a la capa superficial de un medio de crecimiento, o la liberación en dicho medio, de un herbicida de benzoilisoaxazol, y a composiciones para utilizar en dicho método.

Antecedentes de la invención

El uso de isoxazoles para reprimir malezas ha sido descrito en las publicaciones de patentes europeas N° 0418175, 0487357, 0527036 y 0560482. La actividad herbicida de los dicetonitrilos (DKN) que pueden formarse a partir de los isoxazoles también ha sido descrita en las publicaciones de patentes europeas N° 0213892, 0496630 y 0496631, y en la publicación de patente internacional N° WO 95/25099.

Después de la aplicación de los herbicidas de isoxazol, estos pueden descomponerse en dionas, en particular compuestos de dicetonitrilo (DKN). Esta conversión es generalmente irreversible. Los compuestos de DKN son también generalmente herbicidas. Normalmente son más solubles en agua que los herbicidas de isoxazol y pueden ser desplazados en el perfil del suelo tras la lluvia.

Se ha encontrado que modificando el modo en que son aplicados los herbicidas de isoxazol, la relación de isoxazol a DKN en un medio de crecimiento tal como suelo, puede ser alterado a favor del isoxazol, aumentando la relación de isoxazol a DKN.

Se ha encontrado que manteniendo la relación de isoxazol a DKN, a favor del isoxazol, en la capa superficial del suelo, por ejemplo, durante el período de aplicación del isoxazol en el establecimiento de una cosecha, puede obtenerse una mejor represión de las malezas. Además, puede mejorarse la selectividad de la cosecha y puede reducirse el riesgo de fuga y lixiviación.

Un objeto de la presente invención es proporcionar un método de aplicación y/o una composición que reduzca el desplazamiento neto del isoxazol y del DKN a través del suelo

y retenga los compuestos en el suelo que rodea, preferiblemente que rodea inmediatamente, el punto de aplicación del isoxazol.

Otro objeto de la presente invención es proporcionar un método y/o una composición que permita el suministro de menores dosis individuales de herbicidas de isoxazol manteniendo mientras (y algunas veces mejorando) su eficacia herbicida.

Un objeto más de la presente invención es proporcionar una composición, que comprende un isoxazol, con mejor actividad sobre las especies de malezas y/o mejor selectividad para las cosechas.

Los objetos de la invención pueden conseguirse en su totalidad o en parte por la presente invención.

Se sabe que los isoxazoles ejercen su actividad herbicida en plantas por conversión en compuestos de DKN. Por consiguiente, podría esperarse que sería ventajoso la aplicación del isoxazol de tal modo que acelere o favorezca su conversión en DKN. Los solicitantes han encontrado que también es verdad la premisa opuesta.

La presente invención proporciona un método para reprimir el crecimiento de malezas en un lugar en un medio de crecimiento sólido, que comprende tratar el lugar con una composición que comprende un herbicida de isoxazol para proporcionar un suministro o liberación progresivo o secuencial del herbicida de isoxazol a la capa superficial del medio.

El medio de crecimiento incluye compostes pero preferiblemente es suelo.

El lugar es preferiblemente un lugar en el que crecen cosechas, por ejemplo, donde se siembra y cultiva una cosecha.

La capa superficial va generalmente desde la superficie hasta una profundidad de 10 cm, preferiblemente hasta una profundidad de 5 cm, más preferiblemente hasta una profundidad de 3 cm.

De acuerdo con un aspecto de la invención, el

51/56

- 3 -

método comprende aplicar al lugar, por ejemplo donde se siembra y cultiva una cosecha, bajas dosis secuenciáles de herbicidas de isoxazol. Por ejemplo, la dosificación normal puede dividirse en dos o más, por ejemplo 2 a 5, porciones
5 generalmente iguales y aplicarse a intervalos espaciados, realizándose en primer lugar cada aplicación, por ejemplo 1 a 4 días, preferiblemente 1 día, después de la anterior.

De acuerdo con un aspecto adicional de la presente invención, el método comprende tratar el lugar con una
10 composición de liberación retardada que comprende el herbicida de isoxazol.

La composición de liberación retardada, que constituye un aspecto de la invención, puede comprender, por ejemplo, una composición encapsulada que comprende el
15 isoxazol propiamente dicho o una composición que lo contiene. Las composiciones de liberación controlada pueden prepararse por métodos conocidos.

El producto encapsulado puede tener una pared exterior sólida, estando constituida dicha pared por un
20 material inerte, generalmente que no tiene actividad herbicida sustancial.

El isoxazol encapsulado de acuerdo con la presente invención puede comprender gránulos que están constituidos por un derivado de isoxazol de fórmula (I), estando cada uno
25 de estos gránulos encapsulado dentro de una película sólida que está constituido por un material inerte propiamente dicho que no tiene actividad herbicida sustancial.

Preferiblemente, el material inerte es un material polímero soluble en agua, modificado por tratamiento para
30 hacerlo sustancialmente insoluble en agua.

Los materiales solubles que pueden utilizarse incluyen:

copoliéster; poli(alcohol vinílico); poliacrilato; policarboxilato; gelatina; polisulfonato, por ejemplo
35 poliestiril-polisulfonas; proteína, poli(óxido de etileno); almidón modificado o no; celulosa, por ejemplo carboximetil-celulosa; dextrano, maltosa, alquil-, hidroxialquil-,

SZ #
8

carboxialquil-celulosa; polivi-niléter; poli(2,4-dietil-6-triazoliletileno); poli(ácido vinilsulfónico), polianhidrido, resina de urea-formaldehído de bajo peso molecular, resina de melamina-formaldehído de bajo peso molecular, polimetacrilato, por ejemplo poli(cianoacrilato de alquilo), poli(cianoacrilato de isobutilo), poli(metacrilato de 2-hidroxietilo), poli(ácido acrílico) o uno de sus homólogos; anfífilos de baja masa molar; anfífilos polímeros de baja masa molar; poli(ácido acético-ácido glutámico); dendrímeros (polímeros hiper-ramificados); fosfolípidos, por ejemplo diestearoilfosfatidilcolina, dioleoilfosfatidiletanolamina, dipalmitoilfosfatidilcolina, dipalmitoilfosfatidilglicerol, fosfatidiletanolamina, fosfatidilinositol; lipoproteína, poli(ortoéster)policarboxilatos semisólidos; hidrogeles. Los materiales pueden estar en forma de, por ejemplo, nano/micro-esferas lípidas sólidas; microesferas de poliéster; nanocápsulas, niosomas; liposomas, micelas polímeras. Puede utilizarse un aceite para facilitar la producción de una emulsión con pequeños tamaños de partículas y para inhibir la aglomeración.

Preferiblemente, el material soluble en agua es un copoliéster, por ejemplo gerol, que es un copolímero por ejemplo: polímero de la sal 5-sulfomonosódica del ácido 1,3-benzenodicarboxílico con ácido 1,3-benzenodicarboxílico, ácido 1,4-benzenodicarboxílico, 1,2-etanodiol, 2,2'-[1,2-etanodiilbis(oxi)]bis[etanol] y 2,2'-oxibis[etanol]. Los materiales solubles en agua pueden variar de peso molecular y pueden incluir oligómeros.

El polímero soluble en agua inerte se precipita generalmente por asociación (por formación de complejo o mezcla) con un material que no solubiliza el mismo el polímero soluble en agua antes citado. Los materiales que dan como resultado la precipitación del polímero incluyen las sales solubles de metales alcalino-térreos (por ejemplo calcio). La asociación puede modularse ajustando el pH de la solución soluble en agua del polímero que solubiliza los iones (del metal alcalino-térreo antes citado) que efectúa la

precipitación del ahora polímero insolubilizado para encapsular las partículas del material activo. El pH puede ajustarse utilizando, por ejemplo, ácido acético. La precipitación puede también inducirse ajustando el disolvente o disolventes sin necesidad de asociación con otro material.

El tamaño de los gránulos del material activo de un derivado de isoxazol de fórmula (I) es generalmente de 0,1 a 50 μm , preferiblemente de 1 a 20 μm .

El espesor del revestimiento del material encapsulante es generalmente de 0,1 a 50 μm , preferiblemente de 1 a 20 μm .

Los gránulos del derivado de 4-benzoilisoxazol encapsulado de fórmula (I) de acuerdo con la presente invención pueden estar, por ejemplo, en estado de polvo o en una formulación líquida o sólida, contenidos dentro de un soporte (o un vehículo para aplicación).

Las composiciones de la presente invención mejoran la liberación de un herbicida en el lugar del suelo en el que se aplica y se reduce el desplazamiento resultante por el agua de lluvia o de riego. Se proporciona una mejora notable en la transmigración descendente del ingrediente activo desde la zona de aplicación inmediata (zona de las semillas de maleza) a través del perfil del suelo.

Las composiciones de la presente invención proporcionan un método para reprimir la liberación de un herbicida en una gama de tipos de suelo y condiciones edáficas por modificación de las relaciones de isoxazol:material vehículo.

El uso de composiciones de la presente invención permite un uso más eficaz de herbicida que es retenido en la zona de aplicación del suelo, por ejemplo la zona de las semillas de malezas; así puede reducirse la cantidad de herbicida aplicado. Además, el herbicida se mantiene en el área de la zona de las semillas de maleza durante mayor tiempo que el usual.

La localización del herbicida en la zona de las semillas de maleza mejora la selectividad de las especies de cosecha, por ejemplo el maíz.

5488

- 6 -

Las composiciones de la presente invención proporcionan un método para reducir la velocidad de liberación de herbicidas, tales como isoxazoles, en el suelo retardando con ello la velocidad total de degradación. La encapsulación en un vehículo matriz aumenta la estabilidad de los herbicidas puesto que los protege de los componentes que pueden promover su degradación, tales como la humedad o la actividad microbiana.

Por la expresión "aplicación antes del brote" se entiende una aplicación al suelo en el que están presentes semillas o plántulas de maleza antes del brote de la cosecha. Un ejemplo de una aplicación antes del brote se conoce como "pre-planta incorporada" (PPI), en la que se incorpora el herbicida al suelo antes de sembrar la cosecha. Otro es aquel en el que se aplica el herbicida a la superficie del suelo después de sembrar la cosecha. Por la expresión "actividad folial" se entiende actividad herbicida producida por aplicación a las partes aéreas o expuestas de las malezas que han brotado en la superficie del suelo.

En general, la tasa de aplicación de los herbicidas de 4-benzoilisoxazol de fórmula (I) en composiciones de la presente invención es de 0,005 kg a 0,5 kg de compuesto herbicidamente activo, preferiblemente de 0,015 kg a 2 kg de compuesto herbicidamente activo, más preferiblemente de 0,02 kg a 0,12 kg de compuesto herbicidamente activo, incluso más preferiblemente de 0,05 a 0,09 kg de compuesto herbicidamente activo por hectárea. Cuando se emplean dosis secuenciales bajas de herbicida de isoxazol, como se describe a continuación, pueden dividirse las tasas de aplicación dadas antes.

El método de la invención se aplica generalmente a un lugar antes del brote de las malezas y de la planta de cosecha. Preferiblemente el lugar se cultiva y/o se trata en primer lugar para eliminar las malezas existentes. Por ejemplo puede utilizarse un herbicida exterminador, tal como glifosato.

Los herbicidas representativos cuya movilidad en el suelo es controlada por las composiciones de la presente

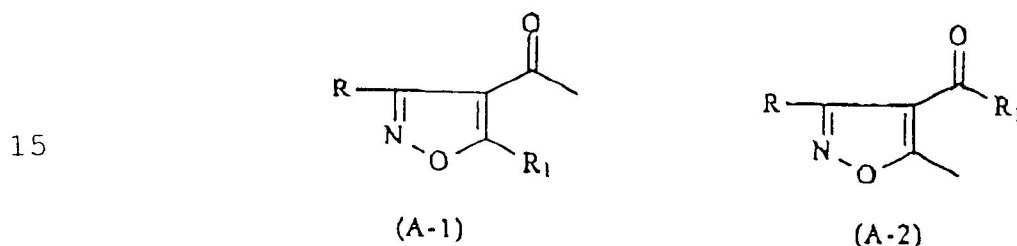
55 60

invención incluyen derivados de 4-benzoilisoxazol de fórmula general (I):



10 en la que

A representa un grupo (A-1) o (A-2):



en las que:

20 R representa un átomo de hidrógeno o halógeno; un grupo alquilo o alquenilo o alquinilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono, que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; un grupo cicloalquilo que contiene de 3 a 6 átomos de carbono opcionalmente sustituido con uno o más grupos R⁵, uno o más átomos de halógeno o un grupo -CO₂R³; o un grupo seleccionado de -CO₂R³, -COR⁵, ciano, nitro, -CONR³R⁴ y -S(O)_kR¹³,

30 R₁ representa un grupo alquilo, alquenilo o alquinilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; o un grupo cicloalquilo que contiene de tres a seis átomos de carbono, opcionalmente sustituido con uno o más grupos R⁵ o uno o más átomos de halógeno;

35

R² representa un átomo de halógeno; un grupo alquilo, alquenilo o alquinilo, de cadena lineal o ramifica-

da, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que contiene hasta seis átomos de carbono que está sustituido con uno o más grupos $-OR^2$; o un grupo seleccionado de nitro, ciano, $-CO_2R^2$, $-S(O)_2R^2$, $-O(CH_2)_mOR^5$, $-COR^5$, $-NR^{11}R^{12}$, $-N(R^8)SO_2R^7$, $-N(R^6)CO_2R^7$, $-OR^5$, $-OSO_2R^7$, $-SO_2NR^3R^4$, $-CONR^3R^4$, $-CSNR^3R^4$, $-(CR^9R^{10})_t-S(O)_qR^7$ y $-SF_5$; o dos grupos R^2 , en átomos de carbono adyacentes del anillo de fenilo pueden, junto con los átomos de carbono a los que están unidos, formar un anillo heterocíclico, saturado o insaturado, de 5 a 7 miembros que contiene hasta tres heteroátomos en el anillo seleccionados de nitrógeno, oxígeno y azufre, el cual está opcionalmente sustituido con uno o más grupos seleccionados de halógeno, nitro, $-S(O)_2R^{13}$, alquilo de C_{1-4} , alcoxi de C_{1-4} , haloalquilo de C_{1-4} , haloalcoxi de C_{1-4} , $=O$ (o uno de sus acetales cíclicos de 5 o 6 miembros) y $=NO-R_2$, entendiéndose que un átomo de azufre, cuando está presente en el anillo, puede estar en forma de un grupo $-SO-$ o $-SO_2-$;

n representa un número entero de uno a cinco, cuando n es mayor que uno, los grupos R^2 pueden ser iguales o diferentes;

R^3 y R^4 representa cada uno independientemente un átomo de hidrógeno, o un grupo alquilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno;

R^5 representa un grupo alquilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; o un grupo alquenilo o alquinilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene de dos a seis (preferiblemente de tres a seis) átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno;

R^6 y R^7 , que pueden ser iguales o diferentes, representa cada uno R^5 , o fenilo opcionalmente sustituido con uno a cinco grupos que pueden ser iguales o diferentes

seleccionados de un átomo de halógeno, un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; nitro, ciano, $-\text{CO}_2\text{R}^5$, $-\text{S}(\text{O})_2\text{R}^{13}$, $-\text{NR}^{11}\text{R}^{12}$,
5 $-\text{OR}^5$ y $-\text{CONR}^3\text{R}^4$;

R^6 , R^9 y R^{10} representa cada uno un átomo de hidrógeno o R^6 ;

R^{11} y R^{12} representa cada uno hidrógeno o R^5 ;

R^{13} representa un grupo alquilo, de cadena lineal
10 o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno;

k , p y q representan independientemente los valores cero, uno o dos;

15 m representa uno, dos o tres;

t representa un número entero de uno a cuatro; cuando t es mayor que uno, los grupos R^9 y R^{10} pueden ser iguales o diferentes;

o una de sus sales o complejos metálicos agrícola-
20 mente aceptables.

En ciertos casos, los grupos R a R^{13} pueden dar lugar a isomería óptica y/o estereoisomería. Todas las formas son abarcadas por la presente invención.

Por la expresión "sales agrícolamente aceptables"
25 se entiende sales en las que los cationes o aniones son conocidos y aceptados en la técnica para la formación de sales para uso agrícola u hortícola. Preferiblemente las sales son solubles en agua. Las sales de adición de ácido adecuadas, formadas por compuestos de fórmula (I) que
30 contienen un grupo amino, incluyen sales con ácidos inorgánicos, por ejemplo, hidroccloruros, sulfatos, fosfatos y nitratos, y sales con ácidos orgánicos, por ejemplo, ácido acético. Las sales adecuadas formadas por compuestos de fórmula (I) que son ácidas, es decir compuestos que contienen
35 uno o más grupos carboxi, con bases incluyen sales de metal alcalino (por ejemplo sodio y potasio), sales de metal alcalino-térreo (por ejemplo, calcio y magnesio), sales de

amonio y amina (por ejemplo dietanolamina, trietanolamina, octilamina, dioctilmetilamina y morfolina).

En la descripción a menos que se especifique otra cosa "halógeno" significa un átomo de flúor, cloro, bromo o
5 yodo.

Se prefieren los compuestos de fórmula (I) en la que A representa (A-1).

El anillo de fenilo de los compuestos de fórmula (I) está preferiblemente disustituido en las posiciones 2,4,
10 disustituido en 2,3 o trisustituido en 2,3,4.

Se prefieren los compuestos de fórmula (I) en la que R representa hidrógeno o $-\text{CO}_2\text{R}^3$, en donde R^3 representa un grupo alquilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta tres átomos de carbono; y R^1 representa ciclopropilo.

15 Se prefieren los compuestos de fórmula (I) en la que R^2 representa un átomo de halógeno; un grupo alquilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta tres átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; $-\text{S}(\text{O})_p\text{R}^6$; $-\text{OR}^5$ o $\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_q\text{R}^7$; en donde R^5 ,
20 R^6 y R^7 representa cada uno el mismo o diferente grupo metilo o etilo opcionalmente halogenado,.

Una clase preferida de compuestos de fórmula (I) en la que A representa (A-1) es aquella en la que:

R es hidrógeno o $-\text{CO}_2\text{Et}$;
25 R^1 es ciclopropilo;

y dos grupos R^2 , en átomos de carbono adyacentes al anillo de fenilo pueden, junto con los átomos de carbono a los que están unidos, combinarse para formar un anillo heterocíclico, saturado o insaturado, de 5 ó 6 miembros que
30 se fusiona a las porciones 2,3 o 3,4 del anillo de benzoilo; en el que el anillo heterocíclico contiene dos heteroátomos seleccionados de azufre y oxígeno que están situados en las posiciones 2 y 3, o 3 y 4 del anillo de benzoilo; y en el que el sustituyente en la posición 4 del anillo de benzoilo es
35 halógeno o $\text{S}(\text{O})_p\text{Me}$, o el sustituyente en la posición 2 del anillo de benzoilo es metilo, $\text{S}(\text{O})_p\text{Me}$ o $-\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_q\text{Me}$ respectivamente; y opcionalmente el anillo heterocíclico puede estar

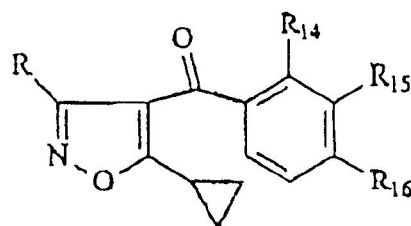
59 6A
2

sustituido con uno o más átomos de halógeno.

Una clase más preferida de los compuestos de fórmula (I) es aquella en la que A representa (A-1); R es hidrógeno o -CO Et; R¹ es ciclopropilo; R² es un átomo de halógeno o un grupo seleccionado de -CF₃, Me, Et, -S(O)_pMe, -CH₂S(O)_pMe y metoxi o etoxi opcionalmente halogenado; y n es dos o tres.

Una clase todavía más preferida de los compuestos de fórmula (I) es aquella que tiene la fórmula (Ia):

10



15

(Ia)

20 en la que:

R es hidrógeno o -CO₂Et;

R¹⁴ se selecciona de -S(O)_pMe, Me, Et, un átomo de cloro, bromo o flúor, metoxi, etoxi y -CH₂S(O)_pMe;

R¹⁵ se selecciona de un átomo de hidrógeno, un átomo de cloro, bromo o flúor, metoxi, etoxi y -S(O)_pMe;

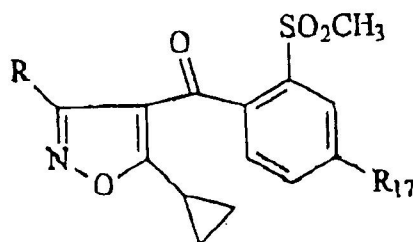
R¹⁶ se selecciona de un átomo de hidrógeno, un átomo de cloro, bromo o flúor, metoxi y CF₃;

y en la que al menos uno de R¹⁵ y R¹⁶ es distinto de hidrógeno.

30

Una clase especialmente preferida de compuestos de fórmula (I) tiene la fórmula (Ib):

35



(Ib)

en la que R¹⁷ es cloro, bromo o trifluorometilo; y R es hidrógeno o CO₂Et.

Los siguientes compuestos de fórmula (I) están entre los más preferidos para utilizar en la presente
5 invención:

5-ciclopropil-4-[2-cloro-3-etoxi-4-(etilsulfo-
nil)benzoil]isoxazol;

4-(4-cloro-2-metilsulfonilbenzoil)-5-ciclopropili-
soxazol;

10 5-ciclopropil-4-(2-metilsulfonil-4-trifluorometil-
benzoil)isoxazol;

4-(4-bromo-2-metilsulfonilbenzoil)-5-ciclopropili-
soxazol;

5-ciclopropil-4-[4-fluoro-3-metoxi-2-(metilsulfo-
15 nil)benzoil]isoxazol;

4-(4-bromo-2-metilsulfonilmetilbenzoil)-5-ciclopro-
pilisoxazol;

5-ciclopropil-4-(2-metilsulfonil-4-trifluorometil-
benzoil)isoxazol-3-carboxilato de etilo;

20 5-ciclopropil-4-(2-metilsulfonil-4-trifluorometil-
benzoil)-3-metiltioisoxazol.

El compuesto más preferido es 5-ciclopropil-4-(2-
metilsulfonil-4-trifluorometilbenzoil)isoxazol (isoxaflutol).

Los procedimientos para preparar los isoxazoles de
25 fórmula (I) son como los descritos en las publicaciones de
patentes europeas N° 0418175, 0487357, 0527036 y 0560482.

El método de la invención puede utilizarse en
cosechas modificadas genéticamente.

Por cosecha modificada genéticamente se entiende la
30 cosecha que ha sido hecha tolerante a los herbicidas por
métodos de siembra y cultivo convencionales o métodos de
ingeniería genética.

De acuerdo con un aspecto adicional de la presente
invención, se proporcionan composiciones adecuadas para uso
35 herbicida en el método de la invención que comprenden uno o
más de los 4-benzoilisoxazoles de fórmula (I) o una de sus
sales o sus complejos metálicos agrícolamente aceptables (que

61.66
L
Z

- 13 -

pueden ser encapsulados como se ha descrito antes), en asociación, y preferiblemente dispersadas homogéneamente, con uno o más diluyentes o vehículos y/o agentes tensioactivos agricolamente aceptables y compatibles [es decir diluyentes
5 o vehículos y/o agentes tensioactivos del tipo aceptado generalmente en la técnica por ser adecuado para uso en composiciones herbicidas y que son compatibles con los compuestos de fórmula (I)]. La expresión "dispersadas homogéneamente" se utiliza para indicar composiciones en las
10 que los compuestos de fórmula (I) están disueltos en otros componentes. La expresión "composiciones herbicidas" se utiliza en un sentido amplio para indicar no sólo composiciones que están listas para su uso como herbicidas sino también concentrados que deben ser diluidos antes de su uso. Preferi-
15 blemente, las composiciones contienen de 0,05 a 90% en peso de uno o más compuestos de fórmula (I).

Las composiciones herbicidas pueden contener tanto un diluyente o vehículo como un agente tensioactivo (por ejemplo humectante, dispersante o emulsionante). Los agentes
20 tensioactivos que pueden estar presentes en las composiciones herbicidas de la presente invención pueden ser de tipo iónico o no iónico, por ejemplo sulforricinoleatos, derivados de amonio cuaternario, productos basados en condensados de óxido de etileno con alquil y poliaril-fenoles, por ejemplo nonil-
25 u octil-fenoles, triestiril-fenoles, condensados de óxido de etileno con alcoholes, o ésteres de ácidos carboxílicos de anhidrosorbitoles que han sido hechos solubles por eterificación de los grupos hidroxí libres por condensación con óxido de etileno, sales de metales alcalinos y alcalino-térreos de
30 ésteres de ácido sulfúrico y ácidos sulfónicos, tales como dinonil- y dioctil-sulfosuccinatos de sodio y sales de metales alcalino y alcalino-térreos de derivados de ácidos sulfónicos de alto peso molecular, tales como lignosulfonatos de sodio y calcio y alquilbencenosulfonatos de sodio y
35 calcio.

Adecuadamente, las composiciones herbicidas de acuerdo con la presente invención pueden comprender hasta 10%

6267
2

- 14 -

en peso, por ejemplo de 0,05% a 10% en peso, de agente tensioactivo pero, si se desea, las composiciones herbicidas de acuerdo con la presente invención pueden comprender mayores proporciones de agente tensioactivo, por ejemplo
5 hasta 15% en peso de concentrados en suspensión, emulsionables, líquidos y hasta 25% en peso de concentrados solubles en agua líquidos.

Ejemplos de diluyentes o vehículos sólidos adecuados son silicato de aluminio, dióxido de silicio microfino,
10 talco, creta, óxido de magnesio calcinado, kiéselgur, fosfato tricálcico, corcho en polvo, negro de carbono adsorbente y arcillas, tales como caolín, atapulgita, tierra de diatomeas, mica, óxido de aluminio, óxido de titanio y bentonita. Las composiciones sólidas (que pueden tomar forma de polvos,
15 gránulos o polvos humectables) se preparan preferiblemente triturando los compuestos de fórmula (I) con diluyentes sólidos o impregnando los diluyentes o vehículos sólidos con soluciones de los compuestos de fórmula (I) en disolventes volátiles, evaporando los disolventes y, si es necesario,
20 triturando los productos para obtener polvos. Las formulaciones granulares pueden prepararse siendo absorbidos los compuestos de fórmula (I) disueltos en disolventes adecuados (que pueden, si se desea, ser volátiles) por los diluyentes o vehículos sólidos en forma granular y, si se desea,
25 evaporando los disolventes, o granulando las composiciones en forma de polvo obtenido como se ha descrito antes. Las composiciones herbicidas sólidas, particularmente polvos humectables y gránulos, pueden contener agentes humectantes o dispersantes (por ejemplo de los tipos antes descritos),
30 que pueden también, cuando son sólidos, servir como diluyentes o vehículos.

Las composiciones líquidas de acuerdo con la invención pueden tomar forma de soluciones, suspensiones y emulsiones acuosas, orgánicas o acuoso-orgánicas que pueden
35 incorporar un agente tensioactivo. Diluyentes líquidos adecuados para incorporación en las composiciones líquidas incluyen agua, glicoles, glicol-éteres, alcohol tetrahidro-

63-68
29

- 15 -

furfurílico, acetofenona, ciclohexanona, isoforona, alquilpirrolidonas, butirilolactona, tolueno clorado, xileno, aceites minerales, animales y vegetales, aceites vegetales esterificados y fracciones aromáticas y nafténicas ligeras de petróleo (y mezclas de estos diluyentes). Los agentes tensioactivos, que pueden estar presentes en las composiciones líquidas, pueden ser iónicos o no iónicos (por ejemplo de los tipos descritos antes) y, cuando son líquidos, pueden también servir como diluyentes o vehículos.

10 Polvos, gránulos dispersables y composiciones líquidas en forma de concentrados pueden diluirse con agua u otros diluyentes adecuados, por ejemplo aceites minerales o vegetales, particularmente en el caso de concentrados líquidos en los que el diluyente o vehículo es un aceite, para dar composiciones listas para su uso.

15 Cuando se desea, las composiciones líquidas de los compuestos de fórmula (I) pueden utilizarse en forma de concentrados autoemulsionantes que contienen las sustancias activas disueltas en los agentes emulsionantes o en disolventes que contienen agentes emulsionantes compatibles con las sustancias activas, produciendo la simple adición de dichos concentrados a agua composiciones listas para su uso.

20 Los concentrados líquidos en los que el diluyente o vehículo es un aceite pueden utilizarse sin más dilución usando la técnica de pulverización electrostática.

25 Las composiciones herbicidas de acuerdo con la presente invención pueden contener también, si se desea, coadyuvantes convencionales, tales como adhesivos, coloides protectores, agentes espesantes, agentes penetrantes, agentes dispersantes, estabilizadores, tampones, agentes secuestrantes, agentes antiapelmazantes, agentes colorantes e inhibidores de la corrosión. Estos coadyuvantes pueden también servir como vehículos o diluyentes.

30 A menos que se especifique otra cosa, los siguientes porcentajes se dan en peso. Las composiciones herbicidas preferidas de acuerdo con la presente invención son encapsulaciones que contienen gránulos dispersables en agua que

comprenden de 1 a 90%, por ejemplo 25 a 75%, de uno o más compuestos de fórmula (I), de 1 a 15%, por ejemplo 2 a 10%, de agentes tensioactivos y de 5 a 95%, por ejemplo 20 a 60%, de diluyente sólido, por ejemplo arcilla, granuladas con
5 adición de agua para formar una pasta y a continuación secadas;

concentrados en suspensión acuosa que comprenden de 5 a 70% de uno o más compuestos de fórmula (I), de 2 a 10% de agente tensioactivo, de 0,1 a 5% de agente espesante y de 15
10 a 87,9% de agua;

polvos humectables que comprenden de 5 a 90% de uno o más compuestos de fórmula (I), de 2 a 10% de agente tensioactivo y de 8 a 88% de diluyente o vehículo sólido;

polvos solubles en agua o dispersables en agua que
15 comprenden de 5 a 90% de uno o más compuestos de fórmula (I), de 2 a 40% de carbonato de sodio y de 0 a 88% de diluyente sólido;

concentrados líquidos solubles en agua, que comprenden de 5 a 50%, por ejemplo de 10 a 30%, de uno o más
20 compuestos de fórmula (I), de 0 a 25% de agente tensioactivo y de 10 a 90%, por ejemplo 45 a 85%, de disolvente miscible en agua, por ejemplo trietilenglicol, o una mezcla de disolvente miscible en agua y agua;

concentrados líquidos en suspensión emulsionables
25 que comprenden de 5 a 70% de uno o más compuestos de fórmula (I), de 5 a 15% de agente tensioactivo, de 0,1 a 5% de agente espesante y de 10 a 84% de disolvente orgánico, por ejemplo aceite mineral; y

concentrados emulsionables que comprenden 0,05 a
30 90%, y preferiblemente de 1 a 60%, de uno o más compuestos de fórmula (I), de 0,01 a 10%, y preferiblemente de 1 a 10%, de agente tensioactivo y de 9,99 a 99,94%, y preferiblemente de 39 a 98,99%, de disolvente orgánico.

Los gránulos dispersables en agua que comprenden
35 isoxazoles de fórmula (I) cuya densidad aparente era 0,25-0,75, tenían un tamaño de partículas generalmente de 10-2000 μm , preferiblemente 300-1500 μm .

65 70
X

- 17 -

Las composiciones herbicidas de acuerdo con la presente invención pueden comprender también los compuestos de fórmula (I) en asociación con uno o más compuestos plaguicidamente activos, y preferiblemente dispersados
5 homogéneamente en ellos, y, si se desea, uno o más diluyentes o vehículos plaguicidamente aceptables compatibles, agentes tensioactivos y coadyuvantes convencionales como se han descrito antes.

Ejemplos de otros compuestos plaguicidamente
10 activos que pueden incluirse junto con las composiciones herbicidas de la presente invención, o utilizarse con ellas, incluyen herbicidas, por ejemplo para aumentar la gama de especies de malezas reprimidas, por ejemplo acetoclor, alaclor [2-cloro-2,6'-dietil-N-(metoxi-metil)-acetanilida],
15 atrazina [2-cloro-4-etilamino-6-isopropilamino-1,3,5-triazina], bromoxinil [3,5-dibromo-4-hidroxibenzonitrilo], clortolurón [N'-(3-cloro-4-metilfenil)-N,N-dimetilurea], cianazina [2-cloro-4-(1-ciano-1-metiletilamino)-6-etilamino-1,3,5-triazina], 2,4-D [ácido 2,4-diclorofenoxi-acético], dicamba
20 [ácido 3,6-dicloro-2-metoxibenzoico], difenzocuat [sales de 1,2-dietil-3,5-difenil-pirazolio], dimetanamida, flampropmetil [N-2-(N-benzoil-3-cloro-4-fluoroanilino)-propionato de metilo], flufenacet, fluometrón [N'-(3-trifluoro-metilfenil)-N,N-dimetilurea], glifosato, glufosinato, isoproturón [N'-(4-isopropilfenil)-N,N-dimetilurea],
25 isopropilfenil)-N,N-dimetilurea], metolacloro, metribuzin, insecticidas, por ejemplo piretroide sintético, por ejemplo permetrin y cipermetrin, fipronil y fungicidas, por ejemplo carbamatos, por ejemplo N-(1-butil-carbamoil-bencimidazol-2-il)carbamato de metilo, y triazoles, por ejemplo 1-(4-cloro-fenoxi)-3,3-dimetil-1-(1,2,4-triazol-1-il)-butan-2-ona.
30

Los compuestos plaguicidamente activos y otros materiales biológicamente activos que pueden incluirse en las composiciones herbicidas de la presente invención, o utilizarse junto con ellas, por ejemplo los antes mencionados, y
35 que son ácidos, pueden utilizarse, si se desea, en forma de derivados convencionales, por ejemplo sales y ésteres de metales alcalinos y aminas.

Los siguientes Ejemplos ilustran las composiciones herbicidas que pueden utilizarse en la presente invención. El ingrediente activo recogido en los siguiente ejemplos se refiere a un compuesto de fórmula general (I).

5

Ejemplo C1:

Un concentrado emulsionable se forma a partir de:

	Ingrediente activo	20% p/v
	N-metilpirrolidinona (NMP)	25% p/v
10	Dodecylbencenosulfonato de calcio	70%
	(CaDDBS)	4% p/v
	Condensado de óxido de nonilfenol-etileno y óxido de propileno (NPEOPO)	4% p/v
	Disolvente aromático	hasta 100 volúmenes
15	agitando NMP, el ingrediente activo (Compuesto 1), CaDDBS, NPEOPO y el disolvente aromático hasta que se forme una solución transparente y ajustándola hasta el volumen con el disolvente aromático.	

20

Ejemplo C2

Un polvo humectable se forma a partir de:

	Ingrediente activo	50% p/p
	Dodecylbencenosulfonato de sodio	3% p/p
	Metil-oleoil-taurato de sodio	5% p/p
25	Policarboxilato de sodio	1% p/p
	Policarboxilato de sodio	1% p/p
	Dióxido de silicio microfino	3% p/p
	Caolín	38% p/p
30	mezclando los ingredientes anteriores y triturando la mezcla en un molino de chorro de aire.	

Ejemplo C3

Un concentrado en suspensión se forma a partir de:

	Ingrediente activo	50% p/v
35	Anticongelante (propilenglicol)	50% p/v
	Triestirilfenol-fosfato etoxilado	0,5% p/v
	Nonilfenol etoxilado con 9 moles	

67-72
X

- 19 -

- | | | |
|---|--------------------------|---------------------|
| | de óxido de etileno | 0,05% p/v |
| | Policarboxilato de sodio | 0,02% p/v |
| | Atapulgita | 1,5% p/v |
| | Antiespumante | 0,003% p/v |
| 5 | Agua | hasta 100 volúmenes |
- agitando los ingredientes anteriores y mezclándolos en un molino de bolas.

Ejemplo C4

- 10 Un gránulo dispersable en agua se forma a partir de:
- | | | |
|----|---------------------------------------|---------|
| | Ingrediente activo | 50% p/p |
| | Dodecylbencenosulfonato de sodio | 3% p/p |
| | Metil-oleoil-taurato de sodio | 5% p/p |
| | Policarboxilato de sodio | 1% p/p |
| 15 | Aglutinante (lignosulfonato de sodio) | 8% p/p |
| | Caolín | 30% p/p |
| | Dióxido de silicio microfino | 3% p/p |
- mezclando los ingredientes anteriores, triturando la mezcla en un molino con chorro de aire y granulándola por
- 20 adición de agua en una planta de granulación adecuada (por ejemplo secador en lecho fluido) y secándola. Opcionalmente el ingrediente activo puede triturarse bien solo o mezclado con algunos o todos los ingredientes.
- 25 El Ejemplo siguiente no limitativo ilustra la invención.

EJEMPLO 1

- Experimento en invernadero que mostró una mejora inesperada de la actividad biológica sobre malezas después de
- 30 aplicación del compuesto (isoxaflutol).

- Tiestos de 7 x 7 cm² se rellenaron con tierra de marga no estéril. Se colocaron semillas de malezas (*Amarantus retroflexus*, *Echinochloa crus-galli* y *Setaria viridis*) en tres pocillos poco profundos separados con una semilla de
- 35 maíz (Pioneer 3394) insertada a una profundidad de 4 cm en cada tiesto y las semillas ligeramente cubiertas con tierra.

Una solución de 1 ml de isoxaflutol técnico,

73
32

diluido adecuadamente para proporcionar una dosis equivalente a 0.625, 1.25, 2.5, 5.0 y 10.0 Kg/Km² en acetonitrilo, se pipeteó uniformemente sobre la superficie de la tierra de los tiestos (se repitió 10 veces) de acuerdo con el siguiente régimen.

El día 1, se trato un conjunto de 5 tiestos con 5 dosis (0.625-10.0 Kg/Km²) y se puso aparte en el invernadero. AL mismo tiempo, el día 1 se trato un segundo conjunto de 4 tiestos con 4 dosis (tratamiento A: 0.625-5.0 Kg/Km²) junto con un tercer conjunto de 3 tiestos tratados con 3 dosis (tratamiento B: 0.625-2.5 Kg/Km²). El día 2, se trataron de nuevo cada una de los tiestos del segundo y tercer conjuntos, recibiendo los tiestos tratamiento A y B idénticos y el segundo conjunto de tiestos se puso aparte en el invernadero. El tercer día se trató de nuevo cada uno de los tiestos del conjunto, recibiendo los tiestos el tratamiento B idéntico. El día 4 se trató cada uno de los tiestos del tercer conjunto, recibiendo los tiestos tratamiento B idéntico y se puso aparte en el invernadero.

Se mantuvieron los tiestos en un invernadero, con un riego por la parte superior (3 veces al día) e iluminación suplementaria. 14 días después del tratamiento (DAT) se realizó una valoración visual del % de reducción, comparándolo con las plantas testigo no tratadas. Los resultados (media de 10 repeticiones) se muestran en la Tabla 1, en la que el régimen de dosificación se refiere al número de aplicaciones diarias seguido por la dosis de compuesto cada día.

74
69
28

TABLA 1

% de daño 14 DAT: Comparación de la aplicación única frente a las aplicaciones múltiples

5	% de daño				
	Régimen de dosificación	A.retro-flexus	E. crus-galli	S. viridis	Maíz (P3394)
10	2 x 0.625	34	18	18	0
	1 x 1.25	0	0	0	0
	4 x 0.625	80	97	75	0
15	2 x 1.25	46	68	42	0
	1 x 2.5	8	32	10	0
	4 x 1.25	79	100	91	6
20	2 x 2.5	42	70	44	0
	1 x 5	50	84	24	2
	4 x 2.5	90	100	77	6
25	2 x 5	78	96	66	10
	1 x 10	79	94	59	8

20 Como puede observarse en la Tabla 1, la eficacia del herbicida sobre especies de malezas claves se mejora por 2 aplicaciones separadas por 1 día y sorprendentemente incluso se mejora más por 4 aplicaciones separadas por 3 días, en comparación con una única aplicación de la misma dosis total de compuesto. Las aplicaciones repetidas no parece que tengan ningún impacto sobre la fitotoxicidad del maíz.

EJEMPLO 2

30 Se preparó una solución acuosa al 30% de Gerol y se añadieron 67 g a 80 g de una suspensión de isoxaflutol (250 g/l) en agua que contenía un dispersante (polinaftalensulfato de sodio para mantener la suspensión) con agitación. Se añadió carbonato de calcio en polvo (1 g) y la mezcla resultante se trató con ultrasonido antes de la adición de aceite de polisiloxano (600 ml) para proporcionar una

emulsión. Se añadió ácido acético (3 ml) y se continuó la agitación durante 2 horas. Se detuvo la agitación y la capa superior se decantó del precipitado. Este sólido se separó por filtración, se lavó con agua y se secó dando micropartículas del isoxaflurol encapsulado. El material encapsulado
5 puede formularse utilizando los métodos descritos anteriormente.

Gerol: Copolímero de dietilenglicol-etilenglicol-ácido isoftálico-5-sulfoisoftalato de sodio-ácido tereftálico-
10 trietilenglicol.

EJEMPLO 3

Se sembró maíz y a continuación se dejó crecer en zonas en las que estaban presentes malezas y semillas de
15 malezas. Las malezas eran una selección de *Alopecurus myosuroides*, *Avena fatua*, *Digitaria sanguinalis*, *Echinochloa crus-galli*, *Eleusine indica*, *Lolium multiflorum*, *Setaria viridis*, *Sorghum halepense*, *Cyperus esculentus*, *Cyperus iria*, *Cyperus rotundus*, *Eleocharis acicularis*, *Abutilon theophrasti*,
20 *Amaranthus retroflexus*, *Bidens pilosa*, *Chenopodium album*, *Galium aparine*, *Ipomoea purpurea*, *Lamium purpureum*, *Matricaria inodora*, *Sesbania exalta*, *Sinapis arvensis*, *Solanum nigrum*, *Stellaria media*, *Veronica hederifolia*, *Veronica persica*, *Viola arvensis* y *Xanthium strumarium*.

25 Una semana después de sembrado el maíz, se pulverizó isoxazol como una formulación encapsulada como se ha descrito antes a una tasa de 10.5 Kg/Km² de compuesto herbicidamente activo, siendo la relación en peso de isoxazol:copoliéster 1:10. Al cabo de 4 días se midieron las cantidades de
30 isoxazol de fórmula (I) y DKN en un núcleo de suelo de 5 cm de profundidad alrededor de la semilla o plántula. Se encontró que la relación en peso de isoxazol:DKN era 1.

Después de 3 semanas se observó la actividad del isoxazol sobre la cosecha y las malezas y se encontró que era
35 igual al 2% y al 95%, respectivamente.

Una aplicación similar en condiciones de suelo similares sin el copoliéster proporcionó una relación en peso

de isoxazol:DKN de 0,1 y una actividad herbicida tanto sobre la cosecha como sobre las malezas del 15% y del 95% respectivamente.

5 EJEMPLO 4

Se sembró maíz en una zona donde estaban presentes malezas y semillas de malezas de la especie *Setaria viridis*. Se pulverizó isoxazol sobre la superficie del suelo como una formulación encapsulada en una tasa de 105 g de compuesto
10 herbicidamente activo por 10000 m² . Se observó la actividad del isoxazol sobre maíz y *Setaria viridis* 6, 11, 14 y 17 días después de tratamiento (DAT).

15 Actividad de 4-benzoilisoaxazol sobre *Setaria viridis*

Tasa de aplicación Kg/Km ²	Formulación	DAT			
		6	11	14	17
20 10.5.	encapsulada	0	40	70	90
	WG	10	50	75	100

25 Actividad de 4-benzoilisoaxazol sobre maíz

Tasa de aplicación Kg/Km ²	Formulación	DAT			
		6	11	14	17
30 10.5	encapsulada	0	0	3	8
	WG	0	5	7	10

La actividad sobre *Setaria viridis* por la formulación encapsulada era igual a la de la formulación WG. La
35 formulación encapsulada disminuía la fitotoxicidad sobre el

maíz en un 20-30% en comparación con la formulación de WG.

EJEMPLO 5

Se sembró maíz y se dejó crecer en una zona en la que estaban presentes malezas y plántulas de malezas. Las malezas eran *Amaranthus retroflexus*, *Echinochloa crus-galli* y *Setaria viridis*. Las soluciones de isoxazol en acetonitrilo se aplicaron directamente a la superficie del suelo en unas tasas de 10, 5 y 2.5 Kg/Km² a los tiestos A, B y C respectivamente. Un DAT se aplicaron tasas de 5 y 2.5 Kg/Km² a los tiestos B y C, respectivamente, 2 y 3 DAT se aplicó al tiesto C una tasa de 2.5 Kg/Km².

14 días después de tratamiento (DAT) se observó la actividad del isoxazol sobre el maíz y las especies de malezas.

Régimen de dosificación	A. retroflexus	E. crus-galli	S. viridis	Maíz
4 x 2.5 Kg/Km ²	90	100	77	6
2 x 5 Kg/Km ²	78	96	66	10
1 x 10 Kg/Km ²	79	94	59	8

Manteniendo el isoxazol en la superficie del suelo dentro de la zona que contiene las semillas y plántulas de malezas, por aplicaciones secuenciales de bajas tasas de isoxazol, se obtienen mejor actividad sobre las malezas.

REIVINDICACIONES

1.- Un método para reprimir el crecimiento de malezas en un lugar en un medio de crecimiento sólido, que
5 comprende tratar el lugar con una composición que contiene un herbicida de isoxazol para proporcionar un suministro o liberación progresivo o secuencial del herbicida de isoxazol a la capa superficial del medio.

2.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
10 en el que el medio de crecimiento es suelo.

3.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1 ó 2, en el que el lugar es un lugar en el que crecen cosechas.

4.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
15 2 ó 3, en el que la capa superficial del medio abarca desde la superficie hasta una profundidad de 10 cm.

5.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones anteriores, que comprende aplicar al lugar dosis bajas secuenciales del herbicida de isoxazol.

20 6.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, que comprende tratar el lugar con una composición de liberación retardada que contiene el herbicida de isoxazol.

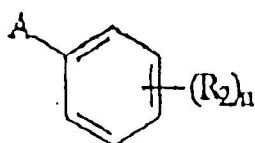
25 7. - [MODIFICADA] Una composición de liberación retardada en la que dicha composición está encapsulada.

8. - [MODIFICADA] Una composición de liberación retardada de acuerdo con la reivindicación 7, en la que se utiliza un isoxazol encapsulado, que contiene un derivado de isoxazol encapsulado
30 dentro de una película sólida que está constituida por un material inerte que por si mismo no tiene actividad herbicida [~~sustancia~~].

9. - [MODIFICADA] Una composición de acuerdo con la reivindicación 8, en el que se utilizan gránulos de un derivado
35 de isoxazol con un tamaño desde 0,1 hasta 50 μ m.

10. - [MODIFICADA] Una composición de liberación retardada de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que el derivado de isoxazol tiene la fórmula general I:

5

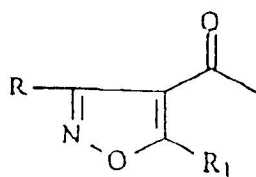


(I)

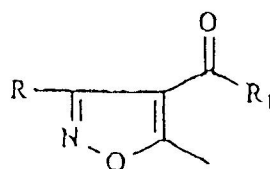
10 en la que

A representa un grupo (A-1) o (A-2):

15



(A-1)



(A-2)

en las que:

20

R representa un átomo de hidrógeno o halógeno; un grupo alquilo o alquénilo o alquínilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono, que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; un grupo cicloalquilo que contiene de 3 a 6 átomos de carbono opcionalmente sustituido con uno o más grupos R^5 , uno o más átomos de halógeno o un grupo $-CO_2R^1$; o un grupo seleccionado de $-CO_2R^3$, $-COR^5$, ciano, nitro, $-CONR^3R^4$ y $-S(O)_2R^{13}$,

25

R_1 representa un grupo alquilo, alquénilo o alquínilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; o un grupo cicloalquilo que contiene de tres a seis átomos de carbono, opcionalmente sustituido con uno o más grupos R^5 o uno o más átomos de halógeno;

35

R^2 representa un átomo de halógeno; un grupo alquilo, alquénilo o alquínilo, de cadena lineal o ramifica-

da, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que contiene hasta seis átomos de carbono que está sustituido con uno o más grupos $-OR^1$; o un grupo seleccionado de nitro, ciano, $-CO_2R^2$, $-S(O)_2R^2$, $-O(CH_2)_nOR^5$, $-COR^5$, $-NR^3R^4$, $-N(R^3)SO_2R^7$, $-N(R^3)CO_2R^7$, $-OR^5$, $-OSO_2R^7$, $-SO_2NR^3R^4$, $-CONR^3R^4$, $-CSNR^3R^4$, $-(CR^3R^4)_n$, $-S(O)_2R^7$ y $-SF_3$; o dos grupos R^2 , en átomos de carbono adyacentes del anillo de fenilo pueden, junto con los átomos de carbono a los que están unidos, formar un anillo heterocíclico, saturado o insaturado, de 5 a 7 miembros que contiene hasta tres heteroátomos en el anillo seleccionados de nitrógeno, oxígeno y azufre, el cual está opcionalmente sustituido con uno o más grupos seleccionados de halógeno, nitro, $-S(O)_2R^2$, alquilo de C_{1-4} , alcoxi de C_{1-4} , haloalquilo de C_{1-4} , haloalcoxi de C_{1-4} , $=O$ (o uno de sus acetales cíclicos de 5 o 6 miembros) y $=NO-R$, entendiéndose que un átomo de azufre, cuando está presente en el anillo, puede estar en forma de un grupo $-SO-$ o $-SO_2-$;

n representa un número entero de uno a cinco, cuando n es mayor que uno, los grupos R^2 pueden ser iguales o diferentes;

R^3 y R^4 representa cada uno independientemente un átomo de hidrógeno, o un grupo alquilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno;

R^5 representa un grupo alquilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; o un grupo alquénilo o alquinilo, de cadena lineal o ramificada, que contiene de dos a seis (preferiblemente de tres a seis) átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno;

R^6 y R^7 , que pueden ser iguales o diferentes, representa cada uno R^5 , o fenilo opcionalmente sustituido con uno a cinco grupos que pueden ser iguales o diferentes

seleccionados de un átomo de halógeno, un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno; nitro, ciano, $-\text{CO}_2\text{R}^i$, $-\text{S}(\text{O})_2\text{R}^{i2}$, $-\text{NR}^{i1}\text{R}^{i1}$,
5 $-\text{OR}^i$ y $-\text{CONR}^i\text{R}^i$;

R^6 , R^9 y R^{i0} representa cada uno un átomo de hidrógeno o R^i ;

R^{i1} y R^{i2} representa cada uno hidrógeno o R^i ;

R^{i3} representa un grupo alquilo, de cadena lineal
10 o ramificada, que contiene hasta seis átomos de carbono y que está opcionalmente sustituido con uno o más átomos de halógeno;

k , p y q representan independientemente los valores cero, uno o dos;

15 m representa uno, dos o tres;

t representa un número entero de uno a cuatro; cuando t es mayor que uno, los grupos R^9 y R^{i0} pueden ser iguales o diferentes;

o una de sus sales o complejos metálicos agrícola-
20 mente aceptables;

en ciertos casos, los grupos R a R^{i3} pueden dar lugar a isomería óptica y/o estereoisomería.

11. - Una composición de liberación retardada que contiene un herbicida de isoxazol.

12. - [MODIFICADA] Un método de acuerdo con la reivindicación 1, sustancialmente como se describe a continuación:

Tiestos de 7 x 7 cm² se rellenan con tierra de marga no estéril; se colocan semillas de malezas (*Amaranthus retroflexus*, *Echinochloa crus-galli* *Setaria viridis*) en tres pocillos poco profundos separados con una semilla de maíz (Pioneer 3394) insertada a una profundidad de 4 cm en cada tiesto y las semillas ligeramente cubiertas con tierra;

una solución de 1 ml de isoxaflutol técnico, diluido adecuadamente para proporcionar una dosis equivalente a 0.625, 1.25, 2.5, 5.0 y 10.0 Kg/Km² en acetónitrilo, se pipetea uniformemente sobre la superficie de la tierra de los tiestos

(se repite 10 veces) de acuerdo con el siguiente régimen;

el día 1, se trata un conjunto de 5 tiestos con 5 dosis (0.625-10.0 Kg/Km²) y se pone aparte en el invernadero, al mismo tiempo, el día 1 se trata un segundo conjunto de 4 tiestos con 4 dosis (tratamiento A: 0.625-5.0 Kg/Km²) junto con un tercer conjunto de 3 tiestos tratados con 3 dosis (tratamiento B: 0.625-2.5 Kg/Km²); el día 2, se tratan de nuevo cada una de los tiestos del segundo y tercer conjuntos, recibiendo los tiestos tratamiento A y B idénticos y el segundo conjunto de tiestos se pone aparte en el invernadero; el tercer día se trata de nuevo cada uno de los tiestos del conjunto, recibiendo los tiestos el tratamiento B idéntico. El día 4 se trató cada uno de los tiestos del tercer conjunto, recibiendo los tiestos tratamiento B idéntico y se pone aparte en el invernadero.

Se mantienen los tiestos en un invernadero, con un riego por la parte superior (3 veces al día) e iluminación suplementaria, 14 días después del tratamiento (DAT) se realiza una valoración visual del % de reducción, comparándolo con las plantas testigo no tratadas.

78 83

11

13. - [MODIFICADA] Una composición de liberación retardada de acuerdo con la reivindicación 11, sustancialmente como se ha descrito antes.

79 825

La Oficina de Patentes

La Oficina de Patentes

Concept House

Cardiff Road

Newport

South Wales

NP10 8QQ

Yo, el suscrito, siendo un oficial debidamente autorizado de acuerdo con la Sección 74(1) y (4) de la Ley de Deregulación y Contratación de 1994, para firmar y emitir certificados en nombre del Contralor-General, por la presente certifico que lo anexado es una copia fiel de los documentos como fueron originalmente radicados en conexión con la solicitud de Patente identificada allí dentro.

De acuerdo con las Reglas de Patentes (Re-inscripción de Compañías) de 1982, sí una compañía nombrada en este certificado y cualquier documento acompañante se ha re-inscrito bajo la Ley de Compañías de 1980 con el mismo nombre con el cual fue inscrito inmediatamente antes de la re-inscripción, salvo la substitución como, o la inclusión como,

80
85

la última parte del nombre de las palabras "compañía pública limitada" o sus equivalentes en Galés, referencias al nombre de la compañía en este certificado y cualquier documento acompañante serán tratados como referencias al nombre con el cual está re-inscrito.

1/1

De acuerdo con las reglas, las palabras "compañía pública limitada" pueden ser reemplazadas por p.l.c., plc, P.L.C. ó PLC.

Una re-inscripción bajo la Ley de Compañías no constituye una nueva entidad legal sino apenas sujeta a la compañía a ciertas reglas de ley corporativa adicionales.

Sello ilegible.

Firmado: ilegible

Fecha: 25 de enero de 2000

Una Agencia Ejecutiva del Departamento de Comercio e Industria

8/86
1/K

La Oficina de Patentes

La oficina de Patentes

Cardiff Road

Newport

Gwent NP9 1RH

Petición para el otorgamiento de una Patente

Sello Oficina de Patentes con fecha 12 de Abril de 1999

(Texto incompleto)

1. Su referencia N. P. 76032 A

2. Número de solicitud de patente

(La oficina de Patentes llenará esta parte)

9908313.1

12 DE ABRIL DE 1999

3. Nombre Completo, dirección y código postal del o de cada
solicitante (subraye todos los apellidos)

RHONE-POULENC AGRICULTURE LTD.

Fyfield Road

Ongar

Essex, CM5 OHW

Número ADP (si es conocido)

Si el solicitante es una compañía, dar el país/estado de su constitución.

REINO UNIDO

5683206001

4. Título del invento

CONTROL DE MALEZAS

5. Nombre de su agente (si tiene uno)

"Dirección para servicio" en el Reino Unido donde toda la correspondencia debe ser enviada (incluyendo el código postal) Nombre del Agente:

J A KEMP & CO

Dirección del Agente:

14 SOUTH SQUARE

GRAY'S INN

LONDON WC1R 5LX

Número ADP de Patente (si lo conoce): 26001

83 88

6. Si está declarando prioridad de una o más solicitudes de patentes previas, dar el país y fecha de radicación del o de cada una de estas solicitudes previas y (si lo conoce) el o cada número de solicitud

País	Número de solicitud de prioridad	Fecha de radicación
(si lo conoce)		(día/mes/año)

7. Si esta solicitud esta dividida o de otra manera derivada de una solicitud previa del Reino Unido, dar el número y la fecha de radicación de la solicitud previa

Número de Solicitud previa	Fecha de radicación
	(día/mes/año)

8. ¿Se requiere para soportar esta petición una declaración de inventoría y de derecho para el otorgamiento de una patente?

(Conteste "Si" si: SI

- a) cualquier solicitante nombrado en la parte 3 no es un inventor, o
- b) hay un inventor que no es nombrado como solicitante, o

84 85

c) cualquier solicitante nombrado es una compañía. Ver la nota (d)).

118

9. Indicar el número de hojas para cada uno de los siguientes tipos de documentos contenidos en esta solicitud.

No contar las copias del mismo documento

Hojas de continuación de este Formulario

Descripción 22

Reivindicaciones 2

Resumen 1

Dibujo(s) -

10. Si también está radicando cualquiera de lo siguiente, declarar cuantos de cada uno.

Documentos de prioridad

Traducciones de Documentos de Prioridad

Declaración de inventoría y Derecho de Otorgamiento de una patente (formulario de Patentes 7/77)

Petición para examinación preliminar y búsqueda

(Formulario de Patentes 9/77)

85 go
1/6/1

Petición para Examinación Substantiva (Formulario de
Patentes 10/77)

Cualquier otro documento
(por favor especifique)

11. Yo/Nosotros pedimos el otorgamiento de una patente
con base en esta solicitud.

Firma

Fecha

ilegible

12 Abril 1999

12. Nombre y número telefónico diurno de la persona a quien
contactar en el Reino Unido

S. BENTHAM

0171 405 3292

Advertencia

Después que una solicitud para unas Patentes haya sido
radicada, el Controlador de la Oficina de Patentes
considerará si la publicación o comunicación del invento
deberá ser prohibida o restringida bajo la Sección 22 de la
Ley de Patentes de 1977. Será informado si es necesario
prohibir o restringir su invento de esta manera. Además si

8p
gt

vive en el Reino Unido la Sección 23 de la Ley de Patentes de 1977 no le permite solicitar para una patente en el extranjero sin tener previamente permiso por escrito de la Oficina de Patentes a menos que una solicitud haya sido radicada por lo menos seis semanas antes en el Reino Unido para una patente para el mismo invento y ningún dictamen prohibiendo la publicación o comunicación haya sido hecho, o cualquier dicho dictamen haya sido revocado.

2

Notas

- a) si necesita ayuda en diligenciar este formulario o si tiene cualquier pregunta, favor contactar la Oficina de Patentes al 0645 500505.
- b) Escriba sus respuestas en mayúsculas usando tinta negra o puede pasarlas a máquina.
- c) Si no hay suficiente espacio para todos los detalles relevantes en cualquier parte de este formulario, favor continúe en una hoja separada y escriba "ver hoja de continuación" en las partes relevantes. Cualquier hoja de continuación deberá estar anexada a este formulario.
- d) Si ha contestado "Si", el formulario de Patentes 7/77 deberá ser radicado.
- e) Un vez diligenciado el formulario, deberá recordar firmarlo y fecharlo.

87
92

f) Para detalles sobre la tarifa y modos de pago, favor
contactar la Oficina de Patentes.

X

Formulario de Patentes 1/77

REIVINDICACIONES

- 1.- Un método para reprimir el crecimiento de malezas en un lugar en un medio de crecimiento sólido, que
5 comprende tratar el lugar con una composición que contiene un herbicida de isoxazol para proporcionar un suministro o liberación progresivo o secuencial del herbicida de isoxazol a la capa superficial del medio.
- 2.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
10 en el que el medio de crecimiento es suelo.
- 3.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1 ó 2, en el que el lugar es un lugar en el que crecen cosechas.
- 4.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
15 2 ó 3, en el que la capa superficial del medio abarca desde la superficie hasta una profundidad de 10 cm.
- 5.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones anteriores, que comprende aplicar al lugar dosis bajas secuenciales del herbicida de isoxazol.
- 20 6.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, que comprende tratar el lugar con una composición de liberación retardada que contiene el herbicida de isoxazol.
- 7.- Un método de acuerdo con la reivindicación 6,
25 en el que la composición de liberación retardada contiene una composición encapsulada.
- 8.- Un método de acuerdo con la reivindicación 6 ó 7, en el que se utiliza un isoxazol encapsulado, que contiene un derivado de isoxazol encapsulado dentro de una
30 película sólida que está constituida por un material inerte que por sí mismo no tiene actividad herbicida sustancial.
- 9.- Un método de acuerdo con la reivindicación 8, en el que se utilizan gránulos de un derivado de isoxazol con un tamaño desde 0,1 hasta 50 μ m.
- 35 10.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que el derivado de isoxazol tiene la fórmula general I que se ha definido

89 34

- 26 -

anteriormente.

11.- Una composición de liberación retardada que contiene un herbicida de isoxazol.

12.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1, sustancialmente como se ha descrito antes en el Ejemplo 1.

13.- Una composición de liberación retardada de acuerdo con la reivindicación 9, sustancialmente como se ha descrito antes.

10



The
Patent
Office



INVESTOR IN PEOPLE

90
95
1/5

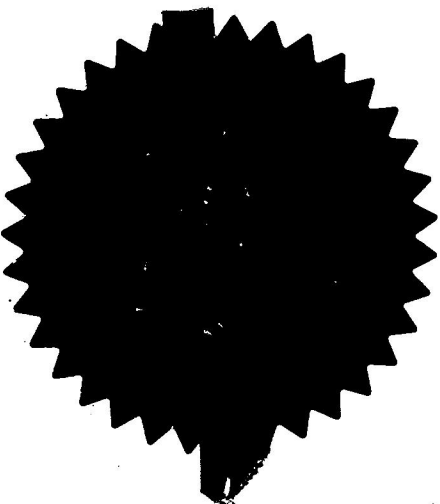
The Patent Office
Concept House
Cardiff Road
Newport
South Wales
NP10 8QQ

I, the undersigned, being an officer duly authorised in accordance with Section 74(1) and (4) of the Deregulation & Contracting Out Act 1994, to sign and issue certificates on behalf of the Comptroller-General, hereby certify that annexed hereto is a true copy of the documents as originally filed in connection with the patent application identified therein.

In accordance with the Patents (Companies Re-registration) Rules 1982, if a company named in this certificate and any accompanying documents has re-registered under the Companies Act 1980 with the same name as that with which it was registered immediately before re-registration save for the substitution as, or inclusion as, the last part of the name of the words "public limited company" or their equivalents in Welsh, references to the name of the company in this certificate and any accompanying documents shall be treated as references to the name with which it is so re-registered.

In accordance with the rules, the words "public limited company" may be replaced by p.l.c., plc, P.L.C. or PLC.

Re-registration under the Companies Act does not constitute a new legal entity but merely subjects the company to certain additional company law rules.

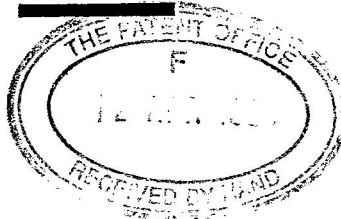


Signed

Andrew Gersey

Dated 25 January 2000

The
Patent
Office



13APR99 E439295-10 D00192
_P01/7700 0.00 - 9908313.1

The Patent Office
Cardiff Road
Newport
Gwent NP9 1RH

Request for grant of a patent

(See the notes on the back of this form. You can also get an explanatory leaflet from the Patent Office to help you fill in this form))

1. Your reference

P.76032 A

2. Patent application number

(The Patent Office will fill in this part)

11 2 APR 1999

9908313.1

3. Full name, address and postcode of the or of each applicant (underline all surnames)

Rhone-Poulenc Agriculture Limited,
Fyfield Road,
Ongar,
Essex. CM5 0HW.

5683206001

Patents ADP number (if you know it)

If the applicant is a corporate body, give the country/state of its incorporation

United Kingdom

7638987001

4. Title of the invention

WEED CONTROL

5. Name of your agent (if you have one)

J A KEMP & CO

"Address for service" in the United Kingdom to which all correspondence should be sent (including the postcode)

14 SOUTH SQUARE
GRAY'S INN
LONDON WC1R 5LX

26001

Patents ADP number (if you know it)

6. If you are declaring priority from one or more earlier patent applications, give the country and the date of filing of the or of each of these earlier applications and (if you know it) the or each application number

Country

Priority application number
(if you know it)

Date of filing
(day / month / year)

7. If this application is divided or otherwise derived from an earlier UK application, give the number and the filing date of the earlier application

Number of earlier application

Date of filing
(day / month / year)

8. Is a statement of inventorship and of right to grant of a patent required in support of this request? (Answer "Yes" if:

Yes

- a) any applicant named in part 3 is not an inventor, or
- b) there is an inventor who is not named as an applicant, or
- c) any named applicant is a corporate body:

See note (d))

Patents Form 1/77

9. For the number of sheets for any of the following items you are filing with this form. Do not count copies of the same document

Continuation sheets of this form

Description 22

Claim(s) 2

Abstract 1

Drawing(s)

10. If you are also filing any of the following, state how many against each item.

Priority documents

Translations of priority documents

Statement of inventorship and right to grant of a patent. (Patents Form 7/77)

Request for preliminary examination and search. (Patents Form 9/77)

Request for substantive examination (Patents Form 10/77)

Any other documents (please specify)

11. I/We request the grant of a patent on the basis of this application

Signature

Date 12 April 1999

12. Name and daytime telephone number of person to contact in the United Kingdom S. BENTHAM
0171 405 3292

Warning

After an application for a patent has been filed, the Comptroller of the Patent Office will consider whether publication or communication of the invention should be prohibited or restricted under Section 22 of the Patents Act 1977. You will be informed if it is necessary to prohibit or restrict your invention in this way. Furthermore, if you live in the United Kingdom, Section 23 of the Patents Act 1977 stops you from applying for a patent abroad without first getting written permission from the Patent Office unless an application has been filed at least 6 weeks beforehand in the United Kingdom for a patent for the same invention and either no direction prohibiting publication or communication has been given, or any such direction has been revoked.

Notes

- If you need help to fill in this form or you have any questions, please contact the Patent Office on 0645 500505.
- Write your answers in capital letters using black ink or you may type them.
- If there is not enough space for all the relevant details on any part of this form, please continue of a separate sheet of paper and write "see continuation sheet" in the relevant part(s). Any continuation sheet should be attached to this form.
- If you have answered "Yes" Patents Form 7/77 will need to be filed.
- Once you have filled in the form you must remember to sign and date it.
- For details of the fee and ways to pay please contact the Patent Office.

WEED CONTROL

This invention relates to a method for controlling the growth of weeds by the progressive application to, or release into, the surface layer of a growing medium, of
5 a benzoylisoxazole herbicide, and to compositions for use in the method.

Background of the invention.

The use of isoxazoles for controlling weeds has been described in European
10 Patent Publication Nos. 0418175, 0487357, 0527036 and 0560482. The herbicidal activity of diketonitriles (DKN) which may be formed from the isoxazoles has also been described in European Patent Publication Nos. 0213892, 0496630 and 0496631, and International Publication No. WO 95/25099.

Following the application of isoxazole herbicides they may decompose to
15 diones, in particular diketonitrile (DKN) compounds. This conversion is generally irreversible. The DKN compounds are generally also herbicides. They are generally more water soluble than the isoxazole herbicides and may be subject to movement in the soil profile following rainfall.

It has been found that by modifying the way isoxazole herbicides are applied
20 the ratio of isoxazole to DKN in a growing medium such as soil can be altered in favour of the isoxazole, increasing the ratio of isoxazole to DKN.

It has been found that by maintaining the ratio of isoxazole to DKN, in favour
of the isoxazole, in the surface layer of the soil, for example, during the period from application of isoxazole to establishment of a crop, improved control of weeds may
25 be obtained. Furthermore, crop selectivity may be improved and the risk of run off and leaching may be reduced.

An object of the present invention is to provide a method of application
and/or a composition which reduces the net movement of isoxazole and DKN
through the soil and retains the compounds in the soil surrounding, preferably
30 immediately surrounding, the point of application of the isoxazole.

Another object of the present invention is to provide a method and/or
composition which permits the delivery of lower individual dose rates of isoxazole

herbicides while maintaining (and sometimes improving) herbicidal efficacy.

A further object of the present invention is to provide a composition, comprising an isoxazole, with improved activity on weed species and/or improved crop selectivity.

5 The objects of the invention can be achieved on whole or in part by the present invention.

 It is known that isoxazoles exert their herbicidal activity in plants by conversion to DKN compounds. It might be expected, therefore, that application of isoxazole in such a way as to accelerate or favour its conversion to DKN would be
10 advantageous. The Applicants have found that the opposite is true.

 The present invention provides a method for controlling the growth of weeds at a locus in a solid growing medium which comprises treating the locus with a composition comprising an isoxazole herbicide to provide progressive or sequential delivery or release of isoxazole herbicide into the surface layer of the medium.

15 The growing medium includes composts but is preferably the soil.

 The locus is preferably a crop-growing locus, for example, where a crop is sown and cultivated.

 The surface layer is generally from the surface to a depth of 10 cm, preferably to a depth of 5 cm, more preferably to a depth of 3 cm..

20 According to a feature of the invention the method comprises applying to the locus, for example where a crop is sown and cultivated, sequential low doses of isoxazole herbicides. For example the normal dosage may be divided into two or more, for example 2 to 5, generally equal portions and applied at time-spaced intervals, each application after the first being made, for example 1 to 4 days,
25 preferably 1 day, after the preceding one.

 According to a further feature of the present invention the method comprises treating the locus with a delayed release composition comprising the isoxazole herbicide.

 The delayed release composition, which constitutes a feature of the invention,
30 may comprise, for example, an encapsulated composition comprising the isoxazole itself or a composition containing it. The delayed release compositions may be prepared by known methods.

The encapsulated product may have a solid outer wall, said wall comprising an inert material, generally having no substantial herbicidal activity.

The encapsulated isoxazole according to the present invention may comprise granules comprising an isoxazole derivative of formula (I), each of these granules being encapsulated with a solid film comprising an inert material itself having no substantial herbicidal activity.

Preferably the inert material is a water-soluble polymeric material, modified by treatment to render it substantially water insoluble.

Soluble materials which may be used include:

a copolyester; polyvinylalcohol; polyacrylate; polycarboxylate; gelatine; polysulfonate, for example the polystyryl polysulfones, a protein, a polyethylene oxide; a modified or unmodified starch; a cellulose for example carboxymethyl cellulose; a dextran, maltose, an alkyl-, hydroxyalkyl-, carboxyalkyl-cellulose; a polyvinylether; poly(2,4-diethyl-6-triazolylethylene); poly(vinylsulfonic acid), polyanhydride, a low molecular weight urea-formaldehyde resin, a low molecular weight melamine-formaldehyde resin, a polymethacrylate for example poly(alkylcyanoacrylate), poly(isobutylcyanoacrylate), poly(2-hydroxyethylmethacrylate), polyacrylic acid or a homologue thereof; low molar mass amphiphiles; low molar mass polymeric amphiphiles; polylactic acid glutamic acid; dendrimers (hyperbranched polymers); phospholipids for example distearoylphosphatidyl choline, dioleoylphosphatidylethanolamine, dipalmitoylphosphatidylchlorine, dipalmitoylphosphatidylglycerol, phosphatidylethanolamine, phosphatidylinositol; lipoprotein, semi-solid poly(ortho ester) polycarboxylates; hydrogels. The materials may be in the form of, for example, solid lipid nano/micro spheres; polyester microspheres; nanocapsules, niosomes; liposomes, polymeric micelles. An oil may be used to facilitate the production of an emulsion with small particle sizes and to inhibit agglomeration.

Preferably the water-soluble material is a copolyester, for example gerol which is a copolymer for example : 1,3-Benzenedicarboxylic acid, 5-sulfomonosodium salt, polymer with 1,3-benzenedicarboxylic acid, 1,4-benzenedicarboxylic acid, 1,2-ethanediol, 2,2'-[1,2-ethanediylbis(oxy)]bis[ethanol] and 2,2'-oxybis[ethanol]. The water soluble materials may vary in molecular weight

and may include oligomers.

The inert water soluble polymer is generally precipitated by association (by complexation or mixing) with a material which does not itself solubilise the aforementioned water soluble polymer. The materials which result in precipitation of the polymer include soluble salts of alkaline earth metals (for example calcium). The association can be modulated by adjusting the pH of the water soluble solution of the polymer which solubilises the ions (of the aforementioned alkaline earth) which effect precipitation of the now insolubilised polymer to encapsulate the particles of the active material. The pH can be adjusted using, for example, acetic acid.

Precipitation can also be induced by adjusting the solvent or solvents without the need for association with another material.

The size of the granules of the active material of an isoxazole derivative of formula (I) is generally from 0.1 to 50 μ m, preferably from 1 to 20 μ m.

The thickness of the coating of the encapsulating material is generally from 0.1 to 50 μ m, preferably from 1 to 20 μ m.

The granules of encapsulated 4-benzoylisoxazole derivative of formula (I) according to the present invention may be for example, in a powdered state or in a liquid or solid formulation, contained within a support (or a carrier for application).

Compositions of the present invention improve the release of a herbicide to the soil site to which it is applied and movement resulting from rain water or irrigation is reduced. A marked improvement in the downward transmigration of the active ingredient from the immediate application area (weed seed zone) through the soil profile is provided.

Compositions of the present invention provide a method for controlling the release of a herbicide in a range of soil types and edaphic conditions by modification of the ratios of isoxazole: carrier material.

The use of compositions of the present invention permits more efficient use of herbicide which is retained in the area of soil application, for example the weed seed zone; thus the amount of herbicide applied may be reduced. In addition, the herbicide is maintained in the area of the weed seed zone for a longer period of time than usual.

Localisation of the herbicide in the weed seed zone improves selectivity on

the crop species, for example maize.

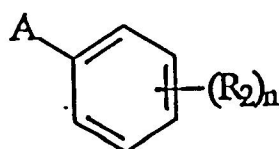
Compositions of the present invention provide a method for reducing the release rate of herbicides, such as isoxazoles, in soil thereby slowing the overall rate of degradation. Encapsulation in a matrix carrier increases the stability of the herbicides as it is protected from the components which may promote degradation, such as moisture or microbial activity.

By the term "pre-emergence application" is meant an application to the soil in which the weed seeds or seedlings are present before emergence of the crop. One example of a pre-emergence application is known as "pre-plant incorporated" (PPI), where the herbicide is incorporated into the soil before planting the crop. Another is where the herbicide is applied to the soil surface after sowing the crop. By the term "foliar activity" is meant herbicidal activity produced by application to the aerial or exposed portions of the weeds which have emerged above the surface of the soil.

In general, the application rate of 4-benzoylisoxazole herbicides of formula (I) in compositions of the present invention is from 0.005kg to 0.5kg herbicidally active compound, preferably from 0.015kg to 2kg herbicidally active compound, more preferably from 0.02kg to 0.12kg herbicidally active compound, even more preferably from 0.05 to 0.09kg herbicidally active compound per hectare. When sequential low doses of isoxazole herbicide are used, as hereinbefore described, the application rates given above may be divided.

The method of the invention is generally applied to a locus pre-emergence of the weeds and crop plant. Preferably the locus is first cultivated and/or treated to remove existing weeds. For example a burn down herbicide such as glyphosate may be used.

Representative herbicides whose mobility in soil is controlled by compositions of the present invention include 4-benzoylisoxazole derivatives of general formula (I):

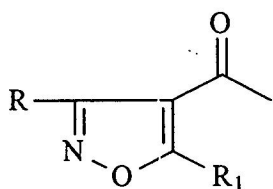


(I)

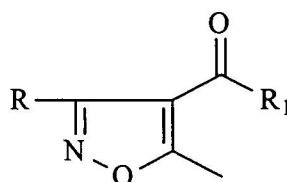
wherein

A represents a group (A-1) or (A-2):

5



(A-1)



(A-2)

10

wherein:

15

R represents a hydrogen or halogen atom; a straight- or branched-chain alkyl or alkenyl or alkynyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; a cycloalkyl group containing from 3 to 6 carbon atoms optionally substituted by one or more groups R^5 , one or more halogen atoms or a group $-CO_2R^3$; or a group selected from $-CO_2R^3$, $-COR^5$, cyano, nitro, $-CONR^3R^4$ and $-S(O)_kR^{13}$,

20

R_1 represents a straight- or branched-chain alkyl, alkenyl or alkynyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; or a cycloalkyl group containing from three to six carbon atoms optionally substituted by one or more groups R^5 or one or more halogen atoms;

25

R^2 represents a halogen atom; a straight- or branched-chain alkyl, alkenyl or alkynyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is substituted by one or more groups $-OR^5$; or a group selected from nitro, cyano, $-CO_2R^5$, $-S(O)_pR^6$, $-O(CH_2)_mOR^5$, $-COR^5$, $-NR^{11}R^{12}$, $-N(R^8)SO_2R^7$, $-N(R^8)CO_2R^7$, $-OR^5$, $-OSO_2R^7$, $-SO_2NR^3R^4$, $-CONR^3R^4$, $-CSNR^3R^4$, $-(CR^9R^{10})_t-S(O)_qR^7$ and $-SF_5$; or two groups R^2 , on adjacent carbon atoms of the

30

phenyl ring may, together with the carbon atoms to which they are attached, form a 5

95 100
49

to 7 membered saturated or unsaturated heterocyclic ring containing up to three ring heteroatoms selected from nitrogen, oxygen and sulfur, which ring is optionally substituted by one or more groups selected from halogen, nitro, $-S(O)_pR^{13}$, C_{1-4} alkyl, C_{1-4} alkoxy, C_{1-4} haloalkyl, C_{1-4} haloalkoxy, $=O$ (or a 5- or 6-membered cyclic acetal thereof) and $=NO-R_3$, it being understood that a sulphur atom, where present in the ring, may be in the form of a group $-SO-$ or $-SO_2-$;

n represents an integer from one to five: when n is greater than one the groups R^2 may be the same or different;

R^3 and R^4 each independently represent a hydrogen atom, or a straight- or branched chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms;

R^5 represents a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; or a straight- or branched-chain alkenyl or alkynyl group containing from two to six (preferably from three to six) carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms;

R^6 and R^7 , which may be the same or different, each represent R^5 , or phenyl optionally substituted by from one to five groups which may be the same or different selected from a halogen atom, a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; nitro, cyano, $-CO_2R^5$, $-S(O)_pR^{13}$, $-NR^{11}R^{12}$, $-OR^5$ and $-CONR^3R^4$;

R^8 , R^9 , and R^{10} each represent a hydrogen atom or R^6 ;

R^{11} and R^{12} each present hydrogen or R^5 ;

R^{13} represents a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms;

k, p and q independently represent the values zero, one or two;

m represents one, two or three;

t represents an integer from one to four; when t is greater than one, the groups R^9 and R^{10} may be the same or different;

or an agriculturally acceptable salt or metal complex thereof.

In certain cases, the groups R to R^{13} may give rise to optical and/or

stereoisomerism. All such forms are embraced by the present invention.

By the term "agriculturally acceptable salts" is meant salts the cations or anions of which are known and accepted in the art for the formation of salts for agricultural or horticultural use. Preferably the salts are water soluble. Suitable acid addition salts, formed by compounds of formula (I) containing an amino group, include salts with inorganic acids, for example, hydrochlorides, sulphates, phosphates and nitrates, and salts with organic acids, for example, acetic acid. Suitable salts formed by compounds of formula (I) which are acidic, i.e. compounds containing one or more carboxy groups, with bases include alkali metal (e.g. sodium and potassium) salts, alkaline earth metal (e.g. calcium and magnesium) salts, ammonium and amine (e.g. diethanolamine, triethanolamine, octylamine, dioctylmethylamine and morpholine) salts.

In the description unless otherwise specified 'halogen' means a fluorine, chlorine, bromine or iodine atom.

Compounds of formula (I) wherein A represents (A-1) are preferred.

The phenyl ring of the compounds of formula (I) is preferably 2,4-disubstituted 2,3-disubstituted or 2,3,4-trisubstituted.

Compounds of formula (I) in which R represents hydrogen or $-\text{CO}_2\text{R}^3$ wherein R^3 represents a straight- or branched chain alkyl group containing up to three carbon atoms; and R^1 represents cyclopropyl are preferred.

Compounds of formula (I) in which R^2 represents a halogen atom; a straight- or branched-chain alkyl group containing up to three carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; $-\text{S}(\text{O})_p\text{R}^6$; $-\text{OR}^5$ or $-\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_q\text{R}^7$; wherein R^5 , R^6 and R^7 each represent the same or different optionally halogenated methyl or ethyl groups are preferred.

A preferred class of compounds of formula (I) wherein A represents (A-1) are those wherein:

R is hydrogen or $-\text{CO}_2\text{E}_i$;

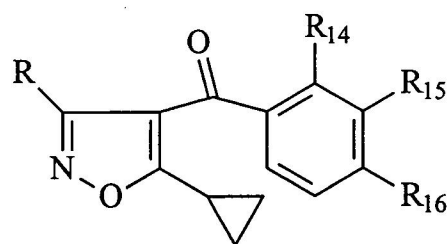
R^1 is cyclopropyl;

and two groups R^2 , on adjacent carbon atoms of the phenyl ring may, together with the carbon atoms to which they are attached, combine to form a 5 or 6

membered saturated or unsaturated heterocyclic ring which is fused to the 2,3 or 3,4 positions of the benzoyl ring; wherein the heterocyclic ring contains two hetero atoms selected from sulphur and oxygen which are located at the 2 and 3, or 3 and 4 positions of the benzoyl ring; and in which the 4-substituent of the benzoyl ring is halogen or $S(O)_pMe$, or the 2-substituent of the benzoyl ring is methyl, $S(O)_pMe$ or $-CH_2S(O)_qMe$ respectively; and optionally the heterocyclic ring may be substituted by one or more halogen atoms.

A more preferred class of compounds of formula (I) are those wherein A represents (A-1); R is hydrogen or $-CO_2Et$; R^1 is cyclopropyl; R^2 is a halogen atom or a group selected from $-CF_3$, Me, Et, $-S(O)_pMe$, $-CH_2S(O)_qMe$ and optionally halogenated methoxy or ethoxy; and n is two or three.

A yet more preferred class of compounds of formula (I) are those having the formula (Ia):



(Ia)

wherein:

R is hydrogen or $-CO_2Et$;

R^{14} is selected from $-S(O)_pMe$, Me, Et, a chlorine, bromine or fluorine atom, methoxy, ethoxy and $-CH_2S(O)_qMe$;

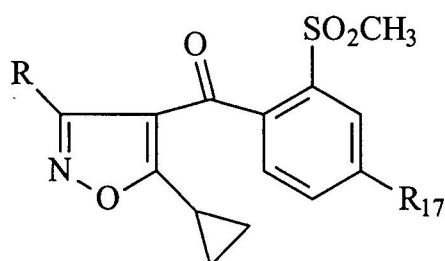
R^{15} is selected from a hydrogen atom, a chlorine, bromine or fluorine atom, methoxy, ethoxy and $-S(O)_pMe$;

R^{16} is selected from a hydrogen atom, a chlorine, bromine or fluorine atom, methoxy and CF_3 ;

and wherein at least one of R^{15} and R^{16} is other than hydrogen.

An especially preferred class of compounds of formula (I) have the formula

(Ib):



(Ib)

wherein R^7 is chlorine, bromine or trifluoromethyl; and

R is hydrogen or CO_2Et .

The following compounds of formula (I) are among the most preferred for use in the present invention:

5-cyclopropyl-4-[2-chloro-3-ethoxy-4-(ethylsulphonyl)benzoyl]isoxazole;

4-(4-chloro-2-methylsulphonylbenzoyl)-5-cyclopropylisoxazole;

5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-trifluoromethylbenzoyl)isoxazole;

4-(4-bromo-2-methylsulphonylbenzoyl)-5-cyclopropylisoxazole;

5-cyclopropyl-4-[4-fluoro-3-methoxy-2-(methylsulphonyl)benzoyl]isoxazole;

4-(4-bromo-2-methylsulphonylmethylbenzoyl)-5-cyclopropylisoxazole;

ethyl 5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-

trifluoromethylbenzoyl)isoxazole-3-carboxylate;

5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-trifluoromethylbenzoyl)-3-methylthioisoxazole.

The most preferred compound is 5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-

trifluoromethylbenzoyl)isoxazole (isoxaflutole).

Procedures for preparing isoxazoles of formula (I) are as described in European Patent Publication Nos. 0418175, 0487357, 0527036 and 0560482.

The method of the invention can be used on genetically modified crops.

By genetically modified crop is understood those crops which have been made tolerant towards herbicides by conventual sowing and cultivation methods or genetic engineering methods.

According to a further feature of the present invention, there are provided compositions suitable for herbicidal use in the method of the invention comprising one or more of the 4-benzoylisoxazoles of formula (I) or an agriculturally acceptable salt or metal complex thereof (which may be encapsulated as hereinbefore described), in association with, and preferably homogeneously dispersed in, one or more compatible agriculturally-acceptable diluents or carrier and/or surface active agents [i.e. diluents or carriers and/or surface active agents of the type generally accepted in the art as being suitable for use on herbicidal compositions and which are compatible with compounds of formula (I)]. The term "homogeneously dispersed" is used to include compositions in which the compounds of formula (I) are dissolved in other components. The term "herbicidal compositions" is used in a broad sense to include not only compositions which are ready for use as herbicides but also concentrates which must be diluted before use. Preferably, the compositions contain from 0.05 to 90% by weight of one or more compounds of formula (I).

The herbicidal compositions may contain both a diluent or carrier and surface-active (e.g. wetting, dispersing, or emulsifying) agent. Surface-active agents which may be present in herbicidal compositions of the present invention may be of the ionic or non-ionic types, for example sulphuricinoleates, quaternary ammonium derivatives, products based on condensates of ethylene oxide with alkyl and polyaryl phenols, e.g. nonyl- or octyl-phenols, tristeryl phenols, condensates of ethylene oxide with alcohols, or carboxylic acid esters of anyhydrosorbitols which have been rendered soluble by etherification of the free hydroxy groups by condensation with ethylene oxide, alkali and alkaline earth metal salts of sulphuric acid esters and sulphonic acids such as dinonyl- and dioctyl- sodium sulphonosuccinates and alkali and alkaline earth metal salts of high molecular weight

sulphonic acid derivatives such as sodium and calcium lignosulphonates and sodium and calcium alkylbenzene sulphonates.

Suitably, the herbicidal compositions according to the present invention may comprise up to 10% by weight, e.g. from 0.05% to 10% by weight, of surface-active agent but, if desired, herbicidal compositions according to the present invention may
5 comprise higher portions of surface-active agent, for example up to 15% by weight in liquid emulsifiable suspension concentrates and up to 25% by weight in liquid water soluble concentrates.

Examples of suitable solid diluents or carriers are aluminium silicate,
10 microfine silicon dioxide, talc, chalk, calcined magnesia, kieselguhr, tricalcium phosphate, powdered cork, adsorbent carbon black and clays such as kaolin, attapulgit, diatomaceous earth, mica, alumina oxide, titanium oxide and bentonite. The solid compositions (which may take the form of dusts, granules or wettable
15 powders) are preferably prepared by grinding the compounds of formula (I) with solid diluents or by impregnating the solid diluents or carriers with solutions of the compounds of formula (I) in volatile solvents, evaporating the solvents and if necessary, grinding the products so as to obtain powders. Granular formulations may
20 be prepared by absorbing the compounds of formula (I) dissolved in suitable solvents, (which may, if desired, be volatile) onto the solid diluents or carriers in granular form and, if desired, evaporating the solvents, or by granulating
compositions in powder form obtained as described above. Solid herbicidal compositions, particularly wettable powders and granules, may contain wetting or
dispersing agents (for example of the types described above), which may also, when solid, serve as diluents or carriers.

25 Liquid compositions according to the invention may take the form of aqueous, organic or aqueous-organic solutions, suspensions and emulsions which may incorporate a surface-active agent. Suitable liquid diluents for incorporation in the liquid compositions include water, glycols, glycol ethers, tetrahydrofurfuryl alcohol, acetophenone, cyclohexanone, isophorone, alkyl pyrrolidones,
30 butyrolactone, chlorinated toluene, xylene, mineral, animal and vegetable oils, esterified vegetable oils and light aromatic and naphthenic fractions of petroleum

98
103
12

(and mixtures of these diluents). Surface-active agents, which may be present in the liquid compositions, may be ionic or non-ionic (for example of the types described above) and may, when liquid, also serve as diluents or carriers.

5 Powders, dispersible granules and liquid compositions in the form of concentrates may be diluted with water or other suitable diluents, for example mineral or vegetable oils, particularly in the case of liquid concentrates in which the diluent or carrier is an oil, to give compositions ready for use.

10 When desired, liquid compositions of the compounds of formula (I) may be used in the form of self-emulsifying concentrates containing the active substances dissolved in the emulsifying agents or in solvents containing emulsifying agents compatible with the active substances, the simple addition of such concentrates to water producing compositions ready for use.

Liquid concentrates in which the diluent or carrier is an oil may be used without further dilution using the electrostatic spray technique.

15 Herbicidal compositions according to the present invention may also contain, if desired, conventional adjuvants such as adhesives, protective colloids, thickeners, penetrating agents, spreading agents, stabilisers, buffers, sequestering agents, anti-caking agents, colouring agents and corrosion inhibitors. These adjuvants may also serve as carriers or diluents.

20 Unless otherwise specified, the following percentages are by weight. Preferred herbicidal compositions according to the present invention are encapsulations containing water dispersible granules which comprise from 1 to 90%, e.g. 25 to 75% of one or more compounds of formula (I), from 1 to 15%, e.g. 2 to 10%, of surface-active agent and from 5 to 95%, e.g. 20 to 60%, of solid diluent, e.g. 25 clay, granulated with the addition of water to form a paste and then dried;

aqueous suspension concentrates which comprise from 5 to 70% of one or more compounds of formula (I), from 2 to 10% of surface-active agent, from 0.1 to 5% of thickener and from 15 to 87.9% of water;

30 wettable powders which comprise from 5 to 90% of one or more compounds of formula (I), from 2 to 10% of surface-active agent and from 8 to 88% of solid diluent or carrier;

water soluble or water dispersible powders which comprise from 5 to 90% of one or more compounds of formula (I), from 2 to 40% of sodium carbonate and from 0 to 88% of solid diluent;

5 liquid water soluble concentrates which comprise from 5 to 50%, e.g. 10 to 30% of one or more compounds of formula (I), from 0 to 25% of surface-active agent and from 10 to 90%, e.g. 45 to 85%, of water miscible solvent, e.g. triethylene glycol, or a mixture of water-miscible solvent and water;

10 liquid emulsifiable suspension concentrates which comprise from 5 to 70% of one or more compounds of formula (I), from 5 to 15% of surface-active agent, from 0.1 to 5% of thickener and from 10 to 84% of organic solvent, e.g. mineral oil; and

emulsifiable concentrates which comprise 0.05 to 90%, and preferably from 1 to 60% of one or more compounds of formula (I), from 0.01 to 10%, and preferably from 1 to 10%, of surface-active agent and from 9.99 to 99.94%, and preferably from 39 to 98.99%, of organic solvent.

15 The water dispersible granules comprising isoxazoles of formula (I) whose apparent density was 0.25-0.75, have a particle size of generally 10-2000 μ m, preferably 300-1500 μ m.

Herbicidal compositions according to the present invention may also comprise the compounds of formula (I) in association with, and preferably
20 homogeneously dispersed in, one or more other pesticidally active compounds and, if desired, one or more compatible pesticidally acceptable diluents or carriers, surface-active agents and conventional adjuvants as hereinbefore described.

Examples of other pesticidally active compounds which may be included in, or used in conjunction with, the herbicidal compositions of the present invention
25 include herbicides, for example to increase the range of weed species controlled for example acetochlor,

alachlor [2-chloro-2,6'-diethyl-N-(methoxy-methyl)-acetanilide], atrazine [2-chloro-4-ethylamino-6-isopropylamino-1,3,5-triazine], bromoxynil [3,5- dibromo-4-hydroxybenzonitrile], chlortoluron [N'-(3-chloro-4- methylphenyl)-N,N-
30 dimethylurea, cyanazine [2-chloro-4-(1-cyano-1-methylethylamino)-6-ethylamino-1,3,5-triazine], 2,4-D [2,4-dichlorophenoxy-acetic acid], dicamba [3,6-dichloro-2-

99
104

2

methoxybenzoic acid], difenzoquat [1,2-diethyl-3,5-diphenyl-pyrazolium salts],
dimethanamid, flampropmethyl [methyl N-2-(N-benzoyl-3-chloro-4- fluoroanilino)-
propionate], flufenacet, fluometron [N'-(3-trifluoro-methylphenyl)-N,N-
dimethylurea], glyphosate, glufosinate, isoproturon [N'-(4-isopropylphenyl)-N,N-
5 dimethylurea], metolachlor, metribuzin, insecticides, e.g. synthetic pyrethroid, e.g.
permethrin and cypermethrin, fipronil and fungicides, e.g. carbamates, e.g. methyl N-
(1-butyl-carbamoyl-benzimidazol-2-yl)carbamate, and triazoles e.g. 1-(4-chloro-
phenoxy)-3,3-dimethyl-1-(1,2,4-triazol-1-yl)-butan-2-one.

10 Pesticidally active compounds and other biologically active materials which
may be included in, or used in conjunction with, the herbicidal compositions of the
present invention, for example those hereinbefore mentioned, and which are acids,
may, if desired, be utilized in the form of conventional derivatives, for example alkali
metal and amine salts and esters.

15 The following Examples illustrate herbicidal compositions which may be
used in the present invention. The Active Ingredient listed in the following examples
refers to a compound of general formula (I).

Example C1:

An emulsifiable concentrate is formed from:

20	Active ingredient	20% w/v
	N-Methylpyrrolidinone (NMP)	25% w/v
	Calcium dodecylbenzenesulphonate	70%
	(CaDDBS)	4% w/v
	Nonylphenol ethylene oxide propylene oxide	
25	condensate (NPEOPO)	4% w/v
	Aromatic solvent	to 100 volumes

by stirring NMP, active ingredient (Compound 1), CaDDBS,
NPEOPO and Aromatic solvent until a clear solution is formed, and adjusting to
volume with Aromatic solvent.

Example C2

A wettable powder is formed from:

	Active Ingredient	50% w/w
	Sodium dodecylbenzenesulphonate	3% w/w
5	Sodium methyl oleoyl taurate	5% w/w
	Sodium polycarboxylate	1% w/w
	Sodium polycarboxylate	1% w/w
	Microfine silicon dioxide	3% w/w
	China clay	38% w/w

10 by blending the above ingredients together and grinding the mixture in an air jet mill.

Example C3

15 A suspension concentrate is formed from:

	Active Ingredient	50% w/v
	Antifreeze (Propylene glycol)	50% w/v
	Ethoxylated tristerylphenol phosphate	0.5% w/v
	Nonyl phenol 9 mole ethoxylate	0.05% w/v
20	Sodium polycarboxylate	0.02% w/v
	Attaclay	1.5% w/v
	Antifoam	0.003% w/v
	Water	to 100 volumes

by stirring the above ingredients together and milling in a bead mill.

25

Example C4

A water dispersible granule is formed from:

	Active ingredient	50% w/w
30	Sodium dodecylbenzenesulphonate	3% w/w
	Sodium methyl oleoyl taurate	5% w/w

100
105

17

Sodium polycarboxylate	1% w/w
Binder (Sodium lignosulphonate)	8% w/w
china clay	30% w/w
Microfine silicon dioxide	3% w/w

5 by blending the above ingredients together, grinding the mixture in an air jet mill and granulating by addition of water in a suitable granulation plant (e.g. Fluid bed drier) and drying. Optionally the active ingredient may be ground either on its own or admixed with some or all of the other ingredients.

10 The following non-limiting Example illustrates the invention.

EXAMPLE 1

15 Glasshouse experiment showing unexpected enhancement of biological activity on weeds following application of compound (isoxaflutole).

7 x 7 cm² pots were filled with a non-sterile loam soil. Weed seeds (*Amaranthus retroflexus*, *Echinochloa crus galli* and *Setaria viridis*) were placed in three separate shallow wells with a maize seed (*Pioneer 3394*) inserted to a depth of 4 cm in between in each pot and the seeds lightly covered with soil.

20 A 1 ml solution of technical isoxaflutole, suitably diluted to give a dose equivalent to 6.25, 12.5, 25, 50 and 100 /ha in acetonitrile, was pipetted evenly on the soil surface of pots (replicated 10 times), according to the following regime.

On day 1, a set of 5 pots were treated with 5 dose rates (6.25-100 g/ha) and set aside in the glasshouse. At the same time, on day 1 a second set of 4 pots were
25 treated with 4 dose rates (treatment A : 6.25-50 g/ha) along with a third set of 3 pots treated with 3 dose rates (treatment B : 6.25-25 g/ha). On day 2 each of the second and third pots were treated again the pots receiving identical treatments A and B and the second set of pots set aside in the glasshouse. On day 3 each of the third set of pots were treated again, the pots receiving identical treatment B. On day 4 each of
30 the third set of pots were treated, the pots receiving identical treatment B and the pots set aside in the glasshouse.

The pots were maintained in a glasshouse, with overhead watering (3 x daily) and supplementary lighting. Visual assessment of % reduction, compared to untreated control plants was recorded 14 days after treatment. The results (average of 10 replicates) are shown in Table 1, where the dosing regime refers to the number of daily applications followed by the dose of compound on each day.

TABLE 1

% Damage 14 DAT: Comparison of Single vs. Multiple Application

% Damage				
Dosing Regime	Amare	Echcg	Setvi	Maize (P3394)
2 x 6.25	34	18	18	0
1 x 12.5	0	0	0	0
4 x 6.25	30	97	75	0
2 x 12.5	46	68	42	0
1 x 25	8	32	10	0
4 x 12.5	79	100	91	6
2 x 25	42	70	44	0
1 x 50	50	84	24	2
4 x 25	90	100	77	6
2 x 50	78	96	66	10
1 x 100	79	94	59	8

As can be seen in Table 1, the efficacy of the herbicide on key weed species is improved by 2 applications separated by 1 day and surprisingly even more enhanced by 4 applications separated by 3 days, compared to a single application of the same total dose of compound. Repeat applications did not appear to have any impact on maize phytotoxicity.

EXAMPLE 2

A 30% aqueous solution of Gerol was prepared and 67g added to 80g of a

10/106

-19-

6

- suspension of isoxaflutole (250g/L) in water containing a dispersant (sodium polynaphthalene sulphate to maintain the suspension) with stirring. Powdered calcium carbonate (1g) was added and the resultant mixture sonicated with ultrasound before addition of polysiloxane oil (600 ml) to give an emulsion. Acetic acid (3ml) was added and stirring continued for 2 hours. The stirring was stopped and the upper layer decanted from the precipitate. This solid was filtered off, washed with water and dried to give microparticles of encapsulated isoxaflutole. The encapsulated material may be formulated using methods hereinbefore described.
- 5
- 10 Gerol: Diethyleneglycol-ethyleneglycol-isophthalic acid-sodium 5-sulfoisophthalate-terephthalic acid-triethylene glycol copolymer.

EXAMPLE 3

Maize is sown and then grown up in area where weeds and weed seeds are present. The weeds are a selection from: Alopecurus myosuroides, Avena fatua, Digitaria sanguinalis, Echinochloa crus-galli, Eleusine indica, Lolium multiflorum, Setaria viridis, Sorghum halepense, Cyperus esculentus, Cyperus iria, Cyperus rotundus, Eleocharis acicularis, Abutilon theophrasti, Amaranthus retroflexus, Bidens pilosa, Chenopodium album, Galium aparine, Ipomoea purpurea, Lamium purpureum, Matricaria inodora, Sesbania exalta, Sinapis arvensis, Solanum nigrum, Stellaria media, Veronica hederifolia, Veronica persica, Viola arvensis, and Xanthium strumarium.

After one week from sowing the maize, isoxazole is sprayed as an encapsulated formulation as hereinbefore described at a rate of 105 g/ha of herbicidally active compound, the weight ratio of isoxazole : copolyester being 1 : 10. The amounts of isoxazole of formula (I) and DKN were measured after 4 days in a 5cm deep soil core around the seed or seedling. The weight ratio of isoxazole : DKN was found to be 1.

The activity of the isoxazole on the crop and weeds was observed after 3 weeks, and found to be equal to 2% and 95% respectively.

A similar application in similar soil conditions without the copolyester provided a weight ratio of isoxazole : DKN of 0.1 and herbicidal activity on both crop and weeds was 15% and 95% respectively.

EXAMPLE 4

Maize is sown in an area where weeds and weed seeds of the species Setaria viridis are present. Isoxazole is sprayed on the soil surface as an encapsulated formulation at a rate of 105g herbicidally active compound per hectare. The activity of the isoxazole on maize and Setaria viridis was observed 6, 11, 14 and 17 days after treatment (DAT).

Activity of 4-benzoylisoxazole on Setaria viridis

102
107

Application rate g/ha	Formulation	DAT			
		6	11	14	17
105	encapsulated	0	40	70	90
	WG	10	50	75	100

2

Activity of 4-benzoylisoxazole on Maize

Application rate g/ha	Formulation	DAT			
		6	11	14	17
105	encapsulated	0	0	3	8
	WG	0	5	7	10

5 Activity on Setaria viridis by the encapsulated formulation was equal to that of the WG formulation. The encapsulated formulation decreased phytotoxicity on maize by 20-30% compared to the WG formulation.

EXAMPLE 5

10 Maize is sown and grown up in an area where weeds and weed seedlings are present. The weeds are Amaranthus retroflexus, Echinochloa crus-galli and Setaria viridis. Solutions of isoxazole in acetonitrile were applied directly to the soil surface at dose rates of 100, 50 and 25g/ha to plots A, B and C respectively. 1 DAT dose rates of 50 and 25g/ha were applied to plots B and C respectively, 2 and 3 DAT a dose rate of 25g/ha was applied to plot C.

15 Activity of the isoxazole on maize and the weed species was observed 14 DAT.

Dosing regime	AMARE	ECHCG	SETVI	Maize
4 x 25g/ha	90	100	77	6
2 x 50g/ha	78	96	66	10
1 x 100g/ha	79	94	59	8

5 Maintaining the isoxazole in the surface of the soil within the area containing weed seeds and seedlings, by sequential applications of low dose rates of isoxazole, provides improved activity on weeds.

CLAIMS

1. A method for controlling the growth of weeds at a locus in a solid growing medium which comprises treating the locus with a composition comprising an isoxazole herbicide to provide progressive or sequential delivery or release of isoxazole herbicide into the surface layer of the medium.

2. A method according to claim 1 in which the growing medium is soil.

3. A method according to claim 1 or 2 in which the locus is a crop-growing locus.

4. A method according to claim 1, 2 or 3 in which the surface layer of the medium is from the surface to a depth of 10 cm.

5. A method according to any one of the preceding claims which comprises applying to the locus sequential low doses of isoxazole herbicide.

6. A method according to any one of claims 1 to 4 which comprises treating the locus with a delayed release composition comprising the isoxazole herbicide.

7. A method according to claim 6 in which the delayed release composition comprises an encapsulated composition.

8. A method according to claim 6 or 7 in which an encapsulated isoxazole is used, comprising an isoxazole derivative encapsulated with a solid film comprising an inert material itself having no substantial herbicidal activity.

9. A method according to claim 8 in which granules of an isoxazole derivate from 0.1 to 50 μm in size are used.

10. A method according to any one of the preceding claims in which the isoxazole derivative is of general formula I as hereinbefore defined.

11. A delayed release composition comprising an isoxazole herbicide.

5 12. A method according to claim 1 substantially as hereinbefore described in Example 1.

10 13. A delayed release composition according to claim 9 substantially as hereinbefore described.

ABSTRACT

104
109

17

- 5 The invention provides a method for controlling the growth of weeds at a locus in a solid growing medium which comprises treating the locus with a composition comprising an isoxazole herbicide to provide progressive or sequential delivery or release of isoxazole herbicide into the surface layer of the medium.

105 ~~110~~

~~109~~

La Oficina de Patentes

La Oficina de Patentes

Concept House

Cardiff Road

Newport

South Wales

NP10 8QQ

Yo, el suscrito, siendo un oficial debidamente autorizado de acuerdo con la Sección 74(1) y (4) de la Ley de Deregulación y Contratación de 1994, para firmar y emitir certificados en nombre del Contralor-General, por la presente certifico que lo anexado es una copia fiel de los documentos como fueron originalmente radicados en conexión con la solicitud de Patente identificada allí dentro.

De acuerdo con las Reglas de Patentes (Re-inscripción de Compañías) de 1982, sí una compañía nombrada en este certificado y cualquier documento acompañante se ha re-inscrito bajo la Ley de Compañías de 1980 con el mismo nombre con el cual fue inscrito inmediatamente antes de la re-inscripción, salvo la substitución como, o la inclusión como,

106
#106
7/7

la última parte del nombre de las palabras "compañía pública limitada" o sus equivalentes en Galés, referencias al nombre de la compañía en este certificado y cualquier documento acompañante serán tratados como referencias al nombre con el cual está re-inscrito.

De acuerdo con las reglas, las palabras "compañía pública limitada" pueden ser reemplazadas por p.l.c., plc, P.L.C. ó PLC.

Una re-inscripción bajo la Ley de Compañías no constituye una nueva entidad legal sino apenas sujeta a la compañía a ciertas reglas de ley corporativa adicionales.

Sello ilegible.

Firmado: ilegible

Fecha: 25 de enero de 2000

Una Agencia Ejecutiva del Departamento de Comercio e Industria

107
H2
17

La Oficina de Patentes

La oficina de Patentes

Cardiff Road

Newport

Gwent NP9 1RH

Petición para el otorgamiento de una Patente

Sello Oficina de Patentes con fecha 1 de Febrero de 1999

(Texto incompleto)

1. Su referencia N. 76032

2. Número de solicitud de patente

(La oficina de Patentes llenará esta parte)

9902232.9

1 DE FEBRERO DE 1999

3. Nombre Completo, dirección y código postal del o de cada
solicitante (subraye todos los apellidos)

RHONE-POULENC AGRICULTURE LTD.

Fyfield Road

Ongar

Essex, CM5 OHW

Número ADP (si es conocido)

Si el solicitante es una compañía, dar el país/estado de su constitución.

REINO UNIDO

5683206001

4. Título del invento

CONTROL DE MALEZAS

5. Nombre de su agente (si tiene uno)

"Dirección para servicio" en el Reino Unido donde toda la correspondencia debe ser enviada (incluyendo el código postal) Nombre del Agente:

J A KEMP & CO

Dirección del Agente:

14 SOUTH SQUARE

GRAY'S INN

LONDON WC1R 5LX

Número ADP de Patente (si lo conoce): 26001

108
#3

72

189
HA

X

6. Si está declarando prioridad de una o más solicitudes de patentes previas, dar el país y fecha de radicación del o de cada una de estas solicitudes previas y (si lo conoce) el o cada número de solicitud

País Número de solicitud de prioridad Fecha de radicación

(si lo conoce)

(día/mes/año)

7. Si esta solicitud esta dividida o de otra manera derivada de una solicitud previa del Reino Unido, dar el número y la fecha de radicación de la solicitud previa

Número de Solicitud previa

Fecha de radicación

(día/mes/año)

8. ¿Se requiere para soportar esta petición una declaración de inventoría y de derecho para el otorgamiento de una patente?

(Conteste "Si" si:

SI

a) cualquier solicitante nombrado en la parte 3 no es un inventor, o

b) hay un inventor que no es nombrado como solicitante, o

110
H5
7

c) cualquier solicitante nombrado es una compañía. Ver la nota (d)).

9. Indicar el número de hojas para cada uno de los siguientes tipos de documentos contenidos en esta solicitud.

No contar las copias del mismo documento

Hojas de continuación de este Formulario

Descripción 18

Reivindicaciones 2

Resumen 1

Dibujo(s) -

10. Si también está radicando cualquiera de lo siguiente, declarar cuantos de cada uno.

Documentos de prioridad

Traducciones de Documentos de Prioridad

Declaración de inventoría y Derecho de Otorgamiento de una patente (formulario de Patentes 7/77) 3

Petición para examinación preliminar y búsqueda

(Formulario de Patentes 9/77) 1

111
H6

Petición para Examinación Substantiva (Formulario de
Patentes 10/77)

Cualquier otro documento
(por favor especifique)

X

11. Yo/Nosotros pedimos el otorgamiento de una patente
con base en esta solicitud.

Firma

Fecha

ilegible

1 Febrero 1999

12. Nombre y número telefónico diurno de la persona a quien
contactar en el Reino Unido

S. BENTHAM

0171 405 3292

Advertencia

Después que una solicitud para unas Patentes haya sido
radicada, el Controlador de la Oficina de Patentes
considerará si la publicación o comunicación del invento
deberá ser prohibida o restringida bajo la Sección 22 de la
Ley de Patentes de 1977. Será informado si es necesario
prohibir o restringir su invento de esta manera. Además si

112
#7
X

vive en el Reino Unido la Sección 23 de la Ley de Patentes de 1977 no le permite solicitar para una patente en el extranjero sin tener previamente permiso por escrito de la Oficina de Patentes a menos que una solicitud haya sido radicada por lo menos seis semanas antes en el Reino Unido para una patente para el mismo invento y ningún dictamen prohibiendo la publicación o comunicación haya sido hecho, o cualquier dicho dictamen haya sido revocado.

Notas

- a) si necesita ayuda en diligenciar este formulario o si tiene cualquier pregunta, favor contactar la Oficina de Patentes al 0645 500505.
- b) Escriba sus respuestas en mayúsculas usando tinta negra o puede pasarlas a máquina.
- c) Si no hay suficiente espacio para todos los detalles relevantes en cualquier parte de este formulario, favor continúe en una hoja separada y escriba "ver hoja de continuación" en las partes relevantes. Cualquier hoja de continuación deberá estar anexada a este formulario.
- d) Si ha contestado "Si", el formulario de Patentes 7/77 deberá ser radicado.
- e) Un vez diligenciado el formulario, deberá recordar firmarlo y fecharlo.

f) Para detalles sobre la tarifa y modos de pago, favor
contactar la Oficina de Patentes.

Formulario de Patentes 1/77

113
~~118~~
X
✓

114
H9

REIVINDICACIONES

- 1.- Un método para reprimir el crecimiento de malezas en un lugar en un medio de crecimiento sólido, que
5 comprende tratar el lugar con una composición que contiene un herbicida de isoxazol para proporcionar un suministro o liberación progresivo o secuencial del herbicida de isoxazol a la capa superficial del medio.
- 2.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
10 en el que el medio de crecimiento es suelo.
- 3.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1 ó 2, en el que el lugar es un lugar en el que crecen cosechas.
- 4.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
15 2 ó 3, en el que la capa superficial del medio abarca desde la superficie hasta una profundidad de 10 cm.
- 5.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones anteriores, que comprende aplicar al lugar dosis bajas secuenciales del herbicida de isoxazol.
- 20 6.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, que comprende tratar el lugar con una composición de liberación retardada que contiene el herbicida de isoxazol.
- 7.- Un método de acuerdo con la reivindicación 6,
25 en el que la composición de liberación retardada contiene una composición encapsulada.
- 8.- Un método de acuerdo con la reivindicación 6 ó 7, en el que se utiliza un isoxazol encapsulado, que contiene un derivado de isoxazol encapsulado dentro de una
30 película sólida que está constituida por un material inerte que por sí mismo no tiene actividad herbicida sustancial.
- 9.- Un método de acuerdo con la reivindicación 8, en el que se utilizan gránulos de un derivado de isoxazol con un tamaño desde 0,1 hasta 50 μ m.
- 35 10.- Un método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones anteriores, en el que el derivado de isoxazol tiene la fórmula general I que se ha definido

X

115
~~120~~

anteriormente.

11.- Una composición de liberación retardada que contiene un herbicida de isoxazol.

12.- Un método de acuerdo con la reivindicación 1,
5 sustancialmente como se ha descrito antes en el Ejemplo 1.

67

13.- Una composición de liberación retardada de acuerdo con la reivindicación 9, sustancialmente como se ha descrito antes.



The
**Patent
Office**



INVESTOR IN PEOPLE

116
+21

80

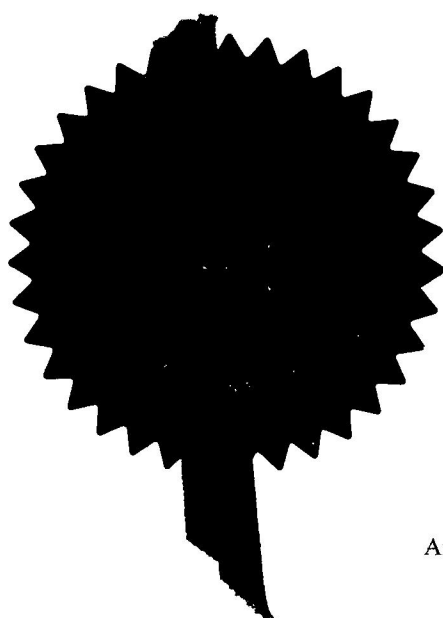
The Patent Office
Concept House
Cardiff Road
Newport
South Wales
NP10 8QQ

I, the undersigned, being an officer duly authorised in accordance with Section 74(1) and (4) of the Deregulation & Contracting Out Act 1994, to sign and issue certificates on behalf of the Comptroller-General, hereby certify that annexed hereto is a true copy of the documents as originally filed in connection with the patent application identified therein.

In accordance with the Patents (Companies Re-registration) Rules 1982, if a company named in this certificate and any accompanying documents has re-registered under the Companies Act 1980 with the same name as that with which it was registered immediately before re-registration save for the substitution as, or inclusion as, the last part of the name of the words "public limited company" or their equivalents in Welsh, references to the name of the company in this certificate and any accompanying documents shall be treated as references to the name with which it is so re-registered.

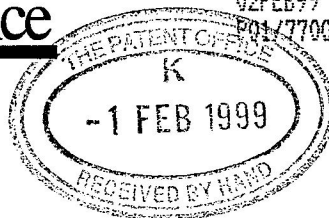
In accordance with the rules, the words "public limited company" may be replaced by p.l.c., plc, P.L.C. or PLC.

Re-registration under the Companies Act does not constitute a new legal entity but merely subjects the company to certain additional company law rules.



Signed *Andrew Gersey*
Dated 25 January 2000

The
Patent
Office



02FEB99 E422209-1 D00192
001/7700 0.00 - 9902232.9

117
122

18

Request for grant of a patent

(See the notes on the back of this form. You can also get an explanatory leaflet from the Patent Office to help you fill in this form))

The Patent Office

Cardiff Road
Newport
Gwent NP9 1RH

1. Your reference N.76032

2. Patent application number

(The Patent Office will fill in this part)

01 FEB 1999

9902232.9 ✓

3. Full name, address and postcode of the or of each applicant (underline all surnames)

Rhone-Poulenc Agriculture Limited,
Fyfield Road,
Ongar,
Essex. CM5 0HW.

Patents ADP number (if you know it)

5683266001

If the applicant is a corporate body, give the country/state of its incorporation

United Kingdom

4. Title of the invention

WEED CONTROL

5. Name of your agent (if you have one)

J A KEMP & CO

"Address for service" in the United Kingdom to which all correspondence should be sent (including the postcode)

14 SOUTH SQUARE
GRAY'S INN
LONDON WC1R 5LX

Patents ADP number (if you know it)

260001

6. If you are declaring priority from one or more earlier patent applications, give the country and the date of filing of the or of each of these earlier applications and (if you know it) the or each application number

Country

Priority application number
(if you know it)

Date of filing
(day / month / year)

7. If this application is divided or otherwise derived from an earlier UK application, give the number and the filing date of the earlier application

Number of earlier application

Date of filing
(day / month / year)

8. Is a statement of inventorship and of right to grant of a patent required in support of this request? (Answer "Yes" if:

Yes

- a) any applicant named in part 3 is not an inventor, or
 - b) there is an inventor who is not named as an applicant, or
 - c) any named applicant is a corporate body:
- See note (d))

Patents Form 1/77

- 9 Enter the number of sheets for any of the following items you are filing with this form. Do not count copies of the same document

Continuation sheets of this form

Description 18 / *a*

Claim(s) 2 /

Abstract 1 /

Drawing(s)

10. If you are also filing any of the following, state how many against each item.

Priority documents

Translations of priority documents

Statement of inventorship and right to grant of a patent (Patents Form 7/77) 3 / *a*

Request for preliminary examination and search (Patents Form 9/77) 1 /

Request for substantive examination (Patents Form 10/77)

Any other documents
(please specify)

11. I/We request the grant of a patent on the basis of this application

Signature *S. Benthams* Date 1 February 1999

12. Name and daytime telephone number of person to contact in the United Kingdom S. BENTHAM
0171 405 3292

Warning

After an application for a patent has been filed, the Comptroller of the Patent Office will consider whether publication or communication of the invention should be prohibited or restricted under Section 22 of the Patents Act 1977. You will be informed if it is necessary to prohibit or restrict your invention in this way. Furthermore, if you live in the United Kingdom, Section 23 of the Patents Act 1977 stops you from applying for a patent abroad without first getting written permission from the Patent Office unless an application has been filed at least 6 weeks beforehand in the United Kingdom for a patent for the same invention and either no direction prohibiting publication or communication has been given, or any such direction has been revoked.

Notes

a) If you need help to fill in this form or you have any questions, please contact the Patent Office on 0645 500505.

b) Write your answers in capital letters using black ink or you may type them.

c) If there is not enough space for all the relevant details on any part of this form, please continue of a separate sheet of paper and write "see continuation sheet" in the relevant part(s). Any continuation sheet should be attached to this form.

d) If you have answered "Yes" Patents Form 7/77 will need to be filed.

e) Once you have filled in the form you must remember to sign and date it.

f) For details of the fee and ways to pay please contact the Patent Office.

WEED CONTROL

This invention relates to a method for controlling the growth of weeds by the progressive application to, or release into, the surface layer of a growing medium, of
5 a benzoylisoxazole herbicide, and to compositions for use in the method.

Background of the invention.

The use of isoxazoles for controlling weeds has been described in European
10 Patent Publication Nos. 0418175, 0487357, 0527036 and 0560482. The herbicidal activity of diketonitriles (DKN) which may be formed from the isoxazoles has also been described in European Patent Publication Nos. 0213892, 0496630 and 0496631, and International Publication No. WO 95/25099.

Following the application of isoxazole herbicides they may decompose to
15 diones, in particular diketonitrile (DKN) compounds. This conversion is generally irreversible. The DKN compounds are generally also herbicides. They are generally more water soluble than the isoxazole herbicides and may be subject to movement in the soil profile following rainfall.

It has been found that by modifying the way isoxazole herbicides are applied
20 the ratio of isoxazole to DKN in a growing medium such as soil can be altered in favour of the isoxazole, increasing the ratio of isoxazole to DKN.

It has been found that by maintaining the ratio of isoxazole to DKN, in favour of the isoxazole, in the surface layer of the soil, for example, during the period from application of isoxazole to establishment of a crop, improved control of weeds may
25 be obtained. Furthermore, crop selectivity may be improved and the risk of run off and leaching may be reduced.

An object of the present invention is to provide a method of application and/or a composition which reduces the net movement of isoxazole and DKN through the soil and retains the compounds in the soil surrounding, preferably
30 immediately surrounding, the point of application of the isoxazole.

Another object of the present invention is to provide a method and/or

composition which permits the delivery of lower individual dose rates of isoxazole herbicides while maintaining (and sometimes improving) herbicidal efficacy.

A further object of the present invention is to provide a composition, comprising an isoxazole, with improved activity on weed species and/or improved crop selectivity.

The objects of the invention can be achieved on whole or in part by the present invention.

It is known that isoxazoles exert their herbicidal activity in plants by conversion to DKN compounds. It might be expected, therefore, that application of isoxazole in such a way as to accelerate or favour its conversion to DKN would be advantageous. The Applicants have found that the opposite is true.

The present invention provides a method for controlling the growth of weeds at a locus in a solid growing medium which comprises treating the locus with a composition comprising an isoxazole herbicide to provide progressive or sequential delivery or release of isoxazole herbicide into the surface layer of the medium.

The growing medium includes composts but is preferably the soil.

The locus is preferably a crop-growing locus, for example, where a crop is sown and cultivated.

The surface layer is generally from the surface to a depth of 10 cm, preferably to a depth of 5 cm, more preferably to a depth of 3 cm..

According to a feature of the invention the method comprises applying to the locus, for example where a crop is sown and cultivated, sequential low doses of isoxazole herbicides. For example the normal dosage may be divided into two or more, for example 2 to 5, generally equal portions and applied at time-spaced intervals, each application after the first being made, for example 1 to 4 days, preferably 1 day, after the preceding one.

According to a further feature of the present invention the method comprises treating the locus with a delayed release composition comprising the isoxazole herbicide.

The delayed release composition, which constitutes a feature of the invention, may comprise, for example, an encapsulated composition comprising the isoxazole

119
+24

itself or a composition containing it. The delayed release compositions may be prepared by known methods.

The encapsulated product may have a solid outer wall; said wall comprising an inert material, generally having no substantial herbicidal activity.

5 The encapsulated isoxazole according to the present invention may comprise granules comprising an isoxazole derivative of formula (I), each of these granules being encapsulated with a solid film comprising an inert material itself having no substantial herbicidal activity.

10 Preferably the inert material is a water-soluble polymeric material, modified by treatment to render it substantially water insoluble.

Soluble materials which may be used include:

a copolyester; polyvinylalcohol; polyacrylate; polycarboxylate; gelatine; polysulfonate, for example the polystyryl polysulfones, a protein, a polyethylene oxide; a modified or unmodified starch; a cellulose for example carboxymethyl
15 cellulose; a dextran, maltose, an alkyl-, hydroxyalkyl-, carboxyalkyl-cellulose; a polyvinylether; poly(2,4-diethyl-6-triazolylethylene); poly(vinylsulfonic acid), polyanhydride, a low molecular weight urea-formaldehyde resin, a low molecular weight melamine-formaldehyde resin, a polymethacrylate for example
20 poly(alkylcyanoacrylate), poly(isobutylcyanoacrylate), poly(2-hydroxyethylmethacrylate), polyacrylic acid or a homologue thereof; low molar mass amphiphiles; low molar mass polymeric amphiphiles; polylactic acid glutamic acid; dendrimers (hyperbranched polymers); phospholipids for example distearoylphosphatidyl choline, dioleoylphosphatidylethanolamine, dipalmitoylphosphatidylchlorine, dipalmitoylphosphatidylglycerol,
25 phosphatidylethanolamine, phosphatidylinositol; lipoprotein, semi-solid poly(ortho ester) polycarboxylates; hydrogels. The materials may be in the form of, for example, solid lipid nano/micro spheres; nanocapsules, niosomes; liposomes, polymeric micelles.

30 The size of the granules of the active material of an isoxazole derivative of formula (I) is generally from 0.1 to 50 μ m, preferably from 1 to 20 μ m.

The thickness of the coating of the encapsulating material is generally from

2

0.1 to 50 μ m., preferably from 1 to 20 μ m.

The granules of encapsulated 4-benzoylisoxazole derivative of formula (I) according to the present invention may be for example, in a powdered state or in a liquid or solid formulation, contained within a support (or a carrier for application).

5 Compositions of the present invention improve the release of a herbicide to the soil site to which it is applied and movement resulting from rain water or irrigation is reduced. A marked improvement in the downward transmigration of the active ingredient from the immediate application area (weed seed zone) through the soil profile is provided.

10 Compositions of the present invention provide a method for controlling the release of a herbicide in a range of soil types and edaphic conditions by modification of the ratios of isoxazole: carrier material.

 The use of compositions of the present invention permits more efficient use of herbicide which is retained in the area of soil application, for example the weed
15 seed zone; thus the amount of herbicide applied may be reduced. In addition, the herbicide is maintained in the area of the weed seed zone for a longer period of time than usual.

 Localisation of the herbicide in the weed seed zone improves selectivity on the crop species, for example maize.

20 Compositions of the present invention provide a method for reducing the release rate of herbicides, such as isoxazoles, in soil thereby slowing the overall rate of degradation. Encapsulation in a matrix carrier increases the stability of the herbicides as it is protected from the components which may promote degradation, such as moisture or microbial activity.

25 By the term "pre-emergence application" is meant an application to the soil in which the weed seeds or seedlings are present before emergence of the crop. One example of a pre-emergence application is known as "pre-plant incorporated" (PPI), where the herbicide is incorporated into the soil before planting the crop. Another is where the herbicide is applied to the soil surface after sowing the crop. By the term
30 "foliar activity" is meant herbicidal activity produced by application to the aerial or exposed portions of the weeds which have emerged above the surface of the soil.

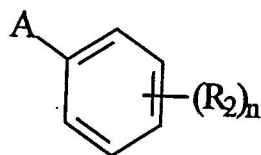
120
+25

1/8

In general, the application rate of 4-benzoylisoxazole herbicides of formula (I) in compositions of the present invention is from 0.005kg to 0.5kg herbicidally active compound, preferably from 0.015kg to 2kg herbicidally active compound, more preferably from 0.02kg to 0.12kg herbicidally active compound, even more preferably from 0.05 to 0.09kg herbicidally active compound per hectare. When sequential low doses of isoxazole herbicide are used, as hereinbefore described, the application rates given above may be divided.

The method of the invention is generally applied to a locus pre-emergence of the weeds and crop plant. Preferably the locus is first cultivated and/or treated to remove existing weeds. For example a burn down herbicide such as glyphosate may be used.

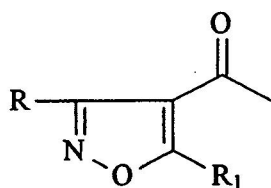
Representative herbicides whose mobility in soil is controlled by compositions of the present invention include 4-benzoylisoxazole derivatives of general formula (I):



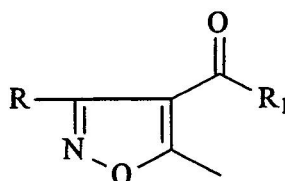
(I)

wherein

A represents a group (A-1) or (A-2):



(A-1)



(A-2)

wherein:

R represents a hydrogen or halogen atom; a straight- or branched-chain alkyl or alkenyl or alkynyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; a cycloalkyl group containing from 3 to 6 carbon atoms optionally substituted by one or more groups R^5 , one or more halogen atoms or a group $-CO_2R^3$; or a group selected from $-CO_2R^3$, $-COR^5$, cyano, nitro, $-CONR^3R^4$ and $-S(O)_kR^{13}$,

R_1 represents a straight- or branched-chain alkyl, alkenyl or alkynyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; or a cycloalkyl group containing from three to six carbon atoms optionally substituted by one or more groups R^5 or one or more halogen atoms;

R^2 represents a halogen atom; a straight- or branched-chain alkyl, alkenyl or alkynyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is substituted by one or more groups $-OR^5$; or a group selected from nitro, cyano, $-CO_2R^5$, $-S(O)_pR^6$, $-O(CH_2)_mOR^5$, $-COR^5$, $-NR^{11}R^{12}$, $-N(R^8)SO_2R^7$, $-N(R^8)CO_2R^7$, $-OR^5$, $-OSO_2R^7$, $-SO_2NR^3R^4$, $-CONR^3R^4$, $-CSNR^3R^4$, $-(CR^9R^{10})_t-S(O)_qR^7$ and $-SF_5$;

or two groups R^2 , on adjacent carbon atoms of the phenyl ring may, together with the carbon atoms to which they are attached, form a 5 to 7 membered saturated or unsaturated heterocyclic ring containing up to three ring heteroatoms selected from nitrogen, oxygen and sulfur, which ring is optionally substituted by one or more groups selected from halogen, nitro, $-S(O)_pR^{13}$, C_{1-4} alkyl, C_{1-4} alkoxy, C_{1-4} haloalkyl, C_{1-4} haloalkoxy, $=O$ (or a 5- or 6-membered cyclic acetal thereof) and $=NO-R_3$, it being understood that a sulphur atom, where present in the ring, may be in the form of a group $-SO-$ or $-SO_2-$;

n represents an integer from one to five: when n is greater than one the groups R^2 may be the same or different;

R^3 and R^4 each independently represent a hydrogen atom, or a straight- or branched chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally

substituted by one or more halogen atoms;

R^5 represents a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; or a straight- or branched-chain alkenyl or alkynyl group containing from two to six (preferably from three to six) carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms;

R^6 and R^7 , which may be the same or different, each represent R^5 , or phenyl optionally substituted by from one to five groups which may be the same or different selected from a halogen atom, a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; nitro, cyano, $-CO_2R^5$, $-S(O)_pR^{13}$, $-NR^{11}R^{12}$, $-OR^5$ and $-CONR^3R^4$;

R^8 , R^9 , and R^{10} each represent a hydrogen atom or R^6 ;

R^{11} and R^{12} each represent hydrogen or R^5 ;

R^{13} represents a straight- or branched-chain alkyl group containing up to six carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms;

k, p and q independently represent the values zero, one or two;

m represents one, two or three;

t represents an integer from one to four; when t is greater than one, the groups R^9 and R^{10} may be the same or different;

or an agriculturally acceptable salt or metal complex thereof.

In certain cases, the groups R to R^{13} may give rise to optical and/or stereoisomerism. All such forms are embraced by the present invention.

By the term "agriculturally acceptable salts" is meant salts the cations or anions of which are known and accepted in the art for the formation of salts for agricultural or horticultural use. Preferably the salts are water soluble. Suitable acid addition salts, formed by compounds of formula (I) containing an amino group, include salts with inorganic acids, for example, hydrochlorides, sulphates, phosphates and nitrates, and salts with organic acids, for example, acetic acid. Suitable salts formed by compounds of formula (I) which are acidic, i.e. compounds containing one or more carboxy groups, with bases include alkali metal (e.g. sodium and potassium) salts, alkaline earth metal (e.g. calcium and magnesium) salts,

ammonium and amine (e.g. diethanolamine, triethanolamine, octylamine, dioctylmethylamine and morpholine) salts.

In the description unless otherwise specified 'halogen' means a fluorine, chlorine, bromine or iodine atom.

5 Compounds of formula (I) wherein A represents (A-1) are preferred.

The phenyl ring of the compounds of formula (I) is preferably 2,4-disubstituted 2,3-disubstituted or 2,3,4-trisubstituted.

10 Compounds of formula (I) in which R represents hydrogen or $-\text{CO}_2\text{R}^3$ wherein R^3 represents a straight- or branched chain alkyl group containing up to three carbon atoms; and R^1 represents cyclopropyl are preferred.

15 Compounds of formula (I) in which R^2 represents a halogen atom; a straight- or branched-chain alkyl group containing up to three carbon atoms which is optionally substituted by one or more halogen atoms; $-\text{S}(\text{O})_p\text{R}^6$; $-\text{OR}^5$ or $-\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_q\text{R}^7$; wherein R^5 , R^6 and R^7 each represent the same or different optionally halogenated methyl or ethyl groups are preferred.

A preferred class of compounds of formula (I) wherein A represents (A-1) are those wherein:

R is hydrogen or $-\text{CO}_2\text{Et}$;

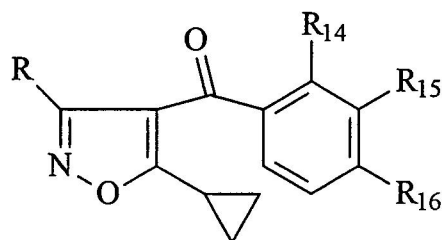
R^1 is cyclopropyl;

20 and two groups R^2 , on adjacent carbon atoms of the phenyl ring may, together with the carbon atoms to which they are attached, combine to form a 5 or 6 membered saturated or unsaturated heterocyclic ring which is fused to the 2,3 or 3,4 positions of the benzoyl ring; wherein the heterocyclic ring contains two hetero atoms selected from sulphur and oxygen which are located at the 2 and 3, or 3 and 4 positions of the benzoyl ring; and in which the 4-substituent of the benzoyl ring is halogen or $\text{S}(\text{O})_p\text{Me}$, or the 2-substituent of the benzoyl ring is methyl, $\text{S}(\text{O})_p\text{Me}$ or $-\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_q\text{Me}$ respectively; and optionally the heterocyclic ring may be substituted by one or more halogen atoms.

30 A more preferred class of compounds of formula (I) are those wherein A represents (A-1); R is hydrogen or $-\text{CO}_2\text{Et}$; R^1 is cyclopropyl; R^2 is a halogen atom or a group selected from $-\text{CF}_3$, Me, Et, $-\text{S}(\text{O})_p\text{Me}$, $-\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_q\text{Me}$ and optionally

halogenated methoxy or ethoxy; and n is two or three.

A yet more preferred class of compounds of formula (I) are those having the formula (Ia):



(Ia)

wherein:

R is hydrogen or $\text{-CO}_2\text{Et}$;

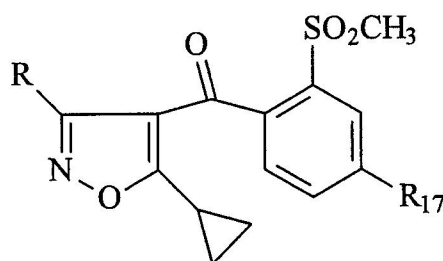
R^{14} is selected from $\text{-S(O)}_p\text{Me}$, Me, Et, a chlorine, bromine or fluorine atom, methoxy, ethoxy and $\text{-CH}_2\text{S(O)}_q\text{Me}$;

R^{15} is selected from a hydrogen atom, a chlorine, bromine or fluorine atom, methoxy, ethoxy and $\text{-S(O)}_p\text{Me}$;

R^{16} is selected from a hydrogen atom, a chlorine, bromine or fluorine atom, methoxy and CF_3 ;

and wherein at least one of R^{15} and R^{16} is other than hydrogen.

An especially preferred class of compounds of formula (I) have the formula (Ib):



(Ib)

wherein R^{17} is chlorine, bromine or trifluoromethyl; and
R is hydrogen or CO_2Et .

The following compounds of formula (I) are among the most preferred for
use in the present invention:

- 5-cyclopropyl-4-[2-chloro-3-ethoxy-4-(ethylsulphonyl)benzoyl]isoxazole;
- 4-(4-chloro-2-methylsulphonylbenzoyl)-5-cyclopropylisoxazole;
- 5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-trifluoromethylbenzoyl)isoxazole;
- 4-(4-bromo-2-methylsulphonylbenzoyl)-5-cyclopropylisoxazole;
- 5-cyclopropyl-4-[4-fluoro-3-methoxy-2-(methylsulphonyl)benzoyl]isoxazole;
- 4-(4-bromo-2-methylsulphonylmethylbenzoyl)-5-cyclopropylisoxazole;
- ethyl 5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-trifluoromethylbenzoyl)isoxazole-3-carboxylate;
- 5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-trifluoromethylbenzoyl)-3-methylthioisoxazole.

The most preferred compound is 5-cyclopropyl-4-(2-methylsulphonyl-4-trifluoromethylbenzoyl)isoxazole (isoxaflutole).

Procedures for preparing isoxazoles of formula (I) are as described in
European Patent Publication Nos. 0418175, 0487357, 0527036 and 0560482.

The method of the invention can be used on genetically modified crops.

By genetically modified crop is understood those crops which have been

123
T28

made tolerant towards herbicides by conventual sowing and cultivation methods or genetic engineering methods.

27

According to a further feature of the present invention, there are provided compositions suitable for herbicidal use in the method of the invention comprising one or more of the 4-benzoylisoxazoles of formula (I) or an agriculturally acceptable salt or metal complex thereof, in association with, and preferably homogeneously dispersed in, one or more compatible agriculturally-acceptable diluents or carrier and/or surface active agents [i.e. diluents or carriers and/or surface active agents of the type generally accepted in the art as being suitable for use on herbicidal compositions and which are compatible with compounds of formula (I)]. The term "homogeneously dispersed" is used to include compositions in which the compounds of formula (I) are dissolved in other components. The term "herbicidal compositions" is used in a broad sense to include not only compositions which are ready for use as herbicides but also concentrates which must be diluted before use. Preferably, the compositions contain from 0.05 to 90% by weight of one or more compounds of formula (I).

The herbicidal compositions may contain both a diluent or carrier and surface-active (e.g. wetting, dispersing, or emulsifying) agent. Surface-active agents which may be present in herbicidal compositions of the present invention may be of the ionic or non-ionic types, for example sulphuricinoleates, quaternary ammonium derivatives, products based on condensates of ethylene oxide with alkyl and polyaryl phenols, e.g. nonyl- or octyl-phenols, tristeryl phenols, condensates of ethylene oxide with alcohols, or carboxylic acid esters of anyhydrosorbitols which have been rendered soluble by etherification of the free hydroxy groups by condensation with ethylene oxide, alkali and alkaline earth metal salts of sulphuric acid esters and sulphonic acids such as dinonyl- and dioctyl- sodium sulphonosuccinates and alkali and alkaline earth metal salts of high molecular weight sulphonic acid derivatives such as sodium and calcium lignosulphonates and sodium and calcium alkylbenzene sulphonates.

Suitably, the herbicidal compositions according to the present invention may comprise up to 10% by weight, e.g. from 0.05% to 10% by weight, of surface-active

agent but, if desired, herbicidal compositions according to the present invention may comprise higher portions of surface-active agent, for example up to 15% by weight in liquid emulsifiable suspension concentrates and up to 25% by weight in liquid water soluble concentrates.

5 Examples of suitable solid diluents or carriers are aluminium silicate, microfine silicon dioxide, talc, chalk, calcined magnesia, kieselguhr, tricalcium phosphate, powdered cork, adsorbent carbon black and clays such as kaolin, attapulgite, diatomaceous earth, mica, alumina oxide, titanium oxide and bentonite. The solid compositions (which may take the form of dusts, granules or wettable
10 powders) are preferably prepared by grinding the compounds of formula (I) with solid diluents or by impregnating the solid diluents or carriers with solutions of the compounds of formula (I) in volatile solvents, evaporating the solvents and if necessary, grinding the products so as to obtain powders. Granular formulations may be prepared by absorbing the compounds of formula (I) dissolved in suitable
15 solvents, (which may, if desired, be volatile) onto the solid diluents or carriers in granular form and, if desired, evaporating the solvents, or by granulating compositions in powder form obtained as described above. Solid herbicidal compositions, particularly wettable powders and granules, may contain wetting or dispersing agents (for example of the types described above), which may also, when
20 solid, serve as diluents or carriers.

 Liquid compositions according to the invention may take the form of aqueous, organic or aqueous-organic solutions, suspensions and emulsions which may incorporate a surface-active agent. Suitable liquid diluents for incorporation in the liquid compositions include water, glycols, glycol ethers, tetrahydrofurfuryl
25 alcohol, acetophenone, cyclohexanone, isophorone, alkyl pyrrolidones, butyrolactone, chlorinated toluene, xylene, mineral, animal and vegetable oils, esterified vegetable oils and light aromatic and naphthenic fractions of petroleum (and mixtures of these diluents). Surface-active agents, which may be present in the liquid compositions, may be ionic or non-ionic (for example of the types described
30 above) and may, when liquid, also serve as diluents or carriers.

 Powders, dispersible granules and liquid compositions in the form of

124
f29

concentrates may be diluted with water or other suitable diluents, for example mineral or vegetable oils, particularly in the case of liquid concentrates in which the diluent or carrier is an oil, to give compositions ready for use.

88

5 When desired, liquid compositions of the compounds of formula (I) may be used in the form of self-emulsifying concentrates containing the active substances dissolved in the emulsifying agents or in solvents containing emulsifying agents compatible with the active substances, the simple addition of such concentrates to water producing compositions ready for use.

10 Liquid concentrates in which the diluent or carrier is an oil may be used without further dilution using the electrostatic spray technique.

Herbicidal compositions according to the present invention may also contain, if desired, conventional adjuvants such as adhesives, protective colloids, thickeners, penetrating agents, spreading agents, stabilisers, buffers, sequestering agents, anti-caking agents, colouring agents and corrosion inhibitors. These adjuvants may also
15 serve as carriers or diluents.

Unless otherwise specified, the following percentages are by weight. Preferred herbicidal compositions according to the present invention are encapsulations containing water dispersible granules which comprise from 1 to 90%, e.g. 25 to 75% of one or more compounds of formula (I), from 1 to 15%, e.g. 2 to
20 10%, of surface-active agent and from 5 to 95%, e.g. 20 to 60%, of solid diluent, e.g. clay, granulated with the addition of water to form a paste and then dried;

aqueous suspension concentrates which comprise from 5 to 70% of one or more compounds of formula (I), from 2 to 10% of surface-active agent, from 0.1 to 5% of thickener and from 15 to 87.9% of water;

25 wettable powders which comprise from 5 to 90% of one or more compounds of formula (I), from 2 to 10% of surface-active agent and from 8 to 88% of solid diluent or carrier;

water soluble or water dispersible powders which comprise from 5 to 90% of one or more compounds of formula (I), from 2 to 40% of sodium carbonate and from
30 0 to 88% of solid diluent;

liquid water soluble concentrates which comprise from 5 to 50%, e.g. 10 to

30% of one or more compounds of formula (I), from 0 to 25% of surface-active agent and from 10 to 90%, e.g. 45 to 85%, of water miscible solvent, e.g. triethylene glycol, or a mixture of water-miscible solvent and water;

liquid emulsifiable suspension concentrates which comprise from 5 to 70% of one or more compounds of formula (I), from 5 to 15% of surface-active agent, from 0.1 to 5% of thickener and from 10 to 84% of organic solvent, e.g. mineral oil; and

emulsifiable concentrates which comprise 0.05 to 90%, and preferably from 1 to 60% of one or more compounds of formula (I), from 0.01 to 10%, and preferably from 1 to 10%, of surface-active agent and from 9.99 to 99.94%, and preferably from 39 to 98.99%, of organic solvent.

The water dispersible granules comprising isoxazoles of formula (I) whose apparent density was 0.25-0.75, have a particle size of generally 10-2000 μ m, preferably 300-1500 μ m.

Herbicidal compositions according to the present invention may also comprise the compounds of formula (I) in association with, and preferably homogeneously dispersed in, one or more other pesticidally active compounds and, if desired, one or more compatible pesticidally acceptable diluents or carriers, surface-active agents and conventional adjuvants as hereinbefore described.

Examples of other pesticidally active compounds which may be included in, or used in conjunction with, the herbicidal compositions of the present invention include herbicides, for example to increase the range of weed species controlled for example acetochlor,

alachlor [2-chloro-2,6'-diethyl-N-(methoxy-methyl)-acetanilide], atrazine [2-chloro-4-ethylamino-6-isopropylamino-1,3,5-triazine], bromoxynil [3,5- dibromo-4-hydroxybenzonitrile], chlortoluron [N'-(3-chloro-4- methylphenyl)-N,N-dimethylurea], cyanazine [2-chloro-4-(1-cyano-1-methylethylamino)-6-ethylamino-1,3,5-triazine], 2,4-D [2,4-dichlorophenoxy-acetic acid], dicamba [3,6-dichloro-2-methoxybenzoic acid], difenzoquat [1,2-diethyl-3,5-diphenyl-pyrazolium salts], dimethanamid, flumpropmethyl [methyl N-2-(N-benzoyl-3-chloro-4- fluoroanilino)-propionate], flufenacet, fluometron [N'-(3-trifluoro-methylphenyl)-N,N-dimethylurea], glyphosate, glufosinate, isoproturon [N'-(4-isopropylphenyl)-N,N-

125
130

68

dimethylurea], metolachlor, metribuzin, insecticides, e.g. synthetic pyrethroid, e.g. permethrin and cypermethrin, fipronil and fungicides, e.g. carbamates, e.g. methyl N-(1-butyl-carbamoyl-benzimidazol-2-yl)carbamate, and triazoles e.g. 1-(4-chloro-phenoxy)-3,3-dimethyl-1-(1,2,4-triazol-1-yl)-butan-2-one.

5 Pesticidally active compounds and other biologically active materials which may be included in, or used in conjunction with, the herbicidal compositions of the present invention, for example those hereinbefore mentioned, and which are acids, may, if desired, be utilized in the form of conventional derivatives, for example alkali metal and amine salts and esters.

10 The following Examples illustrate herbicidal compositions which may be used in the present invention. The Active Ingredient listed in the following examples refers to a compound of general formula (I).

Example C1:

15 An emulsifiable concentrate is formed from:

Active ingredient	20% w/v
N-Methylpyrrolidinone (NMP)	25% w/v
Calcium dodecylbenzenesulphonate	70%
(CaDDBS)	4% w/v

20 Nonylphenol ethylene oxide propylene oxide

condensate (NPEOPO) 4% w/v

Aromatic solvent to 100 volumes

by stirring NMP, active ingredient (Compound 1), CaDDBS,

NPEOPO and Aromatic solvent until a clear solution is formed, and adjusting to

25 volume with Aromatic solvent.

Example C2

A wettable powder is formed from:

Active Ingredient	50% w/w
Sodium dodecylbenzenesulphonate	3% w/w
Sodium methyl oleoyl taurate	5% w/w

30

Sodium polycarboxylate	1% w/w
Sodium polycarboxylate	1% w/w
Microfine silicon dioxide	3% w/w
China clay	38% w/w

5 by blending the above ingredients together and grinding the mixture in an air jet mill.

Example C3

10 A suspension concentrate is formed from:

Active Ingredient	50% w/v
Antifreeze (Propylene glycol)	50% w/v
Ethoxylated tristyrylphenol phosphate	0.5% w/v
Nonyl phenol 9 mole ethoxylate	0.05% w/v
15 Sodium polycarboxylate	0.02% w/v
Attaclay	1.5% w/v
Antifoam	0.003% w/v
Water	to 100 volumes

by stirring the above ingredients together and milling in a bead mill.

20

Example C4

A water dispersible granule is formed from:

Active ingredient	50% w/w
25 Sodium dodecylbenzenesulphonate	3% w/w
Sodium methyl oleoyl taurate	5% w/w
Sodium polycarboxylate	1% w/w
Binder (Sodium lignosulphonate)	8% w/w
china clay	30% w/w
30 Microfine silicon dioxide	3% w/w

by blending the above ingredients together, grinding the mixture in an air jet

mill and granulating by addition of water in a suitable granulation plant (e.g. Fluid bed drier) and drying. Optionally the active ingredient may be ground either on its own or admixed with some or all of the other ingredients.

5 The following non-limiting Example illustrates the invention.

EXAMPLE 1

10 Glasshouse experiment showing unexpected enhancement of biological activity on weeds following application of compound (isoxaflutole).

7 x 7 cm² pots were filled with a non-sterile loam soil. Weed seeds (*Amaranthus retroflexus*, *Echinochloa crus galli* and *Setaria viridis*) were placed in three separate shallow wells with a maize seed (Pioneer 3394) inserted to a depth of 4 cm in between in each pot and the seeds lightly covered with soil.

15 A 1 ml solution of technical isoxaflutole, suitably diluted to give a dose equivalent to 6.25, 12.5, 25, 50 and 100 /ha in acetonitrile, was pipetted evenly on the soil surface of pots (replicated 10 times), according to the following regime.

On day 1, a set of 5 pots were treated with 5 dose rates (6.25-100 g/ha) and set aside in the glasshouse. At the same time, on day 1 a second set of 4 pots were
20 treated with 4 dose rates (treatment A : 6.25-50 g/ha) along with a third set of 3 pots treated with 3 dose rates (treatment B : 6.25-25 g/ha). On day 2 each of the second and third pots were treated again the pots receiving identical treatments A and B and the second set of pots set aside in the glasshouse. On day 3 each of the third set of pots were treated again, the pots receiving identical treatment B. On day 4 each of
25 the third set of pots were treated, the pots receiving identical treatment B and the pots set aside in the glasshouse.

The pots were maintained in a glasshouse, with overhead watering (3 x daily) and supplementary lighting. Visual assessment of % reduction, compared to untreated control plants was recorded 14 days after treatment. The results (average
30 of 10 replicates) are shown in Table 1, where the dosing regime refers to the number of daily applications followed by the dose of compound on each day.

TABLE 1

% Damage 14 DAT: Comparison of Single vs. Multiple Application

% Damage				
Dosing Regime	Amare	Echcg	Setvi	Maize (P3394)
2 x 6.25	34	18	18	0
1 x 12.5	0	0	0	0
4 x 6.25	80	97	75	0
2 x 12.5	46	68	42	0
1 x 25	8	32	10	0
4 x 12.5	79	100	91	6
2 x 25	42	70	44	0
1 x 50	50	84	24	2
4 x 25	90	100	77	6
2 x 50	78	96	66	10
1 x 100	79	94	59	8

As can be seen in Table 1, the efficacy of the herbicide on key weed species is improved by 2 applications separated by 1 day and surprisingly even more enhanced by 4 applications separated by 3 days, compared to a single application of the same total dose of compound. Repeat applications did not appear to have any impact on maize phytotoxicity.

127
+32

CLAIMS

6

1. A method for controlling the growth of weeds at a locus in a solid growing medium which comprises treating the locus with a composition comprising an isoxazole herbicide to provide progressive or sequential delivery or release of isoxazole herbicide into the surface layer of the medium.
2. A method according to claim 1 in which the growing medium is soil.
3. A method according to claim 1 or 2 in which the locus is a crop-growing locus.
4. A method according to claim 1, 2 or 3 in which the surface layer of the medium is from the surface to a depth of 10 cm.
5. A method according to any one of the preceding claims which comprises applying to the locus sequential low doses of isoxazole herbicide.
6. A method according to any one of claims 1 to 4 which comprises treating the locus with a delayed release composition comprising the isoxazole herbicide.
7. A method according to claim 6 in which the delayed release composition comprises an encapsulated composition.
8. A method according to claim 6 or 7 in which an encapsulated isoxazole is used, comprising an isoxazole derivative encapsulated with a solid film comprising an inert material itself having no substantial herbicidal activity.
9. A method according to claim 8 in which granules of an isoxazole derivate from 0.1 to 50 μm in size are used.

10. A method according to any one of the preceding claims in which the isoxazole derivative is of general formula I as hereinbefore defined.

11. A delayed release composition comprising an isoxazole herbicide.

5

12. A method according to claim 1 substantially as hereinbefore described in Example 1.

13. A delayed release composition according to claim 9 substantially as hereinbefore described.

10

128
+33

-21-

ABSTRACT

92

5 The invention provides a method for controlling the growth of weeds at a locus in a solid growing medium which comprises treating the locus with a composition comprising an isoxazole herbicide to provide progressive or sequential delivery or release of isoxazole herbicide into the surface layer of the medium.

2do. EXAMEN DE FORMA PATENTE DE INVENCION

Folio ~~134~~

Radicación No 00-5309

Concepto Técnico No 1466 Clasificación Internacional de Patentes: A 01N 43/80

Practicado el examen de acuerdo a lo establecido en el Art. 38 de la Decisión 486 se determinó que esta solicitud de **Patente de Invención**:

- | | | |
|--|--|--|
| SI ☒] | NO ☐] | Contiene un resumen de la invención (Art.26-e). |
| SI ☒] | NO ☐] | Contiene el título o nombre de la invención (Art.27-d). |
| SI ☒] | NO ☐] | Contiene la descripción de la invención (Art.26-b). |
| SI ☐] | NO ☐] | NO ES APLICABLE ☒ Contiene los dibujos necesarios para comprender la invención (Art.26-d) |
| SI ☒] | NO ☐] | Contiene una o más reivindicaciones. (Art.26-c). |
| SI ☐] | NO ☒] | NO ES APLICABLE ☐ Han sido desarrollados los productos y/o procedimientos a partir de recursos genéticos o de sus productos derivados de los que cualquiera de los Países Miembros es país de origen. (Art. 26- h). |
| SI ☐] | NO ☒] | NO ES APLICABLE ☐ Los productos y/o procedimientos han sido obtenidos o desarrollados a partir de los conocimientos tradicionales de las comunidades indígenas, afroamericanas, o locales de los países miembros, de acuerdo a lo establecido en la Decisión 391 y sus modificaciones y reglamentaciones vigentes.(Art.26-i). |
| SI ☐] | NO ☒] | La invención se refiere a un producto relativo a un material biológico. (Art.26-J). |
| SI ☒] | NO ☐] | NO ES APLICABLE ☐ La prioridad coincide con la materia reivindicada. |
| SI ☒] | NO ☐] | CUMPLE LOS REQUISITOS TÉCNICOS |

OBSERVACIONES Y OTROS:

Se acepta título nuevo en folio 43. Se acepta conversión de unidades de medida al Sistema Internacional. Se aceptan capítulos descriptivo y reivindicatorio nuevos, folios 54-83. Se acepta arte final, extracto, tarjetas de archivos temático y de propietarios. Se acepta documentación de poder, existencia y representación del solicitante, folios 51-53.

EXAMINADOR TÉCNICO
202043

Bogotá D. C., 2002-07-29

130

2002-12-27
416

Folio 135

2020
Bogotá D.C.

Doctor
CARLOS R. OLARTE
Apoderado

REFERENCIA:	Radicación No.	00-5909
	Trámite	002
	Evento	001
	Actuación	416
	Oficio No.	1466
	Folios	001

Teniendo en cuenta que la solicitud de privilegio de patente que se tramita bajo el expediente indicado en la referencia, reúne los requisitos de forma establecidos en los artículos 26 y 27 de la Decisión 486 de la Comisión de la Comunidad Andina, y en las demás disposiciones vigentes sobre la materia, se envía el extracto de la solicitud a la Oficina de Comunicaciones para efecto de su publicación en la Gaceta de Propiedad Industrial, conforme lo establece el artículo 40 de la misma Decisión.

Cúmplase
Dado en Bogotá D.C., a los **1** AGO. 2002

ALIX CARMENZA CÉSPEDES DE VERGEL
Jefe de la División de Nuevas Creaciones

Bogotá, DC, **24-01-05** El extracto de esta solicitud fue publicado en el número **523** de la Gaceta de Propiedad Industrial, de fecha **27-12-02**. El término hábil señalado por la ley expiró el **26-03-03** y SI NOX se presentaron oposiciones por parte de terceros.