



УКРАЇНА

(19) UA (11) 86074 (13) C2

(51) МПК (2009)

A01N 43/50 (2006.01)

A01N 33/08 (2006.01)

A01N 25/30

A01P 3/00

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ  
І НАУКИ УКРАЇНИДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ  
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ  
ВЛАСНОСТІОПИС  
ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

(54) ФУНГІЦИДНА КОМПОЗИЦІЯ, СПОСІБ ЇЇ ОДЕРЖАННЯ ТА СПОСІБ ЗАХИСТУ РОСЛИН, ПЛОДІВ ТА НАСІННЯ

1

2

(21) а200700795

(22) 22.08.2005

(24) 25.03.2009

(86) PCT/EP2005/054120, 22.08.2005

(31) 04104075.9

(32) 25.08.2004

(33) EP

(46) 25.03.2009, Бюл.№ 6, 2009 р.

(72) БЮЛЕМАНС ДЕНІ ЛЕОПОЛЬД ЖОЗЕФІН,  
ВЕ/ВЕ, БОССЕЛЕРС ЯН ПІТЕР ХЕНДРІК, ВЕ/ВЕ,  
ВАН ДЕР ФЛААС МАРКАРТУР ЖОЗЕФА, ВЕ/ВЕ

(73) ЯНССЕН ФАРМАЦЕВТИКА Н.В.

(56) EP 0729700, A, 04.09.1996

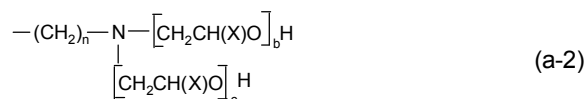
WO 03065807, A1, 14.08.2003

C.TOMLIN (ED.): "THE PESTICIDE MANUAL" 2000,  
THE BRITISH CROP PROTECTION COUNCIL,  
FARNHAM, GB, XP002315620, page 524-525(57) 1. Фунгіцидна композиція, що містить імазаліл  
та алкоксиловані аміни формули

де

R<sup>1</sup> являє собою C<sub>8-20</sub>алкіл;R<sup>2</sup> являє собою

Або



n являє собою ціле число від 1 до 4;

кожний з a, b і c незалежно являє собою ціле чис-  
ло від 1 до 20;кожен X незалежно вибраний із групи, що включає  
водень, метил, етил і феніл;за винятком сполуки, в якій R<sup>1</sup> являє собою C<sub>16</sub>-  
18алкіл, R<sup>2</sup> являє собою (a-1) та значення a і b до-рівнюють 1, у пропорціях, що забезпечують поси-  
лення фунгіцидної дії імазалілу.2. Композиція за п.1, де співвідношення імазалілу  
до алкоксилованих амінів формули (I) знаходиться  
в інтервалі від 5:1 до 1:50, переважно від 4:1 до  
1:4.3. Композиція за п.1, де R<sup>2</sup> являє собою радикал  
формули (a-1).4. Композиція за п.1, де R<sup>2</sup> являє собою радикал  
формули (a-2).5. Композиція за п.1, де алкоксилований амін фо-  
рмули (I) являє собою N,N',N'-трис-(2-гідроксіетил)-  
N-кокоалкіл-1,3-діамінопропан.6. Композиція за п.1, де алкоксилований амін фо-  
рмули (I) являє собою N,N',N'-трис-(2-гідроксіетил)-  
N-таловалкіл-1,3-діамінопропан.7. Композиція за п.1, що містить додатковий біо-  
цидний засіб.8. Композиція за п.7, де додатковий біоцидний  
засіб вибраний з боскаліду, фенгексаміду, піреме-  
танілу та тіабендазолу.9. Застосування алкоксилованих амінів формули  
(I) за п.1 для підвищення фунгіцидної активності  
композицій, що містять імазаліл, при якому спів-  
відношення алкоксилованих амінів формули (I) до  
імазалілу є таким, що досягається підвищена фун-  
гіцидна дія імазалілу.10. Застосування за п.9, де алкоксилований амін  
формули (I) являє собою N, N', N'-трис-(2-  
гідроксіетил)-N-кокоалкіл-1,3-діамінопропан.11. Спосіб одержання композиції за будь-яким з  
пп.1-8, який **відрізняється** тим, що імазаліл та  
алкоксиловані аміни формули (I) ретельно змішу-  
ють з носієм.12. Спосіб захисту рослин, плодів та насіння від  
грибних інфекцій або захворювань, який включає  
нанесення на рослини, плід або насіння композиції  
за будь-яким з пп.1-8.

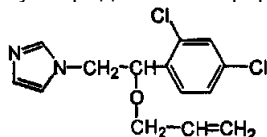
(13) C2

(11) 86074

(19) UA

Даний винахід відноситься до застосування алкоксильованих амінів для підвищення активності фунгіцидних препаратів, що містять фунгіцидні сполуки імазалілу. Винахід відноситься також до препаратів, що містять імазаліл та алкоксильовані аміни. Зазначені препарати прийнятні для захисту матеріалів, рослин, плодів або насіння від грибів.

Імазаліл являє собою широко відомий системний фунгіцид із захисною та лікувальною дією і застосовується для контролю широкого спектра грибів на плодах, рослинності та декоративних рослинах. Імазаліл застосовується також для протравлення насіння та для обробки citrusових, бананів та інших плодів після збору врожаю для контролю їх розкладання при збереженні. Імазаліл - це родова назва сполуки 1-[2-(2,4-дихлорфеніл)-2-(2-пропенілоксі)етил]-1H-імідазолу, що може бути представлено формулою



ІМАЗАЛІЛ

[У публікації JP-61-151102] описується застосування алкоксильованих діамінів для стабілізації препаратів, що включають в себе фунгіцидні похідні 1H-1,2,4-триазол-1-етанімідотіонової кислоти, наприклад, імібенконазол.

[У публікації EP-1273233-A1] описуються препарати, що містять бетоксазин та алкоксильовані аміни для захисту від ушкодження внаслідок впливу грибів на вироби,

що виготовленні з деревини, матеріали, що розкладається біологічним способом, та текстильні вироби. [У публікації WO-03/065807] описуються препарати, що містять фунгіцидні триазоли та алкоксильовані аміни для захисту живих і неживих речовин від грибів.

[У публікації Steurbaut W. et al. "Improvement of fungicide performance by the addition of surfactants to formulation. Part I: influence of physicochemical properties and spray performance", Med. Fac. Landbouww. Rijksuniv. Gent 54/2a, p.207-218 (1989)] описується вплив деяких поверхнево-активних речовин, таких як, наприклад, Atplus 284, що являє собою поліетоксильований таловалкіламін, на фізіологічні властивості деяких фунгіцидів, таких як імазаліл. Виходячи з вимірів сили поверхневого натягу та кута контакту, зроблено висновок, що Atplus 285 не є гарним змочувальним агентом та не підвищує коефіцієнт розподілу. [У публікації Steurbaut W. et al., "Part II: influence on biological and systemic activity", Med. Fac. Landbouww. Rijksuniv. Gent 54/2b, p.219-232 (1989)] описується вплив цих самих поверхнево-активних речовин на penetрацію в листя, фітотоксичність та фунгіцидну активність деяких фунгіцидів. Але дані про вплив Atplus 284 на фунгіцидну токсичність імазалілу не приводяться.

Несподівано було виявлено, що в деяких широких межах складу (тобто при деяких відповідних співвідношеннях або кількостях активних інгредіє-

нтів, легко визначених фахівцем в даній галузі техніки) при додаванні алкоксильованих амінів формули (I) фунгіцидна ефективність препаратів, що містять імазаліл, значно підвищується. Таким чином, фунгіцидні препарати згідно із даним винаходом містять імазаліл та алкоксильовані аміни формули (I) для підвищення ефективності або технологічних характеристик цих препаратів у захисті рослин, плодів або насіння, або в захисті матеріалів від росту грибів та ушкоджень.

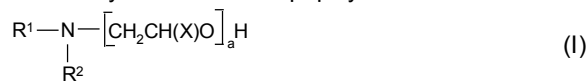
Фунгіцидна сполука імазалілу може бути представлена у формі вільної основи або у формі кислотно-адитивної солі, причому останню одержують взаємодією вільної основи з підходящою кислотою. Підходящі кислоти включають, наприклад, неорганічні кислоти, такі як галогенводневі кислоти, наприклад, фтороводнева, соляна, бромоводнева та йодоводнева кислоти, сірчана кислота, азотна кислота, фосфорна кислота, фосфінова кислота та т.п.; або органічні кислоти, такі як, наприклад, оцтова, пропанова, гідроксіоцтова, 2-гідроксипропанова, 2-оксопропанова, етандіонова, пропандіонова, бутандіонова, (г)-2-бутендіонова, (Е)-2-бутендіонова, 2-гідроксибутандіонова, 2,3-дигідроксибутандіонова, 2-гідрокси-1,2,3-пропантрикарбонова, метансульфонова, етансульфонова, бензолсульфонова, 4-метилбензолсульфонова, циклогексансульфамінова, 2-гідроксибензойна та т.п.кислоти.

Прикладами конкретних сольових форм імазалілу є сульфатна, фосфатна, ацетатна, нітратна або фосфітна солі.

Імазаліл містить один асиметричний атом вуглецю і, отже, може використовуватися в різних варіантах композицій у формі суміші обох енантіомерів, тобто у формі рацемічної суміші, або у формі, власне кажучи, чистого (R)- або (S)-енантіомеру.

Термін "імазаліл", як використовується в даному винаході, означає будь-яку сіль, енантіомер або суміш (R)- чи (S)-енантіомерів імазалілу.

Алкоксильовані аміни формули (I) відповідають наступній загальній формулі



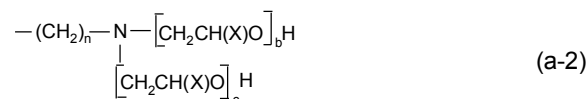
де

R<sup>1</sup> являє собою C<sub>8-20</sub>алкіл;

R<sup>2</sup> являє собою



або



n являє собою ціле число від 1 до 4;

кожний з a, b та c незалежно являє собою ціле число від 1 до 20;

кожен X незалежно вибраний із групи, що включає водень, метил, етил та феніл;

за винятком сполуки, в якій R<sup>1</sup> являє собою C<sub>16-18</sub>алкіл, R<sub>2</sub> являє собою (a-1) та a і b дорівнюють 1.

Інтерес представляє група сполук формули (I), де a, b і c незалежно являють собою цілі числа від 1 до 6.

Першу особливу групу алкоксильованих амінів формули (I) складають сполуки формули (I), де R<sup>2</sup> являє собою радикал (a-1).

Другу особливу групу алкоксильованих амінів формули (I) складають сполуки формули (I), де R являє собою радикал (a-2).

Особливий інтерес серед алкоксильованих амінів формули (I) представляють алкоксильовані

аміни формули (I), для яких застосовують одне або декілька з наступних обмежень:

a) n являє собою ціле число, рівне 2 або 3, переважно 3;

b) X являє собою водень;

c) R являє собою C<sub>10-20</sub>алкіл, переважно кокоалкіл або таловалкіл.

Комерційно доступні алкоксильовані аміни формули (I), де R<sup>2</sup> являє собою радикал (a-1), представлені в приведеній далі таблиці:

Торговельна назва	Хімічна назва
Ethomeen C/12	біс-(2-гідроксіетил) кокоалкіламін
Ethomeen C/15	етоксильований(5) кокоалкіламін
Ethomeen C/25	етоксильований(15) кокоалкіламін
Ethomeen O/12	біс-(2-гідроксіетил) олеїламін
Ethomeen O/17	етоксильований(7) олеїламін
Ethomeen O/20	етоксильований(10) олеїламін
Ethomeen S/15	етоксильований(5) сояалкіламін
Ethomeen S/25	етоксильований(15) сояалкіламін
Ethomeen T/12	біс-(2-гідроксіетил) таловалкіламін
Ethomeen T/15	етоксильований(5) таловалкіламін
Ethomeen T/25	етоксильований(15) таловалкіламін
Ethomeen HT/12	біс-(2-гідроксіетил) гідрований таловалкіламін
Ethomeen HT/14	етоксильований(4) гідрований таловалкіламін
Ethomeen HT/17	етоксильований(7) гідрований таловалкіламін
Ethomeen HT/20	етоксильований(10) гідрований таловалкіламін
Ethomeen HT/25	етоксильований(15) гідрований таловалкіламін
Ethomeen HT/30	етоксильований(20) гідрований таловалкіламін
Ethomeen 12/12	біс-(2-гідроксіетил) додециламін
Ethomeen 18/12	біс-(2-гідроксіетил) октадециламін

Комерційно доступні алкоксильовані аміни формули (I), де R<sup>2</sup> являє собою радикал (a-2), представлені в приведеній далі таблиці:

Торговельна назва	Хімічна назва
Propoduomeen C13	N,N',N'-трис(2-гідроксипропіл)-N-кокоалкіл-1,3-діамінопропан
Ethoduomeen T11	моно-(2-гідроксіетил)-N-таловалкіл-1,3-діамінопропан
Ethoduomeen T13	N,N',N'-трис(2-гідроксіетил)-N-таловалкіл-1,3-діамінопропан
Ethoduomeen T25	N,N',N'-поліоксіетилен(15)-N-таловалкіл-1,3-діамінопропан
Ethodumeen C13	N,N',N'-трис(2-гідроксіетил)-N-кокоалкіл-1,3-діамінопропан

Найбільш переважним алкоксильованим аміном формули (I) є N,N',N'-трис(2-гідроксіетил)-N-кокоалкіл-1,3-діамінопропан (= Ethoduomeen T13).

Композиції згідно із даним винаходом є активними у відношенні широкого спектра фітопатогенних грибів. Як приклади таких грибів можуть бути

названі аскоміцети (наприклад, *Venturia*, *Podosphaera*, *Erysiphe*, *Monillinia*, *Uncinula*, *Aureobasidium*, *Sclerophoma*); базидіоміцети (наприклад, *Hemileia*, *Rhizoctonia*, *Puccinia*, *Coniophora*, *Serpula*, *Poria*, *Uromyces*, *Gloeophyllum*, *Lentinus*, *Coriolus*, *Irpex*); гриби недосконалі (наприклад, *Botrytis*, *Helminthosporium*, *Rhynchosporium*, *Fusarium*, *Septoria*, *Cercospora*, *Altemaria*, *Pyricularia*, *Penicillium*, *Geotrichum*).

Відносними співвідношеннями імазалілу та алкоксильованих амінів формули (I) у варіантах здійснення фунгіцидних композицій є такі співвідношення, що приводять до несподіваного підвищення ефективності у відношенні грибів, переважно до синергічного підвищення ефективності, у порівнянні з композицією, що містить як активний інгредієнт або тільки імазаліл, або тільки алкоксильовані аміни формули (I). Фахівцю в даній галузі техніки буде зрозуміло, що зазначена підвищена ефективність може бути отримана в межах різних співвідношень імазалілу та алкоксильованих амінів формули (I) у фунгіцидній композиції в залежності від виду гриба, відповідно до якого визначається ефективність, та субстрату, що підлягає обробці. Однак, як правило, можна сказати, що для більшості грибів підходящі масові співвідношення кількостей імазалілу до кількостей алкоксильованих амінів формули (I) у композиціях згідно із даним винаходом повинні знаходитися в інтервалі від 5:1 до 1:50, переважно, від 4:1 до 1:4.

Кількість імазалілу та алкоксильованих амінів формули (I) у композиціях згідно із даним винаходом буде таким, при якому забезпечується одержання ефективної фунгіцидної дії. Зокрема, передбачається, що готові до застосування композиції згідно із даним винаходом містять імазаліл у кількості в інтервалі від 0,001%(мас/об.) до 1%(мас/об.), переважно від 0,01%(мас/об.) до 0,1%(мас/об.). Вміст алкоксильованих амінів формули (I) у таких готових до застосування композиціях знаходиться в інтервалі від 0,01%(мас/об.) до 10 (мас/об.), переважно від 0,1%(мас/об.) до 1%(мас/об.). Зазначені готові до застосування композиції можуть бути отримані розведенням концентрованої композиції підходящим розріджувачем, таким як, наприклад, вода.

В багатьох прикладах фунгіцидні композиції, що призначені для прямого застосування, можуть бути отримані з концентратів, таких як, наприклад, емульсійні концентрати, суспензійні концентрати або розчинні концентрати, розведенням водним або органічним середовищем, причому передбачається, що такі концентрати включені в значення терміну "композиції", що використовуються у визначеннях даного винаходу. Такі концентрати можуть розбавлятися для одержання готової до застосування суміші в спреї-резервуарах безпосередньо перед застосуванням. Переважно, композиції згідно із даним винаходом повинні містити від приблизно 0,01 до 95%мас. суміші імазалілу та алкоксильованих амінів формули (I). Більш переважно, зазначений інтервал значень складає від 0,1 до 90%мас. Більш переважно, даний інтервал складає від 1 до 80%мас. у залежності від ти-

пу препарату, обраного для конкретних цілей застосування, як більш докладно пояснено далі.

Емульсійний концентрат являє собою рідкий гомогенний препарат, що містить імазаліл та алкоксильовані аміни формули (I) і призначений для застосування у вигляді емульсії після розведення водою. Суспензійний концентрат являє собою стабільну суспензію активних інгредієнтів у рідині, призначену для розведення водою перед застосуванням. Розчинний концентрат являє собою рідкий гомогенний препарат, призначений для застосування у вигляді молекулярного розчину активних інгредієнтів після розведення водою.

Фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом можуть бути приготовані у вигляді восків для застосування у вигляді оболонки або покриття, наприклад, плодів, зокрема цитрусових плодів.

Носії, що є присутніми у композиціях згідно із даним винаходом, являють собою будь-який матеріал або речовину, з якою композиції імазалілу та алкоксильованих амінів формули (I) вводяться в препарат для полегшення застосування/розподілу на області, що підлягає обробці, наприклад, розчиненням, диспергуванням в ній або дифундуванням в неї зазначеної композиції, і/або для полегшення її збереження, транспортування або для роботи з нею без втрати її фунгіцидної ефективності. Зазначені прийнятні носії можуть бути твердими, рідкими або являти собою газ, стиснутий до рідкої форми, тобто композиції згідно із даним винаходом можуть підходящим чином застосовуватися у вигляді концентратів, емульсій, емульсійних концентратів, суспензійних концентратів, що змішуються з олією, рідин, що змішуються з олією, розчинних концентратів, розчинів, гранул, пилоподібних порошків, спреїв, аерозолів, пілюль або порошків.

Підходящими носіями для твердих препаратів, таких як пилоподібні порошки, диспергуючі або текучі порошки, є будь-які диспергуючі агенти, що не здійснюють несприятливого впливу на активні інгредієнти, наприклад, глини (такі як каолін, бентоніт, кислотна глина та т.п.), тальки (такі як порошкоподібний тальк, порошкоподібний агальматоліт та т.п.), силікати (наприклад, діатомова земля, ангідрид кремнієвої кислоти, порошкоподібна слюда та т.п.), оксид алюмінію, порошкоподібна сірка, активоване вугілля та т.п. Такі тверді носії можуть застосовуватися самі по собі або у вигляді суміші носіїв двох або декількох видів.

Підходящими носіями для рідких препаратів є будь-які рідини, що не здійснюють несприятливого впливу на активні інгредієнти, наприклад, вода, спирти (наприклад, метиловий спирт, етиловий спирт, етиленгліколь, пропіленгліколь, діетиленгліколь, гліцерин і т.д.), кетони (наприклад, ацетон, метилетилкетон і т.д.), прості ефіри (наприклад, діоксан, тетрагідрофуран, целозоль, діетиленгліколь диметиловий ефір і т.д.), аліфатичні вуглеводні (наприклад, гексан, гас і т.д.), ароматичні вуглеводні (наприклад, бензол, толуол, ксилол, сольвент-нафта, метилнафталін і т.д.), галогеновані вуглеводні (наприклад, хлороформ, тетрахлорвуглець і т.д.), амідні кислот (наприклад, диметилформамід і т.д.), складні ефіри (наприклад,

метилацетат, етилацетат, бутилацетат, складний гліцериновий ефір жирних кислот і т.д.) та нітрили (наприклад, ацетонітрил та т.п.). Зазначені розчинники можуть використовуватися самі по собі або у вигляді суміші розчинників двох або декількох видів.

Композиції згідно за даним винаходом можуть додатково включати підходящі сполуки, відомі в області одержання препаратів, такі як, наприклад, природні або регенеровані мінеральні речовини, розчинники, дисперсанти, поверхнево-активні речовини, змочувальні речовини, адгезиви, згущувачі, зв'язуючі речовини, антифризи, репеленти, бар'єрники, інгібітори корозії, водовідштовхувальні добавки, осушувачі, УФ-стабілізатори та інші активні інгредієнти. Підходящими поверхнево-активними речовинами є неіоногенні, катіоногенні і/або аніоногенні поверхнево-активні речовини, що мають добрі емульгуючі, диспергуючі та змочувальні властивості. Слід розуміти, що значення терміну "поверхнево-активні речовини" включає також суміші поверхнево-активних речовин.

Способи застосування, такі як обприскування, атомізація, запилення, розсіювання або полив, вибираються в залежності від природи композицій та відповідно до передбачуваних об'єктів та переважних умов.

Фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом мають переважну лікувальну, профілактичну та антиспорулянтну фунгіцидну активність для захисту рослин, плодів та насіння. Представлені суміші можуть застосовуватися для захисту рослин або частин рослини, наприклад, плоду, квітів у період цвітіння плодових дерев, квітів, листя, стебел, коренів, зрізаних рослин, бульб рослин або заражених культурних рослин, ушкоджених або зіпсованих грибами, зазначений захист приводить до того, що частини рослин, які відросли після цього, захищені від зараження грибами або захворювання та супутнього їм ушкодження.

Як приклади рослин із широкого спектра культур, для яких можуть застосовуватися композиції згідно із даним винаходом, можуть бути приведені злаки, наприклад, пшениця, ячмінь, жито, овес, рис, сорго та т.п.; буряк, наприклад, цукровий буряк та кормовий буряк; зернові та кісточкові плоди і ягоди, наприклад, яблука, груші, сливи, персики, мигдаль, вишня, суниця, ківі, виноград, малина та чорна смородина; рослини сімейства бобових, наприклад, боби, сочевиця, горох, соєві боби; олійні рослини, наприклад, рапс, гірчиця, мак, оливи, соняшник, плід кокосової пальми, какао, земляні горіхи; рослини сімейства гарбузових, наприклад, гарбуза, корнішон, диня, огірки, патисон; волокнисті рослини, наприклад, бавовна, льон, конопля, джут; цитрусові плоди, наприклад, апельсин, лимон, грейпфрут, мандарин; овочі, наприклад, шпинат, салат-латук, спаржа, рослини сімейства хрестоцвітних, такі як капуста та турнепс, морква, цибуля, томати, картопля, пекучий та солодкий перець; рослини, подібні до лавру, наприклад, авокадо, кориця, коричник камфорний; або такі рослини, як маїс, тютюн, горіх, кава, цукровий очерет, чай, виноградна лоза, хміль, бананові пальми, каучукові дерева, а також декоративні рос-

лини, наприклад, квіти, чагарники, листяні дерева та вічнозелені дерева, такі як хвойні дерева. Перераховані культурні рослини зазначені з метою ілюстрації даного винаходу, але ніяким чином не обмежують його межі.

Конкретним способом введення фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом є нанесення її на надземні частини рослин, зокрема, на листя (листяне застосування). Кількість застосувань та введення доз вибираються відповідно до біологічних та кліматичних умов життєдіяльності грибів-збудників хвороби. Проте, фунгіцидні композиції можуть також бути нанесені на ґрунт та надходити до рослини через кореневу систему (системна активність), у цьому випадку область проростання рослин обприскується рідкою композицією або, якщо компоненти додаються в ґрунт у твердому препараті, у формі грануляту (ґрунтового застосування).

Фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом особливо корисні при обробці після збирання плодів, зокрема цитрусових плодів. В останньому випадку плід буде обприсканий або занурений в рідкий препарат або зрошений рідким препаратом або плід може бути покритий воскоподібною композицією. Зазначену воскоподібну композицію традиційно одержують ретельним змішанням суспензійного концентрату з підходящим воском. Препарати для застосування способами обприскування, занурення або зрошення можуть бути отримані розведенням концентрату, такого як, наприклад, емульсійний концентрат, суспензійний концентрат або розчинна рідина, водним середовищем. Такий концентрат у більшості випадків складається з активних інгредієнтів, дисперсантів або суспендуємих речовин (поверхнево-активної речовини), згущувача, невеликої кількості органічного розчинника, агента, що змочує, необов'язково, деякої кількості антифризу та води.

Фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом можуть також застосовуватися для захисту насіння від грибних інфекцій або грибних хвороб. Для здійснення такої дії фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом можуть бути нанесені на насіння у вигляді покриття, у цьому випадку зерна насіння послідовно зрошують рідкою композицією активних інгредієнтів або вони покриваються попередньо приготованою композицією.

Фунгіцидні композиції згідно із даним винаходом застосовують також для захисту від грибів рідини для обробки металу, фарби та покриття, для захисту функціональних водних рідин, що знаходяться в резервуарах/ємностях, наприклад, полімерних емульсій, фарб на водній основі та адгезивів, клеїв та крохмальних суспензій, розчинів згущувачів, желатину, воскових емульсій, чорнил, розчинів для шрифтів, полірувань, суспензій пігментів та мінеральних речовин, каучукових латексів, добавок у бетон, бурових розчинів, гігієнічних косметичних товарів, водних косметичних препаратів, фармацевтичних препаратів та т.п.

Крім імазалілу та алкоксілованих амінів формули (I) композиції згідно із даним винаходом можуть містити також додаткові біоцидні засоби, такі як фунгіциди, бактеріциди, акарициди, нема-

тоциди, інсектициди або гербіциди, особливо фунгіциди. Такі додаткові біоцидні засоби прийнятні для розширення спектру дії і/або профілактики розвитку резистентності. У багатьох випадках це може приводити до синергічних ефектів, тобто перевищення активності суміші сумарної активності окремих компонентів.

Як додаткові біоцидні засоби можуть розглядатися продукти наступних класів:

Фунгіциди:

2-амінобутан; 2,6-дихлор-N-(4-трифторметилбензил)бензамід (XRD-563); 8-гідроксигінолінсульфат; 4-[3-(3,4-диметоксифеніл)-3-(4-фторфеніл)акрилоїл]морфолін (SYP-L190); 2-(тіоціанатометилтіо)бензо[а]тіазол (TCMTB); метиловий ефір 4,7-диметил-1H-індол-2-карбонової кислоти (OK-9601); 1-(2,6-дихлорфеніл)-3,4-дигідро-6,7-диметоксигінолін (NSC-338509); 1-[(4-хлорфеніл)метил]-4-фенілпіперидіндодеканат (AC-902202); цис-(±)-1-(4-хлорфеніл)-2-(1H-1,2,4-триазол-1-іл)циклогептанол (SSF-109); 6-бром-5-[(3,5-диметил-4-ізоксазоліл)сульфоніл]-2,2-дифтор-5H-1,3-діоксол[4,5-f]бензимидазол; 6-хлор-5-[(3,5-диметил-4-ізоксазоліл)сульфоніл]-2,2-дифтор-5H-1,3-діоксол[4,5-f]бензимидазол; метиловий ефір 1-метокси-1H-індол-3-карбонової кислоти; N-циклогексилбензо[б]тіофен-2-карбоксамід-1,1-діоксид; (E)-O-2-деокси-2-[(1-оксо-9-октадеценіл)аміно]-β-D-глюкопіранозил-(1→4)-O-2-(ацетиламіно)-2-деокси-Р-0-глюкопіранозил-(1→4)-O-2-(ацетиламіно)-2-деокси-Р-0-глюкопіранозил-1→4)-2-(ацетиламіно)-2-деокси-D-глюкоза; (2S)-N-[2-[4-[[3-(4-хлорфеніл)-2-пропініл]окси]-3-метоксибензил]етил]-3-метил-2-[(метилсульфоніл)аміно]бутанамін; (3-хлор-6-гідрокси-2-метилфеніл)-(2,3,4-триметокси-6-метилфеніл)метанон; 2,4-дигідро-5-метокси-2-метил-4-[2-[[[1-[3-(трифторметил)феніл]етиліден]аміно]окси]метил]феніл]-3H-1,2,4-триазол-3-он; 1-метилетиловий ефір [(1S)-1-[[[1(R)-1-(6-фтор-2-бензотіазоліл)етил]аміно]карбоніл]-2-метилпропіл]карбаїнової кислоти; 2,6-дихлор-Ti-[[3-хлор-5-(трифторметил)-2-пиридиніл]метил]бензамід; K-(6-метокси-3-пиридиніл)циклопропанкарбоксамід (ICIA-0858); 1-(1,2,3,4-тетрагідро-1-нафтил)-5-(етоксикарбоніл)імідазол (R10100) та його солі; 10-оксо-транс-8-деценіова кислота; 5-гідрокси-2-гідроксиметил-4H-піран-4-он; 5-нітро-1-інданон; 3-[(3R,5S)-5-(4-хлорфеніл)-2,3-диметил-3-ізоксазолідиніл]піридин (SYP-Z048); фенілфенол (OPP); 3-йод-2-пропілбутилкарбамат (IPBC); ацибензолар-Б-метил, алдіморф, ампролілфос, анілазин, беналаксил, беноданіл, беноміл, бентіа-валікарб-ізопропіл, бінапакрил, біфеніл, бітертанол, бластицидин-S, боракс, боскалід, бупіримат, бутіобат, втор-бутиламін, кофеїн, полісульфід кальцію, каптафол, каптан, карбендазим, карбоксин, карпропамід, карваксол, хінометіонат, хлороніб, хлорпікрин, хлороталоніл, хлоролінат, хромофунгін, транс-цинамальдегід, транс-корична кислота, цинаміловий спирт, криптоспоріопсин, куфраніб, циазофамід, цифлуфенамід, цимокса-

ніл, ципродиніл, ципрофурам, дазомет, дебакарб, дихлорфен, диклобутразол, диклоцимет, дикломезин, дихлофлуанід, дикломезин, диклоран, діетифенкарб, дифензокват-метил сульфат, дифлуметорим, диметиримол, диметоморф, динобутон, динокап, дифеніламін, дипіритіон, диталімфос, дитіанон, додеморф, додін, дразоксолон, ехінока-ндин, едифенфос, етиримол, етабоксам, етридіа-зол, еугенол, фамоксидон, фенамідон, фенари-мол, фенфурам, фенгексамід, фенітропан, феноксаніл, фенпіклоліл, фенпропідин, фенпропі-морф, фентин-ацетат, фентин-гідроксид, фербам, феримзон, флазунам, флудіоксоніл, флуметовер, флуморлін, флуорофолпет, флуоромід, флусуль-фамід, флутоланіл, флутріафол, флусульфамід, фолпет, фосетил-алюміній, фталід, фуберидазол, фуралаксил, фурмециклокс, грисеофулвін, гуаза-тин, гарпін, гексахлорбензол, гінокітіол, гідрокси-джестерон, гімексазол, іміноктадин, іпробенфос (IBP), іпродіон, іпровалікарб (фенкарамід), ізопро-тіолан, джестерон, ланоконазол, касугаміцин, пре-парати на основі сполук міді, такі як гідроксид міді, нафталінат міді, оксихлорид міді, сульфат міді, оксид міді, оксин-копер та бордоська суміш, ман-копер, манкоцеб, манеб, мепаніпірим, мепроніл, металаксил, метансульфокарб, метфуроксам, ме-тирам, метрафенон, метсульфовакс, міклобутаніл, набам, натаміцин, диметилдитіокарбамат нікелю, нітротал-ізопропіл, нуаримол, NZ-1012, октилінон, офурак, оксаксидил, оксамокарб, оксикарбоксин, пефуразоат, пенцикурон, пенталонгін, пентіопірад, фомалактон, фосдифен, фталід, пікобензамід, пімарицин, піпералін, піроктон оламін, поліоксин, поліоксорим, пробеназол, прохлораз, процімідон, пропамокарб, пропінеб, пропілгалат, проквіназид, псевдоміцин, піразофос, пірибутикарб, пірифенокс, піриметаніл, піроквілон, піролнітрин, квінк-ламін, квінксофен, квінтозен (PCNB), ресверат-рол, рустміцин, саліциланілід, сітіофам, спіроксамін, сірка та препарати на основі сполук сірки, теклофталам, текназен, терпінеол, терпінен-4-ол, теофілін, тіабендазол, тіціофен, тіофанат-метил, тірам, тіадиніл (NMF-9850), токлофос-метил, толілфлуанід, триазоксид, трихлорамід, три-циклазол, тридеморф, трифлумізол, трифорин, умбеліферон, валідаміцин А, вінклозолін, цинеб, цирам, зопфіелін, зостеринаова кислота, зоксамід, похідні ізотіа- та бензизотіазолону, такі як, напри-клад, 1,2-бензизотіазол (BIT), N-алкіл-1,2-бензизотіазолони, включаючи 4,5-дихлор-2-(н-октил)-3(2H)-ізотіазолон (DCOIT) та 2-(н-октил)-3-(2H)-ізотіазолон (OIT); фунгіцидні триазоли, такі як азаконазол, бітертанол, бромуконазол, ципрокона-зол, дифеноконазол, диніконазол, епоксиконазол, фенаримол, фенбуконазол, флувіконазол, флу-силазол, флутріафол, гексаконазол, імібенкона-зол, іпконазол, кетокконазол, метконазол, міклобу-таніл, окспокконазол, пенконазол, пропіконазол, протіокконазол, симекконазол, тебуконазол, тетра-коназол, триадимефон, триадименол та тритико-назол; фунгіцидні триазолопіримідини, такі як 5-хлор-6-(2-хлор-6-фторфеніл)-7-(4-метил-1-піперидиніл)-2-[1,2,4]-триазоло[1,5-а]піримідин; 5-хлор-N-(2,2,2-трифтор-1-метилетил)-6-(2,4,6-трифторфеніл)-[1,2,4]триазоло[1,5-а]піримідин-7-

амін; 5-хлор-N-(2,2,2-трифторетил)-6-(2,4,6-трифторфеніл)-[1,2,4]триазоло[1,5-a]піримідин-7-амін; фунгіцидні тієнопіримідинони, такі як 6-хлор-2-пропокси-3-пропілтієно[2,3-d]піримідин-4(3H)-він; стробілурини, такі як азоксистробін, димоксистробін, енестробурин (SYP-Z071), флуоксастробін, метоминостробін, орисастробін, піраклостробін, кресоксим-метил, трифлуксистробін, пікоксистробін, метиловий ефір 2-[[[циклопропіл]-(4-метоксифеніл)іміно]метил]тіо]метил]- $\alpha$ -(метоксиметил)-бензолацетової кислоти (UBF-307) та (E,E)- $\alpha$ -(метоксііміно)-N-метил-2-[[[1-3-(трифторметил)феніл]етокси]іміно]метил]бензолацетамід (MA-565).

#### Бактерициди:

бронопол, дихлорфен, нітрапірин, диметилдитіокарбамат нікелю, касугаміцин, октилінон, фуранкарбонова кислота, окситетрациклін, стрептоміцин, теклофталам, сульфат міді та інші препарати на основі сполук міді.

#### Інсектициди/акарициди/нематициди:

абамектин, АС 303630, ацефат, акринатрин, аланікарб, алдікарб, алфаметрин, амітраз, авермектин, AZ 60541, азадирахтин, азинфос А, азинфос М, азоциклотин, *Bacillus thuringiensis*, бендіокарб, бенфуракарб, бенсултап, бета-цифлутрин, біфентрин, ВРМС, брофенпрокс, бромофос А, буфенкарб, бупрофезин, бутоксикарб, бутілпіридабен, кадусафос, карбарил, карбофуран, карбофенотіон, карбосульфат, картап, CGA 157419, CGA 184699, хлоетокарб, хлоретоксифос, хлорфенвінфос, хлорфлуазурон, хлормефос, хлорфенапір, хлорпірифос, хлорпірифос М, цисресметрин, клоцитрин, клофентезин, ціанофос, циклопротрин, цифлутрин, цигалотрин, цигексатин, циперметрин, циромазин, делтаметрин, деметон-М, деметон-S, деметон-S-метил, діафентіурон, діазинон, дихлофентіон, дихлорвос, диклифос, дикротофос, діетіон, дифлубензулон, диметоат, диметилвінфос, діоксатіон, дисульфотон, едифенфос, емаектин, есфенвалерат, етіофенкарб, етіон, етофенпрокс, етопрофос, етримфос, фенаміфос, феназаквін, фенбутатин-оксид, фенітротіон, фенобукарб, фенотіокарб, феноксикарб, фенпропатрин, фенпірад, фенпіроксимат, фентіон, фенвалерат, фіпроніл, флуазинам, флуциклоксурон, флукітринат, флуфеноксурон, флуфенпрокс, флувалінат, фонофос, формотіон, фосфіазат, фубфенпрокс, фураціокарб, HCN, гептенофос, гексафлумурон, гексифіазокс, імідаклопрід, іпробенфос, ісазофос, ізофенфос, ізопрокарб, ізоксатіон, івемектин, лямбда-цигалотрин, луфенурон, малатіон, мекарбам, мервінфос, метасульфенфос, метальдегід, метакрифос, метамідофос, метидатіон, метіокарб, метоміл, метолкарб, мілбемектин, монокротофос, моксидектин, налед, NC 184, NI 25, нітенпірам, ометоат, оксаміл, оксидеметон М, оксидепрофос, паратіон А, паратіон М, перметрин, фентоат, форат, фосалон, фосмет, фосфамдон, фоксим, піримікарб, піриміфос М, піриміфос А, профенофос, промеккарб, пропафос, пропоксур, протіофос, протоат, пімет-

розин, піраклофос, піридафентіон, піресметрин, піретрум, піридабен, піримідифен, пірипроксифен, квіналфос, RH 5992, салітін, себуфос, силафлуофен, сульфотеп, сульпрофос, тебуфенозид, тебуфенпірад, тебупіриміфос, тефлубензулон, тефлутрин, темефос, тербам, тербуфос, тетрахлорвінфос, тіафенкс, тіаметоксам, тіодикарб, тіофанокс, тіометон, тіоназин, турингієнсин, тралометрин, триаратен, триазафос, триазурон, трихлорфос, трифлумурон, триметакарб, вамідотіон, ХМС, ксилілкарб, зетаметрин.

Інтерес представляє комбінація імазалілу та алкоксильованих амінів формули (I), що містить додатковий біоцидний засіб, де зазначений додатковий біоцидний засіб являє собою фунгіцид, вибраний з боскаліду, фенгексаміду, піриметанілу та тіабендазолу.

#### Експериментальна частина

Експеримент 1: Метод аналізу токсичності речовини, проведений на бактеріологічних мікропланшетах

Активність у відношенні росту *Microdochium nivale* визначають методом аналізу токсичної речовини на бактеріологічних мікропланшетах. Розрахункова кількість основного розчину (що містить імазаліл або алкоксильований амін формули (I), розчинений у диметилсульфоксиді) з піпетки по краплях наносять на багатолункові мікропланшети. Живильне середовище (агар картопляної декстрази) додають незараженим та за допомогою струшування досягають його рівномірного розподілу. Мікропланшети інюкують досліджуваним грибом *Microdochium nivale* (суспензія  $6 \times 10^5$  спор/мл). Багатолункові мікропланшети зберігають у темряві при 21°C та відносній вологості 75%.

Вихідний розчин, що містить імазаліл у концентрації 2000м.ч., наносять по краплях з піпеток на багатолункові мікропланшети для одержання кінцевих досліджуваних концентрацій шести значень, що знижуються з невеликими інтервалами: 6,66, 5,00, 3,75, 2,81, 2,11 та 1,58м.ч.

Основний розчин, що містить алкоксильований амін формули (I) з концентрацією 8000м.ч., наносять з піпетки на багатолункові планшети для досягнення кінцевих досліджуваних концентрацій шести значень, що знижуються з невеликими інтервалами: 26,66, 20,00, 15,00, 11,25, 8,44, і 6,33м.ч., де відношення кількості імазалілу до кількості алкоксильованого аміну формули (I) складає від 1 до 4 у кожній з лунок, що містять як імазаліл, так і алкоксильований амін (I).

Найменшу концентрацію кожної досліджуваної сполуки або суміші досліджуваних сполук, достатню для інгібування візуально помітного росту, приймають за мінімальну концентрацію інгібування (minimum inhibitory concentration - MIC). MIC приймаються за кінцеві точки активності. Кінцеві точки активності сумішей імазалілу з алкоксильованим аміном формули (I) порівнюють з кінцевими точками активності зазначених сполук, які застосовують окремо.

Таблиця 1

## Значення MIC

Досліджувана сполука	
Імазаліл	2,81м.ч.
Ethomeen C12	>26,7м.ч.
Ethoduomeen T13	>26,7м.ч.
Ethomeen C12 + імазаліл	2,11м.ч.
Ethoduomeen T13 + імазаліл	2,11м.ч.

Експеримент 2: Метод аналізу токсичності речовини на бактеріологічних мікропланшетах

Аналіз токсичності речовини на бактеріологічних мікропланшетах, проводять методом, аналогі-

чним описаному в експерименті 1, але з кінцевими концентраціями імазалілу 10, 7,50, 5,63, 4,22, 3,16 і 2,37м.ч. Кінцеві концентрації алкоксильованого аміну формули (1) складають 40, 30, 22,50, 16,88, 12,66 і 9,49м.ч.

Таблиця 2

Значення MIC	
Досліджувана сполука	
Імазаліл	3,16м.ч.
Ethoduomeen C13	>40м.ч.
Ethoduomeen C13 + імазаліл	<2,37м.ч.