

(19)



Евразийское
патентное
ведомство

(21) 202390115 (13) A1

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОЙ ЗАЯВКЕ

(43) Дата публикации заявки
2023.05.31

(51) Int. Cl. C07C 317/24 (2006.01)
A01N 59/20 (2006.01)
A01N 41/10 (2006.01)

(22) Дата подачи заявки
2018.06.15

(54) ГЕРБИЦИДНАЯ КОМПОЗИЦИЯ, СОДЕРЖАЩАЯ ПОЛИМОРФЫ ХЕЛАТА МЕТАЛЛА И МЕЗОТРИОНА И ГЕРБИЦИД, И СПОСОБ ЕЕ ПОЛУЧЕНИЯ

(31) 201731021418
(32) 2017.06.19
(33) IN
(62) 202090017; 2018.06.15
(71) Заявитель:
ЮПЛ ЛТД (IN)

(72) Изобретатель:
Десай Джинеш Амрутлал, Панчал
Дигиш Манубхай (IN), Шрофф
Джайдев Раджникант, Шрофф
Викрам Раджникант (AE)
(74) Представитель:
Кузнецова С.А. (RU)

(57) Изобретение обеспечивает гербицидную композицию, содержащую полиморфы хелата металла и мезотриона и гербицид на основе хлорацетанилида. Кроме того, настоящее изобретение обеспечивает способ получения гербицидной композиции, содержащей полиморфы хелата металла и мезотриона и гербицид на основе хлорацетанилида.

202390115
A1

202390115

A1

ГЕРБИЦИДНАЯ КОМПОЗИЦИЯ, СОДЕРЖАЩАЯ ПОЛИМОРФЫ ХЕЛАТА МЕТАЛЛА И МЕЗОТРИОНА И ГЕРБИЦИД, И СПОСОБ ЕЕ ПОЛУЧЕНИЯ

Область техники, к которой относится изобретение

Настоящее изобретение относится к гербицидной композиции, содержащей полиморфы хелата металла и мезотриона гербицид, а также к способу ее получения.

Уровень техники

Циклогександионовые соединения проявляют гербицидную активность. Мезотрион представляет собой циклогексан-1,3-дионовый гербицид, разработанный для селективного контроля широкого спектра сорняков в случае выращивания маиса. Термин «мезотрион» в настоящем документе означает 2-(2'-нитро-4'-метилсульфонилбензоил)-1,3-циклогександион, включая любые енольные или таутомерные формы молекулы. Кроме того, он включает все таутомерные, рацемические и оптические изомеры, полученные из солей и различных замещенных форм мезотриона. Кроме того, он включает все приемлемые с точки зрения сельского хозяйства соли, полученные из мезотриона.

Мезотрион представляет собой синтетический аналог гербицидного продукта природного происхождения, полученного из растения хвоща (*Callistemon citrinus*). Мезотрион действует как ингибитор п-гидроксифенилпируватдиоксигеназы, что в конечном итоге влияет на биосинтез каротиноидов. Селективность в случае маиса возникает из-за дифференциального метаболизма (до 4-гидроксипроизводного), а также, возможно, из-за более медленного поглощения листьями. Он используется как для довсходового контроля, так и для послевсходового контроля широколистных сорняков, таких как *Xanthium strumarium*, *Ambrosia trifida*, *Abutilon theophrasti* и *Chenopodium*, *Amaranthus*, а также *Polygonum spp.*, и некоторых травянистых сорняков в случае выращивания маиса.

Мезотрион быстро поглощается видами сорняков после внекорневого внесения и распределяется в растениях путем как акропетального, так и базипетального движения. Маис является толерантным в отношении мезотриона вследствие селективного

метаболизма культурным растением. Более медленное поглощение мезотриона по сравнению с восприимчивыми видами сорняков также может способствовать его использованию в качестве селективного гербицида для применения в случае выращивания маиса.

Было обнаружено, что составы на водной основе активных ингредиентов, таких как мезотрион, которые нерастворимы или частично растворимы в воде, могут обладать рядом недостатков, таких как химическое разложение, образование кристаллов, агломерация, загустевание или образование геля, образование сыворотки, осаждение, образование осадка и т. п. Такая проблема усугубляется, когда активный ингредиент обладает способностью оставаться в разных кристаллических формах или полиморфах.

Мезотрион проявляет полиморфизм. В документах US 8063253 и US 8980796 раскрыты различные полиморфы мезотриона и способы получения различных полиморфов.

В документе US 8063253 раскрыто, что полиморф формы I мезотриона является термодинамически стабильной формой, а форма II является метастабильной формой. Метастабильная форма может постепенно преобразовываться в термодинамически стабильную форму I. Состав, содержащий данные формы, может привести к проблемам со стабильностью при хранении, а также при применении состава в полевых условиях.

В документе US 8980796 раскрыта полиморфная форма 3 мезотриона, имеющая улучшенные физические и биологические свойства.

В документе US 5912207 раскрыто, что гербицидные циклогександионовые соединения, например мезотрион, имеют недостаток, заключающийся в том, что в воде и в некоторых растворителях они подвергаются разложению. Хелаты металлов были получены для преодоления недостатков, связанных с разложением мезотриона в водных составах, а также в условиях определенного растворителя.

Взаимопревращение полиморфов, резкое различие в их физических свойствах и их непредсказуемые свойства в воде и других растворителях затрудняют получение состава на основе мезотриона, имеющего необходимые физические и биологические свойства.

Попытка авторов изобретения разработать составы хелата мезотриона в комбинации с другими активными ингредиентами привела к проблемам со стабильностью и таким

недостаткам при обращении, как осаждение, загустевание и образование осадка. Обнаруженные недостатки связаны с большим размером частиц хелата мезотриона. Это требует дополнительных усилий для получения активного ингредиента, имеющего необходимый однородный размер частиц, и во время таких процессов могут происходить морфологические изменения частиц, которые в результате приводят к недостаткам составов.

Другая распространенная проблема для агрохимического состава связана с токсикологическим профилем продукта. В некоторых случаях продукты неприемлемы из-за возможности раздражения глаз, которое может возникать при обращении с составом. Данное свойство может привести к ограничительной маркировке продукта на основе состава, что ограничивает пригодность продукта для применения по назначению.

Сигнальное слово согласно ЕРА для рыночного продукта в виде комбинации мезотриона и S-метолахлора (торговое наименование: Camix) представляет собой «Предупреждение». Составы с такой классификацией могут обуславливать нежелательную степень раздражения глаз составом.

Следовательно, сложно разработать способы улучшения существующих продуктов в виде составов на основе мезотриона, лишенных недостатков существующих составов.

Цели изобретения

Целью настоящего изобретения является получение полиморфов хелата мезотриона.

Другой целью настоящего изобретения является обеспечение способа получения полиморфов хелата мезотриона.

Другой целью настоящего изобретения является получение стабильных гербицидных составов, содержащих полиморфы хелата мезотриона.

Еще одной целью настоящего изобретения является получение стабильного гербицидного состава, содержащего полиморфы хелата мезотриона, имеющие улучшенный токсикологический профиль.

Целью настоящего изобретения является получение полиморфов хелата меди и мезотриона.

Краткое описание изобретения

В настоящем изобретении предусмотрена гербицидная композиция, содержащая полиморфы хелата металла и мезотриона и гербицид на основе хлорацетанилида.

Кроме того, настоящее изобретение относится к способу получения гербицидной композиции, содержащей полиморфы хелата металла и мезотриона и гербицид на основе хлорацетанилида.

Подробное описание

Авторы настоящего изобретения неожиданно обнаружили, что хелат мезотриона существует в различных полиморфных формах. Данные кристаллические формы проявляют различные свойства, которые характеризуются рентгеновской порошковой дифрактограммой, а также другие физические свойства. Кроме того, было обнаружено, что с помощью подходящих способов могут быть получены два полиморфа хелата металла и мезотриона, которые подходят для получения стабильных составов. Данные новые полиморфы, а также способы их получения описаны ниже.

Неожиданно авторы настоящего изобретения обнаружили, что различные способы получения хелата металла и мезотриона обеспечивают получение различных полиморфных форм хелата металла и мезотриона.

Кроме того, авторы настоящего изобретения неожиданно отметили, что составы, содержащие полиморфную форму хелата металла и мезотриона, обеспечивают меньшее раздражение глаз.

Две инновационные полиморфные формы согласно настоящему изобретению обозначаются как форма I хелата меди и мезотриона и форма II хелата меди и мезотриона.

В настоящем изобретении также предусмотрен способ получения полиморфов хелата металла и мезотриона.

Кроме того, обеспечены способы получения формы I хелата меди и мезотриона и формы II хелата меди и мезотриона.

Наиболее неожиданно авторы настоящего изобретения обнаружили, что форма I хелата меди и мезотриона подходит для получения гербицидных композиций, особенно жидких композиций.

Соответственно, обеспечены гербицидные композиции, содержащие форму I хелата меди и мезотриона и форму II хелата меди и мезотриона.

Соответственно, обеспечена форма I хелата меди и мезотриона.

В одном варианте осуществления настоящего изобретения предложена форма I хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует характеристическую порошковую рентгенограмму.

В другом варианте осуществления предложена форма I хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует дифракционную рентгенограмму, выраженную в градусах угла $2\theta(\pm 0,2^\circ)$, на которой показаны по меньшей мере три из следующих отражений: 9,1; 10,6; 11,8; 13,7; 15,9; 16,6; 18,3; 21,4; 22,1; 22,4; 24,1 и 27,7.

В другом варианте осуществления настоящего изобретения обеспечена форма I хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует дифракционную рентгенограмму, выраженную в градусах угла $2\theta(\pm 0,2^\circ)$, на которой показаны по меньшей мере пять из следующих отражений: 9,1; 10,6; 11,8; 13,7; 15,9; 16,6; 18,3; 21,4; 22,1; 22,4; 24,1 и 27,7.

В еще одном варианте осуществления настоящего изобретения обеспечена форма I хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует дифракционную рентгенограмму, выраженную в градусах угла $2\theta(\pm 0,2^\circ)$, на которой показаны все из следующих отражений: 9,1; 10,6; 11,8; 13,7; 15,9; 16,6; 18,3; 21,4; 22,1; 22,4; 24,1 и 27,7.

В другом варианте осуществления предложена форма I хелата меди и мезотриона, характеризующаяся всеми из следующих отражений и значений межплоскостного расстояния d , как изображено в приведенной ниже таблице.

Угол ($2\theta \pm 0,2^\circ$)	Значения межплоскостного расстояния (d), Å
9,1	9,7

10,6	8,4
11,8	7,5
13,7	6,5
15,9	5,6
16,6	5,3
18,3	4,8
21,4	4,2
22,1	4,0
22,4	4,0
24,1	3,7
27,7	3,2

Краткое описание графических материалов

На фигуре 1 показана типичная порошковая рентгенограмма формы I хелата меди и мезотриона в соответствии с настоящим изобретением.

На фигуре 2 показан типичный FT-IR-спектр формы I хелата меди и мезотриона в соответствии с настоящим изобретением.

На фигуре 3 показана типичная порошковая рентгенограмма формы II хелата меди и мезотриона в соответствии с настоящим изобретением.

На фигуре 4 показан типичный FT-IR-спектр формы II хелата меди и мезотриона в соответствии с настоящим изобретением.

Во время исследования полиморфных форм хелата меди и мезотриона была обнаружена другая полиморфная форма, называемая формой II. В отличие от формы I хелата меди и мезотриона, было обнаружено, что форма II хелата меди подходит для получения, в частности, твердых составов. Форма II хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению может быть идентифицирована с помощью рентгеновской порошковой дифрактограммы.

В одном варианте осуществления обеспечена форма II хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует дифракционную рентгенограмму, выраженную в градусах угла

$2\theta(\pm 0,2^\circ)$, на которой показаны по меньшей мере 3 из следующих отражений: 7,6; 9,1; 10,7; 11,8; 13,7; 15,4; 18,8; 21,0; 22,3; 23,8; 27,7; 28,7 и 29,5.

В другом варианте осуществления обеспечена форма II хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует дифракционную рентгенограмму, выраженную в градусах угла $2\theta(\pm 0,2^\circ)$, на которой показаны все из следующих отражений: 7,6; 9,1; 10,7; 11,8; 13,7; 15,4; 18,8; 21,0; 22,3; 23,8; 27,7; 28,7 и 29,5.

В одном варианте осуществления обеспечена форма II хелата меди и мезотриона, характеризующаяся следующими отражениями, выраженными в виде значений угла 2θ и значений межплоскостного расстояния d , как показано в приведенной ниже таблице.

Угол ($2\theta \pm 0,2^\circ$)	Значения межплоскостного расстояния (d), Å
7,6	11,5
9,1	9,6
10,7	8,3
11,8	7,4
13,7	6,4
15,4	5,8
18,8	4,8
21,0	4,2
22,3	4,0
23,8	3,7
27,7	3,2
28,7	3,1
29,5	3,0

В одном варианте осуществления настоящего изобретения обеспечен способ получения полиморфа хелата металла и мезотриона.

В одном варианте осуществления обеспечен способ получения полиморфа хелата металла и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием подходящего основания и воды;

b) обеспечение осаждения полиморфа хелата металла и мезотриона путем добавления раствора соли металла и

c) фильтрация и выделение полиморфа хелата металла и мезотриона.

В одном варианте осуществления настоящего изобретения основание, применяемое на этапе (a), выбрано из гидроксидов, карбонатов, бикарбонатов щелочных или щелочноземельных металлов или основания аммония.

В другом варианте осуществления основание, применяемое на этапе (a), выбрано из гидроксида натрия или гидроксида аммония.

В другом варианте осуществления ионы металлов, которые являются пригодными при образовании полиморфов хелата металла согласно настоящему изобретению, включают ионы переходных металлов, такие как Mn^{+2} , Co^{+2} , Cu^{+2} , Zn^{+2} , Fe^{+2} , Ni^{+2} и Fe^{+3} .

В другом варианте осуществления соли металлов, которые являются пригодными для образования полиморфов хелата металла согласно настоящему изобретению, включают соли металлов Mn, Co, Cu, Zn, Fe, Ni и Fe.

В еще одном варианте осуществления ионы металлов, представляющие особый интерес, выбраны из Zn^{+2} , Fe^{+2} и Cu^{+2} .

В другом варианте осуществления обеспечен способ получения формы I хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида натрия и воды;

b) обеспечение осаждения формы I хелата металла и мезотриона путем добавления раствора соли меди и

c) фильтрация и выделение формы I хелата меди и мезотриона.

В одном варианте осуществления pH дисперсии на этапе (a) варьируется от приблизительно 6 до приблизительно 10.

В одном варианте осуществления на этапе (b) подходящая соль меди выбрана из хлоридов, сульфатов, нитратов, карбонатов и фосфатов.

Форма I хелата меди и мезотриона особенно предпочтительна для получения жидких составов. В частности, было обнаружено, что форма I хелата меди и мезотриона пригодна с точки зрения простоты получения состава, обращения с составом, особенно при хранении в течение длительного периода времени. Кроме того, обнаружено, что составы, содержащие форму I хелата меди и мезотриона, являются предпочтительными в отношении разбавления и применения состава. Физические характеристики, такие как объемная плотность и размер частиц, демонстрируют указанные преимущества.

Форма I хелата меди и мезотриона проявляет характеристическую объемную плотность. Объемная плотность формы I хелата меди и мезотриона составляет от приблизительно 0,51 до приблизительно 0,535 г/мл.

Форма I хелата меди и мезотриона имеет характеристический размер частиц. Срединный диаметр или среднее значение распределения частиц по размерам (D50 и D90), зарегистрированные для формы I хелата меди и мезотриона, приведены в таблице ниже. Образцы (а) и (б) получали в соответствии со способом, приведенным в примере 1.

№ п/п	Название образца	Размер частиц (мкм)	
		D(0,5)	D(0,9)
1	Форма I-a хелата меди и мезотриона	7,94	13,02
2	Форма I-b хелата меди и мезотриона	7,62	13,22

Перечисленные выше характеристические физические свойства формы I хелата меди и мезотриона демонстрируют преимущества получения и применения гербицидных составов, содержащих форму I хелата меди и мезотриона. Авторы настоящего изобретения обнаружили, что вследствие меньшего размера частиц форма I хелата меди и мезотриона пригодна для получения жидкого состава, при этом устраняется повторное и трудоемкое измельчение для получения требуемого размера частиц. Кроме того, неожиданно было обнаружено, что при получении твердых составов, содержащих форму I хелата меди и мезотриона, можно было полностью избежать применения процесса интенсивного измельчения. Кроме того, обнаружено, что при избегании множества процессов измельчения возможность морфологических изменений хелата мезотриона в меньшей степени приводит к физически и химически стабильному составу.

Согласно настоящему изобретению обеспечен способ получения формы II хелата меди и мезотриона.

В одном варианте осуществления обеспечен способ получения формы II хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида аммония и воды;
- b) обеспечение осаждения формы II хелата меди и мезотриона путем добавления раствора соли меди и
- c) фильтрация и выделение формы II хелата меди и мезотриона.

В одном варианте осуществления pH дисперсии на этапе (a) составляет от приблизительно 6 до приблизительно 9.

В одном варианте осуществления на этапе (b) подходящая соль меди выбрана из хлоридов, сульфатов, нитратов, карбонатов и фосфатов.

Форма II хелата меди и мезотриона проявляет характеристическую объемную плотность. Объемная плотность формы II хелата меди и мезотриона составляет от приблизительно 0,61 до приблизительно 0,65 г/мл.

Форма II хелата меди и мезотриона имеет характеристический размер частиц. Срединный диаметр или среднее значение распределения частиц по размерам (D50 и D90), зарегистрированные для формы II хелата меди и мезотриона, приведены в таблице ниже. Образцы (a) и (b) получали в соответствии со способом, приведенным в примере 2.

№ п/п	Название образца	Размер частиц (мкм)	
		D(0,5)	D(0,9)
1	Форма II-a хелата меди и мезотриона	17,58	34,08
2	Форма II-b хелата меди и мезотриона	16,74	27,33

Из приведенных выше данных можно сделать вывод, что форма II хелата меди и мезотриона подходит для получения, в особенности, твердых составов, причем может

не потребоваться какого-либо процесса измельчения. Кроме того, авторы настоящего изобретения обнаружили, что применение инновационной формы II хелата меди в составах помогает предотвратить любые нежелательные изменения в кристаллической природе мезотриона, что обеспечивает стабильные составы.

Настоящее изобретение также относится к составам, содержащим полиморфы хелата металла и мезотриона.

В одном варианте осуществления обеспечены составы, содержащие форму I хелата меди и мезотриона и форму II хелата меди и мезотриона.

В одном варианте осуществления предложены гербицидные составы, содержащие форму I хелата меди и мезотриона.

В другом варианте осуществления предложены гербицидные составы, содержащие форму I хелата меди и мезотриона и добавки, пригодные для составления средств защиты растений.

Настоящее изобретение также относится к способу получения гербицидных составов, содержащих полиморфы хелата меди и мезотриона.

В одном варианте осуществления настоящее изобретение относится к способу получения гербицидного состава, содержащего полиморф хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает этапы:

- a) получения дисперсии мезотриона с использованием подходящего основания и воды;
- b) добавления раствора соли металла с образованием полиморфа хелата металла и мезотриона;
- c) добавления других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- d) необязательно добавления одного или более других активных ингредиентов и
- e) гомогенизации смеси.

В другом варианте осуществления обеспечен способ получения гербицидного состава, содержащего полиморф хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием подходящего основания и воды;
- b) добавление раствора соли меди с образованием формы I хелата меди и мезотриона;
- c) добавление других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- d) необязательно добавление одного или более других активных ингредиентов и
- e) гомогенизация смеси.

В еще одном варианте осуществления обеспечен способ получения гербицидного состава, содержащего форму I хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида натрия и воды;
- b) обеспечение осаждения формы I хелата меди и мезотриона путем добавления раствора соли меди;
- c) фильтрование формы I хелата меди и мезотриона, если необходимо;
- d) добавление других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- e) необязательно добавление одного или более других активных ингредиентов и
- f) гомогенизация смеси.

В другом варианте осуществления обеспечен способ получения гербицидного состава, содержащего форму I хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида натрия и воды;
- b) обеспечение осаждения формы I хелата меди и мезотриона путем добавления раствора соли меди;

- c) добавление других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- d) необязательно добавление одного или более других активных ингредиентов и
- e) гомогенизация смеси.

В еще одном варианте осуществления обеспечен способ получения гербицидного состава, содержащего форму II хелата металла и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида аммония и воды;
- b) добавление раствора соли металла с образованием формы II хелата металла и мезотриона;
- c) добавление других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- d) необязательно добавление одного или более других активных ингредиентов и
- e) гомогенизация смеси.

В еще одном варианте осуществления обеспечен способ получения гербицидного состава, содержащего форму II хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида аммония и воды;
- b) добавление раствора соли меди с образованием формы II хелата металла и мезотриона;
- c) добавление других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- d) необязательно добавление одного или более других активных ингредиентов и
- e) гомогенизация смеси.

В еще одном варианте осуществления обеспечен способ получения гербицидного состава, содержащего форму II хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:

- a) получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида аммония и воды;
- b) обеспечение осаждения формы II хелата меди и мезотриона путем добавления раствора соли меди и
- c) фильтрование формы II хелата меди и мезотриона, если необходимо;
- d) добавление других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо;
- e) необязательно добавление одного или более других активных ингредиентов и
- f) гомогенизация смеси.

Форма I хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению представляет особый интерес в составах на основе мезотриона в комбинации с одним или более другими средствами защиты растений.

В одном варианте осуществления форма I хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению представляет особый интерес в составах на основе мезотриона в комбинации с одним или более другими средствами защиты растений, причем концентрация мезотриона варьируется от приблизительно 0,01% до приблизительно 30% по весу композиции.

В одном варианте осуществления настоящее изобретение относится к гербицидным составам, содержащим форму I хелата меди и мезотриона и второй активный ингредиент вместе с подходящими добавками.

В другом варианте осуществления настоящее изобретение относится к гербицидным комбинациям, содержащим форму I хелата меди и мезотриона и второй активный ингредиент.

Второй активный ингредиент предпочтительно представляет собой гербицид.

В одном варианте осуществления второй гербицид, который можно комбинировать с формой I хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению, выбран без

ограничения из гербицидов на основе изоксазолидинона, гербицидов на основе мочевины, гербицидов на основе триазина, гербицидов на основе гидроксibenзонитрила, фосфорорганических гербицидов, тиокарбаматных гербицидов, гербицидов на основе пиридазина; гербицидов на основе хлорацетанилида; гербицидов на основе бензотиазола; гербицидов на основе карбанилата, гербицидов на основе циклогексеноксида; гербицидов на основе пиколиновой кислоты; гербицидов на основе пиридина; гербицидов на основе хинолинкарбоновой кислоты; гербицидов на основе хлортриазина, арилоксифеноксипропионовых гербицидов, гербицидов на основе оксадиазолона; гербицидов на основе фенилмочевины, гербицидов на основе сульфонанилида; гербицидов на основе триазолопиримидина, амидных гербицидов, пиридазиновых гербицидов, динитроанилиновых гербицидов или их комбинаций.

В предпочтительном варианте осуществления второй гербицид выбран из гербицида на основе триазина. Что касается настоящего изобретения – термин триазин относится к химическим соединениям из группы их эквивалентов, метаболитов, солей, сложных эфиров, изомеров и производных. Примеры гербицидов на основе триазина включают хлоразин, цианазин, ципразин, эглиназин, ипазин, мезопразин, проциазин, проглиназин, пропазин, себутилазин, симазин, тербутилазин, триэтазин, дипропетрин и фукаочинг (fucacjing) и тригидрокситриазин.

Соответственно, обеспечен гербицидный состав, содержащий форму I хелата меди и мезотриона и гербицид на основе триазина вместе с другими подходящими вспомогательными веществами. Композиция содержит от приблизительно 0,01% до 30% по весу формы I хелата меди и мезотриона и от приблизительно 1% до приблизительно 70% по весу гербицида на основе триазина.

В другом варианте осуществления гербицид, который может присутствовать наряду с формой I хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению выбран из фосфорорганического гербицида. Что касается настоящего изобретения – термин фосфорорганический относится к химическим соединениям из группы фосфорорганических веществ, их эквивалентам, метаболитам, солям, сложным эфирам, изомерам и производным. Примеры фосфорорганических гербицидов включают ампрофос-метил, ампрофос, анилофос, бенсулид, биланафос, ЕВЕР, фосамин, бутаифос, клацифос, 2,4-DEP, ДМРА, глюфосинат, глюфосинат-Р, глифосат, пиперофос, хуангкаолинг (huangcaoling) и шуангчианкаолин (shuangjiaancaolin).

В другом предпочтительном варианте осуществления второй гербицид выбран из гербицида на основе хлорацетанилида. Что касается настоящего изобретения – термин «хлорацетанилид» относится к химическим соединениям из группы хлорацетанилида, их эквивалентам, метаболитам, солям, сложным эфирам, изомерам и производным. Примеры гербицидов на основе хлорацетанилида включают ацетохлор, алахлор, бутахлор, бутенахлор, делахлор, диэтатил, диметахлор, этахлор, этапрохлор, метазахлор, метолахлор, S-метолахлор, претилахлор, пропахлор, пропизохлор, принахлор, тербухлор, тенилхлор, ксилахлор.

В частности, второй гербицид представляет собой S-метолахлор.

Соответственно, обеспечен гербицидный состав, содержащий форму I хелата меди и мезотриона и гербицид на основе хлорацетанилида вместе с другими подходящими вспомогательными веществами. Композиция содержит от приблизительно 0,01% до 20% по весу формы I хелата меди и мезотриона и от приблизительно 1% до 70% по весу гербицида на основе хлорацетанилида.

В другом варианте осуществления в соответствии с настоящим изобретением обеспечен состав, содержащий форму I хелата меди и мезотриона, гербицид на основе хлорацетанилида и гербицид на основе триазина вместе с другими подходящими вспомогательными веществами. Композиция содержит от приблизительно 0,01% до 20% по весу формы I хелата меди и мезотриона, от приблизительно 1% до приблизительно 70% по весу гербицида на основе хлорацетанилида и от приблизительно 1% до приблизительно 70% по весу гербицида на основе триазина.

В другом варианте осуществления настоящее изобретение обеспечивает композицию, содержащую форму I хелата меди и мезотриона и S-метолахлор.

Авторы настоящего изобретения обнаружили, что композиция, содержащая форму I хелата меди и мезотриона и S-метолахлор, вызывает слабое раздражение глаз.

Составы, содержащие форму I хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению, предусматривают составы на основе как твердых, так и жидких веществ, такие как порошки, гранулы, сухие составы, растворы, эмульсии, суспензии, суспензии и микроинкапсуляции в полимерных веществах.

Предпочтительно форма I хелата меди и мезотриона подходит для составов на основе жидких веществ.

В одном варианте осуществления настоящего изобретения составы формы I хелата меди и мезотриона дополнительно содержат антидот.

В одном варианте осуществления настоящего изобретения антидот выбран из группы, состоящей из производных хинолина; беноксакора; дихлормида; фенхлоразол этила; фенклорима; флуразола; флуксофенима; фурилазола; изоксадифен этила; мефенпира; мефенпир диэтила, оксабетринила, циометринила, димрона, димепиперата, клоквинтосет-мексила и ципросульфамида.

В одном варианте осуществления предложен гербицидный состав, содержащий форму II хелата меди и мезотриона.

В другом варианте осуществления предложен гербицидный состав, содержащий форму II хелата меди и мезотриона и добавки, пригодные для состава, представляющего собой средства защиты растений.

Форма II хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению представляет особый интерес в составах на основе мезотриона в комбинации с одним или более другими средствами защиты растений.

В одном варианте осуществления форма II хелата меди и мезотриона согласно настоящему изобретению представляет особый интерес в составах на основе мезотриона в комбинации с одним или более другими средствами защиты растений, при этом концентрация мезотриона варьируется от приблизительно 0,01% до приблизительно 30% по весу композиции.

В предпочтительном варианте осуществления обеспечен гербицидный состав, содержащий форму II хелата меди и мезотриона и гербицид на основе триазина вместе с другими подходящими вспомогательными веществами. Композиция содержит от приблизительно 0,01% до приблизительно 30% по весу формы II хелата меди и мезотриона и от приблизительно 1% до приблизительно 70% по весу гербицида на основе триазина.

Составы согласно настоящему изобретению дополнительно содержат обычные вспомогательные средства, подходящие для агрохимического состава, выбранные из растворителей/носителей, поверхностно-активных веществ, эмульгаторов, диспергирующих средств, противовспенивателей, средств, снижающих температуру замерзания, красителей, смачивающих средств, средств против слеживания, структурирующих средств, биоцидов, модификаторов вязкости и связующих средств. Содержание в композиции данных вспомогательных средств не является, в частности, ограничивающим и может быть определен квалифицированным специалистом в данной области техники в соответствии со стандартными протоколами.

Настоящее изобретение дополнительно относится к способу контроля нежелательных видов сорняков, причем указанный способ включает применение эффективного количества композиции, содержащей полиморф хелата мезотриона, в отношении сорняков или в отношении места их произрастания.

В одном варианте осуществления обеспечен способ контроля нежелательных видов сорняков, причем указанный способ включает применение эффективного количества композиции, содержащей форму I или форму II хелата меди и мезотриона, в отношении сорняков или в отношении места их произрастания.

В другом варианте осуществления обеспечен способ контроля нежелательных видов сорняков, причем указанный способ включает применение эффективного количества композиции, содержащей форму I или форму II хелата меди и мезотриона наряду с одним или более активными ингредиентами, в отношении сорняков или в отношении места их произрастания.

Составы согласно настоящему изобретению могут продаваться в виде предварительно смешанной композиции или набора составляющих, так что отдельные компоненты составов могут быть смешаны перед распылением.

Следовательно, в одном аспекте в настоящем изобретении обеспечен набор, содержащий мезотрион и компонент, содержащий подходящее основание и воду.

В одном варианте осуществления дается инструкция по смешиванию компонентов набора перед применением.

Таким образом, в данном варианте осуществления набор согласно настоящему изобретению также содержит инструкцию по эксплуатации.

В другом варианте осуществления набор содержит мезотрион и компонент, содержащий подходящее основание и воду, а также третий компонент, содержащий по меньшей мере один совместно действующий пестицид.

Авторы настоящего изобретения преуспели в получении инновационных полиморфов, а также в их использовании для получения предпочтительных стабильных гербицидных составов. Следующие конкретные примеры дополнительно иллюстрируют настоящее изобретение.

Примеры

Пример 1. Способ получения формы I хелата меди и мезотриона

Взвесь мезотриона получали путем добавления 522 г мезотриона к 2 л воды. pH взвеси повышали до значения в диапазоне 7-10 с помощью 20% раствора гидроксида натрия. Смесь перемешивали в течение одного часа с последующим добавлением 30% раствора сульфата меди. Реакционную смесь перемешивали в течение 2-3 часов, и pH смеси поддерживали в диапазоне 4,8-5,2. Полученную взвесь формы I хелата меди и мезотриона фильтровали, промывали горячей водой и сушили под вакуумом (555 г). Образец подвергали анализу с помощью p-XRD, и полученные спектры представлены на фигуре I.

Пример 2. Способ получения формы II хелата меди и мезотриона

Взвесь мезотриона получали путем добавления 345 г мезотриона к 1,4 л воды. pH взвеси повышали до значения в диапазоне 6-9 с помощью раствора аммиака. Смесь перемешивали в течение одного часа с последующим добавлением 20% раствора сульфата меди. Реакционную смесь перемешивали в течение 2-3 часов, и pH смеси поддерживали в диапазоне 4,5-5,5. Полученную взвесь формы II хелата меди и мезотриона фильтровали, промывали горячей водой и сушили под вакуумом (372 г). Образец подвергали анализу с помощью p-XRD, и полученные спектры представлены на фигуре III.

Пример 3. Состав в виде суспензии мезотриона и S-метолахлора в соответствии с настоящим изобретением получали следующим образом.

а) Получение (35)% суспензионного концентрата (SC) мезотриона

Ингредиенты	% (вес/вес)
Форма I хелата меди и мезотриона	35
пропиленгликоль	6,0
DM-вода (в достаточном количестве)	59,0
Всего	100

Процедура: форму I хелата меди и мезотриона смешивали с перечисленными ингредиентами и смесь гомогенизировали путем перемешивания и подвергали мокрому измельчению с достижением требуемого размера частиц.

б) Получение (65)% эмульсии типа «масло в воде» (EW) S-метолахлора

Ингредиенты	% (вес/вес)
S-метолахлор	66,67
Блок-сополимер EO PO	2,65
DM-вода (в достаточном количестве)	30,68
Всего	100

Процедура: S-метолахлор смешивали с перечисленными ингредиентами и гомогенизировали путем интенсивного перемешивания с образованием эмульсии типа «масло в воде».

с) Получение состава в виде суспензии (SE) мезотриона + S-метолахлора

Ингредиенты	% (вес/вес)
65 EW S-метолахлора	58,5
35 SC формы I хелата меди и мезотриона	10,86
Беноксакор	2,0
Блок-сополимер EO PO	8,0
Пропиленгликоль	3,0
DM-вода (в достаточном количестве)	15,59
Всего	100

Процедура: EW S-метолахлора смешивали с беноксакором, блок-сополимером EO PO и водой. Затем добавляли SC формы I хелата мезотриона и перемешивали. Смесь дополнительно гомогенизировали путем перемешивания до тех пор, пока она не становилась однородной. Было обнаружено, что состав является стабильным, и во время хранения не наблюдалось осаждения или загустевания.

Пример 4. Состав в виде суспензии мезотриона и S-метолахлора и атразина в соответствии с настоящим изобретением получали следующим образом.

a) Получение (35)% суспензионного концентрата (SC) мезотриона

Ингредиенты	% (вес/вес)
Форма I хелата меди и мезотриона	35,0
Блок-сополимер EO PO	6,0
DM-вода (в достаточном количестве)	59,0
Всего	100

Процедура: форму I хелата меди и мезотриона смешивали с перечисленными ингредиентами и смесь гомогенизировали путем перемешивания.

b) Получение (65)% эмульсии типа «масло в воде» (EW) s-метолахлора

Ингредиенты	% (вес/вес)
S-метолахлор	66,67
Блок-сополимер EO PO	2,65
DM-вода (в достаточном количестве)	30,68
Всего	100

Процедура: S-метолахлор смешивали с перечисленными ингредиентами и гомогенизировали путем перемешивания с образованием эмульсии типа «масло в воде».

c) Получение (58) % суспензионного концентрата (SC) атразина

Ингредиенты	% (вес/вес)
Атразин	58,0
Блок-сополимер EO PO	5,0

DM-вода (в достаточном количестве)	37,0
Всего	100

Процедура: атразин смешивали с перечисленными ингредиентами, гомогенизировали путем перемешивания с получением однородной суспензии.

d) Получение состава в виде суспензии (SE) S-метолахлора, мезотриона и атразина

Ингредиенты	% (вес/вес)
65 EW S-метолахлора	45,23
35 SC формы I хелата меди и мезотриона	8,40
58% SC атразина	18,97
Беноксакор	2,0
Блок-сополимер EO PO	9,0
Пропиленгликоль	3,0
DM-вода (в достаточном количестве)	13,40
Всего	100

Процедура: EW S-метолахлора смешивали с водой, беноксакором, блок-сополимером EO PO и пропиленгликолем с последующим добавлением SC формы I хелата меди и мезотриона и SC атразина. Добавляли воду и гомогенизировали путем перемешивания до получения однородной суспензии. Было обнаружено, что состав является стабильным, и во время хранения не наблюдалось осаждения или образования осадка.

Пример 5. Состав в виде суспензии мезотриона и S-метолахлора в соответствии с настоящим изобретением получали следующим образом.

a) Получение (35)% суспензионного концентрата (SC) мезотриона

Ингредиенты	% (вес/вес)
Мезотрион	35,0
Сульфат меди	13,00
Гидроксид натрия (20% щелочной раствор)	20,00
Блок-сополимер EO PO	6,00
DM-вода (в достаточном количестве)	26,00

количестве)	
Всего	100

Процедура: мезотрион смешивали с перечисленными ингредиентами и смесь гомогенизировали путем перемешивания с образованием SC формы I хелата меди и мезотриона, который дополнительно подвергали мокрому измельчению с достижением требуемого размера частиц.

b) Получение (65)% эмульсии типа «масло в воде» (EW) S-метолахлора

Ингредиенты	% (вес/вес)
S-метолахлор	66,67
Блок-сополимер EO PO	2,65
DM-вода (в достаточном количестве)	30,68
Всего	100

Процедура: S-метолахлор смешивали с перечисленными ингредиентами и гомогенизировали путем перемешивания с образованием эмульсии типа «масло в воде».

c) Получение состава в виде суспензии (SE) мезотриона + S-метолахлора

Ингредиенты	% (вес/вес)
65 EW S-метолахлора	58,5
35 SC формы I хелата меди и мезотриона	10,86
Беноксакор	2,0
Блок-сополимер EO PO	10,0
Пропиленгликоль	3,0
DM-вода (в достаточном количестве)	15,64
Всего	100

Процедура: EW S-метолахлора смешивали с беноксакором, блок-сополимером EO PO, пропиленгликолем и водой. Затем добавляли SC формы I хелата меди и мезотриона и перемешивали. Смесь дополнительно гомогенизировали путем перемешивания до тех

пор, пока она не становилась однородной. Было обнаружено, что состав является стабильным, и во время хранения не наблюдалось осаждения или загустевания.

Исследование острого раздражения глаз

Композицию, содержащую форму I хелата меди и мезотриона и S-метолахлор, полученную в соответствии с настоящим изобретением (пример 3), тестировали на раздражение глаз. Данное исследование выполняли для оценки эффекта острого раздражения глаз составом.

Рекомендации относительно исследования

Настоящее исследование проводилось в соответствии с документами: EPA, 1998: Агентство США по охране окружающей среды (EPA), Руководство по тестированию воздействия на здоровье, OCSPP 870.2400, Острое раздражение глаз (EPA 712-C-98-195) (август 1998).

OECD, 2012: Руководящие указания Организации по экономическому сотрудничеству и развитию (OECD) по испытаниям химических веществ, OECD 405, Острое раздражение/разъедание глаз, принятые Советом 2 октября 2012 г.

В исследовании острого раздражения глаз в отношении трех взрослых самок новозеландских кроликов-альбиносов выполняли однократное применение на глаз 0,1 мл состава, полученного в соответствии с примером 3 настоящего изобретения, на правый глаз кролика, при этом противоположный глаз оставался необработанным и выступал в качестве контроля. Первоначально был протестирован один кролик. На основании результатов, полученных через 24 ч. после применения тестового изделия (ТИА), реакцию на раздражение подтверждали путем одновременного тестирования двух дополнительных кроликов. Наблюдения проводили через 1, 24, 48 и 72 ч. после ТИА. Также проверяли общее состояние здоровья.

Индивидуальные оценки реакций глаза после применения

Контрольный глаз

Пол: женский

Номер кролика	1	2	3
Участок	Левый	Левый	Левый

применения												
Реакция	Время, часы				Время, часы				Время, часы			
	1	24	48	72	1	24	48	72	1	24	48	72
Помутнение: степень интенсивности	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Радужная оболочка	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Соединительная оболочка глаза (покраснение)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Соединительная оболочка глаза (хемоз)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

Обработанный глаз

Номер кролика	1				2				3			
Участок применения	Правый				Правый				Правый			
Реакция	Время, часы				Время, часы				Время, часы			
	1	24	48	72	1	24	48	72	1	24	48	72
Помутнение: степень интенсивности	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Радужная оболочка	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Соединительная оболочка глаза (покраснение)	1	2	1	0	1	1	0	0	1	1	0	0
Соединительная оболочка глаза (хемоз)	1	1	0	0	1	0	0	0	1	0	0	0

Индивидуальное наблюдение за роговицей через 24 часа после применения с использованием окрашивания флуоресцеиновым красителем

Контрольный глаз

Пол: женский

Номер кролика	Контроль глаза	День	Реакция на окрашивание флуоресцеином	Подробности наблюдения реакции роговицы в контрольном глазу
1	Левый	1	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено

		2	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
		3	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
2	Левый	1	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
		2	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
3	Левый	1	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
		2	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено

Обработанный глаз

Номер кролика	Контроль глаза	День	Реакция на окрашивание флуоресцеиновым красителем	Подробности наблюдения реакции роговицы в контрольном глазу
1	Правый	1	Положительная	Обнаружено 25% повреждений эпителия роговицы
		2	Положительная	Обнаружено 10% повреждений эпителия роговицы
		3	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
2	Правый	1	Положительная	Обнаружено 10% повреждений эпителия роговицы
		2	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено
3	Правый	1	Положительная	Обнаружено 10% повреждений эпителия роговицы
		2	Отрицательная	Повреждений эпителия роговицы не обнаружено

Основываясь на результатах данного исследования, указание классификаций для тестируемого состава выглядит следующим образом.

Согласованная на глобальном уровне система классификации опасности и маркировки химических веществ (Globally Harmonized System of Classification and Labelling of Chemicals, GHS 2015): **не классифицируется как раздражитель глаз.**

Категории токсичности ЕРА (декабрь 2002 г.): **Категория III.**

Настоящее изобретение более конкретно объясняется примерами, приведенными выше. Однако следует понимать, что объем настоящего изобретения никоим образом не ограничен примерами. Любому специалисту в данной области будет понятно, что настоящее изобретение включает приведенные примеры и, кроме того, может быть модифицировано и изменено без отклонения от новых идей и преимуществ настоящего изобретения, включение которых в объем изобретения подразумевается.

Формула изобретения

1. Форма II хелата меди и мезотриона, которая демонстрирует дифракционную рентгенограмму, выраженную в градусах угла $2\theta(\pm 0,2^\circ)$, на которой показаны по меньшей мере 3 из следующих отражений: 7,6; 9,1; 10,7; 11,8; 13,7; 15,4; 18,8; 21,0; 22,3; 23,8; 27,7; 28,7 и 29,5.
2. Способ получения полиморфов хелата металла и мезотриона, причем указанный способ включает:
 - a. получение дисперсии мезотриона с использованием подходящего основания и воды и
 - b. обеспечение осаждения полиморфа хелата металла и мезотриона путем добавления раствора соли металла.
3. Способ получения формы II хелата меди и мезотриона, причем указанный способ включает следующие этапы:
 - a. получение дисперсии мезотриона с использованием гидроксида аммония и воды и
 - b. обеспечение осаждения формы II хелата меди и мезотриона путем добавления раствора соли меди.
4. Гербицидная композиция, содержащая полиморфы хелата металла и мезотриона по п. 1 и по меньшей мере одно агрохимическое вспомогательное вещество.
5. Гербицидная композиция по п.4, дополнительно содержащая по меньшей мере еще один агрохимический ингредиент.
6. Гербицидная композиция по п. 4, где указанный агрохимический ингредиент выбран из гербицида.
7. Гербицидная композиция по п. 6, где указанный гербицид выбран из группы, включающей гербициды на основе изоксазолидинона, гербициды на основе мочевины, гербициды на основе триазина, гербициды на основе гидроксibenзонитрила, фосфорорганические гербициды, тиокарбаматные гербициды, гербициды на основе

пиридазина, гербициды на основе хлорацетанилида; гербициды на основе бензотиазола; гербициды на основе карбанилата, гербициды на основе циклогексеноксида; гербициды на основе пиколиновой кислоты; гербициды на основе пиридина; гербициды на основе хинолинкарбоновой кислоты; гербициды на основе хлортриазина, арилоксифеноксипропионовые гербициды, гербициды на основе оксадиазолоната; гербициды на основе фенилмочевины, гербициды на основе сульфонанилида; гербициды на основе триазолопиримидина, амидные гербициды, пиридазиновые гербициды, динитроанилиновые гербициды или их комбинации.

8. Гербицидная композиция по п. 7, где указанный гербицид выбран из гербицида на основе триазина или гербицида на основе хлорацетанилида.

9. Способ по п. 1, где указанный способ включает этапы:

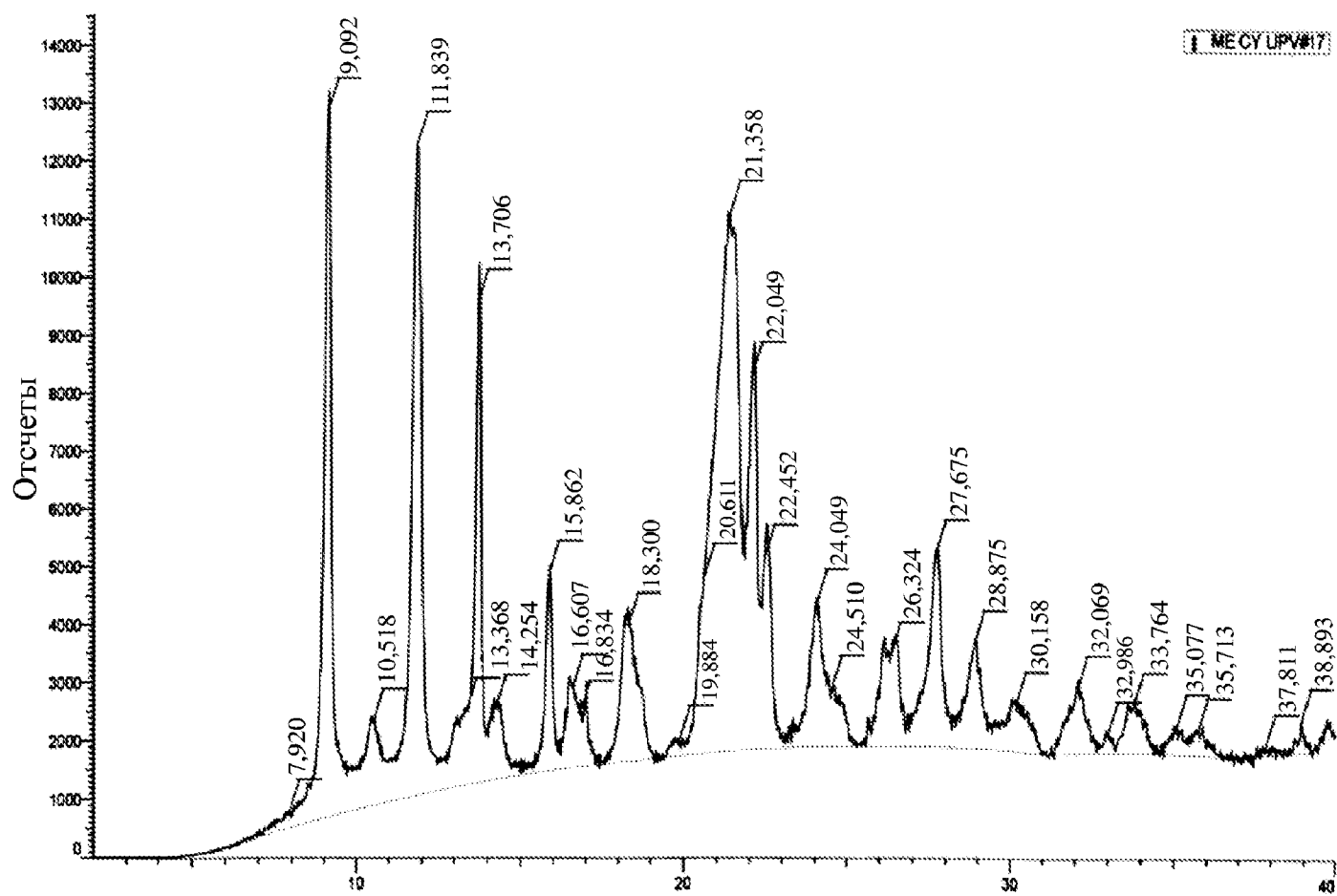
a. получения дисперсии мезотриона с использованием гидроксида аммония и воды;

b. обеспечения осаждения формы II хелата меди и мезотриона путем добавления раствора соли меди и

c. добавления других агрохимических вспомогательных веществ, если необходимо, и

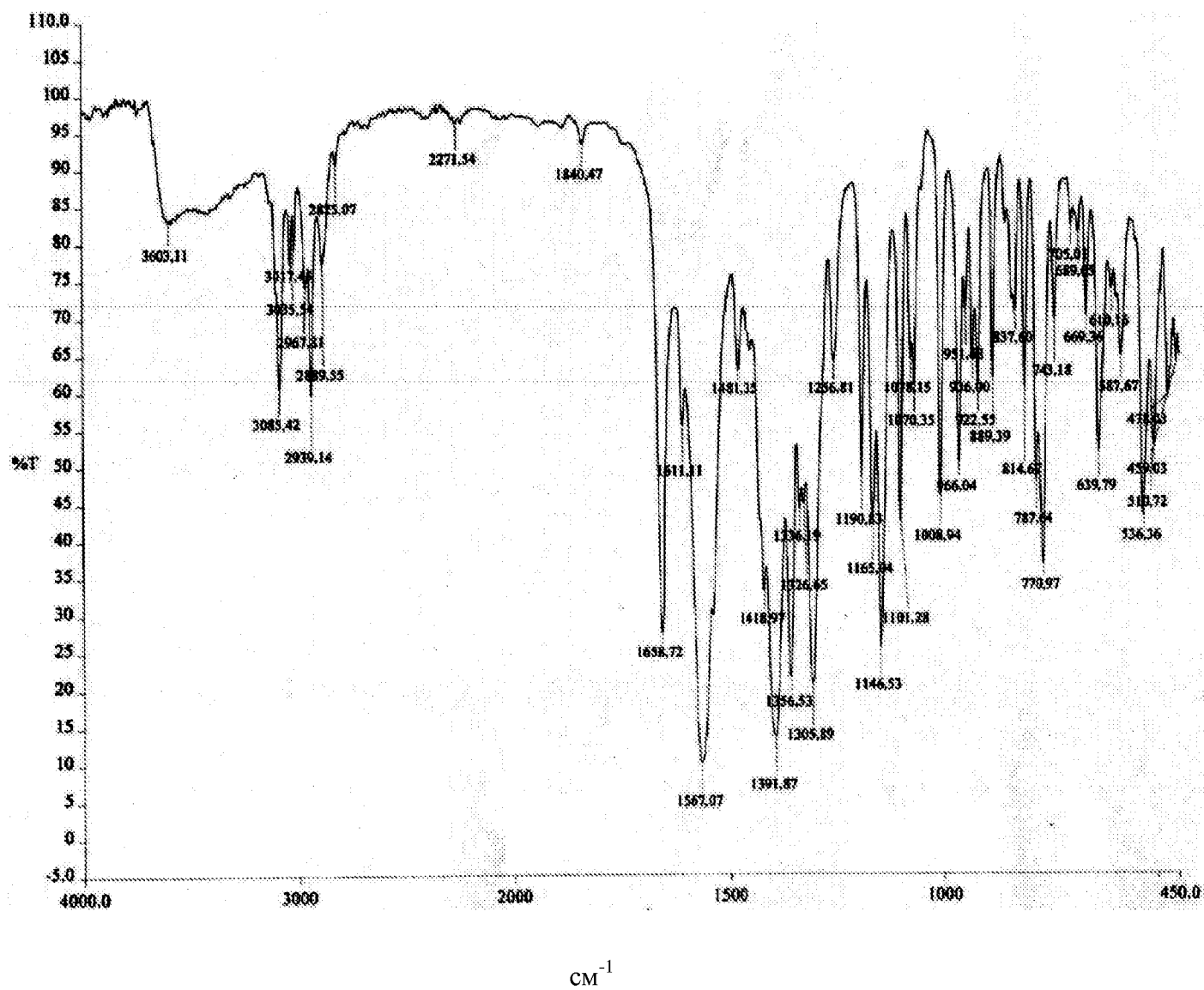
d. необязательно добавления одного или более других активных ингредиентов.

10. Способ контроля нежелательных видов сорняков, причем указанный способ включает применение эффективного количества композиции, содержащей полиморфы хелата металла и мезотриона по п. 1 или композиции, содержащей их, в отношении сорняков или в отношении места их произрастания.

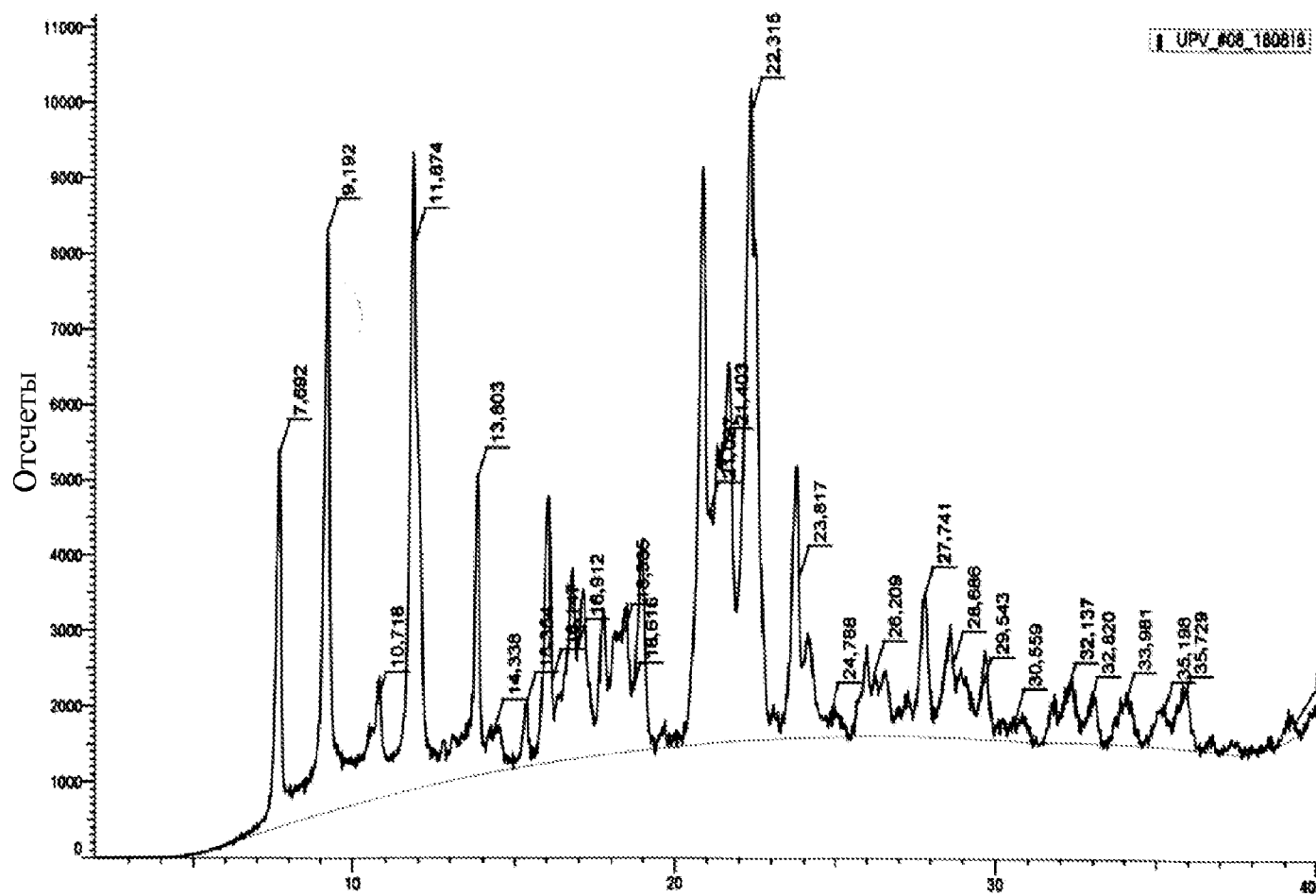


2-тета (согласованное два-тета/тета), WL = 1,54060

Фигура 1

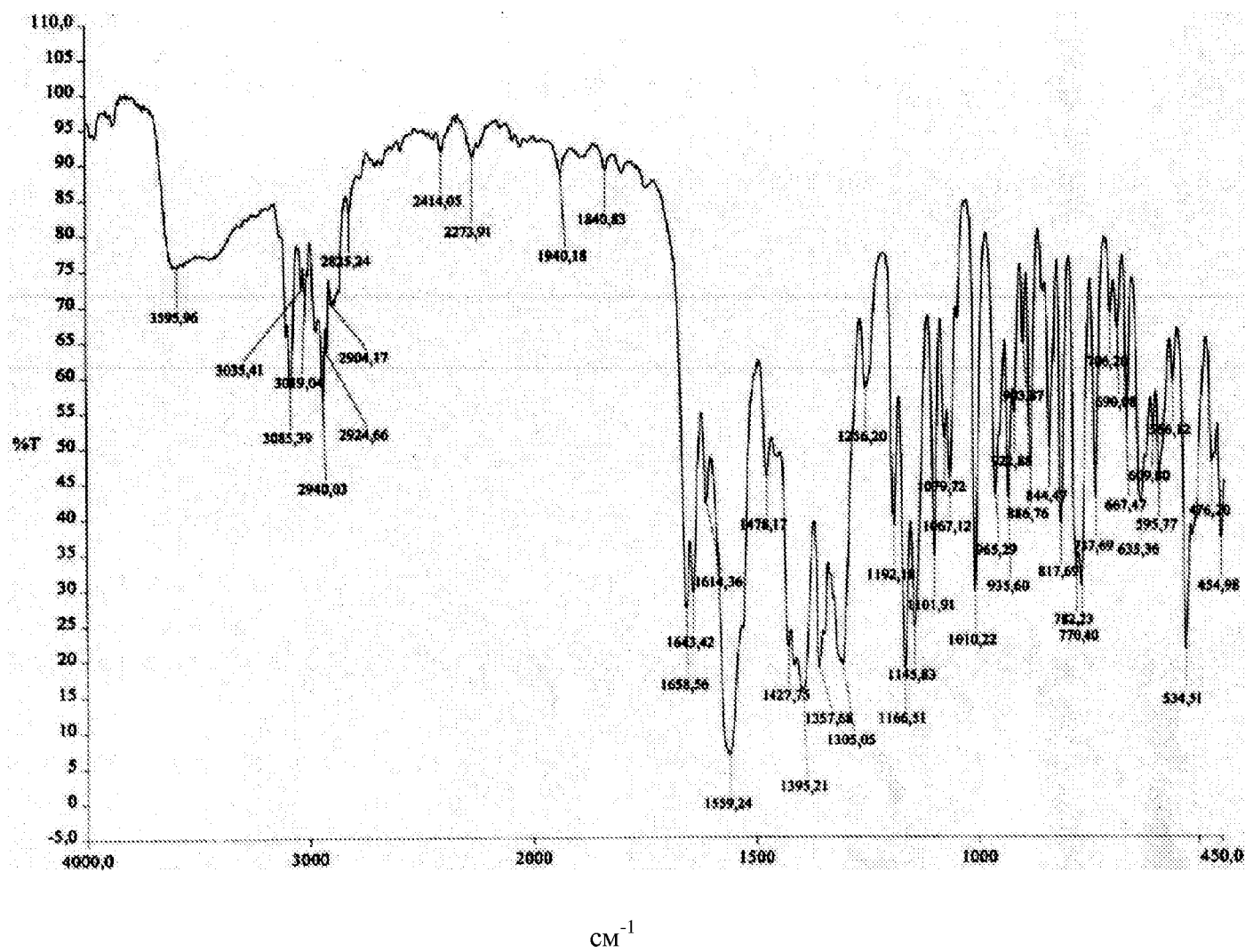


Фигура 2



2-тета (согласованное два-тета/тета), WL = 1,54060

Фигура 3



Фигура 4

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

(PCT Article 18 and Rules 43 and 44)

Applicant's or agent's file reference PCT00762	FOR FURTHER ACTION see Form PCT/ISA/220 as well as, where applicable, item 5 below.	
International application No. PCT/IB2018/054407	International filing date (<i>day/month/year</i>) 15 June 2018	(Earliest) Priority Date (<i>day/month/year</i>) 19 June 2017
Applicant UPL LTD		
This international search report has been prepared by this International Searching Authority and is transmitted to the applicant according to Article 18. A copy is being transmitted to the International Bureau. This international search report consists of a total of 9 sheets. ☐ It is also accompanied by a copy of each prior art document cited in this report.		
1. Basis of the report a. With regard to the language, the international search was carried out on the basis of: ☒ The international application in the language in which it was filed. ☐ A translation of the international application into , which is the language of a translation furnished for the purposes of international search (Rules 12.3(a) and 23.1(b)). b. ☐ This international search report has been established taking into account the rectification of an obvious mistake authorized by or notified to this Authority under Rule 91 (Rule 43.6bis(a)). c. ☐ With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, see Box No. I. 2. ☐ Certain claims were found unsearchable (See Box No. II). 3. ☒ Unity of invention is lacking (See Box No. III). 4. With regard to the title, ☒ the text is approved as submitted by the applicant. ☐ the text has been established by this Authority to read as follows: 5. With regard to the abstract, ☒ the text is approved as submitted by the applicant. ☐ the text has been established, according to Rule 38.2, by this Authority as it appears in Box No. IV. The applicant may, within one month from the date of mailing of this international search report, submit comments to this Authority. 6. With regard to the drawings, a. the figure of the drawings to be published with the abstract is Figure No. 1 ☒ as suggested by the applicant. ☐ as selected by this Authority, because the applicant failed to suggest a figure. ☐ as selected by this Authority, because this figure better characterizes the invention. b. ☐ none of the figures is to be published with the abstract.		

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
the subject matter listed in Rule 39 on which, under Article 17(2)(a)(i), an international search is not required to be carried out, including
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a)

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

See Supplemental Box for Details

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/IB2018/054407

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07C 317/24 (2006.01) A01N 59/20 (2006.01) A01N 41/10 (2006.01)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

STN: Chemical Abstract Registry and CAplus. Mesotrione registry search and substructure search based mesotrione chelates.

Patentscope and Espacenet: Applicant(s)/Inventor(s) name search

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Documents are listed in the continuation of Box C	



Further documents are listed in the continuation of Box C



See patent family annex

* "A"	Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E"	earlier application or patent but published on or after the international filing date	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&"	document member of the same patent family
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search 3 September 2018	Date of mailing of the international search report 03 September 2018
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustalia.gov.au	Authorised officer Ben Harris AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. +61262832272

INTERNATIONAL SEARCH REPORT C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		International application No. PCT/IB2018/054407
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5912207 A (SCHER et al.) 15 June 1999 Examples 7-8 paragraphs 13-14; col. 8 lines 28-42; col. 8 lines 28-42	1, 3-8, 10-16, 18-19 and 21-25
X	WO 1997/027748 A1 (ZENECA LIMITED) 07 August 1997 Examples 7-8 pages 23-24; page 13 third paragraph; page 13 third paragraph	1, 3-8, 10-16, 18-19 and 21-25
X	WO 2005/060492 A2 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 07 July 2005 Example 1 page 8; page 2-8	3-4, 6-7, 10 and 15
X	WO 2005/055714 A2 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 23 June 2005 page 3 lines 7-24, example 3 pages 20-21; pages 5-8; pages 16-17	3-4, 6-7, 10-13, 15 and 18
A	WO 2007/083242 A1 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 26 July 2007 Examples pages 9-12	1-25
A	WO 2011/016018 A1 (AGAN CHEMICAL MANUFACTURERS LTD.) 10 February 2011 examples pages 29-35	1-25
A	WO 2006/021743 A1 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 02 March 2006 examples pages 4-7	1-25

Supplemental Box**Continuation of: Box III**

This International Application does not comply with the requirements of unity of invention because it does not relate to one invention or to a group of inventions so linked as to form a single general inventive concept.

This Authority has found that there are different inventions based on the following features that separate the claims into distinct groups:

- Claims 1, 8, 16 and 19 (in full) and claims 3-7, 10-15, 18 and 21-25 (in part) are directed to mesotrione copper chelate form I, methods of preparation thereof, compositions thereof, and methods of use thereof.
- Claims 2, 9, 17 and 20 (in full) and claims 3-7, 10-15, 18 and 21-25 (in part) are directed to mesotrione copper chelate form II, methods of preparation thereof, compositions thereof, and methods of use thereof.
- (Multiple inventions) Claims 3-7, 10-15, 18 and 21-25 (in part) are directed to other mesotrione metal chelate polymorphs, methods of preparation thereof, compositions thereof, and methods of use thereof.
- Claims 21-25 (in part) are directed to kits comprising mesotrione and a soluble base.

PCT Rule 13.2, first sentence, states that unity of invention is only fulfilled when there is a technical relationship among the claimed inventions involving one or more of the same or corresponding special technical features. PCT Rule 13.2, second sentence, defines a special technical feature as a feature which makes a contribution over the prior art.

When there is no special technical feature common to all the claimed inventions there is no unity of invention.

In the above groups of claims, the identified features may have the potential to make a contribution over the prior art but are not common to all the claimed inventions and therefore cannot provide the required technical relationship. The only feature common to all of the claimed inventions and which provides a technical relationship among them is mesotrione. Excluding, the last listed invention, the claims share the feature of mesotrione metal chelate polymorphs. However these features does not make a contribution over the prior art because it is disclosed in:

D1: US 5912207 A (SCHER et al.) 15 June 1999

D2: WO 1997/027748 A1 (ZENECA LIMITED) 07 August 1997

D3: WO 2005/060492 A2 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 07 July 2005

D4: WO 2005/055714 A2 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 23 June 2005

Therefore in the light of this document this common feature cannot be a special technical feature. Therefore there is no special technical feature common to all the claimed inventions and the requirements for unity of invention are consequently not satisfied *a posteriori*.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/IB2018/054407	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
US 5912207 A	15 June 1999	US 5912207 A	15 Jun 1999
WO 1997/027748 A1	07 August 1997	WO 9727748 A1	07 Aug 1997
		AR 005600 A1	23 Jun 1999
		AU 1609997 A	22 Aug 1997
		BG 102665 A	30 Apr 1999
		BG 63795 B1	31 Jan 2003
		BR 9707263 A	22 Aug 2000
		CA 2245537 A1	07 Aug 1997
		CN 1212603 A	31 Mar 1999
		EA 199800683 A1	25 Feb 1999
		EA 000842 B1	24 Apr 2000
		EP 0880317 A1	02 Dec 1998
		EP 0880317 B1	05 Jan 2000
		HU 9900791 A2	28 Jul 1999
		HU 224340 B1	29 Aug 2005
		MX 9806211 A	31 Oct 1998
		PE 90498 A1	24 Dec 1998
		PL 328126 A1	18 Jan 1999
		PL 188487 B1	28 Feb 2005
		RO 118355 B1	30 May 2003
		TW 460273 B	21 Oct 2001
		ZA 9700771 B	04 Aug 1997
WO 2005/060492 A2	07 July 2005	WO 2005060492 A2	07 Jul 2005
		AP 1931 A	16 Dec 2008
		AR 046867 A1	28 Dec 2005
		AU 2004304890 A1	07 Jul 2005
		AU 2004304890 B2	11 Nov 2010
		BR PI0417347 A	13 Mar 2007
		BR PI0417347 B1	25 Nov 2014
		CA 2547336 A1	07 Jul 2005
		CN 1897810 A	17 Jan 2007
		EA 200601097 A1	29 Dec 2006
		EA 009608 B1	28 Feb 2008
		EC SP066601 A	25 Oct 2006
		EP 1691604 A2	23 Aug 2006

Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.

Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members		International application No. PCT/IB2018/054407	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
		EP 1691604 B1	07 Jan 2015
		JP 2007513156 A	24 May 2007
		JP 4768630 B2	07 Sep 2011
		KR 20060126488 A	07 Dec 2006
		KR 101248980 B1	29 Mar 2013
		NZ 547553 A	30 Apr 2009
		TW 200528029 A	01 Sep 2005
		TW I343788 B	21 Jun 2011
		US 2008039329 A1	14 Feb 2008
		US 8278245 B2	02 Oct 2012
		ZA 200604487 B	25 Apr 2007
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001. Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(January 2015)			

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/IB2018/054407	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
WO 2005/055714 A2	23 June 2005	WO 2005055714 A2	23 Jun 2005
		AP 2404 A	04 May 2012
		AR 047137 A1	11 Jan 2006
		AU 2004296743 A1	23 Jun 2005
		AU 2004296743 B2	05 Aug 2010
		BR PI0416537 A	09 Jan 2007
		BR PI0416537 B1	02 May 2017
		CA 2546992 A1	23 Jun 2005
		CN 1897811 A	17 Jan 2007
		EA 200601096 A1	29 Dec 2006
		EA 010266 B1	30 Jun 2008
		EC SP066602 A	25 Oct 2006
		EP 1691605 A2	23 Aug 2006
		EP 1691605 B1	18 Apr 2012
		JP 2007513160 A	24 May 2007
		JP 5571276 B2	13 Aug 2014
		KR 20060126489 A	07 Dec 2006
		NZ 547552 A	25 Sep 2009
		TW 200526119 A	16 Aug 2005
		US 2007225169 A1	27 Sep 2007
		US 8563471 B2	22 Oct 2013
		ZA 200604540 B	27 Feb 2008
WO 2007/083242 A1	26 July 2007	WO 2007083242 A1	26 Jul 2007
		AU 2007206681 A1	26 Jul 2007
		AU 2007206681 B2	12 Jul 2012
		BR PI0706585 A2	29 Mar 2011
		CA 2636338 A1	26 Jul 2007
		CN 101384547 A	11 Mar 2009
		CN 101384547 B	17 Jul 2013
		EP 1979310 A1	15 Oct 2008
		EP 1979310 B1	04 Mar 2015
		JP 2009523780 A	25 Jun 2009
		JP 5149199 B2	20 Feb 2013
		RU 2008133475 A	27 Feb 2010
		US 2010152492 A1	17 Jun 2010

Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.

Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/IB2018/054407	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
		US 8063253 B2	22 Nov 2011
WO 2011/016018 A1	10 February 2011	WO 2011016018 A1	10 Feb 2011
		AR 078141 A1	19 Oct 2011
		EP 2462112 A1	13 Jun 2012
		EP 2462112 B1	15 Jun 2016
		TW 201106862 A	01 Mar 2011
		US 2012165197 A1	28 Jun 2012
		US 8980796 B2	17 Mar 2015
		ZA 201200783 B	31 Oct 2012
WO 2006/021743 A1	02 March 2006	WO 2006021743 A1	02 Mar 2006
		AR 050609 A1	08 Nov 2006
		AU 2005276265 A1	02 Mar 2006
		BR PI0514645 A	17 Jun 2008
		CA 2575636 A1	02 Mar 2006
		CN 101010292 A	01 Aug 2007
		EP 1786767 A1	23 May 2007
		GT 200500227 A	21 Mar 2006
		HN 2005000482 A	09 Jun 2009
		JP 2008510777 A	10 Apr 2008
		KR 20070050449 A	15 May 2007
		MX 2007002184 A	02 Apr 2007
		RU 2007110952 A	10 Oct 2008
		SV 2005002209 A	05 Dec 2005
		US 2008194880 A1	14 Aug 2008
		ZA 200700925 B	27 Aug 2008
End of Annex			
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.			
Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(January 2015)			