



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11) 
1-0020081

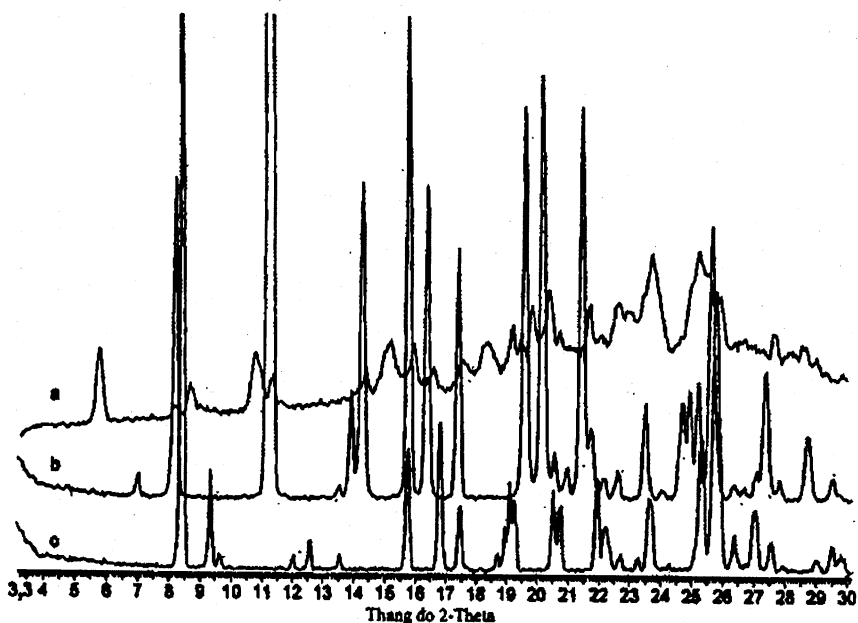
(51)⁷ A01N 43/653, A01P 3/00, B02C 23/00

(13) B

-
- (21) 1-2011-01057 (22) 22.09.2009
(86) PCT/GB2009/002244 22.09.2009 (87) WO2010/034976 01.04.2010
(30) 0817513.5 24.09.2008 GB
(45) 26.11.2018 368 (43) 25.08.2011 281
(73) SYNGENTA LIMITED (GB)
European Regional Centre, Priestley Road, Surrey Research Park, Guildford, Surrey
GU2 7YH, United Kingdom
(72) FORREST, James, Owen (GB), GEORGE, Neil (GB), BURTON, Rebecca, Claire
(GB), PARMAR, Manish, Maheshbhai (IN), TANDY, Matthew, David (GB),
BUTTAR, Suzanne, Marie (GB), FRAMPTON, Christopher, Stephen (GB), BROWN,
Adrian, St Clair (GB), CHORLTON, Alan, Patrick (GB)
(74) Công ty TNHH Ban Ca (BANCA)
-

(54) HỢP CHẤT ĐỒNG TINH THỂ CỦA PROPICONAZOL, QUY TRÌNH ĐIỀU CHẾ
HỢP CHẤT NÀY VÀ CHẾ PHẨM DIỆT NẤM CHỨA HỢP CHẤT NÀY

(57) Sáng chế đề cập đến hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và hợp chất tạo
đồng tinh thể, quy trình điều chế hợp chất đồng tinh thể này và chế phẩm diệt
nấm chứa hợp chất này.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến hợp chất đồng tinh thể của propiconazol, quy trình điều chế hợp chất đồng tinh thể này và chế phẩm diệt nấm chứa hợp chất này.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Propiconazol là thuốc diệt nấm từ nhóm triazol và là chất ức chế khử methyl hoá steroid (sinh tổng hợp ergosterol). Nó là thuốc diệt nấm nội hấp dùng cho lá với hoạt tính bảo vệ và chữa bệnh, với sự di chuyển hướng về phía ngọn trong mạch gỗ. Ở mức áp dụng được gắn nhãn, propiconazol phòng trừ một số bệnh gây ra bởi, ví dụ, *Cochliobolus sativus*, *Erysiphe graminis*, *Leptosphaeria nodorum*, *Puccinia* spp., *Pyrenophora teres*, *Pyrenophora tritici-repentis*, *Rhynchosporium secalis* và *Septoria* spp. ở ngũ cốc; *Mycosphaerella musicola* và *Mycosphaerella fijiensis* var. *difformis* ở chuối; *Sclerotinia homoeocarpa*, *Rhizoctonia solani*, *Puccinia* spp., *Erysiphe graminis* trong đất có cỏ; *Rhizoctonia solani*, *Helminthosporium oryzae* và phức hệ cụm hoa ở lúa; *Hemileia vastatrix* ở cà phê; *Cercospora* spp. ở lạc; *Monilinia* spp., *Podosphaera* spp., *Sphaerotheca* spp. và *Tranzschelia* spp. ở quả khô; và *helminthosporium* spp. ở ngô. Propiconazol được mô tả trong "The Pesticide Manual" [The Pesticide Manual - World Compendium; ấn bản thứ 13; biên tập viên: C. D. S. Tomlin; The British Crop Protection Council] mục số (675).

Phụ thuộc vào chế phẩm đồng phân, propiconazol thường là chất lỏng màu vàng, không mùi, nhớt trong khoảng từ -10 đến 60°C. Nó được biết đến là kết tinh ở nhiệt độ trong phòng trong thời gian dài. Ngoài ra, do dao động đáng kể về nhiệt độ có thể xảy ra trong quá trình điều chế và bảo quản chế phẩm hoá nông, propiconazol có thể trải qua các chu kỳ tan chảy và tái kết tinh dẫn đến sự tạo thành các hạt lớn và không mong muốn. Các hạt này có thể, ví dụ, làm tắc vòi phun trong quá trình sử dụng sản phẩm. Ngoài ra, sự tan chảy và tái kết tinh này đồng nghĩa với khó duy trì sản phẩm là chế phẩm đồng nhất và điều này có thể dẫn đến các vấn đề trong quá trình vận chuyển tới bề pha loãng và trong việc đảm bảo nồng độ chính xác khi pha loãng. Do đó, cần các dạng propiconazol mới khắc phục được các vấn đề này trong khi vẫn giữ được đặc tính diệt nấm có lợi của nó.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Do đó, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể mới của propiconazol có điểm tan chảy cao hơn so với các sản phẩm thương phẩm của propiconazol. Thích hợp nếu điểm tan chảy của hợp chất đồng tinh thể, được đo như là sự toả nhiệt tan chảy đơn bằng phép đo nhiệt lượng quét vi sai (differential scanning calorimetry - DSC), là trên 45°C và tốt hơn là trên 50°C. Thích hợp hơn nếu điểm tan chảy nằm trong khoảng từ 50 đến 350°C và tốt hơn nếu nằm trong khoảng từ 50 đến 200°C. Tốt nhất nếu điểm tan chảy nằm trong khoảng từ 80 đến 150°C.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

FIG. 1 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b, (b) 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen và (c) propiconazol.

FIG. 2 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1c, (b) 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen và (c) propiconazol.

FIG. 3 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-D-riboza thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a, (b) D-riboza và (c) propiconazol.

FIG. 4 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-D-riboza thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1c, (b) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-D-riboza thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1d, (c) D-riboza và (d) propiconazol.

FIG. 5 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit trimesic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a, (b) axit trimesic và (c) propiconazol.

FIG. 6 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b, (b) axit terephthalic và (c) propiconazol.

FIG. 7 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1g, (b) axit terephthalic và (c) propiconazol.

FIG. 8 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b sau khi phân tích tính ổn định hoá học, (b) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b trước khi phân tích tính ổn định hoá học, (c) axit maleic và (d) propiconazol.

FIG. 9 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1c, (b) axit maleic và (c) propiconazol.

FIG. 10 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b sau khi phân tích tính ổn định hoá học, (b) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b trước khi phân tích tính ổn định hoá học, (c) axit maleic và (d) propiconazol.

FIG. 11 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a, (b) axit oxalic và (c) propiconazol.

FIG. 12 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b, (b) axit oxalic và (c) propiconazol.

FIG. 13 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) axit oxalic, (b) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1c, (c) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1d và (d) propiconazol.

FIG. 14 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1f, (b) axit oxalic và (c) propiconazol.

FIG. 15 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a, (b) axit tartaric và (c) propiconazol.

FIG. 16 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b, (b) axit tartaric và (c) propiconazol.

FIG. 17 thể hiện mẫu nhiễu xạ bột tia X của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1e, (b) axit tartaric và (c) propiconazol.

FIG. 18 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b và (b) propiconazol.

FIG. 19 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-D-riboza thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a và (b) propiconazol.

FIG. 20 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit trimesic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a và (b) propiconazol.

FIG. 21 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b và (b) propiconazol.

FIG. 22 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1g và (b) propiconazol.

FIG. 23 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b và (b) propiconazol.

FIG. 24 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b và (b) propiconazol.

FIG. 25 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a và (b) propiconazol.

FIG. 26 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b và (b) propiconazol.

FIG. 27 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a và (b) propiconazol.

FIG. 28 thể hiện phân tích NMR của (a) hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b và (b) propiconazol.

FIG. 29 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b.

FIG. 30 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-D-riboza thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a.

FIG. 31 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit trimesic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a.

FIG. 32 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b.

FIG. 33 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1g.

FIG. 34 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b.

FIG. 35 thể hiện vết DSC và TGA của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b.

FIG. 36 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a.

FIG. 37 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b.

FIG. 38 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1f.

FIG. 39 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1a.

FIG. 40 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1b.

FIG. 41 thể hiện vết DSC của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng kỹ thuật được mô tả trong ví dụ 1e.

Mô tả chi tiết sáng chế

Cụ thể, sáng chế đề xuất hợp chất đồng tinh thể của propiconazol với hợp chất tạo đồng tinh thể mà có ít nhất một nhóm chức được chọn từ hydroxyl (bao gồm rượu và phenol), keton, axit carboxylic, amit, amin bậc một, amin bậc hai, amin bậc ba, amin sp², diazo, vòng N-heterocyclic, pyrimidin hoặc pyridin.

Hợp chất tạo đồng tinh thể thích hợp chứa ít nhất một nhóm chức hydroxyl bao gồm, nhưng không chỉ giới hạn ở, 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen và D-riboza. Hợp chất tạo đồng tinh thể được ưu tiên có nhóm hydroxyl bao gồm 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen.

Hợp chất tạo đồng tinh thể thích hợp chứa ít nhất một nhóm chức axit carboxylic bao gồm, nhưng không giới hạn ở, axit maleic, axit oxalic, axit tartaric, axit terephthalic và axit trimesic. Hợp chất tạo đồng tinh thể được ưu tiên có nhóm axit carboxylic bao gồm axit terephthalic và axit trimesic.

Theo một phương án, hợp chất tạo đồng tinh thể được chọn từ nhóm gồm 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen, D-riboza, axit maleic, axit oxalic, axit tartaric, axit terephthalic và axit trimesic.

Theo một phương án khác, hợp chất tạo đồng tinh thể được chọn từ nhóm gồm axit terephthalic, axit oxalic và axit tartaric.

Dạng đồng kết tinh của propiconazol và hợp chất tạo đồng tinh thể có thể được đặc trưng bởi hình thái tinh thể (được mô tả theo ô đơn vị) hoặc bởi đỉnh được chọn của mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2 theta (2θ).

Theo một phương án, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen. Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm: (a) $5,9 \pm 0,2$, $10,2 \pm 0,2$, $15,2 \pm 0,2$ và $18,4 \pm 0,2$ hoặc (b) $5,8 \pm 0,2$, $8,7 \pm 0,2$, $10,7 \pm 0,2$, $15,1 \pm 0,2$ và $18,1 \pm 0,2$. Tốt hơn nữa nếu mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa tất cả các giá trị góc 2θ (a) hoặc (b). Giá trị góc 2θ nhận được từ các đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho đồng tinh thể; bảng 1 chứa các giá trị 2θ này cũng như giá trị của các đỉnh khác xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê ở bảng 1, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X có các giá trị góc 2θ là: (a) $5,9 \pm 0,2$, $8,8 \pm 0,2$, $10,6 \pm 0,2$, $11,4 \pm 0,2$, $14,4 \pm 0,2$, $15,2 \pm 0,2$, $16,0 \pm 0,2$, $18,4 \pm 0,2$, $19,3 \pm 0,2$, $19,9 \pm 0,2$, $20,4 \pm 0,2$, $21,7 \pm 0,2$, $23,6 \pm 0,2$, $25,1 \pm 0,2$ và $25,9 \pm 0,2$ hoặc (b) $5,8 \pm 0,2$, $8,7 \pm 0,2$, $10,7 \pm 0,2$, $11,3 \pm 0,2$, $15,1 \pm 0,2$, $18,1 \pm 0,2$, $19,1 \pm 0,2$, $19,4 \pm 0,2$, $20,3 \pm 0,2$, $21,2 \pm 0,2$, $21,5 \pm 0,2$, $22,5 \pm 0,2$, $23,4 \pm 0,2$, $24,3 \pm 0,2$ và $25,1 \pm 0,2$. Tất cả đỉnh được tìm thấy từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của hai đồng tinh thể propiconazol-2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen thu được bằng cách sử dụng phương pháp trong ví dụ 1b (Bảng 1(a)) và 1c (Bảng 1(b)). Bảng 1 cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 1 (Bảng 1a) và 2 (Bảng 1b).

BẢNG 1

Đỉnh	2θ	Cường độ	2θ	Cường độ
	(a)	(a)	(b)	(b)

1	5,9	M	5,8	M
2	8,8	W	8,7	W
3	10,6	M	10,7	M
4	11,4	W	11,3	M
5	14,4	W	15,1	M
6	15,2	M	18,1	M
7	16,0	M	19,1	M
8	18,4	W	19,4	W
9	19,3	W	20,3	W
10	19,9	M	21,2	M
11	20,4	M	21,5	M
12	21,7	M	22,5	S
13	23,6	M	23,4	M
14	25,1	M	24,3	W
15	25,9	W	25,1	S

Theo một phương án, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và D-riboza. Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và D-riboza được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó, mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm: (a) $7,7 \pm 0,2$, $8,6 \pm 0,2$, $13,9 \pm 0,2$, $18,2 \pm 0,2$ và $25,0 \pm 0,2$ hoặc tất cả các giá trị góc 2θ : (b) $21,6 \pm 0,2$, $24,0 \pm 0,2$ và $26,1 \pm 0,2$ hoặc (c) $11,3 \pm 0,2$. Tốt hơn nữa nếu mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa tất cả các giá trị góc 2θ (a), (b) hoặc (c). Các giá trị góc 2θ này được suy ra từ các đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho hợp chất đồng tinh thể; bảng 2 bao gồm các giá trị 2θ này cũng như các giá trị đỉnh khác xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc D-riboza cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể

propiconazol và D-riboza được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa tất cả giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 2, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X có các giá trị góc 2θ là: (a) $7,7 \pm 0,2$, $8,6 \pm 0,2$, $13,9 \pm 0,2$, $14,5 \pm 0,2$, $15,0 \pm 0,2$, $15,7 \pm 0,2$, $18,2 \pm 0,2$, $19,5 \pm 0,2$, $20,8 \pm 0,2$, $22,5 \pm 0,2$, $22,6 \pm 0,2$, $23,8 \pm 0,2$, $25,0 \pm 0,2$ và $27,8 \pm 0,2$, (b) $9,4 \pm 0,2$, $13,6 \pm 0,2$, $14,7 \pm 0,2$, $15,2 \pm 0,2$, $16,0 \pm 0,2$, $15,5 \pm 0,2$, $16,9 \pm 0,2$, $19,2 \pm 0,2$, $20,3 \pm 0,2$, $21,6 \pm 0,2$, $24,0 \pm 0,2$, $25,3 \pm 0,2$, $26,1 \pm 0,2$ và $26,5 \pm 0,2$ hoặc (c) $8,2 \pm 0,2$, $11,3 \pm 0,2$, $14,4 \pm 0,2$, $15,7 \pm 0,2$, $16,4 \pm 0,2$, $17,4 \pm 0,2$, $19,6 \pm 0,2$, $20,2 \pm 0,2$, $20,7 \pm 0,2$, $21,4 \pm 0,2$, $23,6 \pm 0,2$, $25,1 \pm 0,2$, $25,7 \pm 0,2$ và $27,2 \pm 0,2$. Tất cả các đỉnh được tìm thấy từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của ba hợp chất đồng tinh thể propiconazol-D-riboza thu được bằng cách sử dụng phương pháp trong ví dụ 1a (Bảng 2(a)), 1c (Bảng 2(b)) và 1d (Bảng 2(c)). Bảng 2 cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 3 (Bảng 2a) và 4 (Bảng 2b và 2c).

BẢNG 2

Đỉnh	2θ (a)	Cường độ (a)	2θ (b)	Cường độ (b)	2θ (c)	Cường độ (c)
1	7,7	W	9,4	W	8,2	W
2	8,6	W	13,6	W	11,3	M
3	13,9	W	14,7	W	14,4	W
4	14,5	M	15,2	W	15,7	M
5	15,0	M	16,0	W	16,4	M
6	15,7	M	15,5	W	17,4	W
7	16,2	M	16,9	W	19,6	M
8	19,5	S	19,2	W	20,2	M
9	20,8	S	20,3	M	20,7	W
10	22,5	M	21,8	M	21,4	M
11	22,6	M	24,0	W	23,6	W

12	23,8	W	25,3	W	25,1	W
13	25,0	S	26,1	M	25,7	M
14	27,8	M	26,5	W	27,2	W

Theo phương án khác, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit trimesic. Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit trimesic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa các giá trị góc 2θ là: $5,8 \pm 0,2$, $10,2 \pm 0,2$ và $16,3 \pm 0,2$. Các giá trị góc 2θ này được suy ra từ đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho hợp chất đồng tinh thể; bảng 3 bao gồm các giá trị 2θ cũng như các giá trị đỉnh khác mà xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc axit trimesic cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit trimesic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị 2θ được liệt kê trong bảng 3, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X có các giá trị góc 2θ : $5,8 \pm 0,2$, $10,2 \pm 0,2$, $11,1 \pm 0,2$, $11,9 \pm 0,2$, $13,5 \pm 0,2$, $15,9 \pm 0,2$, $16,3 \pm 0,2$, $18,1 \pm 0,2$, $20,1 \pm 0,2$, $21,7 \pm 0,2$, $22,6 \pm 0,2$, $23,4 \pm 0,2$, $25,7 \pm 0,2$ và $26,5 \pm 0,2$. Tất cả các đỉnh được tìm thấy từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của đồng tinh thể propiconazol-axit trimesic thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1a. Bảng 3 cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 5.

BẢNG 3

Đỉnh	2θ	Cường độ
1	5,8	M
2	10,2	M
3	11,1	W
4	11,9	M
5	13,5	W

6	15,9	W
7	16,4	S
8	18,1	W
9	20,1	W
10	21,7	W
11	22,6	W
12	23,4	S
13	25,7	S
14	26,5	M

Theo phương án khác, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit terephthalic. Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit terephthalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 4A. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit terephthalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 4A. Bảng 4A thể hiện giá trị 2θ của các vị trí đỉnh được chọn của mẫu nhiễu xạ bột tia X của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1b, cũng như cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 6.

BẢNG 4A

Đỉnh	2θ	Cường độ
1	3,9	M
2	7,9	M
3	12,4	M
4	17,2	M

5	18,4	W
6	19,5	W
7	21,1	M
8	21,6	S
9	23,6	M
10	25,1	M
11	26,3	M
12	27,9	S

Theo một phương án của sáng chế, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit terephthalic được đặc trưng bởi các tham số ô đơn vị của tinh thể đơn propiconazol/axit terephthalic được thể hiện trong bảng 4B. Tinh thể đơn này thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1g.

BẢNG 4B

Nhóm không gian	P-1
Độ dài ô ($\text{\AA}$)	$a = 5,3661(5)$ $b = 8,5614(8)$ $c = 21,997(2)$
Góc ô ($^\circ$)	$\alpha = 95,630(3)$ $\beta = 91,600(3)$ $\gamma = 99,293(3)$
Z'	2
Yếu tố R	0,0257

Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit terephthalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ ,

trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm: $4,1 \pm 0,2$, $8,0 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $18,6 \pm 0,2$, $21,0 \pm 0,2$ và $21,7 \pm 0,2$. Tốt hơn nữa nếu mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê ở trên. Các giá trị góc 2θ suy ra từ các đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho hợp chất đồng tinh thể; bảng 4C bao gồm các giá trị 2θ cũng như giá trị đỉnh khác xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc axit terephthalic cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit terephthalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 4C, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X có giá trị góc 2θ là: $4,1 \pm 0,2$, $8,0 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $12,5 \pm 0,2$, $17,1 \pm 0,2$, $17,3 \pm 0,2$, $18,6 \pm 0,2$, $19,7 \pm 0,2$, $21,0 \pm 0,2$, $21,7 \pm 0,2$, $23,6 \pm 0,2$, $25,0 \pm 0,2$, $26,3 \pm 0,2$ và $27,9 \pm 0,2$. Tất cả các đỉnh được tìm thấy từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1g. Bảng 4C cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 7.

BẢNG 4C

Đỉnh	2θ	Cường độ
1	4,1	M
2	8,0	W
3	11,8	W
4	12,5	M
5	17,1	M
6	17,3	M
7	18,6	W
8	19,7	M
9	21,0	M
10	21,7	S

11	23,6	S
12	25,0	M
13	26,2	S
14	27,9	S

Theo phương án khác, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit maleic. Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit maleic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm: (a) $7,6 \pm 0,2$, $10,3 \pm 0,2$, $16,4 \pm 0,2$, $18,2 \pm 0,2$, $19,4 \pm 0,2$ và $20,2 \pm 0,2$, (d) $7,6 \pm 0,2$, $10,4 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $15,4 \pm 0,2$, $16,1 \pm 0,2$ và $19,5 \pm 0,2$ hoặc (e) $5,9 \pm 0,2$, $7,6 \pm 0,2$, $10,5 \pm 0,2$, $15,5 \pm 0,2$ và $16,2 \pm 0,2$ hoặc tất cả các giá trị góc 2θ : (b) $5,4 \pm 0,2$, $10,9 \pm 0,2$ và $21,1 \pm 0,2$ hoặc (c) $21,4 \pm 0,2$ và $26,1 \pm 0,2$. Tốt hơn nữa nếu mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị góc 2θ (a), (b), (c), (d) hoặc (e). Các giá trị góc 2θ này được suy ra từ đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho hợp chất đồng tinh thể; bảng 5 bao gồm giá trị 2θ cũng như các giá trị đỉnh khác xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc axit maleic cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit maleic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 5, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X chứa các giá trị góc 2θ : (a) $7,6 \pm 0,2$, $10,3 \pm 0,2$, $12,4 \pm 0,2$, $16,4 \pm 0,2$, $16,9 \pm 0,2$, $18,2 \pm 0,2$, $19,4 \pm 0,2$, $20,2 \pm 0,2$, $20,7 \pm 0,2$, $22,6 \pm 0,2$, $24,8 \pm 0,2$, $25,8 \pm 0,2$, $28,0 \pm 0,2$ và $29,4 \pm 0,2$, (b) $5,4 \pm 0,2$, $10,9 \pm 0,2$, $13,8 \pm 0,2$, $15,9 \pm 0,2$, $16,5 \pm 0,2$, $17,0 \pm 0,2$, $18,6 \pm 0,2$, $19,1 \pm 0,2$, $21,1 \pm 0,2$, $21,8 \pm 0,2$, $22,6 \pm 0,2$, $23,6 \pm 0,2$, $25,3 \pm 0,2$ và $27,7 \pm 0,2$, (c) $11,7 \pm 0,2$, $12,5 \pm 0,2$, $17,6 \pm 0,2$, $18,5 \pm 0,2$, $19,1 \pm 0,2$, $20,8 \pm 0,2$, $21,4 \pm 0,2$, $22,0 \pm 0,2$, $22,5 \pm 0,2$, $23,5 \pm 0,2$, $25,2 \pm 0,2$, $26,1 \pm 0,2$, $27,6 \pm 0,2$ và $28,4 \pm 0,2$, (d) $5,7 \pm 0,2$, $7,6 \pm 0,2$, $8,6 \pm 0,2$, $10,4 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $13,5 \pm 0,2$, $13,8 \pm 0,2$, $15,4 \pm 0,2$, $16,1 \pm 0,2$, $16,5 \pm 0,2$, $17,4 \pm 0,2$, $17,7 \pm 0,2$, $18,6 \pm 0,2$, $19,5 \pm 0,2$, $20,5 \pm 0,2$, $21,8 \pm 0,2$, $23,5 \pm 0,2$, $25,4 \pm 0,2$, $26,3 \pm 0,2$ và $28,2 \pm 0,2$ hoặc (e) $5,9 \pm 0,2$, $7,6 \pm 0,2$, $10,5 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $13,6 \pm 0,2$, $15,5 \pm 0,2$, $16,2 \pm 0,2$, $16,6 \pm 0,2$, $17,6 \pm 0,2$, $18,6 \pm 0,2$, $19,4 \pm 0,2$, $20,6 \pm 0,2$, $21,9 \pm 0,2$, $25,6 \pm 0,2$,

$26,6 \pm 0,2$ và $28,1 \pm 0,2$. Tất cả các đỉnh này được suy ra từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của năm hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit maleic thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1b (Bảng 5a và 5d) và 1c (Bảng 5b). Các giá trị 2θ lần lượt được thể hiện trong bảng 5b và 5e thu được sau khi lần lượt các tinh thể của bảng 5a và 5d được phân tích tính ổn định hoá học. Bảng 5 cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 8 (Bảng 5a và b), 9 (Bảng 5c) và 10 (Bảng 5d và e).

BẢNG 5

Đỉnh	2θ (a)	Cường độ (a)	2θ (b)	Cường độ (b)	2θ (c)	Cường độ (c)	2θ (d)	Cường độ (d)	2θ (e)	Cường độ (e)
1	7,6	M	5,4	M	11,7	W	5,7	W	5,9	W
2	10,3	M	10,9	M	12,5	W	7,6	M	7,6	M
3	12,4	M	13,8	M	17,6	W	8,6	W		
4	16,4	W	15,9	M	18,5	W	10,4	W	10,5	W
5	16,9	M	<u>16,5</u>	<u>M</u>	19,1	W	11,8	W	11,8	W
6	18,2	W	17,0	W	20,8	M	13,5	W	13,6	W
7	19,4	M	18,6	M	21,4	W	13,8	W		
8	20,2	M	19,1	M	22,0	S	15,4	M	15,5	W
9	20,7	S	21,1	M	22,5	M	16,1	W	16,2	W
10	22,6	M	21,8	S	23,5	M	16,5	M	16,6	W
11	24,8	M	22,6	W	25,2	M	17,4	M	17,6	W
12	25,8	S	23,6	S	26,1	M	17,7	M		
13	28,0	M	25,3	M	27,6	M	18,6	M	18,6	W
14	29,4	M	27,7	S	28,4	W	19,5	S	19,4	W
15							20,5	S	20,6	W
16							21,8	S	21,9	M

17							23,5	M		
18							25,4	S	25,6	W
19							26,3	S	26,6	W
20							28,2	M	28,1	W

Theo phương án khác, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit oxalic. Theo phương án khác nữa, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit oxalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 6A(a), 6A(b), 6A(c) hoặc 6A(d). Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit oxalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 6A(a), 6A(b), 6A(c) hoặc 6A(d). Bảng 6A thể hiện các giá trị 2θ của các vị trí đỉnh được chọn của mẫu nhiễu xạ bột tia X của bốn hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng lần lượt phương pháp của ví dụ 1a, b, c và d, cũng như cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 11 (Bảng 6A(a), 12 (Bảng 6A(b)) và 13 (Bảng 6A(c) và (d)).

BẢNG 6A

Đỉnh	2θ (a)	Cường độ (a)	2θ (b)	Cường độ (b)	2θ (c)	Cường độ (c)	2θ (d)	Cường độ (d)
1	6,1	M	6,5	M	6,5	W	6,6	W
2	7,8	W	8,4	M	10,9	W	8,4	W
3	10,4	W	10,3	W	16,6	W	9,2	W
4	15,7	W	11,1	M	17,4	W	11,0	W
5	18,7	W	<u>13,3</u>	<u>W</u>	19,5	W	15,6	W
6	19,1	W	16,5	M	20,4	W	16,3	M

7	20,3	M	17,7	W	20,7	W	17,6	W
8	21,9	M	18,8	M	22,6	W	19,3	W
9	22,2	M	19,3	M	25,9	M	19,7	W
10	22,7	W	19,8	M			20,8	M
11	25,4	S	20,9	S			22,6	M
12	26,6	W	22,7	S			25,7	M
13			26,3	S			26,1	M
14			27,2	W			27,2	W
15			29,0	M			28,7	W

Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit oxalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm: $6,7 \pm 0,2$, $10,3 \pm 0,2$, $11,1 \pm 0,2$, $14,9 \pm 0,2$, $16,3 \pm 0,2$ và $19,7 \pm 0,2$. Tốt hơn nữa nếu mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị góc 2θ được liệt kê ở trên. Các giá trị góc 2θ này được suy ra từ đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho hợp chất đồng tinh thể; bảng 6B bao gồm các giá trị 2θ này cũng như các giá trị đỉnh khác xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc axit oxalic cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit oxalic được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 6B, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X có giá trị góc 2θ là: $6,7 \pm 0,2$, $8,4 \pm 0,2$, $10,3 \pm 0,2$, $11,1 \pm 0,2$, $14,9 \pm 0,2$, $16,3 \pm 0,2$, $18,7 \pm 0,2$, $19,5 \pm 0,2$, $19,7 \pm 0,2$, $21,0 \pm 0,2$, $22,2 \pm 0,2$, $22,6 \pm 0,2$, $26,0 \pm 0,2$, $27,2 \pm 0,2$, $28,7 \pm 0,2$ và $28,1 \pm 0,2$. Tất cả các đỉnh được tìm thấy từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1f. Bảng 6B cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 14.

BẢNG 6B

Đỉnh	2 θ	Cường độ
1	6,7	S
2	8,4	M
3	10,3	M
4	11,1	M
5	14,9	M
6	16,3	S
7	18,7	S
8	19,5	M
9	19,7	M
10	21,0	S
11	22,2	S
12	22,6	S
13	26,0	S
14	27,2	M
15	28,7	S
16	31,1	S

Theo phương án khác, sáng chế đề xuất dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit tartaric. Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit tartaric được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2 θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2 θ được liệt kê trong bảng 7A(a) hoặc bảng 7A(b). Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit tartaric đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả các giá trị góc 2 θ được liệt kê trong bảng 7A(a) hoặc bảng 7A(b). Bảng 7A thể hiện các giá trị 2 θ của các vị trí đỉnh được chọn của mẫu nhiễu xạ bột tia X của hai hợp chất đồng tinh

thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng lần lượt phương pháp của ví dụ 1a và b, cũng như cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy lần lượt được thể hiện trên Fig. 15 và 16.

BẢNG 7A

Đỉnh	2 θ	Cường độ (a)	2 θ	Cường độ (b)
1	9,4	W	6,8	M
2	12,3	W	7,4	W
3	16,2	M	11,4	M
4	19,8	W	12,4	M
5	21,4	W	16,8	W
6	23,3	S	17,4	M
7	24,6	W	17,8	M
8	25,7	M	19,4	S
9	27,0	W	19,9	M
10			20,5	M
11			20,9	S
12			22,8	S
13			24,2	M
14			25,1	M
15			29,6	S

Theo phương án khác, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit tartaric được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X được thể hiện theo góc 2 θ , trong đó mẫu nhiễu xạ bột tia X có ít nhất ba giá trị góc 2 θ được chọn từ nhóm bao gồm $6,0 \pm 0,2$, $12,0 \pm 0,2$, $18,0 \pm 0,2$ và $24,6 \pm 0,2$. Tốt hơn nữa nếu mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất

cả các giá trị góc 2θ được liệt kê ở trên. Các giá trị góc 2θ này suy ra từ các đỉnh của mẫu nhiễu xạ bột tia X có thể gán hoàn toàn cho hợp chất đồng tinh thể; bảng 7B bao gồm các giá trị 2θ cũng như các giá trị đỉnh khác xuất hiện trong mẫu nhiễu xạ bột tia X của propiconazol và/hoặc axit tartaric cũng như hợp chất đồng tinh thể. Theo một phương án, dạng hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và axit tartaric được đặc trưng bởi mẫu nhiễu xạ bột tia X có tất cả giá trị góc 2θ được liệt kê trong bảng 7B, đó là, mẫu nhiễu xạ bột tia X có các giá trị góc 2θ là: $6,0 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $12,0 \pm 0,2$, $12,7 \pm 0,2$, $16,1 \pm 0,2$, $17,5 \pm 0,2$, $18,0 \pm 0,2$, $19,0 \pm 0,2$, $20,1 \pm 0,2$, $21,9 \pm 0,2$, $22,5 \pm 0,2$, $24,6 \pm 0,2$, $26,4 \pm 0,2$, $27,7 \pm 0,2$ và $29,6 \pm 0,2$. Tất cả các đỉnh được tìm thấy từ mẫu nhiễu xạ bột tia X của hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được bằng cách sử dụng phương pháp của ví dụ 1e. Bảng 7B cũng liệt kê cường độ của các đỉnh này (mạnh (S), trung bình (M) hoặc yếu (W)). Biểu đồ nhiễu xạ từ đó tất cả vị trí các đỉnh được tìm thấy được thể hiện trên Fig. 17.

BẢNG 7B

Đỉnh	2θ	Cường độ
1	6,0	S
2	11,8	S
3	12,0	M
4	12,7	M
5	16,1	M
6	17,5	S
7	18,0	M
8	19,0	M
9	20,1	S
10	21,9	S
11	22,5	S
12	24,6	W

13	26,4	S
14	27,7	M
15	29,6	S

Đã ngạc nhiên phát hiện ra rằng khi hợp chất tạo đồng tinh thể và propiconazol được tạo điều kiện để hình thành hợp chất đồng tinh thể, hợp chất đồng tinh thể tạo thành làm tăng tính chất được cải thiện của propiconazol so với propiconazol dạng tự do. Cụ thể, hợp chất đồng tinh thể biểu hiện điểm tan chảy cao hơn về căn bản so với propiconazol đơn nhất (xem Fig. 29 đến 41 về kết quả phép đo nhiệt lượng quét vi sai của hợp chất đồng tinh thể propiconazol theo sáng chế thể hiện các điểm tan chảy tăng). Điểm tan chảy tăng lên rất quan trọng vì có lợi cho việc sản xuất, điều chế và lưu giữ. Đặc biệt, trạng thái rắn mới này của propiconazol, có điểm tan chảy cao hơn phạm vi nhiệt độ thông thường liên quan đến chế biến và lưu giữ, sẽ không trải qua sự tan chảy và tái kết tinh trong suốt quá trình điều chế chúng và sẽ không trải qua sự tái kết tinh trong lưu giữ của cả vật liệu loại kỹ thuật và vật liệu được điều chế - vật liệu kỹ thuật và vật liệu điều chế, do đó, giữ được tính đồng nhất của chúng. Ngoài ra, điểm tan chảy cao hơn sẽ chấp nhận dạng chế phẩm rắn mới, như huyền phù đậm đặc, nhũ tương huyền phù, và hạt thấm ướt, được phát triển và sẽ dẫn đến lợi ích về độ tinh khiết tiềm năng (nhờ có khả năng tách trạng thái rắn hơn là lỏng) cũng như các đặc tính xử lý được cải thiện (ví dụ, độc tính giảm). Cuối cùng, hỗn hợp của các trạng thái rắn mới này của propiconazol với thành phần hoạt tính khác cho thấy tính ổn định được cải thiện do giảm mạnh điểm tan chảy bằng thành phần hoạt tính khác sẽ không quyết định.

Như được sử dụng ở đây “hợp chất đồng tinh thể” có nghĩa là vật liệu tinh thể bao gồm hai hoặc nhiều thành phần đơn nhất ở tỷ lệ hoá học lượng pháp, mỗi thành phần có đặc tính lí học phân biệt như cấu trúc, điểm tan chảy và nhiệt tan chảy. Như được sử dụng ở đây, hợp chất đồng tinh thể khác biệt với muối kết tinh vì nó chứa thành phần trung tính và thành phần không tích điện như được tìm thấy trong muối. Hợp chất đồng tinh thể có thể hình thành thông qua một số phương thức nhận dạng phân tử bao gồm liên kết hydro, $\pi(\pi)$ -xen phủ, phức hệ khách-chủ và tương tác Van-De-Waal. Trong các tương tác được liệt kê ở trên, liên kết hydro là tương tác có ưu thế hơn trong sự hình thành hợp chất đồng tinh thể, trong đó liên kết không cộng hoá

trị được hình thành giữa phân tử cho liên kết hydro của một trong số các gốc và phân tử nhận liên kết hydro của gốc còn lại. Hợp chất đồng tinh thể được ưu tiên theo sáng chế là những hợp chất trong đó liên kết hydro xuất hiện giữa hợp chất tạo đồng tinh thể và propiconazol. Lưu ý rằng, sự tiếp xúc đa điểm có thể được hình thành trong tinh thể. Ví dụ, hai phân tử propiconazol có thể tiếp xúc với các nhóm chức khác nhau trên chất đồng tạo thành, hoặc, thực tế, có thể có tiếp xúc đa điểm giữa phân tử đơn của propiconazol và phân tử đồng tạo thành.

Lưu ý rằng liên kết hydro có thể dẫn đến một số tổ hợp liên phân tử và, như vậy, hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế có thể tồn tại ở một hoặc nhiều dạng đa hình. Hợp chất đồng tinh thể đa hình có thể chứa bất kỳ tỷ lệ mol nào của thành phần hoạt tính với chất đồng tạo thành, nhưng tỷ lệ điển hình là trong phạm vi từ 3:1 đến 1:3. Vì propiconazol có hiện tượng đồng phân, dạng đa hình này cũng có thể chứa tỷ lệ đồng phân khác. Đây cũng là trường hợp khi hợp chất tạo đồng tinh thể có hiện tượng đồng phân. Mỗi dạng đa hình có thể được xác định bằng một hoặc nhiều kỹ thuật phân tích trạng thái rắn bao gồm nhiễu xạ tia X dạng tinh thể đơn, nhiễu xạ tia X dạng bột, DSC, quang phổ Raman hoặc tia hồng ngoại. Trong các bảng 1, 2, 5, 6 và 7 ở trên, các vết nhiễu xạ nhiễu và khác nhau và, do đó, giá trị 2θ , đối với hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và chất đồng tạo thành cụ thể, cho thấy rằng những hợp chất đồng này có thể tồn tại trong một số dạng đa hình.

Như được sử dụng ở đây, thuật ngữ 'propiconazol' đề cập đến $(\pm)$ -1-[2-(2,4-dichlorophenyl)-4-propyl-1,3-dioxolan-2-ylmethyl]-1H-1,2,4-triazol, bốn chất đồng phân lập thể của nó (2R, 4S; 2S, 4R; 2R, 4R; 2S, 4S), các cặp chất đồng phân không đối quang của chúng và hỗn hợp các cặp chất đồng phân không đối quang. Cụ thể là, 'propiconazol' đề cập đến vật liệu kỹ thuật propiconazol sẵn có trên thị trường.

Thích hợp nếu, tỷ lệ mol của propiconazol với hợp chất tạo đồng tinh thể trong hợp chất đồng tinh thể nằm trong phạm vi từ 3:1 đến 1:3. Thích hợp hơn nếu, tỷ lệ mol của propiconazol với hợp chất tạo đồng tinh thể trong hợp chất đồng tinh thể nằm trong phạm vi từ 2:1 đến 1:1.

Hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế được hình thành bằng cách cho propiconazol tiếp xúc với hợp chất tạo đồng tinh thể. Điều này có thể thực hiện được bằng cách (i) nghiền hai chất rắn cùng nhau, (ii) nung chảy, hoặc nung chảy một phần,

một hoặc cả hai thành phần và để cho chúng tái kết tinh, (iii) hoà tan, hoặc hoà tan một phần, propiconazol và bổ sung hợp chất tạo đồng tinh thể hoặc (iv) hoà tan, hoặc hoà tan một phần hợp chất tạo đồng tinh thể và bổ sung propiconazol. Cũng có thể có khả năng hoà tan hoặc hoà tan một phần propiconazol trong hợp chất tạo đồng tinh thể và ngược lại. Sau đó, để sự kết tinh xuất hiện trong điều kiện thích hợp. Ví dụ, sự kết tinh có thể cần thay đổi đặc tính dung dịch, như độ pH hoặc nhiệt độ và có thể cần cô đặc chất tan, thường bằng cách loại bỏ dung môi và thông thường bằng cách làm khô dung dịch. Loại bỏ dung môi dẫn đến nồng độ propiconazol tăng theo thời gian để tạo thuận lợi cho sự kết tinh. Trong vài trường hợp, có thể sử dụng chiếu xạ vi sóng và/hoặc sóng âm để tạo thuận lợi cho sự kết tinh. Khi pha rắn chứa bất kỳ tinh thể nào được tạo ra, có thể kiểm tra điều này như đã mô tả ở đây.

Do đó, sáng chế đề xuất quy trình điều chế hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và hợp chất tạo đồng tinh thể bao gồm bước:

(a) nghiên cứu, nung nóng hoặc cho propiconazol tiếp xúc trong dung dịch với hợp chất tạo đồng tinh thể, trong điều kiện kết tinh để hình thành pha rắn;

(b) tách hợp chất đồng tinh thể chứa propiconazol và hợp chất tạo đồng tinh thể.

Hợp chất tạo đồng tinh thể để sử dụng trong quy trình của sáng chế đã được xác định ở trên. Theo một phương án của quy trình, hợp chất tạo đồng tinh thể được chọn từ nhóm bao gồm 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen, D-riboza, axit maleic, axit oxalic, axit tartaric, axit terephthalic và axit trimesic.

Theo phương án khác của quy trình, hợp chất tạo đồng tinh thể được chọn từ nhóm bao gồm axit terephthalic, axit oxalic và axit trimesic.

Có thể thực hiện phân tích pha rắn đối với sự có mặt của hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và hợp chất tạo đồng tinh thể bằng phương pháp thông thường đã biết trong lĩnh vực. Ví dụ, thuận tiện và thông dụng là sử dụng kỹ thuật nhiễu xạ tia X dạng bột để đánh giá sự có mặt của hợp chất đồng tinh thể. Điều này có thể được thực hiện bằng cách so sánh quang phổ của propiconazol, hợp chất tạo đồng tinh thể và hợp chất đồng tinh thể giả định để xác minh có hợp chất đồng tinh thể thực sự được hình thành hay không. Kỹ thuật khác được sử dụng theo kiểu tương tự, bao gồm phép đo nhiệt lượng quét vi sai (differential scanning calorimetry - DSC), phép phân tích trọng lượng nhiệt (thermogravimetric analysis - TGA), phổ học Raman và IR, NMR, sắc ký

khí và HPLC. Sự nhiễu xạ tia X đơn tinh thể đặc biệt hữu dụng trong nhận biết cấu trúc hợp chất đồng tinh thể.

Hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế có thể dễ dàng được kết hợp vào chế phẩm diệt nấm (bao gồm chế phẩm hoá nông và các chế phẩm sử dụng để bảo vệ vật liệu công nghiệp) bằng các phương pháp thông thường. Do đó, sáng chế cũng đề xuất chế phẩm diệt nấm chứa hợp chất đồng tinh thể của propiconazol và hợp chất tạo đồng tinh thể, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể như được xác định ở trên. Theo phương án khác, chế phẩm diệt nấm là chế phẩm hoá nông.

Chế phẩm hoá nông chứa hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế có thể được sử dụng để phòng trừ nấm gây bệnh cho thực vật trên một số loài thực vật. Do đó, sáng chế cũng đề cập đến phương pháp ngăn ngừa/phòng trừ nhiễm nấm trên cây trồng hoặc vật liệu nhân giống thực vật bao gồm bước xử lý thực vật hoặc vật liệu nhân giống với lượng có hiệu quả diệt nấm của chế phẩm nông nghiệp theo sáng chế. Vì ‘vật liệu nhân giống thực vật’ có nghĩa là giống của tất cả các loại (quả, thân củ, củ, hạt, v.v.), cành giâm, chồi cây cắt và tương tự.

Cụ thể là, chế phẩm hoá nông theo sáng chế có thể được sử dụng để phòng trừ, ví dụ, *Cochliobolus sativus*, *Erysiphe graminis*, *Leptosphaeria nodorum*, *Puccinia* spp., *Pyrenophora teres*, *Pyrenophora Iritici-repentis*, *Rhynchosporium secalis*, *Septoria* spp, *Mycosphaerella musicola*, *Mycosphaerella fijiensis* var. *difformis*, *Sclerotica homoeocarpa*, *Rhizoctonia solani*, *Puccinia* spp., *Erysiphe graminis*, *Rhizoctonia solani*, *Helminthosporium oryzae*, nhiều phức hệ cụm hoa, *Hemileia vastatrix*, *Cercospora* spp., *Monilinia* spp., *Podosphaera* spp., *Sphaerotheca* spp., *Tranzschelia* spp. và *Helminthosporium* spp.

Chế phẩm hoá nông theo sáng chế thích hợp để phòng trừ bệnh trên một số thực vật và vật liệu nhân giống chúng bao gồm, nhưng không giới hạn ở thực vật được sử dụng sau: ngũ cốc (lúa mì, lúa mạch, lúa mạch đen, yến mạch, ngô (bao gồm cả ngô trồng, bông ngô và ngô ngọt), gạo, lúa miến và cây trồng liên quan); củ cải (củ cải đường và củ cải đường cho chăn nuôi); cây họ đậu (đậu, cây lăng, đậu Hà Lan, đậu tương); cây có dầu (nhu, mù tạc, hoa hướng dương); cây leo (bí ngô, dưa chuột, dưa hấu); cây sợi (bông, lanh, gai dầu, sợi đay); rau (rau bina, rau diếp, măng tây, bắp cải, cà rốt, cà tím, hành, tiêu, cà chua, khoai tây, ớt bột, đậu bắp); các cây trồng ở đồn điền

(chuối, cây ăn quả, cây cao su, cây vườn ươm), cây cảnh (hoa, cây bụi, cây tán rộng và cây xanh, như lá kim); cũng như thực vật khác như dây leo, bụi cây quả mọng (như cây việt quất), cây thuộc họ việt quất, cây nam việt quất, cây bạc hà, cây đại hoàng, cây bạc hà xanh, mía và tầng cỏ bao gồm, nhưng không giới hạn ở, tầng cỏ ở mùa mát (ví dụ, cỏ xanh lam (*Poa L*), như cỏ xanh lam Kentucky (*Poa pratensis L.*), cỏ xanh lam nhám (*Poa trivialis L.*), cỏ xanh lam Canada (*Poa compressa L.*) và cỏ xanh lam ngắn ngày (*Poa annua L.*); cỏ ống (*Agrostis L.*), như cỏ cuộn ống từ từ (*Agrostis palustris Huds.*), cỏ ống xâm lấn (*Agrostis lenius Sibth.*), cỏ ống nhung (*Agrostis canina L.*) và cỏ ống có ngọn đỏ (*Agrostis alba L.*); cỏ đuôi trâu (*Festuca L.*), như cỏ đuôi trâu cao (*Festuca arundinacea Schreb.*), cỏ đuôi trâu trên bãi cỏ (*Festuca elatior L.*) và cỏ đuôi trâu mịn như cỏ đuôi trâu đỏ dần (*Festuca rubra L.*), cỏ đuôi trâu để nhai (*Festuca rubra var. commutata Gaud.*), cỏ đuôi trâu cừu (*Festuca ovina L.*) và cỏ đuôi trâu cứng (*Festuca longifolia*); và cỏ lúa mạch (*Lolium L.*), như cỏ lúa mạch lâu năm (*Lolium perenne L.*) và cỏ ngắn này (Italian) (*Lolium multiflorum Lam.*)) và tầng cỏ mùa ấm (ví dụ, cỏ Bermuda (*Cynodon L. C. Rich*), bao gồm cỏ Bermuda lai và cỏ Bermuda nói chung; cỏ Zoysia (*Zoysia Willd.*), St. cỏ Augustin (*Stenotaphrum secundatum (Walt.) Kuntze*); và cỏ rết (*Eremochloa ophiuroides (Munro.) Hack.*)).

Ngoài ra “cây trồng” được hiểu bao gồm cây trồng được làm cho có khả năng chịu được sinh vật gây hại và thuốc diệt sinh vật gây hại, bao gồm thuốc diệt cỏ hoặc các loại thuốc diệt cỏ, là kết quả của phương pháp thông thường trong nhân giống hoặc kỹ thuật di truyền. Dung nạp được, ví dụ, thuốc diệt cỏ có nghĩa là giảm nhạy với mối nguy hại có nguyên nhân do thuốc diệt cỏ cụ thể nào đó so với giống cây thông thường. Cây trồng có thể được biến đổi hoặc nhân giống để có khả năng chịu được, ví dụ, chất ức chế HPPD như mesotrion hoặc chất ức chế EPSPS như glyphosat.

Tỷ lệ mà ở đó chế phẩm hoá nông theo sáng chế được dùng sẽ phụ thuộc vào dạng cụ thể của nấm bị phòng trừ, mức độ kiểm soát cần thiết và thời gian và phương pháp dùng. Thông thường, chế phẩm theo sáng chế có thể được dùng ở tỷ lệ nằm trong khoảng từ 0,005 kilogam/hecta (kg/ha) đến 5,0kg/ha, dựa trên tổng lượng propiconazol hoạt tính trong chế phẩm. Tỷ lệ dùng nằm trong khoảng từ 0,1 kg/ha đến khoảng 3,0 kg/ha được ưu tiên, với tỷ lệ dùng trong khoảng 0,2kg/ha và 1kg/ha được đặc biệt ưu tiên.

Thực tế, chế phẩm hoá nông chứa các hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế được dùng như chế phẩm điều chế chứa chất phụ trợ và chất mang khác nhau đã được biết đến hoặc được sử dụng trong công nghiệp. Do đó, chúng có thể được điều chế ở dạng hạt, bột có thể thấm ướt, nhũ tương đậm đặc, huyền phù đậm đặc, bột hoặc bụi, chất chảy được, dung dịch, huyền phù hoặc nhũ tương hoặc nhũ tương huyền phù, hoặc dạng giải phóng được kiểm soát như vi nang. Thích hợp nếu chế phẩm hoá nông theo sáng chế có thể được điều chế ở dạng huyền phù đậm đặc, nhũ tương huyền phù hoặc hạt thấm ướt. Các chế phẩm điều chế này được mô tả chi tiết hơn dưới đây và có thể chứa một ít khoảng 0,5% tới nhiều khoảng 95% hoặc hơn theo trọng lượng thành phần hoạt tính trong dạng hợp chất đồng tinh thể. Lượng tối ưu phụ thuộc vào chế phẩm, thiết bị sử dụng và bản chất của nấm gây bệnh thực vật bị kiểm soát.

Bột có thể thấm ướt là dạng hạt phân chia mịn, phân tán dễ dàng trong nước hoặc chất mang dạng lỏng khác. Hạt chứa thành phần hoạt tính được giữ lại trong chất nền rắn. Chất nền rắn điển hình bao gồm đất tẩy màu, đất sét cao lanh, silic đioxit và chất rắn hữu cơ hoặc chất rắn vô cơ có thể thấm ướt dễ dàng khác. Bột có thể thấm ướt thường chứa khoảng 5% đến 95% thành phần hoạt tính cộng thêm một lượng nhỏ chất thấm ướt, phân tán hoặc nhũ tương.

Nhũ tương đậm đặc là chế phẩm lỏng đồng nhất có thể phân tán trong nước hoặc chất lỏng khác và có thể bao gồm toàn bộ hợp chất hoạt tính với chất nhũ tương rắn hoặc lỏng, hoặc có thể chứa chất mang dạng lỏng, như xylen, naphta thơm nặng, isophoron và dung môi hữu cơ không bay hơi khác. Khi sử dụng, các chất đậm đặc này được phân tán trong nước hoặc chất lỏng khác và thường được dùng bằng cách phun lên diện tích được xử lý. Lượng thành phần hoạt tính có thể thay đổi trong khoảng nồng độ từ 0,5% đến 95%.

Huyền phù đậm đặc là chế phẩm trong đó, hạt rắn được phân chia mịn của hợp chất hoạt tính được huyền phù hoá ổn định. Hạt rắn có thể được huyền phù hoá trong dung dịch nước hoặc trong dầu (như thể phân tán dầu). Chế phẩm này bao gồm chất chống lắng và chất phân tán và còn có thể bao gồm chất thấm ướt để tăng hoạt tính cũng như như chất chống bọt và chất ức chế tăng trưởng tinh thể. Khi sử dụng, các chất đậm đặc này được pha loãng trong nước và thường được dùng bằng cách phun lên diện tích được xử lý. Lượng thành phần hoạt tính có thể thay đổi trong phạm vi từ khoảng nồng độ 0,5% đến khoảng 95%.

Chế phẩm dạng hạt bao gồm hạt được ép đùn và hạt tương đối thô và có thể được dùng mà không cần pha loãng lên diện tích tại đó cần phòng trừ nấm gây bệnh ở thực vật hoặc phân tán bằng bình phun trước khi dùng, ví dụ vậy. Chất mang điển hình đối với chế phẩm dạng hạt bao gồm cát, đất tẩy màu, đất sét atapungit, đất sét bentonit, đất sét montmorillonit, chất khoáng bón cây, peclit, canxi carbonat, gạch, đá bột, pyrophyllit, cao lanh, dolomit, vữa, bột gỗ, lõi ngô được nghiền, vỏ lạc được nghiền, đường, natri clorua, natri sulphat, natri silicat, natri borat, magie carbonat, mica, sắt oxit, kẽm oxit, titan oxit, antimon oxit, cryolit, thạch cao, diatomit, canxi sulphat và chất hữu cơ hoặc vô cơ khác mà hấp thu hoặc có thể được phủ bằng hợp chất hoạt tính. Chế phẩm dạng hạt để sử dụng không cần pha loãng thường chứa khoảng 5% đến khoảng 25% thành phần hoạt tính, thành phần hoạt tính này có thể bao gồm chất hoạt động bề mặt như naphta thơm nặng, kerosen và sản phẩm phân đoạn dầu khí khác, hoặc dầu thực vật; và/hoặc chất dính như dextrin, keo hoặc chất dẻo tổng hợp. Khi hạt được phân tán trong bình phun trước khi sử dụng, hàm lượng thành phần hoạt tính có thể tăng lên đến 80%.

Bụi là chất phụ gia dòng chảy tự do của thành phần hoạt tính với chất rắn được phân chia mịn như đá tan, đất sét, bột và chất rắn hữu cơ khác và vô cơ khác có vai trò làm chất phân tán và chất mang.

Vi nang thường là giọt hoặc hạt thành phần hoạt tính được bao trong vỏ xốp tro cho phép tránh khỏi các vật liệu kèm theo trong môi trường xung quanh ở tỷ lệ được kiểm soát. Đường kính giọt được bao nang thường nằm trong khoảng từ 1 đến 50 micro. Chất lỏng được bao ở bên trong thông thường cấu thành khoảng 50 đến 95% trọng lượng nang và có thể bao gồm dung môi ngoài hợp chất hoạt tính. Hạt được bao nang nói chung là hạt xốp với màng xốp bịt kín lỗ hạt mở, duy trì các loại hoạt động ở dạng chất lỏng bên trong lỗ hạt. Hạt thường có đường kính nằm trong khoảng từ 1 milimet đến 1 xentimet và tốt hơn là 1 đến 2 milimet. Hạt được hình thành bằng cách ép đùn, kết tụ hoặc tạo hạt, hoặc xuất hiện tự nhiên. Ví dụ về vật liệu này là chất khoáng bón cây, đất sét được nung, cao lanh, đất sét atapungit, mùn cưa và cacbon dạng hạt. Vỏ hoặc vật liệu màng bao gồm cao su tự nhiên và tổng hợp, vật liệu xenluloza, chất đồng trùng hợp styren-butadien, polyacrylonitril, polyacrylat, polyeste, polyamit, polyure, polyuretan và tinh bột xantat.

Các dạng chế phẩm hữu dụng khác để dùng trong hoá nông bao gồm dung dịch đơn giản của thành phần hoạt tính trong dung môi, trong đó nó được hoà tan hoàn toàn ở nồng độ mong muốn, như axeton, naphtalen được ankyl hoá, xylen và dung môi hữu cơ khác. Bình phun áp suất, trong đó thành phần hoạt tính được phân tán ở dạng mịn là kết quả của sự bay hơi của chất mang dung môi phân tán nhiệt độ sôi thấp, cũng có thể được sử dụng.

Nhiều chế phẩm được mô tả ở trên bao gồm chất thấm ướt, chất phân tán hoặc chất nhũ hoá. Ví dụ là alkyl và alkylaryl sulphonat và sulphat và muối của chúng, rượu polyhydric; rượu được polyetoxyl hoá, este và amin béo. Các chất này, khi sử dụng, thường chiếm khoảng từ 0,1% đến 15% trọng lượng của chế phẩm.

Chất phụ trợ và chất mang nông nghiệp thích hợp hữu dụng trong điều chế các chế phẩm theo sáng chế trong các loại chế phẩm được mô tả ở trên được biết rõ bởi người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này. Ví dụ thích hợp về loại khác nhau được tìm thấy trong danh sách không giới hạn dưới đây.

Chất mang dạng lỏng có thể được sử dụng bao gồm nước và chất hoà tan bất kỳ trong đó hợp chất đồng tinh thể không hòa tan hoặc hoà tan hạn chế, ví dụ toluen, xylen, naphta dầu hỏa, dầu thực vật, axeton, metyl etyl keton, xyclohexanon, anhydrit axetic, axetonitril, axetophenon, amyl axetat, 2-butanon, clobenzen, xyclohexan, xyclohexanol, alkyl axetat, rượu diaxeton, 1,2-diclopropan, dietanolamin, p-dietylbenzen, dietylen glycol, dietylen glycol abietat, dietylen glycol butyl ete, dietylen glycol etyl ete, dietylen glycol metyl ete, N,N-dimetyl formamit, dimetyl sulfoxit, 1,4-dioxan, dipropylen glycol, dipropylen glycol metyl ete, dipropylen glycol dibenzoat, diproxitol, alkyl pyrrolidinon, etyl axetat, 2-etyl hexanol, etylen carbonat, 1,1,1-tricloetan, 2-heptanon, alpha pinen, d-limonen, etylen glycol, etylen glycol butyl ete, etylen glycol metyl ete, gama-butyrolacton, glyxeron, glyxeron diaxetat, glyxeron monoaxetat, glyxeron triaxetat, hexadecan, hexylen glycol, isoamyl axetat, isobornyl axetat, isooctan, isophoron, isopropyl benzen, isopropyl myristat, axit lactic, laurylamin, mesityl oxit, metoxy-propanol, metyl isoamyl keton, metyl isobutyl keton, metyl laurat, metyl octanoat, metyl oleat, metylen clorua, m-xylen, n-hexan, n-octylamin, axit octadecanoic, octyl amin axetat, axit oleic, oleylamin, o-xylen, phenol, polyetylen glycol (PEG400), axit propionic, propylen glycol, propylen glycol monometyl ete, p-xylen, toluen, trietyl phosphat, trietylen glycol, xylem, axit sulfonic,

parafin, dầu khoáng chất, tricloetylen, percloetylen, etyl axetat, amyl axetat, butyl axetat, metanol, etanol, isopropanol và rượu có trọng lượng phân tử cao hơn như rượu amyl, rượu tetrahydrofurfuryl, hexanol, octanol, v.v. etylen glycol, propylen glycol, glyxerin, N-metyl-2-pyrrolidinon và rượu tương tự. Nước thường là chất mang được chọn để pha loãng nồng độ.

Chất mang rắn thích hợp bao gồm đá tan, titan dioxit, đất sét pyrophyllit, silic dioxit, đất sét atapungit, đất tảo cát, đá phấn, diatomit, vôi, canxi carbonat, đất sét bentonit, đất tẩy màu, vỏ hạt bông, bột mì, bột đậu tương, đá bột, bột gỗ, bột vỏ quả óc chó, chất gỗ và chất mang tương tự.

Một loạt chất hoạt động bề mặt được sử dụng thuận lợi trong cả chế phẩm rắn và lỏng nói trên, đặc biệt là, chúng được chủ định để pha loãng với chất mang trước khi dùng. Chất hoạt động bề mặt có thể có tính chất anion, cation, không ion hoặc trung hợp và có thể được sử dụng như chất nhũ hoá, chất thấm ướt, chất tạo huyền phù hoặc với mục đích khác. Chất hoạt động bề mặt thông thường bao gồm muối alkyl sulphat, như dietanolamoni lauryl sulphat; muối alkylarylsulphonat, như canxi dodexylbenzensulphonat; sản phẩm bổ sung alkylphenol-alkylen oxit, như nonylphenol-C.sub. 18 etoxylat; sản phẩm bổ sung rượu-alkylen oxit, như tridexyl rượu-C.sub. 16 etoxylat; xà phòng, như natri stearat; muối alkylnaphtalensulphonat, như natri dibutylnaphtalensulphonat; dialkyl este của muối sulphasuxinat, như natri di(2-ethylhexyl) sulphasuxinat; sorbitol este, như sorbitol oleat; amin bậc bốn, như lauryl trimetylamoni clorua; polyetylen glycol este của axit béo, như polyetylen glycol stearat; chất đồng trùng hợp khối của etylen oxit và propylen oxit; và muối của mono và dialkyl phosphat este.

Chất phụ trợ khác thường được sử dụng trong chế phẩm nông nghiệp bao gồm chất ức chế kết tinh hoá, chất biến đổi độ nhớt, chất tạo huyền phù, chất biến đổi giọt dạng phun, chất màu, chất chống oxi hoá, chất tạo bột, chất ngăn ánh sáng, chất tương thích, chất chống tạo bọt, chất cô lập, chất trung hoà và chất đệm, chất ức chế sự ăn mòn, chất nhuộm màu, chất thơm, chất lan rộng, chất hỗ trợ thấm, chất vi dưỡng, chất làm mềm, chất bôi trơn, chất gắn dính, và chất tương tự.

Ngoài ra, các thành phần hoạt tính hoặc chế phẩm diệt sinh vật khác có thể được kết hợp với chế phẩm hoá nông theo sáng chế. Ví dụ, chế phẩm có thể chứa chất

diệt nấm, chất diệt cỏ, chất diệt côn trùng, chất diệt vi khuẩn, chất diệt ghẻ, chất diệt vật ký sinh và/hoặc chất điều biến tăng trưởng thực vật khác, để mở rộng phổ hoạt tính hoặc để giảm nguy cơ phát triển sự kháng thuốc.

Mỗi chế phẩm nêu trên có thể điều chế ở dạng gói chứa thuốc diệt nấm cùng với thành phần khác của chế phẩm (chất pha loãng, chất nhũ hoá, chất hoạt động bề mặt, v.v.). Cũng có thể điều chế chế phẩm bằng phương pháp trộn trong bình, trong đó, thành phần hoạt tính thu được riêng rẽ và kết hợp lại ở vị trí trồng cây.

Có thể dùng chế phẩm trên diện tích phòng trừ mong muốn bằng các phương pháp thông thường. Bụi và chế phẩm lỏng, ví dụ, có thể được dùng bằng sử dụng máy hút bụi bột, chổi và bình phun tay và máy phun bụi. Các chế phẩm cũng có thể được phủ từ máy bay ở dạng bụi hoặc phun hoặc bằng các ứng dụng sợi bắc. Có thể dùng cả chế phẩm rắn và lỏng cho đất trên khu vực thực vật cần được xử lý để thành phần hoạt tính thấm vào cây qua rễ. Chế phẩm theo sáng chế cũng có thể được sử dụng để bao ngoài vật liệu nhân giống thực vật để bảo vệ chống lại sự nhiễm nấm ở vật liệu nhân giống thực vật cũng như chống lại nấm bệnh do thực vật xuất hiện trong đất. Thích hợp nếu thành phần hoạt tính có thể được dùng cho vật liệu nhân giống thực vật được bảo vệ bằng cách ngâm vật liệu nhân giống thực vật, cụ thể, hạt, với chế phẩm lỏng của chất diệt nấm hoặc phủ chế phẩm rắn bên ngoài nó. Trong trường hợp đặc biệt, các kiểu ứng dụng khác cũng có thể, ví dụ, xử lý đặc hiệu giám canh hoặc nhánh để nhân giống.

Thích hợp nếu chế phẩm hoá nông và chế phẩm điều chế theo sáng chế được dùng trước khi bệnh phát triển. Tỷ lệ và tần suất sử dụng chế phẩm điều chế là tỷ lệ và tần suất thông thường được sử dụng trong lĩnh vực và sẽ phụ thuộc vào nguy cơ nhiễm mầm bệnh gây nấm.

Chế phẩm theo sáng chế cũng có thể được sử dụng để bảo vệ vật liệu công nghiệp. Do đó, vẫn theo khía cạnh khác, sáng chế đề xuất phương pháp để bảo vệ vật liệu công nghiệp khỏi sự tấn công của nấm bao gồm bước xử lý vật liệu công nghiệp bằng chế phẩm chứa hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế. Theo khía cạnh khác, sáng chế mô tả sử dụng chế phẩm chứa hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế để bảo vệ vật liệu công nghiệp. Theo phương án cụ thể, vật liệu công nghiệp đã nêu được chọn từ nhóm bao gồm: gỗ; chất dẻo; hợp chất composit nhựa gỗ; sơn; giấy; và ván lát tường.

"Vật liệu công nghiệp" bao gồm, nhưng không giới hạn ở, các vật liệu được sử dụng trong xây dựng và vật liệu tương tự thế. Ví dụ, vật liệu công nghiệp có thể là gỗ xây dựng, cửa, giá đỡ, các bộ phận lưu trữ, thảm, thảm sợi tự nhiên đặc biệt như len và vải bao bố, chất dẻo, gỗ (bao gồm gỗ xây dựng) và hợp chất composit nhựa gỗ.

Theo phương án cụ thể, vật liệu công nghiệp là chất bao phủ. "Chất bao phủ" bao gồm, nhưng không giới hạn ở, chế phẩm được dùng làm chất nền, ví dụ, sơn, chất nhuộm màu, véc-ni, sơn nghiền, sơn lót, chất phủ làm bóng một nửa, chất phủ làm bóng, chất phủ làm nhẵn, chất phủ bề mặt, chất phủ phong toả vết bẩn, chất bít kín chất nền xốp, bê tông, và đá hoa, chất phủ chất dẻo đàn hồi, chất dẻo ma tít, chất hàn, và chất bít kín, chất phủ ván và gỗ đóng ván, chất phủ phương tiện vận tải, chất phủ nội thất, và chất phủ cuộn, chất phủ cầu và bình và sơn đánh dấu bề mặt, chất phủ và chất xử lý da thuộc, chất phủ bảo vệ sàn, chất phủ giấy, chất phủ bảo vệ ở người như tóc, da, móng, chất phủ vải dệt và không dệt, và bột nhuộm màu, và chất phủ bám dính như, ví dụ, chất bám dính nhạy cảm với áp lực và chất bám dính cán mỏng khô và ướt và vữa.

Theo phương án cụ thể, chất phủ là sơn, véc-ni, chất nhuộm màu, sơn nghiền hoặc vữa. Theo phương án khác, chất phủ này là sơn nghiền. Theo phương án đặc biệt, chất phủ là sơn. Sơn có thể bao gồm, ví dụ, chất hình thành màng và chất mang (ví chất mang có thể là nước và/hoặc dung môi hữu cơ) và chất màu tùy ý.

Ngoài ra, vật liệu công nghiệp bao gồm chất dính, chất bít kín, vật liệu nối và mối nối và vật liệu cách ly. Theo phương án cụ thể, "vật liệu công nghiệp" là gỗ xây dựng. Theo phương án khác, "vật liệu công nghiệp" là gỗ kỹ thuật. Theo phương án khác, "vật liệu công nghiệp" là chất dẻo.

Chất dẻo bao gồm chất trùng hợp và chất đồng trùng hợp dẻo, bao gồm: acrylonitril butadien styren, cao su butyl, epoxy, chất trùng hợp flo, isopren, ni lông, polyetylen, polyuretan, polypropylen, polyvinyl clorua, polystyren, polycarbonat, polyvinyliden florua, polyacrylat, polymetyl metacrylat, polyuretan, polybutylen, polybutylen terephtalat, polyete sulphon, polyphenylenoxit, polyphenylen ete, polyphenylen sulphit, polyphtatamit, polysulphen, polyeste, silicon, cao su styren butadien và tổ hợp các chất trùng hợp. Theo phương án khác, "vật liệu công nghiệp" là polyvinyl clorua (PVC). Theo phương án khác, "vật liệu công nghiệp" là polyuretan

(PU). Theo phương án khác, "vật liệu công nghiệp" là hợp chất composit nhựa gỗ (wood plastic composite - WPC). Hợp chất composit nhựa gỗ là vật liệu được biết rõ trong lĩnh vực này. Báo cáo về WPC có thể tìm thấy trong công bố sau - Craig Clemons - Forrest Products Journal, tháng 6, 2002 Tập 52, Số 6, trang 10-18.

"Gỗ" được hiểu là gỗ và sản phẩm từ gỗ, ví dụ: sản phẩm gỗ phái sinh, gỗ xẻ, gỗ dán, gỗ ép, ván ép, ép dầm, ván dăm định hướng, ván ghép rắn, và ván ghép mảnh, gỗ nhiệt đới, gỗ kiến trúc, dầm gỗ, tà vẹt đường ray xe lửa, thành phần của cầu, cầu tàu, xe được chế tạo từ gỗ, hộp, tấm kê, thùng đựng hàng, cột đỡ dây điện báo, hàng rào gỗ, chất không dẫn nhiệt bằng gỗ, cửa sổ và cửa chính được làm từ gỗ, gỗ dán, gỗ ép, đồ gỗ, hoặc sản phẩm gỗ được sử dụng, hầu hết để xây dựng nhà cửa hoặc boong tàu, trong thi công đồ gỗ hoặc sản phẩm gỗ mà nói chung được sử dụng trong xây dựng nhà cửa bao gồm gỗ thiết kế, xây dựng và làm mộc.

"Vật liệu công nghiệp" cũng bao gồm chất bôi trơn làm mát và hệ thống làm mát và gia nhiệt, hệ thống điều hoà không khí và thông gió và các bộ phận của nhà máy sản xuất, ví dụ, mạch nước làm mát.

"Vật liệu công nghiệp" cũng bao gồm ván lát tường như ván lát tường nền thạch cao.

Cũng theo khía cạnh khác, sáng chế đề xuất vật liệu công nghiệp bao gồm chế phẩm chứa hợp chất đồng tinh thể theo sáng chế. Theo phương án cụ thể, vật liệu công nghiệp này được chọn từ nhóm bao gồm gỗ, chất dẻo, hợp chất composit nhựa gỗ, sơn, giấy và ván lát tường. Theo phương án cụ thể, vật liệu công nghiệp này bao gồm gỗ.

Vật liệu công nghiệp có thể được xử lý bằng chế phẩm của sáng chế theo một số cách, bao gồm nhưng không giới hạn ở, đưa chế phẩm vào trong chính vật liệu công nghiệp, hấp thụ, làm cho thấm vào, xử lý (trong hệ thống chân không hoặc áp suất khép kín) vật liệu này với chế phẩm nói trên, làm ướt hoặc ngâm vật liệu xây dựng, hoặc phủ vật liệu xây dựng bằng cách, ví dụ, dùng rèm phủ, con lăn, bàn trải, phun, phun mù, quét bụi, tán xạ hoặc đổ. Chế phẩm theo sáng chế có thể được điều chế để sử dụng trong xử lý vật liệu công nghiệp bằng cách sử dụng kỹ thuật đã biết rõ đối với người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực này. Chế phẩm này có thể dùng, ví dụ, vật liệu chế phẩm được liệt kê ở trên liên quan đến chế phẩm hoá nông.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Ví dụ 1a. Điều chế hợp chất đồng tinh thể bằng cách nuôi lớn

Cân khoảng 20mg propiconazol cho vào lọ nhỏ 1,5ml. Bổ sung khoảng 1 đương lượng (trọng lượng) chất đồng tạo thành vào propiconazol. Bổ sung 100 μ l etanol, metyl xyanat, etyl axetat, tetrahydrofuran hoặc toluen và bột nhão hình thành được làm đầy lên trong 7 ngày ở chu kỳ nhiệt độ 8 giờ (nung nóng từ nhiệt độ phòng tới 50°C trong 4 giờ và sau đó làm mát trở lại nhiệt độ phòng trong 4 giờ tiếp theo). Sau đó, làm khô mẫu qua đêm trong lò chân không ở nhiệt độ phòng.

Ví dụ 1b. Điều chế hợp chất đồng tinh thể bằng cách nghiền

Tiến hành nghiền bằng cách sử dụng máy nghiền bóng Copley biến đổi có khả năng sàng thông lượng cao. Cân khoảng 10mg propiconazol cho vào máy nghiền bóng thép không rỉ trước khi bổ sung 1 đương lượng (trọng lượng) chất đồng tạo thành, quả bóng thép không rỉ và 100 μ l hexan. Lắc mẫu với tần số 20Hz trong 60 phút. Sau đó, làm khô mẫu qua đêm trong lò chân không ở nhiệt độ phòng.

Ví dụ 1c. Điều chế hợp chất đồng tinh thể bằng bức xạ vi sóng

Cân khoảng 50mg propiconazol cho vào ống vi sóng 10ml rồi bổ sung 1 đương lượng (trọng lượng) chất đồng tạo thành và 100 μ l hexan. Chiếu bức xạ vào mẫu sử dụng lò vi sóng CEM nhận biết lớp S trong 10 phút (nhiệt độ tối đa là 150°C; công suất lò vi sóng là 300W).

Ví dụ 1d. Điều chế hợp chất đồng tinh thể bằng sóng âm

Cân khoảng 50mg propiconazol cho vào lọ HPLC 1,5ml rồi bổ sung 1 đương lượng (trọng lượng) chất đồng tạo thành và 100 μ l hexan. Sau đó, mẫu phải chịu một loạt xung sóng âm gián tiếp (3 giây bật và 5 giây tắt) bằng cách sử dụng máy phát sóng siêu âm Misonix 4000 trong thời gian 10 phút với công suất thiết bị là 100% (600W).

Ví dụ 1e. Phương pháp điều chế hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit tartaric bổ sung

Bổ sung 6,16g axit tartaric vào lọ 100ml được bao ngoài; sau đó bổ sung 77ml hỗn hợp isohexan: MeCN (1:10 thể tích/thể tích) vào lọ. Khuấy dung dịch ở 25°C sử dụng máy khuấy lực cắt cao trong 20 phút, sau đó thay thế máy khuấy lực cắt cao bằng

máy trộn thủy tinh. Bổ sung từ từ 28g propiconazol vào dung dịch để cho ra tỷ lệ mol cuối cùng là 2:1 (propiconazol:axit tartaric). Sau đó, khuấy lọ trong 12 giờ ở 25°C. Lọc sản phẩm cuối cùng bằng máy lọc chân không và sau đó làm khô trong lò chân không.

Ví dụ 1f. Phương pháp điều chế hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit oxalic bổ sung

Bổ sung 30ml axetonitril vào lọ được bọc ngoài; sau đó bổ sung 1,315g axit oxalic vào lọ. Khuấy dung dịch bằng máy khuấy trộn thủy tinh ở 50°C trong 20 phút đến khi hoà tan axit oxalic, sau đó bổ sung từ từ 5g propiconazol vào dung dịch để cho ra tỷ lệ mol cuối cùng là 1:1 (propiconazol:axit oxalic). Sau đó khuấy lọ trong 20 phút ở 50°C. Sau đó, làm mát tự nhiên tới nhiệt độ phòng và giữ khuấy trong 12 giờ. Lọc sản phẩm cuối cùng bằng máy lọc chân không và sau đó làm khô trong lò chân không.

Ví dụ 1g. Phương pháp điều chế hợp chất đồng tinh thể propiconazol-axit terephthalic bổ sung

Bổ sung 20ml DMSO vào cốc có mỏ 100ml; tiếp đó bổ sung thêm 1,21g axit terephthalic, sau đó bổ sung từ từ 5g propiconazol để thu được tỷ lệ mol cuối cùng là 1:1 (propiconazol:axit terephthalic). Khuấy dung dịch thu được bằng máy khuấy từ ở nhiệt độ phòng đến khi hoà tan propiconazol và terephthalic. Sau đó, chuyển dung dịch vào đĩa kết tinh và để bay hơi ở nhiệt độ phòng; tách tinh thể thu được khi DMSO bay hơi hoàn toàn.

Ví dụ 2. Phân tích hợp chất đồng tinh thể

Sau khi điều chế bằng một trong các phương pháp chi tiết ở trên, loại bỏ hết dầu và chất gom hình thành. Tất cả các mẫu khác được phân tích bằng sự nhiễu xạ tia X dạng bột. Mẫu nhiễu xạ bột tia X đối với mỗi tinh thể hình thành được thể hiện trong các Fig từ 1 đến 17 như mô tả ở trên. Các vết nhiễu xạ tia X dạng bột thể hiện rõ ràng rằng sản phẩm hợp chất đồng tinh thể không tương đồng với sản phẩm khác của các pha cấu thành chứng tỏ rằng trạng thái rắn mới đã được tạo ra. Giá trị 2 θ của vị trí đỉnh được chọn của mẫu nhiễu xạ bột tia X của các tinh thể này được thể hiện trong các bảng từ 1 đến 7 ở trên.

Sử dụng phương pháp nuôi lớn (1a), thu được hợp chất đồng tinh thể của propiconazol với D-riboza, 2,5-dimetyl-2,5-hexandiol, axit trimesic, axit oxalic và axit tartaric.

Sử dụng phương pháp nghiền (1b), thu được hợp chất đồng tinh thể của propiconazol với 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen, axit terephthalic, axit maleic, axit oxalic và axit tartaric.

Sử dụng phương pháp bức xạ vi sóng (1c), thu được hợp chất đồng tinh thể của propiconazol với 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen, D-riboza, axit maleic và axit oxalic.

Sử dụng phương pháp sóng siêu âm (1d), thu được hợp chất đồng tinh thể của propiconazol với D-riboza và axit oxalic.

Nếu có thể, phân tích tiếp các mẫu thể hiện biểu đồ nhiễu xạ mới bằng DSC và ^1H NMR và, ngoài ra, đánh giá tính ổn định hoá học của chúng (7 ngày ở 40°C và độ ẩm tương đối 75%). Trong một ví dụ, phân tích trọng lượng nhiệt (TGA) được tiến hành (vết được thể hiện trên Fig. 35).

Vết NMR được thể hiện trong các Fig. từ 18 đến 28 như mô tả ở trên.

Vết DSC thể hiện trong các Fig. từ 29 đến 41 như mô tả ở trên.

Tinh thể propiconazol-axit tartaric thu được từ ví dụ 1e được phân tích bằng GC và LNMR và thể hiện tỷ lệ hoá học lượng pháp 2:1 của propiconazol với axit tartaric.

Tinh thể propiconazol-axit oxalic thu được từ ví dụ 1f được phân tích bằng GC và LNMR và thể hiện tỷ lệ hoá học lượng pháp 1:1 của propiconazol với axit oxalic.

Chú ý rằng một số đỉnh trong vết nhiễu xạ tia X dạng bột không xuất hiện sau khi phân tích tính ổn định hoá học và/hoặc vết này có thể thay đổi đột ngột hơn. Trong khi không muốn bị ràng buộc bởi giả thuyết, người ta giả định rằng, chất tạo thành là do sự có mặt của propiconazol không phản ứng và/hoặc chất đồng tạo thành trong mẫu mà sau đó kết tinh trong các thử nghiệm tính ổn định. Giả định sau có khả năng là do sự thay đổi từ một dạng đa hình của hợp chất đồng tinh thể thành dạng đa hình ổn định hơn trong các thử nghiệm tính ổn định.

Mặc dù sáng chế được mô tả với sự tham chiếu đến các phương án được ưu tiên và ví dụ của chúng, phạm vi sáng chế không chỉ giới hạn ở các phương án đã mô tả. Điều này là hiển nhiên với người có hiểu biết trung bình trong lĩnh vực, sự thay đổi và

điều chỉnh so với sáng chế mô tả ở trên có thể được thực hiện mà không lệch khỏi bản chất và phạm vi của sáng chế, chúng được xác định và giới hạn bởi các điểm yêu cầu bảo hộ đi kèm. Tất cả các công bố được trích dẫn ở đây được kết hợp bằng cách tham chiếu toàn bộ cho tất cả các mục đích với phạm vi tương tự nếu mỗi công bố riêng được chỉ ra cụ thể và riêng lẻ cũng được kết hợp bằng cách tham chiếu.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Hợp chất đồng tinh thể của propiconazol với hợp chất tạo đồng tinh thể được chọn từ nhóm bao gồm 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen, D-riboza, axit maleic, axit oxalic, axit tartaric, axit terephthalic và axit trimesic và trong đó:

(i) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm (a) $5,9 \pm 0,2$, $10,2 \pm 0,2$, $15,2 \pm 0,2$ và $18,4 \pm 0,2$ hoặc (b) $5,8 \pm 0,2$, $8,7 \pm 0,2$, $10,7 \pm 0,2$, $15,1 \pm 0,2$ và $18,1 \pm 0,2$;

(ii) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là D-riboza, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm (a) $7,7 \pm 0,2$, $8,6 \pm 0,2$, $13,9 \pm 0,2$, $18,2 \pm 0,2$ và $25,0 \pm 0,2$ hoặc tất cả các góc 2θ (b) $21,8 \pm 0,2$, $24,0 \pm 0,2$ và $26,1 \pm 0,2$ hoặc (c) $11,3 \pm 0,2$;

(iii) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là axit maleic, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm (a) $7,6 \pm 0,2$, $10,3 \pm 0,2$, $16,4 \pm 0,2$, $18,2 \pm 0,2$, $19,4 \pm 0,2$ và $20,2 \pm 0,2$, (d) $7,6 \pm 0,2$, $10,4 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $15,4 \pm 0,2$, $16,1 \pm 0,2$ và $19,5 \pm 0,2$ hoặc (e) $5,9 \pm 0,2$, $7,6 \pm 0,2$, $10,5 \pm 0,2$, $15,5 \pm 0,2$ và $16,2 \pm 0,2$ hoặc tất cả các giá trị góc 2θ (b) $5,4 \pm 0,2$, $10,9 \pm 0,2$ và $21,1 \pm 0,2$ hoặc (c) $21,4 \pm 0,2$ và $26,1 \pm 0,2$;

(iv) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là axit oxalic, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm $6,7 \pm 0,2$, $10,3 \pm 0,2$, $11,1 \pm 0,2$, $14,9 \pm 0,2$, $16,3 \pm 0,2$ và $19,7 \pm 0,2$;

(v) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là axit tartaric, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm $6,0 \pm 0,2$, $12,0 \pm 0,2$, $18,0 \pm 0,2$ và $24,6 \pm 0,2$;

(vi) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là axit terephthalic, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu có ít nhất ba giá trị góc 2θ được chọn từ nhóm bao gồm $4,1 \pm 0,2$, $8,0 \pm 0,2$, $11,8 \pm 0,2$, $18,6 \pm 0,2$, $21,0 \pm 0,2$ và $21,7 \pm 0,2$;

(vii) khi hợp chất tạo đồng tinh thể đã nêu là axit trimesic, thì hợp chất đồng tinh thể này có mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột được thể hiện theo giá trị góc 2θ , mẫu nhiễu xạ tia X dạng bột đã nêu bao gồm giá trị góc 2θ $5,8 \pm 0,2$, $10,2 \pm 0,2$ và $16,3 \pm 0,2$.

2. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 1, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể được chọn từ nhóm bao gồm axit terephthalic, axit oxalic và axit tartaric.

3. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là axit terephthalic.

4. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là axit oxalic.

5. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là axit tartaric.

6. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là 2,2'-dihydroxy-1,1'-dinaphtalen.

7. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là D-riboza.

8. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là axit trimesic.

9. Hợp chất đồng tinh thể theo điểm 2, trong đó hợp chất tạo đồng tinh thể là axit maleic.

10. Quy trình điều chế hợp chất đồng tinh thể theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 9 bao gồm các bước:

a) nghiền, nung nóng hoặc cho tiếp xúc trong dung dịch propiconazol với hợp chất tạo đồng tinh thể, trong điều kiện kết tinh để tạo ra pha rắn; và

b) tách hợp chất đồng tinh thể bao gồm propiconazol và hợp chất tạo đồng tinh thể.

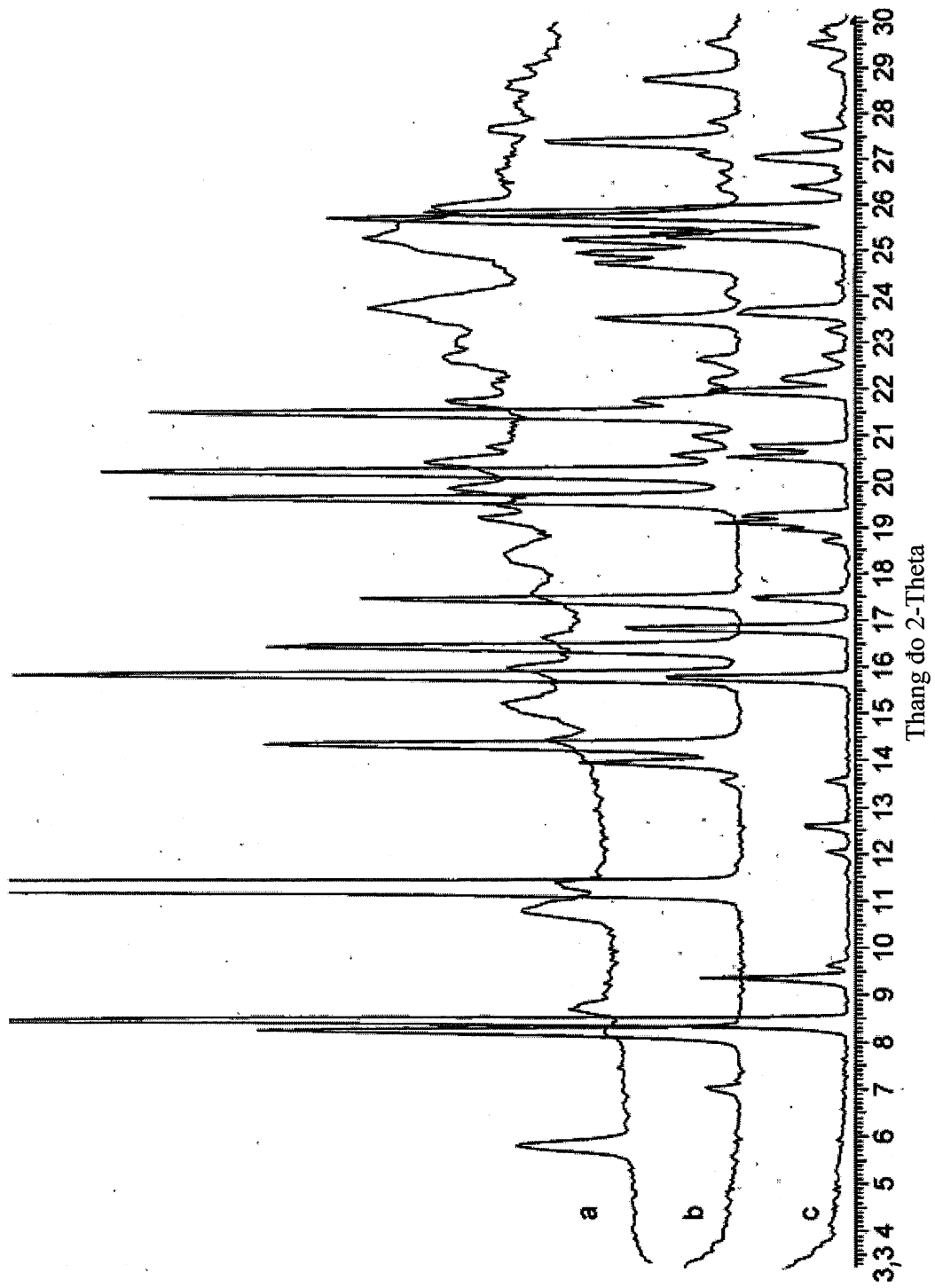
11. Chế phẩm diệt nấm chứa hợp chất đồng tinh thể theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 9.

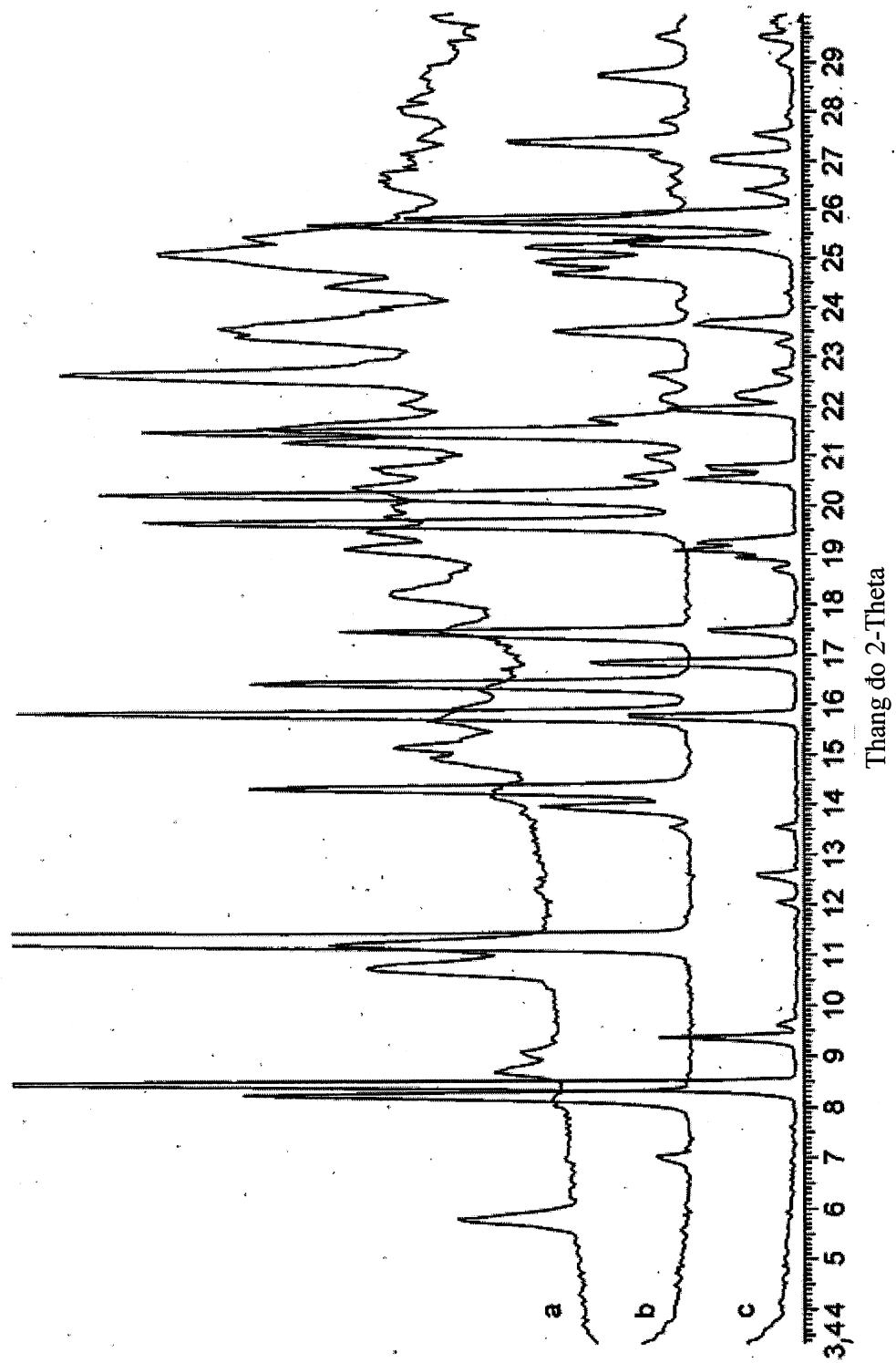
12. Chế phẩm theo điểm 11, trong đó chế phẩm này là chế phẩm hóa nông.

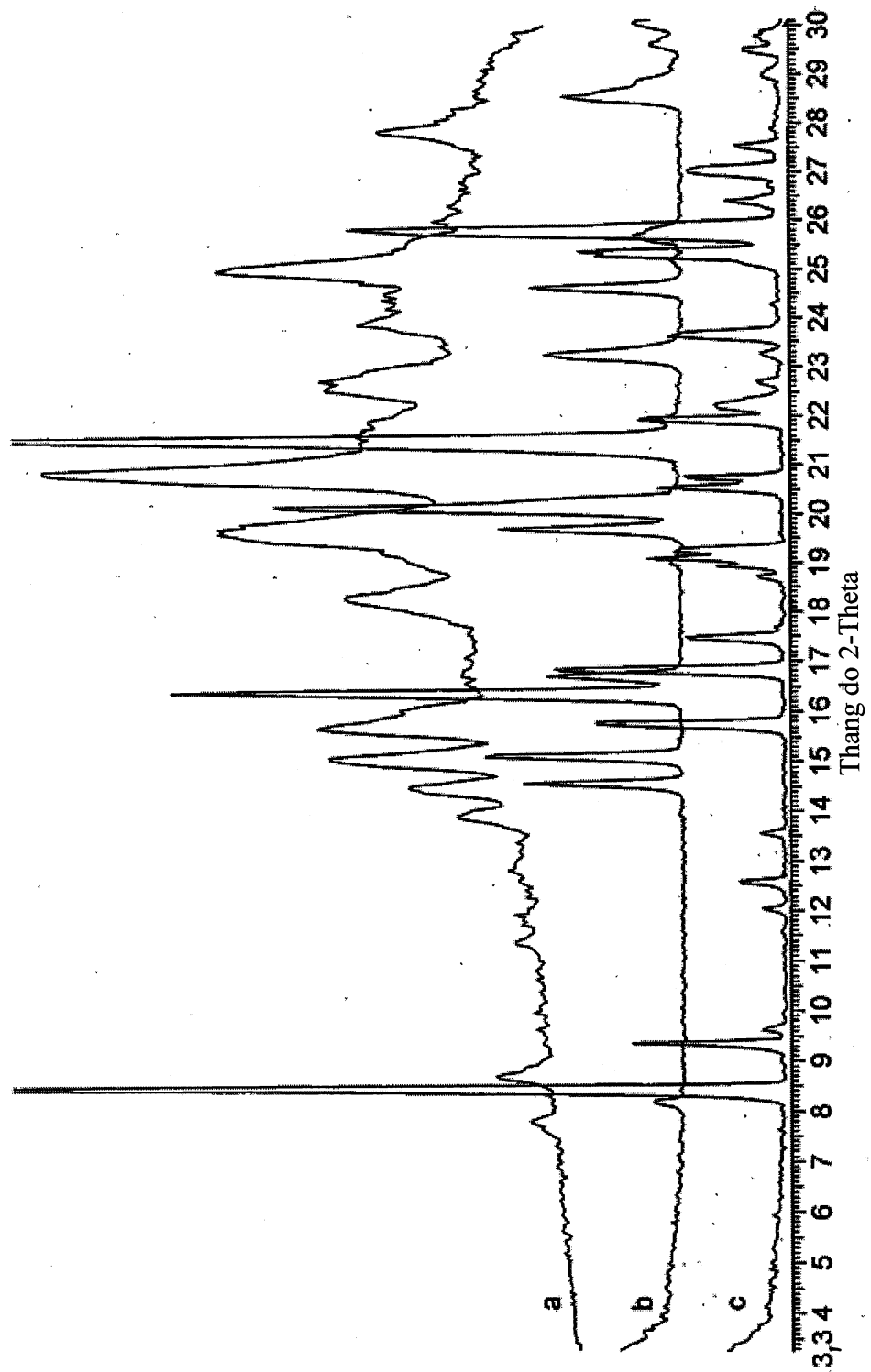
13. Phương pháp ngăn ngừa/ kiểm soát sự nhiễm nấm ở thực vật bao gồm bước xử lý thực vật bằng lượng có hiệu quả diệt nấm của chế phẩm hóa nông theo điểm 12.

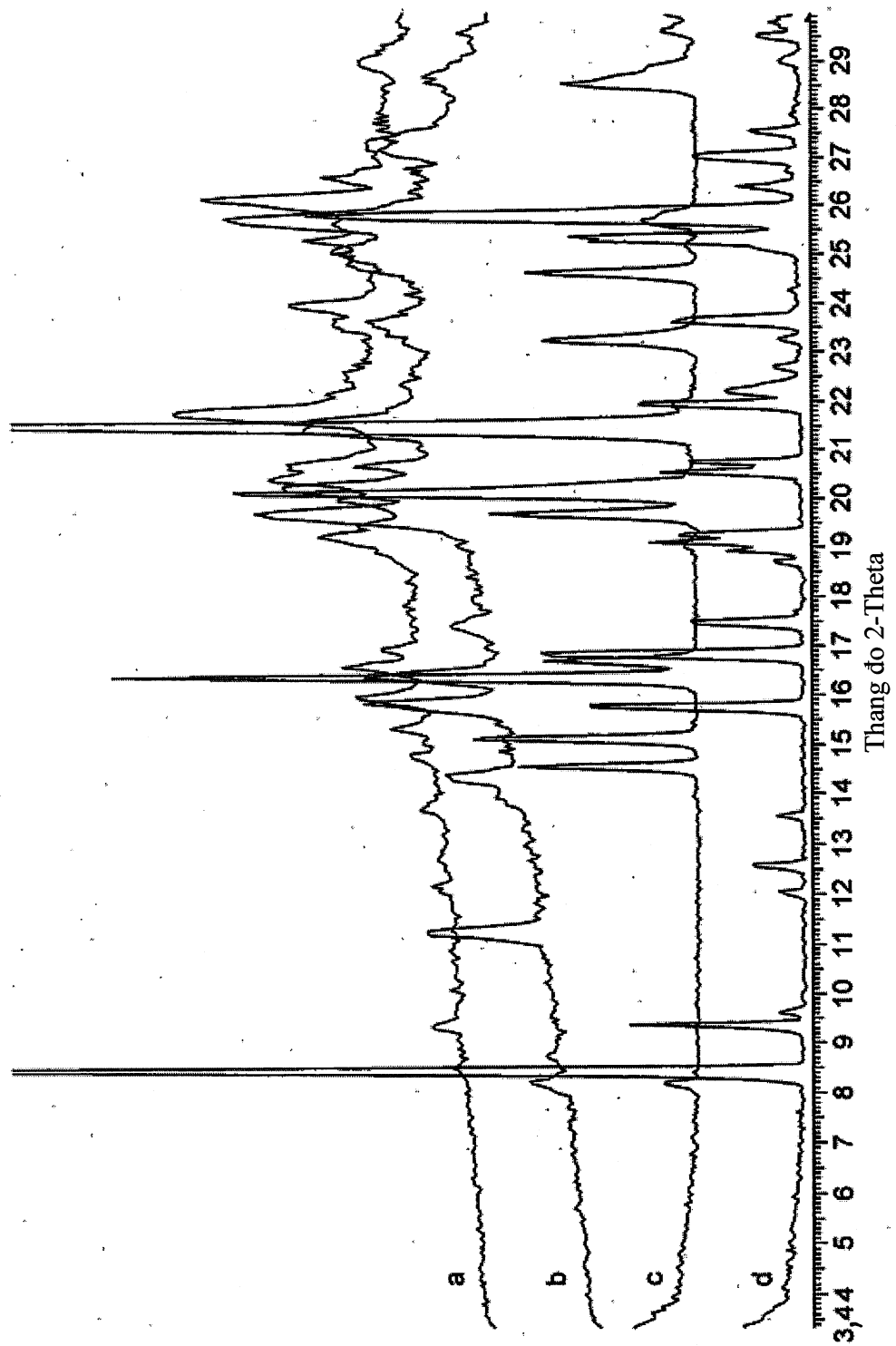
14. Chế phẩm hóa nông chứa chế phẩm theo điểm 12, trong đó chế phẩm hóa nông này là huyền phù đậm đặc.

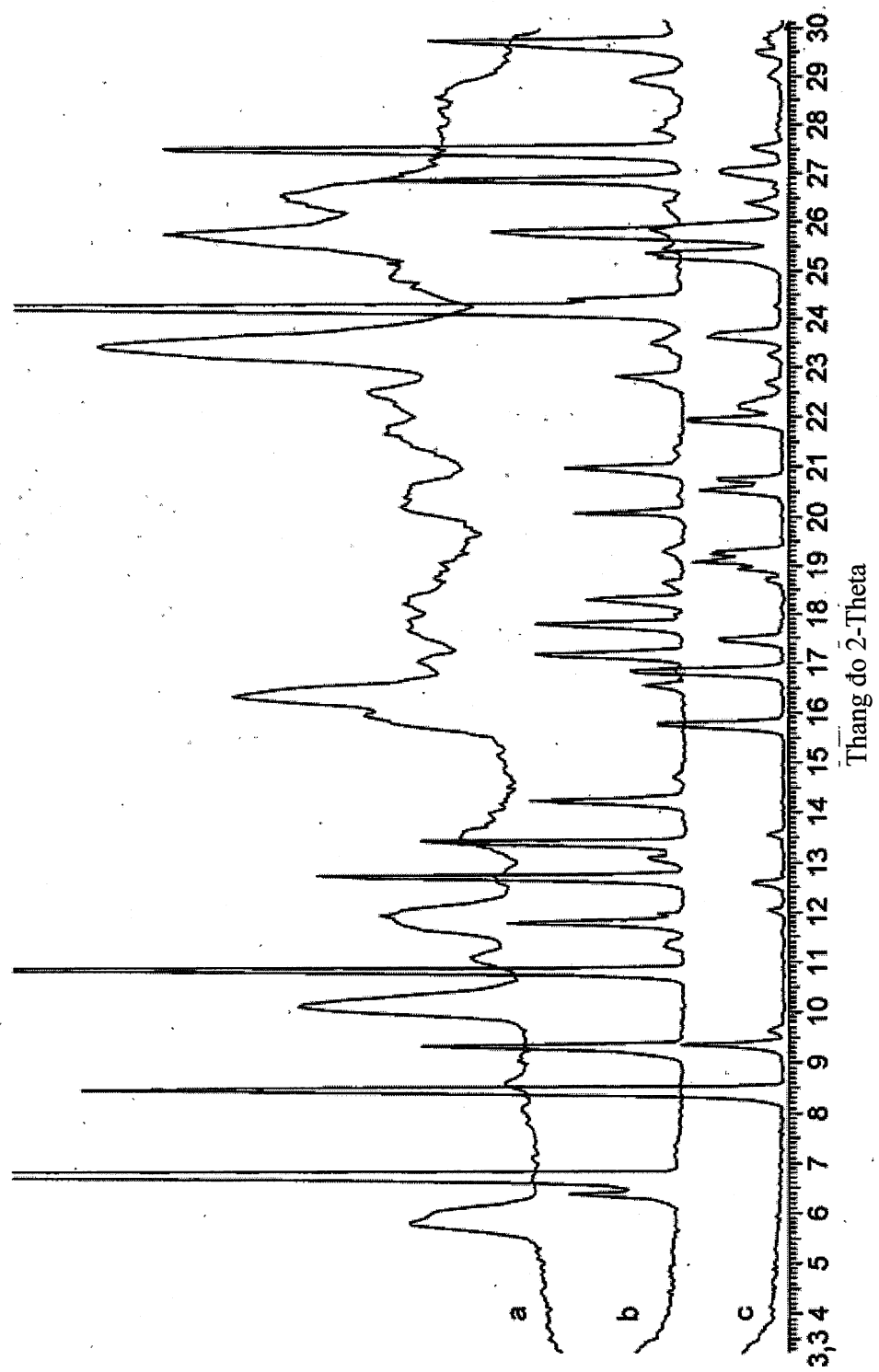
15. Phương pháp bảo vệ vật liệu công nghiệp khỏi sự tấn công của nấm bao gồm bước xử lý vật liệu công nghiệp bằng chế phẩm theo điểm 11.

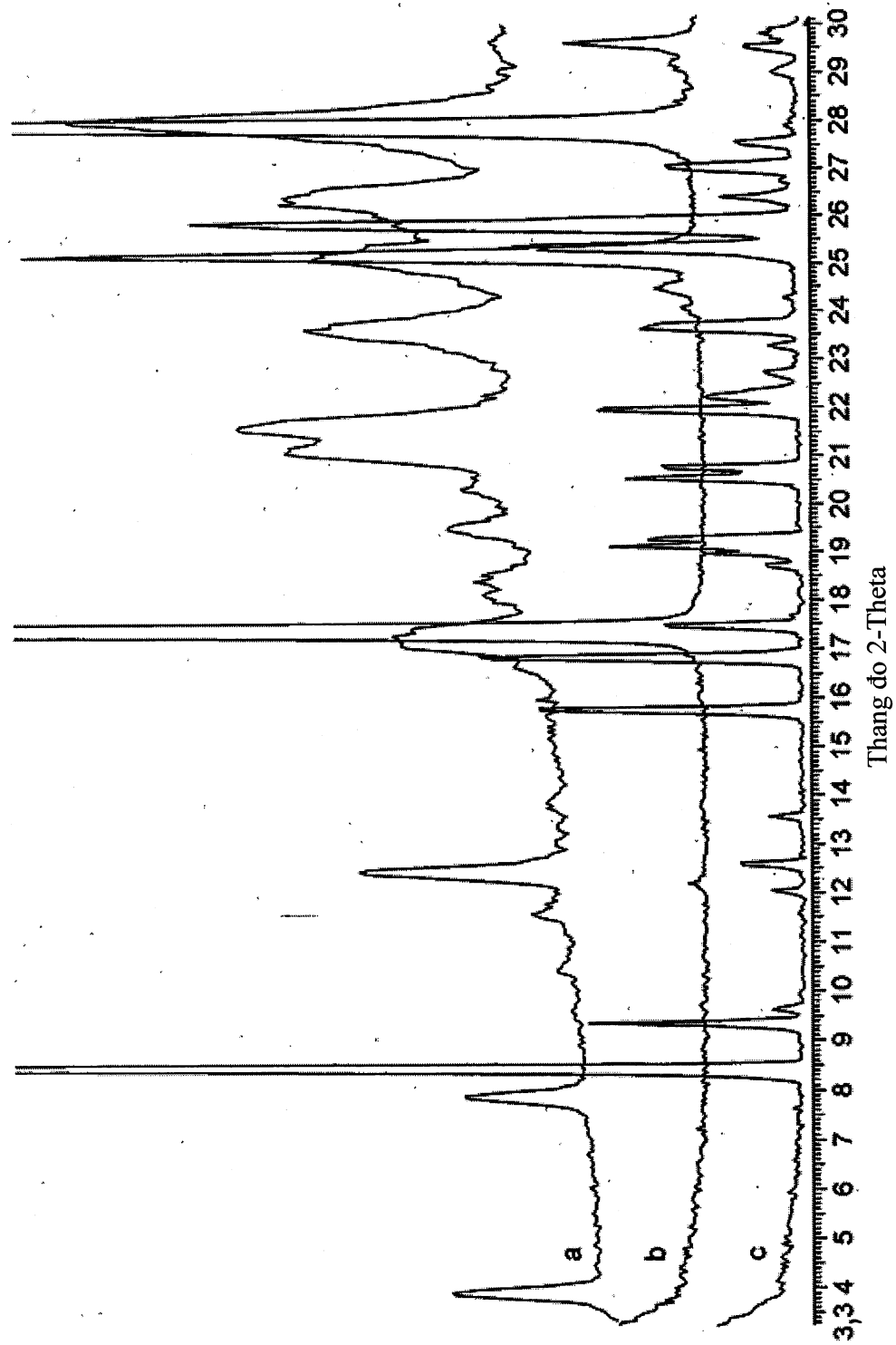
**FIG. 1**

**FIG. 2**

**FIG. 3**

**FIG. 4**

**FIG. 5**

**FIG. 6**

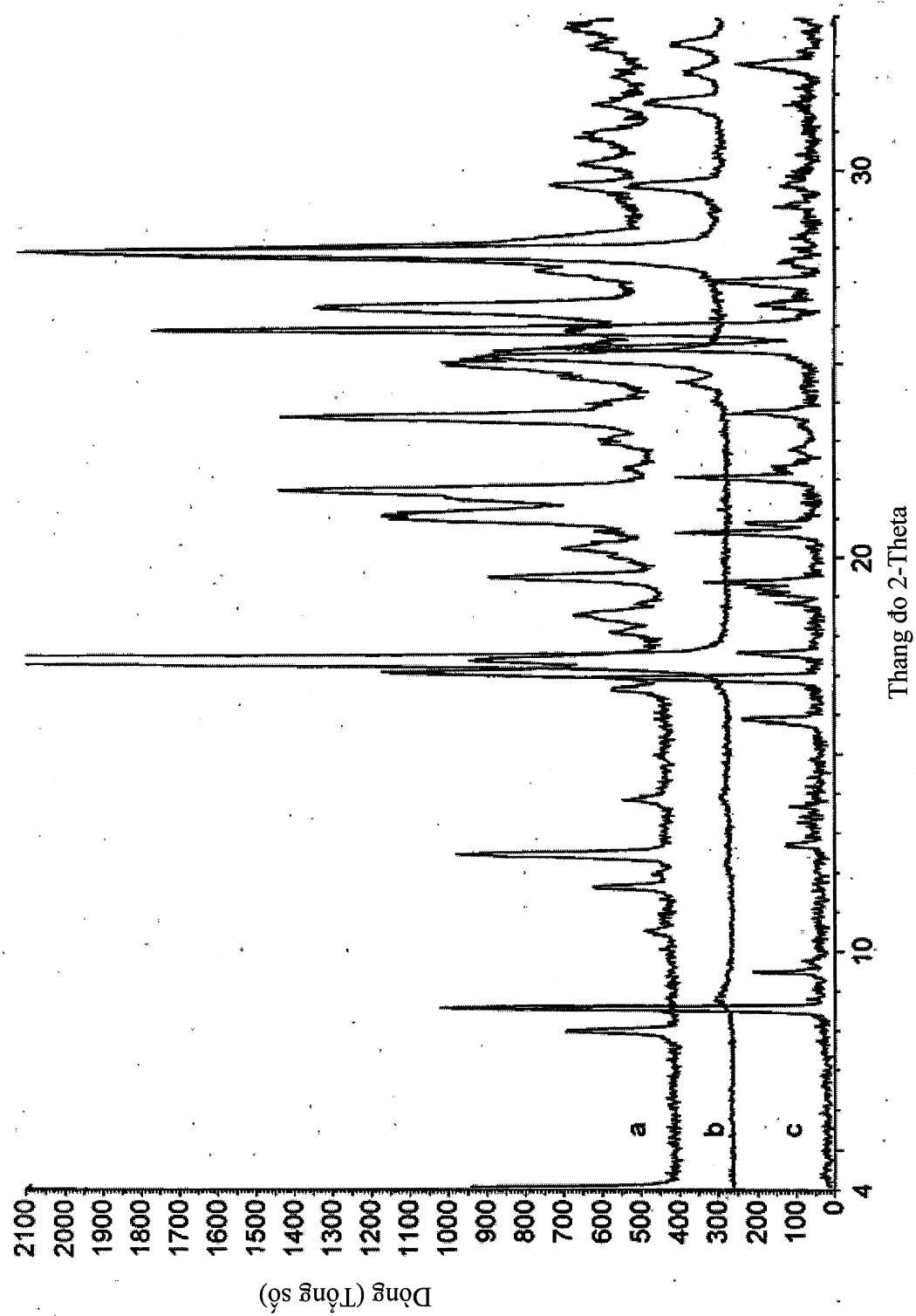
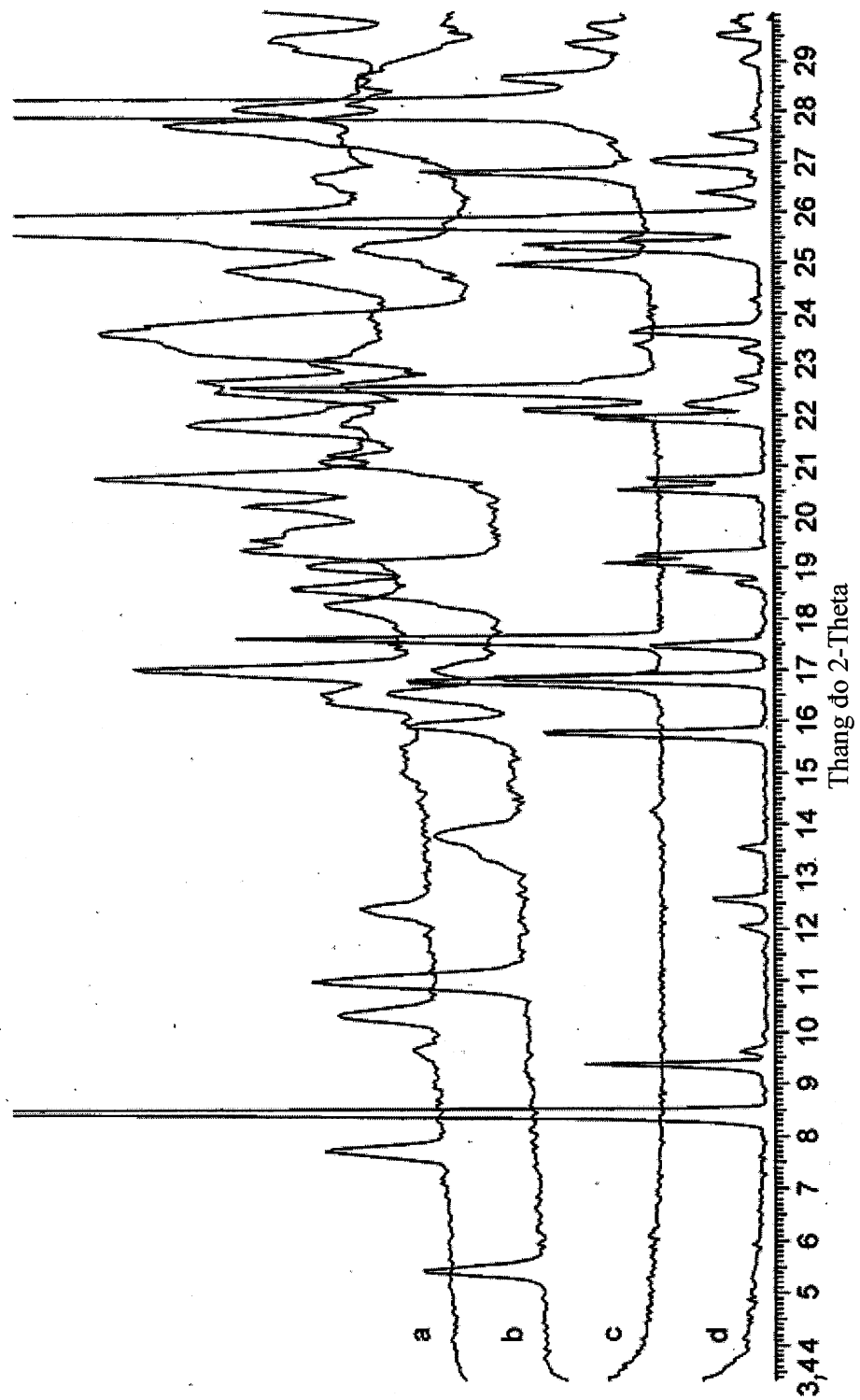
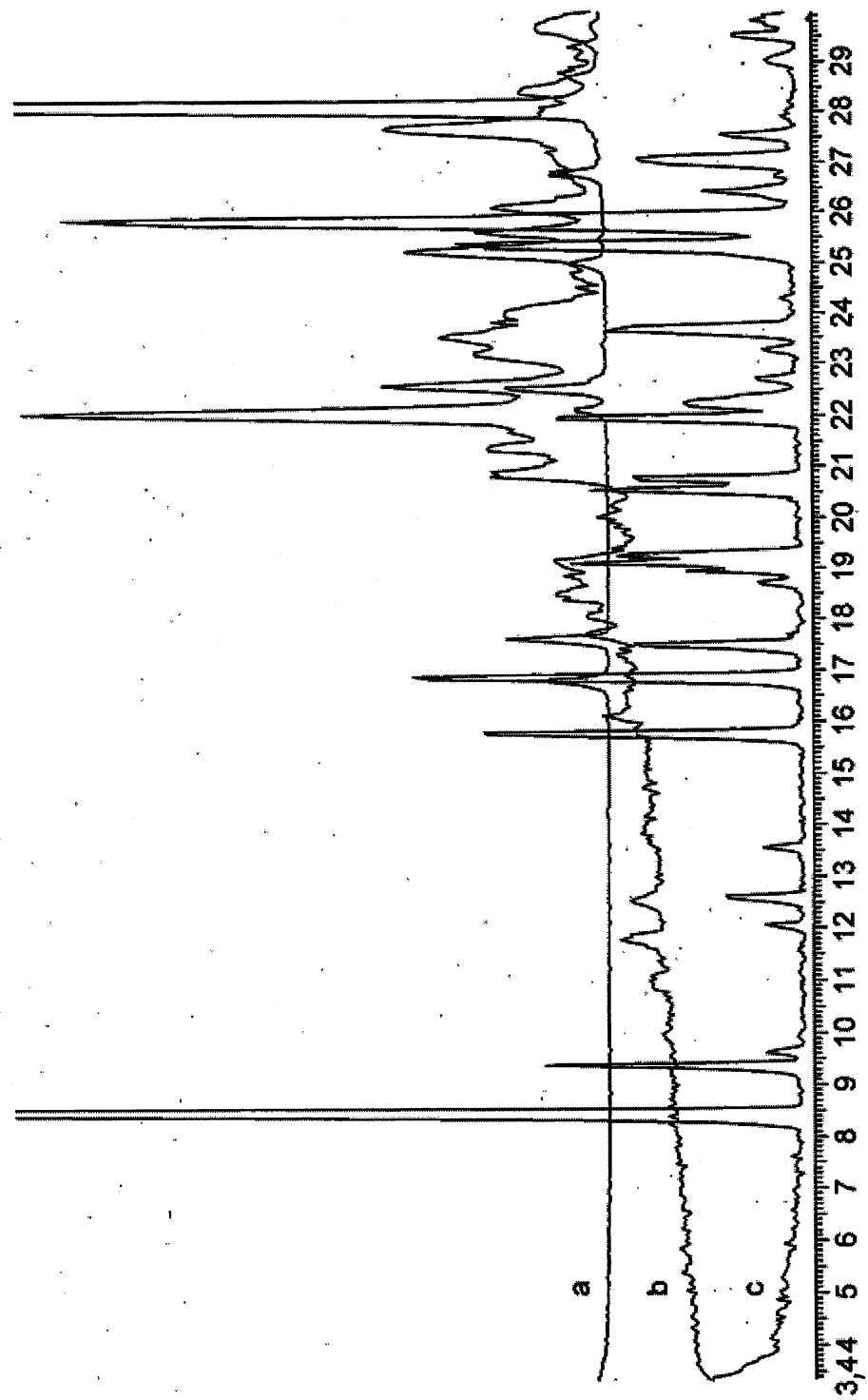


FIG. 7

**FIG. 8**

**FIG. 9**

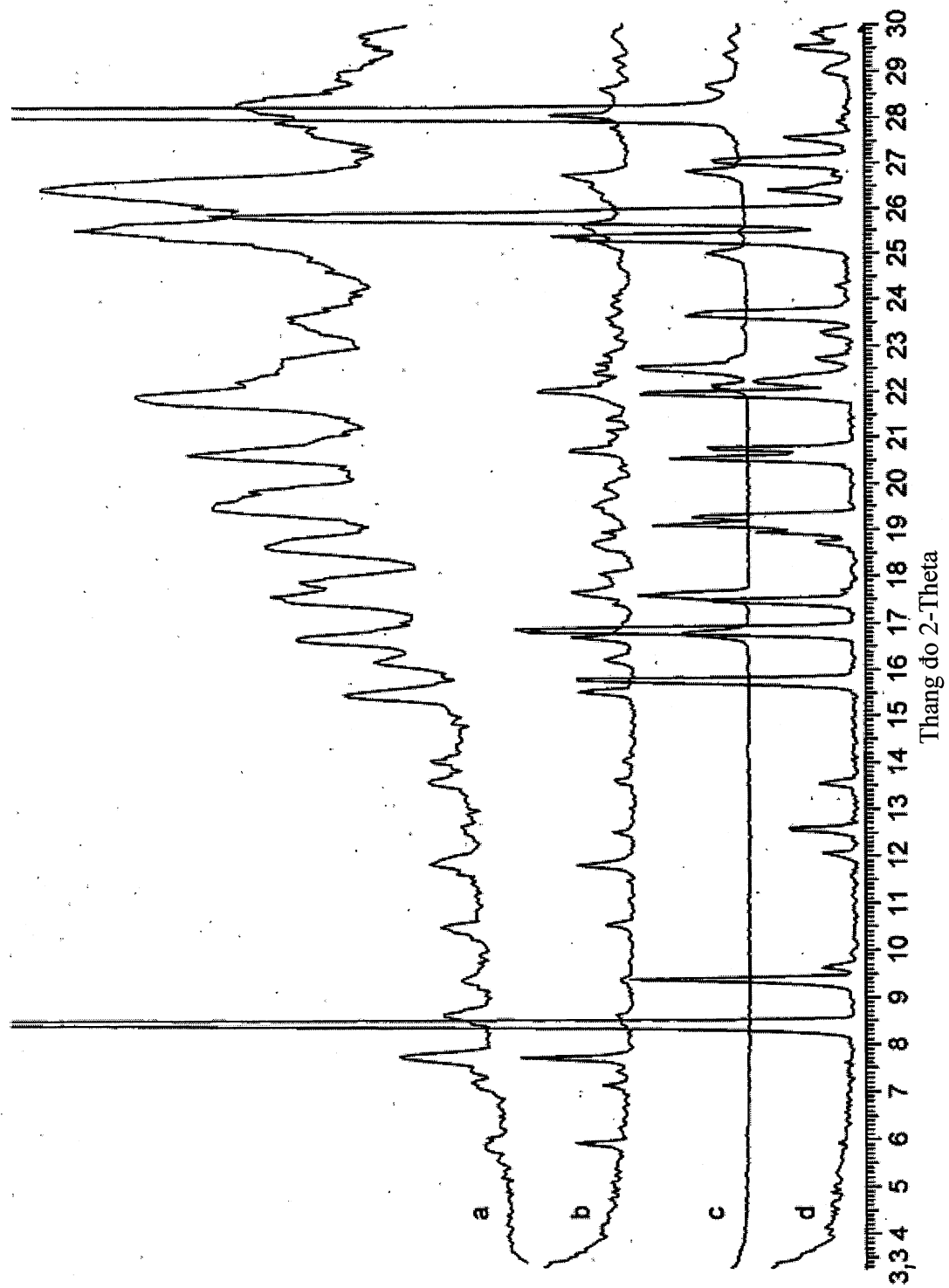
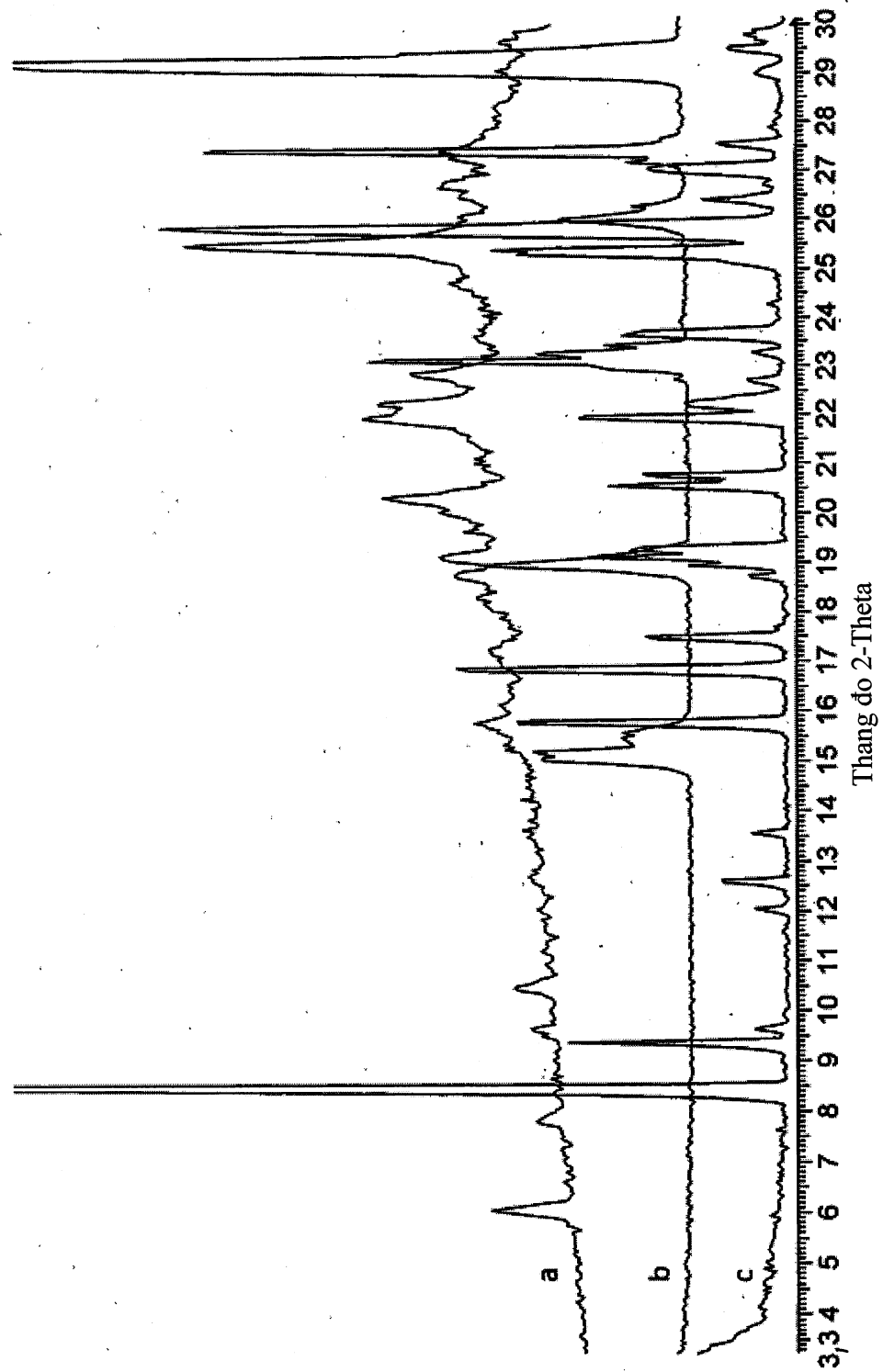
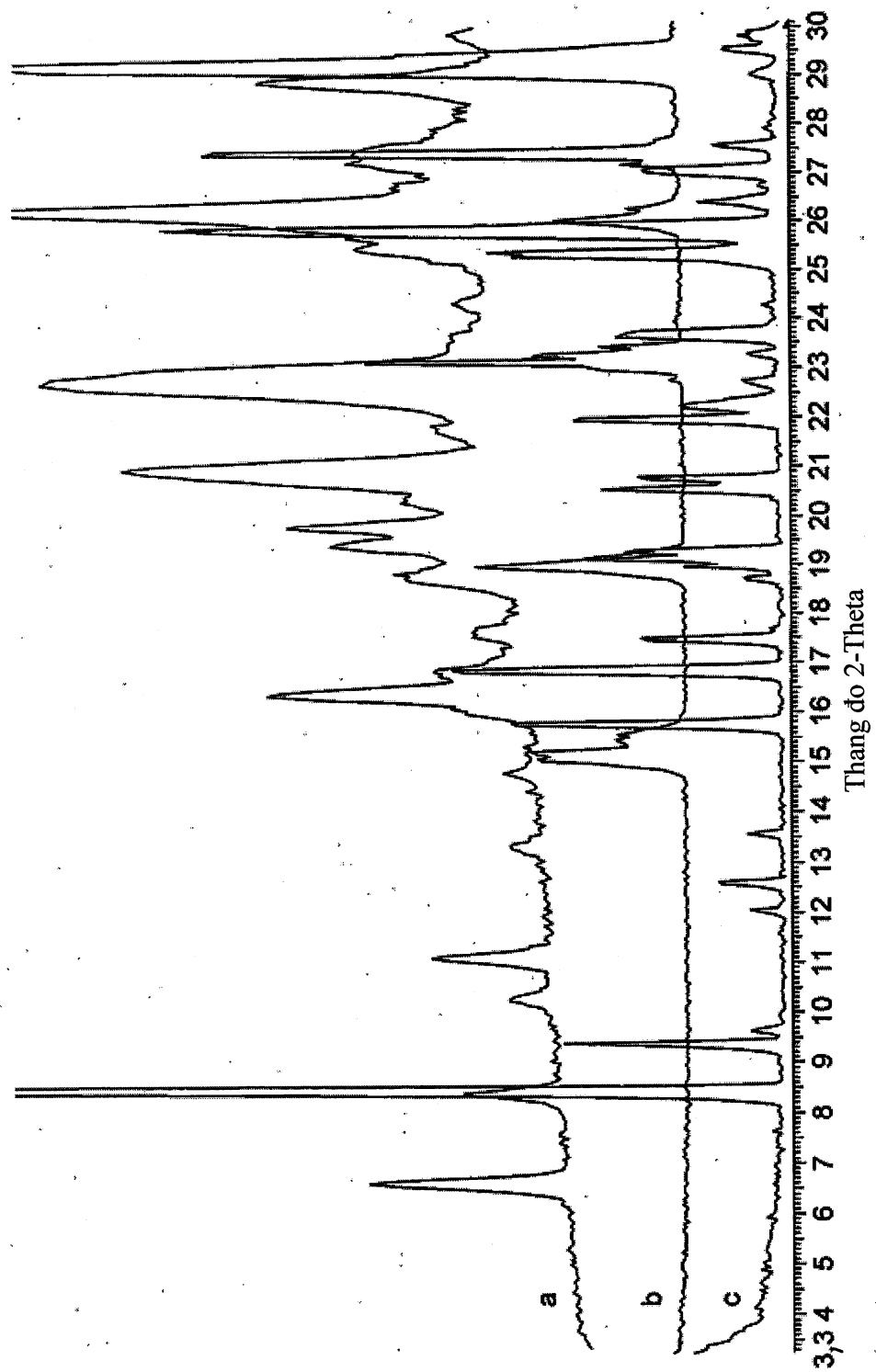
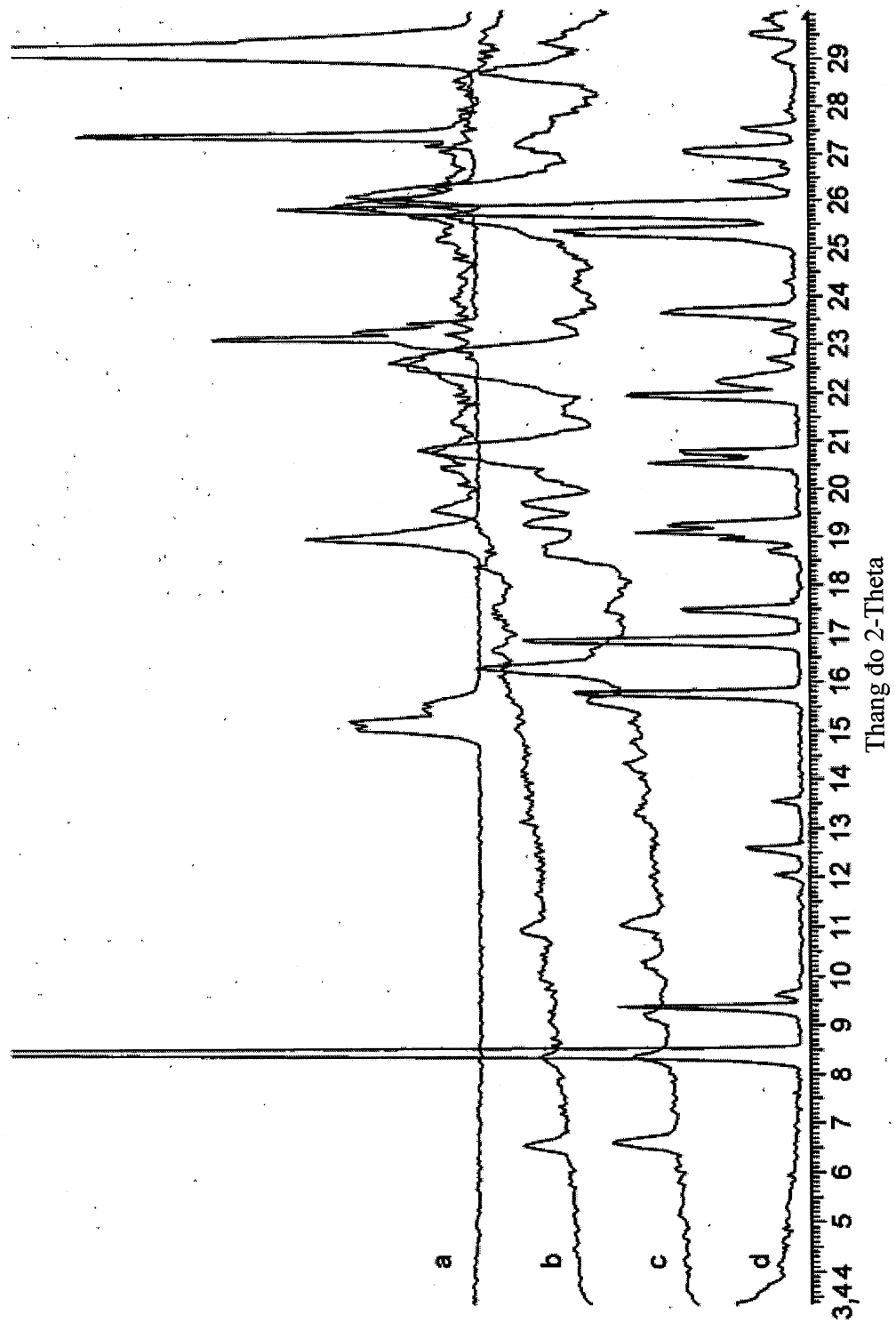


FIG. 10

**FIG. 11**

**FIG. 12**

**FIG. 13**

14 / 41

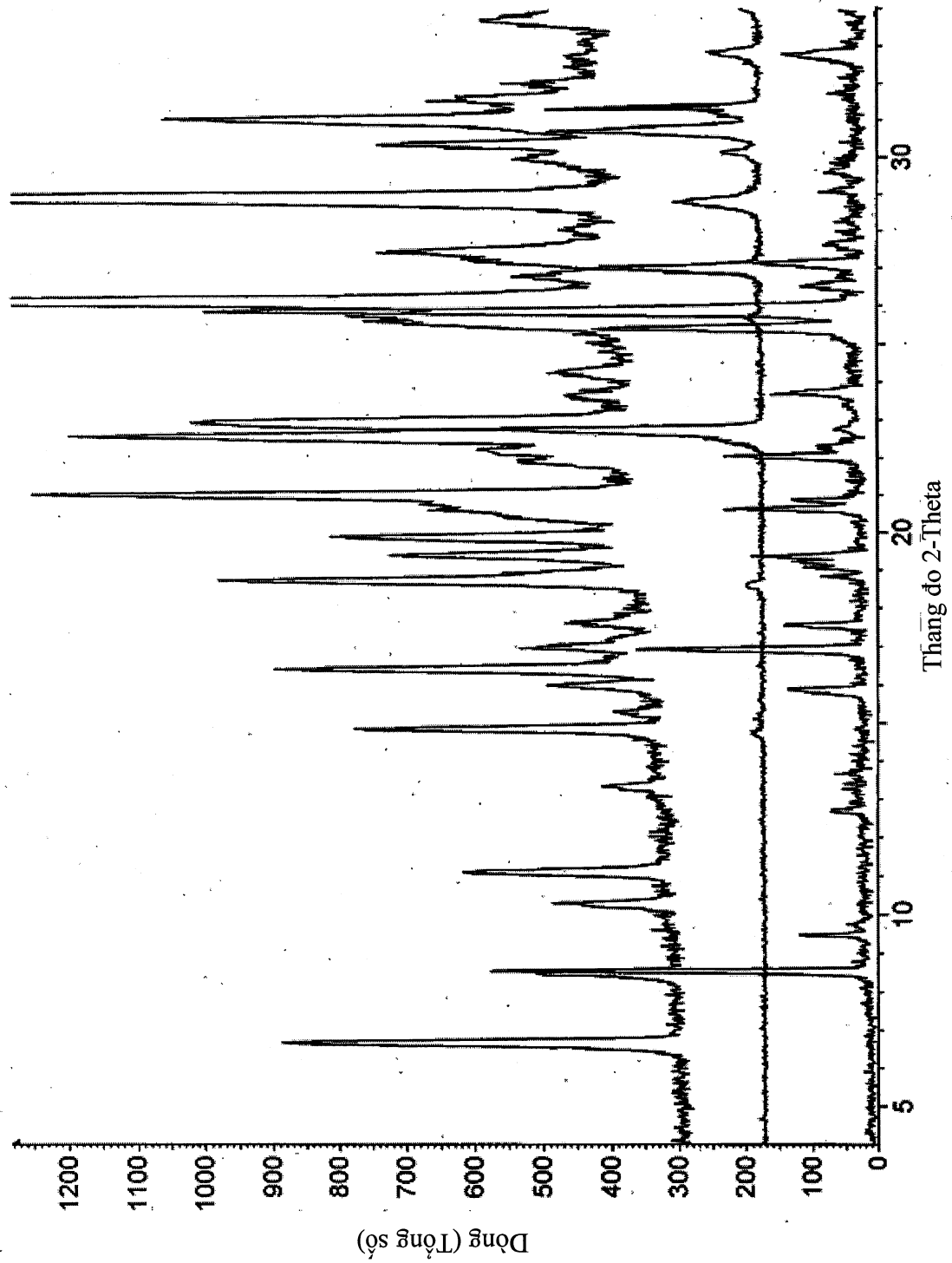
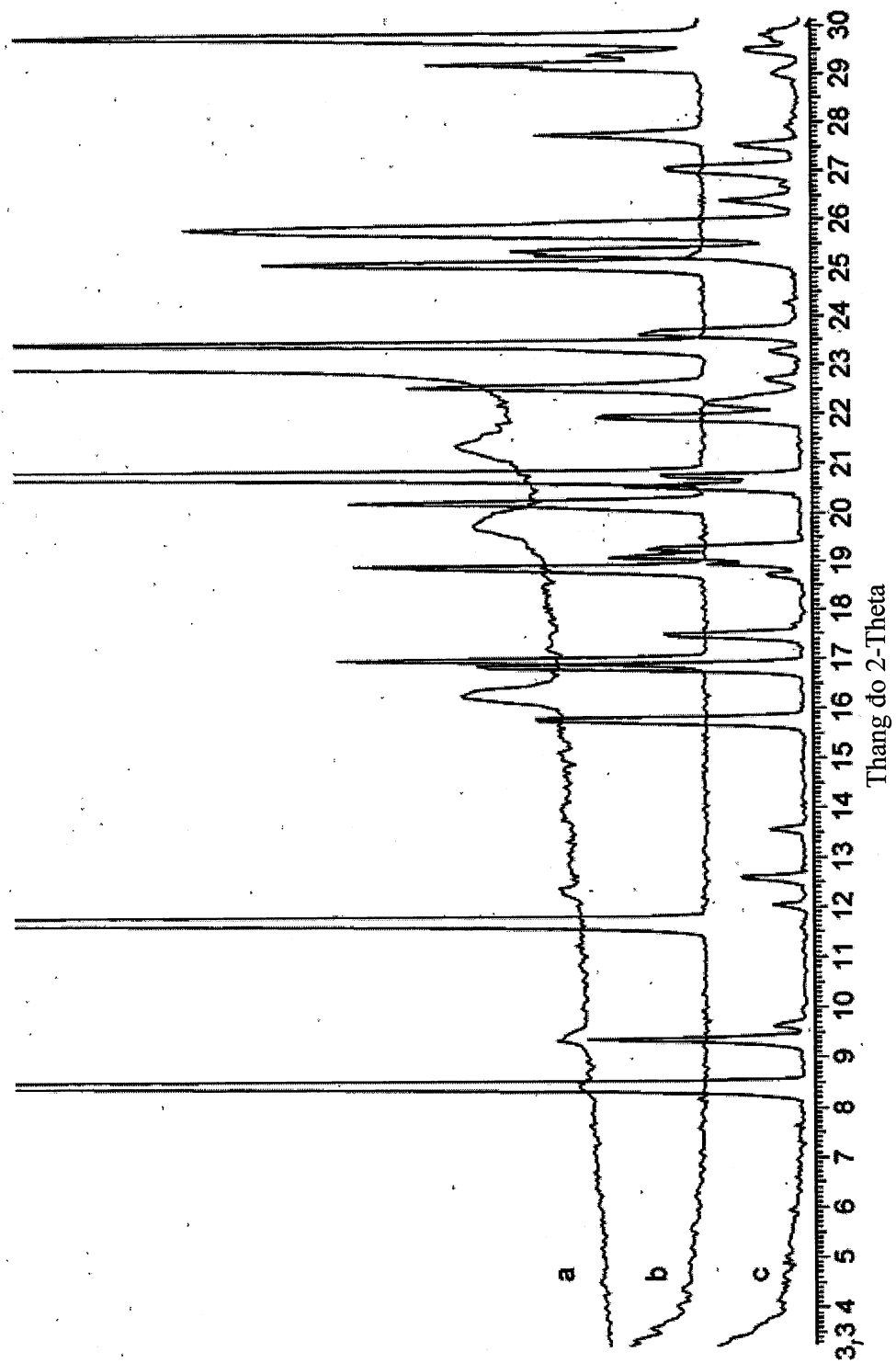
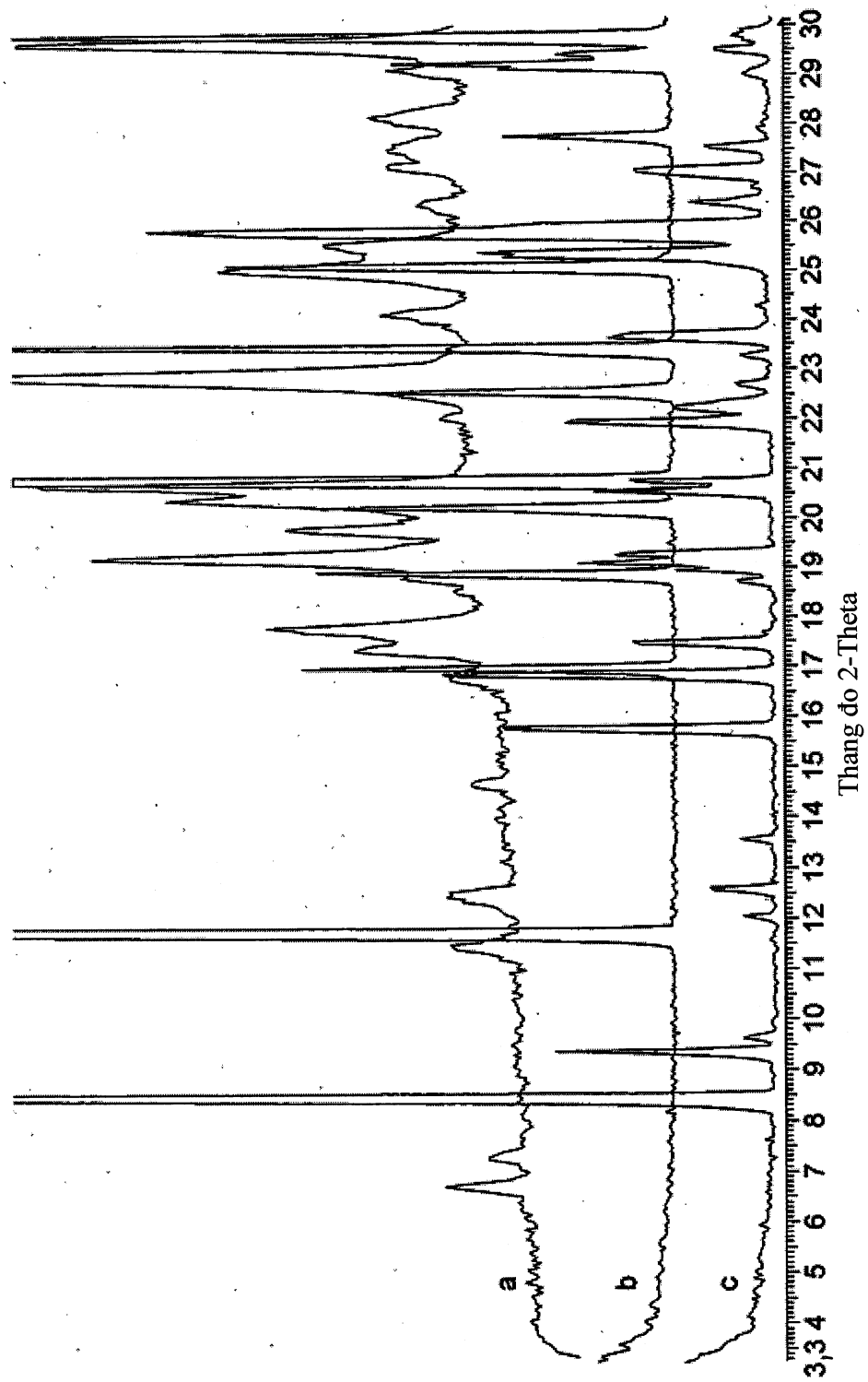


FIG. 14

**FIG. 15**

**FIG. 16**

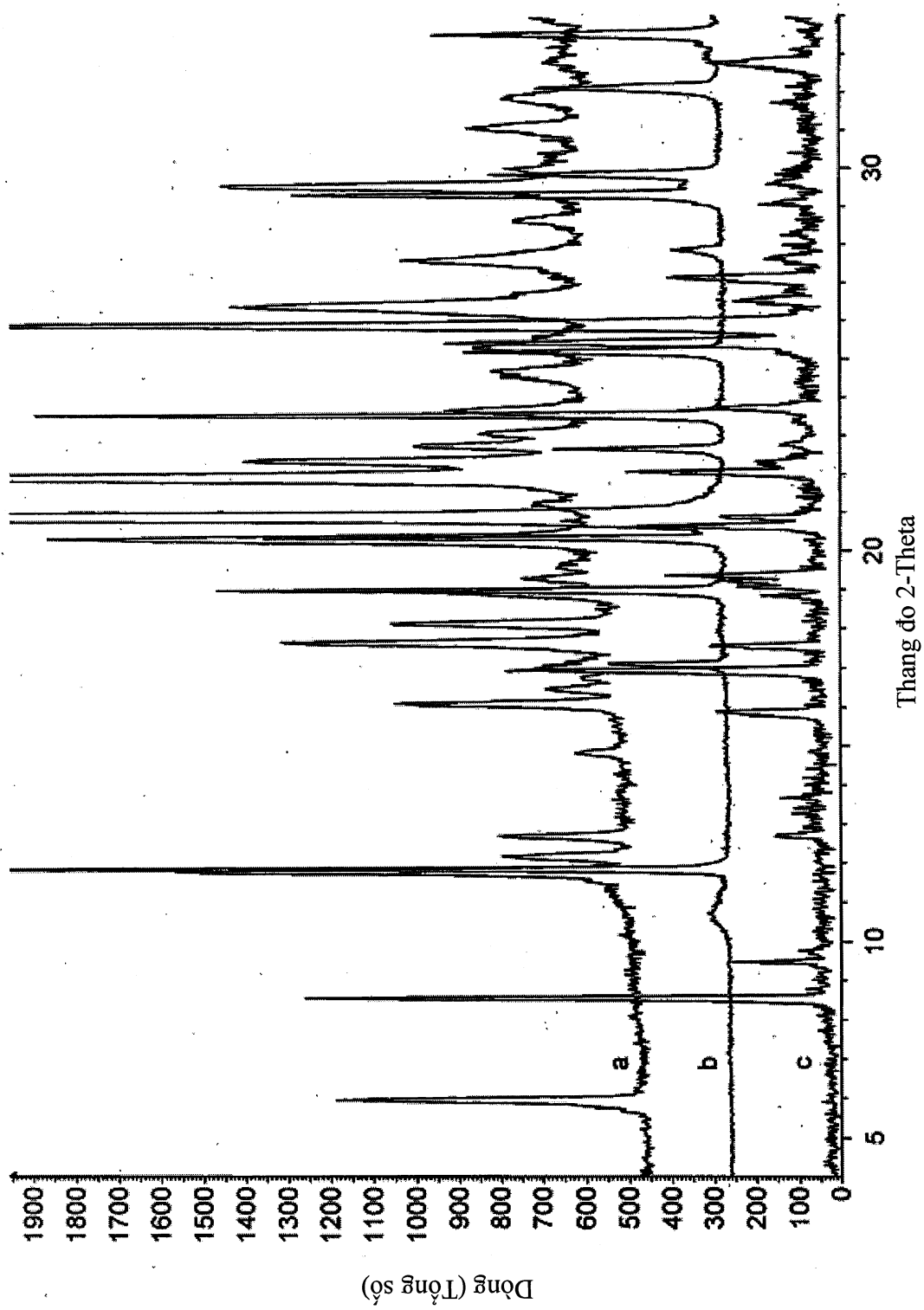
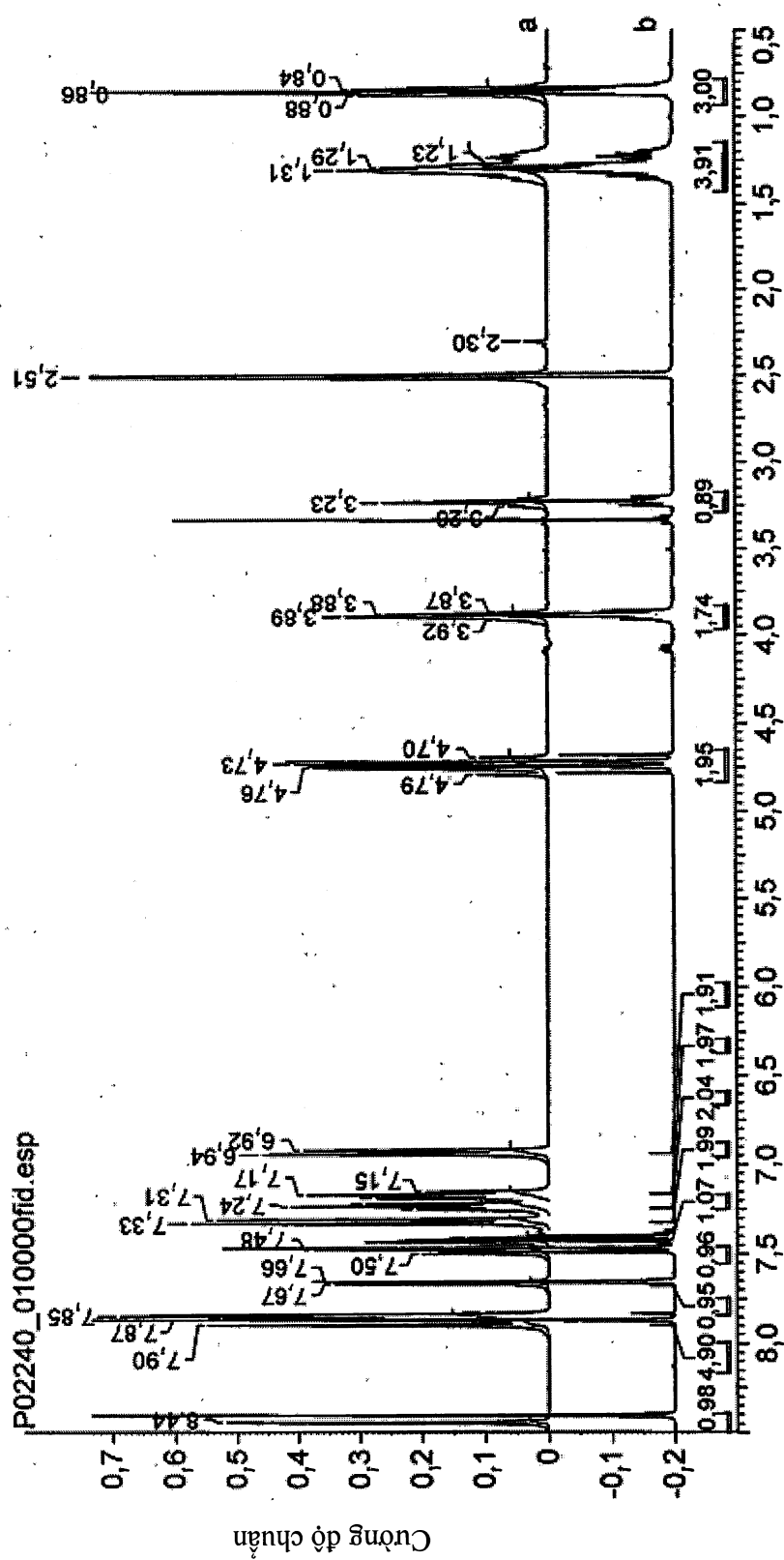
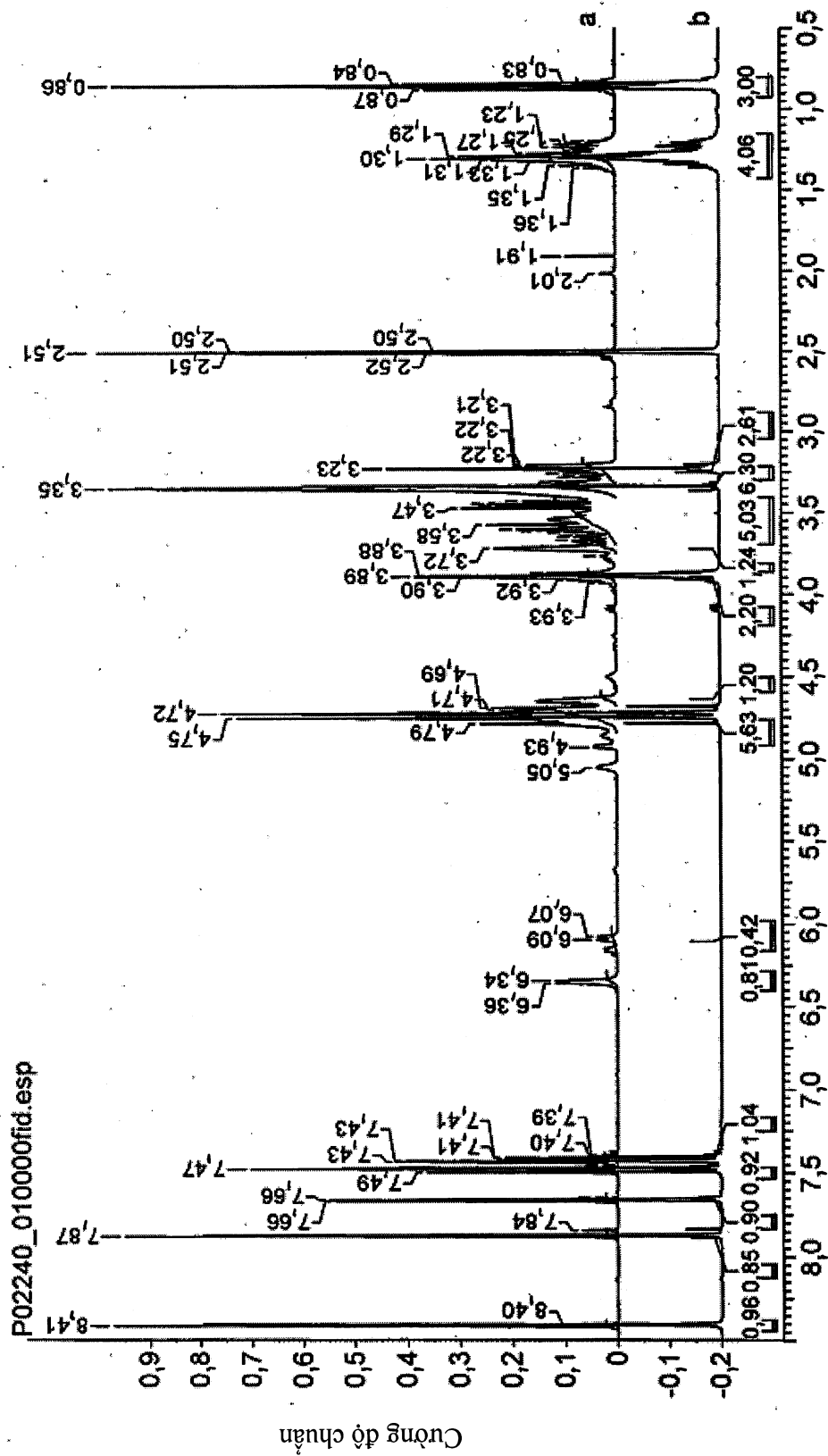


FIG. 17





Biến đổi hoá học (phần triệu)

FIG. 19

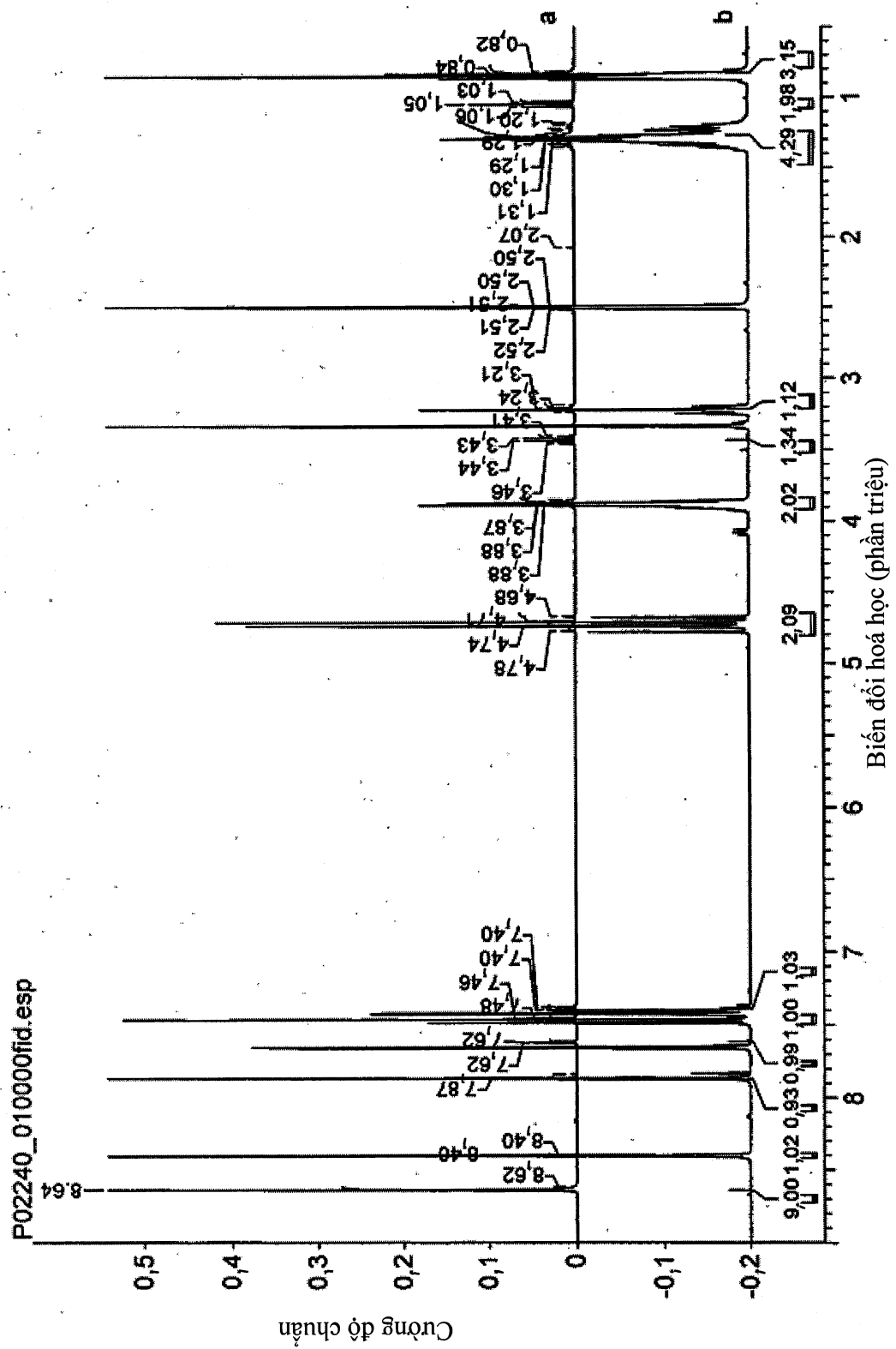


FIG. 20

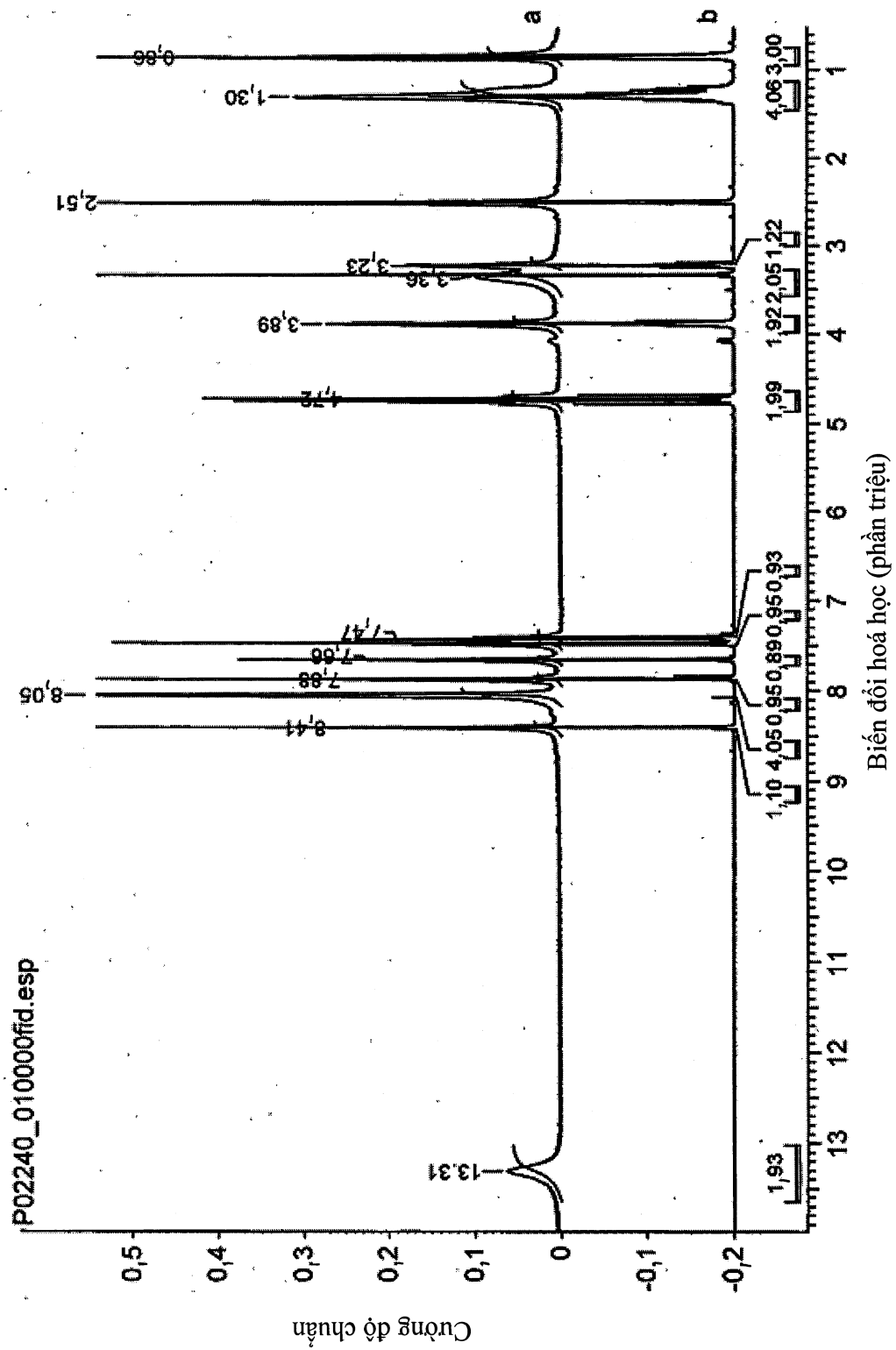


FIG. 21

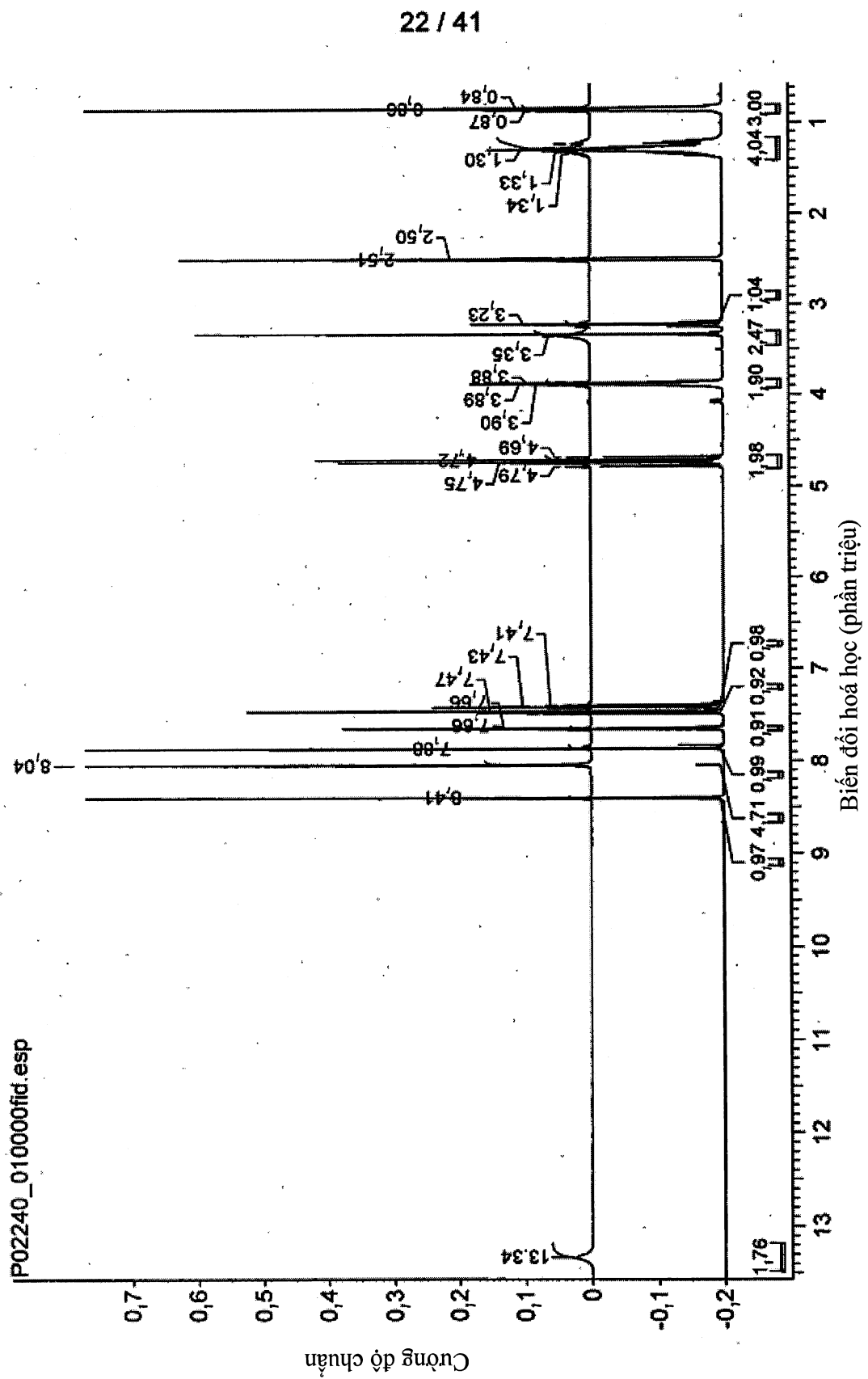


FIG. 22

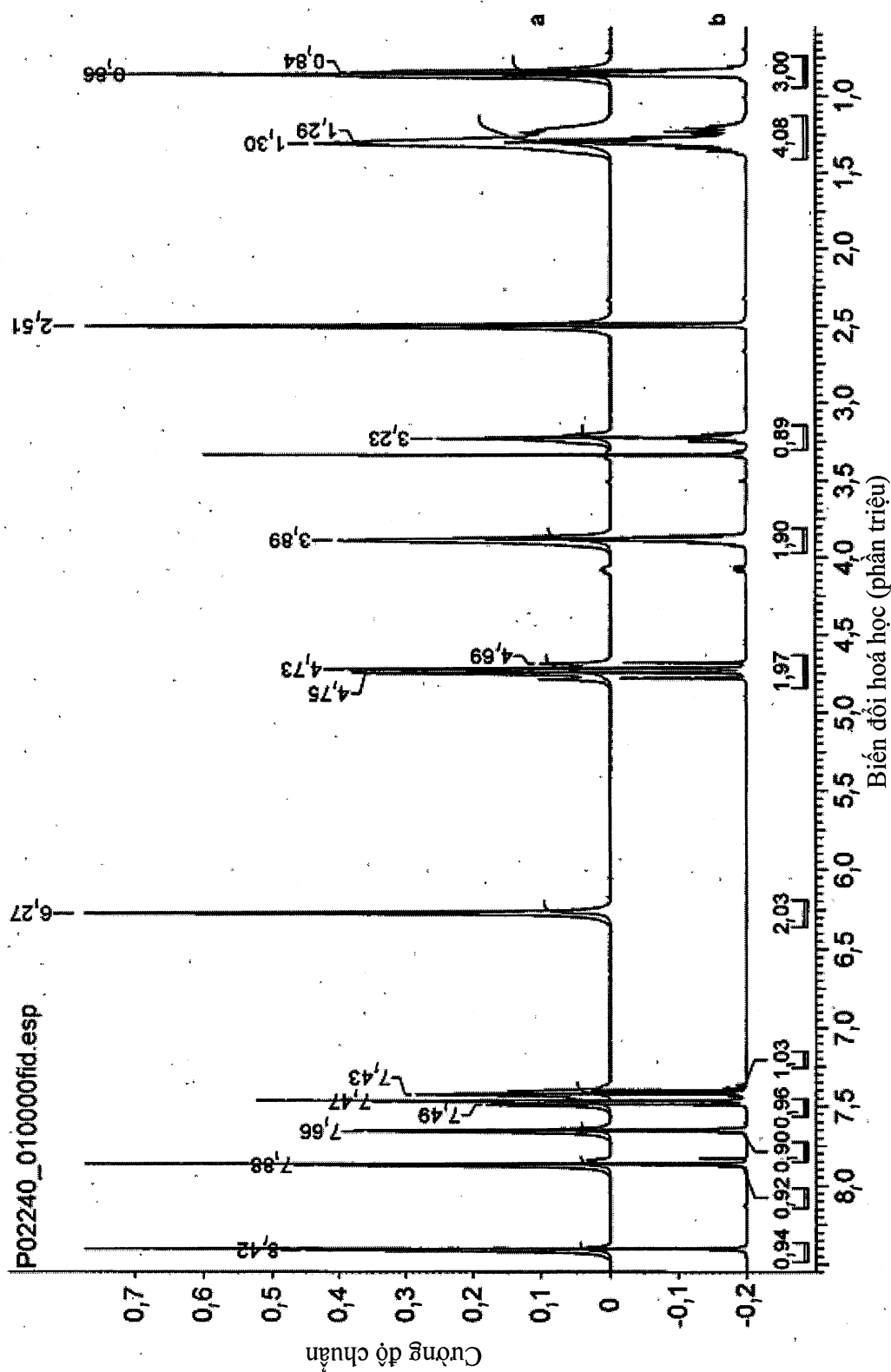
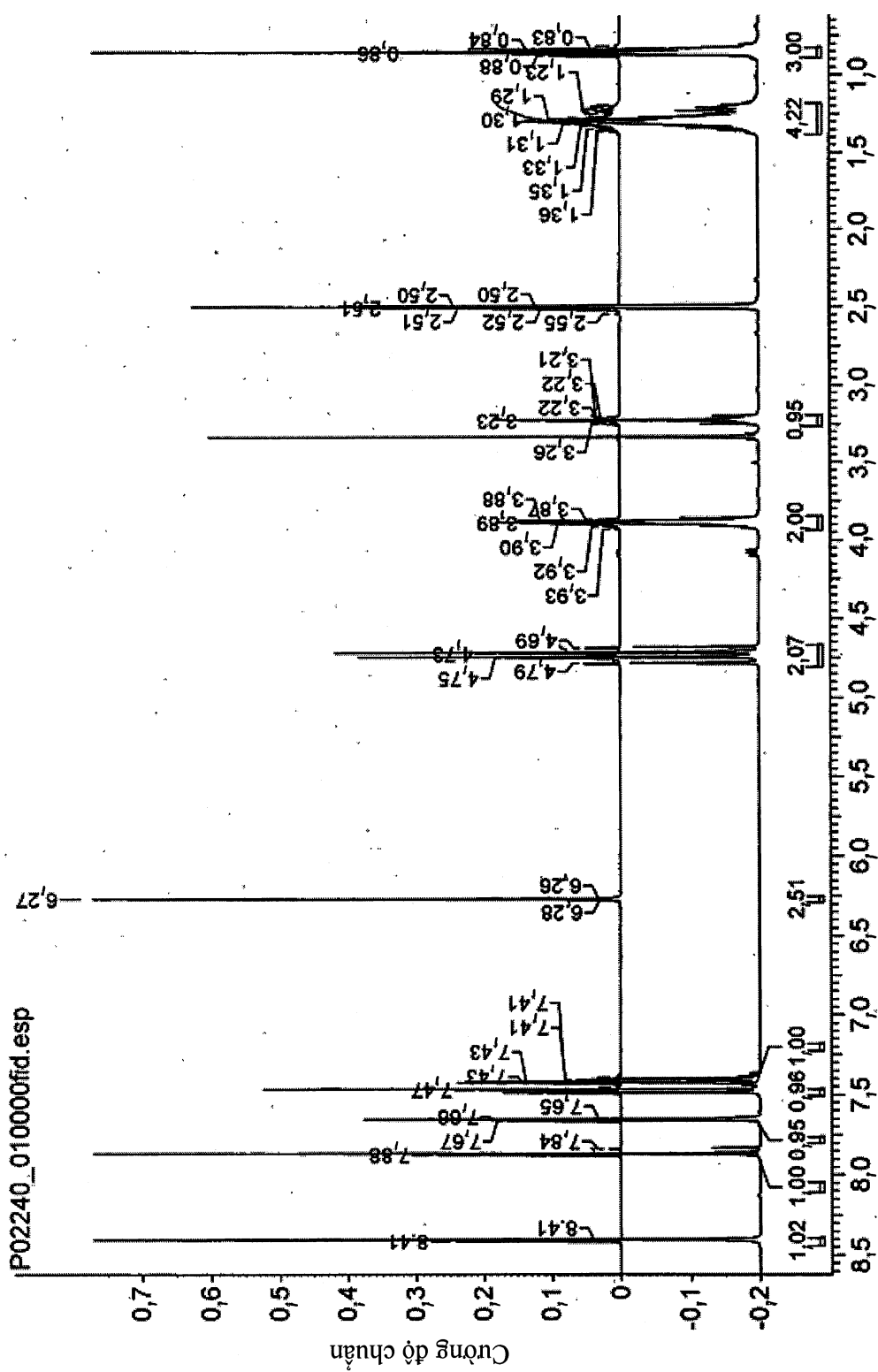
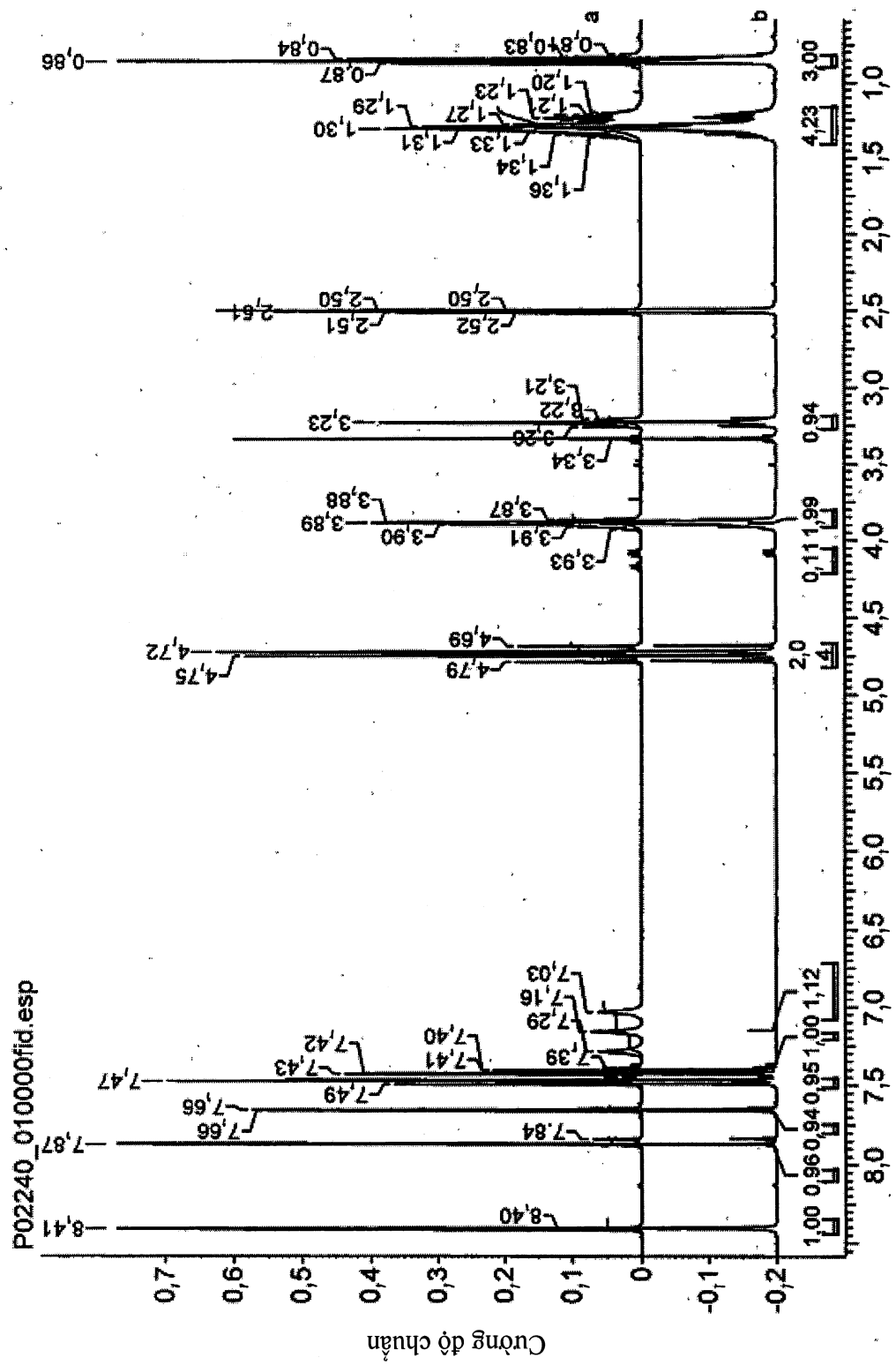


FIG. 23



Biến đổi hoá học (phần triệu)

FIG. 24



Biến đổi hoá học (phút)

FIG. 25

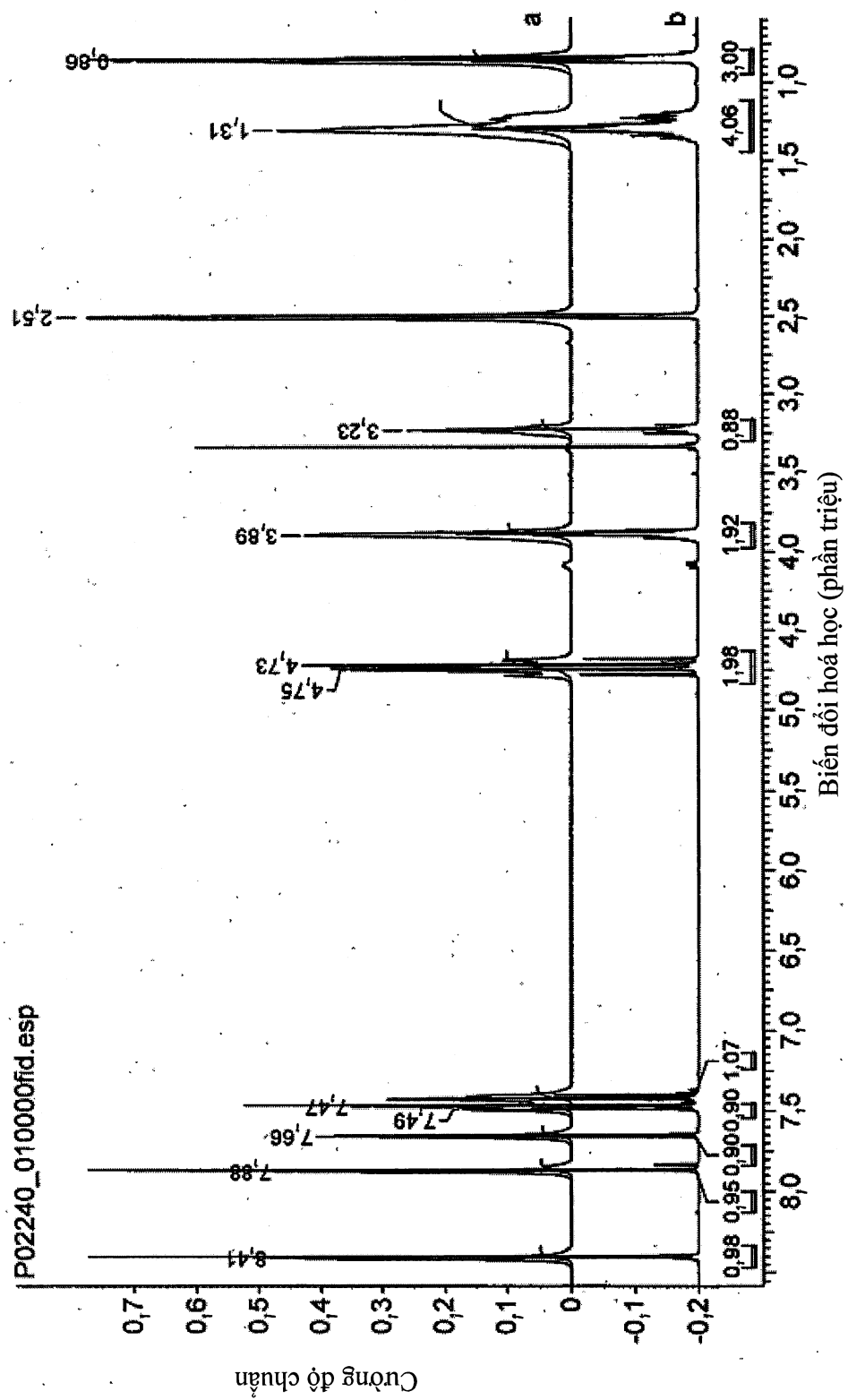


FIG. 26

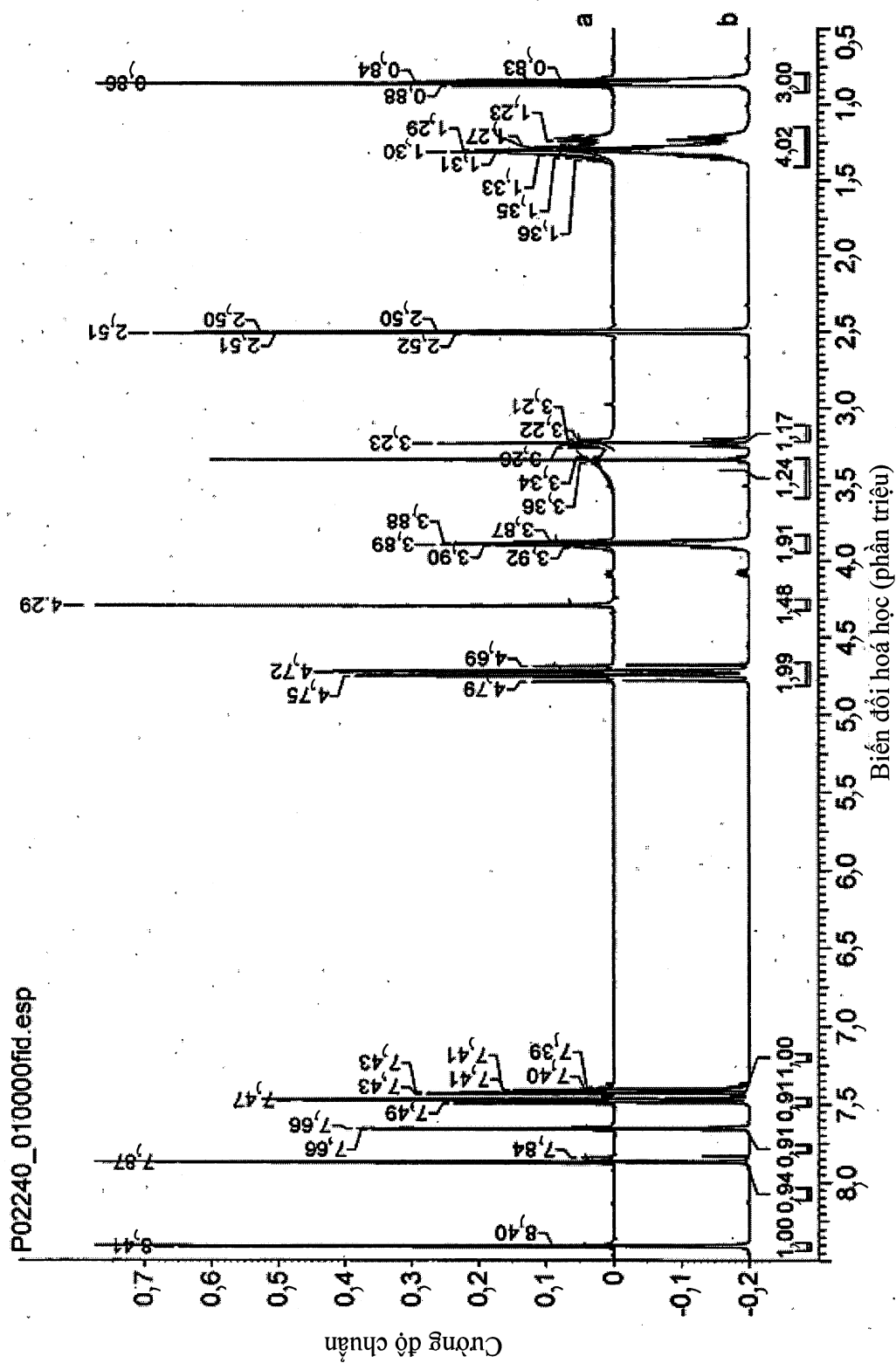


FIG. 27

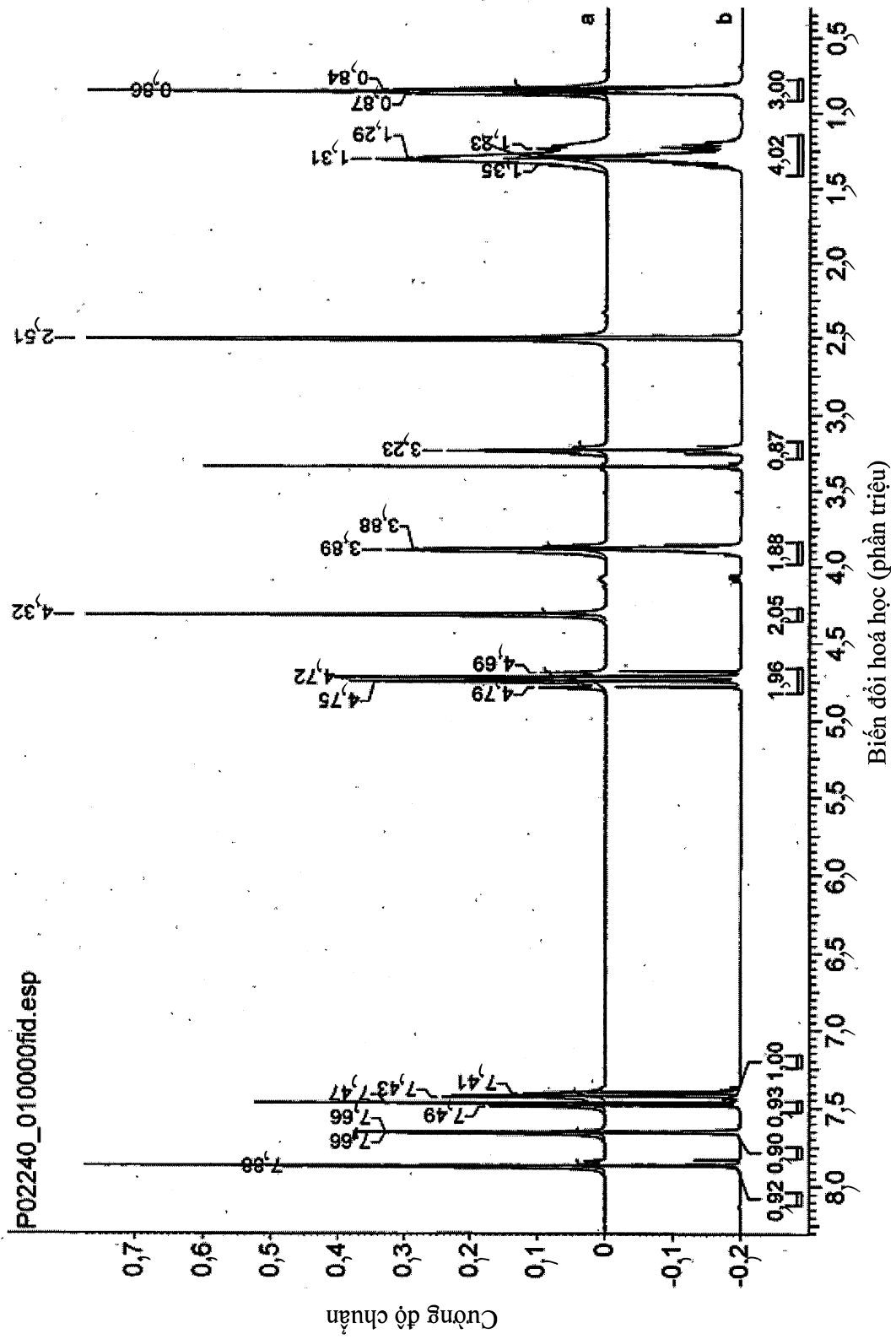


FIG. 28

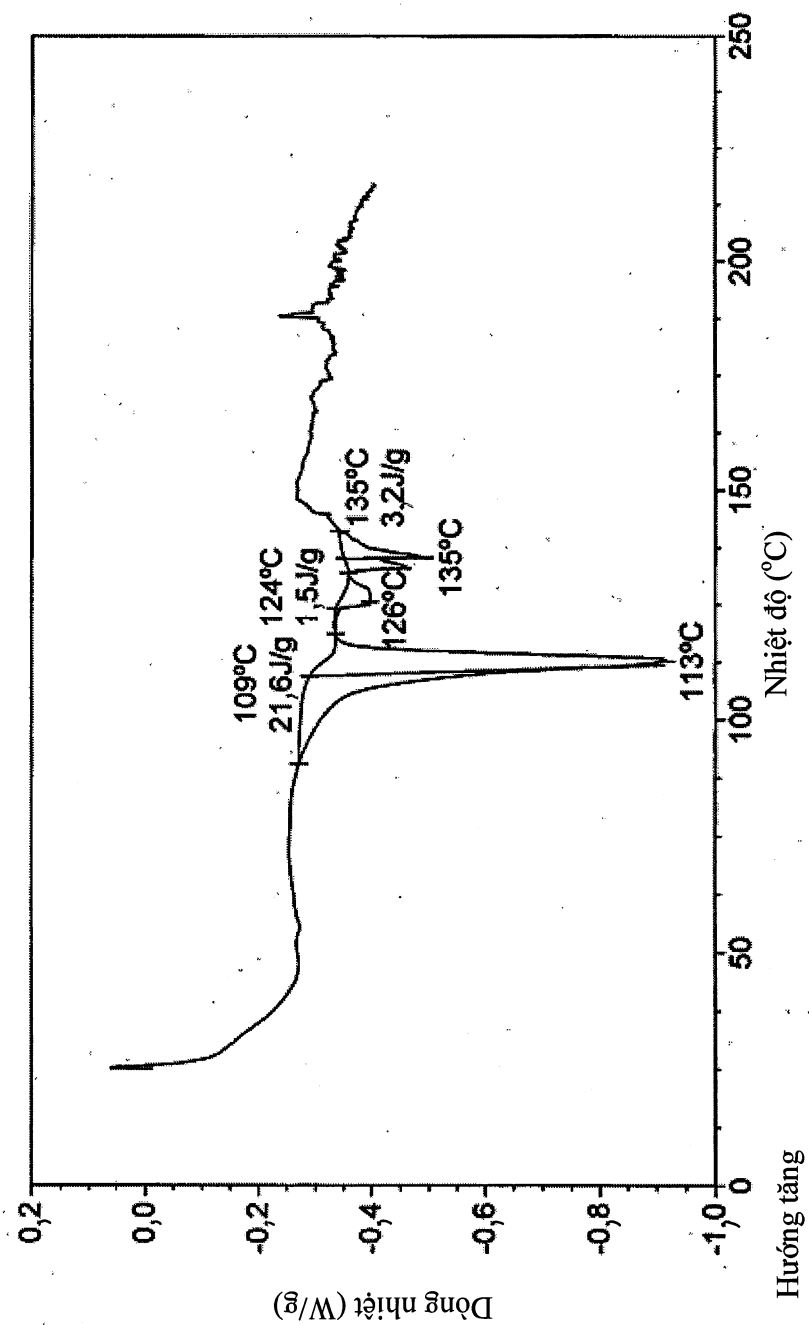


FIG. 29

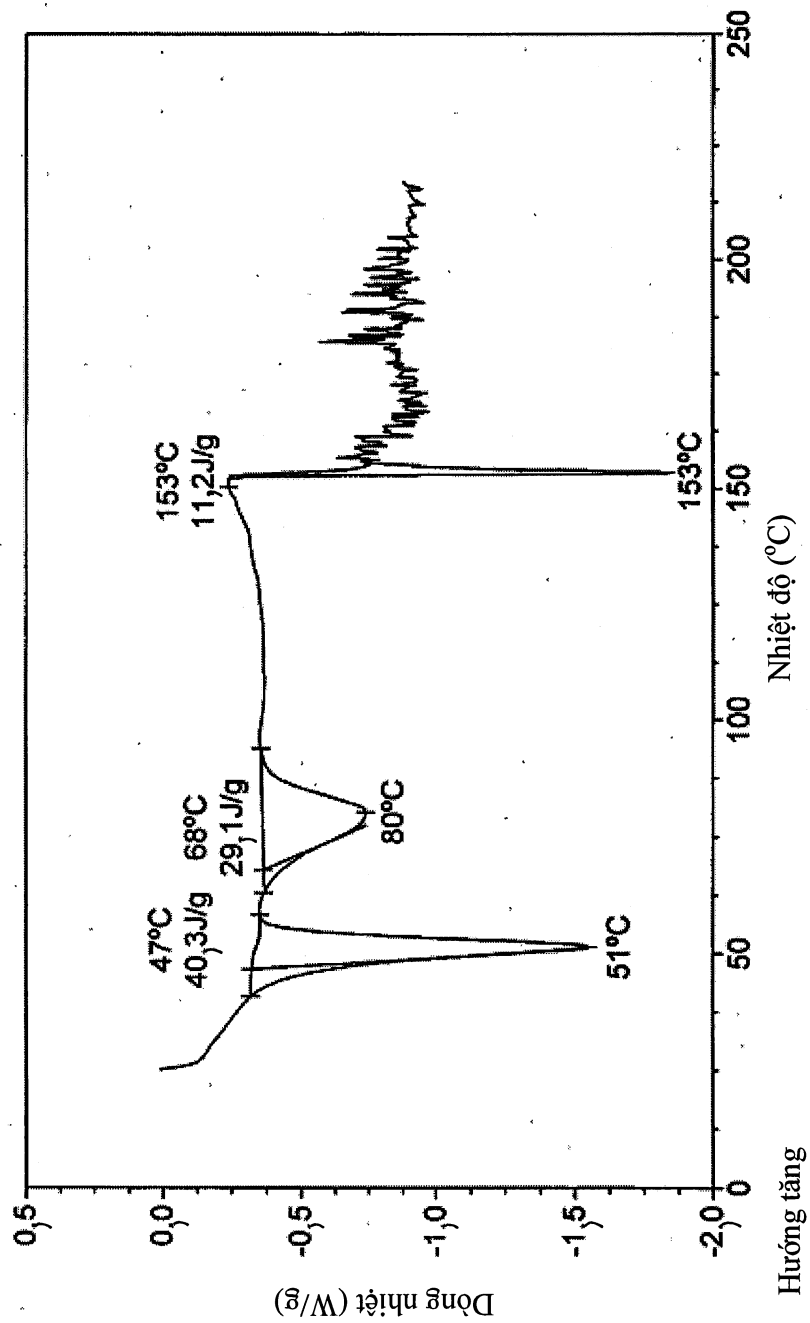


FIG. 30

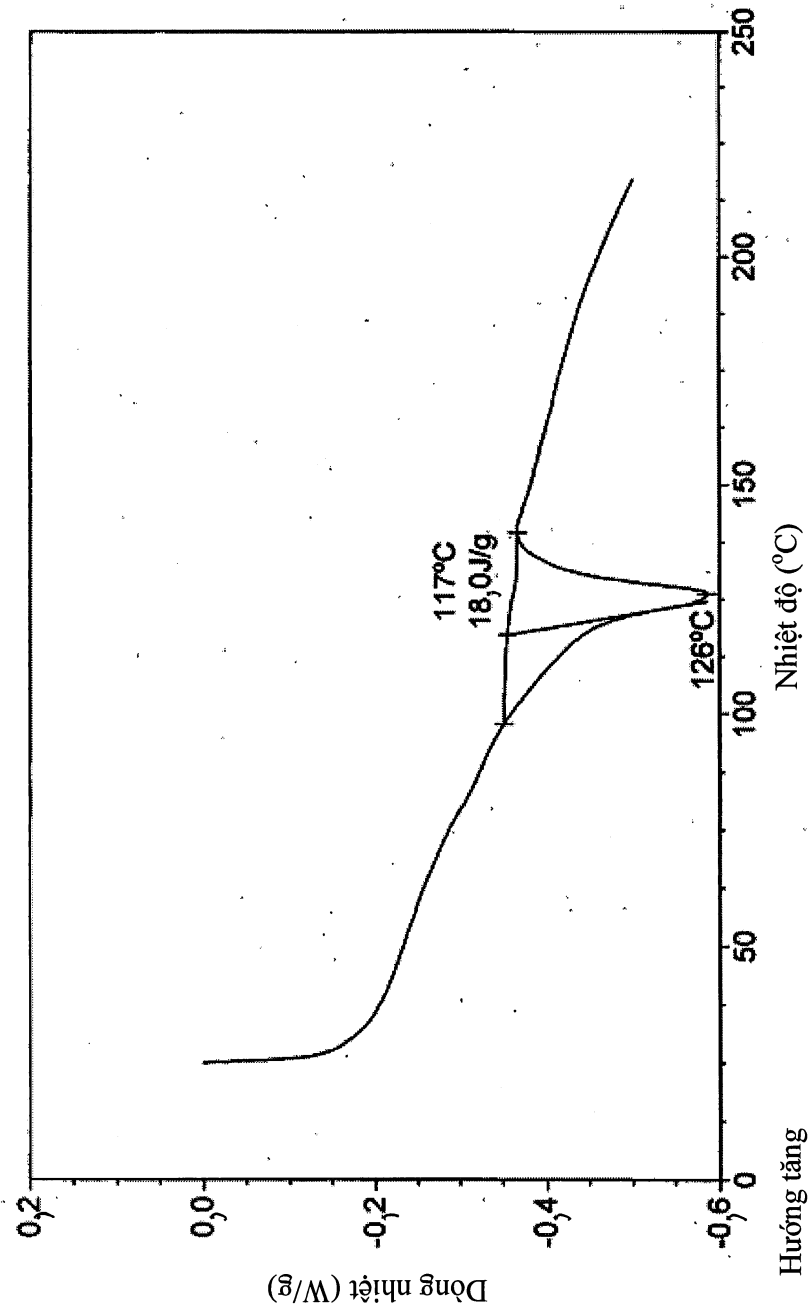


FIG. 31

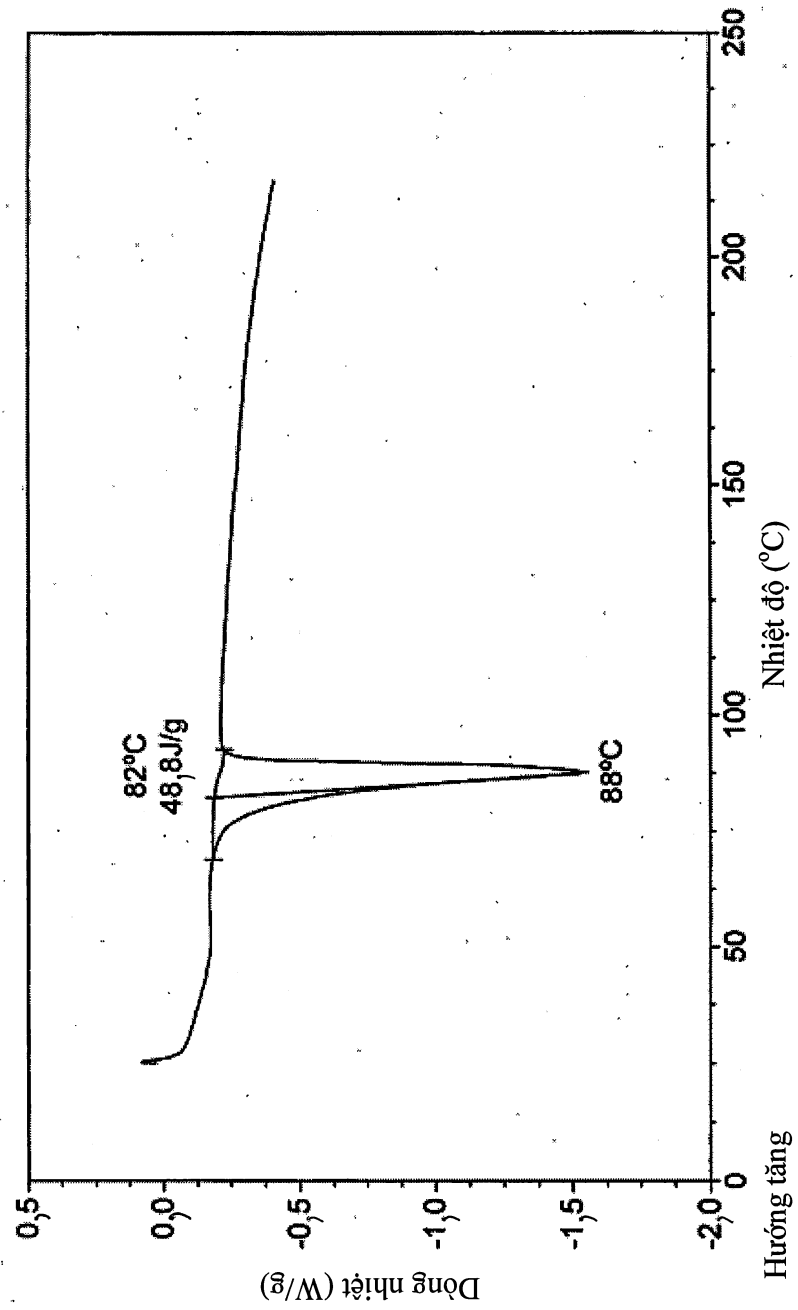


FIG. 32

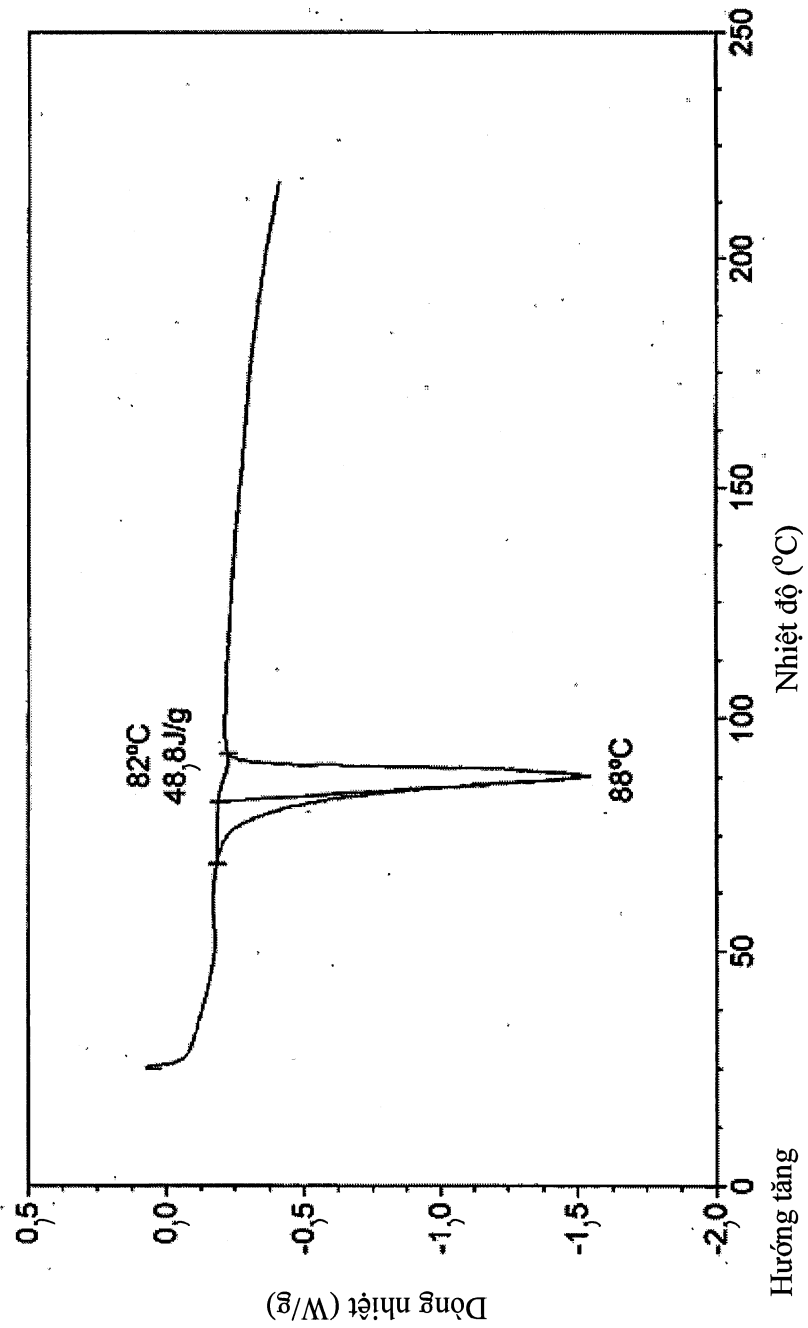


FIG. 33

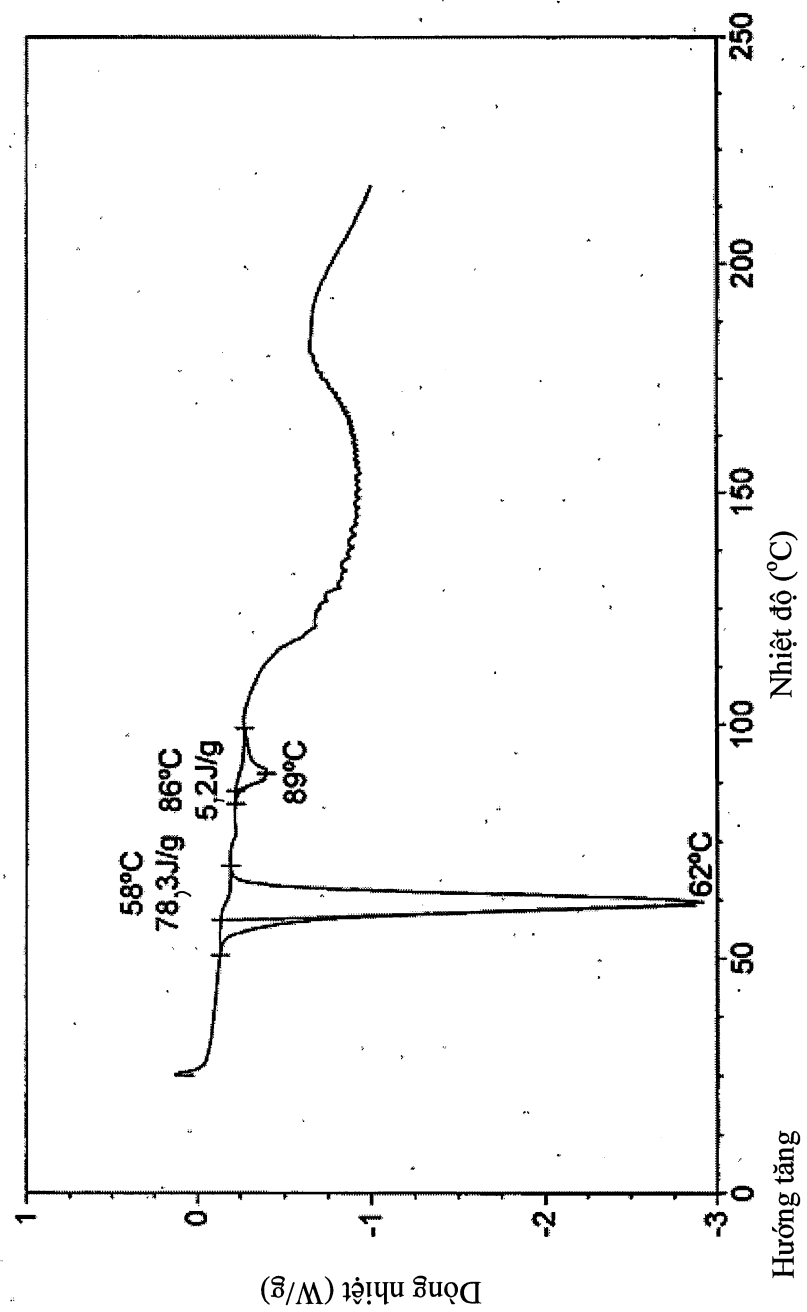


FIG. 34

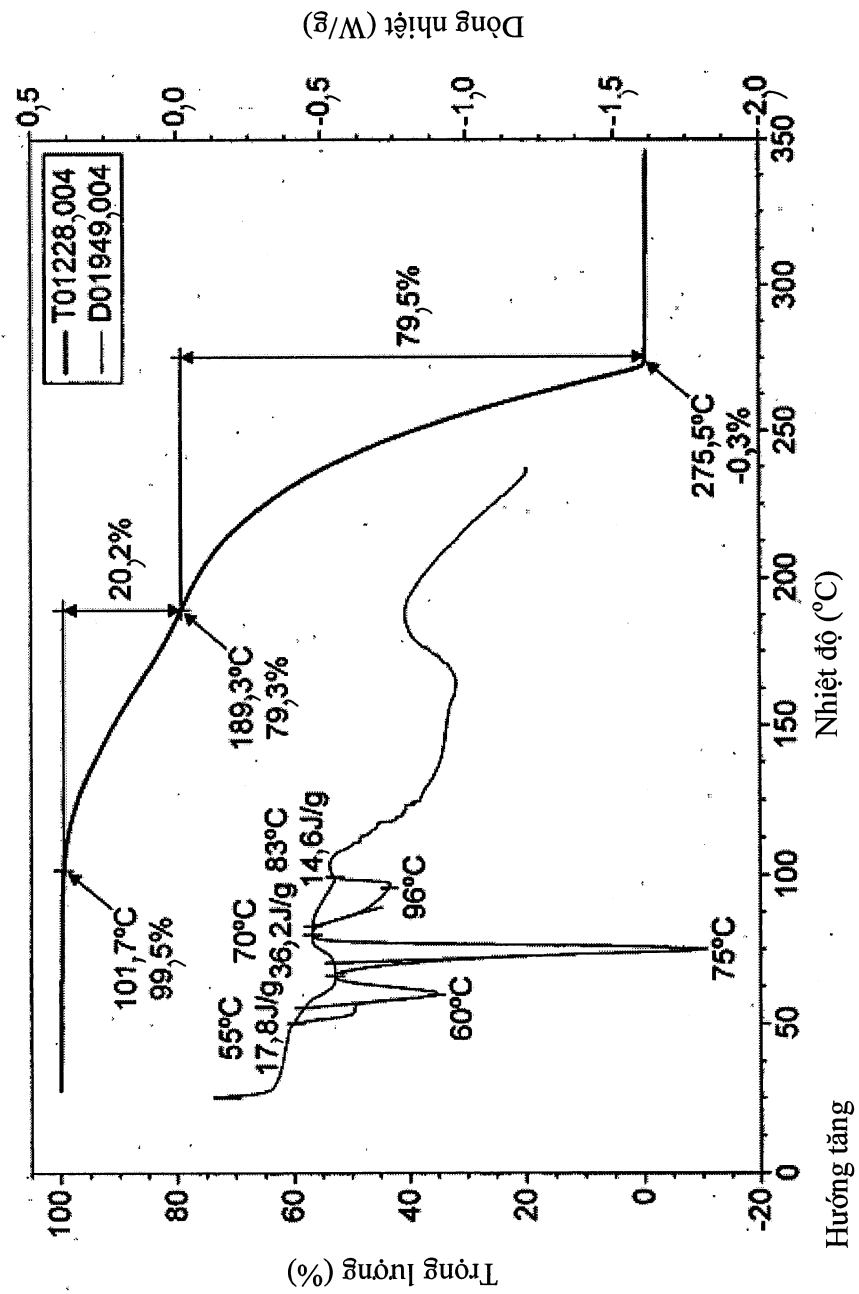


FIG. 35

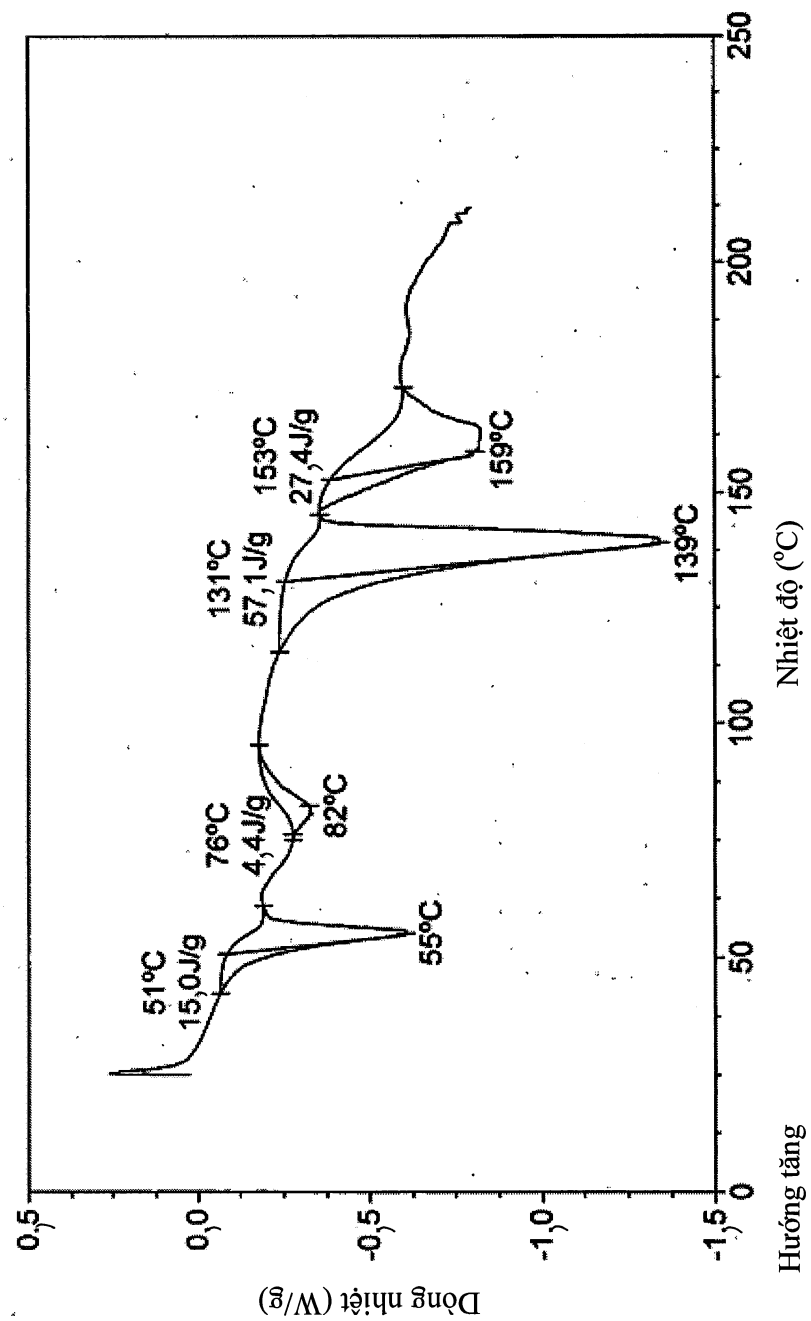


FIG. 36

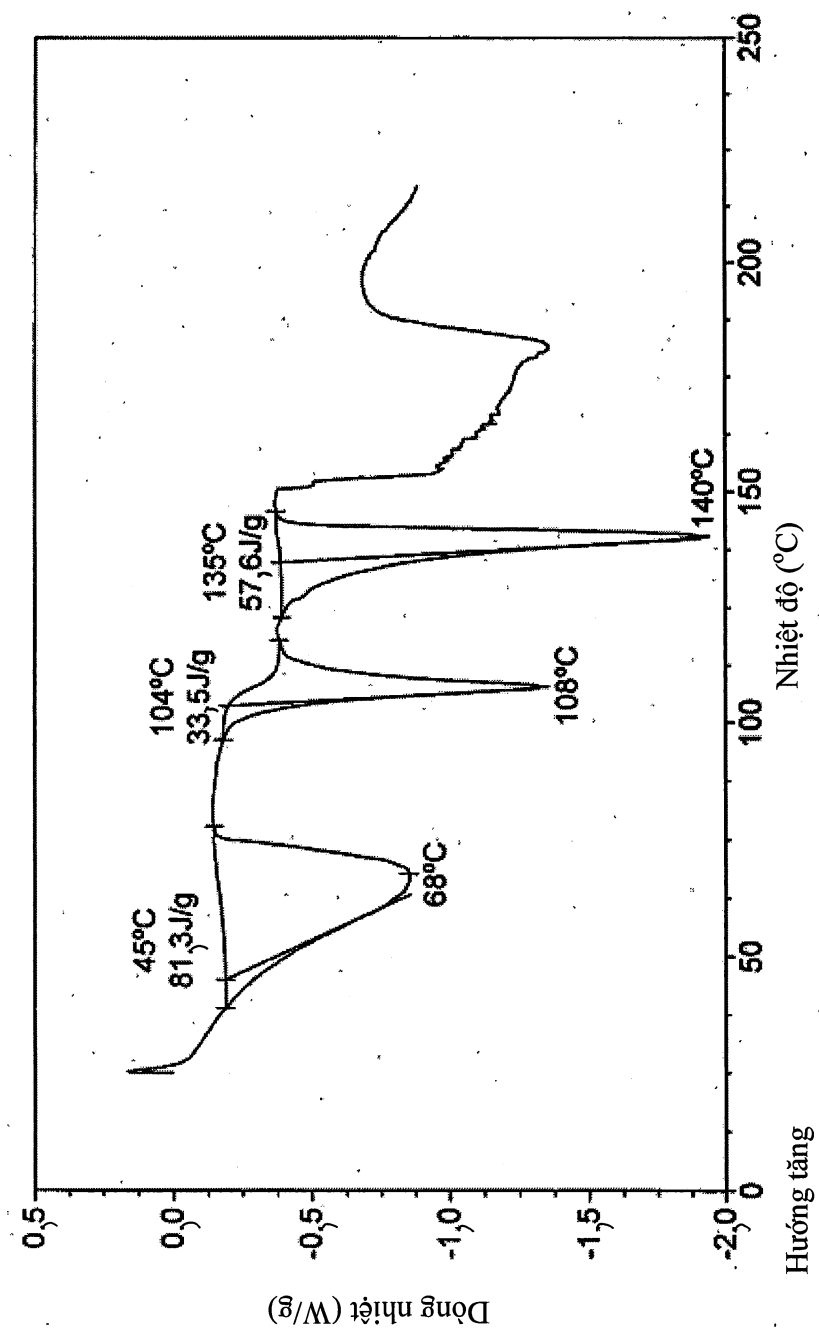


FIG. 37

Bên ngoài

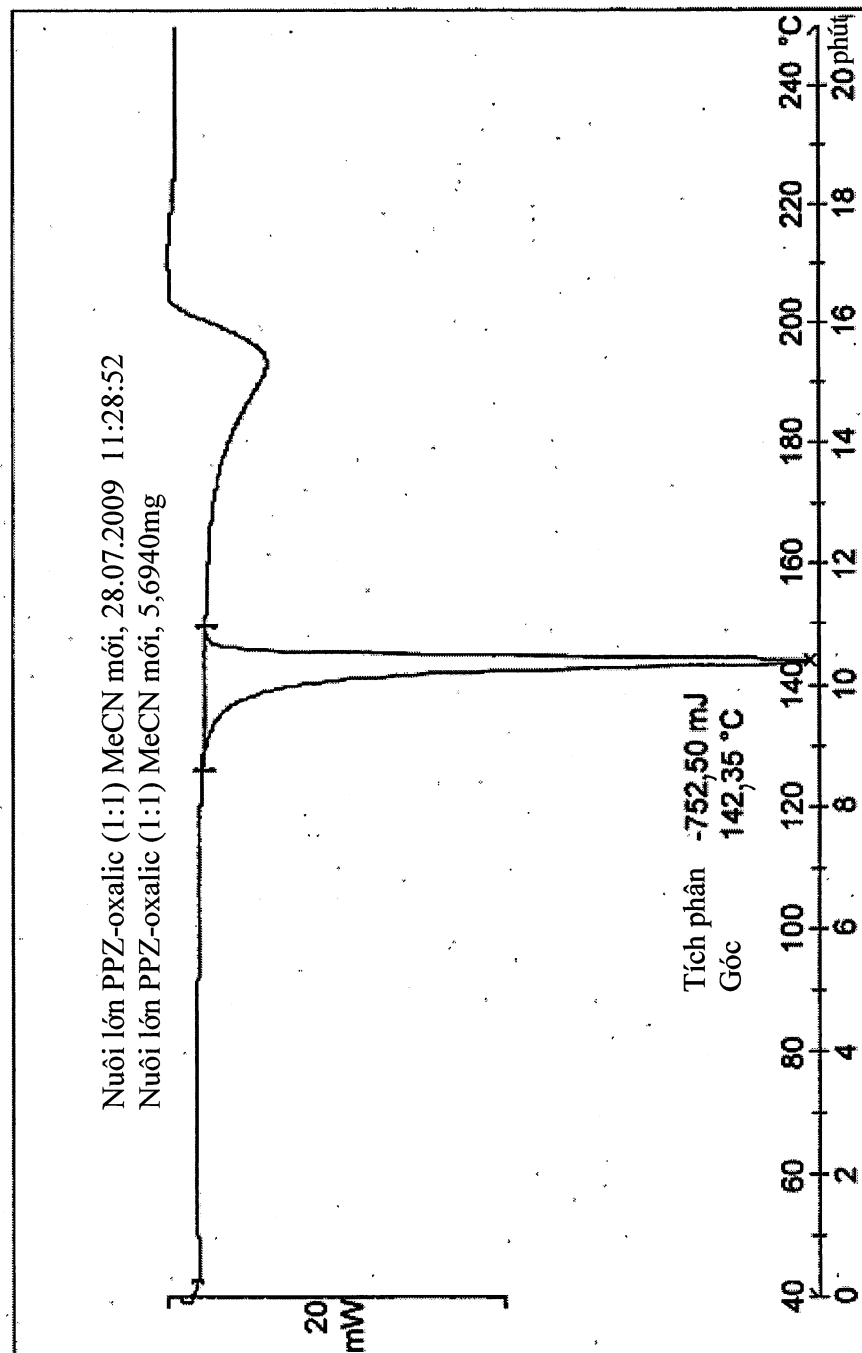


FIG. 38

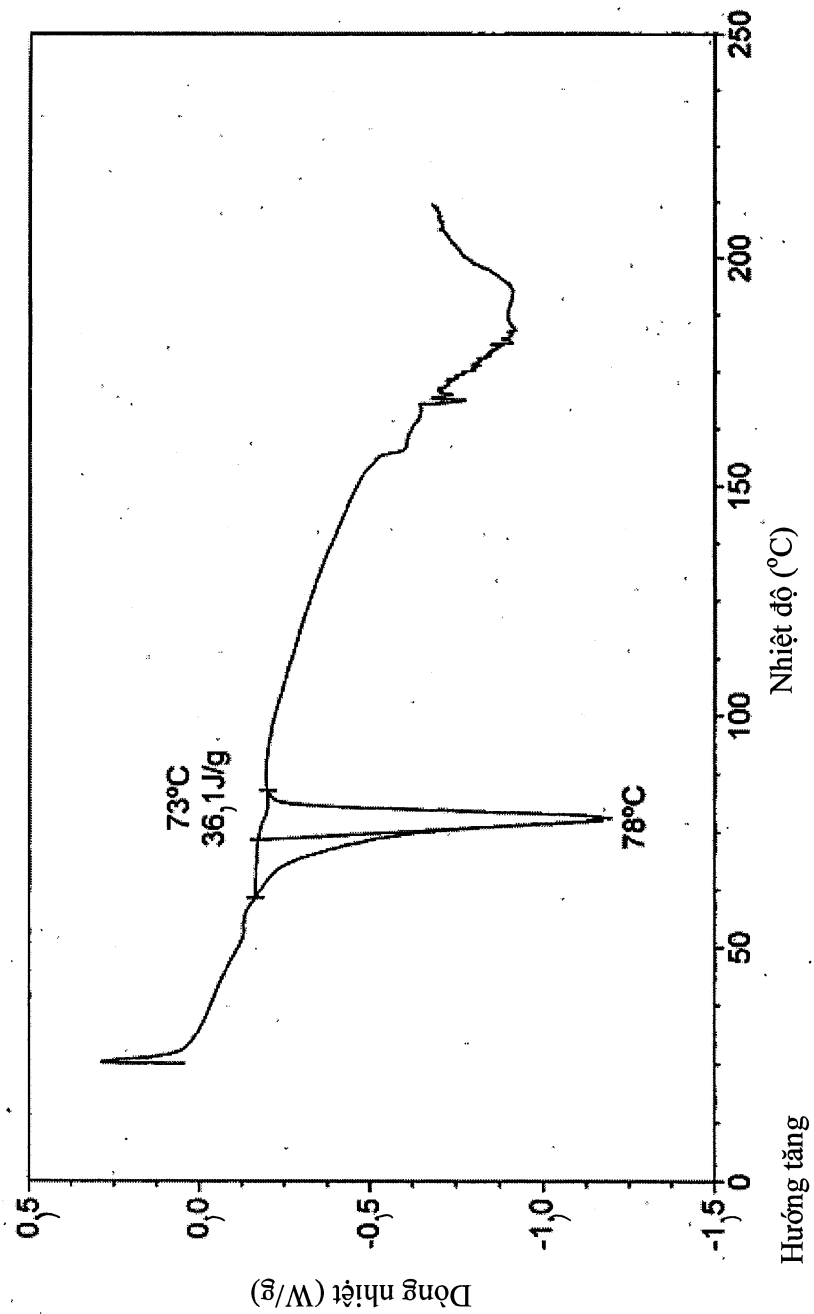


FIG. 39

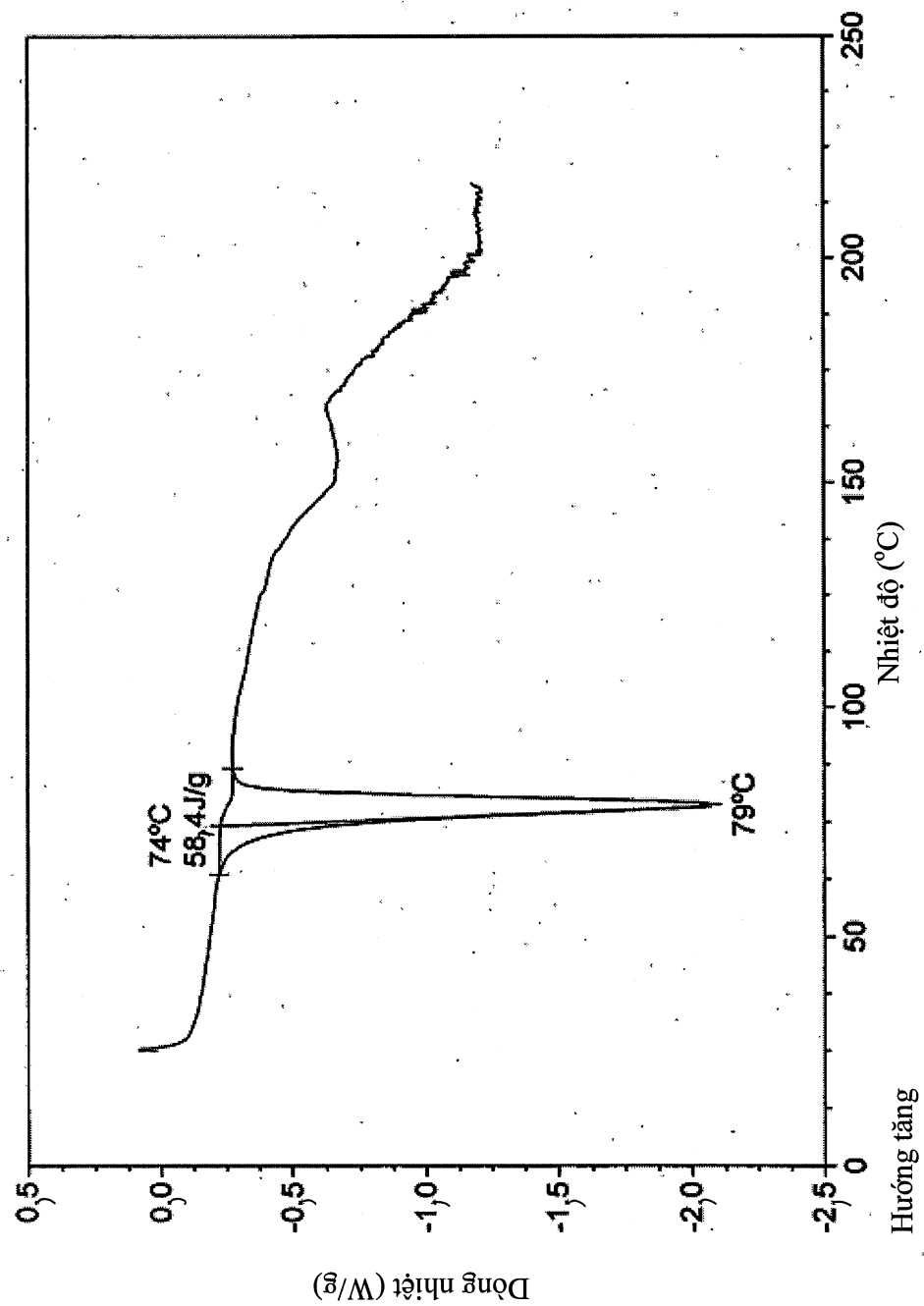


FIG. 40

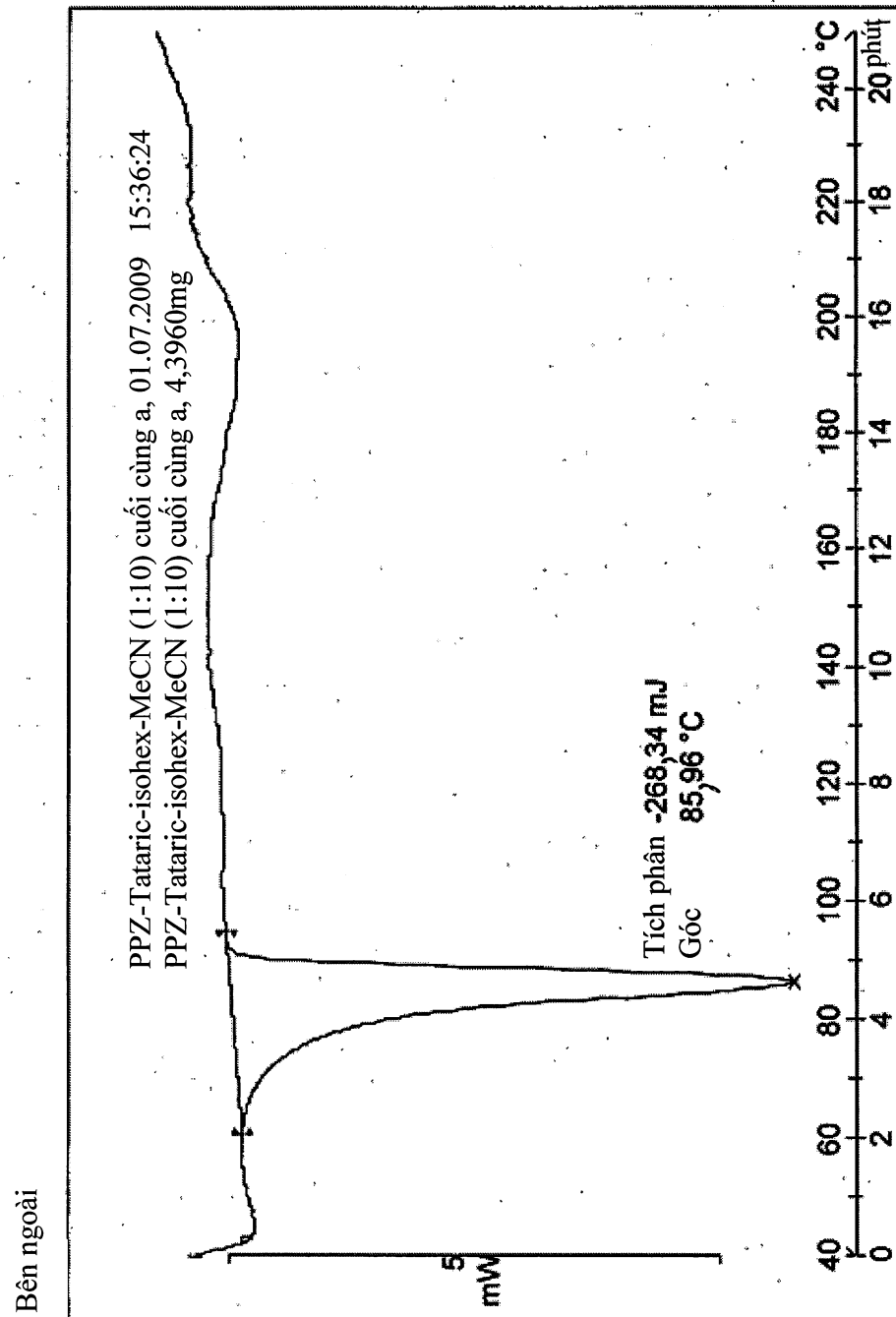


FIG. 41