

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4853759号  
(P4853759)

(45) 発行日 平成24年1月11日(2012.1.11)

(24) 登録日 平成23年11月4日(2011.11.4)

(51) Int.Cl.

F I

<b>CO7D 241/24</b>	<b>(2006.01)</b>	CO7D 241/24	CSP
<b>AO1N 43/60</b>	<b>(2006.01)</b>	AO1N 43/60	
<b>AO1N 47/02</b>	<b>(2006.01)</b>	AO1N 47/02	
<b>CO7D 241/26</b>	<b>(2006.01)</b>	CO7D 241/26	
<b>CO7C 211/48</b>	<b>(2006.01)</b>	CO7C 211/48	

請求項の数 10 (全 43 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2005-154362 (P2005-154362)  
 (22) 出願日 平成17年5月26日(2005.5.26)  
 (65) 公開番号 特開2006-8675 (P2006-8675A)  
 (43) 公開日 平成18年1月12日(2006.1.12)  
 審査請求日 平成20年4月3日(2008.4.3)  
 (31) 優先権主張番号 特願2004-157634 (P2004-157634)  
 (32) 優先日 平成16年5月27日(2004.5.27)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(73) 特許権者 000232623  
 日本農薬株式会社  
 東京都中央区日本橋1丁目2番5号  
 (74) 代理人 100068618  
 弁理士 粁 経夫  
 (74) 代理人 100093193  
 弁理士 中村 壽夫  
 (74) 代理人 100104145  
 弁理士 宮崎 嘉夫  
 (74) 代理人 100104385  
 弁理士 加藤 勉  
 (74) 代理人 100109690  
 弁理士 小野塚 薫

最終頁に続く

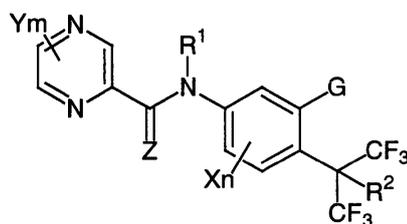
(54) 【発明の名称】置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体又はその塩類、その中間体及び農園芸用薬剤並びにその使用方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(I)

【化1】



(1)

{ 式中、R<sup>1</sup>は水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>ア



アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、フェニルスルフィニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルフィニル基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルホニル基、フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基を示す。

10

20

GはC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基、C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>アルケニル基、ハロC<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>アルケニル基、C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>アルキニル基、ハロC<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>アルキニル基、C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>シクロアルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>シクロアルキル基、C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>シクロアルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>シクロアルケニル基、C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基又はハロC<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基を示す。

Zは酸素原子又は硫黄原子を示す。

30

Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基を示す。

Yは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、水酸基、メルカプト基、アミノ基、カルボキシル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、同一又は異なっても良いトリC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルシリルC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、フェニルC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ヒドロキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニルオキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>シクロアルキル基、ハロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>シクロアルキル基、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、フェニルアミノ基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロ

40

50

ゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニル基、フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、複素環基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換複素環基を示す。

10

又、ピラジン環上の隣接した2個のYは一緒になって縮合環を形成することができ、該縮合環は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有することもできる。m及びnは1~3の整数を示す。}で表される置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体及びその塩類。

20

【請求項2】

Gが $C_2-C_{10}$ アルキル基である請求項1に記載の置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体及びその塩類。

【請求項3】

Xが水素原子である請求項1又は2に記載の置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体及びその塩類。

30

【請求項4】

Zが酸素原子で表される基である請求項1乃至3いずれか1項に記載の置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体及びその塩類。

【請求項5】

請求項1乃至4のいずれか1項に記載の置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体又はその塩類を有効成分として含有することを特徴とする農園芸用薬剤。

【請求項6】

農園芸用薬剤が農園芸用殺虫剤又は殺ダニ剤である請求項5に記載の農園芸用薬剤。

40

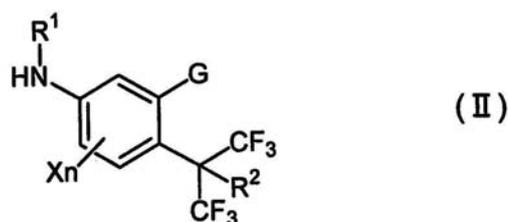
【請求項7】

有用植物から有害生物を防除するために、請求項5又は6に記載の農園芸用薬剤の有効量を対象植物又は土壤に処理することを特徴とする農園芸用薬剤の使用方法。

【請求項8】

一般式(11)

## 【化2】



{ 式中、 $R^1$ は水素原子、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルカルボニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルカルボニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルカルボニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、シクロ $C_3$ - $C_6$ アルキル基、ハロシクロ $C_3$ - $C_6$ アルキル基、シクロ $C_3$ - $C_6$ アルキル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロシクロ $C_3$ - $C_6$ アルキル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_2$ - $C_6$ アルケニル基、ハロ $C_2$ - $C_6$ アルケニル基、 $C_2$ - $C_6$ アルキニル基、ハロ $C_2$ - $C_6$ アルキニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、フェニル $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオカルボニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノカルボニル基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノカルボニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、シアノ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、フェニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、フェノキシカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシカルボニル基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルホスホノ基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルホスホノチオ基、 $N$ - $C_1$ - $C_6$ アルキル- $N$ - $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニルアミノチオ基、 $N$ - $C_1$ - $C_6$ アルキル- $N$ - $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノチオ基、同一又は異なっても良い $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノチオ基、又はシクロ $C_3$ - $C_6$ アルキルカルボニル基を示す。

$R^2$ は水素原子、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、シアノ基、ヒドロキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_3$ アルコキシ基、ハロ $C$

$C_1-C_6$ アルコキシ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル $C_1-C_3$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル $C_1-C_3$ アルコキシ基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ $C_1-C_3$ アルコキシ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ $C_1-C_3$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、アミノ基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、フェニルスルフィニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルフィニル基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルホニル基、フェニル $C_1-C_6$ アルコキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキル基、 $C_1-C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1-C_6$ アルコキシ基、 $C_1-C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルチオ基、 $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1-C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1-C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良い $C_1-C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1-C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニル $C_1-C_6$ アルコキシ基を示す。

10

20

30

Gは $C_2-C_{10}$ アルキル基、ハロ $C_2-C_{10}$ アルキル基、 $C_3-C_{10}$ アルケニル基、ハロ $C_3-C_{10}$ アルケニル基、 $C_3-C_{10}$ アルキニル基、ハロ $C_3-C_{10}$ アルキニル基、 $C_3-C_{10}$ シクロアルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_1-C_6$ アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換 $C_3-C_{10}$ シクロアルキル基、 $C_3-C_{10}$ シクロアルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_1-C_6$ アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換 $C_3-C_{10}$ シクロアルケニル基、 $C_3-C_8$ シクロアルキル $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_3-C_8$ シクロアルキル $C_1-C_6$ アルキル基を示す。

40

Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_1-C_6$ アルキル基を示す。nは1~3の整数を示す。}で表される置換アニリン誘導体及びその塩類。

【請求項9】

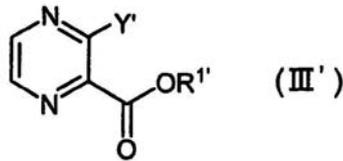
50

X が水素原子である請求項 8 に記載の置換アニリン誘導体及びその塩類。

【請求項 10】

一般式 (III')

【化 3】



10

{ 式中、Y' は八員C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基を示し、R<sup>1</sup>' は水素原子又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基を示し、m は 1 ~ 3 の整数を示す。 } で表される置換ピラジンカルボン酸誘導体及びその塩類。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体及びその塩類、その中間体及び該化合物を有効成分とする農園芸用薬剤、特に殺虫剤又は殺ダニ剤並びにその使用方法に関する。

20

【背景技術】

【0002】

従来、本発明に類似の置換アニリド誘導体が農園芸用殺虫剤、殺菌剤又は殺ダニ剤として有用であることは知られている（例えば、特許文献 1 参照。）が、該文献には実施例は限られており、本発明化合物の具体的開示はない。ヘテロ環カルボン酸部分においては、本発明のピラジン環を導入した化合物についての実施例はなく、化合物一覧表にも記載されていない。また、アニリン部分の置換基においても、3 位の置換基の実施例としてはメチル基のみで、本発明の 3 位に炭素数 2 以上のアルキル基を導入した化合物の実施例はなく、化合物一覧表にも記載されていない。更に、そこに具体的に開示されている 3 位メチル体は殺ダニ活性を示していない。

30

【特許文献 1】特開 2003 - 48878 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

農業及び園芸等の作物生産において、害虫等による被害は今なお大きく、既存薬に対する抵抗性害虫の発生等の要因から新規な農園芸用薬剤、特に殺虫剤又は殺ダニ剤の開発が望まれている。又、就農者の高齢化等により各種の省力的施用方法が求められるとともに、これらの施用方法に適した性格を有する農園芸用薬剤、特に殺虫剤又は殺ダニ剤の創出が求められている。

【課題を解決するための手段】

40

【0004】

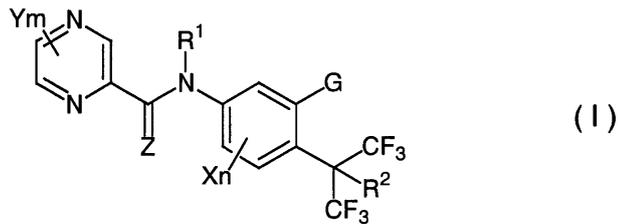
本発明者等は新規な農園芸用薬剤、特に殺虫剤又は殺ダニ剤を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、前記従来文献に記載された幅広い化合物群のうち、ヘテロ環カルボン酸部分としてピラジン環を選択し、アニリン部分 3 位に特定の置換基を導入した本発明の一般式 (I) で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体が、殺ダニ剤として前記従来文献に記載された内容からは全く予想することの出来ない優れた防除効果を示すことを見いだした。更に該化合物の中間体である、一般式 (II) で表される置換アニリン誘導体及び一般式 (III') で表される置換ピラジンカルボン酸誘導体が文献未記載の新規化合物であり、該化合物は医薬、農薬等の生理活性を有する各種誘導体を製造する上で有用な中間体であることを見だし、本発明を完成させたものである。

50

【 0 0 0 5 】

即ち本発明は一般式 ( I )

【 化 1 】



10

{ 式中、R<sup>1</sup>は水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオカルボニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノカルボニル基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、シアノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、

20

【 0 0 0 6 】

フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、フェノキシカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシカルボニル基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルホスホノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルホスホノチオ基、N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル-N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルアミノチオ基、N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル-N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノチオ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキ

30

40

50



基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基又はハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換 $C_3$ - $C_{10}$ シクロアルケニル基、 $C_3$ - $C_8$ シクロアルキル $C_1$ - $C_6$ アルキル基又はハロ $C_3$ - $C_8$ シクロアルキル $C_1$ - $C_6$ アルキル基を示す。

Zは酸素原子又は硫黄原子を示す。

Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基又はハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基を示す。

【0010】

Yは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、水酸基、メルカプト基、アミノ基、カルボキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_2$ - $C_6$ アルケニル基、ハロ $C_2$ - $C_6$ アルケニル基、 $C_2$ - $C_6$ アルキニル基、ハロ $C_2$ - $C_6$ アルキニル基、同一又は異なっても良いトリ $C_1$ - $C_6$ アルキルシリル $C_2$ - $C_6$ アルキニル基、フェニル $C_2$ - $C_6$ アルキニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ヒドロキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルカルボニルオキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_3$ - $C_6$ シクロアルキル基、ハロ $C_3$ - $C_6$ シクロアルキル基、 $C_3$ - $C_6$ シクロアルキル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_3$ - $C_6$ シクロアルキル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、フェニル $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル $C_1$ - $C_6$ アルキル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、フェニルアミノ基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、同一又は異なっても良いジ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニル基、

【0011】

フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、複素環基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジ $C_1$ - $C_6$ アルキルアミノ基又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換複素環基を示す。

【0012】

又、ピラジン環上の隣接した2個のYは一緒になって縮合環を形成することができ、該縮合環は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、 $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルチオ基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルフィニル基、 $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキルスルホニル基、モノ $C_1$

10

20

30

40

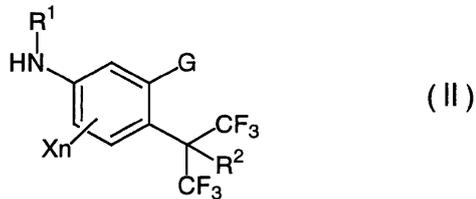
50

-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有することもできる。m及びnは1~3の整数を示す。}で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体及びその塩類、該化合物を有効成分とする農園芸用薬剤及びその使用方法に関する。

【0013】

また本発明はその中間体である一般式(II)

【化2】



10

{ 式中、R<sup>1</sup>は水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオカルボニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノカルボニル基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、シアノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、

20

30

【0014】

フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、フェノキシカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良いジ

40

50

C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルホスホノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルホスホノチオ基、N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル-N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルアミノチオ基、N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル-N-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノチオ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノチオ基、又はシクロC<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基を示す。

【0015】

R<sup>2</sup>は水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、シアノ基、ヒドロキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニルC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、アミノ基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、

【0016】

フェニルスルフィニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルフィニル基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルスルホニル基、フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルチオ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルフィニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルスルホニル基、モノC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基、同一又は異なっても良いジC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルアミノ基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基を示す。

【0017】

GはC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基、C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>アルケニル基、ハロC<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>アル

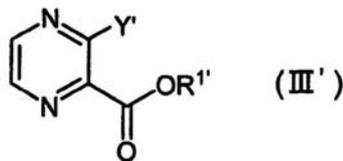
ケニル基、 $C_3-C_{10}$ アルキニル基、ハロ $C_3-C_{10}$ アルキニル基、 $C_3-C_{10}$ シクロアルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_1-C_6$ アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換 $C_3-C_{10}$ シクロアルキル基、 $C_3-C_{10}$ シクロアルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_1-C_6$ アルキル基から選択される1以上の置換基を有する置換 $C_3-C_{10}$ シクロアルケニル基、 $C_3-C_8$ シクロアルキル $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_3-C_8$ シクロアルキル $C_1-C_6$ アルキル基を示す。

【0018】

Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 $C_1-C_6$ アルキル基又はハロ $C_1-C_6$ アルキル基を示す。nは1~3の整数を示す。}で表される置換アニリン誘導体及びその塩類、及び、

一般式(III')

【化4】



{式中、Y'はハロ $C_1-C_6$ アルキル基を示す。R<sup>1</sup>'は水素原子又は $C_1-C_6$ アルキル基を示す。}で表される置換ピラジニカルボン酸誘導体及びその塩類にも関する。

【発明の効果】

【0019】

本発明によれば、従来技術に比べて優れた性能を有する農園芸用薬剤、特に殺虫、殺ダニ剤を提供できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0020】

本発明の置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体の一般式(I)、置換アニリン誘導体の一般式(II)及び置換ピラジニカルボン酸誘導体の一般式(III')の定義において、各置換基における「ハロ」、「 $C_1-C_6$ アルキル」、「 $C_1-C_6$ アルコキシ」、「 $C_2-C_6$ アルケニル」、「 $C_2-C_6$ アルキニル」又は「複素環」等は以下の意味を示す。

「ハロ」又は「ハロゲン原子」とは、塩素原子、臭素原子、フッ素原子又はヨウ素原子を示す。「 $C_1-C_6$ アルキル」とは、直鎖又は分岐鎖状の炭素原子数1~6個のアルキルを示し、例えば、メチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、i-ブチル、s-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシル等が挙げられる。「 $C_3-C_{10}$ シクロアルキル」とは、環状の炭素原子数3~10個のアルキルを示し、例えば、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロオクチル、シクロデシル等が挙げられる。「 $C_1-C_6$ アルコキシ」とは、そのアルキル部位が上記「 $C_1-C_6$ アルキル」であるアルコキシを示し、例えば、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、イソブトキシ、t-ブトキシ、ペンチルオキシ、ヘキシルオキシ等が挙げられる。「 $C_2-C_6$ アルケニル」とは、少なくとも1個の二重結合を有する直鎖又は分岐鎖状の炭素原子数2~6個のアルケニルを示し、例えば、ビニル、1-プロペニル、アリル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、2-ペンテニル、2,4-ペンタジエニル、3-ヘキセニル等が挙げられる。「 $C_2-C_6$ アルキニル」とは、少なくとも1個の三重結合を有する直鎖又は分岐鎖状の炭素原子数2~6個のアルキニルを示し、例えば、エチニル、2-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル、3-ブチニル、2-ペンチニル、3-ヘキシニル等が挙げられる。又、「 $C_2-C_6$ 」、「 $C_3-C_{10}$ 」等の数字は炭素原子2個~6個、3個~10個のように炭素原子数の範囲を示す。更に、上記置換基が連結した基についても上記定義を示すことができ、例えば、「ハロ $C_1-C_6$ アルキル」の場合は、同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子により置換された直鎖又は分岐鎖状の炭素原子数1~6個のアルキル基を

10

20

30

40

50

示し、例えば、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル、2, 2, 2-トリフルオロエチル、パーフルオロヘキシル等が挙げられる。

【0021】

「複素環基」とは、酸素原子、硫黄原子及び窒素原子から選択される1以上のヘテロ原子を有する5又は6員複素環基を示し、例えば、ピリジル基、ピリジン-N-オキシド基、ピリミジニル基、フリル基、テトラヒドロフリル基、チエニル基、テトラヒドロチエニル基、テトラヒドロピラニル基、テトラヒドロチオピラニル基、オキサゾリル基、イソキサゾリル基、オキサジアゾリル基、チアゾリル基、イソチアゾリル基、チアジアゾリル基、イミダゾリル基、トリアゾリル基、ピラゾリル基等が挙げられる。「縮合環」としては、例えば、ナフタレン、テトラヒドロナフタレン、インデン、インダン、キノリン、キナゾリン、インドール、インドリン、クロマン、イソクロマン、ベンゾジオキサソール、ベンゾジオキソール、ベンゾフラン、ジヒドロベンゾフラン、ベンゾチオフエン、ジヒドロベンゾチオフエン、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンズイミダゾール、インダゾール等が挙げられる。

10

【0022】

本発明の置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体の一般式(I)、置換アニリン誘導体の一般式(II)及び置換ピラジニカルボン酸誘導体の一般式(III')のうち、R<sup>1</sup>として好ましくは水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルケニル基、C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>アルキニル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基であり、更に好ましくは水素原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキルカルボニル基又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシカルボニルである。

20

【0023】

R<sup>2</sup>として好ましくは水素原子、ハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ヒドロキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>アルコキシ基であり、更に好ましくは水素原子、ハロゲン原子又はC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基である。

30

Gとして好ましくはC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基、ハロC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基、C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>シクロアルキル基又はC<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基であり、特に好ましくはC<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>アルキル基又はC<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>シクロアルキルC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基である。

Xとして特に好ましくは水素原子である。Yとして好ましくはハロゲン原子、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、ハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルコキシ基であり、特に好ましくはC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基又はハロC<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>アルキル基である。mとして好ましくは1又は2であり、特に好ましくは1である。Zは酸素原子が好ましい。

【0024】

本発明の一般式(I)で表される置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体又はその中間体である一般式(III')で表される置換ピラジニカルボン酸誘導体の塩としては、アルカリ金属(リチウム、ナトリウム、カリウム等)の塩、アルカリ土類金属(カルシウム、マグネシウム等)の塩、アンモニウム塩、有機アミン(メチルアミン、トリエチルアミン、ジエタノールアミン、ピペリジン、ピリジン等)の塩又は酸付加塩等が挙げられ、酸付加塩としては、例えば、酢酸塩、プロピオン酸塩、シュウ酸塩、トリフルオロ酢酸塩、安息香酸塩等のカルボン酸塩、メタンスルホン酸塩、トリフルオロメタンスルホン酸塩、p-トルエンスルホン酸塩等のスルホン酸塩、塩酸塩、硫酸塩、硝酸塩、炭酸塩等の無機酸塩が挙げられる。

40

【0025】

又、一般式(II)で表される置換アニリン誘導体の塩としては酸付加塩が好ましく、例えば、酢酸塩、プロピオン酸塩、シュウ酸塩、トリフルオロ酢酸塩、安息香酸塩等のカル

50

ボン酸塩、メタンスルホン酸塩、トリフルオロメタンスルホン酸塩、p-トルエンスルホン酸塩等のスルホン酸塩、塩酸塩、硫酸塩、硝酸塩、炭酸塩等の無機酸塩が挙げられる。

本発明の一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体又はその中間体である一般式(II)で表される置換アニリン誘導体は、その構造式中に1つ又は複数個の不斉中心を含む場合があり、2種以上の光学異性体及びジアステレオマーが存在する場合もあり、本発明は各々の光学異性体及びそれらが任意の割合で含まれる混合物をも全て包含するものである。又、本発明の一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体は、その構造式中に炭素-炭素二重結合に由来する2種の幾何異性体が存在する場合もあるが、本発明は各々の幾何異性体及びそれらが任意の割合で含まれる混合物をも全て包含するものである。

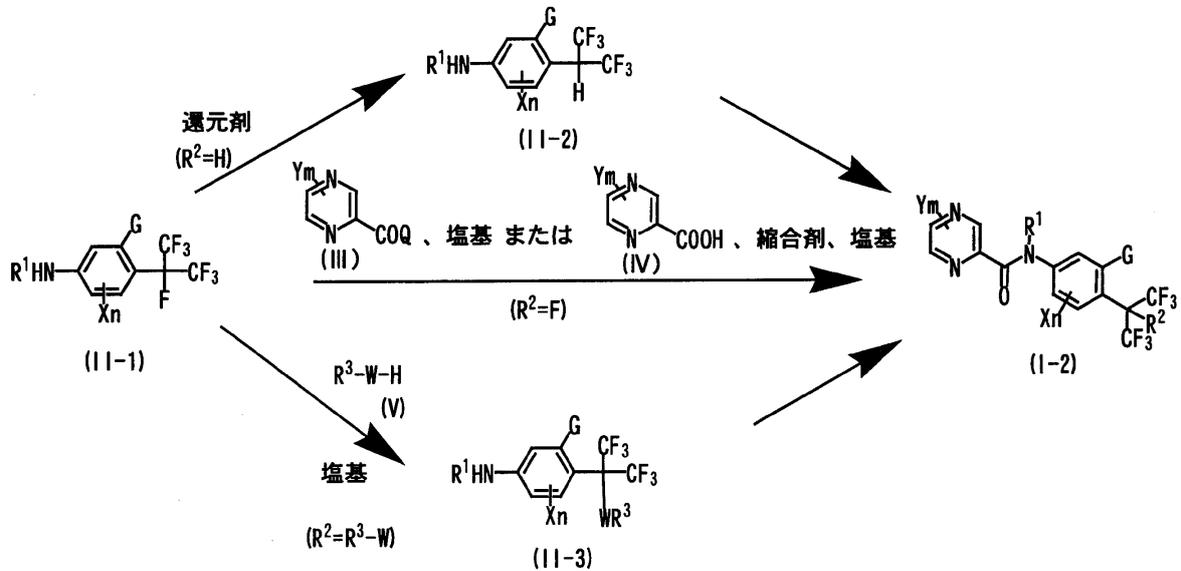
【0026】

以下に本発明の一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体、その中間体である一般式(II)で表される置換アニリン誘導体又は一般式(III')で表される置換ピラジンカルボン酸誘導体の代表的な製造方法を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0027】

製造方法1

【化4】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $G$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $m$ 及び $n$ は前記に同じくし、 $R^3$ は水素原子、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、フェニル基、置換フェニル基又はフェニル $C_1$ - $C_4$ アルキル基を示し、 $W$ は $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 又は $-\text{N}(\text{R}^4)-$ (式中、 $R^4$ は水素原子、 $C_1$ - $C_6$ アルキル基、ハロ $C_1$ - $C_6$ アルキル基、フェニル基、置換フェニル基又はフェニル $C_1$ - $C_4$ アルキル基を示す。)を示し、 $Q$ はハロゲン原子又は $C_1$ - $C_6$ アルコキシ基を示す。)

【0028】

一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体のうち、 $Z$ が $O$ で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体(I-2)は、一般式(II-1)~一般式(II-3)で表されるアニリン誘導体と一般式(III)で表されるピラジンカルボン酸ハライド又はピラジンカルボン酸エステルを塩基の存在下又は不存在下に、不活性溶媒中で反応させることにより、又は一般式(II-1)~一般式(II-3)で表されるアニリン誘導体と一般式(IV)で表されるピラジンカルボン酸を縮合剤の存在下に、塩基の存在下又は不存在下、不活性溶媒中で反応させることにより製造することができるが、通常のアミド類の製造方法であれば良い。

一般式(II-2)で表されるアニリン誘導体は、一般式(II-1)で表されるアニリン誘導体を還元剤の存在下、不活性溶媒中で還元することにより製造することができる。

一般式(II-3)で表されるアニリン誘導体は、一般式(II-1)で表されるアニリン誘導体を塩基の存在下又は不存在下、不活性溶媒中で一般式(V)で表されるアルコール誘導体、チオール誘導体又はアミン誘導体と反応させることにより製造することができる。

【0029】

一般式(II-1) 一般式(II-2)

本反応で使用できる還元剤としては、水素化リチウムアルミニウム、水素化ホウ素リチウム、水素化ホウ素ナトリウム、ジイソブチルアルミニウムヒドリド、水素化ビス(2-メトキシエトキシ)アルミニウムナトリウム等の金属水素化物、金属リチウム等の金属又は金属塩等を例示することができ、その使用量は一般式(II-1)で表されるアニリン誘導体に対して当量乃至過剰量の範囲から適宜選択して使用すれば良い。

10

本反応で使用する不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、ジオキサソラン、テトラヒドロフラン(THF)等の鎖状又は環状エーテル類等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は2種以上混合して使用することができる。

反応温度は室温乃至使用する不活性溶媒の沸点域で行うことができ、反応時間は反応規模、反応温度により一定しないが、数分乃至50時間の範囲で行えば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から常法により単離すれば良く、必要に応じて再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。又、反応系から目的物を単離せずに次の反応工程に供することも可能である。

20

【0030】

一般式(II-1) 一般式(II-3)

本反応で使用できる塩基としては水素化リチウム、水素化ナトリウム、水素化カリウム等の金属水素化物、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウムt-ブトキシド等の金属アルコール類、n-ブチルリチウム、s-ブチルリチウム、t-ブチルリチウム等のアルキル金属類を例示することができ、その使用量は一般式(II-1)で表されるアニリン誘導体に対して当量乃至過剰量の範囲から適宜選択して使用すれば良い。

本反応で使用する不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、メタノール、エタノール等のアルコール類、ジエチルエーテル、1,2-ジメトキシエタン、ジオキサソラン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は2種以上混合して使用することができる。

30

反応温度は-70乃至使用する不活性溶媒の沸点域で行うことができ、反応時間は反応規模、反応温度により一定しないが、数分乃至50時間の範囲で行えば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から常法により単離すれば良く、必要に応じて再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。又、反応系から目的物を単離せずに次の反応工程に供することも可能である。

【0031】

一般式(II-1)、一般式(II-2)又は一般式(II-3) 一般式(I-2)

本反応で使用する縮合剤としては、例えばシアノリン酸ジエチル(DEPC)、カルボニルジイミダゾール(CDI)、1,3-ジシクロヘキシルカルボジイミド(DCC)、クロロ炭酸エステル類、ヨウ化2-クロロ-1-メチルピリジニウム等を例示することができる。

本反応で使用する塩基としては、無機塩基又は有機塩基が挙げられ、無機塩基としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属原子の水酸化物や水素化ナトリウム、水素化カリウム等のアルカリ金属の水素化物、ナトリウムエトキシド、カリウムt-ブトキシド等のアルコールのアルカリ金属塩、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム等の炭酸塩類、有機塩基としては、例えばトリエチルアミン、ピリジン

40

50

、DBU等を例示することができ、その使用量は一般式(III)又は(IV)で表されるピラジンカルボン酸誘導体に対して等モル乃至過剰モルの範囲から選択して使用すれば良い。

【0032】

本反応で使用する不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン及びアセトン、メチルエチルケトン等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は2種以上混合して使用することができる。

10

本反応は等モル反応であるので、各反応剤を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することもでき、反応温度は室温乃至使用する不活性溶媒の沸点域で行うことができ、反応時間は反応規模、反応温度により一定しないが、数分乃至48時間の範囲で行えば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から常法により単離すれば良く、必要に応じて再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。

本反応の原料化合物である一般式(II-1)で表されるアニリン誘導体は、特開平11-302233号公報又は特開2001-122836号公報に開示の製造方法等に準じて製造することができる。

20

【0033】

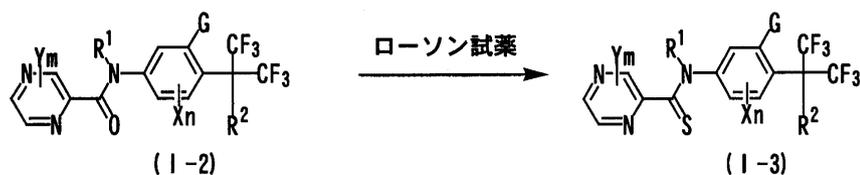
又、一般式(III)、(III')又は(IV)で表されるピラジンカルボン酸誘導体は公知文献(例えば、Journal of Organic Chemistry, Vol. 67, 556~565(2002)、Journal of American Chemical Society Vol. 70, 3911(1948)、Chemical & Pharmaceutical Bulletin, 20(10)2204~2208(1970)、Journal of Heterocyclic Chemistry, Vol. 34, 27(1997)、Synthesis 923-924(1990)、WO2001070708、Tetrahedron Letters, Vol 32, No 52, 7689-7690(1991)、Journal of American Chemical Society Vol. 68, 400(1946)等。)記載の方法に準じて製造することができる。

30

【0034】

製造方法2

【化5】



40

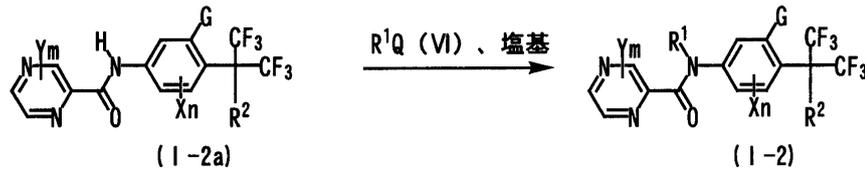
(式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、G、X、Y、m及びnは前記に同じ。)

一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体のうち、ZがSで表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体(I-3)は、(I-2)で表されるアニリン誘導体を公知の方法(Tetrahedron Lett., 21(42), 4061(1980))に準じてローソン試薬と反応させることにより製造することができる。

【0035】

製造方法3

## 【化6】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $G$ 、 $X$ 、 $Y$ 、 $Q$ 、 $m$ 及び $n$ は前記に同じ。)

一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体のうち、 $R^1$ が水素原子以外の置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体(I-2)は、一般式(I-2a)で表されるアミド誘導体と一般式(VI)で表されるハライド誘導体又はエステル誘導体を塩基の存在下又は不存在下に、不活性溶媒中で反応させることにより製造することができる。

10

## 【0036】

本反応で使用できる塩基としては水素化リチウム、水素化ナトリウム、水素化カリウム等の金属水素化物、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウムt-ブトキシド等の金属アルコラート類、n-ブチルリチウム、s-ブチルリチウム、t-ブチルリチウム等のアルキル金属類を例示することができ、その使用量は一般式(I-2a)で表されるアミド誘導体に対して当量乃至過剰量の範囲から適宜選択して使用すれば良い。

本反応で使用する不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、メタノール、エタノール等のアルコール類、ジエチルエーテル、1,2-ジメトキシエタン、ジオキサソラン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は2種以上混合して使用することができる。

20

反応温度は-70乃至使用する不活性溶媒の沸点域で行うことができ、反応時間は反応規模、反応温度により一定しないが、数分乃至50時間の範囲で行えば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から常法により単離すれば良く、必要に応じて再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。又、反応系から目的物を単離せずに次の反応工程に供することも可能である。

## 【0037】

一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体の代表的な化合物を第1表に、一般式(II)で表される置換アニリン誘導体の代表的な化合物を第2表に、一般式(III')で表される置換ピラジンカルボン酸誘導体を第3表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。又、第1表中の「物性」欄には融点( )又は屈折率[ $n_D$ ( )]を記載し、アモルファスと記載した化合物については、その $^1H$ NMRデータを第4表に示した。尚、表中、「n-」はノルマルを、「i-」はイソを、「t-」はターシャリーを、「c-」はシクロを、「Me」はメチル基を、「Et」はエチル基を、「Pr」はプロピル基を、「Bu」はブチル基を、「Ph」はフェニル基を、「Ac」はアセチル基を示す。

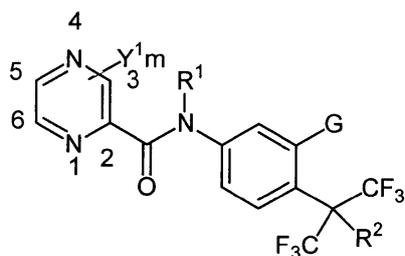
30

## 【0038】

40

【表 1】

一般式 (I-4)



(I-4)

10

第 1 表

No.	G	Y <sup>1m</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-1	Et	3-Me	H	H	59-61
1-2	Et	3-Me	H	OMe	66-70
1-3	Et	3-Me	H	OEt	111-112
1-4	Et	3-OMe	H	OMe	101-102
1-5	n-Pr	3-Me	H	F	122-123
1-6	n-Pr	3-Me	H	H	95-98
1-7	n-Pr	3-Me	H	OMe	111-113
1-8	n-Pr	3-Me	H	OEt	114-115
1-9	n-Pr	3-Cl	H	H	100-103
1-10	n-Pr	3-Cl	H	OMe	129-130.5
1-11	n-Pr	3-Cl	H	OEt	143-144
1-12	n-Pr	3-OMe	H	H	112-113
1-13	n-Pr	3-OMe	H	OMe	144.5-146
1-14	n-Pr	3-CF <sub>3</sub>	H	OMe	99-101
1-15	i-Bu	H	H	H	88-90
1-16	i-Bu	3-Me	H	F	139.5-141
1-17	i-Bu	3-Me	H	H	133-134
1-18	i-Bu	3-Me	H	OMe	118-119
1-19	i-Bu	3-Me	Et	OMe	70-72
1-20	i-Bu	3-Me	H	OEt	アモルファス

20

30

40

【 0 0 3 9 】

【表 2】

第 1 表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-21	i-Bu	3-CH <sub>2</sub> OH	H	OMe	113-115
1-22	i-Bu	3-CH <sub>2</sub> OAc	H	H	52-55
1-23	i-Bu	3-CH <sub>2</sub> OAc	H	OMe	75-77
1-24	i-Bu	3-CH <sub>2</sub> SMe	H	H	1.5411(20.4)
1-25	i-Bu	3-Cl	H	H	128-129
1-26	i-Bu	3-Cl	H	OMe	1.5394(23.3)
1-27	i-Bu	3-Cl	Et	OMe	78.9-80.4
1-28	i-Bu	3-OMe	H	H	135.5-137
1-29	i-Bu	3-OMe	H	OMe	118-119
1-30	i-Bu	3-OMe	H	OEt	116-119
1-31	i-Bu	3-OEt	H	H	119-121
1-32	i-Bu	3-SMe	H	H	1.5351(26.7)
1-33	i-Bu	3-SOMe	H	H	1.5258(25.9)
1-34	i-Bu	3-SO <sub>2</sub> Me	H	H	220-222
1-35	i-Bu	3-NMe <sub>2</sub>	H	H	1.5299(20.5)
1-36	i-Bu	3-NHPh	H	H	144-145
1-37	i-Bu	3-(4-Cl-Ph)	H	H	49.2
1-38	i-Bu	3-C≡CSiMe <sub>3</sub>	H	OMe	アモルファス
1-39	i-Bu	3-CH <sub>2</sub> F	H	OMe	1.4829(27.7)
1-40	i-Bu	3-CHF <sub>2</sub>	H	H	
1-41	i-Bu	3-CHF <sub>2</sub>	H	OMe	
1-42	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	H	H	1.4825(27.7)
1-43	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	H	OMe	129-132
1-44	i-Bu	3-OCF <sub>3</sub>	H	H	
1-45	i-Bu	3-OCF <sub>3</sub>	H	OMe	
1-46	i-Bu	3-OCHF <sub>2</sub>	H	H	169.1-171.3

10

20

30

40

【 0 0 4 0 】

【表 3】

第 1 表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-47	i-Bu	3-OCHF <sub>2</sub>	H	OMe	
1-48	i-Bu	3-OCH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>	H	OMe	151
1-49	i-Bu	3-OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OMe	H	OMe	99-100
1-50	i-Bu	3-OCH <sub>2</sub> Ph	H	OMe	74-77
1-51	i-Bu	3-F	H	H	118-119
1-52	i-Bu	3-F	H	OMe	
1-53	i-Bu	3-Br	H	H	142-144
1-54	i-Bu	3-Br	H	OMe	1.5440(20.0)
1-55	i-Bu	3-I	H	H	
1-56	i-Bu	3-I	H	OMe	
1-57	i-Bu	3-Et	H	H	
1-58	i-Bu	3-Et	H	OMe	
1-59	i-Bu	5-Me	H	H	119-121
1-60	i-Bu	3-Me-5-OH	H	OMe	186-187
1-61	i-Bu	3-Me-5-OEt	H	OMe	1.5210(20.6)
1-62	i-Bu	3-Me-5-OAc	H	H	173-173.5
1-63	i-Bu	3-Me-5-OAc	H	OMe	アモルファス
1-64	i-Bu	3-Me-6-Cl	H	OMe	143-145
1-65	i-Bu	3-Me-6-OAc	H	OMe	144-146
1-66	i-Bu	3,5-Me <sub>2</sub>	H	H	
1-67	i-Bu	3,5-Me <sub>2</sub>	H	OMe	
1-68	i-Bu	3,6-Me <sub>2</sub>	H	H	135-137
1-69	i-Bu	3,6-Me <sub>2</sub>	H	OMe	127-128
1-70	i-Bu	3,6-Me <sub>2</sub> -5-Cl	H	H	120-121
1-71	i-Bu	3,6-Me <sub>2</sub> -5-OMe	H	H	155-158
1-72	i-Bu	3,5,6-Me <sub>3</sub>	H	H	98-100

10

20

30

40

【 0 0 4 1 】

【表4】

第1表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-73	CH=CMe <sub>2</sub>	3-Me	H	OMe	94-97
1-74	CHBrCHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	H	181-181.5
1-75	CHBrCHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	OMe	148-151
1-76	n-Bu	3-Me	H	H	84-87
1-77	n-Bu	3-Me	H	OMe	87-89.5
1-78	(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> Me	3-Me	H	H	1.5245(24.6)
1-79	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	H	77-78
1-80	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	OMe	110-112
1-81	CH <sub>2</sub> CH(Me)Et	3-Me	H	H	81-83
1-82	CH <sub>2</sub> CH(Me)Et	3-Me	H	OMe	92-94
1-83	CH <sub>2</sub> CHEt <sub>2</sub>	3-Me	H	H	
1-84	CH <sub>2</sub> CHEt <sub>2</sub>	3-Me	H	OMe	
1-85	CH(Me)CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	H	
1-86	CH(Me)CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	OMe	
1-87	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>5</sub> H <sub>9</sub>	3-Me	H	H	110-112
1-88	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>5</sub> H <sub>9</sub>	3-Me	H	OMe	113-114
1-89	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>6</sub> H <sub>11</sub>	3-Me	H	H	67-70
1-90	Bn	3-Me	H	H	103-105
1-91	i-Bu	3-Me	Me	OMe	
1-92	i-Bu	3-Me	i-Pr	OMe	
1-93	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	OMe	
1-94	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> C≡CH	OMe	
1-95	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> Ph	OMe	
1-96	i-Bu	3-Me	COO-i-Bu	OMe	1.4814(23.2)
1-97	i-Bu	3-Me	COO-i-Bu	H	
1-98	i-Bu	3-Me	COO-t-Bu	OMe	1.4850(23.8)

10

20

30

40

【 0 0 4 2 】

【表5】

第1表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-99	i-Bu	3-Me	COO-t-Bu	H	
1-100	i-Bu	3-Me	COO(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> Cl	OMe	
1-101	i-Bu	3-Me	COO(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> Cl	H	
1-102	i-Bu	3-Me	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	OMe	
1-103	i-Bu	3-Me	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	H	
1-104	i-Bu	3-Me	COOCH <sub>2</sub> CCl <sub>3</sub>	OMe	1.5038(22.0)
1-105	i-Bu	3-Me	COOCH <sub>2</sub> CCl <sub>3</sub>	H	
1-106	i-Bu	3-Me	Ac	OMe	1.4955(23.0)
1-107	i-Bu	3-Me	Ac	H	
1-108	i-Bu	3-Me	COCF <sub>3</sub>	OMe	
1-109	i-Bu	3-Me	COCF <sub>3</sub>	H	
1-110	i-Bu	3-Me	COEt	OMe	
1-111	i-Bu	3-Me	COEt	H	
1-112	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> COOEt	OMe	119
1-113	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> COOEt	H	
1-114	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	1.4899(23.9)
1-115	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> OEt	H	
1-116	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> OEt	OMe	
1-117	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> Ph	OMe	1.5206(22.0)
1-118	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> SMe	OMe	
1-119	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> SMe	H	
1-120	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> CN	OMe	アモルファス
1-121	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> CN	H	アモルファス
1-122	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	Me	H	
1-123	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	i-Pr	H	
1-124	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	H	

10

20

30

40

【 0 0 4 3 】

【表 6】

第 1 表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-125	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> C≡CH	H	1.4680(23.5)
1-126	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> Ph	H	
1-127	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-i-Bu	OMe	1.4720(23.5)
1-128	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-i-Bu	H	88-89
1-129	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-t-Bu	OMe	1.4690(24.0)
1-130	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-t-Bu	H	
1-131	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> Cl	OMe	
1-132	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> Cl	H	
1-133	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	OMe	
1-134	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	H	122-124
1-135	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> CCl <sub>3</sub>	OMe	1.4811(24.1)
1-136	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> CCl <sub>3</sub>	H	1.4790(24.2)
1-137	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	Ac	OMe	1.4770(25.3)
1-138	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	Ac	H	1.4620(24.7)
1-139	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COCF <sub>3</sub>	OMe	
1-140	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COCF <sub>3</sub>	H	
1-141	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CO-n-Bu	OMe	
1-142	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CO-n-Bu	H	
1-143	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> COOEt	OMe	
1-144	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> COOEt	H	
1-145	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	1.4730(24.2)
1-146	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OEt	H	1.4650(23.5)
1-147	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> OEt	OMe	
1-148	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> OEt	H	
1-149	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> SMe	OMe	
1-150	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> SMe	H	

10

20

30

40

【 0 0 4 4 】

【表 7】

第 1 表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-151	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CN	OMe	
1-152	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> CN	H	
1-153	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOMe	H	1.4715(23.8)
1-154	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOEt	OMe	1.4698(24.9)
1-155	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-n-Bu	OMe	1.4700(24.4)
1-156	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OMe	OMe	1.4724(24.5)
1-157	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OMe	OMe	93-94
1-158	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COEt	OMe	1.4765(25.2)
1-159	i-Bu	3-Cl	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	1.4965(22.2)
1-160	i-Bu	3-Cl	CH <sub>2</sub> OEt	H	1.4968(20.4)
1-161	i-Bu	3-Cl	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	OMe	
1-162	i-Bu	3-Cl	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	H	
1-163	i-Bu	3-OMe	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	96.3-99.1
1-164	i-Bu	3-OMe	CH <sub>2</sub> OEt	H	
1-165	i-Bu	3-OMe	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	OMe	
1-166	i-Bu	3-OMe	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	H	
1-167	i-Bu	3-OCF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	
1-168	i-Bu	3-OCF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> -t-Bu	H	
1-169	i-Bu	3-OCF <sub>3</sub>	Ac	OMe	
1-170	i-Bu	3-OCHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> O CH <sub>2</sub> Ph	OMe	
1-171	i-Bu	3-OCHF <sub>2</sub>	COO-t-Bu	H	
1-172	i-Bu	3-OCHF <sub>2</sub>	COEt	OMe	
1-173	i-Bu	3-CHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> OEt	H	
1-174	i-Bu	3-CHF <sub>2</sub>	COO(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> Cl	OMe	
1-175	i-Bu	3-CHF <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub> -t-Bu	H	
1-176	i-Bu	3-CN	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	

10

20

30

40

【 0 0 4 5 】

【表 8】

第 1 表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-177	i-Bu	3-CN	Ac	H	
1-178	i-Bu	3-COOMe	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	
1-179	i-Bu	3-COOMe	H	H	118-120
1-180	i-Bu	3-COOH	H	H	154-157
1-181	i-Bu	3-NO <sub>2</sub>	H	OMe	
1-182	i-Bu	3-NO <sub>2</sub>	H	H	
1-183	i-Bu	3-C≡CH	H	OMe	
1-184	i-Bu	H	Et	OMe	70-72
1-185	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	3-Me	H	F	109-110
1-186	Et	3-Me	H	F	75-77
1-187	i-Pr	3-Me	H	F	149-150
1-188	i-Bu	3-Me	SN(n-Bu) <sub>2</sub>	OMe	
1-189	i-Bu	3-Me	SN(n-Bu) <sub>2</sub>	H	1.5029(22.4)
1-190	i-Bu	3-Me	SN(Me)COO-n-Bu	OMe	
1-191	i-Bu	3-Me	SN(Me)COO-n-Bu	H	
1-192	i-Bu	3-Me	SN(i-Pr)CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOEt	OMe	
1-193	i-Bu	3-Me	SN(i-Pr)CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOEt	H	
1-194	i-Bu	3-Me	PS(OMe) <sub>2</sub>	OMe	
1-195	i-Bu	3-Me	PO(OMe) <sub>2</sub>	OMe	
1-196	i-Bu	3-OMe	H	F	119-121
1-197	Et	3-OMe	H	F	1.5272(25.2)
1-198	i-Bu	3-Me-5-Cl	H	H	100-104
1-199	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COSMe	H	1.4824(24.7)
1-200	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COSMe	OMe	1.4925(24.7)
1-201	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COSEt	H	105-106
1-202	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COSEt	OMe	1.4880(24.6)

10

20

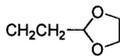
30

40

【 0 0 4 6 】

【表9】

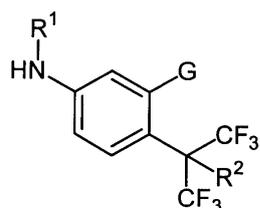
第1表 (続き)

No.	G	Y <sup>1</sup> <sub>m</sub>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	物性
1-203	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOMe	OMe	1.4775(22.4)
1-204	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOEt	H	1.4638(23.2)
1-205	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	H	1.4675(23.2)
1-206	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	OMe	1.4751(23.2)
1-207	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-n-Pr	H	1.4649(23.0)
1-208	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COO-n-Pr	OMe	1.4700(24.2)
1-209	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> Cl	OMe	1.4805(24.0)
1-210	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OMe	H	86-88
1-211	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOPh	OMe	1.4850(24.2)
1-212	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COOCH <sub>2</sub> Ph	OMe	1.4868(23.4)
1-213	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OMe	H	1.4670(23.1)
1-214	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> Ph	H	1.4895(23.1)
1-215	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OMe	H	1.4730(24.8)
1-216	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OMe	OMe	1.4739(23.2)
1-217	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COEt	H	87-88
1-218	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CO-n-Pr	H	85-86
1-219	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CO-c-Pr	H	1.4760(23.2)
1-220	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CO-i-Pr	H	111-113
1-221	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	CO-i-Bu	H	113-114
1-222	i-Bu	3-CF <sub>3</sub>	COCH <sub>2</sub> OAc	H	158-159
1-223	i-Bu	3-CHCl <sub>2</sub>	H	H	89-91
1-224	i-Bu	3-OCHF <sub>2</sub>	CH <sub>2</sub> OEt	H	1.4709(26.2)
1-225	i-Bu	3-Me	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> - 	OMe	1.5030(22.6)
1-226	n-Pr	3-CF <sub>3</sub>	COOMe	OMe	1.4789(21.7)
1-227	n-Pr	3-CF <sub>3</sub>	COOEt	OMe	1.4770(21.8)
1-228	n-Pr	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OMe	OMe	1.4760(21.8)
1-229	n-Pr	3-CF <sub>3</sub>	CH <sub>2</sub> OEt	OMe	1.4760(21.8)
1-230	n-Pr	3-CF <sub>3</sub>	CO-c-Pr	OMe	1.4910(21.8)

【 0 0 4 7 】

【表 10】

一般式 (II-4)



(II-4)

第 2 表

No	G	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	<sup>1</sup> H-NMR[CDCl <sub>3</sub> /TMS, δ 値 (ppm) ]
2-1	Et	H	F	7.22(d, 1H), 6.60-6.49(m, 2H), 3.83(bs, 2H), 2.73(m, 2H), 1.20(m, 3H)
2-2	Et	H	H	7.30(d, 1H), 6.58-6.53(m, 2H), 4.30(m, 1H), 3.73(bs, 2H), 2.58(dd, 2H), 1.20(t, 3H)
2-3	Et	H	OMe	7.23(d, 1H), 6.69(d, 1H), 6.53(dd, 1H), 4.00-3.70(br, 2H), 3.41(s, 3H), 2.93(dd, 2H), 1.23(t, 3H)
2-4	Et	H	OEt	7.22(d, 1H), 6.70(s, 1H), 6.54(d, 1H), 3.80(br, 2H), 3.71(dd, 2H), 2.93(dd, 2H), 1.29(t, 3H), 1.21(t, 3H)
2-5	n-Pr	H	F	7.22(d, 1H), 6.58-6.50(m, 2H), 4.00-3.70(br, 2H), 2.65(m, 2H), 1.58(m, 2H), 0.97(t, 3H)
2-6	n-Pr	H	H	7.31(d, 1H), 6.59-6.54(m, 2H), 4.29(m, 1H), 3.79(bs, 2H), 2.52(t, 2H), 1.57(m, 2H), 0.99(t, 3H)
2-7	n-Pr	H	OMe	7.23(d, 1H), 6.67(d, 1H), 6.52(d, 1H), 3.78(bs, 2H), 3.42(s, 3H), 2.85(m, 2H), 1.62(m, 2H), 1.00(t, 3H)
2-8	n-Pr	H	OEt	7.22(d, 1H), 6.66(d, 1H), 6.51(dd, 1H), 3.77(bs, 2H), 3.59(dd, 2H), 2.86(m, 2H), 1.61(m, 2H), 1.29(t, 3H), 1.01(t, 3H)
2-9	i-Bu	H	F	7.23(d, 1H), 6.54(dt, 1H), 6.51(d, 1H), 3.90(bs, 2H), 2.55(dd, 2H), 1.83(m, 1H), 0.91(d, 6H)
2-10	i-Bu	H	OMe	7.25(d, 1H), 6.71(d, 1H), 6.54(dd, 1H), 3.78(bs, 2H), 3.43(s, 3H), 2.81(d, 2H), 2.13(m, 1H), 0.92(d, 6H)
2-11	i-Bu	H	OEt	7.25(d, 1H), 6.70(d, 1H), 6.52(dd, 1H), 4.18(br, 2H), 3.59(dd, 2H), 2.82(d, 2H), 2.14(m, 1H), 1.30(t, 3H), 0.90(d, 6H)

【 0 0 4 8 】

10

20

30

40

【表 1 1】

第 2 表 (続き)

No	G	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	<sup>1</sup> H-NMR[CDCl <sub>3</sub> /TMS, δ 値 (ppm) ]
2-12	i-Bu	Et	OMe	7.27(d, 1H), 6.61(d, 1H), 6.45(dd, 1H), 3.74(br, 1H), 3.43(s, 3H), 3.17(dd, 2H), 2.82(d, 2H), 2.39(m, 1H), 1.26(t, 3H), 0.93(d, 6H)
2-13	i-Bu	H	H	7.30(d, 1H), 6.57(dd, 1H), 6.50(d, 1H), 4.28(m, 1H), 3.80(bs, 2H), 2.41(d, 2H), 1.78(m, 1H), 0.91(d, 6H)
2-14	n-Bu	H	H	7.22(d, 1H), 6.60-6.50(m, 2H), 4.29(m, 1H), 3.87(bs, 2H), 2.54(m, 2H), 1.53(m, 2H), 1.39(m, 2H), 0.95(t, 3H)
2-15	n-Bu	H	F	7.30(d, 1H), 6.56-6.49(m, 2H), 4.00(br, 2H), 2.66(m, 2H), 1.54(m, 2H), 1.39(m, 2H), 0.92(t, 3H)
2-16	n-Bu	H	OMe	7.30(d, 1H), 6.68(d, 1H), 6.52(dd, 1H), 3.78(br, 2H), 3.41(s, 3H), 2.88(m, 2H), 1.58(m, 2H), 1.42(m, 2H), 0.95(t, 3H)
2-17	(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> Me	H	F	7.22(d, 1H), 6.55-6.50(m, 2H), 3.83(bs, 2H), 2.66(m, 2H), 1.56(m, 2H), 1.32(m, 4H), 0.89(t, 3H)
2-18	(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> Me	H	H	7.30(d, 1H), 6.58-6.53(m, 2H), 4.28(m, 1H), 4.03(bs, 2H), 2.53(t, 2H), 1.54(m, 2H), 1.34(m, 4H), 0.90(t, 3H)
2-19	CH <sub>2</sub> CH(Me)Et	H	F	7.23(d, 1H), 6.60-6.48(m, 2H), 3.83(br, 2H), 2.74(m, 1H), 2.41(m, 1H), 1.61(m, 1H), 1.41(m, 1H), 1.18(m, 1H), 0.90(t, 3H), 0.85(d, 3H)
2-20	CH <sub>2</sub> CH(Me)Et	H	OMe	7.31(d, 1H), 6.72(d, 1H), 6.53(dd, 1H), 3.80(br, 2H), 3.43(s, 3H), 2.85(m, 2H), 1.89(m, 1H), 1.41(m, 2H), 0.92(t, 3H), 0.84(m, 3H)
2-21	CH <sub>2</sub> CH(Me)Et	H	H	7.32(d, 1H), 6.59(dd, 1H), 6.52(s, 1H), 4.83(bs, 2H), 4.30(m, 1H), 2.57(m, 1H), 2.33(m, 1H), 1.60-1.10(m, 3H), 0.92(t, 3H), 0.88(d, 3H)
2-22	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	H	F	7.22(d, 1H), 6.55-6.50(m, 2H), 3.82(br, 2H), 2.66(m, 2H), 1.63(m, 1H), 1.44(m, 2H), 0.93(d, 6H)
2-23	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	H	H	7.30(d, 1H), 6.59-6.53(m, 2H), 4.27(m, 1H), 2.55(m, 2H), 1.63(m, 1H), 1.43(m, 2H), 0.96(d, 6H)
2-24	CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CHMe <sub>2</sub>	H	OMe	7.23(d, 1H), 6.66(d, 1H), 6.52(dd, 1H), 3.80(bs, 2H), 3.42(s, 3H), 2.88(m, 2H), 1.65(m, 1H), 1.50(m, 2H), 0.95(d, 6H)
2-25	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>5</sub> H <sub>9</sub>	H	F	7.25(d, 1H), 6.60-6.50(m, 2H), 4.10-3.80(br, 2H), 2.70(dd, 2H), 2.00(m, 1H), 1.80-1.45(m, 6H), 1.18(m, 2H)

【 0 0 4 9 】

10

20

30

40

## 【表 1 2】

第 2 表 (続き)

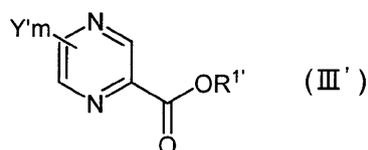
No	G	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	<sup>1</sup> H-NMR[CDCl <sub>3</sub> /TMS, δ 値 (ppm) ]
2-26	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>5</sub> H <sub>9</sub>	H	OMe	7.24(d, 1H), 6.60-6.50(m, 2H), 3.95-3.60(br, 2H), 3.43(s, 3H), 2.95(d, 2H), 1.98(m, 1H), 1.80-1.42(m, 6H), 1.20(m, 2H)
2-27	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>5</sub> H <sub>9</sub>	H	H	7.30(d, 1H), 6.59-6.50(m, 2H), 4.33(m, 1H), 2.55(d, 2H), 2.21(m, 1H), 1.80-1.42(m, 6H), 1.19(m, 2H)
2-28	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>6</sub> H <sub>11</sub>	H	F	7.23(d, 1H), 6.57-6.48(m, 2H), 3.78(bs, 2H), 2.55(t, 2H), 1.8-0.8(m, 11H)
2-29	CH <sub>2</sub> -c-C <sub>6</sub> H <sub>11</sub>	H	H	7.30(d, 1H), 6.57(dd, 1H), 6.50(d, 1H), 4.29(m, 1H), 4.20-3.90(br, 2H), 2.42(d, 2H), 1.78-0.89(m, 11H)

10

【 0 0 5 0 】

## 【表 1 3】

一般式 (III')



20

第 3 表

No	Y'm	R <sup>1</sup>	<sup>1</sup> H-NMR[CDCl <sub>3</sub> /TMS, δ 値 (ppm) ]、融点 (°C)
3-1	3-CH <sub>2</sub> Cl	Me	8.75(d, 1H), 8.68(d, 1H), 5.14(s, 2H), 4.06(s, 3H)
3-2	3-CH <sub>2</sub> Cl	Et	8.68(d, 1H), 8.66(d, 1H), 5.12(s, 2H), 4.53(q, 2H), 1.48(t, 3H)
3-3	3-CH <sub>2</sub> F	Me	8.82(d, 1H), 8.71(d, 1H), 5.90(d, 2H), 4.05(s, 3H)
3-4	3-CF <sub>3</sub>	Me	8.85(d, 1H), 8.83(d, 1H), 4.05(s, 3H)
3-5	3-CF <sub>3</sub>	H	1 3 0 - 1 3 4
3-6	3-CH <sub>2</sub> Cl	H	10.50(brs, 1H), 8.92(d, 1H), 8.85(d, 1H), 5.45(s, 2H)
3-7	3-CH <sub>2</sub> F	H	10.55(brd, 1H), 8.99(d, 1H), 8.87(d, 1H), 6.19(d, 2H)

30

【 0 0 5 1 】

40

【表 1 4】

第 4 表

No.	<sup>1</sup> H-NMR[CDCl <sub>3</sub> /TMS, δ 値(ppm)]
1-20	9.98(s, 1H), 8.69(d, 1H), 8.45(d, 1H), 7.84(d, 1H), 7.61(dd, 1H), 7.51(d, 1H), 3.63(dd, 2H), 3.07(s, 3H), 2.97(d, 2H), 2.29(m, 1H), 1.34(t, 3H), 0.95(d, 6H)
1-38	9.67(s, 1H), 8.77(d, 1H), 8.51(d, 1H), 7.84(d, 1H), 7.69(dd, 1H), 7.54(d, 1H), 3.48(s, 3H), 2.94(d, 2H), 2.43(m, 1H), 0.96(d, 6H), 0.36(s, 9H)
1-63	9.55(s, 1H), 8.58(d, 1H), 7.82(d, 1H), 7.61(dd, 1H), 7.51(d, 1H), 3.47(s, 3H), 3.06(s, 3H), 2.95(m, 2H), 2.45(s, 3H), 2.30(m, 1H), 0.95(d, 6H)
1-120	8.34(s, 1H), 8.11(s, 1H), 7.44(d, 1H), 7.21(s, 1H), 7.11(d, 1H), 4.82(s, 2H), 3.41(s, 3H), 2.82(d, 2H), 2.65(s, 3H), 1.96(m, 1H), 0.73(d, 6H)
1-121	8.32(s, 1H), 8.09(s, 1H), 7.49(d, 1H), 7.16(d, 1H), 7.02(s, 1H), 4.82(s, 2H), 4.32(m, 1H), 2.64(s, 3H), 2.43(d, 2H), 1.61(m, 1H), 0.77(d, 6H)

10

## 【 0 0 5 2 】

20

本発明の一般式 ( I ) で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体又はその塩類を有効成分として含有する農園芸用薬剤、特に農園芸用殺虫剤、又は殺ダニ剤は水稻、果樹、野菜、その他の作物及び花卉用を加害する各種農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等の害虫防除に適しており、例えばリンゴコカクモンハマキ (*Adoxophyes orana fasciata*)、チャノコカクモンハマキ (*Adoxophyes sp.*)、リンゴコシンクイ (*Grapholita inopinata*)、ナシヒメシンクイ (*Grapholita molesta*)、マメシンクイガ (*Leguminivora glycinivorella*)、クワハマキ (*Olethreutes mori*)、チャノホソガ (*Caloptilia thevivor*)、リンゴホソガ (*Caloptilia zachrysa*)、キンモンホソガ (*Phyllonorycter ringoniella*)、ナシホソガ (*Spulerrina astaurota*)、モンシロチョウ (*Pieris rapae crucivora*)、オオタバコガ類 (*Heliothis sp.*)、コドリガ (*Laspeyresia pomonella*)、コナガ (*Plutella xylostella*)、リンゴヒメシンクイ (*Argyresthia conjugella*)、モモシンクイガ (*Carposina niponensis*)、ニカメイガ (*Chilo suppressalis*)、コブノメイガ (*Cnaphalocrocis medinalis*)、チャマダラメイガ (*Ephesia elutella*)、クワノメイガ (*Glyphodes pyloalis*)、サンカメイガ (*Scirpophaga incertulas*)、イチモンジセセリ (*Parnara guttata*)、アワヨトウ (*Pseudaletia separata*)、イネヨトウ (*Sesamia inferens*)、ハスモンヨトウ (*Spodoptera litura*)、シロイチモジヨトウ (*Spodoptera exigua*) 等の鱗翅目害虫、

30

## 【 0 0 5 3 】

フタテンヨコバイ (*Macrostelus fascifrons*)、ツマグロヨコバイ (*Nephotettix cincticeps*)、トビイロウンカ (*Nilaparvata lugens*)、セジロウンカ (*Sogatella furcifera*)、ミカンキジラミ (*Diaphorina citri*)、ブドウコナジラミ (*Aleurolobus taenabae*)、タバココナジラミ (*Bemisia tabaci*)、オンシツコナジラミ (*Trialeurodes vaporariorum*)、ニセダイコンアブラムシ (*Lipaphis erysimi*)、モモアカアブラムシ (*Myzus persicae*)、ツノロウムシ (*Ceroplastes ceriferus*)、ミカンワタカイガラムシ (*Pulvinaria aurantii*)、ミカンマルカイガラムシ (*Pseudaonidia duplex*)、ナシマルカイガラムシ (*Comstockaspis pernicios*)、ヤノネカイガラムシ (*Unaspis yanonensis*) 等の半翅目害虫、ヒメコガネ (*Anomala rufocuprea*)、マメコガネ (*Popilla japonica*)、タバコシバンムシ (*Lasioderma serricorne*)、ヒラタキクイムシ (*Lyctus brunneus*)、ニジュウヤホシテントウ (*Epilachna vigintiotopunctata*)、アズキゾウムシ (*Callosobruchus chinensis*)、ヤサイゾウムシ (*Listroderes costirostris*)、コクゾウムシ (*Sitoph*

40

50

ilus zeamais)、ワタミゾウムシ (Anthonomus grandis grandis)、イネミズゾウムシ (Lissorhoptrus oryzophilus)、ウリハムシ (Aulacophora femoralis)、イネドロオイムシ (Oulema oryzae)、キスジノミハムシ (Phyllotreta striolata)、マツノキクイムシ (Tomicus piniperda)、コロラドポテトビートル (Leptinotarsa decemlineata)、メキシカンビーンビートル (Epilachna varivestis)、コーンルートワーム類 (Diabrotica s p.) 等の甲虫目害虫、

【 0 0 5 4 】

ウリミバエ (Dacus (Zeugodacus) cucurbitae)、ミカンコミバエ (Dacus (Bactrocera) dorsalis)、イネハモグリバエ (Agromyza oryzae)、タマネギバエ (Delia antiqua)、タネバエ (Dalia platura)、ダイズサヤタマバエ (Asphondylia sp.) 等の双翅目害虫、  
ミナミネグサレセンチュウ (Pratylenchus coffeae)、ジャガイモシストセンチュウ (Globodera rostchiensis)、ネコブセンチュウ (Meloidogyne sp.)、ミカンネセンチュウ (Tylenchulus semipenetrans)、ニセネグサレセンチュウ (Aphelenchus avenae)、ハガレセンチュウ (Aphelenchoides ritzemabosi) 等のハリセンチュウ目害虫、ミカンハダニ (Panonychus citri)、リンゴハダニ (Panonychus ulmi)、ニセナミハダニ (Tetranychus cinnabarinus)、カンザワハダニ (Tetranychus kanzawai Kishida)、ナミハダニ (Tetranychus urticae Koch)、チャノナガサビダニ (Acaphylla theae)、ミカンサビハダニ (Aculops pelekassi)、チャノサビダニ (Calacarus carinatus)、ナシサビダニ (Eptrimerus pyri) 等のダニ目害虫に対して強い殺虫効果を有するものである。

【 0 0 5 5 】

本発明の一般式 ( I ) で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体又はその塩類は、農園芸用殺虫剤又は殺ダニ剤としての使用が好ましいが、森林・木材用害虫、畜産用害虫、衛生用害虫等の種々の害虫類に対して優れた防除効果を示し、幅広い分野で害虫防除剤として使用することができ、これらの害虫類としては、例えば、ヤマトアブ等のアブ科、イエバエ等のイエバエ科、ウマバエ等のウマバエ科、ウシバエ等のウシバエ科、オオキモンノミバエ等のノミバエ科、アカイエカ、シマハマダラカ、ヒトスジシマカ、ヤマトヤブカ等のカ科、ネコノミ、イヌノミ、ヒトノミ等のヒトノミ科、ヤマトマダニ等のマダニ科、モンシロドクガ等のドクガ科、コクゾウムシ等のオサゾウムシ科、キイロスズメバチ等のスズメバチ科、チャバネゴキブリ等のチャバネゴキブリ科、ワモンゴキブリ、ヤマトゴキブリ等のゴキブリ科、ケジラミ等のケジラミ科、ヤマトシロアリ、イエシロアリ等のシロアリ科、シュルツエマダニ等のマダニ科、イエダニ等のオオサシダニ科等を挙げることができる。

【 0 0 5 6 】

本発明の一般式 ( I ) で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体又はその塩類を有効成分とする農園芸用薬剤、特に農園芸用殺虫剤又は殺ダニ剤は、水田作物、畑作物、果樹、野菜、その他の作物及び花卉等に被害を与える前記害虫に対して顕著な防除効果を有するので、害虫の発生が予測される時期に合わせて、害虫の発生前又は発生が確認された時点で水田、畑、果樹、野菜、その他の作物、花卉等の種子、水田水、茎葉又は土壌に処理することにより本発明の農園芸用殺虫剤の所期の効果が奏せられるものである。

本発明の農園芸用薬剤を使用できる植物は特に限定されるものではないが、例えば以下に示した植物が挙げられる。

【 0 0 5 7 】

穀類 (例えば、稲、大麦、小麦、ライ麦、オート麦、トウモロコシ、高粱等)、豆類 (大豆、小豆、そら豆、えんどう豆、落花生等)、果樹・果実類 (リンゴ、柑橘類、梨、ブドウ、桃、梅、桜桃、クルミ、アーモンド、バナナ、イチゴ等)、野菜類 (キャベツ、トマト、ほうれん草、ブロッコリー、レタス、タマネギ、ネギ、ピーマン等)、根菜類 (ニンジン、馬鈴薯、サツマイモ、大根、蓮根、かぶ等)、加工用作物類 (綿、麻、コウゾ、ミツマタ、菜種、ビート、ホップ、サトウキビ、テンサイ、オリーブ、ゴム、コーヒー、タバコ、茶等)、瓜類 (カボチャ、キュウリ、スイカ、メロン等)、牧草類 (オーチャードグラス、ソルガム、チモシー、クローバー、アルファルファ等)、芝類 (高麗芝、ベン

トグラス等)、香料等用作物類(ラベンダー、ローズマリー、タイム、パセリ、胡椒、しょうが等)、花卉類(キク、バラ、蘭等)等の植物に使用できる。

また、近年、遺伝子組み換え作物(除草剤耐性作物、殺虫性タンパク産生遺伝子を組み込んだ害虫耐性作物、病害に対する抵抗性誘導物質産生遺伝子を組み込んだ病害耐性作物、食味向上作物、保存性向上作物、収量向上作物など)、昆虫性フェロモン(ハマキガ類、ヨトウガ類の交信攪乱剤など)、天敵昆虫などを用いたIPM(総合的害虫管理)技術が進歩しており、本発明の農薬組成物はそれらの技術と併用、あるいは体系化して用いることができる。

#### 【0058】

本発明の農園芸用薬剤は、農薬製剤上の常法に従い使用上都合の良い形状に製剤して使用するのが一般的である。

即ち、一般式(I)で表される置換ピラジンカルボン酸アニリド誘導体又はその塩類はこれらを適当な不活性担体に、又は必要に応じて補助剤と一緒に適当な割合に配合して溶解、分離、懸濁、混合、含浸、吸着若しくは付着させて適宜の剤型、例えば懸濁剤、乳剤、液剤、水和剤、顆粒水和剤、粒剤、粉剤、錠剤、パック剤等に製剤して使用すれば良い。

#### 【0059】

本発明で使用できる不活性担体としては固体又は液体の何れであっても良く、固体の担体になりうる材料としては、例えばダイズ粉、穀物粉、木粉、樹皮粉、鋸粉、タバコ茎粉、クルミ殻粉、ふすま、繊維素粉末、植物エキス抽出後の残渣、粉碎合成樹脂等の合成重合体、粘土類(例えばカオリン、ベントナイト、酸性白土等)、タルク類(例えばタルク、ピロフィライト等)、シリカ類(例えば珪藻土、珪砂、雲母、ホワイトカーボン(含水微粉珪素、含水珪酸ともいわれる合成高分散珪酸で、製品により珪酸カルシウムを主成分として含むものもある。))、活性炭、イオウ粉末、軽石、焼成珪藻土、レンガ粉碎物、フライアッシュ、砂、炭酸カルシウム、燐酸カルシウム等の無機鉱物性粉末、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニリデン等のプラスチック担体、硫安、燐安、硝安、尿素、塩安等の化学肥料、堆肥等を挙げることができ、これらは単独で若しくは二種以上の混合物の形で使用される。

#### 【0060】

液体の担体になりうる材料としては、それ自体溶媒能を有するものの他、溶媒能を有さずとも補助剤の助けにより有効成分化合物を分散させることとなるものから選択され、例えば代表例として次に挙げる担体を例示できるが、これらは単独で若しくは2種以上の混合物の形で使用され、例えば水、アルコール類(例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール等)、ケトン類(例えばアセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等)、エーテル類(例えばエチルエーテル、ジオキサン、セロソルブ、ジブロピルエーテル、テトラヒドロフラン等)、脂肪族炭化水素類(例えばケロシン、鉱油等)、芳香族炭化水素類(例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、アルキルナフタレン等)、ハロゲン化炭化水素類(例えばジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、塩素化ベンゼン等)、エステル類(例えば酢酸エチル、ジイソブチルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等)、アミド類(例えばジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等)、ニトリル類(例えばアセトニトリル等)、ジメチルスルホキシド類等を挙げることができる。

#### 【0061】

他の補助剤としては次に例示する代表的な補助剤をあげることができ、これらの補助剤は目的に応じて使用され、単独で、ある場合は二種以上の補助剤を併用し、又ある場合には全く補助剤を使用しないことも可能である。

有効成分化合物の乳化、分散、可溶化及び/又は湿潤の目的のために界面活性剤が使用され、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシエチレン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン樹脂酸エステ

10

20

30

40

50

ル、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレート、アルキルアリアルスルホン酸塩、ナフトレンスルホン酸縮合物、リグニンスルホン酸塩、高級アルコール硫酸エステル等の界面活性剤を例示することができる。

又、有効成分化合物の分散安定化、粘着及び/又は結合の目的のために、次に例示する補助剤を使用することもでき、例えばカゼイン、ゼラチン、澱粉、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、松根油、糠油、ベントナイト、リグニンスルホン酸塩等の補助剤を使用することもできる。

#### 【0062】

固体製品の流動性改良のために次に挙げる補助剤を使用することもでき、例えばワックス、ステアリン酸塩、燐酸アルキルエステル等の補助剤を使用できる。懸濁性製品の解こう剤として、例えばナフトレンスルホン酸縮合物、縮合燐酸塩等の補助剤を使用することもできる。

消泡剤としては、例えばシリコン油等の補助剤を使用することもできる。

防腐剤としては、1, 2-ベンズイソチアゾリン-3-オン、パラクロロメタキシレンール、パラオキシ安息香酸ブチル等も添加することが出来る。

更に必要に応じて機能性展着剤、ピペロニルブトキサイド等の代謝分解阻害剤等の活性増強剤、プロピレングリコール等の凍結防止剤、BHT等の酸化防止剤、紫外線吸収剤等その他の添加剤も加えることが可能である。

#### 【0063】

有効成分化合物の配合割合は必要に応じて加減することができ、農園芸用殺虫剤100重量部中、0.01~90重量部の範囲から適宜選択して使用すれば良く、例えば粉剤又は粒剤とする場合は0.01~50重量%、又乳剤又は水和剤とする場合も同様0.01~50重量%が適当である。

本発明の農園芸用薬剤は各種害虫を防除するためにそのまま、又は水等で適宜希釈し、若しくは懸濁させた形で害虫防除に有効な量を当該害虫の発生が予測される作物若しくは発生が好ましくない場所に適用して使用すれば良い。

本発明の農園芸用薬剤の使用量は種々の因子、例えば目的、対象害虫、作物の生育状況、害虫の発生傾向、天候、環境条件、剤型、施用方法、施用場所、施用時期等により変動するが、有効成分化合物として10アール当たり0.001g~10kg、好ましくは0.01g~1kgの範囲から目的に応じて適宜選択すれば良い。

#### 【0064】

本発明の農園芸用薬剤は、更に防除対象病虫害、防除適期の拡大のため、或いは薬量の低減をはかる目的で他の農園芸用殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、生物農薬等と混合して使用することも可能であり、又、使用場面に応じて除草剤、植物成長調節剤、肥料等と混合して使用することも可能である。

かかる目的で使用する他の農園芸殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤としては、例えばエチオン、トリクロルホン、メタミドホス、アセフェート、ジクロルボス、メピンホス、モノクロトホス、マラチオン、ジメトエート、ホルモチオン、メカルバム、バミドチオン、チオメトン、ジスルホトン、オキシデプロホス、ナレド、メチルパラチオン、フェニトロチオン、シアノホス、プロパホス、フェンチオン、プロチオホス、プロフェノホス、イソフェンホス、テメホス、フェントエート、ジメチルピンホス、クロルフェピンホス、テトラクロルピンホス、ホキシム、イソキサチオン、ピラクロホス、メチダチオン、クロロピリホス、クロロピリホス・メチル、ピリダフェンチオン、ダイアジノン、ピリミホスメチル、ホサロン、ホスメット、ジオキサベンゾホス、キナルホス、テルブホス、エトプロホス、カズサホス、メスルフェンホス、DPS(NK-0795)、

#### 【0065】

ホスホカルブ、フェナミホス、イソアミドホス、ホスチアゼート、イサゾホス、エナプロホス、フェンチオン、ホスチエタン、ジクロフェンチオン、チオナジン、スルプロホス、フェンスルフォチオン、ジアミダホス、ピレトリン、アレスリン、プラレトリン、レスメトリン、ペルメトリン、テフルトリン、ピフェントリン、フェンプロパトリン、シベルメ

10

20

30

40

50

トリン、アルファシペルメトリン、シハロトリン、ラムダシハロトリン、デルタメトリン、アクリナトリン、フェンバレレート、エスフェンバレレート、シクロプロトリン、エトフェンブロックス、ハルフェンブロックス、シラフルオフェン、フルシトリネート、フルバリネート、メソミル、オキサミル、チオジカルブ、アルジカルブ、アラニカルブ、カルタップ、メトルカルブ、キシリカルブ、プロボキスル、フェノキシカルブ、フェノブカルブ、エチオフェンカルブ、フェノチオカルブ、ピフェナゼート、BPMC、カルバリル、ピリミカーブ、カルボフラン、カルボスルファン、フラチオカルブ、ベンフラカルブ、アルドキシカルブ、ジアフェンチウロン、ジフルベンズロン、テフルベンズロン、ヘキサフルムロン、ノバルロン、ルフェヌロン、フルフェノクスロン、クロルフルアズロン、酸化フェンブタズ、水酸化トリシクロヘキシルスズ、オレイン酸ナトリウム、オレイン酸カリウム、メトプレン、ヒドロプレン、ピナパクリル、アミトラズ、ジコホル、ケルセン、クロルベンジレート、フェニソプロモレート、テトラジホン、ベンスルタップ、ベンゾメート、テブフェノジド、メトキシフェノジド、ピリダリル、

10

## 【0066】

クロマフェノジド、プロパルギット、アセキノシル、エンドスルファン、ジオフェノラン、クロルフェナピル、フェンピロキシメート、トルフェンピラド、フィプロニル、テブフェンピラド、トリアザメート、エトキサゾール、ヘキシチアゾクス、硫酸ニコチン、ニテンピラム、アセタミプリド、チアクロプリド、イミダクロプリド、チアメトキサム、クロチアニジン、ジノテフラン、フルアジナム、ピリプロキシフェン、ヒドラメチルノン、ピリミジフェン、ピリダベン、シロマジン、TPIC(トリプロピルイソシアヌレート)、ピメトロジン、クロフェンテジン、ブプロフェジン、チオシクラム、フェナザキン、キノメチオネート、インドキサカルブ、ポリナクチン複合体、ミルベメクチン、アバメクチン、エマメクチン・ベンゾエート、スピノサッド、BT(バチルス・チューリングエンシス)、アザディラクチン、ロテノン、ヒドロキシプロピルデンブン、塩酸レバミゾール、メタム・ナトリウム、酒石酸モランテル、ダゾメット、トリクラミド、バストリア、モナクロスポリウム・フィマトパガム等の農園芸殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤を例示することができ、

20

## 【0067】

同様の目的で使用する農園芸用殺菌剤としては、例えば硫黄、石灰硫黄合剤、塩基性硫酸銅、イプロベンホス、エディフェンホス、トルクロホス・メチル、チラム、ポリカーバメイト、ジネブ、マンゼブ、マンコゼブ、プロピネブ、チオファネート、チオファネートメチル、ベノミル、イミノクタジン酢酸塩、イミノクタジンアルベシル酸塩、メプロニル、フルトラニル、ペンシクロン、フラメトピル、チフルザミド、メタラキシル、オキサジキシル、カルプロパミド、ジクロフルアニド、フルスルファミド、クロロタロニル、クレソキシム・メチル、フェノキサニル、ヒメキサゾール、エクロメゾール、フルオルイミド、プロシミドン、ピンクロゾリン、イプロジオン、トリアジメホン、ピテルタノール、トリフルミゾール、イプコナゾール、フルコナゾール、プロピコナゾール、ジフェノコナゾール、ミクロブタニル、テトラコナゾール、ヘキサコナゾール、テブコナゾール、チアジニル、イミベンコナゾール、プロクロラズ、ペフラゾエート、シプロコナゾール、イソプロチオラン、フェナリモル、ピリメタニル、メパニピリム、ピリフェノックス、フルアジナム、トリホリン、ジクロメジン、アゾキシストロピン、チアジアジン、キャプタン、プロベナゾール、アシベンゾフラルSメチル、フサライド、トリシクラゾール、ピロキロン、キノメチオネート、オキサリニック酸、ジチアノン、カスガマイシン、バリダマイシン、ポリオキシシン、プラストサイジン、ストレプトマイシン等の農園芸用殺菌剤を例示することができ、

30

40

## 【0068】

同様に除草剤としては、例えばグリホサート、スルホセート、グルホシネート、ピアラホス、ブタミホス、エスプロカルブ、プロスルホカルブ、ベンチオカーブ、ピリブチカルブ、アシュラム、リニューロン、ダイムロン、イソウロン、ベンスルフロンメチル、シクロスルファミロン、シノスルフロン、ピラゾスルフロンエチル、アジムスルフロン、イマゾス

50

ルフロン、テニルクロール、アラクロール、プレチラクロール、クロメプロップ、エトベンザニド、メフェナセット、ペンディメタリン、ピフェノックス、アシフルオフエン、ラクトフェン、シハロホップブチル、アイオキシニル、プロモブチド、アロキシジム、セトキシジム、ナプロパミド、インダノファン、ピラゾレート、ベンゾフェナップ、ピラフルフェンエチル、イマザピル、スルフェントラゾン、カフェンストロール、ベントキサゾン、オキサジアゾン、パラコート、ジクワット、ピリミノバック、シマジン、アトラジン、ジメタメトリン、トリアジフラム、ベンフレセート、フルチアセットメチル、キザロホップ・エチル、ベントゾン、過酸化カルシウム等の除草剤を例示することができる。

#### 【0069】

又、生物農薬として、例えば核多角体ウイルス (Nuclear polyhedrosis virus、NPV) 10  
、顆粒病ウイルス (Granulosis virus、GV)、細胞質多角体病ウイルス (Cytoplasmic polyhedrosis virus、CPV)、昆虫ポックスウイルス (Entomopox virus、EPV) 等のウイルス製剤、モノクロスボリウム・フィマトパガム (Monacrosporium phymatophagum)、スタイナ・ネマ・カーポカプサエ (Steinernema carpocapsae)、スタイナ・ネマ・クシダエ (Steinernema kushidai)、パスツールア・ペネトランス (Pasteuria penetrans) 等の殺虫又は殺線虫剤として利用される微生物農薬、トリコデルマ・リグノラン (Trichoderma lignorum)、アグロバクテリウム・ラジオブクター (Agrobacterium radiobactor)、非病原性エルビニア・カロトボラ (Erwinia carotovora)、パチルス・ズブチリス (Bacillus subtilis) 等の殺菌剤として使用される微生物農薬、ザントモナス・キャンペストリス (Xanthomonas campestris) 等の除草剤として利用される生物農薬などと混合して使用するにより、同様の効果が期待できる。 20

#### 【0070】

更に、生物農薬として例えばオンシツツヤコバチ (Encarsia formosa)、コレマンアブラバチ (Aphidius colemani)、ショクガタマバエ (Aphidoletes aphidimyza)、イサエアヒメコバチ (Diglyphus isaea)、ハモグリコマユバチ (Dacnusa sibirica)、チリカブリダニ (Phytoseiulus persimilis)、ククメリスカブリダニ (Amblyseius cucumeris)、ナミヒメハナカメムシ (Orius sauteri) 等の天敵生物、ボーベリア・ブロンニアテイ (Beauveria brongniartii) 等の微生物農薬、(Z)-10-テトラデセニル=アセタート、(E,Z)-4,10-テトラデカジニエル=アセタート、(Z)-8-ドデセニル=アセタート、(Z)-11-テトラデセニル=アセタート、(Z)-13-イコセン-10-オン、(Z)-8-ドデセニル=アセタート、(Z)-11-テトラデセニル=アセタート、(Z)-13-イコセン-10-オン、14-メチル-1-オクタデセン等のフェロモン剤と併用することも可能である。 30

#### 【実施例】

#### 【0071】

以下に本発明の一般式(I)で表される置換ピラジニカルボン酸アニリド誘導体又はその中間体である一般式(II)で表される置換アニリン誘導体について、実施例を挙げて説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

実施例1 3-イソブチル-4-[1,2,2,2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリン(化合物No.2-9)の製造 40

3-イソブチルアニリン(14.9g,0.1mol)をターシャリーブチルメチルエーテル-水(1:1)混合溶媒300mlに希釈し、ヘプタフルオロイソプロピルヨード(29.6g,0.1mol)、テトラブチルアンモニウムハイドロゲンサルフェート(3.4g,0.01mol)、炭酸水素ナトリウム(8.4g,0.1mol)、亜ジチオン酸ナトリウム(17g,0.1mol)を順次加え、室温で一晩攪拌した。反応液をヘキサンで希釈し、3規定塩酸で2回洗浄し、重曹水、飽和食塩水で洗浄した。硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮し、残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル 6:1)にて分離精製して、目的物14.9gを得た。

収率:47%

物性:<sup>1</sup>H-NMR[CDCl<sub>3</sub>/TMS, 値(ppm)]

7.23 (d, 1H), 6.54 (dt, 1H), 6.51 (d, 1H), 3.90 (bs, 2H), 2.55 (dd, 2H),  
1.83 (m, 1H), 0.91 (d, 6H)

## 【0072】

実施例2 3-イソブチル-4-[1-メトキシ-2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリン(化合物No. 2-10)の製造

3-イソブチル-4-[1,2,2,2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリン(1.6g, 5mmol)を28%ナトリウムメトキシドメタノール溶液(9.6g)に溶解し、3時間加熱攪拌した。放冷後、反応液を氷水中に注ぎ込み、酢酸エチルにて抽出し、水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=5:1)にて分離精製することにより目的物1.31gを得た。

収率: 79%

物性:  $^1\text{H-NMR}$ [ $\text{CDCl}_3/\text{TMS}$ , 値(ppm)]

7.25 (d, 1H), 6.71 (d, 1H), 6.54 (dd, 1H), 3.78 (bs, 2H), 3.43 (s, 3H),  
2.81 (d, 2H), 2.13 (m, 1H), 0.92 (d, 6H)

## 【0073】

実施例3 3-イソブチル-4-[2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリン(化合物No. 2-13)の製造

3-イソブチル-4-[1,2,2,2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリン(874mg, 3mmol)をジメチルスルホキシド(20ml)に溶解させ、水素化ホウ素ナトリウム(340mg, 9mmol)を少しずつ加え、60で3時間攪拌した。反応液に氷を少量ずつ加え、その後酢酸を滴下した。酢酸エチルにて反応液を希釈し、4回水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮することにより、目的物830mgを得た。

収率: 99%

物性:  $^1\text{H-NMR}$ [ $\text{CDCl}_3/\text{TMS}$ , 値(ppm)]

7.30 (d, 1H), 6.57 (dd, 1H), 6.50 (d, 1H), 4.28 (m, 1H), 3.80 (bs, 2H),  
2.41 (d, 2H), 1.78 (m, 1H), 0.91 (d, 6H)

## 【0074】

実施例4 N-{3-イソブチル-4-[2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]フェニル}-3-メチルピラジン-2-カルボン酸アミド(化合物No. 1-17)の製造

3-メチルピラジン-2-カルボン酸(138mg, 1mmol)、3-イソブチル-4-[2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリン(299mg, 1mmol)、2-クロロ-1-メチルピリジニウムヨード(255mg, 1mmol)、及びトリエチルアミン(303mg, 3mmol)をテトラヒドロフラン(10ml)に溶解し、3時間加熱還流した。反応液を酢酸エチルで希釈後、水洗した。有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:酢酸エチル=2:1)にて分離精製することにより目的物290mgを得た。

収率: 69%

物性: 融点 133~134

## 【0075】

実施例5 N-{3-イソブチル-4-[1-メトキシ-2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]フェニル}-3-メチルピラジン-2-カルボン酸アミド(化合物No. 1-18)の製造

3-イソブチル-4-[2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリンのかわりに3-イソブチル-4-[1-メトキシ-2,2,2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル]アニリンを用いた以外は実施例4と同様にして3時間反応を行なうことにより目的物を得た。

収率：56%

物性：融点 118 ~ 119

【0076】

実施例6 N- { 3 - イソブチル - 4 - [ 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - クロロピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No . 1 - 25 ) の製造

3 - ヒドロキシピラジン - 2 - カルボン酸 ( 154 mg , 1 . 1 mmol ) をオキシ塩化リン ( 2 ml ) に溶解し、ピリジンを1滴加え2時間加熱還流したのち減圧濃縮し、3 - クロロピラジン - 2 - カルボン酸クロリドを得た。これを3 - イソブチル - 4 - [ 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] アニリン ( 299 mg , 1 mmol ) 及びトリエチルアミン ( 303 mg , 3 mmol ) のテトラヒドロフラン ( 10 ml ) 溶液に加え、3時間加熱還流した。反応液を酢酸エチルで希釈後、水洗した。有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 2 : 1 ) にて分離精製することにより目的物 200 mg を得た。

収率：46%

物性：融点 128 ~ 129

【0077】

実施例7 N- { 3 - イソブチル - 4 - [ 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メトキシピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No . 1 - 28 ) の製造

3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸のかわりに3 - メトキシピラジン - 2 - カルボン酸を用いた以外は実施例4と同様にして3時間反応を行なうことにより目的物を得た。

収率：71%

物性：融点 135 . 5 ~ 137

【0078】

実施例8 N- { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メトキシピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No . 1 - 29 ) の製造

3 - イソブチル - 4 - [ 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] アニリンのかわりに3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] アニリンを用いた以外は実施例7と同様にして3時間反応を行なうことにより目的物を得た。

収率：50%

物性：融点 118 ~ 119

【0079】

実施例9 3 - クロロメチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 化合物 No . 3 - 1 ) の製造

3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 2 . 44 g , 16 mmol ) をクロロホルム ( 100 ml ) に溶解し、N - クロロコハク酸イミド ( 2 . 14 g , 16 mmol ) を加えた。次いで過酸化ベンゾイル ( 110 mg , 70% , 0 . 32 mmol ) を加え、30時間加熱還流した。反応液を冷却後、濾過により不溶物を除去し、濾液を減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 1 : 1 ) にて分離精製することにより目的物 1 . 55 g を得た。

収率：52%

物性：<sup>1</sup>H-NMR [ CDCl<sub>3</sub> / TMS , 値 ( ppm ) ]

8.75 ( d , 1H ) , 8.68 ( d , 1H ) , 5.14 ( s , 2H ) , 4.06 ( s , 3H )

【0080】

実施例10 3 - フルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 化合物 No . 3 - 3 ) の製造

10

20

30

40

50

3 - クロロメチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 1 . 5 5 g , 8 . 3 m m o l ) を D M S O ( 3 0 m l ) に溶解し、フッ化セシウム ( 2 . 5 2 g , 1 6 . 6 m m o l ) およびヘキサメチルリン酸トリアミド ( 0 . 3 m l ) を加えた後、140 で40分加熱攪拌した。反応液を冷却後、希塩酸中に注ぎ込み、酢酸エチルにて抽出し、水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 2 : 1) にて分離精製することにより目的物 0 . 1 3 g を得た。

収率 : 9 %

物性 :  $^1\text{H-NMR}$  [ $\text{CDCl}_3/\text{TMS}$ , 値 (ppm)]

8.82 (d, 1H), 8.71 (d, 1H), 5.90 (d, 2H), 4.05 (s, 3H)

10

#### 【0081】

実施例 11 N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - フルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No . 1 - 3 9 ) の製造

3 - フルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 3 9 0 m g , 2 . 2 9 m m o l ) および 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] アニリン ( 7 5 0 m g , 2 . 2 9 m m o l ) を攪拌し、28% ナトリウムメトキシド ( 4 . 4 g , 2 2 . 9 m m o l ) を加えた。60 で3時間加熱攪拌後、希塩酸中に注ぎ込み、酢酸エチルにて抽出し、水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 3 : 1) にて分離精製することにより目的物 0 . 7 1 g を得た。

20

収率 : 6 7 %

物性 :  $n_D$  1 . 4 8 2 9 ( 2 7 . 7 )

#### 【0082】

実施例 12 N - イソブチルオキシカルボニル - N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No . 1 - 9 6 ) の製造

水素化ナトリウム ( 3 2 m g , 6 0 % , 0 . 8 m m o l ) を T H F ( 1 0 m l ) に懸濁し、N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 3 0 0 m g , 0 . 6 7 m m o l ) の T H F ( 5 m l ) 溶液を滴下した。室温で30分間攪拌後、クロロ炭酸イソブチル ( 1 1 0 m g , 0 . 8 m m o l ) の T H F ( 2 m l ) 溶液を加え、2時間攪拌した。反応液を希塩酸中に注ぎ込み、酢酸エチルにて抽出し、水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 3 : 1) にて分離精製することにより目的物 0 . 3 3 g を得た。

30

収率 : 9 0 %

物性 :  $n_D$  1 . 4 8 1 4 ( 2 3 . 2 )

#### 【0083】

実施例 13 N - エトキシメチル - N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No . 1 - 1 1 4 ) の製造

40

水素化ナトリウム ( 3 2 m g , 6 0 % , 0 . 8 m m o l ) を T H F ( 1 0 m l ) に懸濁し、N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2 , 2 , 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 3 0 0 m g , 0 . 6 7 m m o l ) の T H F ( 5 m l ) 溶液を滴下した。室温で30分間攪拌後、クロロメチルエチルエーテル ( 7 6 m g , 0 . 8 m m o l ) の T H F ( 2 m l ) 溶液を加え、5時間攪拌した。反応液を希塩酸中に注ぎ込み、酢酸エチルにて抽出し、水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (ヘキサン : 酢酸エチル = 3 : 1) にて分離精製することにより目的

50

物 0.24 g を得た。

収率：71%

物性： $n_D^{20}$  1.4899 (23.9)

【0084】

実施例 14 N - アセチル - N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2, 2, 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 化合物 No. 1 - 106 ) の製造

水素化ナトリウム ( 32 mg, 60%, 0.8 mmol ) を THF ( 10 ml ) に懸濁し、N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 1 - メトキシ - 2, 2, 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - メチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 300 mg, 0.67 mmol ) の THF ( 5 ml ) 溶液を滴下した。室温で 30 分間攪拌後、塩化アセチル ( 63 mg, 0.8 mmol ) の THF ( 2 ml ) 溶液を加え、1 昼夜攪拌した。反応液を希塩酸中に注ぎ込み、酢酸エチルにて抽出し、水洗した。硫酸マグネシウムを用いて乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 3 : 1 ) にて分離精製することにより目的物 0.10 g を得た。

収率：30%

物性： $n_D^{20}$  1.4955 (23.0)

【0085】

実施例 15 3 - トリフルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 化合物 No. 3 - 4 ) の製造

3 - クロロピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 2 g, 11.6 mmol )、ヨウ化第一銅 ( 3.3 g, 17.3 mmol )、フッ化カリウム ( 1.34 g, 23 mmol )、クロロジフルオロ酢酸メチル ( 3.36 g, 18.2 mmol ) を DMF ( 20 ml ) に溶解し、アルゴン雰囲気下 115 で 5 時間攪拌した。反応液をセライトろ過後、ろ液を、酢酸エチルで希釈し、4 回水洗した。硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー ( ヘキサン : 酢酸エチル = 3 : 1 ) にて分離精製することにより目的物 700 mg をペーストとして得た。

収率：29%

物性： $^1\text{H-NMR}$  [  $\text{CDCl}_3$  / TMS, 値 ( ppm ) 8.85 ( d, 1H ), 8.83 ( d, 1H ), 4.05 ( s, 3H )

【0086】

実施例 16 3 - トリフルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸 ( 化合物 No. 3 - 5 ) の製造

3 - トリフルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸メチル ( 700 mg, 3.4 mmol ) をエタノール - 水 ( 1 : 1, 10 ml ) に溶解し、水酸化カリウム ( 300 mg ) を加え 1 時間加熱還流した。反応液を減圧濃縮し、残渣を水で希釈後、酢酸エチルで洗浄した。水層を塩酸で酸性にし、酢酸エチルで抽出後、飽和食塩水で洗浄した。硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮し、目的物 409 mg を結晶として得た。

収率：63%

物性：融点 130 - 134

【0087】

実施例 17 N - { 3 - イソブチル - 4 - [ 2, 2, 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] フェニル } - 3 - トリフルオロメチルピラジン - 2 - カルボン酸アミド ( 1 - 42 ) の製造

3 - トリフルオロメチル - 2 - ピラジニカルボン酸 ( 192 mg, 1 mmol )、3 - イソブチル - 4 - [ 2, 2, 2 - トリフルオロ - 1 - ( トリフルオロメチル ) エチル ] アニリン ( 199 mg, 1 mmol )、2 - クロロ - 1 - メチルピリジニウムヨージド ( 255 mg, 1 mmol ) 及びトリエチルアミン ( 303 mg, 3 mmol ) をテトラヒドロフラン ( 10 ml ) に溶解し、2 時間加熱還流した。反応液を酢酸エチルで希釈後、水洗した。有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮し、得られた残渣をシリカゲ

10

20

30

40

50

ルカラムクロマトグラフィー（ヘキサン：酢酸エチル = 2 : 1）にて分離精製することにより目的物 293 mg をペーストとして得た。

収率：62%

物性： $n_D^{20} 1.4825 (27.7)$

【0088】

以下に本発明の代表的な製剤例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

尚、製剤例中、部とあるのは重量部を示す。

製剤例 1

第 1 表記載の化合物	10 部	10
キシレン	70 部	
N - メチルピロリドン	10 部	
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	10 部	
以上を均一に混合溶解して乳剤とする。		

製剤例 2

第 1 表記載の化合物	3 部	
クレー粉末	82 部	
珪藻土粉末	15 部	
以上を均一に混合粉碎して粉剤とする。		

【0089】

製剤例 3

第 1 表記載の化合物	5 部	
ベントナイトとクレーの混合粉末	90 部	
リグニンスルホン酸カルシウム	5 部	
以上を均一に混合し、適量の水を加えて混練し、造粒、乾燥して粒剤とする。		

製剤例 4

第 1 表記載の化合物	20 部	
カオリンと合成高分散珪酸	75 部	
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	5 部	30
以上を均一に混合粉碎して水和剤とする。		

【0090】

試験例 1 ナミハダニ (*Tetranychus urticae*) に対する殺ダニ試験。

インゲン葉で直径 2 cm のリーフディスクを作成し、湿潤濾紙上に置き、そこへ雌成虫を接種した後、第 1 表に記載の化合物を有効成分とする薬剤を 500 ppm 及び 50 ppm に希釈した薬液 50 ml をターンテーブル上で均一に散布し、散布後 25 °C の恒温室に静置した。薬剤処理 2 日後に死亡虫数を調査し、下記式により死虫率を算出し、下記の判定基準に従って判定した。1 区 10 頭 2 連制。

[ 数 1 ] 40

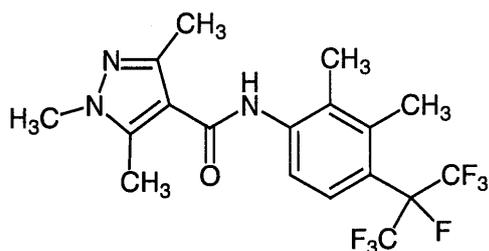
$$\text{補正死虫率 (\%)} = \frac{\text{無処理区孵化虫数} - \text{処理区孵化虫数}}{\text{無処理区孵化虫数}} \times 100$$

判定基準： A . . . 死虫率 100 %  
 B . . . 死虫率 99 % ~ 90 %  
 C . . . 死虫率 89 % ~ 80 %  
 D . . . 死虫率 79 % ~ 50 %

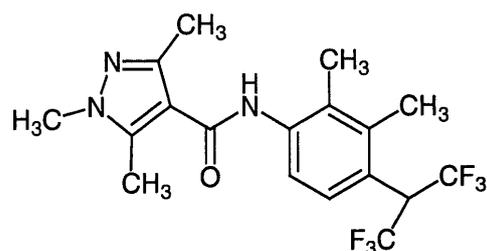
【0091】

尚、比較化合物として、特開 2003-48878 号公報記載の化合物 No. 1-163 及び 1-164 を用いた。

【化 7】



(1-163)



(1-164)

10

上記試験の結果、本発明の化合物 No. 1-2 ~ 1-4、1-6 ~ 1-10、1-12 ~ 1-14、1-17 ~ 1-30、1-39、1-42、1-43、1-51、1-53、1-54、1-73、1-74、1-76、1-77、1-79、1-81、1-82、1-87、1-90、1-96、1-104、1-106、1-112、1-114、1-117、1-125、1-127 ~ 1-129、1-134 ~ 1-138、1-145、1-146、1-153 ~ 1-160、1-163、1-189、1-199 ~ 1-210、1-213 ~ 1-222 の化合物は 500 ppm 及び 50 ppm いずれの濃度においても A 活性を示した。一方、対照の両化合物とも 500 ppm の濃度でも殺ダニ活性を示さなかった。

20

## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
 C 0 7 C 217/76 (2006.01) C 0 7 C 217/76  
 A 0 1 P 17/00 (2006.01) A 0 1 P 17/00

(72)発明者 古谷 敬  
 大阪府河内長野市小山田町3 4 5 日本農薬株式会社総合研究所内  
 (72)発明者 町谷 幸三  
 大阪府河内長野市小山田町3 4 5 日本農薬株式会社総合研究所内  
 (72)発明者 諏訪 明之  
 大阪府河内長野市小山田町3 4 5 日本農薬株式会社総合研究所内  
 (72)発明者 藤岡 伸祐  
 大阪府河内長野市小山田町3 4 5 日本農薬株式会社総合研究所内

審査官 伊藤 幸司

(56)参考文献 特開平11-302233(JP,A)  
 国際公開第03/068230(WO,A1)  
 国際公開第03/042150(WO,A1)  
 国際公開第99/012933(WO,A1)  
 特開2003-048878(JP,A)  
 国際公開第01/000575(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)  
 C 0 7 D  
 C 0 7 C  
 A 0 1 N  
 CAPLUS/REGISTRY(STN)