



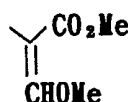
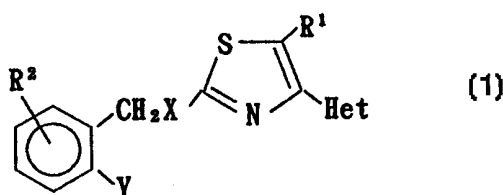
PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類6 C07D 277/34, 417/04, A01N 43/78, 47/20, A61K 31/425</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO99/40076</p> <p>(43) 国際公開日 1999年8月12日(12.08.99)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP99/00473</p> <p>(22) 国際出願日 1999年2月4日(04.02.99)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平10/24853 1998年2月5日(05.02.98) JP 特願平10/371694 1998年12月25日(25.12.98) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 日本曹達株式会社(NIPPON SODA CO., LTD.)(JP/JP) 〒100-8165 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および</p> <p>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 飯浜照幸(IIHAMA, Teruyuki)(JP/JP) 宮沢正浩(MIYAZAWA, Masahiro)(JP/JP) 宮原 治(MIYAHARA, Osamu)(JP/JP) 丸毛伸児(MARUMO, Shinji)(JP/JP) 佐野慎亮(SANO, Shinsuke)(JP/JP) 濱村 洋(HAMAMURA, Hiroshi)(JP/JP) 横田 因(YOKOTA, Chinami)(JP/JP) 川口昌宏(KAWAGUCHI, Masahiro)(JP/JP) 高橋英光(TAKAHASHI, Hidemitsu)(JP/JP)</p>	<p>高木真左江(TAKAGI, Masae)(JP/JP) 〒250-0280 神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式会社 小田原研究所内 Kanagawa, (JP)</p> <p>(74) 代理人 東海裕作(TOKAI, Yusaku) 〒100-8165 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 日本曹達株式会社内 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IS, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>	

(54) Title: THIAZOLE COMPOUNDS, PRODUCTION PROCESS, PEST CONTROL AGENT, AND ANTIFUNGAL AGENT

(54) 発明の名称 チアゾール化合物、製造方法、有害生物防除剤および抗真菌剤

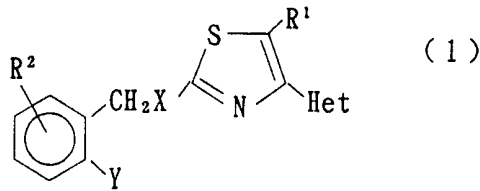


(57) Abstract

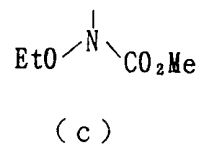
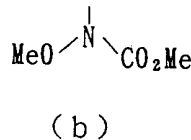
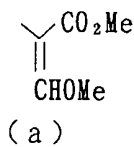
Thiazole compounds represented by general formula (1) or salts thereof; and a bactericide, an insecticide/acaricide, and a fungicide all for agricultural or horticultural use wherein R¹ and R² each independently represents halogeno, C₁₋₆ alkyl, etc.; X represents O, S, etc.; and Y represents any of groups represented by formulae (a) to (c) (wherein Het represents optionally substituted thienyl, furyl, pyridyl, thiazolyl, pyrimidinyl, or pyrazinyl).

(57)要約

本発明は、一般式(1)



〔式中、R¹、R²は、それぞれ独立して、ハロゲン原子、C₁₋₆アルキル基などを表し、Xは、O、Sなどを表し、Yは、下記(a)～(c)に示す基を表す。〕



(Hetは、置換されていてもよいチエニル、フリル、ピリジル、チアゾリル、ピリミジニル、又はピラジニル基を表す。)]で表されるチアゾール化合物またはその塩、製法および農園芸用殺菌剤、殺虫・殺ダニ剤、抗真菌剤である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	SG シンガポール
AL アルバニア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SI スロヴェニア
AM アルメニア	FR フランス	LR リベリア	SK スロヴァキア
AT オーストリア	GA ガボン	LS レソト	SL シェラ・レオネ
AU オーストラリア	GB 英国	LT リトアニア	SN セネガル
AZ アゼルバイジャン	GD グレナダ	LU ルクセンブルグ	SZ スワジランド
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE グルジア	LV ラトヴィア	TD チャード
BB バルバドス	GH ガーナ	MC モナコ	TG トーゴ
BE ベルギー	GM ガンビア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BF ブルキナ・ファソ	GN ギニア	MG マダガスカル	TM トルクメニスタン
BG ブルガリア	GW ギニア・ビサウ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TR トルコ
BJ ベナン	GR キリシヤ		TT トリニダード・トバゴ
BR ブラジル	HR クロアチア	ML マリ	UA ウクライナ
BY ベラルーシ	HU ハンガリー	MN モンゴル	UG ウガンダ
CA カナダ	ID インドネシア	MR モーリタニア	US 米国
CF 中央アフリカ	IE アイルランド	MW マラウイ	UZ ウズベキスタン
CG コンゴ	IL イスラエル	MX メキシコ	VN ヴェトナム
CH スイス	IN インド	NE ニジェール	YU ユーゴスラビア
CI コートジボアール	IS アイスランド	NL オランダ	ZA 南アフリカ共和国
CM カメルーン	IT イタリア	NO ノールウェー	ZW ジンバブエ
CN 中国	JP 日本	NZ ニュー・ジーランド	
CU キューバ	KE ケニア	PL ポーランド	
CY キプロス	KG キルギスタン	PT ポルトガル	
CZ チェッコ	KP 北朝鮮	RO ルーマニア	
DE ドイツ	KR 韓国	RU ロシア	
DK デンマーク	KZ カザフスタン	SD スーダン	
EE エストニア	LC セントルシア	SE スウェーデン	

明 細 書

チアゾール化合物、製造方法、有害生物防除剤および抗真菌剤

技術分野：

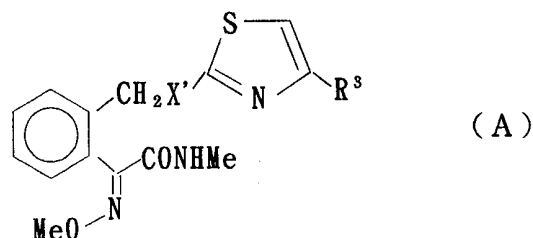
本発明は、新規なチアゾール化合物、製造方法並びにそれらを有効成分として含有する有害生物防除剤および抗真菌剤に関する。

背景技術：

農園芸作物の栽培に当り、作物の病虫害に対して多数の防除薬剤が使用されている。しかしながら、その防除効力が不十分であったり、薬剤耐性の病原菌の出現、薬剤抵抗性害虫等によりその使用が制限されたり、また植物体に薬害や汚染を生じたり、あるいは人畜魚類に対する毒性や環境への影響の問題等から、必ずしも満足すべき防除薬とは言い難いものが少なくない。従って、かかる欠点の少ない安全に使用できる薬剤の開発が要請されている。

本発明化合物に類似した化合物として、例えば、WO 96 / 0 1 2 5 6, WO 96 / 0 1 2 5 8, WO 96 / 3 7 4 7 7等にフェニルメトキシカルバミン酸化合物類及びフェニルアクリル酸化合物類が、農園芸用殺菌剤、殺虫・殺ダニ剤として有用であることが記載されている。しかし、これらの文献には、本発明化合物の如くフェニル基の置換基として、ヘテロイルチアゾリルオキシ(チオ)メチル基を有する化合物は記載されていない。

また、WO 94 / 1 9 3 3 1号公報には、次の一般式(A)



(式中、X' は、O又はSを表す。)

で表される化合物が農園芸用殺菌剤、殺虫・殺ダニ剤として有用である旨の記載がある。しかしながら、R³ が本発明のヘテロ環基である化合物に関する具体的

記載はない。

また、WO 95 / 3 4 5 2 6 号公報には、一般式 (B)



(式中、D は $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ \text{CH}_3\text{ON} \end{array} \text{CNHCH}_3$ および $\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ \text{CH}_3\text{ON} \end{array} \text{COCH}_3$ を表し、

式中、R' は、チアゾール基を含むヘテロ環基を表す。)

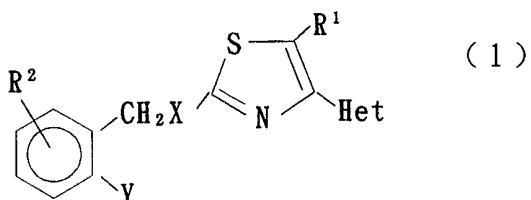
で表される化合物の製造方法が記載されている。

本発明化合物に類似の構造を有する化合物が医薬用抗真菌剤として有用であることは知られていない。

発明の開示：

本発明は、効果が確実で安全に使用できる有害生物防除剤となりうる新規なチアゾール化合物、及びその製造方法を提供することを目的とする。

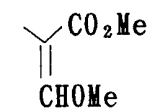
本発明は、一般式 (1)



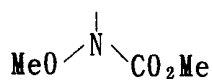
(式中、R¹、R² は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子又は C₁₋₆ アルキル基を表し、

X は、O、S、SO、SO₂ を表し、

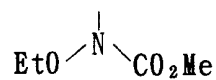
Y は、下記 (a)、(b) 又は (c) のいずれかの基を表す。



(a)



(b)



(c)

H e t は、Z で置換されていてもよい複素環基を表す。

ここで複素環基は、チエニル基、フリル基、ピリジル基、チアゾリル基、ピリミジニル基又はピラジニル基であり、

Z は、シアノ基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、C₁₋₆ アルキル基、C₁₋₆ アルケニル基、C₁₋₆ アルキニル基、C₁₋₆ アルコキシ基、C₁₋₆ アルキルチオ基、C₁₋₆ アルキルスルフィニル基、C₁₋₆ アルキルスルホニル基、C₁₋₆ ハロアルキル基、C₃₋₈ シクロアルキル基、C₁₋₆ アルキルカルボニル基、C₁₋₆ アルキルカルボニルオキシ基、C₁₋₆ アルコキシカルボニル基、ヒドロキシイミノ C₁₋₆ アルキル基、C₁₋₆ アルコキシイミノ C₁₋₆ アルキル基、(C₁₋₆ アルキル基で置換されていてもよい) カルバモイル基、置換基を有していてもよいフェニル基、置換基を有していてもよいベンジル基、置換基を有していてもよいフェノキシ基、または置換基を有していてもよいベンジロキシ基を表す。また、H e t は、複数の同一又は相異なる Z で置換されていてもよい。]

で表されるチアゾール化合物又はその塩、その製造方法、並びにこれらを有効成分として含有する有害生物防除剤および医療用抗真菌剤である。

前記一般式 (1) において、R¹、R² は、それぞれ独立して、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン原子、

メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、t-ブチル、ヘキシル基等の C₁₋₆ アルキル基を表す。

Y は、前記 (a)、(b) 及び (c) で示されるいずれかの基を表す。

H e t は、複素環の任意の位置に、同一又は相異なる複数個の置換基 Z を有していてもよい 2-チエニル基、3-チエニル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基、2-チアゾリル基、4-チアゾリル基、5-チアゾリル基、2-ピリミジニル基、4-ピリミジニル基、5-ピリミジニル基、2-ピラジニル基、3-ピラジニル基等の複素環基を表す。

前記複素環の置換基 Z は、シアノ基、ヒドロキシ基、

フッ素、塩素、臭素等のハロゲン原子、

メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、t-ブチル、ヘキシル基

等の C₁₋₆ アルキル基、

ビニル、1-プロペニル、2-プロペニル、1-ブテニル、2-ブテニル、3-ブテニル、ブタジエニル基等の C₁₋₆ アルケニル基、

エチニル、1-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル基等の C₁₋₆ アルキニル基、

メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ基等の C₁₋₆ アルコキシ基、

メチルチオ、エチルチオ、プロピルチオ、イソプロピルチオ、ブチルチオ基等の C₁₋₆ アルキルチオ基、

メチルスルフィニル、エチルスルフィニル、プロピルスルフィニル、イソプロピルスルフィニル、ブチルスルフィニル基等の C₁₋₆ アルキルスルフィニル基、

メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、イソプロピルスルホニル、ブチルスルホニル基等の C₁₋₆ アルキルスルホニル基、

フルオロメチル、1-フルオロエチル、2-フルオロエチル、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル、ジフルオロクロロメチル、ペンタフルオロエチル基等の C₁₋₆ ハロアルキル基、

シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル基等の C₃₋₈ シクロアルキル基、

アセチル、プロピオニル基等の C₁₋₆ アルキルカルボニル基、

アセトキシ、プロピオニルオキシ基等の C₁₋₆ アルキルカルボニルオキシ基、

メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、t-ブトキシカルボニル基等の C₁₋₆ アルコキシカルボニル基、

ヒドロキシイミノメチル、1-ヒドロキシイミノエチル基等のヒドロキシイミノ C₁₋₆ アルキル基、

メトキシイミノメチル、1-メトキシイミノエチル、2-エトキシイミノエチル基等の C₁₋₆ アルコキシイミノ C₁₋₆ アルキル基、

カルバモイル、N-メチルカルバモイル、N,N-ジメチルカルバモイル、N,N-ジエチルカルバモイル基等の C₁₋₆ アルキル基で置換されていてもよいカ

ルバモイル基、及び、

ベンゼン環の任意の位置に置換基を有していてもよい（ベンジル、 α -メチルベンジル、 α , α -ジメチルベンジル）等の置換ベンジル基、

ベンゼン環の任意の位置に置換基を有していてもよいフェノキシ基、

ベンゼン環の任意の位置に置換基を有していてもよい（ベンジルオキシ、 α -メチルベンジルオキシ、 α , α -ジメチルベンジルオキシ）等の置換ベンジルオキシ基等を表す。

前記置換基を有していてもよい（フェニル基、ベンジル基、フェノキシ基及びベンジルオキシ基）の置換基としては、

ニトロ基、シアノ基、

塩素、臭素、フッ素等のハロゲン原子、

メチル、エチル基等の C_{1-6} アルキル基、

メトキシ、エトキシ基等の C_{1-6} アルコキシ基、

トリフルロメチル基等の C_{1-6} ハロアルキル基、

メチルチオ、エチルチオ基等の C_{1-6} アルキルチオ基、

メチルスルホニル基等の C_{1-6} アルキルスルホニル基、

メトキシカルボニル、エチキシルカルボニル基等の C_{1-6} アルコキシカルボニル基等を挙げることができる。

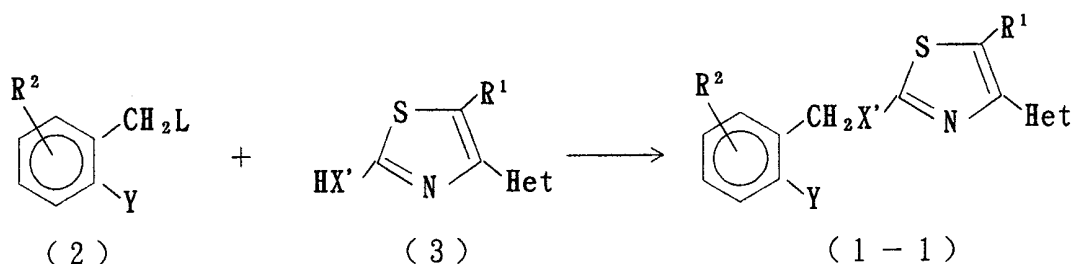
また、前記フェニル基、ベンジル基、フェノキシ基及びベンジルオキシ基は、同一又は相異なる複数の置換基を有していてもよい。

本発明化合物の塩としては、農園芸学上および薬学上許容される塩であれば特に制限はない。例えば、ナトリウム、カリウム、リチウム等のアルカリ金属の塩、カルシウム、マグネシウム等のアルカリ土類金属の塩、ニッケル、コバルト、マンガン、銅、亜鉛等の遷移金属等の金属塩、塩酸、硫酸等の鉱酸の塩やメタン、スルホン酸、p-トルエン、スルホン酸、シュウ酸等の有機酸の塩を例示することができる。

発明を実施するための最良の形態：

本発明化合物は以下の方法により製造することができる。

(製造法 1)



(式中、 R^1 、 R^2 、 Y 及び Het は、前記と同じ意味を表し、 X' は O 又は S を表し、 L は、塩素、臭素、 CH_3SO_2O 基、トシルオキシ基等の脱離基を表す。)

この方法は、一般式(2)で表される化合物と一般式(3)で表される化合物とを、不活性溶媒中、塩基の存在下、反応温度 $-50 \sim 150^\circ\text{C}$ 、好ましくは $0 \sim 100^\circ\text{C}$ で、 $1 \sim 48$ 時間反応させることにより、一般式(1-1)で表される化合物を製造するものである。

この反応に用いることのできる溶媒としては、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン(THF)等のエーテル類、アセトニトリル、 N,N -ジメチルホルムアミド(DMF)、ジメチルスルホキシド(DMSO)等が挙げられ、好ましくは、DMF、アセトニトリルを例示することができる。

また、反応に用いることのできる塩基としては、水素化ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム等の無機塩基、トリエチルアミン、 $1,8$ -ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセン-7(DBU)等のアミン類、酸化銀(Ag_2O)、炭酸銀等の金属塩等が挙げられる。

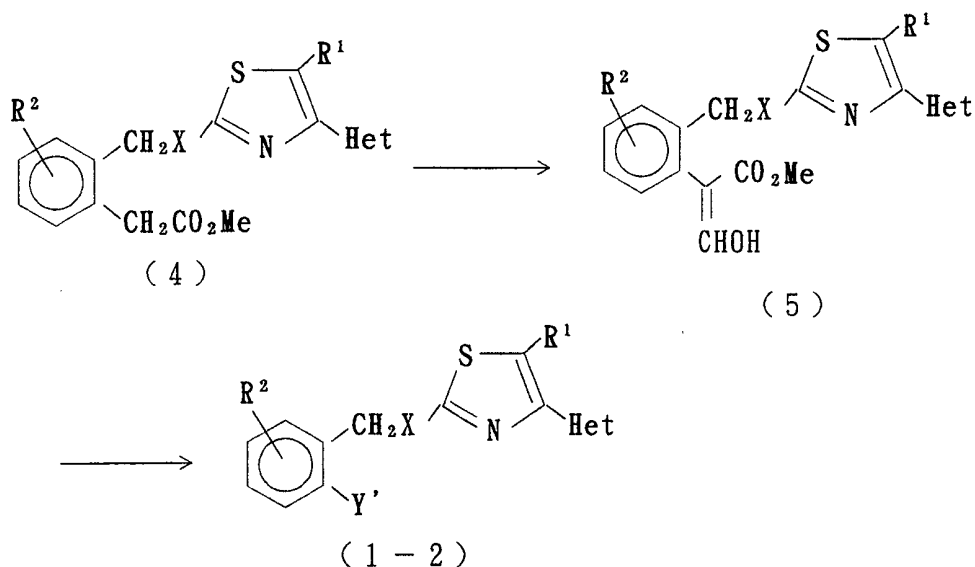
一般式(3)で表される化合物は、一般式： $CH_3C(=O)-Het$ (Het は前記と同一の意味を表す。)で表される化合物を出発原料として、例えば、特開昭61-37784号公報に記載された方法と同様にして製造することができる。

また、 X が SO 、 SO_2 である化合物は、対応する X が S である化合物を、過酸化水素、過酢酸、 m -クロロ過安息香酸等の酸化剤を用いる公知の酸化反応に

より製造することができる。

(製造法 2)

前記一般式 (1) で表される化合物の内、Y が前記 (a) である化合物は、次のようにして製造することもできる。



(式中、R¹、R²、X及びHetは、前記と同じ意味を表し、Y'は、前記Yの中の(a)を表す。)

先ず、一般式(4)で表される化合物をギ酸メチル等のギ酸エステル類と、溶媒中もしくは無溶媒で、塩基の存在下、反応温度-50~100℃、好ましくは0~50℃で、1~48時間反応させることにより、中間体(5)を得る。

この反応に用いることのできる溶媒としては、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、THF、ジメトキシエタン(DME)等のエーテル類、アセトニトリル、DMF、DMSO等が挙げられる。これらの内、DMF又はDMEの使用が好ましい。

また、反応に用いることのできる塩基としては、水素化ナトリウム、水素化カリウム等の無機塩基を挙げることができる。

次いで、得られた中間体(5)を、ジメチル硫酸、ヨウ化メチル等のメチル化剤を用いる通常のメチル化反応により、一般式(1-2)で表される化合物を得ることができる。

なお、本発明化合物(1)には、例えば、Yが、(a)である化合物には、E

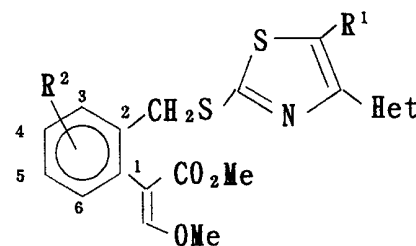
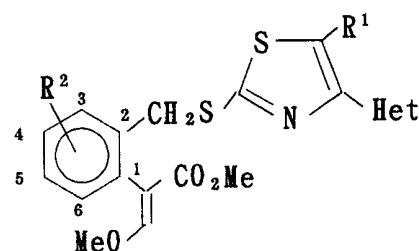
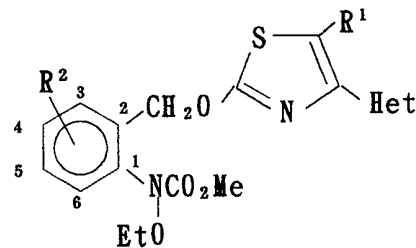
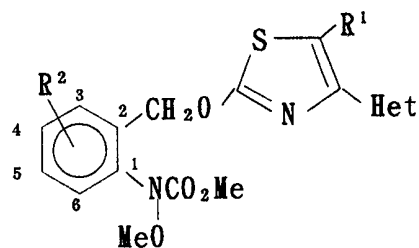
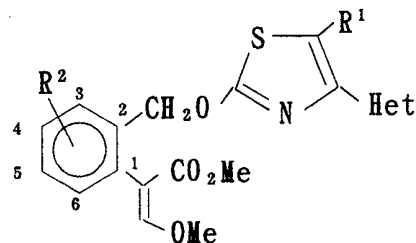
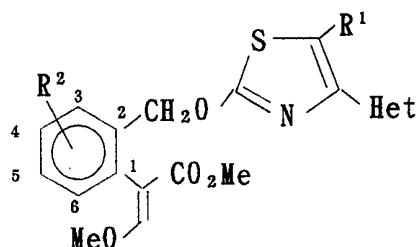
、Z異性体が、またヘテロ環上の置換基として、ヒドロキシイミノC₁₋₆アルキル基、C₁₋₆アルコキシイミノC₁₋₆アルキル基の化合物の場合には、そのイミノ部分のE、Z異性体がそれぞれ存在し得るが、かかる形は、全て本発明の範囲に含まれる。

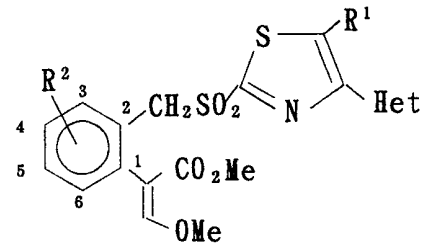
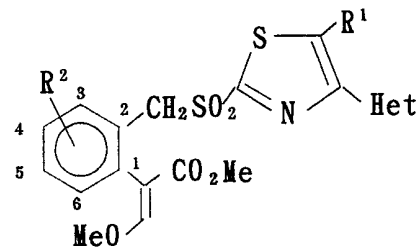
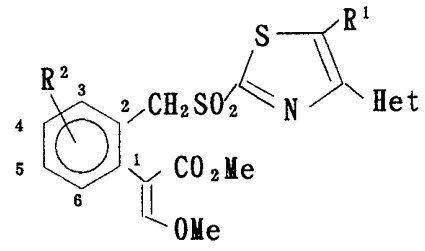
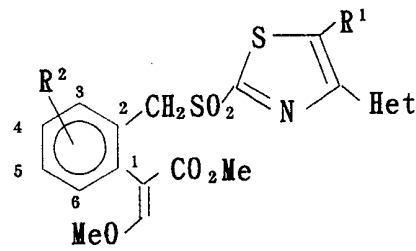
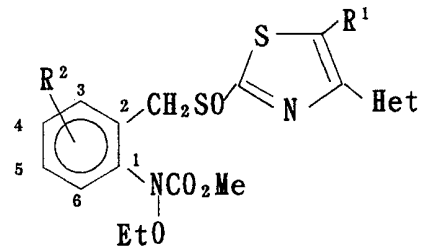
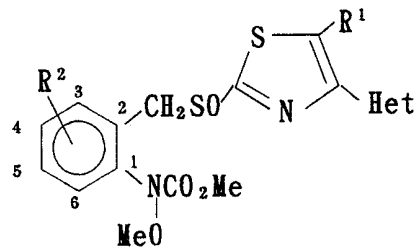
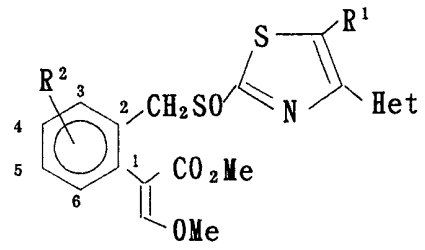
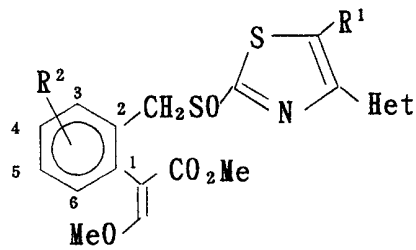
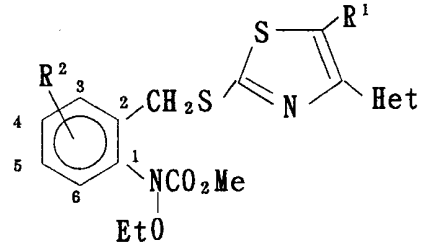
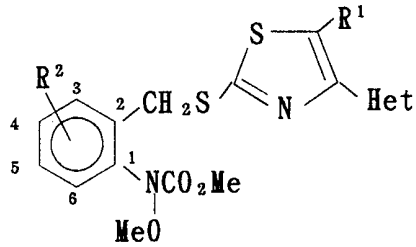
いずれの反応を行った場合も、反応終了後は通常の後処理を行うことにより目的物を得ることができる。本発明化合物の構造は、IR、NMR、Massスペクトル等から決定することができる。

本発明に含まれる化合物の例を、第1表に示す。尚、表中の略号はそれぞれ下記の意味を表す。

Me : メチル基 Et : エチル基 Pr : プロピル基 Bu : ブチル基 Pen : ペンチル基 Ph : フェニル基 Ac : アセチル基 PY : ピリジル基 TZ : チアゾリル基 PM : ピリミジニル基 PZ : ピラジニル基 FU : フリル基 TE : チエニル基 n : ノーマル i : イソ sec : セカンダリー t : ターシャリー c : シクロ

第1表の化合物は下記のそれぞれの構造式で表される化合物である。





第 1 表

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
2-PY	H	H	3-Me-2-PY	H	H
3-PY	H	H	6-Et-2-PY	H	H
4-PY	H	H	5-Et-2-PY	H	H
2-PY	Me	H	4-Et-2-PY	H	H
3-PY	Me	H	3-Et-2-PY	H	H
4-PY	Me	H	6-C1-2-PY	H	H
2-PY	C1	H	5-C1-2-PY	H	H
3-PY	C1	H	4-C1-2-PY	H	H
4-PY	C1	H	3-C1-2-PY	H	H
2-PY	H	3-Me	6-Br-2-PY	H	H
3-PY	H	3-Me	5-Br-2-PY	H	H
4-PY	H	3-Me	4-Br-2-PY	H	H
2-PY	H	6-C1	3-Br-2-PY	H	H
3-PY	H	6-C1	6-nPr-2-PY	H	H
4-PY	H	6-C1	5-nPr-2-PY	H	H
2-PY	H	6-Me	4-nPr-2-PY	H	H
3-PY	H	6-Me	3-nPr-2-PY	H	H
4-PY	H	6-Me	6-I-2-PY	H	H
2-PY	Br	H	5-I-2-PY	H	H
2-PY	C1	6-Me	4-I-2-PY	H	H
2-PY	Me	6-Me	3-I-2-PY	H	H
2-PY	C1	6-C1	6-CN-2-PY	H	H
6-Me-2-PY	H	H	5-CN-2-PY	H	H
5-Me-2-PY	H	H	4-CN-2-PY	H	H
4-Me-2-PY	H	H	3-CN-2-PY	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
6-iPr-2-PY	H	H	5-CO ₂ Et-2-PY	Me	H
5-iPr-2-PY	H	H	5-CO ₂ Et-2-PY	H	H
4-iPr-2-PY	H	H	6-COMe-2-PY	H	H
6-OMe-2-PY	H	H	5-COMe-2-PY	H	H
5-OMe-2-PY	H	H	4-COMe-2-PY	H	H
4-OMe-2-PY	H	H	6-COEt-2-PY	H	H
6-OEt-2-PY	H	H	5-COEt-2-PY	H	H
5-OEt-2-PY	H	H	6-CMe=NOH-2-PY	H	H
4-OEt-2-PY	H	H	5-CMe=NOH-2-PY	H	H
6-OCH ₂ Ph-2-PY	H	H	6-CMe=NOMe-2-PY	H	H
5-OCH ₂ Ph-2-PY	H	H	5-CMe=NCMe-2-PY	H	H
4-OCH ₂ Ph-2-PY	H	H	4-CMe=NOMe-2-PY	H	H
6-OPh-2-PY	H	H	6-CMe=NOEt-2-PY	H	H
5-OPh-2-PY	H	H	5-CMe=NOEt-2-PY	H	H
6-CF ₃ -2-PY	H	H	6-CONH ₂ -2-PY	H	H
5-CF ₃ -2-PY	H	H	5-CONH ₂ -2-PY	H	H
6-OAc-2-PY	H	H	4-CONH ₂ -2-PY	H	H
5-OAc-2-PY	H	H	6-CONHMe-2-PY	H	H
4-OAc-2-PY	H	H	5-CONHMe-2-PY	H	H
6-OC(=O)Et-2-PY	H	H	4-CONHMe-2-PY	H	H
5-OC(=O)nPr-2-PY	H	H	6-CONMe ₂ -2-PY	H	H
6-CO ₂ Me-2-PY	H	H	5-CONMe ₂ -2-PY	H	H
5-CO ₂ Me-2-PY	H	H	4-CONMe ₂ -2-PY	H	H
4-CO ₂ Me-2-PY	H	H	6-CONHEt-2-PY	H	H
6-CO ₂ Et-2-PY	H	H	5-CONHEt-2-PY	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
4-CONHEt-2-PY	H	H	6-Ph-2-PY	H	H
5,6-Me ₂ -2-PY	H	H	3-Me-2-PY	H	3-Me
5,6-Cl ₂ -2-PY	H	H	6-Et-2-PY	H	6-Cl
4,6-Cl ₂ -2-PY	H	H	5,6-Me ₂ -2-PY	Me	H
6-Cl-5-Me-2-PY	H	H	4-COMe-2-PY	Cl	H
6-Me-5-CF ₃ -2-PY	H	H	3-Et-2-PY	H	3-Me
3,5-Cl ₂ -2-PY	H	H	6-Cl-2-PY	H	3-Cl
5-Cl-6-Me-2-PY	H	H	5-OEt-2-PY	H	3-Me
4-Cl-6-Me-2-PY	H	H	4-Cl-2-PY	H	3-Cl
3-Cl-5-CF ₃ -2-PY	H	H	6-CO ₂ Me-2-PY	H	6-Me
6-Cl-5-CF ₃ -2-PY	H	H	6-Br-2-PY	H	6-Cl
5-Cl-6-CF ₃ -2-PY	H	H	5-Br-2-PY	Me	H
4-Cl-6-CF ₃ -2-PY	H	H	4-Br-2-PY	Cl	H
3,5-Me ₂ -2-PY	H	H	5-Cl-6-CF ₃ -2-PY	Me	H
4,6-Me ₂ -2-PY	H	H	6-nPr-2-PY	Cl	H
5-cPr-2-PY	H	H	5-nPr-2-PY	H	3-Me
5-cPen-2-PY	H	H	4-nPr-2-PY	H	3-Cl
6-CH=CH ₂ -2-PY	H	H	3-nPr-2-PY	H	3-Me
5-OH-2-PY	H	H	6-I-2-PY	H	6-Br
5-nBu-2-PY	H	H	5-tBu-2-PY	H	6-Me
4-nBu-2-PY	H	H	5-OCH ₂ Ph-2-PY	H	6-Cl
5-tBu-2-PY	H	H	5-OAc-2-PY	Me	H
4-tBu-2-PY	H	H	3,5-Cl ₂ -2-PY	Cl	H
5-secBu-2-PY	H	H	5-CN-2-PY	Me	H
4-secBu-2-PY	H	H	4-CONMe ₂ -2-PY	Cl	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
2-Me-3-PY	H	H	3-Me-4-PY	Me	H
4-Me-3-PY	H	H	2-Me-4-PY	H	6-Cl
5-Me-3-PY	H	H	3-Cl-4-PY	Cl	H
6-Me-3-PY	H	H	2-Cl-4-PY	H	3-Me
5-Cl-3-PY	H	H	3-Me-4-PY	H	H
6-Cl-3-PY	H	H	2-Me-4-PY	H	H
2-Cl-3-PY	H	H	3-Cl-4-PY	H	H
4-Cl-3-PY	H	H	2-Cl-4-PY	H	H
2-Me-3-PY	Me	H	2,6-Cl ₂ -4-PY	H	H
4-Me-3-PY	Cl	H	2,6-Me ₂ -4-PY	H	H
5-Me-3-PY	H	6-Cl	2-CN-4-PY	H	H
6-Me-3-PY	H	6-Me	2-SMe-4-PY	H	H
5-Cl-3-PY	H	3-Cl	2-Cl-6-OMe-4-PY	H	H
6-Cl-3-PY	H	3-Me	2-SO ₂ Me-4-PY	H	H
2-Cl-3-PY	Me	H	2-Cl-6-SMe-4-PY	H	H
4-Cl-3-PY	Br	H	2-Cl-6-SOMe-4-PY	H	H
6-CN-3-PY	H	H	2-Cl-6-SO ₂ Me-4-PY	H	H
2-CN-3-PY	H	H	2-CN-6-Me-4-PY	H	H
6-Me-3-PY	H	H	2-OMe-4-PY	H	H
6-OEt-3-PY	H	H	2-OEt-4-PY	H	H
5,6-Cl ₂ -3-PY	H	H	2-TZ	H	H
6-SMe-3-PY	H	H	4-TZ	H	H
6-OiPr-3-PY	H	H	5-TZ	H	H
6-SO ₂ Me-3-PY	H	H	4-Me-2-TZ	H	H
5,6-Me ₂ -3-PY	H	H	4-Br-2-TZ	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
2-TZ	Me	H	4-Br-5-CF ₃ -2-TZ	Me	H
4-TZ	H	6-Me	4,5-Br ₂ -2-TZ	H	H
5-TZ	H	6-C1	4-Br-5-CN-2-TZ	H	H
4-Me-2-TZ	Br	H	4-Br-5-Ph-2-TZ	H	H
5-Me-2-TZ	H	H	4-Br-5-CO ₂ Me 2-TZ	H	H
4-C1-2-TZ	H	H	4-Br-5-COMe-2-TZ	H	H
5-C1-2-TZ	H	H	4-Me-5-COMe-2-TZ	H	H
4,5-Me ₂ -2-TZ	H	H	4-SMe-5-CF ₃ -2-TZ	H	H
4,5-C1 ₂ -2-TZ	H	H	5-Br-4-SMe-2-TZ	H	H
4-SMe-2-TZ	H	H	5-C1-4-SMe-2-TZ	H	H
5-COMe-2-TZ	H	H	5-CN-4-SMe-2-TZ	H	H
4-SMe-5-Me-2-TZ	H	H	4-SMe-5-Ph-2-TZ	H	H
5-CF ₃ -2-TZ	H	H	4-SMe-5-CO ₂ Me 2-TZ	H	H
5-Br-2-TZ	H	H	4-SMe-5-COMe-2-TZ	H	H
5-CN-2-TZ	H	H	2-Me-4-TZ	H	H
5-Ph-2-TZ	H	H	2-C1-4-TZ	H	H
5-CO ₂ Me 2-TZ	H	H	2-Br-4-TZ	H	H
4-Me-5-CF ₃ -2-TZ	H	H	2-OMe-4-TZ	H	H
4-Me-5-C1-2-TZ	H	H	2-SMe-4-TZ	H	H
4-Me-5-Br-2-TZ	H	H	2-SOMe-4-TZ	H	H
4-Me-5-CN-2-TZ	H	H	2-SO ₂ Me-4-TZ	H	H
4-Me-5-Ph-2-TZ	H	H	2-Ph-4-TZ	H	H
4-Me-5-CO ₂ Me 2-TZ	H	H	2-OPh-4-TZ	H	H
4-Br-5-Me-2-TZ	H	H	2-(OPh-4-Me)-4-TZ	H	H
4-Br-5-C1-2-TZ	H	H	2-(OPh-4-C1)-4-TZ	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
2-CN-4-TZ	Me	H	5-Br-2-SOMe-4-TZ	H	H
5-Me-4-TZ	H	6-Me	5-Br-2-SO ₂ Me-4-TZ	H	H
5-Br-4-TZ	H	6-Cl	5-Br-2-OPh-4-TZ	H	H
5-SMe-4-TZ	Br	H	2-(OPh-4-Me)-5-Br-4-TZ	H	H
2,5-Me ₂ -4-TZ	H	H	2-(OPh-4-Cl)-5-Br-4-TZ	H	H
2-Cl-5-Me-4-TZ	H	H	2-Me-5-SMe-4-TZ	H	H
2-Br-5-Me-4-TZ	H	H	2-Br-5-SMe-4-TZ	H	H
5-Me-2-OMe-4-TZ	H	H	2-Cl-5-SMe-4-TZ	H	H
2-CN-5-Me-4-TZ	H	H	2-CN-5-SMe-4-TZ	H	H
5-Me-2-Ph-4-TZ	H	H	2-Ph-5-SMe-4-TZ	H	H
5-Me-2-SMe-4-TZ	H	H	2-OPh-5-SMe-4-TZ	H	H
5-Me-2-SO ₂ Me-4-TZ	H	H	2,5-(SMe) ₂ -4-TZ	H	H
5-Me-2-OPh-4-TZ	H	H	2-SOMe-5-SMe-4-TZ	H	H
2-(OPh-4-Me)-5-Me-4-TZ	H	H	2-SO ₂ Me-4-SMe-4-TZ	H	H
2-(OPh-4-Cl)-5-Me-4-TZ	H	H	2-(OPh-4-Me)-5-SMe-4-TZ	H	H
2,5-Br ₂ -4-TZ	H	H	2-(OPh-4-Cl)-5-SMe-4-TZ	H	H
5-Br-2-Cl-4-TZ	H	H	2-Me-5-TZ	H	H
5-Br-2-Me-4-TZ	H	H	2-Cl-5-TZ	H	H
5-Br-2-OMe-4-TZ	H	H	2-Br-5-TZ	H	H
2-Br-5-Me-4-TZ	H	H	2-OMe-5-TZ	H	H
5-Br-2-Ph-4-TZ	H	H	2-SMe-5-TZ	H	H
5-Br-2-SMe-4-TZ	H	H			

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
2-SOMe-5-TZ	H	H	4-Br-2-SMe-5-TZ	Me	H
2-SO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-Br-2-SOMe-5-TZ	H	H
2-Ph-5-TZ	H	H	4-Br-2-SO ₂ Me-5-TZ	H	H
2-OPh-5-TZ	H	H	4-Br-2-CN-5-TZ	H	H
2-(OPh-4-Me)-5-TZ	H	H	4-Br-2-Ph-5-TZ	H	H
2-(OPh-4-Cl)-5-TZ	H	H	4-Br-2-OPh-5-TZ	H	H
2-CN-5-TZ	H	H	4-Br-2-(OPh-4-Me)-	H	H
2,4-Me ₂ -5-TZ	H	H	5-TZ		
2,4-Br ₂ -5-TZ	H	H	4-Br-2-(OPh-4-Cl)-	H	H
2-Cl-4-Me-5-TZ	H	H	5-TZ		
2-Br-4-Me-5-TZ	H	H	4-SMe-5-TZ	H	H
2-OMe-4-Me-5-TZ	H	H	2-Me-4-SMe-5-TZ	H	H
2-SMe-4-Me-5-TZ	H	H	2-Cl-4-SMe-5-TZ	H	H
2-SOMe-4-Me-5-TZ	H	H	2-Br-4-SMe-5-TZ	H	H
2-SO ₂ Me-4-Me-5-TZ	H	H	4-SMe-2-Ph-5-TZ	H	H
2-Ph-4-Me-5-TZ	H	H	4-SMe-2-OPh-5-TZ	H	H
2-OPh-4-Me-5-TZ	H	H	4-SMe-2-OMe-5-TZ	H	H
2-(OPh-4-Me)-4-Me-	H	H	2-(OPh-4-Me)-4-SMe	H	H
5-TZ			-5-TZ		
2-(OPh-4-Cl)-4-Me-	H	H	2-(OPh-4-Cl)-4-SMe	H	H
5-TZ			-5-TZ		
2-CN-4-Me-5-TZ	H	H	2,4-(SMe) ₂ -5-TZ	H	H
4-Br-2-Cl-5-TZ	H	H	4-SMe-2-SOMe-5-TZ	H	H
4-Br-2-Me-5-TZ	H	H	4-SMe-2-SO ₂ Me-5-TZ	H	H
4-Br-2-OMe-5-TZ	H	H	2-CN-4-SMe-5-Tz	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
4-Ac-2-Me-5-TZ	H	H	4-Ph-5-TZ	H	H
4-Ac-2-C1-5-TZ	H	H	2-CN-4-Ph-5-TZ	H	H
4-Ac-2-Br-5-TZ	H	H	2-(OPh-4-Me)-4-Ph- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-OMe-5-TZ	H	H	2-(OPh-4-C1)-4-Ph- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-SMe-5-TZ	H	H	2-Me-4-(OPh-4-C1)- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-SOMe-5-TZ	H	H	2-C1-4-(OPh-4-C1)- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-SO ₂ Me-5-TZ	H	H	2-Br-4-(OPh-4-C1)- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-CN-5-TZ	H	H	2-OMe-4-(OPh-4-C1)- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-Ph-5-TZ	H	H	2-SMe-4-(OPh-4-C1)- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-OPh-5-TZ	H	H	4-(OPh-4-C1)-2-Ph- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-(OPh-4-Me)- 5-TZ	H	H	4-(OPh-4-C1)-2-OPh- 5-TZ	H	H
4-Ac-2-(OPh-4-C1)- 5-TZ	H	H	4-(OPh-4-C1)-2-CN- 5-TZ	H	H
2-Me-4-Ph-5-TZ	H	H	2,4-(Ph) ₂ -5-TZ	H	H
2-C1-4-Ph-5-TZ	H	H	4-Ph-2-OPh-5-TZ	H	H
2-Br-4-Ph-5-TZ	H	H	4-Ac-5-TZ	H	H
2-OMe-4-Ph-5-TZ	H	H			
2-SMe-4-Ph-5-TZ	H	H			
2-SOMe-4-Ph-5-TZ	H	H			
2-SO ₂ Me-4-Ph-5-TZ	H	H			
2-CN-4-Ph-5-TZ	H	H			
2,4-(Ph) ₂ -5-TZ	H	H			
4-Ph-2-OPh-5-TZ	H	H			
4-Ac-5-TZ	H	H			
			4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
2-Me-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-C1-6-CO ₂ Et-2-PM	H	H
2-C1-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-C1-6-CONHMe-2-PM	H	H
2-Br-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-C1-6-CONHPh-2-PM	H	H
2-OMe-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-C1-2-(CONHPh-4-C	H	H
2-SMe-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	1)-2-PM		
2-CN-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-Me-5-CO ₂ Me-2-PM	H	H
2-Ph-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-Me-5-CO ₂ Et-2-PM	H	H
2-OPh-4-CO ₂ Me-5-TZ	H	H	4-Me-5-CONHMe-2-PM	H	H
2-(OPh-4-Me)-4-CO ₂	H	H	4-Me-5-CONHPh-2-PM	H	H
Me-5-TZ	H	H	4-Me-5-(CONHPh-4-C	H	H
2-(OPh-4-C1)-4-CO ₂	H	H	1)-2-PM		
Me-5-TZ			4-CF ₃ -5-CO ₂ Me-2-PM	H	H
2-PM	H	H	4-CF ₃ -5-CO ₂ Et-2-PM	H	H
4-PM	H	H	4-CF ₃ -5-CONHMe-2-PM	H	H
5-PM	H	H	4-CF ₃ -5-CONHPh-2-PM	H	H
4-Me-2-PM	H	H	4-CF ₃ -5-(CONHPh-4-	H	H
4,6-Me ₂ -2-PM	H	H	C1)-2-PM		
4,6-C1 ₂ -2-PM	H	H	2-Me-4-PM	H	H
4,6-Br ₂ -2-PM	H	H	2-Ph-4-PM	H	H
4,6-(OMe) ₂ -2-PM	H	H	6-C1-4-PM	H	H
4,6-(SMe) ₂ -2-PM	H	H	2-Me-6-C1-4-PM	H	H
4-OMe-6-Me-2-PM	H	H	2,6-C1 ₂ -4-PM	H	H
4,6-(SOMe) ₂ -2-PM	H	H	2-Br-6-C1-4-PM	H	H
4,6-(SO ₂ Me) ₂ -2-PM	H	H	6-C1-2-OMe-4-PM	H	H
4-C1-6-CO ₂ Me-2-PM	H	H	6-C1-2-SMe-4-PM	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
6-C1-2-SOMe-4-PM	H	H	2-(OPh-4-C1)-5-PM	H	H
6-C1-2-SO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-5-PM	H	H
6-C1-2-OPh-4-PM	H	H	4-C1-2-Me-5-PM	H	H
6-C1-2-(OPh-4-C1)- 4-PM	H	H	2, 4-C1 ₂ -5-PM	H	H
6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	2-Br-4-C1-5-PM	H	H
2-Me-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-2-OMe-5-PM	H	H
2-C1-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-2-SMe-5-PM	H	H
2-Br-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-2-SOMe-5-PM	H	H
2-OMe-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-2-SO ₂ Me-5-PM	H	H
2-SMe-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-2-OPh-5-PM	H	H
2-SOMe-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-C1-2-(OPh-4-C1)- 5-PM	H	H
2-SO ₂ Me-6-CO ₂ Me-4- PM	H	H	4-Br-5-PM	H	H
2-OPh-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	4-Br-2-Me-5-PM	H	H
2-(OPh-4-C1)-6-CO ₂ Me-4-PM	H	H	2, 4-Br ₂ -5-PM	H	H
2-Me-5-PM	H	H	4-Br-2-C1-5-PM	H	H
2-C1-5-PM	H	H	4-Br-2-OMe-5-PM	H	H
2-Br-5-PM	H	H	4-Br-2-SMe-5-PM	H	H
2-OMe-5-PM	H	H	4-Br-2-SOMe-5-PM	H	H
2-SMe-5-PM	H	H	4-Br-2-SO ₂ Me-5-PM	H	H
2-SOMe-5-PM	H	H	4-Br-2-OPh-5-PM	H	H
2-SO ₂ Me-5-PM	H	H	2, 4-Me ₂ -5-PM	H	H
2-OPh-5-PM	H	H	4-Me-5-PM	H	H
			2-C1-4-Me-5-PM	H	H
			2-Br-4-Me-5-PM	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
4-Me-2-OMe-5-PM	H	H	4, 5-(CO ₂ Me) ₂ -2-PZ	H	H
4-Me-2-SMe-5-PM	H	H	3-CO ₂ Me-2-PZ	H	H
4-Me-2-SOMe-5-PM	H	H	5-Ph-2-PZ	H	H
4-Me-2-SO ₂ Me-5-PM	H	H	5-Me-2-PZ	H	H
4-Me-2-OPh-5-PM	H	H	4-Ph-2-PZ	H	H
4-Me-2-(OPh-4-C1)-5-PM	H	H	4-Me-2-PZ	H	H
4-CF ₃ -5-PM	H	H	5-C1-2-PZ	H	H
2-Br-4-CF ₃ -5-PM	H	H	4-C1-2-PZ	H	H
2-C1-4-CF ₃ -5-PM	H	H	5-Br-2-PZ	H	H
2-SMe-4-CF ₃ -5-PM	H	H	4-Br-2-PZ	H	H
2-SOMe-4-CF ₃ -5-PM	H	H	2-TE	H	H
2-SO ₂ Me-4-CF ₃ -5-PM	H	H	3-TE	H	H
2-OMe-4-CF ₃ -5-PM	H	H	5-Me-2-TE	H	H
2-OPh-4-CF ₃ -5-PM	H	H	5-Et-2-TE	H	H
2-(OPh-4-C1)-4-CF ₃ -5-PM	H	H	4, 5-Me ₂ -2-TE	H	H
2-PZ	H	H	5-C1-2-TE	H	H
4, 5-Me ₂ -2-PZ	H	H	4, 5-C1 ₂ -2-TE	H	H
4, 5-C1 ₂ -2-PZ	H	H	3, 5-C1 ₂ -2-TE	H	H
4, 5-Br ₂ -2-PZ	H	H	4-C1-5-Me-2-TE	H	H
3-CN-2-PZ	H	H	3, 4, 5-C1 ₃ -2-TE	H	H
4, 5-(CN) ₂ -2-PZ		H	5-Br-2-TE	H	H
4-Ac-5-CN-2-PZ		H	4, 5-Br ₂ -2-TE	H	H
4, 5-(Ac) ₂ -2-PZ		H	3, 4, 5-Br ₃ -2-TE	H	H
			5-CN-2-TE	H	H
			5-CF ₃ -2-TE	H	H

Het	R ¹	R ²	Het	R ¹	R ²
4-C1-5-CF ₃ -2-TE	H	H	4-C1-5-Me-2-FU	H	H
5-Me-3-TE	H	H	3, 4, 5-C1 ₃ -2-FU	H	H
5-Et-3-TE	H	H	5-Br-2-FU	H	H
2, 5-Me ₂ -3-TE	H	H	4, 5-Br ₂ -2-FU	H	H
5-C1-3-TE	H	H	3, 4, 5-Br ₃ -2-FU	H	H
2, 5-C1 ₂ -3-TE	H	H	5-CN-2-FU	H	H
2, 4, 5-C1 ₃ -3-TE	H	H	5-CF ₃ -2-FU	H	H
5-Br-3-TE	H	H	4-C1-5-CF ₃ -2-FU	H	H
2, 5-Br ₂ -3-TE	H	H	5-Me-3-FU	H	H
2, 4, 5-Br ₃ -3-TE	H	H	5-Et-3-FU	H	H
5-CN-3-TE	H	H	2, 5-Me ₂ -3-FU	H	H
5-CF ₃ -3-TE	H	H	5-C1-3-FU	H	H
2-FU	H	H	2, 5-C1 ₂ -3-FU	H	H
3-FU	H	H	2, 4, 5-C1 ₃ -3-FU	H	H
5-Me-2-FU	H	H	5-Br-3-FU	H	H
5-Et-2-FU	H	H	2, 5-Br ₂ -3-FU	H	H
4, 5-Me ₂ -2-FU	H	H	2, 4, 5-Br ₃ -3-FU	H	H
5-C1-2-FU	H	H	5-CN-3-FU	H	H
4, 5-C1 ₂ -2-FU	H	H	5-CF ₃ -3-FU	H	H
2-CH ₂ C≡CH-4-TZ	H	H	2-(CH ₂ Ph-4-C1)-4-TZ	H	H
2-CH ₂ C≡CH-5-PM	H	H	2-(CH ₂ Ph-4-C1)-4-PM	H	H
2-CH ₂ Ph-5-PM	H	H	2-CH ₂ Ph-4-TZ	H	H

(有害生物防除剤)

このようにして得られる本発明化合物を、実際に農園芸用殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、抗真菌薬等として使用する際には、他成分を加えず純粋な形で使用することができる。また農薬・医薬として使用する目的で一般の農医薬のとり得る形態、すなわち、粒剤、粉剤等の固型製剤、水和剤、乳剤、水溶剤、懸濁剤、フロアブル等の液体製剤等に製剤化して使用することもできる。

固型製剤とする場合には、大豆粒、小麦粉等の植物性粉末、珪藻土、燐灰石、石こう、タルク、ベントナイト、パイロフィライト、クレイ等の鉱物性微粉末、安息香酸ソーダ、尿素、芒硝等の有機及び無機化合物等の添加剤及び担体を使用することができる。

また、液体製剤とする場合には、ケロシン、キシレン及びソルベントナフサ等の石油留分、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、DMF、DMSO、アルコール、アセトン、トリクロロエチレン、メチルイソブチルケトン、鉱物油、植物油、水等を溶剤として使用することができる。

さらに、製剤をより均一かつ安定な形態とするために、これら製剤中には、必要に応じて界面活性剤を添加することもできる。界面活性剤としては、特に限定はないが、例えば、ポリオキシエチレンが付加したアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンが付加したアルキルエーテル、ポリオキシエチレンが付加した高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンが付加したソルビタン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンが付加したトリスチリルフェニルエーテル等の非イオン性界面活性剤、ポリオキシエチレンが付加したアルキルフェニルエーテルの硫酸エステル塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、高級アルコールの硫酸エステル塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、ポリカルボン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩のホルムアルデヒド縮合物、イソブチレン-無水マレイン酸の共重合体等を用いることができる。

得られた水和剤、乳剤、懸濁剤、フロアブル剤等の液体製剤の場合には水で所定の濃度に希釈して懸濁液あるいは乳濁液として、粉剤、粒剤等の固体制剤の場合にはそのままの形で使用することができる。

前記いずれの製剤においても、有効成分である本発明化合物(1)の該組成物

中における含有量は、好ましくは0.01～90重量%、より好ましくは0.05～85重量%である。

(農園芸用殺菌剤)

本発明化合物は、広範囲の種類糸状菌、例えば、藻菌類 (*Oomycetes*)、子のう(嚢)菌類 (*Ascomycetes*)、不完全菌類 (*Deuteromycetes*)、担子菌類 (*Basidiomycetes*) に属する菌に対し優れた殺菌力を有する。本発明化合物を有効成分とする組成物は、花卉、芝、牧草を含む農園芸作物の栽培に際し発生する種々の病害の防除に、種子処理、茎葉散布、土壌施用又は水面施用等により使用することができる。

例えば、

イネ	いもち病	(<i>Pyricularia oryzae</i>)
	紋枯病	(<i>Rhizoctonia solani</i>)
	馬鹿苗病	(<i>Gibberella fujikuroi</i>)
	ごま葉枯病	(<i>Cochliobolus miyabeanus</i>)
オオムギ	裸黒穂病	(<i>Ustilago nuda</i>)
コムギ	赤かび病	(<i>Gibberella zeae</i>)
	赤さび病	(<i>Puccinia recondita</i>)
	眼紋病	(<i>Pseudocercospora herpotrichoides</i>)
	ふ枯病	(<i>Leptosphaeria nodorum</i>)
	うどんこ病	(<i>Erysiphe gaminis</i> f. sp. <i>tritici</i>)
	紅色雪腐病	(<i>Monographella nivalis</i>)
ジャガイモ	疫病	(<i>Phytophthora infestans</i>)
ラッカセイ	褐斑病	(<i>Mycosphaerella arachidis</i>)
テンサイ	褐斑病	(<i>Cercospora beticola</i>)
インゲン	灰色かび病	(<i>Botritis cinerea</i>)
キュウリ	うどんこ病	(<i>Sphaerotheca fuliginea</i>)
	菌核病	(<i>Sclerotinia sclerotiorum</i>)
	灰色かび病	(<i>Botrytis cinerea</i>)
	べと病	(<i>Pseudoperonospora cubensis</i>)

トマト	葉かび病	(<u>Cladosporium fulvum</u>)
	疫病	(<u>Phytophthora infestans</u>)
ナス	黒枯病	(<u>Corynespora melongenae</u>)
タマネギ	灰色腐敗病	(<u>Botrytis allii</u>)
イチゴ	うどんこ病	(<u>Sphaerotheca humuli</u>)
リンゴ	うどんこ病	(<u>Podosphaera leucotricha</u>)
	黒星病	(<u>Venturia inaequalis</u>)
	モニリア病	(<u>Monilinia mali</u>)
カキ	炭そ病	(<u>Gloeosporium kaki</u>)
モモ	灰星病	(<u>Monilinia fructicola</u>)
ブドウ	うどんこ病	(<u>Uncinula necator</u>)
	べと病	(<u>Plasmopara viticola</u>)
ナシ	赤星病	(<u>Gymnosporangium asiaticum</u>)
	黒斑病	(<u>Alternaria kikuchiana</u>)
チャ	輪斑病	(<u>Pestalotia theae</u>)
	炭そ病	(<u>Colletotrichum theae-sinensis</u>)
カンキツ	そうか病	(<u>Elisinoe fawcetti</u>)
	青かび病	(<u>Penicillium italicum</u>)
西洋シバ	雪腐大粒菌核病	(<u>Sclerotinia borealis</u>)

等の防除に使用することができる。

また、近年種々の病原菌においてベンズイミダゾール剤やジカルボキシイミド剤等に対する耐性が発達し、それら薬剤の効力不足を生じており、耐性の病原菌にも有効な薬剤が望まれている。本発明化合物は感受性のみならず、ベンズイミダゾール剤、ジカルボキシイミド剤に耐性の病原菌にも優れた殺菌効果を有する薬剤である。また、本発明化合物は、一般にアクリル酸系化合物の防除効果が劣る灰色かび病にたいし、優れた防除効果を示す。

適用がより好ましい病害としては、テンサイの褐斑病、コムギのうどんこ病、イネのいもち病、リンゴ黒星病、インゲンの灰色かび病、キュウリの灰色かび病、ラッカセイの褐斑病、トマトの疫病、ブドウべと病等が挙げられる。

(殺虫・殺ダニ剤)

また、本発明化合物は、農業上の有害生物、衛生害虫、貯穀害虫、衣類害虫、家屋害虫等の防除に使用でき、殺成虫、殺若虫、殺幼虫、殺卵作用を有する。その代表例として、下記のもものが挙げられる。

鱗翅目害虫、例えば、ハスモンヨトウ、ヨトウガ、タマナヤガ、アオムシ、タマナギンウワバ、コナガ、チャノコカクモンハマキ、チャハマキ、モモシンクイガ、ナシヒメシンクイ、ミカンハモグリガ、チャノホソガ、キンモンホソガ、マイマイガ、チャドクガ、ニカメイガ、コブノメイガ、ヨーロッパアンコーンボラー、アメリカシロヒトリ、スジマダラメイガ、ヘリオティス属、ヘリコベルパ属、アグロティス属、イガ、コドリング、ワタアカミムシ等。

半翅目害虫、例えば、モモアカアブラムシ、ワタアブラムシ、ニセダイコンアブラムシ、ムギクビレアブラムシ、ホソヘリカメムシ、アオクサカメムシ、ヤノネカイガラムシ、クワコナカイガラムシ、オンシツコナジラミ、タバココナジラミ、ナシキジラミ、ナシグンバイムシ、トビイロウンカ、ヒメトビウンカ、セジロウンカ、ツマグロヨコバイ等。

鞘翅目害虫、例えば、キスジノミムシ、ウリハムシ、コロラドハムシ、イネミズゾウムシ、コクゾウムシ、アズキゾウムシ、マメコガネ、ヒメコガネ、ジアプロティカ属、タバコシバンムシ、ヒラタキクイムシ、マツノマダラカミキリ、ゴマダラカミキリ、アグリオティス属、ニジュウヤホシテントウ、コクヌスト、ワタミゾウムシ等。

双翅目害虫、例えば、イエバエ、オオクロバエ、センチクバエ、ウリミバエ、ミカンコミバエ、タネバエ、イネハモグリバエ、キイロショウジョウバエ、サシバエ、コガタアカイエカ、ネッタイシマカ、シナハマダラカ等。

総翅目害虫、例えば、ミナミキイロアザミウマ、チャノキイロアザミウマ等。

膜翅目害虫、例えば、イエヒメアリ、キイロスズメバチ、カブラハバチ等。

直翅目害虫、例えば、チャバネゴキブリ、ワモンゴキブリ、クロゴキブリ、トノサマバッタ等。

等翅目害虫、例えば、イエシロアリ、ヤマトシロアリ等。

隠翅目害虫、例えば、ヒトノミ等、シラミ目害虫、例えば、ヒトジラミ等、ダニ類、例えば、ナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハダニ、リンゴハダニ、ミカンサビダニ、リンゴサビダニ、チャノホコリダニ、ブレビパルパス属、エオテトラニカス属、ロビンネダニ、ケナガコナダニ、コナヒョウヒダニ、オウシマダニ、フタトゲチマダニ等。

植物寄生性線虫類、例えば、サツマイモネコブセンチュウ、ネグサレセンチュウ、ダイズシストセンチュウ、イネシンガレセンチュウ、マツノザイセンチュウ等。

また、近年、コナガ、ウンカ、ヨコバイ、アブラムシ等多くの害虫やハダニ類において有機リン剤、カーバメート剤や殺ダニ剤に対する抵抗性が発達し、それら薬剤の効力不足問題を生じており、抵抗性系統の害虫やダニにも有効な薬剤が望まれている。本発明化合物は感受性系統のみならず、有機リン剤、カーバメート剤又はピレスロイド剤抵抗性系統の害虫や殺ダニ剤抵抗性系統のダニにも優れた殺虫殺ダニ効果を有する薬剤である。

また、本発明化合物は薬害が少なく、魚毒、温血動物への毒性が低く、安全性の高い薬剤である。

さらに、本発明化合物は、トリコフィトンメンタグロフィテス (*Trichophyton mentagrophytes*) 等の人体寄生性真菌類に対して優れた生育阻止効果を有しており、医療用抗真菌剤として使用することもできる。

また、本発明化合物は、マラリア原虫 (*Plasmodium*) にたいして抗原虫活性を有しており、抗マラリア薬として使用することもできる。

さらにまた、本発明化合物は、水棲生物が船底、魚網等の水中接触物に付着するのを防止するための防汚剤として使用することもできる。

また、本発明化合物を塗料や繊維等に混入させることで、壁や浴槽、あるいは靴や衣服の防菌、防黴剤として使用することもできる。

本発明化合物を農園芸用殺菌剤、殺虫剤又は殺ダニ剤として用いる場合、単独でも十分な効力を発揮するが、各種の殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤又は共力剤の1種類以上と混合して使用することもできる。

本発明化合物と混合して使用できる、殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、植物成長調整剤としては、以下のようなものが挙げられる。

殺菌剤：

キャプタン、フォルペット、チウラム、ジラム、ジネブ、マンネブ、マンコゼブ、プロピネブ、ポリカーバメート、クロロタロニル、キントーゼン、キャプタホル、イプロジオン、プロサイミドン、ビンクロゾリン、フルオロイミド、サイモキサニル、メプロニル、フルトラニル、ペンシクロン、オキシカルボキシニル、ホセチルアルミニウム、プロパモカルブ、トリアジメホン、トリアジメノール、プロピコナゾール、ジクロブトラゾール、ビテルタノール、ヘキサコナゾール、マイクロブタニル、フルシラゾール、エタコナゾール、フルオトリマゾール、フルトリアフェン、ベンコナゾール、ジニコナゾール、サイプロコナゾール、フェナリモール、トリフルミゾール、プロクロラズ、イマザリル、ペフラゾエート、トリデモルフ、フェンプロピモルフ、トリホリン、ブチオベート、ピリフェノックス、アニラジン、ポリオキシニル、メタラキシル、オキサジキシル、フララキシル、イソプロチオラン、プロベナゾール、ピロールニトリン、ブラストサイジンS、カスガマイシン、バリダマイシン、硫酸ジヒドロストレプトマイシン、ベノミル、カルベンダジム、チオファネートメチル、ヒメキサゾール、塩基性塩化銅、塩基性硫酸銅、フェンチンアセテート、水酸化トリフェニル錫、ジエトフェンカルブ、メタスルホカルブ、キノメチオナート、ビナパクリル、レシチン、重曹、ジチアノン、ジノカップ、フェナミノスルフ、ジクロメジン、グアザチン、ドジン、IBP、エディフェンホス、メパニピリム、フェルムゾン、トリクラミド、メタスルホカルブ、フルアジナム、エトキノラック、ジメトモルフ、ピロキロン、テクロフタラム、フサライド、フェナジンオキシド、チアベンダゾール、トリシクラゾール、ビンクロゾリン、シモキサニル、シクロブタニル、グアザチン、プロパモカルブ塩酸塩、オキシソリニック酸、フェナモリル、シプロコナゾール、エポキシコナゾール、メトコナゾール、ヒドロキシイソオキサゾール、イミノクタジン酢酸塩等。

殺虫・殺ダニ剤：

有機燐及びカーバメート系殺虫剤：

フェンチオン, フェニトロチオン, ダイアジノン, クロルピリホス, E S P, バミドチオン, フェントエート, ジメトエート, ホルモチオン, マラソン, トリクロルホン, チオメトン, ホスメット, ジクロルボス, アセフェート, E P B P, メチルパラチオン, オキシジメトンメチル, エチオン, サリチオン, シアノホス, イソキサチオン, ピリダフェンチオン, ホサロン, メチダチオン, スルプロホス, クロルフェンビンホス, テトラクロルビンホス, ジメチルビンホス, プロパホス, イソフェンホス, エチルチオメトン, プロフェノホス, ピラクロホス, モノクロトホス, アジンホスメチル, アルディカルブ, メソミル, チオジカルブ, カルボフラン, カルボスルファン, ベンフラカルブ, フラチオカルブ, プロボキスル, B P M C, M T M C, M I P C, カルバリル, ピリミカーブ, エチオフェンカルブ, フェノキシカルブ, E D D P 等。

ピレスロイド系殺虫剤 :

ペルメトリン, シペルメトリン, デルタメスリン, フェンバレレート, フェンプロパトリン, ピレトリン, アレスリン, テトラメスリン, レスメトリン, ジメスリン, プロパスリン, フェノトリン, プロトリン, フルバリネート, シフルトリン, シハロトリン, フルシトリネート, エトフェンプロクス, シクロプロトリン, トロラメトリン, シラフルオフエン, プロフェンプロクス, アクリナトリン等。

ベンゾイルウレア系その他の殺虫剤 :

ジフルベンズロン, クロルフルアズロン, ヘキサフルムロン, トリフルムロン, テトラベンズロン, フルフェノクスロン, フルシクロクスロン, ブプロフェジン, ピリプロキシフェン, メトプレン, ベンゾエピン, ジアフェンチウロン, アセタミプリド, イミダクロプリド, ニテンピラム, フィプロニル, カルタップ, チオシクラム, ベンスルタップ, 硫酸ニコチン, ロテノン, メタアルデヒド, 機械油, B T や昆虫病原ウイルス等の微生物農薬等。

殺線虫剤 :

フェナミホス, ホスチアゼート等。

殺ダニ剤 :

クロルベンジレート, フェニソプロモレート, ジコホル, アミトラズ, B P P

S, ベンゾメート, ヘキシチアゾクス, 酸化フェンブタスズ, ポリナクチン, キノメチオネート, CPCBS, テトラジホン, アベルメクチン, ミルベメクチン, クロフェンテジン, シヘキサチン, ピリダベン, フェンピロキシメート, テブフェンピラド, ピリミジフェン, フェノチオカルブ, ジエノクロル等。

植物生長調節剤:

ジベレリン類 (例えばジベレリンA₃, ジベレリンA₄, ジベレリンA₇), IAA, NAA等。

(抗真菌剤)

本発明の医療用抗真菌剤は、前記一般式(1)の化合物またはその医薬的に許容される複合体の純粋な形または類似の有用性を有する薬剤の投与様式として許容されている任意の様式で投与することができる。

一般的に、意図された投与様式に応じて、医薬として許容される抗真菌剤組成物は、一般式(1)の化合物の1種もしくは2種以上またはそれらの医薬的に許容される複合体を、適当な医薬用賦形剤、結合剤、潤滑剤、崩壊剤、被覆剤、乳化剤、分散剤、溶媒、安定化剤、吸着増強剤および/または軟膏基剤を混合することにより、特定の用法および所望の目的のために、適切に製剤化された製薬学的混合物で投与される。該混合物は、経口的、注射、直腸的または局所的な投与のために使用することができる。

経口投与のための製薬学的剤型は、顆粒、錠剤、糖衣錠、カプセル、丸剤、懸濁液または乳濁液であってよい。例えば、静脈内的、筋肉内的、経皮的な非経口的注射のためには、該製剤は、例えば塩類、またはグルコースなどを溶液が等張となるように加えた滅菌水溶液の形態で使用されうる。本発明の抗真菌剤は、座薬または膣挿入座薬の形態でも投与でき、またそれらは、例えば、液剤、錠剤、座剤、乳化剤、軟膏、クリーム、ローション、パップ剤などに調製して局所投与してもよい。必要に応じてこれらの製剤中に、助剤、安定剤、湿潤剤または乳化剤、緩衝剤およびその他の通常使用される添加剤を含むこともできる。化合物の投与量は、症状、年齢、体重、投与形態などにより異なるが、全身的治療の場合には、通常成人1日当たり体重1kg当たり0.05~100mg、好ましくは

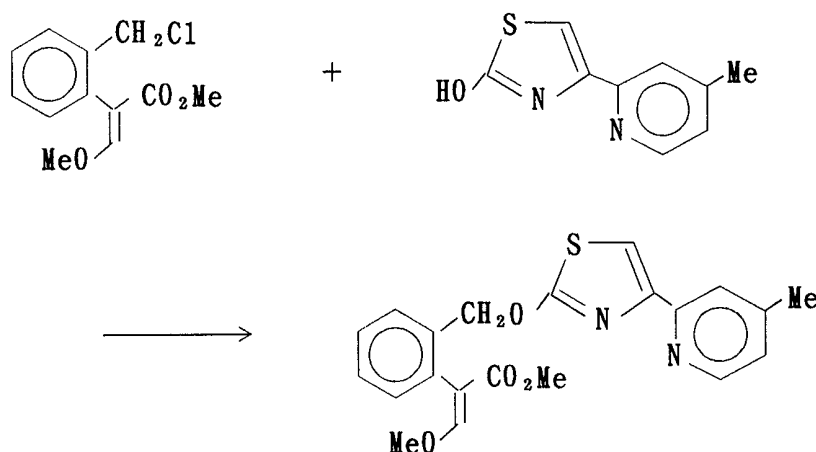
0.5～50mg 1回または数回に分けて、投与することができる。局所的治療における有効成分の濃度は0.001～5%、好ましくは0.1～2%の範囲である。

この様な剤型の実際の製造方法は、通常の方法、例えば、Remington's Pharmaceutical Sciences, 18版, Mack Publishing Company, Easton, Pennsylvania, 1990に従って製造される。

次に実施例を挙げ、本発明化合物を更に詳細に説明する。

実施例 1

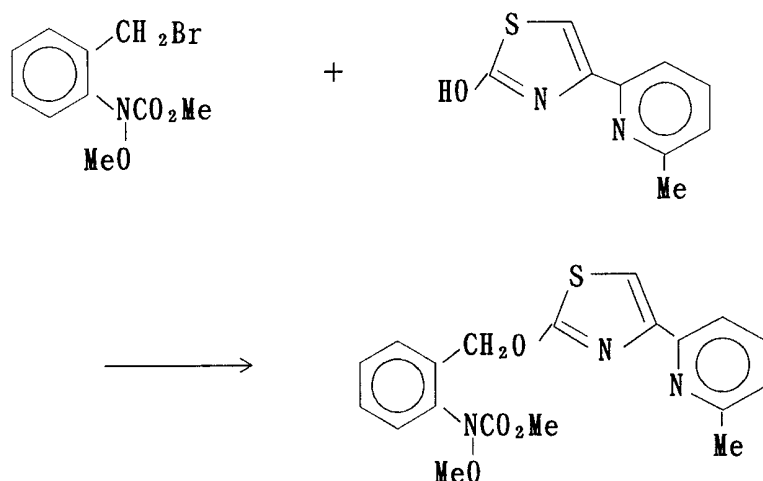
E-3-メトキシ-2-{2-[4-(4-メチル-2-ピリジル)チアゾール-2-イルオキシメチル]フェニル}アクリル酸メチルエステル(化合物番号4)の製造



4-(4-メチル-2-ピリジル)-2-ヒドロキシチアゾール0.10gをDMF 5mlに溶解し、炭酸カリウム0.09g、E-3-メトキシ-2-{2-(クロロメチル)フェニル}アクリル酸メチルエステル0.13gを室温で加え、90℃で3時間攪拌した。放冷後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮した。粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ベンゼン:酢酸エチル=4;1)で精製し、目的物0.06gを得た。収率28%、mp. 127-129℃

実施例 2

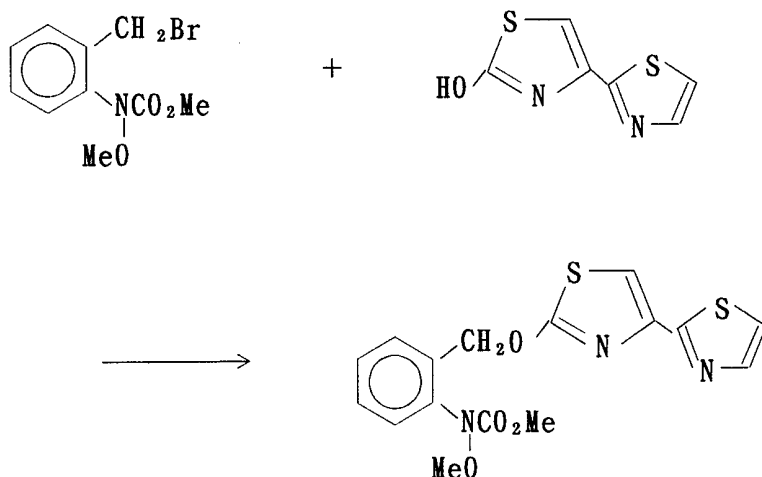
メチルN-メトキシ-N-{2-[4-(6-メチル-2-ピリジル)チアゾール-2-イルオキシメチル]フェニル}カーバメート(化合物番号75)の製造



4-(6-メチル-2-ピリジル)-2-ヒドロキシチアゾール 0.40 g、
 メチルN-{2-(プロモメチル)フェニル}-N-メトキシカーバメート 0.
 48 gをDMF 10 mlに溶解し、炭酸カリウム 0.29 gを加え、90℃で3
 時間攪拌した。放冷後、飽和食塩水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽
 和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮した。得られた粗
 生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ベンゼン：酢酸エチル=10：
 1)で精製し、目的物 0.46 gを得た。収率 68%： $n_D^{20} 1.5919$

実施例 3

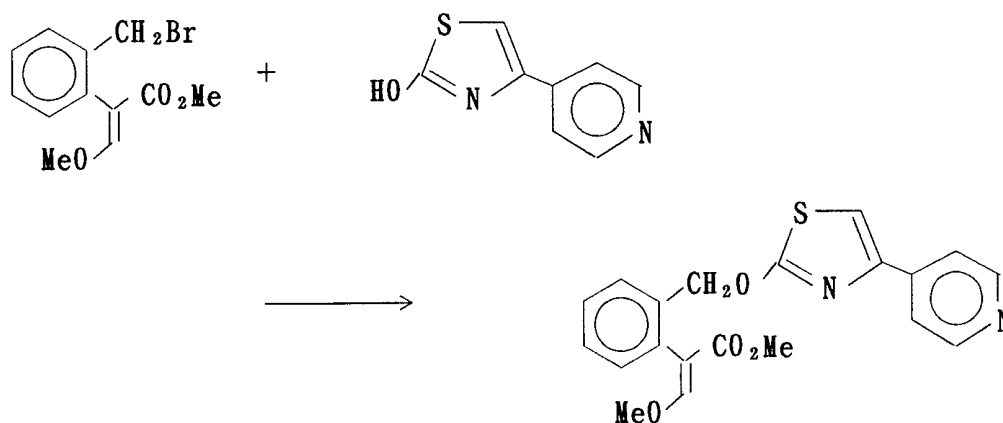
メチルN-メトキシ-N-{2-[4-(2-チアゾリル)チアゾール-2-
 イルオキシメチル]フェニル}カーバメート(化合物番号101)の製造



4 - (2 - チアゾリル) - 2 - ヒドロキシチアゾール 0.40 g、メチルN - {2 - (ブロモメチル) フェニル} - N - メトキシカーバメート 0.59 g を DMF 11 ml に溶解し、炭酸カリウム 0.36 g を加え、90 °C で 2 時間攪拌した。放冷後、飽和食塩水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮した。得られた粗生成物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）で精製し、目的物 0.44 g を得た。収率 54% : $n_D^{18.0} 1.5724$

実施例 4

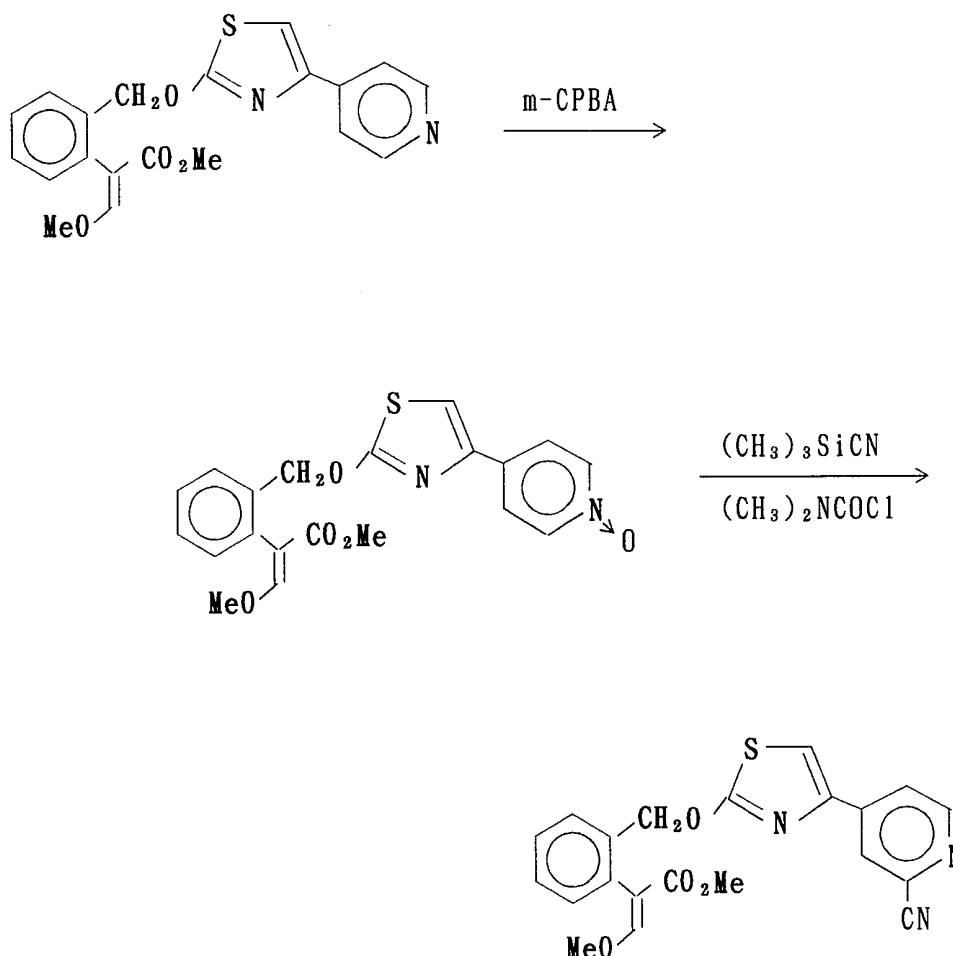
E - 3 - メトキシ - 2 - {2 - [4 - (4 - ピリジル) チアゾール - 2 - イルオキシメチル] フェニル} アクリル酸メチルエステル（化合物番号 31）の製造



4-(4-ピリジル)チアゾール 2.0 g を DMF 20 ml に溶解し、炭酸カリウム 1.86 g、E-3-メトキシ-2-(2-ブロモメチルフェニル)アクリル酸メチルエステル 3.2 g を室温に加え、90℃で2時間攪拌した。放冷後、水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム：酢酸エチル=3：1)で精製し、目的物 0.88 g を得た。収率 21% NMR データを第 3 表に示した。

実施例 5

E-3-メトキシ-2-{2-[4-(2-シアノ-4-ピリジル)チアゾール-2-イルオキシメチル]フェニル}アクリル酸メチルエステル(化合物番号 53)の製造



実施例 4 で得られた E-3-メトキシ-2-{2-[4-(4-ピリジル)チアゾール-2-イルオキシメチル]フェニル}アクリル酸メチルエステルをクロロホルム 20 ml に溶解し、0℃で 70%メタクロロ過安息香酸 (m-CPBA) (含水) を 0.60 g 加え、室温で一昼夜攪拌した。反応液を少量の飽和炭酸ナトリウム水溶液で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧濃縮して対応する N-オキサイドを 0.75 g 得た。(収率 82%)

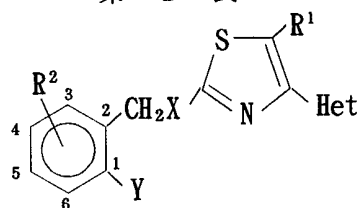
得られた N-オキサイド 0.7 g を塩化メチレン 20 ml に溶解し、トリメチルシリルシアニド 0.21 g、ジメチルカルバモイルクロリド 0.21 g を加え、室温で一昼夜攪拌した。反応液に炭酸ナトリウム水溶液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥後、減圧濃縮した。得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム：酢酸エチル=3：1)で精製し、目的物 0.44 g を得た。収率 61%

m. p. 122-123℃

上記実施例を含め、本発明化合物の代表例を第 2 表に示す。また、本発明化合物の ¹H-NMR データを第 3 表にまとめて示す。

尚、表中の略号は、第 1 表と同じ意味を表し、Y の欄における (a), (b) および (c) は前記と同じ意味を表し、(a) E, (a) Z はそれぞれ E 体および Z 体を表す。

第 2 表



化合物 番号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
1	2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.8} 1.6005
2	6-Me-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{19.8} 1.5858
3	5-Me-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.0} 1.5990
4	4-Me-2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 127-129 °C
5	3-Me-2-PY	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-1
6	6-Cl-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.4} 1.6035
7	5-Cl-2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 80-81 °C
8	4-Cl-2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 103-105 °C
9	3-Cl-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{18.0} 1.5640
10	6-Br-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.9} 1.5989
11	5-Br-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.8} 1.5950
12	4-Br-2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 122-124 °C
13	6-Et-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.2} 1.5901
14	5-Et-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.4} 1.6040
15	5-nPr-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{19.9} 1.5810
16	6-OMe-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.8} 1.5860
17	5-OMe-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.8} 1.5929
18	4-OMe-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.1} 1.5789
19	4-OEt-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.5} 1.5919

第 2 表 (つづき)

化合物 番号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
20	5-OCH ₂ Ph-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.0} 1.5821
21	5-CF ₃ -2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 85-86°C
22	4-CF ₃ -2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.9} 1.5651
23	6-CN-2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 126-128°C
24	5-C1-6-Me-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.7} 1.6058
25	4-C1-6-Me-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{24.0} 1.6092
26	5,6-Me ₂ -2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.0} 1.6011
27	5,6-C1 ₂ -2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 107-108°C
28	6-C1-5-CF ₃ -2-PY	H	H	0	(a)E	amorphous NMR-2
29	3-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{16.1} 1.5941
30	6-C1-3-PY	H	H	0	(a)E	mp. 111-113°C
31	4-PY	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-3
32	2-Me-4-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.4} 1.5925
33	2-C1-4-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.3} 1.6019
34	3,5-C1 ₂ -2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 124-126°C
35	3,5-Me ₂ -2-PY	H	H	0	(a)E	mp. 142-144°C
36	4,6-Me ₂ -2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{27.6} 1.5815
37	3-CF ₃ -2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.9} 1.5605
38	5-cPr-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.6} 1.5519
39	5-cPen-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{19.7} 1.5705
40	2-C1-3-PY	H	H	0	(a)E	mp. 80-81°C
41	6-CH=CH ₂ -2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.2} 1.5671
42	5-OH-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{18.2} 1.5720

第 2 表 (つづき)

化合物 番号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
43	5-nBu-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{20.1} 1.5900
44	6-Ph-2-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{15.8} 1.6241
45	6-CN-3-PY	H	H	0	(a)E	mp. 149-150°C
46	2-CN-3-PY	H	H	0	(a)E	mp. 123-124°C
47	6-Me-3-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{23.8} 1.5872
48	6-OEt-3-PY	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-4
49	5,6-Cl ₂ -3-PY	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-5
50	6-SMe-3-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.5} 1.5985
51	6-OiPr-3-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{19.1} 1.5765
52	6-SO ₂ Me-3-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{22.1} 1.5911
53	2-CN-4-PY	H	H	0	(a)E	mp. 122-123°C
54	2,6-Cl ₂ -4-PY	H	H	0	(a)E	mp. 133-134°C
55	2-SMe-4-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{15.8} 1.6125
56	2-Cl-6-OMe-4-PY	H	H	0	(a)E	n _D ^{21.0} 1.5855
57	2-SO ₂ Me-4-PY	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-6
58	2-Cl-6-SMe-4-PY	H	H	0	(a)E	mp. 114-115°C
59	2-Cl-6-SOMe-4-PY	H	H	0	(a)E	mp. 156-157°C
60	2-Cl-6-SO ₂ Me-4-PY	H	H	0	(a)E	amorphous NMR-7
61	2-CN-6-Me-4-PY	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-8
62	6-Me-2-PY	Br	H	0	(a)E	n _D ^{17.4} 1.5714
63	6-Me-2-PY	H	H	S	(a)E	n _D ^{21.0} 1.6265
64	2-TZ	H	H	0	(a)E	mp. 93-94°C
65	5-Me-2-TZ	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-9

第 2 表 (つづき)

化合物 番号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
66	4-Me-2-TZ	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-10
67	4,5-Cl ₂ -2-TZ	Cl	H	0	(a)E	mp. 83-88°C
68	2,4-Me ₂ -5-TZ	H	H	0	(a)E	mp. 136-137°C
69	2-TE	H	H	0	(a)E	n _D ^{20.4} 1.6138
70	2-FU	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-11
71	4-PM	H	H	0	(a)E	viscous oil NMR-12
72	2-PM	H	H	0	(a)E	amorphous NMR-13
73	2-PZ	H	H	0	(a)E	mp. 113-114°C
74	2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{20.0} 1.5912
75	6-Me-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{19.8} 1.5919
76	4-Me-2-PY	H	H	0	(b)	mp. 87-88°C
77	6-Cl-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{17.6} 1.5979
78	5-Cl-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{21.5} 1.6010
79	6-Br-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{23.5} 1.5940
80	5-Br-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{21.3} 1.6147
81	4-Br-2-PY	H	H	0	(b)	mp. 103-105°C
82	6-Et-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{21.3} 1.5800
83	5-Et-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{22.8} 1.5903
84	4-OEt-2-PY	H	H	0	(b)	viscous oil NMR-14
85	5-CF ₃ -2-PY	H	H	0	(b)	mp. 87-88°C
86	5-Cl-6-Me-2-PY	H	H	0	(b)	mp. 75-78°C
87	4-Cl-6-Me-2-PY	H	H	0	(b)	mp. 54-55°C
88	5,6-Me ₂ -2-PY	H	H	0	(b)	mp. 74-75°C
89	5,6-Cl ₂ -2-PY	H	H	0	(b)	mp. 67-68°C

第 2 表 (つづき)

化合物 番 号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
90	3-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{19. 3} 1.5903
91	4-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{19. 1} 1.6040
92	2-C1-4-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{19. 1} 1.6025
93	6-Ph-2-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{14. 4} 1.6060
94	6-OEt-3-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{18. 3} 1.5720
95	6-CN-3-PY	H	H	0	(b)	mp. 59-60°C
96	2-CN-3-PY	H	H	0	(b)	mp. 45-46°C
97	2-C1-3-PY	H	H	0	(b)	n _D ^{19. 1} 1.5863
98	2-CN-4-PY	H	H	0	(b)	mp. 54-55°C
99	2,6-C1 ₂ -4-PY	H	H	0	(b)	mp. 163-165°C
100	6-Me-2-PY	H	6-Me	0	(b)	amorphous NMR-15
101	2-TZ	H	H	0	(b)	n _D ^{18. 0} 1.5724
102	2-TZ	C1	H	0	(b)	n _D ^{19. 9} 1.6027
103	2,4-Me ₂ -5-TZ	H	H	0	(b)	n _D ^{18. 5} 1.5840
104	4-PM	H	H	0	(b)	n _D ^{17. 5} 1.5880
105	2-PM	H	H	0	(b)	amorphous NMR-16
106	2-PZ	H	H	0	(b)	n _D ^{20. 5} 1.5935
107	6-Me-2-PY	H	H	0	(C)	n _D ^{17. 5} 1.5741
108	5-Me-2-PY	H	H	0	(C)	n _D ^{20. 4} 1.5720
109	6-C1-2-PY	H	H	0	(C)	n _D ^{19. 3} 1.5790
110	4-PY	H	H	0	(C)	amorphous NMR-17
111	2-Me-4-PY	H	H	0	(C)	n _D ^{21. 4} 1.5619
112	4,6-Me ₂ -2-PY	H	H	0	(C)	n _D ^{20. 0} 1.5581
113	5-cPr-2-PY	H	H	0	(C)	n _D ^{19. 3} 1.5581

第 2 表 (つづき)

化合物 番 号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
114	2-CN-4-PY	H	H	O	(b)	mp. 113-115°C
115	6-Me-2-PY	H	6-Me	O	(b)	amorphous NMR-18
116	3,5-Me ₂ -2-PY	H	H	O	(b)	amorphous NMR-19
117	6-Me-2-PY	H	H	S	(b)	n _D ^{22. 2} 1.5985
118	2-TZ	H	H	O	(b)	n _D ^{20. 2} 1.5852
119	6-Me-2-PY	H	H	SO	(a)E	amorphous NMR-20
120	6-Me-2-PY	H	H	SO ₂	(a)E	amorphous NMR-21
121	5-CF ₃ -2-PY	H	H	S	(a)E	n _D ^{22. 0} 1.5912
122	5-C1-6-Me-2-PY	H	H	S	(a)E	n _D ^{21. 7} 1.6110
123	4-PY	H	H	S	(a)E	mp. 93- 95°C
124	6-Ph-2-PY	H	H	S	(a)E	n _D ^{21. 9} 1.6245
125	6-C1-5-CF ₃ -2-PY	H	H	S	(a)E	n _D ^{22. 1} 1.5751
126	2-TZ	H	H	S	(a)E	n _D ^{21. 7} 1.6221
127	5-TZ	H	H	O	(a)E	amorphous NMR-22
128	4,5-Me ₂ -2-TZ	H	H	O	(a)E	n _D ^{19. 8} 1.5940
129	2-Me-4-TZ	H	H	O	(a)E	n _D ^{19. 1} 1.6036
130	2,4-Me ₂ -5-TZ	H	H	S	(a)E	n _D ^{21. 8} 1.6260
131	5-Me-2-FU	H	H	O	(a)E	mp. 151-155°C
132	6-Me-2-PY	Br	H	O	(b)	n _D ^{20. 2} 1.5882
133	6-Ph-2-PY	H	H	S	(b)	n _D ^{22. 1} 1.6255
134	5-TZ	H	H	O	(b)	n _D ^{20. 6} 1.5938
135	2-Me-4-TZ	H	H	O	(b)	mp. 85- 87°C
136	2-TZ	H	6-Me	O	(b)	n _D ^{20. 5} 1.5865
137	2,4-Me ₂ -5-TZ	H	6-Me	O	(b)	mp. 82- 84°C
138	2-FU	H	6-Me	O	(b)	n _D ^{20. 6} 1.5679

第 2 表 (つづき)

化合物番号	Het	R ¹	R ²	X	Y	物理恒数
139	2-TE	H	6-Me	0	(b)	n _D ²⁰ . 61.5928
140	5-Me-2-FU	H	H	0	(b)	amorphous NMR-23
141	2,4-Me ₂ -5-TZ	H	H	0	(C)	mp. 100-101°C

第 3 表

化合物番号	¹ H-NMRデータ (CDCl ₃ , δ ppm)
5 NMR-1	2.56(3H, s), 3.67(3H, s), 3.79(3H, s), 5.41(2H, s), 7.1-7.18(2H, m), 7.20(1H, s), 7.3-7.4(2H, m), 7.5-7.6(3H, m), 8.45(1H, dd, J=5.0Hz, 2.0Hz)
28 NMR-2	3.70(3H, s), 3.85(3H, s), 5.45(2H, s), 7.20-7.25(1H, m), 7.35-7.45(2H, m), 7.60(1H, s), 7.68(1H, s), 7.95-8.00(2H, d), 8.02-8.05(2H, d)
31 NMR-3	3.69(3H, s), 3.82(3H, s), 5.44(2H, s), 7.10(1H, s), 7.17-7.23(1H, m), 7.32-7.40(2H, m), 7.55-7.62(2H, m), 7.67(2H, d, J=5.0Hz), 8.62(2H, d, J=5.0Hz),
48 NMR-4	1.42(3H, t), 3.70(3H, s), 3.84(3H, s), 4.40(2H, q), 5.42(2H, s), 6.63-6.68(2H, m), 7.19-7.24(1H, m), 7.35-7.41(2H, m), 7.58-7.62(2H, m), 7.96(1H, dd), 8.62(1H, d)
49 NMR-5	3.70(3H, s), 3.84(3H, s), 5.45(2H, s), 6.99(1H, s), 7.20-7.64(4H, m), 8.20(1H, d), 8.71(1H, d), 7.94(1H, d), 8.45(1H, s), 8.72(1H, d)
57 NMR-6	3.27(3H, s), 3.69(3H, s), 3.84(3H, s), 5.46(2H, s), 7.20-7.24(1H, m), 7.28(1H, s), 7.36-7.42(2H, m), 7.52(1H, s), 7.94(1H, d), 8.45(1H, s), 8.72(1H, d)
60 NMR-7	3.28(3H, s), 3.70(3H, s), 3.85(3H, s), 5.46(2H, s), 7.20-7.25(1H, m), 7.30(1H, s), 7.35-7.42(2H, m), 7.55-7.59(1H, m), 7.62(1H, s), 7.96(1H, s), 8.33(1H, s)
61 NMR-8	2.65(3H, s), 3.70(3H, s), 3.84(3H, s), 5.45(2H, s), 7.16(1H, s), 7.20-7.25(1H, m), 7.36-7.42(2H, m), 7.55-7.60(1H, m), 7.61(1H, s), 7.72(1H, s), 7.82(1H, s)
65 NMR-9	2.50(3H, s), 3.71(3H, s), 3.84(3H, s), 5.42(2H, s), 7.18-7.27(2H, m), 7.33-7.41(2H, m), 7.46(1H, s), 7.56-7.62(2H, m)

第 3 表 (つづき)

化合物番号	$^1\text{H-NMR}$ データ (CDCl ₃ , δ ppm)
6 6 NMR-10	2.49(3H, s), 3.70(3H, s), 3.83(3H, s), 5.42(2H, s), 6.68(1H, s), 7.19-7.23(1H, m), 7.33(1H, s), 7.35-7.41(2H, m), 7.56-7.62(2H, m)
7 0 NMR-11	3.70(3H, s), 3.82(3H, s), 5.41(2H, s), 6.47(1H, q), 6.69(1H, d), 6.81(1H, s), 7.19-7.24(1H, m), 7.35-7.42(3H, m), 7.56-7.61(2H, m)
7 1 NMR-12	3.71(3H, s), 3.83(3H, s), 5.44(2H, s), 7.19-7.24(1H, m), 7.38-7.41(2H, m), 7.57-7.61(1H, m), 7.62(1H, s), 7.75(1H, s), 7.90(1H, d), 8.79(1H, d), 9.17(1H, s)
7 2 NMR-13	3.71(3H, s), 3.88(3H, s), 5.56(2H, s), 6.91-6.95(1H, m), 7.07(1H, t), 7.10-7.14(2H, m), 7.18(1H, s), 7.19-7.24(1H, m), 7.37(1H, s), 8.55(2H, d)
8 4 NMR-14	1.45(3H, t), 3.74(3H, s), 3.80(3H, s), 4.13(2H, q), 5.69(2H, s), 6.68(1H, d), 7.34-7.42(3H, m), 7.46-7.53(2H, m), 7.60-7.66(1H, m), 8.36(1H, d)
1 0 0 NMR-15	2.33(3H, s), 2.59(3H, s), 3.80(6H, bs), 5.60(2H, q), 7.06(1H, d), 7.26-7.35(2H, m), 7.46-7.50(2H, m), 7.62(1H, t), 7.78(1H, d)
1 0 5 NMR-16	3.56(3H, s), 3.57(3H, s), 5.54(2H, s), 6.90-6.98(1H, m), 7.10(1H, t), 7.15-7.32(3H, m), 7.34(1H, s), 8.60(2H, d)
1 1 0 NMR-17	1.23(3H, t), 3.80(3H, s), 3.99(2H, q), 5.61(2H, s), 7.12(1H, s), 7.37-7.43(3H, m), 7.58-7.67(3H, m), 8.61(1H, d)
1 1 5 NMR-18	1.24(3H, t), 2.34(3H, s), 2.58(3H, s), 3.78(3H, bs), 4.04(2H, q), 5.61(2H, q), 7.06(1H, d), 7.26-7.35(2H, m), 7.46-7.51(2H, m), 7.63(1H, t), 7.78(1H, d)
1 1 6 NMR-19	1.18(3H, t), 2.32(3H, s), 2.48(3H, s), 3.78(3H, s), 3.97(2H, q), 5.57(2H, s), 7.16(1H, s), 7.28-7.44(4H, m), 7.60(1H, m), 8.28(1H, s)
1 1 9 NMR-20	2.60(3H, s), 3.70(3H, s), 3.84(3H, s), 4.23(1H, d), 4.48(1H, d), 7.14(1H, d), 7.20-7.39(4H, m), 7.65(1H, s), 7.67(1H, d), 8.34(1H, s)
1 2 0 NMR-21	2.59(3H, s), 3.58(3H, s), 3.73(3H, s), 4.69(2H, s), 7.12-7.37(5H, m), 7.50(1H, s), 7.71(1H, t), 8.00(1H, d), 8.38(1H, s)
1 2 7 NMR-22	3.71(3H, s), 3.83(3H, s), 5.42(2H, s), 6.80(1H, s), 7.21(1H, m), 7.38(2H, m), 7.58(1H, m), 7.61(1H, s), 8.16(1H, s), 8.71(1H, s)
1 4 0 NMR-23	2.25(3H, s), 3.75(3H, s), 3.81(3H, s), 5.14(2H, s), 5.90(1H, d), 6.15(1H, d), 6.38(1H, s), 6.98(1H, m), 7.32(3H, m)

次に、本発明の有害生物防除剤の製剤例を示すが、添加物及び添加割合等は、これら実施例に限定されるべきものではなく、広範囲に変化させることが可能である。以下の製剤実施例中の部は重量部を表す。

実施例 3 水和剤

本発明化合物	40部
珪藻土	53部
高級アルコール硫酸エステル	4部
アルキルナフタレンスルホン酸塩	3部

以上を均一に混合して微細に粉碎すれば、有効成分40%の水和剤を得る。

実施例 4 乳剤

本発明化合物	30部
キシレン	33部
ジメチルホルムアミド	30部
ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル	7部

以上を混合溶解すれば、有効成分30%の乳剤を得る。

実施例 5 粉剤

本発明化合物	10部
タルク	89部
ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル	1部

以上を均一に混合して微細に粉碎すれば、有効成分10%の粉剤を得る。

実施例 6 粒剤

本発明化合物	5部
クレー	73部
ベントナイト	20部
ジオクチルスルホサクシネートナトリウム塩	1部
リン酸ナトリウム	1部

以上をよく粉碎混合し、水を加えてよく練り合せた後、造粒乾燥して有効成分5%の粒剤を得る。

実施例 7 懸濁剤

本発明化合物	10部
リグニンスルホン酸ナトリウム	4部
ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム	1部
キサントガム	0.2部
水	84.8部

以上を混合し、粒度が1ミクロン以下になるまで湿式粉碎すれば、有効成分10%の懸濁剤を得る。

次に、抗真菌剤組成物の実施例を示す。

実施例 8 ワセリン軟膏

本発明化合物	2部
ワセリン	98部

実施例 9 吸水軟膏

本発明化合物	2部
吸水軟膏	98部

実施例 10 液剤 (チンキ)

本発明化合物	1部
メタクリル酸アルキルエステルコポリマー	2部
プロピレングリコール	5部
エタノール	92部

実施例 11 液剤

本発明化合物	1部
ポリエチレングリコール400	99部

実施例 12 軟膏

本発明化合物	2部
--------	----

ポリエチレングリコール 4 0 0	4 9 部
ポリエチレングリコール 4 0 0 0	4 9 部

実施例 1 3 クリーム

本発明化合物	3 部
1, 2 - プロパンジオール	5 部
グリセロールステアレート	5 部
鯨ろう	5 部
イソプロピルミリステート	1 0 部
ポリソルベート	4 部
水	6 8 部

実施例 1 4 注射剤

本発明化合物	2 0 部
適当な緩衝剤	適量

注射剤用の水を加えて 1 0 0 部とする。

適当な方法で滅菌を行い、無菌的に充填する。

実施例 1 5 錠剤

本発明化合物	5 0 部
ラクトース	2 9 部
コーンスターチ	1 0 部
スターチグリコール酸ナトリウム	5 部
ポリビニルピロリドン	3 部
タルク	2 部
ステアリン酸マグネシウム	1 部

実施例 1 6 カプセル剤

本発明化合物	5 0 部
--------	-------

ラクトース	27部
結晶セルロース	15部
軽質無水珪酸	5部
タルク	2部
ステアリン酸マグネシウム	1部

各々、有効成分を20mg含むように適切な硬質ゼラチンカプセル中に充填する。

発明の効果

(試験例：農園芸用殺菌剤)

次に、本発明化合物が各種植物病害防除剤の有効成分として有用であることを試験例で示す。防除効果は、調査時に葉、茎等に出現した病斑や菌叢の生育程度を肉眼観察し、防除効果を求めた。

試験例1 コムギうどんこ病防除試験

素焼きポットで栽培したコムギ幼苗(品種「農林61号」、1.0~1.2葉期)に本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。葉を風乾させた後、コムギうどんこ病菌(Erysiphe graminis f. sp. tritici)の分生胞子を振り払い接種し、22~25℃の温室で7日間生育させ、防除効果を調査した。その結果、以下の化合物が75%以上の優れた防除価を示した。なお、化合物番号は、表中の化合物番号に対応する(以下、同じ)。

化合物番号：1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 36, 37, 38, 39, 40, 41, 43, 44, 47, 48, 51, 53, 54, 56, 63, 64, 65, 66, 71, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 79, 80, 81, 82, 83, 85, 86, 87, 88, 89, 91, 92, 93, 97, 98, 100, 103, 104, 107, 108, 109, 112, 113, 115, 117, 121, 122, 124, 126, 127, 129, 135, 136

試験例2 リンゴ黒星病防除試験

素焼きポットで栽培したリンゴ幼苗（品種「国光」、3～4葉期）に、本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。散布後、室温で自然乾燥し、リンゴ黒星病菌（Venturia inaequalis）の分生胞子を接種し、明暗を12時間毎に繰り返す高湿度の恒温室（20℃）に2週間保持した。葉上の病班出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた結果、以下の化合物が75%以上の優れた防除効果を示した。

化合物番号：1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40, 41, 43, 44, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61, 63, 64, 65, 66, 68, 69, 70, 71, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 79, 80, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 87, 88, 89, 90, 91, 92, 93, 94, 95, 97, 98, 99, 100, 101, 102, 103, 104, 106, 107, 108, 109, 110, 111, 112, 113, 114, 115, 117, 118, 119, 120, 121, 122, 123, 124, 126, 127, 128, 129, 133, 134, 135, 136, 137, 138, 139, 141

試験例3 ブドウベト病防除試験

素焼きポットで栽培したブドウ幼苗（品種「甲斐路」、2葉期）に、本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。散布後、室温で自然乾燥し、ブドウベト病菌（Plasmopara viticola）の遊走子囊懸濁液を噴霧接種し、明暗を12時間毎に繰り返す高湿度の恒温室（20℃）に10日間保持した。葉上の病班出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。その結果、以下の化合物が75%以上の優れた防除効果を示した。

化合物番号：1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 11, 12, 13, 14

, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26
, 27, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38, 39
, 40, 41, 43, 44, 45, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 52
, 53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61, 63, 64, 65
, 66, 68, 69, 70, 71, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 79
, 80, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 87, 88, 89, 90, 91
, 92, 93, 94, 95, 96, 97, 98, 100, 101, 102, 10
3, 104, 106, 107, 108, 109, 110, 111, 112, 11
3, 114, 115, 117, 118, 119, 120, 121, 122, 12
3, 124, 126, 127, 128, 129, 133, 134, 135, 13
6, 137, 138, 139, 141

試験例4 インゲン灰色かび病防除試験

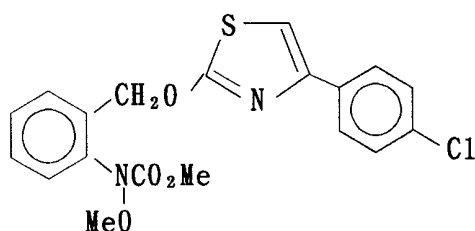
育苗バットで栽培したインゲン（品種「ながうずら」）の花を切除し、本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度に調製した薬液に浸漬した。浸漬後、室温で自然乾燥し、インゲン灰色かび病菌（Botrytis cinerea）を噴霧接種した。接種した花を無処理のインゲン葉に乗せ、明暗を12時間毎に繰り返す高湿度の恒温室（20℃）に7日間保持した。葉上の病斑直径を無処理と比較調査し、防除価を求めた。その結果、以下の化合物が105%の防除価を示した。

化合物番号：2, 3, 11, 14, 17, 47, 49, 58, 59, 61, 63, 71, 74, 76, 77, 80, 88, 89, 90, 91, 95, 96, 98, 100, 102, 103, 104, 128, 135

また、以下の化合物が75%から99%の防除効果を示した。

化合物番号：4, 10, 12, 13, 15, 22, 36, 38, 41, 51, 64, 65, 67, 70, 75, 78, 84, 86, 93, 97, 106, 107, 109, 110, 111, 112, 115, 129, 137, 138

一方、対象に用いたWO93/15046号公報載の下記化合物の防除価は60%であった。



試験例 5 アワヨトウに対する効力試験

前記の薬剤の実施例 3 に示された水和剤の処方に従い、化合物濃度が 1 2 5 p p m になるように水で希釈した。その薬液中にトウモロコシ葉を 3 0 秒間浸漬し、風乾後、アワヨトウ 2 令幼虫が 5 頭入っているシャーレにその葉を入れた。ガラス蓋をして、温度 2 5 ℃、湿度 6 5 % の恒温室内に置き、5 日後に殺虫率を調べた。試験は 2 反復で行った。対照化合物として、クロルジメホルム (1 2 5 p p m) を用いた。その結果、以下の化合物が 8 0 % 以上の優れた殺虫率を示した。一方、対照化合物のクロルジメホルムの殺虫率は 4 0 % であった。

化合物番号：1, 2, 3, 6, 7, 10, 11, 16, 21, 23, 24, 25, 26, 27, 36, 41, 44, 49, 50, 54, 55, 58, 68, 69, 73, 77, 78, 79, 82, 85, 88, 93, 100, 122

試験例 6 ワタアブラムシに対する効力試験

3 寸鉢に播種した発芽 1 0 日が経過したキュウリにワタアブラムシ成虫を接種した。1 日後に成虫を除去し、産下された若虫が寄生するキュウリに、前記薬剤の実施例 4 に示された乳剤の処方に従い、化合物濃度が 1 2 5 p p m になるように水で希釈した薬剤を散布した。温度 2 5 ℃、湿度 6 5 % の恒温室内に置き、6 日後に殺虫率を調査した。試験は 2 反復で行った。対照化合物として、ピリミカーブ (1 2 5 p p m) を用いた。その結果、以下の化合物が 8 0 % 以上の優れた殺虫率を示した。一方、対照化合物のピリミカーブの殺虫率は 9 % であった。

化合物番号：1, 2, 3, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 14, 16, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 29, 33, 34, 36, 39, 40, 41, 44, 46, 47, 49, 50, 54, 55, 56, 58, 61, 6

3, 64, 65, 66, 68, 69, 70, 71, 73, 75, 77, 78, 79, 82, 85, 87, 88, 92, 93, 98, 107, 115, 122, 124, 125, 128, 129

試験例7 ナミハダニに対する効力試験

3寸鉢に播種したインゲンの発芽後7~10日を経過した第1本葉上に、有機リン剤抵抗性のナミハダニ雌成虫を17頭接種したのち、前記薬剤の実施例3に示された水和剤の処方に従い、化合物濃度が125ppmになるように水で希釈した薬液を散布した。温度25℃、湿度65%の恒温室内に置き、3日後に殺成虫率を調査した。試験は2反復で行った。対照化合物として、クロルジメホルム(125ppm)を用いた。その結果、以下の化合物が80%以上の優れた殺虫率を示した。一方、対照化合物のクロルジメホルムの殺虫率は8%であった。

化合物番号: 1, 2, 3, 6, 7, 10, 11, 14, 16, 21, 22, 24, 25, 26, 27, 34, 36, 39, 40, 46, 121, 122

試験例8 白蘚菌 (Trichophyton mentagrophytes ATCC 9533) に対する抗真菌試験

被験化合物2mgを秤取り、ジメチルスルホキシド0.5mlを加え原液とし、これをサブロー・デキストロース培地で希釈して、試験濃度の100倍の濃度の希釈系列薬剤液を調製した。組織培養用24穴マイクロプレートの各ウェルに、 $1\sim 5\times 10^4$ CFU/mlになるように同培地で懸濁した白蘚菌 (Trichophyton mentagrophytes ATCC 9533) の試験菌液0.99mlを分注した中に前記の薬剤液0.01mlを添加後良く混和した。各マイクロプレートは28℃にて72時間培養したのち、目視にて生育阻止を検出した。各被験化合物について、被験菌の生育を阻止するのに要する最小濃度を求め、これをその化合物の最小生育阻止濃度(MIC)とした。その結果、化合物番号21のMICは $0.2\mu\text{g}/\text{ml}$ 、化合物番号86のMICは $0.013\mu\text{g}/\text{ml}$ であった。

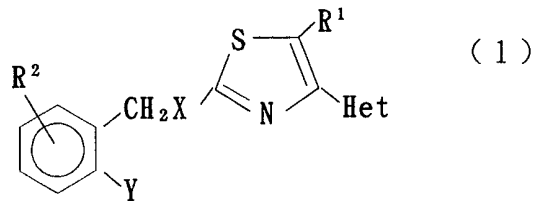
試験例 9 熱帯熱マラリア原虫 (Plasmodium) に対する抗原虫活性

培養熱帯熱マラリア原虫 (FCR-3 (ATCC 30932) および Honduras-1 (ATCC 30950)) を用い、in vitro 薬剤感染性試験を行った。すなわち、培地は、FCR-3 には RPMI 1640 培地に人血清 (A 型) を 10% となるように加えたものを、Honduras-1 には GIT 培地を用いた。

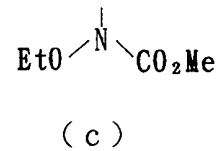
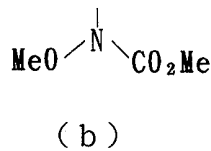
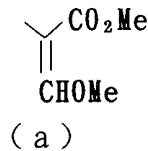
マラリア原虫は、酸素濃度 5.0%、炭酸ガス濃度 5.0% 及び窒素濃度 9.0% で 36.5°C で培養を行った。前培養した熱帯熱マラリア原虫を初期感染率が 0.5% となるように非感染赤血球で希釈し、24 穴培養プレートに分注した。一方、第 2 表化合物番号 67 の化合物を DMSO に溶解し、所定濃度のサンプル溶液を調製した。このサンプル溶液を前記 24 穴プレートに添加し、ピペッティングを行い溶液を混和した。72 時間培養したのち、それぞれのウェルについて薄層塗沫標本作製し、光学顕微鏡下で感染率を測定した。薬剤を添加したものの感染率及びコントロールの感染率から抗原虫活性を評価した。その結果、 10^{-6} M の濃度でいずれの原虫もまったく増殖しなかった。

請求の範囲

1. 一般式(1)



- [式中、 R^1 、 R^2 は、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子または C_{1-6} アルキル基を表し、
 X は、 O 、 S 、 SO または SO_2 を表し、
 Y は、下記 (a)、(b) 又は (c) のいずれかの基を表す。



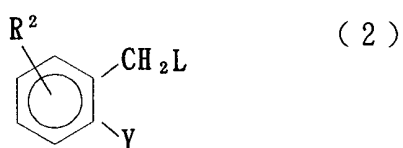
Het は、 Z で置換されていてもよい複素環基を表す。

ここで複素環基は、チエニル基、フリル基、ピリジル基、チアゾリル基、ピリミジニル基またはピラジニル基であり、

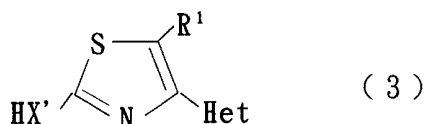
Z は、シアノ基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、 C_{1-6} アルキル基、 C_{1-6} アルケニル基、 C_{1-6} アルキニル基、 C_{1-6} アルコキシ基、 C_{1-6} アルキルチオ基、 C_{1-6} アルキルスルフィニル基、 C_{1-6} アルキルスルホニル基、 C_{1-6} ハロアルキル基、 C_{3-8} シクロアルキル基、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルキルカルボニルオキシ基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、ヒドロキシイミノ C_{1-6} アルキル基、 C_{1-6} アルコキシイミノ C_{1-6} アルキル基、(C_{1-6} アルキル基で置換されていてもよい)カルバモイル基、置換基を有していてもよいフェニル基、置換基を有していてもよいベンジル基、置換基を有していてもよいフェノキシ基、または置換基を有していてもよいベンジロキシ基を表す。また、Het は、複数の同一または相異なる Z で置換されていてもよい。]

で表されるチアゾール化合物またはその塩。

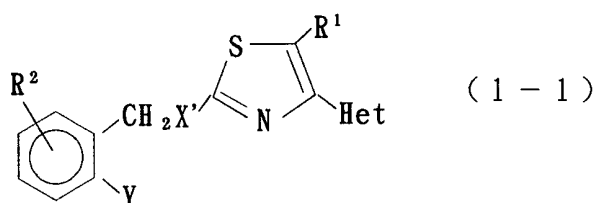
2. 一般式(2)



(式中、YおよびR²は、前記と同じ意味を表し、Lは、脱離基を表す。)
で表される化合物と、一般式(3)



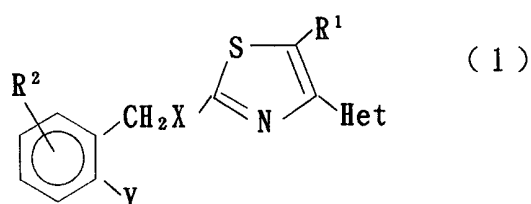
(式中、R¹、Hetは、前記と同じ意味を表し、X'は、OまたはSを表す。)
)で表される化合物とを反応させることを特徴とする、一般式(1-1)



(式中、R¹、R²、Y、HetおよびZは、前記と同じ意味を表し、X'は、
OまたはSを表す。)

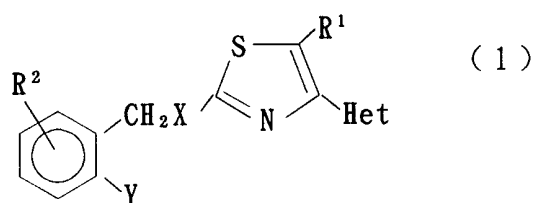
で表されるチアゾール化合物の製造方法。

3. 一般式(1)



(式中、R¹、R²、X、Y、HetおよびZは、前記と同じ意味を表す。)
で表されるチアゾール化合物またはその塩の1種または2種以上を有効成分とし
て含有することを特徴とする有害生物防除剤。

4. 一般式 (1)



(式中、 R^1 , R^2 , X, Y, Het および Z は、前記と同じ意味を表す。)
で表されるチアゾール化合物またはその塩の1種または2種以上を有効成分として含有することを特徴とする医療用抗真菌剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/00473

<p>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl⁵ C07D277/34, 417/04, A01N43/78, 47/20, A61K31/425</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>														
<p>B. FIELDS SEARCHED</p> <p>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl⁵ C07D277/34, 417/04, A01N43/78, 47/20, A61K31/425</p> <p>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched</p> <p>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) REGISTRY (STN), CAPLUS (STN)</p>														
<p>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>Category*</th> <th>Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th>Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y</td> <td>JP, 7-502747, A (BASF AG.), 23 March, 1995 (23. 03. 95), Particularly Claims 1, 2, 60 & US, 5824705, A & EP, 624155, A1 & WO, 9315046, A1</td> <td>1-4</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP, 8-507055, A (BASF AG.), 30 July, 1996 (30. 07. 96), Particularly Claims 1, 2, 4 to 9 ; pages 82, 87 & EP, 686152, A1 & EP, 757042, A1 & WO, 9419331, A1</td> <td>1-4</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP, 64-31746, A (Schering Agrochemicals Ltd.), 2 February, 1989 (02. 02. 89), Particularly Claims 1 to 4 ; page 6, upper right column & EP, 299694, A2 & US, 5304530, A & US, 5192357, A</td> <td>1-4</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	Y	JP, 7-502747, A (BASF AG.), 23 March, 1995 (23. 03. 95), Particularly Claims 1, 2, 60 & US, 5824705, A & EP, 624155, A1 & WO, 9315046, A1	1-4	Y	JP, 8-507055, A (BASF AG.), 30 July, 1996 (30. 07. 96), Particularly Claims 1, 2, 4 to 9 ; pages 82, 87 & EP, 686152, A1 & EP, 757042, A1 & WO, 9419331, A1	1-4	Y	JP, 64-31746, A (Schering Agrochemicals Ltd.), 2 February, 1989 (02. 02. 89), Particularly Claims 1 to 4 ; page 6, upper right column & EP, 299694, A2 & US, 5304530, A & US, 5192357, A	1-4
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.												
Y	JP, 7-502747, A (BASF AG.), 23 March, 1995 (23. 03. 95), Particularly Claims 1, 2, 60 & US, 5824705, A & EP, 624155, A1 & WO, 9315046, A1	1-4												
Y	JP, 8-507055, A (BASF AG.), 30 July, 1996 (30. 07. 96), Particularly Claims 1, 2, 4 to 9 ; pages 82, 87 & EP, 686152, A1 & EP, 757042, A1 & WO, 9419331, A1	1-4												
Y	JP, 64-31746, A (Schering Agrochemicals Ltd.), 2 February, 1989 (02. 02. 89), Particularly Claims 1 to 4 ; page 6, upper right column & EP, 299694, A2 & US, 5304530, A & US, 5192357, A	1-4												
<p><input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.</p>														
<p>* Special categories of cited documents:</p> <table border="0"> <tr> <td style="vertical-align: top;"> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </td> <td style="vertical-align: top;"> <p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&" document member of the same patent family</p> </td> </tr> </table>			<p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&" document member of the same patent family</p>										
<p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&" document member of the same patent family</p>													
<p>Date of the actual completion of the international search 28 April, 1999 (28. 04. 99)</p>		<p>Date of mailing of the international search report 18 May, 1999 (18. 05. 99)</p>												
<p>Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office</p>		<p>Authorized officer</p>												
<p>Facsimile No.</p>		<p>Telephone No.</p>												

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP99/00473

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 5-213815, A (BASF AG.), 24 August, 1993 (24. 08. 93), Particularly Claims 1, 2 ; Par. No. [0330] & EP, 513580, A2 & US, 5298527, A & US, 5416068, A	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int. C1⁶ C07D277/34, 417/04, A01N43/78, 47/20, A61K31/425

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int. C1⁶ C07D277/34, 417/04, A01N43/78, 47/20, A61K31/425

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
 REGISTRY (STN)
 CAPLUS (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 7-502747, A (ビーエーエスエフ アクチェンゲゼルシャフト) 23. 3月. 1995 (23. 03. 95) 特に、請求項1, 2, 60&US, 5824705, A&EP, 624155, A1&WO, 9315046, A1	1-4
Y	JP, 8-507055, A (ビーエーエスエフ アクチェンゲゼルシャフト) 30. 7月. 1996 (30. 07. 96) 特に、請求項1, 2, 4~9, 第82頁及び第87頁&EP, 686152, A1&EP, 757042, A1&WO, 9419331, A1	1-4
Y	JP, 64-31746, A (シェーリング・アグロケミカルズ・リミテッド) 02. 2月. 1989 (02. 02. 89) 特に、請	1-4


C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 28. 04. 99

国際調査報告の発送日 18.05.99

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
 内田 淳子  4P 8115
 電話番号 03-3581-1101 内線 3492

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	<p>求項1～4、第6頁右上欄&EP, 299694, A2&US, 5304530, A&US, 5192357, A</p> <p>JP, 5-213815, A (ビーエーエスエフ アクチェンゲゼルシャフト) 24. 8月. 1993 (24. 08. 93) 特に、請求項1, 2、第0330段落&EP, 513580, A2&US, 5298527, A&US, 5416068, A</p>	1-4