

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4058132号  
(P4058132)

(45) 発行日 平成20年3月5日(2008.3.5)

(24) 登録日 平成19年12月21日(2007.12.21)

|                       |                  |                |   |
|-----------------------|------------------|----------------|---|
| (51) Int.Cl.          |                  | F I            |   |
| <b>C O 7 C 69/734</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 C 69/734 | Z |
| <b>C O 7 C 251/38</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 C 251/38 |   |
| <b>C O 7 D 213/50</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 D 213/50 |   |
| <b>C O 7 D 333/22</b> | <b>(2006.01)</b> | C O 7 D 333/22 |   |
| <b>A O 1 N 37/38</b>  | <b>(2006.01)</b> | A O 1 N 37/38  |   |

請求項の数 19 (全 27 頁) 最終頁に続く

|              |                       |
|--------------|-----------------------|
| (21) 出願番号    | 特願平9-163350           |
| (22) 出願日     | 平成9年6月5日(1997.6.5)    |
| (65) 公開番号    | 特開平10-87569           |
| (43) 公開日     | 平成10年4月7日(1998.4.7)   |
| 審査請求日        | 平成16年5月21日(2004.5.21) |
| (31) 優先権主張番号 | 019, 230              |
| (32) 優先日     | 平成8年6月6日(1996.6.6)    |
| (33) 優先権主張国  | 米国 (US)               |

|           |                     |
|-----------|---------------------|
| (73) 特許権者 | 501035309           |
|           | ダウ アグロサイエンシズ エルエルシ  |
|           | ー                   |
|           | アメリカ合衆国 インディアナ州 462 |
|           | 68, インディアナポリス, ジオンス |
|           | ヴィレ ロード, 9330       |
| (74) 代理人  | 100092783           |
|           | 弁理士 小林 浩            |
| (74) 代理人  | 100095360           |
|           | 弁理士 片山 英二           |
| (74) 代理人  | 100093676           |
|           | 弁理士 小林 純子           |

最終頁に続く

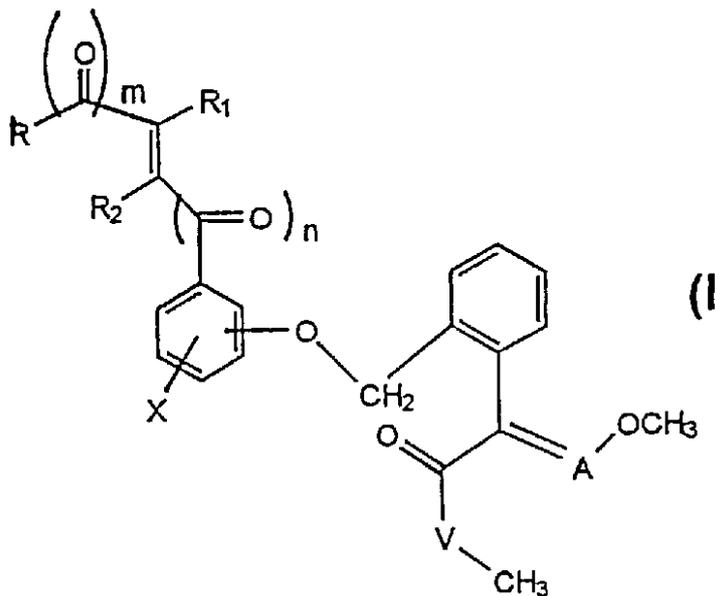
(54) 【発明の名称】 ベンジルオキシ置換フェニル化合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

式(I)

## 【化1】



10

[ 式中、A は、N または CH であり；V は、O または NH であり；m および n は、0 および 1 の整数であり、m + n は 1 であり；X は、独立して、水素、ハロ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、および (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルコキシからなる群より選ばれ；R は、独立して、水素、(C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub>) アルキル、ハロ (C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub>) アルキル、(C<sub>2</sub> - C<sub>8</sub>) アルケニル、(C<sub>2</sub> - C<sub>8</sub>) アルキニル、(C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub>) アルコキシ (C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub> - C<sub>7</sub>) シクロアルキル、(C<sub>3</sub> - C<sub>7</sub>) シクロアルキル (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、アリールであってハロゲン、シアノ、ニトロ、トリハロメチル、フェニル、フェノキシ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキルチオ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキルスルホキシド (C<sub>1</sub> - C<sub>6</sub>) アルコキシおよびハロ (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキルからなる群より選ばれた置換基の 3 個までで任意に置換されてもよいアリール、アラルキルであってアルキルまたはハロゲンで置換されてもよいアラルキル、並びに (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、ハロゲン、シアノ、ニトロおよびトリハロメチルからなる群より選ばれた置換基の 2 個までで任意に置換されてもよいヘテロ環からなる群より選ばれ；そして R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は、独立して、水素、(C<sub>1</sub> - C<sub>6</sub>) アルキル、ハロ (C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub>) アルキル、(C<sub>3</sub> - C<sub>7</sub>) シクロアルキル、(C<sub>3</sub> - C<sub>7</sub>) シクロアルキル (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、シアノ、カルボキシ (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、並びにアリールであってハロゲン、シアノ、ニトロ、トリハロメチル、フェニル、フェノキシ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキル、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキルチオ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキルスルホキシド (C<sub>1</sub> - C<sub>6</sub>) アルコキシおよびハロ (C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>) アルキルからなる群より選ばれた置換基の 3 個までで任意に置換されてもよいアリールからなる群より選択され、R<sub>1</sub> と R<sub>2</sub> の少なくとも 1 つは水素である ] を有する化合物。

20

30

## 【請求項 2】

A が CH である、請求項 1 に記載の化合物。

40

## 【請求項 3】

A が N である、請求項 1 に記載の化合物。

## 【請求項 4】

V が O である、請求項 2 に記載の化合物。

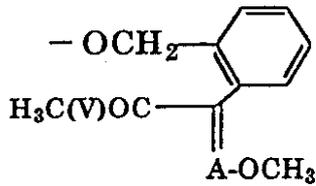
## 【請求項 5】

V が O または NH である、請求項 3 に記載の化合物。

## 【請求項 6】

部分、式

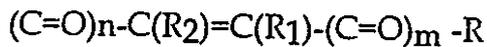
【化 2】



10

が、式

【化 3】



20

のメタ位にあり、そして式中、Rは、(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、八口(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、八口置換フェニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル置換フェニル、およびトリ八口置換フェニルからなる群から選ばれる、請求項4に記載の化合物。

【請求項7】

n = 0 および m = 1 である、請求項6に記載の化合物。

【請求項8】

Rは、(C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>)アルキル、八口(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、2-八口フェニル、3-八口フェニル、4-八口フェニル、2-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルフェニル、3-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルフェニル、および4-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルフェニルからなる群から選ばれる、請求項7に記載の化合物。

30

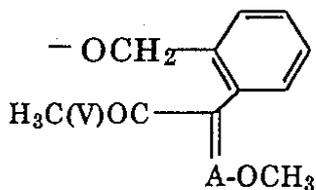
【請求項9】

Rは、n-プロピル、イソプロピル、t-ブチル、n-ブチル、n-ヘキシル、4-フルオロフェニル、4-クロロフェニル、および4-トリフルオロメチルフェニルから選ばれる、請求項8に記載の化合物。

【請求項10】

部分、式

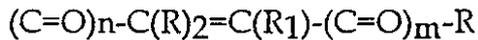
【化 4】



40

が、式

## 【化5】



のメタ位にあり、そしてRは、(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、ハロ置換フェニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル置換フェニル、およびトリハロ置換フェニルからなる群から選ばれる、請求項5に記載の化合物。

## 【請求項11】

n = 0 および m = 1 である、請求項10に記載の化合物。

## 【請求項12】

Rは、(C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、2-ハロフェニル、3-ハロフェニル、4-ハロフェニル、2-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルフェニル、3-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルフェニル、および4-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキルフェニルからなる群から選ばれる、請求項11に記載の化合物。

## 【請求項13】

Rは、n-プロピル、イソプロピル、t-ブチル、n-ブチル、n-ヘキシル、4-フルオロフェニル、4-クロロフェニル、および4-トリフルオロメチルフェニルからなる群から選ばれる、請求項12に記載の化合物。

## 【請求項14】

農作物栽培上許容できる担体および請求項1の化合物を含有しており、かつ担体：化合物の重量比が99：1から1：4である、フィトファソジェニック菌を防除するための殺菌組成物。

## 【請求項15】

農作物栽培上許容できる担体：化合物の重量比が10：1から1：3である、請求項14に記載の組成物。

## 【請求項16】

種子、植物または土壌の対象に、請求項1の化合物を、1ヘクタールにつき0.005 - 50 kgの割合において適用することを含む、フィトファソジェニック菌を防除する方法。

## 【請求項17】

請求項1の化合物を、1ヘクタールにつき0.025 - 10 kgの割合において適用する、請求項16に記載の方法。

## 【請求項18】

領域に、請求項1の化合物を、1ヘクタールにつき0.005 - 10 kgの割合において適用することを含む、領域内の虫を防除する方法。

## 【請求項19】

化合物を1ヘクタールにつき0.01 - 1 kgの割合において適用する請求項18の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

本発明は、ベンジルオキシ置換フェニル化合物、これらの化合物を含有する組成物、およびこれらの化合物の殺菌量および殺虫量を使用して菌および虫を防除する方法に関する。

## 【0002】

ある種のベンゾイルオキシ置換フェニル化合物のプロペン酸およびオキシムエーテルは、殺菌剤として有用であることが知られている。フェニル環の置換物は、当業界において知られている(例えば、米国特許第5185342号参照)。

## 【0003】

本発明者は、不飽和基が結合しているアシル基、またはアシル基が結合している不飽和基

10

20

30

40

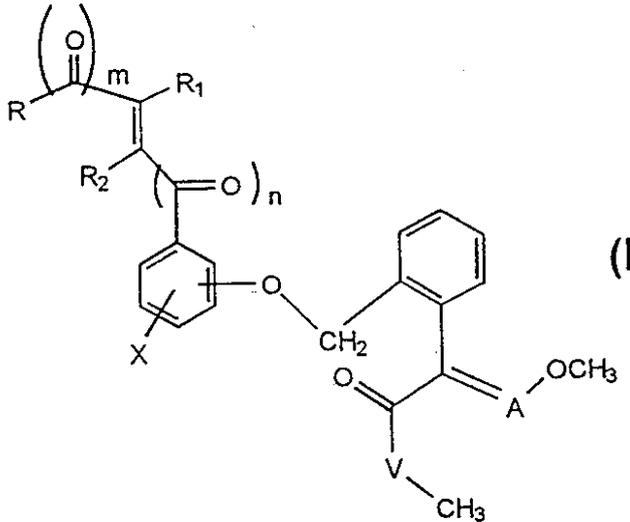
50

を有するフェニル誘導体を発見した。これらの新規な組成物は、殺菌性および殺虫性を有している。

【0004】

本発明にかかる新規なベンジルオキシ置換フェニル化合物は、式(I)

【化6】



10

20

【0005】

[式中、Aは、NまたはCHであり；Vは、OまたはNHであり；mおよびnは、0および1の整数であり、m+nは1であり；Xは、独立して、水素、ハロ、(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、および(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルコキシから選ばれ；Rは、独立して、水素、(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、(C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>)アルケニル、(C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>)アルキニル、(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルコキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキル(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、アリール、アラルキル、およびヘテロ環から選ばれ；そしてR<sub>1</sub>およびR<sub>2</sub>は、独立して、水素、(C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>)アルキル、ハロ(C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>)アルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキル、(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキル(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、シアノ、カルボキシ(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>)アルキル、およびアリールから選択され、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>の少なくとも1つは水素である]を有する。

30

【0006】

前述の(C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>)アルキル、(C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>)アルケニル、(C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>)アルキニルおよび(C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>)シクロアルキルの基は、ハロゲン、ニトロ、トリハロメチルおよびシアノから成る群から選ばれた置換基の3個までで任意的に置換されてもよい。

【0007】

用語「アルキル」には、1-12個の炭素原子の分枝鎖アルキル基および直鎖アルキル基の両方が包含される。典型的なアルキル基は、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、sec-ブチル、イソブチル、t-ブチル、n-ペンチル、イソペンチル、n-ヘキシル、n-ヘプチル、イソオクチル、ノニル、デシル、ウンデシル、ドデシル、等、である。用語「ハロアルキル」は、1-3個のハロゲンで置換されたアルキル基をいう。

40

【0008】

用語「アルケニル」は、2-12個の炭素原子の鎖長および1または2個のエチレン結合を有する直鎖または分枝鎖のエチレン性不飽和炭化水素基をいう。用語「ハロアルケニル」は、1-3個のハロゲン原子で置換されたアルケニル基をいう。用語「アルキニル(alkynyl)」は、2-12個の炭素原子の鎖長および1または2個のアセチレン結合を有す

50

る直鎖または分枝鎖の不飽和炭化水素基をいう。

【0009】

用語「シクロアルキル」は、3 - 7個の炭素原子を有する飽和環系をいう。

【0010】

用語「アリール」は、フェニルまたはナフチルをいい、これらはハロゲン、シアノ、ニトロ、トリハロメチル、フェニル、フェノキシ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>)アルキル、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>)アルキルチオ、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>)アルキルスルホキシド(C<sub>1</sub> - C<sub>6</sub>)アルコキシおよびハロ(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>)アルキルから成る群から選ばれた置換基の3個までで任意的に置換されることができる。

【0011】

典型的なアリール置換基には、4 - クロロフェニル、4 - フルオロフェニル、4 - ブロモフェニル、2 - メトキシフェニル、2 - メチルフェニル、3 - メチルフェニル、4 - メチルフェニル、2, 4 - ジブロモフェニル、3, 5 - ジフルオロフェニル、2, 4, 6 - トリクロロフェニル、4 - メトキシフェニル、2 - クロロナフチル、2, 4 - ジメトキシフェニル、4 - (トリフルオロメチル)フェニルおよび2 - ヨード - 4 - メチルフェニルが包含されるが、これらに限定されない。

【0012】

用語「ヘテロ環(heterocyclic)」は、1個、2個、または3個のヘテロ原子、好ましくは酸素、窒素および硫黄から選ばれた1個または2個のヘテロ原子、を含有する置換または非置換の5員または6員の不飽和環をいい；または酸素、窒素、および硫黄から選ばれた1個のヘテロ原子を含む、10個までの原子を含有する二環式不飽和環系である。ヘテロ環の例には、2 - 、3 - または4 - ピリジニル、ピラジニル、2 - 、4 - または5 - ピリミジニル、ピリダジニル、トリアゾリル、イミダゾリル、2 - または3 - チエニル、2 - または3 - フリル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、チアゾリル、イソチアゾリル、オキサジアゾリル、チアジアゾリル、キノリルおよびイソキノリルが包含されるが、これらに限定されない。ヘテロ環式環は、(C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>)アルキル、ハロゲン、シアノ、ニトロおよびトリハロメチルから独立して選ばれた置換基の2個までで任意的に置換されてもよい。

【0013】

用語「アラルキル」は、前述したようなアリール部分がアラルキル部分の末端基を形成する炭素原子数1から10個のアルキル鎖であり、分枝鎖または直鎖、好ましくは直鎖である基を記述するのに用いられている。典型的なアラルキル部分には、任意的に置換されたベンジル、フェネチル、フェンプロピル(phenpropyl)およびフェンブチル(phenbutyl)部分が包含されるが、これらに限定されない。典型的なベンジル部分には、2 - クロロベンジル、3 - クロロベンジル、4 - クロロベンジル、2 - フルオロベンジル、3 - フルオロベンジル、4 - フルオロベンジル、4 - トリフルオロメチルベンジル、2, 4 - ジクロロベンジル、2, 4 - ジブロモベンジル、2 - メチルベンジル、3 - メチルベンジル、および4 - メチルベンジルが包含される。典型的なフェネチル部分は、2 - (2 - クロロフェニル)エチル、2 - (3 - クロロフェニル)エチル、2 - (4 - クロロフェニル)エチル、2 - (2 - フルオロフェニル)エチル、2 - (3 - フルオロフェニル)エチル、2 - (4 - フルオロフェニル)エチル、2 - (2 - メチルフェニル)エチル、2 - (3 - メチルフェニル)エチル、2 - (4 - メチルフェニル)エチル、2 - (4 - トリフルオロメチルフェニル)エチル、2 - (2 - メトキシフェニル)エチル、2 - (3 - メトキシフェニル)エチル、2 - (4 - メトキシフェニル)エチル、2 - (2, 4 - ジクロロフェニル)エチル、2 - (3, 5 - ジメトキシフェニル)エチルである。典型的なフェンプロピル部分は、3 - フェニルプロピル、3 - (2 - クロロフェニル)プロピル、3 - (3 - クロロフェニル)プロピル、3 - (4 - クロロフェニル)プロピル、3 - (2, 4 - ジクロロフェニル)プロピル、3 - (2 - フルオロフェニル)プロピル、3 - (3 - フルオロフェニル)プロピル、3 - (4 - フルオロフェニル)プロピル、3 - (2 - メチルフェニル)プロピル、3 - (3 - メチルフェニル)プロピル、3 - (4 - メチルフェニル)エチル

10

20

30

40

50

、3-(2-メトキシフェニル)プロピル、3-(3-メトキシフェニル)プロピル、3-(4-メトキシフェニル)プロピル、3-(4-トリフルオロメチルフェニル)プロピル、3-(2,4-ジクロロフェニル)プロピル、および3-(3,5-ジメトキシフェニル)プロピルである。典型的なフェンチル部分は、4-フェニルブチル、4-(2-クロロフェニル)ブチル、4-(3-クロロフェニル)ブチル、4-(4-クロロフェニル)ブチル、4-(2-フルオロフェニル)ブチル、4-(3-フルオロフェニル)ブチル、4-(4-フルオロフェニル)ブチル、4-(2-メチルフェニル)ブチル、4-(3-メチルフェニル)ブチル、4-(4-メチルフェニル)ブチル、4-(2,4-ジクロロフェニル)ブチル、4-(2-メトキシフェニル)ブチル、4-(3-メトキシフェニル)ブチル、および4-(4-メトキシフェニル)ブチルである。

10

## 【0014】

ハロゲンまたはハロは、ヨード、フルオロ、プロモ、およびクロロ部分をいう。

## 【0015】

$R_1$ と $R_2$ との間の二重結合について、シスとトランスの異性体が存在しうことは当業者には明らかである。これらの異性体は、公知の手段によって個々の成分に分離することができる。個々の異性体化合物の両方、およびそれらの混合物のすべては本発明にかかる物質であり、殺菌剤として使用することができる。

式(I)の新規化合物中のベンジルオキシフラグメントの $C=C$ または $C=N$ の二重結合置換基のために、一般式Iの新規化合物は、製造において、E/Z異性体混合物として得られるかもしれない。これらの異性体は、公知の手段によって個々の成分に分離することができる。個々の異性体化合物の両方、およびそれらの混合物のすべては本発明にかかる物質であり、殺菌剤として使用することができる。

20

本発明にかかる化合物には、構造式(I)の化合物の光学的对掌体(enantiomorphs)、塩、および錯体も包含される。

本発明においては、構造式はそのシス/トランス異性体混合物およびE/Z異性体混合物も包含するものされる。

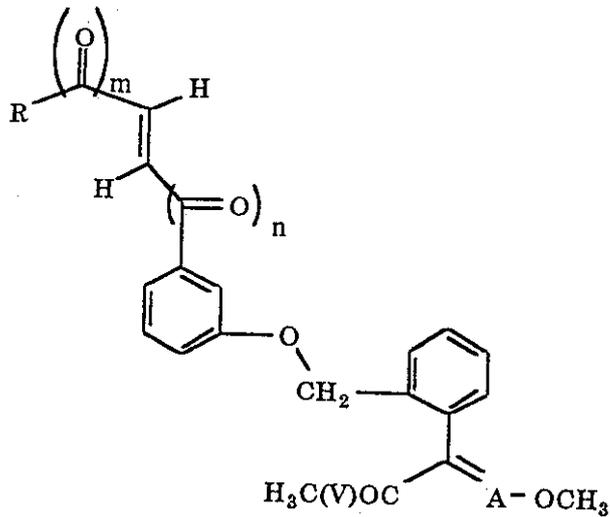
## 【0016】

本発明の好ましい態様は、 $R_1$ および $R_2$ は水素であり、Rは( $C_1 - C_{12}$ )アルキル；ハロ、トリハロメチル、シアノ、( $C_1 - C_4$ )アルキル、( $C_1 - C_4$ )アルキルチオ、( $C_1 - C_4$ )アルコキシから独立して選ばれた置換基の1個または2個で置換されたフェニル；またはフェニル、であり、；以下に示されるように、 $OCH_2$ (2-置換フェニル)部分が、( $C=O$ ) $n - C=C - (C=O)$  $m - R$ 置換基に対してメタ位置においてフェニル環に結合している式Iの化合物、その光学的对掌体、塩および錯体である。R、 $n$ および $m$ は上記で定義したとおりである。

30

## 【0017】

## 【化7】



10

## 【0018】

本発明の更に好ましい態様は、 $R_1$ 、 $R_2$ および $X$ が水素であり、そして $R$ が $t$ -ブチル、 $n$ -プロピル、ハロフェニルであり、そして $A$ が $CH$ であり、そして $V$ が $O$ である式Iの化合物、その光学的对掌体、塩および錯体である。 $A$ が $CH$ または $N$ であるときの好ましいジオメトリー (geometry) は $E$ 異性体である。

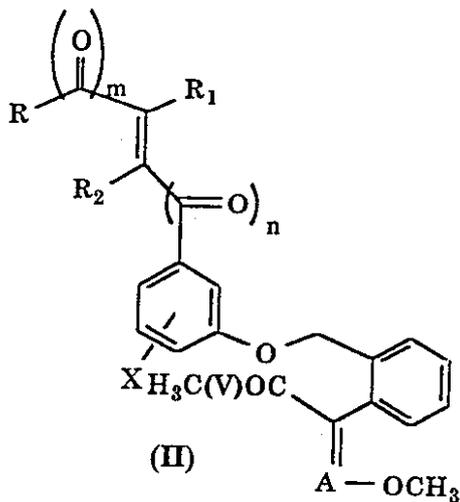
20

## 【0019】

式Iの本発明に包含される典型的な化合物には、式II、IIIおよびIVで示された化合物が包含される。式中、 $R_1$ および $R_2$ は水素であり、他の置換基は以下の表に示したとおりである。

## 【0020】

## 【化8】

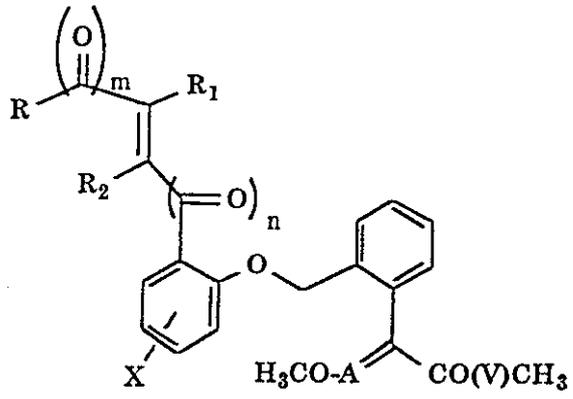


30

40

## 【0021】

## 【化9】

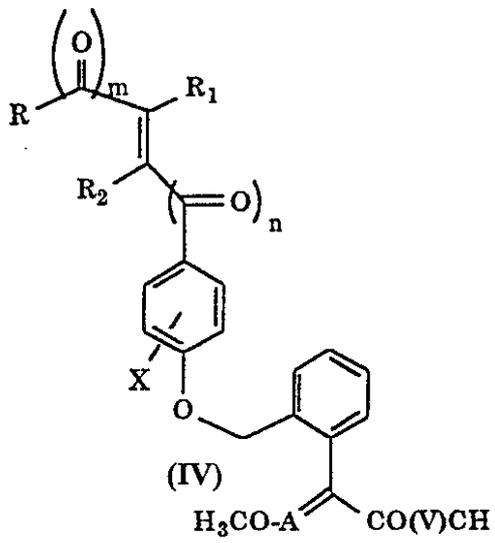


10

(III)

【 0 0 2 2 】

【 化 1 0 】



20

30

【 0 0 2 3 】

【 表 1 】

第1表

| 化合物# | R                       | 式   | n | m | X | A  | V |
|------|-------------------------|-----|---|---|---|----|---|
| 1.01 | Ar                      | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.02 | Ar                      | III | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.03 | Ar                      | IV  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.04 | 2-Cl(Ar)                | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.05 | 2-Cl(Ar)                | III | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.06 | 2-Cl(Ar)                | IV  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.07 | 3-Cl(Ar)                | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.08 | 3-Cl(Ar)                | III | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.09 | 3-Cl(Ar)                | IV  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.10 | 4-Cl(Ar)                | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.11 | 4-Cl(Ar)                | III | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.12 | 4-Cl(Ar)                | IV  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.13 | 2-Br(Ar)                | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.14 | 3-Br(Ar)                | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.15 | 4-Br(Ar)                | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.16 | 2-F(Ar)                 | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.17 | 3-F(Ar)                 | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.18 | 4-F(Ar)                 | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.19 | 2-OCH <sub>3</sub> (Ar) | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.20 | 3-OCH <sub>3</sub> (Ar) | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.21 | 4-OCH <sub>3</sub> (Ar) | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.22 | 2-CH <sub>3</sub> (Ar)  | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.23 | 3-CH <sub>3</sub> (Ar)  | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.24 | 4-CH <sub>3</sub> (Ar)  | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.25 | 2-CF <sub>3</sub> (Ar)  | II  | 0 | 1 | H | CH | O |
| 1.26 | 3-CF <sub>3</sub> (Ar)  | II  | 0 | 1 | H | CH | O |

【 0 0 2 4 】

【表 2】

## (第1表のつづき)

| 化合物# | R   | 式  | n | m | X | A  | V |    |
|------|---|----|---|---|---|----|---|----|
| 1.27 | 4-CF <sub>3</sub> (Ar)  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.28 | 2-NO <sub>2</sub> (Ar)  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.29 | 3-NO <sub>2</sub> (Ar)  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.30 | 4-NO <sub>2</sub> (Ar)  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.31 | 2,4-Cl(Ar)  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.32 | 2,5-Cl(Ar)  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.33 | 2,4-F(Ar)   | II | 0 | 1 | H | CH | O | 10 |
| 1.34 | 2,5-F(Ar)   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.35 | 3,4-F(Ar)   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.36 | CH <sub>3</sub>   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.37 | CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>                                     | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.38 | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>                     | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.39 | CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>                                   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.40 | CH <sub>2</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>     | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.41 | CH <sub>2</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> CH <sub>3</sub>     | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.42 | CH <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>                   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.43 | CH(CH <sub>3</sub> )CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>                 | II | 0 | 1 | H | CH | O | 20 |
| 1.44 | C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>                                    | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.45 | CH <sub>2</sub> C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>                    | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.46 | CH(CH <sub>3</sub> )CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub> | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.47 | C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>    | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.48 | CF <sub>3</sub>   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.49 | CF <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>                                     | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.50 | CH <sub>2</sub> CF <sub>3</sub>                                     | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.51 | CH=CH <sub>2</sub>  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.52 | シクロプロピル   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.53 | シクロペンチル   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.54 | シクロヘキシル   | II | 0 | 1 | H | CH | O | 30 |
| 1.55 | CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>                                    | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.56 | CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>                    | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.57 | CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> OCOAr                               | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.58 | CH <sub>2</sub> OCH <sub>2</sub> Ar                                 | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.59 | 2-ピリジル  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.60 | 3-ピリジル  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.61 | 2-ピリミジル   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.62 | 4-ピリミジル   | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.63 | 2-チエニル  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |
| 1.64 | 3-チエニル  | II | 0 | 1 | H | CH | O | 40 |
| 1.65 | 2-ナフチル  | II | 0 | 1 | H | CH | O |    |

## 【0025】

本発明にかかる更なる典型的な化合物は次表に記載される。

## 【0026】

第2表：

化合物 2.1 - 2.65 は、式 II、III、IV (式中、n = 1、m = 0、R<sub>1</sub> および R<sub>2</sub> は水素、V = O、A = CH である) の第1表の化合物である。

## 【0027】

第3表：

化合物3.1-3.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 0$ 、 $m = 1$ 、 $R_1$ および $R_2$ は水素、 $V = O$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0028】

第4表：

化合物4.1-4.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 1$ 、 $m = 0$ 、 $R_1$ および $R_2$ は水素、 $V = O$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0029】

第5表：

化合物5.1-5.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 0$ 、 $m = 1$ 、 $R_1$ および $R_2$ は水素、 $V = NH$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

10

【0030】

第6表：

化合物6.1-6.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 1$ 、 $m = 0$ 、 $R_1$ および $R_2$ は水素、 $V = NH$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0031】

第7表：

化合物7.1-7.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 0$ 、 $m = 1$ 、 $R_1 = CH_3$ 、 $R_2$ は水素、 $V = O$ 、 $A = CH$ である）の第1表の化合物である。

【0032】

20

第8表：

化合物8.1-8.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 0$ 、 $m = 1$ 、 $R_1 = CH_3$ 、 $R_2$ は水素、 $V = O$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0033】

第9表：

化合物9.1-9.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 0$ 、 $m = 1$ 、 $R_1 = CH_3$ 、 $R_2$ は水素、 $V = NH$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0034】

第10表：

化合物10.1-10.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 1$ 、 $m = 0$ 、 $R_1$ は水素、 $R_2 = CH_3$ 、 $V = O$ 、 $A = CH$ である）の第1表の化合物である。

30

【0035】

第11表：

化合物11.1-11.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 1$ 、 $m = 0$ 、 $R_1$ は水素、 $R_2 = CH_3$ 、 $V = O$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0036】

第12表：

化合物12.1-12.65は、式II、III、IV（式中、 $n = 1$ 、 $m = 0$ 、 $R_1$ は水素、 $R_2 = CH_3$ 、 $V = NH$ 、 $A = N$ である）の第1表の化合物である。

【0037】

40

表1から表12において、 $Ar$ はフェニルである。

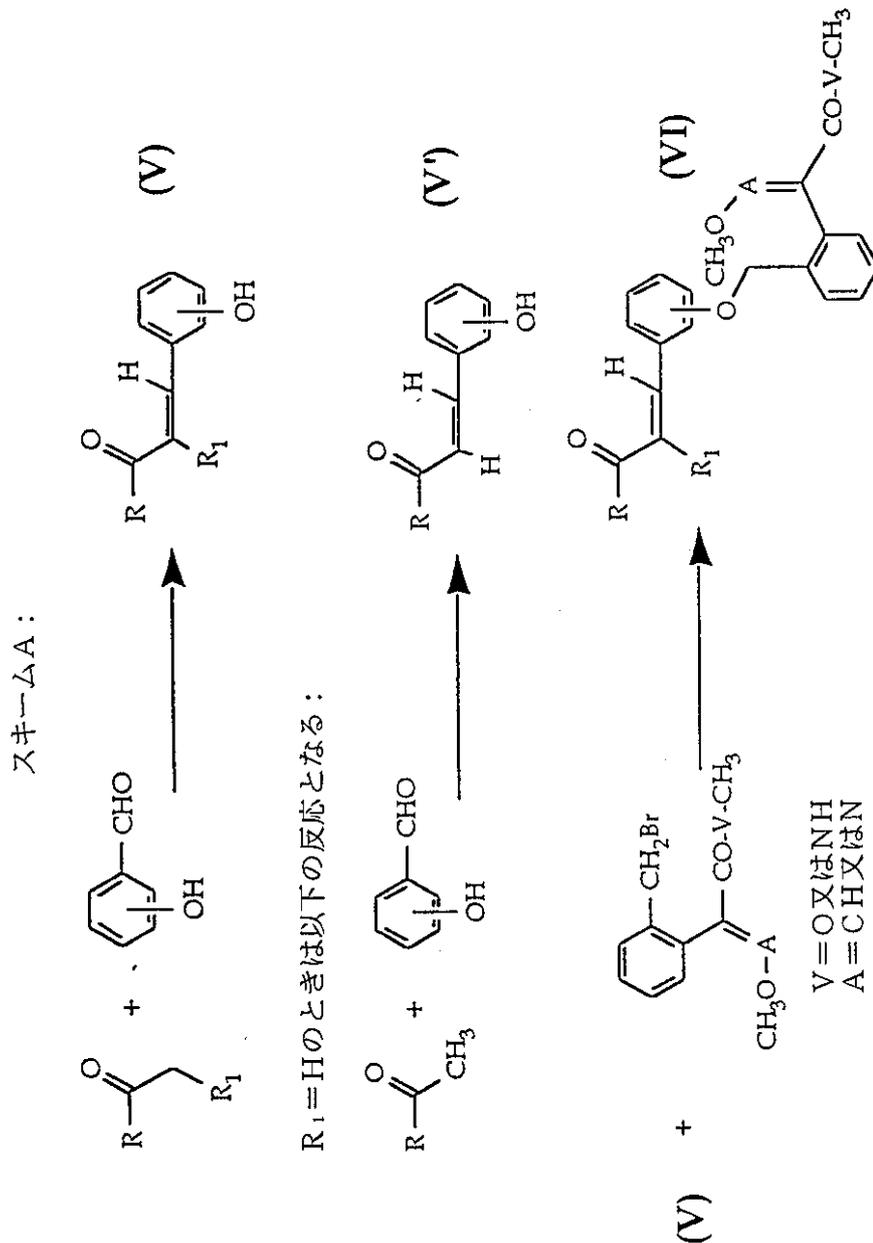
【0038】

式Iの化合物は2工程において造られる。スキームAは、式I（式中、 $n = 0$ および $m = 1$ ）の化合物の製造を記載している。、 - 不飽和化合物（ $V$ ）は、公知の縮合技術によって造ることができる。例えば、“Organic Reactions”，Vol. 16には、一般的なアルドール縮合が記載されており、特にベンズアルデヒドとケトンとの縮合が記載されている。ヒドロキシベンズアルデヒドはケトン、 $RCOCH_2R_1$ （ $R_1 = H$ のときはメチルケトン）と縮合し、不飽和の中間体 $V'$ を提供する。

【0039】

【化11】

50



10

20

30

## 【0040】

置換ヒドロキシベンズアルデヒド例えばオルソ -、メタ - またはパラ - ヒドロキシベンズアルデヒドは、3種のレジオアイソメリックな中間体 (regioisomeric intermediates) V および V' を提供する。種々の反応条件を使用して、“Organic Reactions”, Vol.16, pp.69-85に記載されているエノン (enones) (V および V') を造ることができる。例えば、ケトンにヒドロキシル溶媒例えばエタノールに溶解し、それに、塩基性水溶液に溶かしたヒドロキシベンズアルデヒドの溶液を滴下しながら加える。塩基として、水酸化アルカリ金属例えば水酸化カリウムまたは水酸化ナトリウムを使用することができ、滴下は 0 - 35 °C、好ましくは周囲温度、において行われる。

40

## 【0041】

式 (VI) の化合物は、それぞれ、中間体 V および V' を、適当に置換された臭化ベンジルでアルキル化することにより造られる。メタ - ヒドロキシベンズアルデヒドから誘導された中間体 V' のアルキル化は、表 1、3、5 中の式 II (式中、 $R_1 = R_2 = H$ ) の化合

50

物を提供する。メタ - ヒドロキシベンズアルデヒドから誘導された中間体 V (式中、 $R_1 = CH_3$ 、 $R_2 = H$ ) のアルキル化は、表 7、8、9 中の式 I I の化合物を提供する。オルト - ヒドロキシベンズアルデヒドから誘導された中間体 V' のアルキル化は、表 1、3、5 中の式 I I I (式中、 $R_1 = R_2 = H$ ) の化合物を提供する。オルト - ヒドロキシベンズアルデヒドから誘導された中間体 V (式中、 $R_1 = CH_3$ 、 $R_2 = H$ ) のアルキル化は、表 7、8、9 中の式 I I I の化合物を提供する。パラ - ヒドロキシベンズアルデヒドから誘導された中間体 V' のアルキル化は、表 1、3、5 中の式 I V (式中、 $R_1 = R_2 = H$ ) の化合物を提供する。パラ - ヒドロキシベンズアルデヒドから誘導された中間体 V (式中、 $R_1 = CH_3$ 、 $R_2 = H$ ) のアルキル化は、表 7、8、9 中の式 I V の化合物を提供する。

【0042】

式 V I (式中、A は CH であり、V は O である) の化合物は、中性溶媒、例えば N, N - ジメチルホルムアミド中において、塩基例えば水素化金属、好ましくは NaH、の存在下において、メチル E - (2 - プロモメチルフェニル) - メトキシアクリレートで式 V および V' の化合物をアルキル化することにより造られる。メチル E - (2 - プロモメチルフェニル) - メトキシアクリレートは、E 異性体単独物として、米国特許第 4, 914, 128 号、第 3 - 4 欄に記載されているように、2 - メチルフェニルアセテートから 2 段階で造ることができる。

【0043】

式 V I (式中、A は N であり、V は O である) の化合物は、中性溶媒、例えば N, N - ジメチルホルムアミド中において、塩基例えば水素化金属、好ましくは NaH、の存在下において、メチル E - 2 - (プロモメチル)フェニルグリコキシレート O - メチルオキシムとの反応により式 V および V' の化合物から造られる。メチル 2 - (プロモメチル)フェニルグリコキシレート O - メチルオキシムは、米国特許第 4, 999, 042 号、第 17 - 18 欄および米国特許第 5, 157, 144 号、第 17 - 18 欄に記載されているようにして造ることができる。メチル 2 - (プロモメチル)フェニルグリコキシレート O - メチルオキシムは、塩基性条件下で亜硝酸アルカリで処理することにより、メチル 2 - メチルフェニルアセテートから造られ、メチル化後に、メチル 2 - メチルフェニルグリコキサレート O - メチルオキシムを提供する。これはまた、2 - ヒドロキシルアミン塩酸塩で処理し、メチル化することにより、またはメトキシルアミン塩酸塩で処理することにより、メチル 2 - メチルフェニルグリコキサレートから造ることもできる。

【0044】

A が N であり、そして V が酸素であるときの別の合成経路は、メチル 2 - (プロモメチル)フェニルグリコキシレートと化合物 V および V' を反応させ、次いでメトキシルアミン HCl またはヒドロキシルアミン HCl と反応させ、次いでメチル化するものである。

【0045】

オキシミノアセテートのオキシミノアセトアミド (oximinoacetamides) へのアンミノリシス (aminolysis) は、米国特許第 5, 185, 342 号、第 22、48 および 57 欄；同第 5, 221, 691 号、第 26 - 27 欄；同第 5, 407, 902 号、第 8 欄に記載されている。式 V I (式中、A は N であり、V は O である) の化合物は、メタノールに溶かした 40% 水性メチルアミンで処理して、式 V I (式中、V は NH である) の化合物を提供する。式 V I の化合物は、中性溶媒例えばジメチルホルムアミド (DMF) 中において、塩基例えば水素化金属、好ましくは NaH、の存在下において、N - メチル E - 2 - メトキシイミノ - 2 - (2 - (プロモメチル)フェニル)アセトアミドとカップリングさせることにより、式 V の化合物から調製することができる。N - メチル E - 2 - メトキシイミノ - 2 - (2 - (プロモメチル)フェニル)アセトアミドの調製方法は、米国特許第 5, 387, 714 号、第 13 欄に記載されている。

【0046】

スキーム B には、式 (I) (式中、 $n = 1$  そして  $m = 0$ ) の化合物の製造が記載されてい

10

20

30

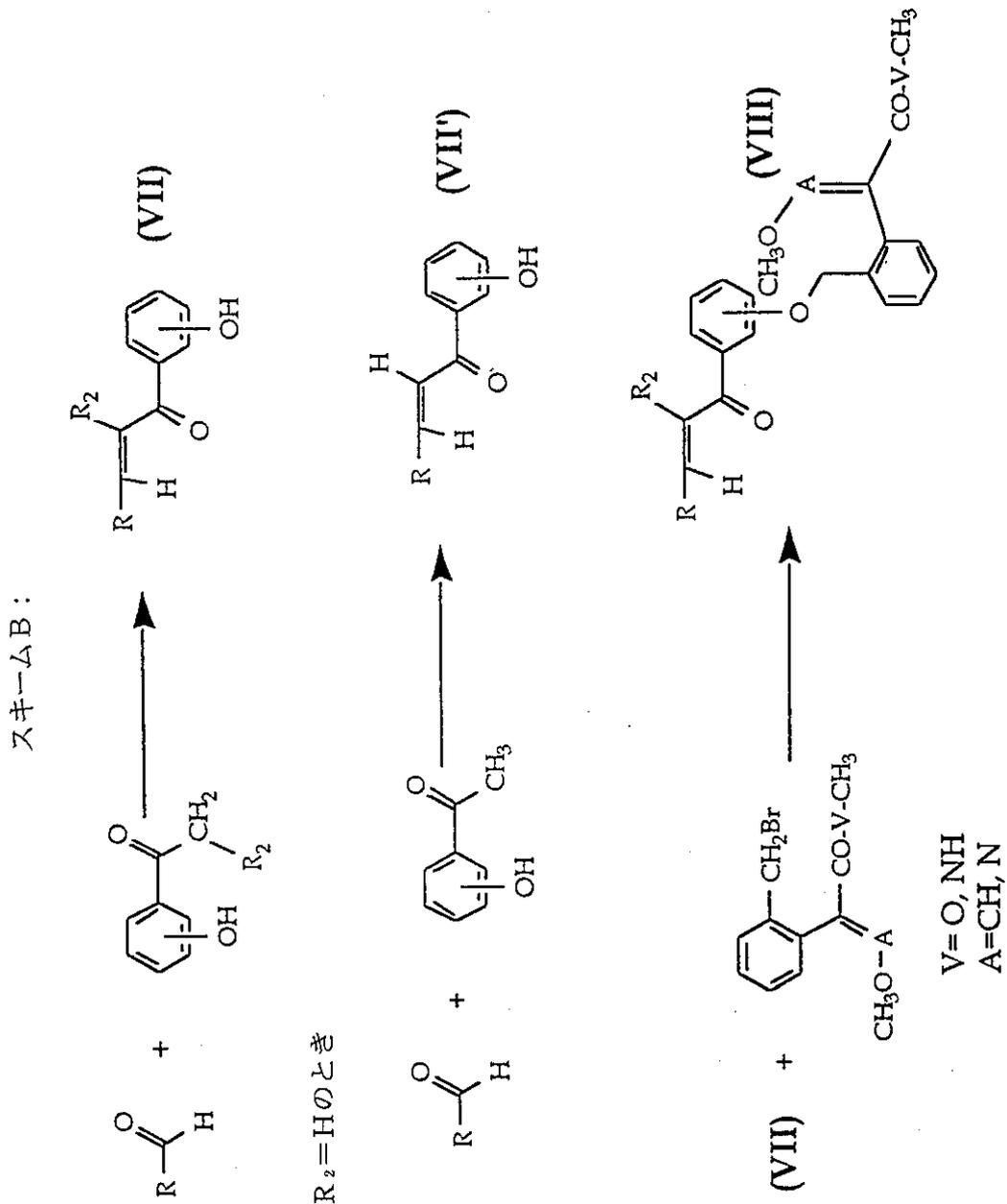
40

50

る。α,β-不飽和化合物(VII)は、スキームAに示されたような公知の縮合技術により造ることができる。ベンズアルデヒドは、ヒドロキシフェニルケトン、(OH)ArCOCH<sub>2</sub>R<sub>2</sub>(ただし、R<sub>2</sub>=Hである時は、メチルケトンである)、と縮合して、不飽和中間体VII'を提供する。

【0047】

【化12】



【0048】

置換ヒドロキシフェニルケトン例えばオルソ-、メタ-またはパラ-ヒドロキシアセトフェノンは、3種のレジオアイソメリックな中間体VII' (式中、R<sub>2</sub>=H)を提供する。種々の反応条件を使用して、“Organic Reactions”, Vol.16, pp.69-85に記載されているエノン(enones)(VIIおよびVII')を造ることができる。例えば、ヒドロキ

10

20

30

40

50

シル溶媒例えばエタノール中のヒドロキシフェニルケトンおよびアルデヒドに、水酸化バリウム、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムのような水酸基塩基を加える。水酸化バリウムを使用した場合には反応混合物を還流条件下で攪拌し、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムを使用した場合には反応は0 - 35 °C、好ましくは周囲温度において行われる。中和した後、生成物は公知の手段により単離される。

【0049】

式(VIII)の化合物は、それぞれ、中間体VIIおよびVII'を、適当に置換された臭化ベンジルでアルキル化することにより造られる。メタ-ヒドロキシアセトフェノンから誘導された中間体VII'のアルキル化は、表2、4、6中の式II(式中、 $R_1 = R_2 = H$ )の化合物を提供する。メタ-ヒドロキシプロピオフェノンから誘導された中間体VII(式中、 $R_2 = CH_3$ )のアルキル化は、表10、11、12中の式IIの化合物を提供する。オルト-ヒドロキシアセトフェノンから誘導された中間体VII'のアルキル化は、表2、4、6中の式III(式中、 $R_1 = R_2 = H$ )の化合物を提供する。オルト-ヒドロキシプロピオフェノンから誘導された中間体VII(式中、 $R_2 = CH_3$ )のアルキル化は、表10、11、12中の式IIIの化合物を提供する。パラ-ヒドロキシアセトフェノンから誘導された中間体VII'のアルキル化は、表2、4、6中の式VI(式中、 $R_1 = R_2 = H$ )の化合物を提供する。パラ-ヒドロキシプロピオフェノンから誘導された中間体VII(式中、 $R_2 = CH_3$ )のアルキル化は、表10、11、12中の式IVの化合物を提供する。

【0050】

実施例1

メチル 3-メトキシ-2-[2-(3-(3'-メトキシフェニル)-3'-オキソ-プロペ-1'-ニル)]フェノキシメチル)フェニル]プロペノエート(化合物1.20、第1表)

磁気式攪拌機を備えた20 mLのバイアル(vial)に、3'-メトキシ-3-ヒドロキシカルコン(hydroxychalcone) 0.15 g (0.00197 mol)、および水酸化カリウム粉末(86%)の0.13 g (0.00197 mol)、および乾燥した(dry) N, N-ジメチルホルムアヒドの10 mLを仕込んだ。次いで、この溶液に、メチル 2-(プロモメチル)フェニル)-メトキシアクリレート(0.51 g (0.00197 mol))を1度に加えた。バイアルにふたをして、周囲温度において一夜攪拌した。次いで、反応混合物を水100 mL中に注入し、エチルエーテル100 mLで2回抽出した。次いで、有機相抽出物を水100 mL、および飽和塩化ナトリウム水溶液の100 mLで洗った。次いで、エーテル抽出物を無水硫酸マグネシウム上で乾燥し、次いで濾過した。濾液を減圧下、ロータリーエバポレーターで45 °Cにおいて濃縮し、暗赤色油として粗生成物0.9 gを得た。生成物を中性アルミナおよびシリカゲルの混合床上で、50%酢酸エチル、50%ヘキサンの移動相を用いてクロマトグラフィーにかけた。純分の分画を一緒にして、0.6 g(収率66%)の、メチル 3-メトキシ-2-[2-(3-(3'-メトキシフェニル)-3'-オキソ-プロペ-1'-ニル)]フェノキシメチル)フェニル]プロペノエートを、粘ちょうな淡黄色油として得た。

$^1H-NMR$  200 MHz (CDCl<sub>3</sub>): 3.7 (s, 3H); 3.8 (s, 3H); 3.9 (s, 3H); 5.1 (s, 2H); 7.0 (m, 1H); 7.1-7.6 (m, 12H); 7.7 (s, 1H); 7.8 (d, 1H)。

【0051】

実施例2

3'-メトキシ-3-ヒドロキシカルコンの製造(実施例1の化合物1.20の調製で使用された)

磁気式攪拌機およびサイドアーム添加漏斗を備えた250 mL丸底フラスコに、3'-メトキシアセトフェノン6.0 g (0.04 mol)と脱水エタノール50 mLを仕込んだ。50 mLの水に溶解した3-ヒドロキシベンズアルデヒド(4.9 g、0.04 mol)および86%水酸化カリウム(3.2 g、0.05 mol)を、室温で、攪拌下、3'-メト

10

20

30

40

50

キシアセトフェノン溶液に滴下した。反応物を周囲温度で1晩攪拌し、ついで250 mLの水にそそぎ込んだ。1 Nの塩酸水溶液でpHを2とした。黄色の沈殿が得られた。これを減圧濾過により採取し、水で洗浄し、真空下40 で1晩乾燥した。全部で8.7 g (収率85%)の3'-メトキシ-3'-ヒドロキシカルコンが、黄褐色の固体として得られた。融点74 - 77。

H-NMR 200 MHz (CDCl<sub>3</sub>): 3.8 (s, 3H); 6.4 (bs, 1H); 6.9 (m, 1H); 7.1 - 7.7 (m, 8H); 7.8 (d, 1H)

【0052】

実施例3

メチル 3'-メトキシ-2-[2-(3'-(3''-フェニル-1'-オキシ-プロペ-3'-ニル)フェノキシメチル)フェニル]プロペノエート (化合物2.01、第2表)

10

実施例1の手法により、3'-ヒドロキシカルコンとメチル (2-(プロモメチル)フェニル)-メトキシアクリレートをカップリングさせた。1.0 gの生成物を油として単離した。収率100%。

H-NMR 200 MHz (CDCl<sub>3</sub>): 3.7 (s, 3H); 3.85 (s, 3H); 5.1 (s, 2H); 7.1 (m, 3H); 7.1 - 7.6 (m, 11H); 7.6 (s, 1H); 7.8 (d, 1H)

【0053】

実施例4

20

3'-ヒドロキシカルコンの製造

磁気式攪拌機および還流凝縮器を備えた250 mL丸底フラスコに、3'-ヒドロキシアセトフェノン2.7 g (0.02モル)、ベンズアルデヒド2.1 g (0.02モル)、水酸化バリウムモノ水和物2.0 g (0.011モル)、および脱水エタノール20 mLを仕込んだ。反応を還流下に2.5時間行ったところ、粘稠となり攪拌が困難となった。冷却後、得られた固体を1 Nの塩酸水溶液100 mLに溶解し、溶液から固体を沈殿させた。固体を減圧濾過により採取し、100 mLの水で洗浄し、100 mLのヘキサンで洗浄し、真空下40 で24時間乾燥した。4.2 g (収率93%)の3'-ヒドロキシカルコンが、黄褐色の固体として得られた。融点143 - 147。

【0054】

30

実施例5

表1から12の化合物について、プロトンNMRのデータを以下に示す。

【表3】

第 1 3 表

| 化合物 # |   |
|-------|---|
| 1.01  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(d,1H); 7.1-7.8(m,13H); 8.0(d,2H)                                     |
| 1.02  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,2H); 7.1-7.6(m,8H); 7.7(s,1H);<br>7.8(m,3H); 8.1(d,2H)             |
| 1.03  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9(d,2H); 7.1-7.6(m,11H); 7.8(d,1H);<br>8.0(d,2H)                       |
| 1.04  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(d,1H); 7.1-7.5(m,12H); 7.6(s,1H);<br>7.7(s,1H)                       |
| 1.05  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 6.8(d,1H); 6.9(m,1H); 7.1-7.6(m,12H);<br>7.7(s,1H); 8.0(d,1H)            |
| 1.07  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(d,1H); 7.1-7.6(m,10H); 7.7(s,1H);<br>7.8(d,1H); 7.9(d,1H); 8.0(s,1H) |
| 1.10  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,1H); 7.1-7.6(m,11H); 7.6(s,1H);<br>7.9(d,2H)                       |
| 1.15  | 3.6(s,3H); 3.8(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(m,2H); 7.1-7.6(m,8H); 7.6(s,1H);<br>7.7(m,1H); 7.8(d,1H); 7.9(d,2H)  |
| 1.18  | 3.8(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,1H); 7.1-7.6(m,10H); 7.7(s,1H);<br>7.8(d,1H); 8.1(m,2H)            |
| 1.19  | 3.7(s,3H); 3.8(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9-7.5(m,10H); 7.6(s,1H);<br>7.7(m,2H)                       |
| 1.20  | 3.7(s,3H); 3.8(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,1H); 7.1-7.6(m,12H);<br>7.7(s,1H); 7.8(d,1H)            |
| 1.21  | 3.7(s,3H); 3.8(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,3H); 7.1-7.5(m,8H);<br>7.6(s,1H); 7.7(d,1H); 8.1(d,2H)  |

【 0 0 5 5 】

【 表 4 】

## (第 1 3 表のつづき)

| 化合物 # |   |
|-------|---|
| 1.22  | 2.5(s,3H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9(d,2H); 7.0-7.6(m,12H); 7.7(s,1H)  |
| 1.23  | 2.4(s,3H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9(d,2H); 7.0-7.5(m,10H); 7.6(s,1H); 7.8(m,2H)   |
| 1.24  | 2.5(s,3H); 3.65(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(d,2H); 7.1-7.5(m,10H); 7.6(s,1H); 8.0(m,2H)  |
| 1.27  | 3.6(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(m,1H); 7.1-7.5(m,8H); 7.6(s,1H); 7.7(m,3H); 8.1(d,2H)  |
| 1.36  | 2.4(s,3H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.7(d,1H); 6.9-7.5(m,5H); 7.6(m,2H); 7.7(s,1H)  |
| 1.38  | 1.0(t,3H); 1.7(q,2H); 2.7(t,2H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.7(d,1H); 7.0(dd,1H); 7.1-7.6(m,8H); 7.7(s,1H)                       |
| 1.39  | 1.2(d,6H); 3.0(m,1H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 6.8(d,1H); 6.9(m,1H); 7.0-7.5(m,6H); 7.6(m,3H)                                   |
| 1.41  | 0.9(t,3H); 1.3(m,6H); 1.7(m,2H); 2.7(t,3H); 3.8(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 6.7(d,1H); 6.9(m,1H); 7.0-7.5(m,7H); 7.55(d,1H); 7.6(s,1H) |
| 1.43  | 1.3(s,9H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9(m,1H); 7.1-7.6(m,7H); 7.6(s,1H); 7.7(m,2H)  |
| 1.52  | 1.0(m,2H); 1.2(m,2H); 2.2(m,1H); 3.7(s,3H); 3.8(s,3H); 5.0(s,2H); 6.8(d,1H); 6.9(m,1H); 7.0-7.5(m,7H); 7.6(d,1H); 7.65(s,1H)            |
| 1.59  | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(d,1H); 7.1-7.6(m,8H); 7.7(s,1H); 7.8(m,2H); 8.2(m,1H); 8.8(m,1H)                                   |

【 0 0 5 6 】  
 【 表 5 】

## (第13表のつづき)

| 化合物# |  |
|------|--|
| 1.60 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(d,1H); 7.1-7.6(m,9H); 7.7(s,1H); 7.8(d,1H); 8.3(m,1H); 8.8(m,1H), 9.3(m,1H)     |
| 1.63 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,1H); 7.1-7.5(m,9H); 7.6(m,1H); 7.7(s,1H); 7.8(m,1H); 7.9(m,1H)                |
| 1.65 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(m,1H); 7.1-7.4(m,6H); 7.6(m,2H); 7.7(s,1H); 7.8(d,2H); 7.9-8.2(m,5H); 8.5(s,1H) |
| 2.01 | 3.7(s,3H); 3.85(s,3H); 5.1(s,2H); 7.1(m,3H); 7.1-7.6(m,11H); 7.6(s,1H); 7.8(d,1H)                                    |
| 2.02 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(dd,2H); 7.1-7.6(m,11H); 7.6(s,1H); 7.8(m,2H)                                    |
| 2.03 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.1(s,2H); 7.0(d,2H); 7.1-7.6(m,8H); 7.6(s,1H); 7.7-7.8(m,3H); 8.0(d,2H)                       |
| 2.10 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0-7.6(m,14H); 7.6(s,1H)   |
| 2.12 | 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 7.0(d,2H); 7.1-7.6(m,10H); 7.6(s,1H); 7.8(d,2H)                                     |
| 3.01 | 3.8(s,3H); 4.0(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9(m,1H); 7.1-7.6(m,11H); 7.7(d,1H); 8.0(m,2H)                                     |
| 5.01 | 2.9(d,3H); 4.0(s,3H); 5.0(s,2H); 6.8(bs,1H); 6.9(m,1H); 7.1-7.6(m,11H); 7.7(d,1H); 8.0(m,2H)                         |
| 7.10 | 2.2(s,3H); 3.7(s,3H); 3.9(s,3H); 5.0(s,2H); 6.9(m,2H); 7.0-7.5(m,9H); 7.6(s,1H); 7.7(d,2H)                           |

## 【0057】

## 実施例6

本発明の多くの化合物について、後述の病気に対する生体内 (in vivo) における殺菌活性を試験した。化合物を、水、アセトンおよびメタノールの2:1:1(容量)混合液に溶解し、植物上に噴霧し、乾燥させ(1-2時間)、次いで植物に菌を接種した。各試験において、水、アセトンおよびメタノールの混合液を噴霧し、菌を接種した対照植物を利用した。これら試験のそれぞれの残りの技法は後述されており、そして種々な菌に対する第13表における例番号によって示される種々な化合物についての結果は、1ヘクタールにつき300gの投与量において記載された。これらの結果は、対照に比較して病気を防除した%である疾病防除値として報告した。100%は病気が全部防除されたことを示し、0%は病気が全く防除されなかったことを示している。試験用植物に対する菌の適用は次のようにして行った。

## 【0058】

小麦赤サビ病菌 [Wheat Leaf Rust (WLR)]

プクシニア レコンディタ (*Puccinia recondita*) (f. sp. tritici) を、温室内において14日間中、7日齢小麦〔栽培品種フィルダー (Fielder)〕上で培養した。胞子をアルミニウム箔上に落とすことによって葉から集めた。胞子を250ミクロンの開口ふるいを通してふるい分けすることによりきれいにし、貯蔵するかまたは新鮮な胞子を利用した。貯蔵においては、超低温の冷凍器の中において密封した袋を使用した。胞子の懸濁液は、ソルトロール油 (Soltrol oil) の1mLにつき20mg〔950万個の胞子数〕を加えることにより、乾燥夏胞子 (uredia) から造った。この懸濁液を油噴霧器に取り付けたゼラチンカプセル (0.7mL容積) 中に分配した。7日齢のフィルダー小麦の2インチ四方のポットの20個を入れた平箱 (flat) につき1つのカプセルを使用した。小麦の葉から油を蒸発させるために少なくとも15分間待った後、植物を暗いミストチャンバー (dark mist chamber) (18 - 20 および相対湿度100%) に24時間置いた。次いで、潜伏期間の間植物を温室に置き、10日後に病気のレベルを記録した。プロテクティブテストのため、植物に殺菌剤化合物を噴霧して1日後、植物に接種した。

10

【0059】

小麦葉枯病菌 [Wheat Leaf Blotch (SNW)] :

セプトリア・ノドラム (*Septoria nodorum*) を、インキュベータ中のCzapek-Dox V-8 ジュース寒天平板上で、暗所中で、20 で48~72時間保持し、次に、12時間の明所及び12時間の暗所と交互に変え、20 でインキュベートした。胞子の水懸濁液を、脱イオン水中で菌体を有する平板の一部を振り動かし、チーズクロスを通してろ過することによって得た。胞子含有水懸濁液を胞子濃度  $3.0 \times 10^6 / \text{ml}$  に希釈した。接種液を、既に殺菌剤化合物が散布された1週齢超のフィルダー小麦植物に、デビルピス (De Vilbiss) 噴霧器によって散布した。接種した植物を、20 の湿潤キャビネット中、12時間の明所及び12時間の暗所と交互に変え、96時間入れた。接種した種苗を20 に制御された環境室へ移し、8日間インキュベーションした。疾病防除価は防除%として記録された。

20

【0060】

小麦うどんこ病菌 [Wheat Powdery Mildew (WPM)] :

エリシフェ・グラミニス (*Erysiphe graminis*) (f. sp. tritici) を、65°F ~ 70°F で制御された温室中の、小麦の種苗上で培養した。うどんこ病胞子を、培養植物から、既に殺菌剤化合物が噴霧された小麦上へ振り落とした。接種した種苗を65°F ~ 75°F で制御された温室中で保持し、水やりをした。疾病防除価を接種8~10日後に調査した。

30

【0061】

キュウリウドンコ病菌 [Cucumber Powdery Mildew (CPM)] :

スファエロセカ フルギネア (*Sphaerotheca fulginea*) を、温室内に置いて、キュウリ植物、栽培品種ブッシュ チャンピオン (Bush Champion) 上に保持した。水100mLにつきトウィーン80 (Tween 80) の1滴を含む水で葉から胞子を洗うことによって、接種原を造った。植物を振った後に、接種原をチーズクロスを通して濾過し、噴出式のピン霧吹き器を用いて、植物上に霧吹きをした。次いで、感染およびインキュベーションのために、植物を温室内に置いた。接種7日後の植物を評価した。疾病防除価は防除%として記録した。

40

【0062】

トマト疫病菌 [Tomato Late Blight (TLB)] :

フィトフソラ・インフェスタンス (*Phytophthora infestans*) を、CaCO<sub>3</sub> 寒天を加えたV8ジュース上、3~4週間培養した。胞子を水で寒天から洗い落とし、既に実験用の殺菌剤が散布された3週齢超のピクシートマト植物上に、デビルピス 噴霧器によって散布した。接種した植物を、感染のため、20 の湿潤キャビネット中に24時間入れた。次に、植物を制御された20 の環境室へ移した。5日後、疾病制御レベルを調査した。

【0063】

ブドウベト病菌 [Grape Downy Mildew (GDM)] :

プラスモバラ ブビティコラ (*Plasmopara viticola*) を、中程度の光強度があり湿気の

50

ある20に調節された温度の部屋の中で、ブドウ植物、栽培品種デラウェア(Delaware)の葉の上に、7-8日間保持した。感染した葉から胞子の水懸濁物を得て、胞子濃度を水1mLにつき約 $3 \times 10^5$ 個に調節した。小滴がデラウェアのブドウ植物の葉の上に観察されるまで、デビルピス噴霧器を用いて葉の下側に噴霧することにより、デラウェアのブドウ植物に接種した。接種された植物を、ミストチャンバーの中で20で24時間インキュベートした。接種して7日後に、疾病防除価を防除%として記録した。

## 【0064】

1ヘクタールにつき300gの用量において、キュウリウドンコ病菌に対して試験したとき、実施例の化合物1.10、1.15、1.18、1.19、1.24、1.27、1.36、1.38、1.43、1.65、2.12、7.10は、85%またはより良好な疾病防除価を示した。

10

## 【0065】

1ヘクタールにつき300gの用量において、セプトリアノドラムに対して試験したとき、実施例の化合物1.01、1.03、1.04、1.10、1.39、1.43、1.52、1.59、1.63、2.10、3.01、5.01は、85%またはより良好な疾病防除価を示した。

## 【0066】

1ヘクタールにつき300gの用量において、実施例の化合物1.01、1.02、1.03、1.07、1.10、1.18、1.19、1.20、1.21、1.22、1.23、1.24、1.27、1.36、1.39、1.41、1.43、1.51、1.59、1.60、1.63、1.65、2.01、2.03、2.12、5.01、7.10は、小麦赤サビ病菌に対して、90%またはより良好な疾病防除価を示した。

20

## 【0067】

1ヘクタールにつき300gの用量において、実施例の化合物1.02、1.03、1.04、1.10、1.18、1.19、1.21、1.23、1.36、1.39、1.41、1.43、1.65、2.10、2.12は、小麦ウドンコ病菌に対して、75%またはより良好な疾病防除価を示した。

## 【0068】

1ヘクタールにつき300gの用量において、実施例の化合物1.01、1.02、1.03、1.04、1.05、1.07、1.10、1.18、1.19、1.20、1.21、1.22、1.23、1.24、1.27、1.36、1.39、1.43、1.59、1.60、1.63、1.65、2.01、2.02、2.03、2.12、3.01、5.01、7.10は、ブドウベト病菌に対して95%またはより良好な疾病防除価を示した。

30

## 【0069】

1ヘクタールにつき300gの用量において、実施例の化合物1.01、1.04、1.05、1.07、1.10、1.15、1.18、1.38、1.39、1.43、1.52、1.59、2.01、2.12、7.10は、トマト疫病菌に対して90%またはより良好な疾病防除価を示した。

## 【0070】

本発明の化合物は農業用殺菌剤として有用であり、例えば、種子、土壌、または葉のような種々の対象(loci)場所に適用することができる。

40

## 【0071】

本発明の化合物は、例えば慣用の高ガロン量液圧スプレー、低ガロン量スプレー、空気プラスチックスプレー、気圧スプレーおよび微粉のような通常使用される装置により、殺菌性スプレーとして適用することができる。希釈率および適用の割合は、使用する装置のタイプ、適用の方法、処理すべき植物、および防除すべき疾病に依存する。一般的に、本発明の化合物は、1ヘクタールにつき活性成分の約0.005kg-約50kg、好ましくは1ヘクタールにつき活性成分の約0.025kg-約25kgの量において適用する。

## 【0072】

50

種子保護剤としては、種子上に被覆される毒性物質の量は、通常、種子100kgにつき、約0.05 - 約20g、好ましくは約0.05 - 約4g、そして更に好ましくは約0.1 - 約1gの用量割合である。土壌殺菌剤としては、化学物質は、通常、1ヘクタールにつき、約0.02 - 約20kg、好ましくは約0.05 - 約10kg、そして更に好ましくは約0.1 - 約5kg、の割合において、土壌の中に入れることもでき、または土壌の表面に適用することもできる。葉の殺菌剤として、毒性物質は、通常、1ヘクタールにつき、約0.01 - 約10kg、好ましくは約0.02 - 約5kg、そして更に好ましくは約0.25 - 約1kg、の割合において、生育植物に適用する。

#### 【0073】

本発明の化合物は、殺菌活性を現すので、これらの化合物を、他の既知の殺菌剤と組み合わせることで広いスペクトルの活性を提供することができる。適当な殺菌剤には、米国特許第5,252,594号(特に、第14欄および第15欄参照)に列挙されている殺菌剤化合物が包含されるが、これらに限定されない。

10

#### 【0074】

本発明の化合物は、種々の方法で有利に使用できる。これらの化合物は広いスペクトルの殺菌活性を有しているため、それらは、穀物、穀粒の貯蔵に使用することができる。また、これらの複合物は、小麦、大麦およびライムギを包含する穀物、米、落花生、豆およびブドウ、芝生上、果物、木の実および野菜果樹園における殺菌剤として、そしてゴルフコース用の殺菌剤として使用することができる。

#### 【0075】

本発明の化合物が有効である病気の例にはトウモロコシおよび大麦のヘルミントスポリウム(helminthosporium)、小麦および大麦のウドンコ病(powdery mildew)、小麦赤サビ病および黒サビ病(wheat leaf and stem rusts)、トマトの夏枯病(tomato early blight)、トマトの疫病菌(tomato late blight)、落花生斑点病(peanut early leaf spot)、ブドウウドンコ病(grape powdery mildew)、ブドウ房枯病(grape black rot)、リンゴ黒星病(apple scab)、リンゴウドンコ病(apple powdery mildew)、キュウリウドンコ病(cucumber powdery mildew)、果物の灰星病(brown rot of fruits)、灰色かび病(botrytis)、豆ウドンコ病(bean powdery mildew)、キュウリ炭そ病(cucumber anthracnose)、小麦セプトリア ノドラム(Wheat septoria nodorum)、米紋枯病(rice sheath blight)、および米いもち病(rice blast)が包含される。

20

#### 【0076】

##### 実施例7

本発明の多数の化合物について、後述の虫に対する生体内(in vivo)における殺虫活性を試験した。次の試験方法を、本発明の化合物の殺虫活性を評価するのに使用した。評価すべき化合物を、適当な溶媒、通常はアセトン、メタノールおよび水の混合液に溶解し、平らなファンノズルを使用して切り取った3枚のリーフディスク(leaf disk)上に噴霧した。噴霧後、リーフディスクを乾燥した。2枚のディスクに葉をかんで食べる虫〔サウザンアーミーウォーム(southern armyworm)およびメキシカン ビーン ビートル(Mexican bean beetle)で汚染し、第3のリーフディスクは噴霧前に既にナミハダニ(two-spotted spider mite)で汚染した。試験した虫の種は次の通りである。

30

40

#### 【0077】

AW サウザンアーミーウォーム [southern armyworm :  
(*Spodoptera eridamia*) ]

BB メキシカン ビーン ビートル [Mexican bean beetle :  
(*Epilachna varivestis*) ]

MTA ナミハダニ [two-spotted spider mite :  
(*Teranychus uricatus*) ]

【 0 0 7 8 】

6 0 0 g / ヘクタールにおいてサウザンアーミーウォームに対して試験したときは、実施例の化合物 1 . 4 3、7 . 0 1 は、9 0 % またはより良好な防除 % を示した。

【 0 0 7 9 】

3 0 0 g / ヘクタールにおいてメキシカンビーンビートルに対して試験したときは、実施例の化合物 1 . 0 7、1 . 1 0、1 . 1 8、1 . 2 1、1 . 2 7、1 . 3 8、1 . 3 9、1 . 4 1、1 . 4 3、1 . 6 5、2 . 0 3、7 . 1 0 は、9 0 % またはより良好な防除 % を示した。

【 0 0 8 0 】

3 0 0 g / ヘクタールにおいてナミハダニに対して試験したときは、実施例の化合物 1 . 3 8、2 . 0 3 は、9 0 % またはより良好な防除 % を示した。

【 0 0 8 1 】

本発明の組成物および化合物は、例えば虫に冒された植物のまわりの領域 (arear) またはそのような植物上に、または虫に汚染されるのを防ぐべき植物のような保護すべき対象に、直接適用することができる。有害な虫の例は、鱗翅目 (*Lepidoptera*)、甲虫目 (*Colleoptera*)、双翅目 (*Diptera*)、あざみうま目 (*Thysanoptera*)、膜翅目 (*Hymenoptera*)、異翅目 (*Heteroptera*)、同翅目 (*Homoptera*)、直翅目 (*Orthoptera*)、およびダニ目 (*Acarina*) に属するものがあげられる。本発明の化合物および組成物は、接触有害生物防除剤または浸透性有害生物防除剤 (systemic pesticide) のいずれとしても使用できる。本発明の化合物は、虫の生息地に、1 ヘクタールにつき 0 . 0 0 0 5 - 1 0 k g、好ましくは 1 ヘクタールにつき 0 . 0 5 - 5 k g、そしてもっとも好ましくは 1 ヘクタールにつき 0 . 1 - 1 k g の割合において適用される。

【 0 0 8 2 】

本発明方法の実施においては、活性化合物を土壌または葉に適用してよい。そこにおいて、活性化合物は植物によって吸収され、植物の他の部分に移動し、最後にそれらの植物部分を摂取させるやり方で有害植物または虫に摂取させる。この施用方法は、「浸透 (systemic)」施用と称されている。別の方法として、活性化合物を土壌に適用し、その中で、虫および防除すべき他の有害物質と接触させてもよい。この使用方法は、「土壌」施用と称されている。他の別の方法においては、活性化合物を葉から植物に適用して、葉を常食とする虫および他の有害生物を防除してもよい。

【 0 0 8 3 】

また、本発明による組成物および配合物には、既知の有害生物防除用化合物を含有させてもよい。これは、調製物の活性スペクトルの範囲を拡大する。当業界において知られている適当な殺虫剤には、米国特許第 5, 0 7 5, 4 7 1 号 (特に、第 1 4 欄および第 1 5 欄、参照) に列挙された殺虫剤が包含される。

【 0 0 8 4 】

本発明の化合物は、組成物および配合物の形態において使用できる。組成物および配合物の例は、Wade Van Valkenburgによって書かれたアメリカ化学会出版の "Pesticidal Formulation Research", (1969), Advances in Chemistry Series No.86; および Wade Van Valkenburgによって編集された Marcel Dekker, Inc. 出版の "Pesticide Formulations", (1973)、の中に見出すことができる。これらの組成物および配合物におい

10

20

30

40

50

ては、活性物質は、公知の有害生物防除剤の組成物または配合物において使用可能なタイプの、慣用の不活性な農作物栽培上許容できる（すなわち、植物と両立でき、および/または有害生物防除的に不活性な）有害生物防除剤の希釈剤または増量剤例えば固体担体物質または液体担体物質と混合される。用語「農作物栽培上許容できる担体」は、活性成分の効果を減じることなしに組成物中の活性成分を溶解し、分散し、または拡散させるのに使用することができ、かつそれ自体、土壌、装置、所望の植物、または農作物栽培の環境に重大な有害な影響を与えない、物質を意味する。また、所望により、助剤、例えば界面活性剤、安定剤、消泡剤、および抗ドリフト剤（antidrift agent）を組み合わせてもよい。

**【 0 0 8 5 】**

本発明による組成物および配合物の例は、水性溶液および水性分散液、油性溶液および油性分散液、ペースト、微粉(dust powder)、水和剤(wettable powder)、乳剤、フロアブル、粒剤、餌剤、逆相エマルジョン、エアゾール、およびくん蒸用キャンドル（fumigating candles）があげられる。水和剤、ペースト、フロアブル、および乳剤は、使用前または使用中に水で希釈される濃厚調製物である。そのような配合物においては、本発明の化合物は、液体担体または固体担体で増量され、所望により、適当な界面活性剤が添加される。餌剤は、一般的に、虫にとって魅力のある食物または他の物質を含有しており、本発明の少なくとも1種の化合物を含有している調製物である。

通常、特に葉に噴霧する配合物のケースにおいては、農業上の慣行に従って、助剤、例えば、湿潤剤、展着剤、分散剤、固着剤、接着剤などを含有させることが望ましい。当業界において通常使用されるそのような助剤および関連する議論は、多くの文献の中に、例えばJohn W. McCutcheon, Inc. 出版の“Detergents and Emulsifiers Annual”の中に、見出すことができる。

**【 0 0 8 6 】**

本発明の活性化合物は、単独で、または、もう1種の本発明の化合物との混合物、および/または固体および/または液体の分散性担体ビヒクルとの混合物、および/または他の既知の混和性活性成分、特に植物保護剤、例えば他の殺虫剤、殺節足動物剤、殺線虫剤、殺菌剤、殺バクテリア剤、殺そ剤（rodenticides）、除草剤、肥料、生長調節剤、相乗剤との混合物の形態において、使用してもよい。

**【 0 0 8 7 】**

本発明の組成物において、活性化合物は、実質的に約0.0001 - 99重量%の量において存在する。貯蔵または輸送用に適した組成物のためには、活性成分の量は、好ましくは混合物の約0.5 - 約90重量%、更に好ましくは混合物の約1 - 約75重量%である。一般的に、直接の適用または農場の適用のための組成物には、実質的に、混合物の約0.0001 - 約95重量%、好ましくは混合物の約0.0005 - 約90重量%、そして更に好ましくは混合物の約0.001 - 約75重量%の量において活性化合物を含有させる。また、組成物は、化合物：担体の比として述べることもできる。本発明においては、これらの物質（活性物質：担体）の重量比は、99：1 - 1：4、そして更に好ましくは10：1 - 1：3に変えることができる。

**【 0 0 8 8 】**

一般的に、本発明の化合物は、ある種の溶媒、例えばアセトン、メタノール、エタノール、ジメチルホルムアミド、ピリジン、またはジメチルスルフォキシドに溶解させることができ、そのような溶液は水で希釈することができる。溶液の濃度は、約1% - 約90%、好ましい範囲約5% - 約50%で変えることができる。

**【 0 0 8 9 】**

乳剤の調製においては、化合物を乳化剤と一緒に適当な有機溶媒または混合溶剤に溶解させ、水中における化合物の分散を向上させることができる。通常、乳化性濃厚物における活性成分の濃度は、約10% - 約90%であり、フロアブルにおいては、約75%程度まで大きくできる。

**【 0 0 9 0 】**

噴霧のために適当な水和剤は、化合物を、微粉碎された固体、例えばクレー、無機ケイ酸塩および炭酸塩、およびシリカと混合し、そしてそのような混合物に、湿潤剤、固着剤、および/または分散剤を添加して造ることができる。そのような配合物における活性成分の濃度は、通常、約20% - 約99%、好ましくは約40% - 約75%の範囲である。典型的な水和剤は、ピリダジノン50部、合成沈降水和二酸化ケイ素、例えば商品名Hi-Sil Rとして販売されている製品の45部、およびリグノスルホン酸ナトリウム5部、をブレンドすることによって造られる。他の調製物においては、カオリン型〔バーデン(Barden)〕クレーを、前記水和剤におけるHi-Silの代わりに使用し、そしてその他のそのような調製物においては、Hi-Silの25%を、合成シリコアルミン酸ナトリウム-Zeolex 7(登録商標)として販売されている - で置き換える。

10

**【0091】**

粉剤(dusts)は、式Iの化合物、またはそれらの光学的対掌体、塩および錯体を、微粉碎された不活性固体 - それらは性質において有機または無機のものでよい - と混合することによって造られる。この目的のために有用な物質には、植物(穀物)の粉末、シリカ、ケイ酸塩、炭酸塩、およびクレーが包含される。粉剤を造るための1つの便利な方法は、水和剤を微粉碎した担体で希釈することである。通常は、活性成分約20% - 約80%を含有する粉剤濃厚物を造り、次いで約1% - 約10%の使用濃度に希釈する。

**【0092】**

活性化化合物は、通常使用されている装置、例えば高ガロン量液圧スプレー、低ガロン量スプレー、超低容量スプレー、空気ブラストスプレーおよび微粉により、殺菌性スプレーとして適用することができる。

20

**【0093】**

また、本発明には、有害生物を、本発明の少なくとも1種の活性化化合物の有効量または毒性量(すなわち、有害生物防除有効量)と、単独で、または前述したような担体ビヒクル(組成物または配合物)と共に、接触させることから成る、有害生物を殺生し、有害生物と戦い、または有害生物を防除する方法も企図されている。本明細書および特許請求の範囲に使用されている用語「接触」は、(a)そのような有害物質および(b)それらの相応する生息地の少なくとも1つに(すなわち、保護すべき場所、例えば生育作物に、または作物が生育すべき場所に)、本発明の化合物を、単独で、または組成物または配合物の1成分として、適用することを意味している。

30

**【0094】**

前述の諸成分に加えて、本発明による調製物には、また、本種類の調製物に通常使用される他の物資を含有させてもよい。例えば、滑剤、例えば、ステアリン酸カルシウムまたはステアリン酸マグネシウムを、水和剤または粒状化すべき混合物に添加してもよい。更に、例えば、「接着剤」例えばポリビニルアルコール-セルロース誘導体または他のコロイド性物質例えばカゼインを添加して、保護すべき表面への有害生物防除剤の接着を改良させることもできる。

---

 フロントページの続き

(51) Int.Cl. F I  
 A 0 1 N 43/10 (2006.01) A 0 1 N 43/10  
 A 0 1 N 43/40 (2006.01) A 0 1 N 43/40 1 0 1

(72) 発明者 ロナルド・ロス  
 アメリカ合衆国ペンシルバニア州 1 8 9 2 9、ジェミソン、エリコ・ドライブ 2 1 9 8  
 (72) 発明者 テッド・ツトム・フジモト  
 アメリカ合衆国ペンシルバニア州 1 8 9 6 6、チャーチビル、イー・ノートン・ドライブ 4 4  
 (72) 発明者 スティーブン・ハワード・シャバー  
 アメリカ合衆国ペンシルバニア州 1 9 0 4 4、ホーシャム、アシュ・ストーカー・レーン 4 4

審査官 吉住 和之

(56) 参考文献 特開昭 6 3 - 2 1 6 8 4 8 ( J P , A )  
 米国特許第 0 5 1 8 5 3 4 2 ( U S , A )

(58) 調査した分野(Int.Cl. , D B 名)  
 CA(STN)  
 REGISTRY(STN)