

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5729889号  
(P5729889)

(45) 発行日 平成27年6月3日(2015.6.3)

(24) 登録日 平成27年4月17日(2015.4.17)

(51) Int.Cl.		F I	
C O 7 D 401/12	(2006.01)	C O 7 D 401/12	C S P
C O 7 D 413/12	(2006.01)	C O 7 D 413/12	
C O 7 D 405/14	(2006.01)	C O 7 D 405/14	
C O 7 D 401/14	(2006.01)	C O 7 D 401/14	
C O 7 D 413/14	(2006.01)	C O 7 D 413/14	

請求項の数 5 (全 42 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2013-539651 (P2013-539651)	(73) 特許権者	000004307
(86) (22) 出願日	平成24年10月17日(2012.10.17)		日本曹達株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2012/076767		東京都千代田区大手町2丁目2番1号
(87) 国際公開番号	W02013/058256	(74) 代理人	100064908
(87) 国際公開日	平成25年4月25日(2013.4.25)		弁理士 志賀 正武
審査請求日	平成26年3月27日(2014.3.27)	(74) 代理人	100108578
(31) 優先権主張番号	特願2011-228373 (P2011-228373)		弁理士 高橋 詔男
(32) 優先日	平成23年10月17日(2011.10.17)	(74) 代理人	100089037
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		弁理士 渡邊 隆
		(74) 代理人	100094400
			弁理士 鈴木 三義
		(74) 代理人	100108453
			弁理士 村山 靖彦

最終頁に続く

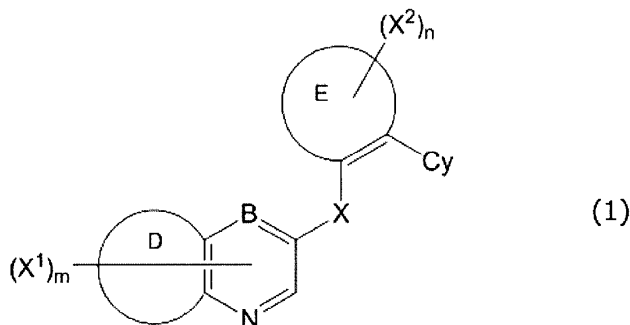
(54) 【発明の名称】 含窒素ヘテロ環化合物および農園芸用殺菌剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

式(1)：

【化1】



式(1)中、

Cyは、無置換の若しくは置換基を有する5員ヘテロアリアル基、無置換の若しくは置換基を有する6員ヘテロアリアル基、無置換の若しくは置換基を有する部分不飽和の5員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有する部分不飽和の6員ヘテロ環基を示し；

Bは、炭素原子を示し；

D は、ベンゼン環を示し；

X<sup>1</sup> は、それぞれ独立に無置換の若しくは置換基を有する C 1 ~ 8 アルキル基、無置換の若しくは置換基を有する C 2 ~ 8 アルケニル基、無置換の若しくは置換基を有する C 3 ~ 8 シクロアルキル基、無置換の若しくは置換基を有する C 4 ~ 8 シクロアルケニル基、無置換の若しくは置換基を有する C 6 ~ 10 アリール基、無置換の若しくは置換基を有する 5 ~ 6 員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有する C 1 ~ 8 アシル基、無置換の若しくは置換基を有する (1 - イミノ) C 1 ~ 8 アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するカルボキシル基、無置換の若しくは置換基を有するカルバモイル基、無置換の若しくは置換基を有する水酸基、無置換の若しくは置換基を有するアミノ基、無置換の若しくは置換基を有するメルカプト基、置換基を有するスルホニル基、ハロゲノ基、シアノ基、またはニトロ基を示し；

10

m は、X<sup>1</sup> の個数を示し、0 ~ 6 のいずれかの整数であり；

E は、5 ~ 7 員炭化水素環または 5 ~ 7 員ヘテロ環を示し；

X<sup>2</sup> は、それぞれ独立に無置換の若しくは置換基を有する C 1 ~ 8 アルキル基、無置換の若しくは置換基を有する C 2 ~ 8 アルケニル基、無置換の若しくは置換基を有する C 3 ~ 8 シクロアルキル基、無置換の若しくは置換基を有する C 4 ~ 8 シクロアルケニル基、無置換の若しくは置換基を有する C 6 ~ 10 アリール基、無置換の若しくは置換基を有する 5 ~ 6 員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有する C 1 ~ 8 アシル基、無置換の若しくは置換基を有する (1 - イミノ) C 1 ~ 8 アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するカルボキシル基、無置換の若しくは置換基を有するカルバモイル基、無置換の若しくは置換基を有する水酸基、無置換の若しくは置換基を有するアミノ基、無置換の若しくは置換基を有するメルカプト基、置換基を有するスルホニル基、ハロゲノ基、シアノ基、またはニトロ基を示し；

20

n は、X<sup>2</sup> の個数を示し、0 ~ 4 のいずれかの整数であり；

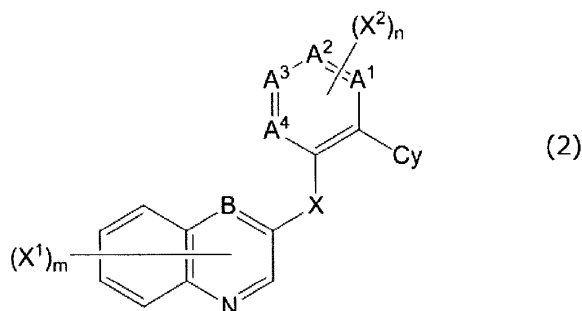
X は、酸素原子を示す、

で表される含窒素ヘテロ環化合物、またはその塩若しくは N - オキサイド化合物。

【請求項 2】

前記式 (1) が、式 (2)：

【化 2】



30

式 (2) 中、

Cy、X<sup>1</sup>、m、X<sup>2</sup>、n、B、および X は、前記式 (1) 中のそれぞれと同じ意味を示し；

A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>、A<sup>3</sup>、および A<sup>4</sup> は、それぞれ独立して、炭素原子または窒素原子を示す、

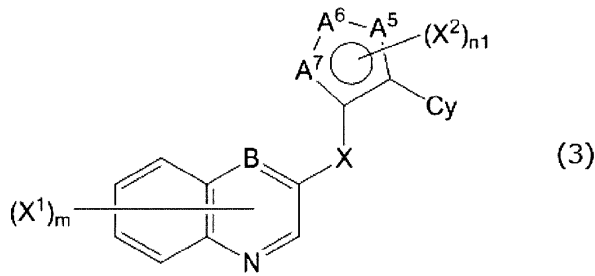
で表されることを特徴とする請求項 1 に記載の含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくは N - オキサイド化合物。

【請求項 3】

前記式 (1) が、式 (3)：

40

## 【化3】



10

式(3)中、

Cy、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、B、およびXは、前記式(1)中のそれぞれと同じ意味を示し；

$n1$ は、 $X^2$ の個数を示し、0～3のいずれかの整数であり；

$A^5$ 、 $A^6$ 、および $A^7$ は、それぞれ独立して、炭素原子、窒素原子、酸素原子、または硫黄原子を示すが、酸素原子同士、硫黄原子同士、酸素原子と硫黄原子の組み合わせが隣接することはない、

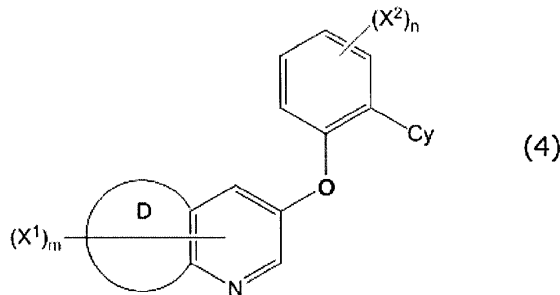
で表されることを特徴とする請求項1に記載の含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物。

20

## 【請求項4】

前記式(1)が、式(4)：

## 【化4】



30

式(4)中、Cy、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、 $n$ 、およびDは、前記式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す、

で表される請求項1に記載の含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物。

## 【請求項5】

請求項1～4のいずれか1項に記載の含窒素ヘテロ環化合物、またはその塩若しくはN-オキサイド化合物から選ばれる少なくとも1種を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤。

40

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物に関する。より詳細に、本発明は、効果が確実で安全に使用できる農園芸用殺菌剤、および農園芸用殺菌剤の有効成分として有用な含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物に関する。

本願は、2011年10月17日に日本に出願された特願2011-228373号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

50

## 【背景技術】

## 【0002】

農園芸作物の病害に対して多数の防除薬剤が知られている。しかし、従来の防除薬剤の多くは、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によりその使用が制限されたり、植物体に薬害や汚染を生じさせたり、若しくは人畜魚類に対する毒性や環境への影響が大きかったりなどで、十分に満足できるものではなかった。そのため、かかる欠点の少ない薬剤の出現が強く要望されている。

## 【0003】

特許文献1～3には、本発明化合物と類似の化学構造を有するキノリン誘導体、およびそれを有効成分として含有する農園芸用殺菌剤が開示されている。

10

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0004】

【特許文献1】WO2005/070917号パンフレット

【特許文献2】WO2007/011022号パンフレット

【特許文献3】WO2011/081174号パンフレット

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

本発明は、効果が確実で安全に使用できる農園芸用殺菌剤、および農園芸用殺菌剤の有効成分として有用な含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物を提供することを課題とする。

20

## 【課題を解決するための手段】

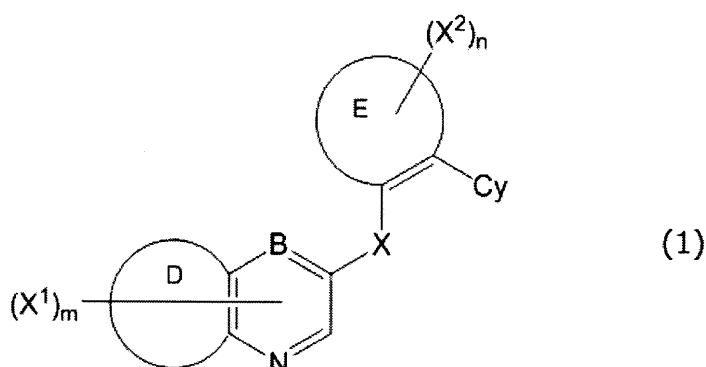
## 【0006】

本発明は以下の態様を包含するものである。

〔1〕 式(1)で表される含窒素ヘテロ環化合物、またはその塩若しくはN-オキサイド化合物。

## 【0007】

## 【化1】



30

## 【0008】

上記式(1)中、Cyは、無置換の若しくは置換基を有する5員ヘテロアリアル基、無置換の若しくは置換基を有する6員ヘテロアリアル基、無置換の若しくは置換基を有する部分不飽和の5員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有する部分不飽和の6員ヘテロ環基を示す。

Bは、炭素原子を示す。

Dは、ベンゼン環を示す。

X¹は、それぞれ独立に無置換の若しくは置換基を有するC1～8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC2～8アルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC3～8シクロアルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC4～8シクロアルケニル基、

40

50

無置換の若しくは置換基を有するC<sub>6</sub>~10アリール基、無置換の若しくは置換基を有する5~6員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有するC<sub>1</sub>~8アシル基、無置換の若しくは置換基を有する(1-イミノ)C<sub>1</sub>~8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するカルボキシル基、無置換の若しくは置換基を有するカルバモイル基、無置換の若しくは置換基を有する水酸基、無置換の若しくは置換基を有するアミノ基、無置換の若しくは置換基を有するメルカプト基、置換基を有するスルホニル基、ハロゲノ基、シアノ基、またはニトロ基を示す。mは、X<sup>1</sup>の個数を示し、0~6のいずれかの整数である。

Eは、5~7員炭化水素環または5~7員ヘテロ環を示す。

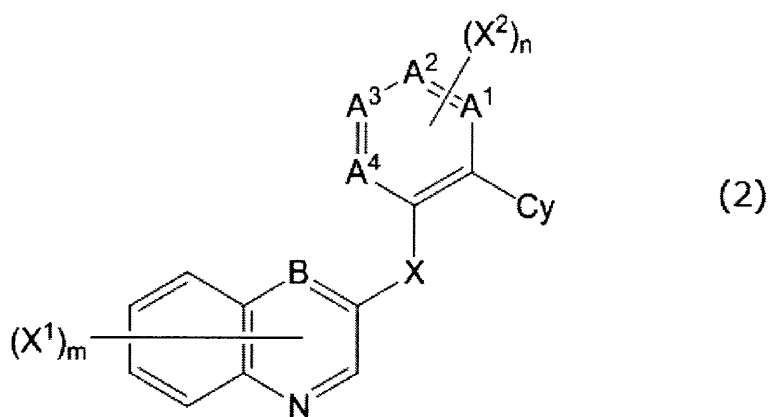
X<sup>2</sup>は、それぞれ独立に無置換の若しくは置換基を有するC<sub>1</sub>~8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC<sub>2</sub>~8アルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC<sub>3</sub>~8シクロアルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC<sub>4</sub>~8シクロアルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC<sub>6</sub>~10アリール基、無置換の若しくは置換基を有する5~6員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有するC<sub>1</sub>~8アシル基、無置換の若しくは置換基を有する(1-イミノ)C<sub>1</sub>~8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するカルボキシル基、無置換の若しくは置換基を有するカルバモイル基、無置換の若しくは置換基を有する水酸基、無置換の若しくは置換基を有するアミノ基、無置換の若しくは置換基を有するメルカプト基、置換基を有するスルホニル基、ハロゲノ基、シアノ基、またはニトロ基を示す。nは、X<sup>2</sup>の個数を示し、0~4のいずれかの整数である。

Xは、酸素原子を示す。

〔2〕 上記の式(1)が、式(2)で表されることを特徴とする上記〔1〕に記載の含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物。

【0009】

【化2】



【0010】

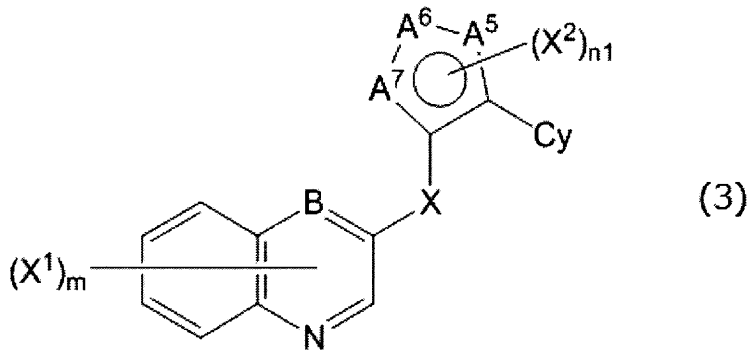
上記の式(2)中、Cy、X<sup>1</sup>、m、X<sup>2</sup>、n、B、およびXは、上記の式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す。

A<sup>1</sup>、A<sup>2</sup>、A<sup>3</sup>、およびA<sup>4</sup>は、それぞれ独立して、炭素原子または窒素原子を示す。

〔3〕 上記の式(1)が、式(3)で表されることを特徴とする上記〔1〕に記載の含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若しくはN-オキサイド化合物。

【0011】

## 【化3】



10

## 【0012】

上記の式(3)中、Cy、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、B、およびXは、上記の式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す。 $n_1$ は、 $X^2$ の個数を示し、0~3のいずれかの整数である。

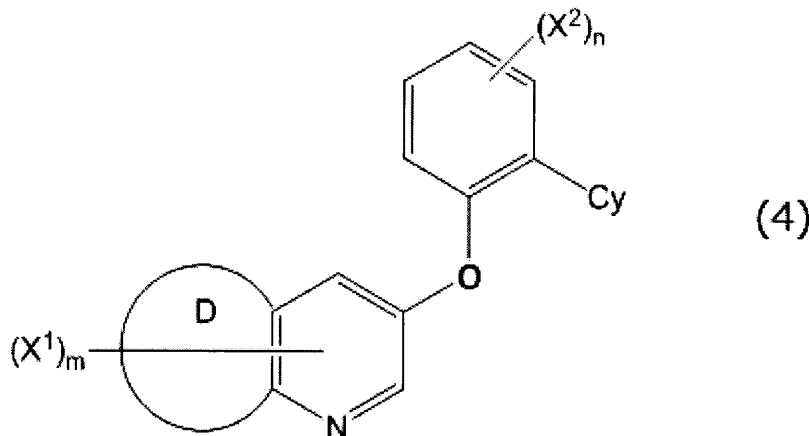
$A^5$ 、 $A^6$ 、および $A^7$ は、それぞれ独立して、炭素原子、窒素原子、酸素原子、または硫黄原子を示す。ただし、酸素原子同士、硫黄原子同士、酸素原子と硫黄原子の組み合わせが隣接することはない。

〔4〕 上記の式(1)が、式(4)で表される上記〔1〕に記載の含窒素ヘテロ環化合物、またはその塩若しくはN-オキサイド化合物。

20

## 【0013】

## 【化4】



30

## 【0014】

上記の式(4)中、Cy、D、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、およびnは、上記の式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す。

## 【0015】

〔5〕 上記の〔1〕~〔4〕のいずれか1項に記載の含窒素ヘテロ環化合物、またはその塩もしくはN-オキサイド化合物から選ばれる少なくとも1種を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤。

40

## 【発明の効果】

## 【0016】

本発明の含窒素ヘテロ環化合物は、農園芸用殺菌剤の有効成分として有用な新規化合物である。本発明の農園芸用殺菌剤は、確実に優れた防除効果を有し、植物体に薬害を生じることがなく、人畜魚類に対する毒性や環境への影響が少ない、安全な薬剤である。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0017】

本発明者らは、式(1)~式(4)で表される含窒素ヘテロ環化合物の含窒素ヘテロ環

50

化合物は農園芸用殺菌剤の有効成分として効果が確実に安全に使用できることを見出し、当該知見に基づきさらに検討を重ね本発明を完成するに至った。

【0018】

以下、本発明を、1) 含窒素ヘテロ環化合物と、2) 農園芸用殺菌剤とに項分けして詳細に説明する。

【0019】

1) 含窒素ヘテロ環化合物

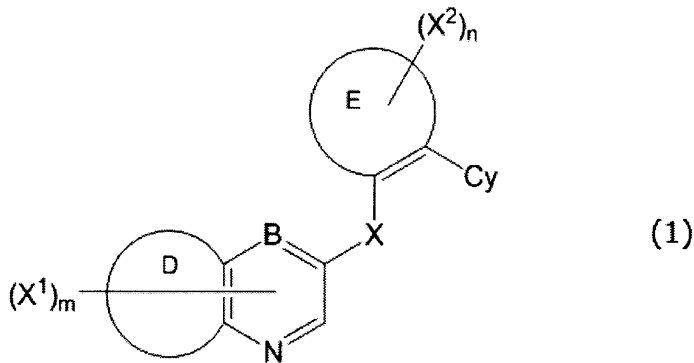
〔式(1)で表される化合物〕

本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物は、式(1)で表される化合物(以下、「化合物(1)」)と表記することがある。) またはその塩若しくはN-オキサイド化合物である。

10

【0020】

【化5】



20

【0021】

本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物には、水和物、各種溶媒和物や結晶多形などが含まれる。さらに、本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物は、不斉炭素原子、二重結合などに基づく立体異性体およびそれらの混合物を包含する。

【0022】

まず、式(1)における、「無置換の」および「置換基を有する」の意味を説明する。

「無置換の」の用語は、母核となる基のみであることを意味する。「置換基を有する」との記載がなく母核となる基の名称のみで記載しているときは、別段の断りがない限り「無置換の」意味である。

30

一方、「置換基を有する」の用語は、母核となる基のいずれかの水素原子が、母核と同種または異種の構造の基で置換されていることを意味する。従って、「置換基」は、母核となる基に結合した他の基である。置換基は1つであってもよいし、2つ以上であってもよい。2つ以上の置換基は同一であってもよいし、異なるものであってもよい。

「C1~6」などの用語は、母核となる基の炭素原子数が1~6個などであることを表している。この炭素原子数には、置換基の中に在る炭素原子の数を含まない。例えば、置換基としてエトキシ基を有するブチル基は、C2アルコキシC4アルキル基に分類する。

【0023】

「置換基」は化学的に許容され、本発明の効果を有する限りにおいて特に制限されない。

40

「置換基」となり得る基としては、フルオロ基、クロロ基、プロモ基、イオド基などのハロゲン基；メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、i-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基などのC1~6アルキル基；シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などのC3~6シクロアルキル基；ビニル基、1-プロペニル基、2-プロペニル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1-メチル-2-プロペニル基、2-メチル-2-プロペニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、3-ペンテニル基、4-ペンテニル基、1-メチル-2-ブテニル基、2-メチル-2-ブテニ

50

ル基、1 - ヘキセニル基、2 - ヘキセニル基、3 - ヘキセニル基、4 - ヘキセニル基、5 - ヘキセニル基などのC 2 ~ 6 アルケニル基； 2 - シクロプロペニル基、2 - シクロペンテニル基、3 - シクロヘキセニル基などのC 3 ~ 6 シクロアルケニル基； エチニル基、1 - プロピニル基、2 - プロピニル基、1 - ブチニル基、2 - ブチニル基、3 - ブチニル基、1 - メチル - 2 - プロピニル基、2 - メチル - 3 - ブチニル基、1 - ペンチニル基、2 - ペンチニル基、3 - ペンチニル基、4 - ペンチニル基、1 - メチル - 2 - ブチニル基、2 - メチル - 3 - ペンチニル基、1 - ヘキシニル基、1, 1 - ジメチル - 2 - ブチニル基などのC 2 ~ 6 アルキニル基；

## 【 0 0 2 4 】

メトキシ基、エトキシ基、n - プロポキシ基、i - プロポキシ基、n - ブトキシ基、s - ブトキシ基、i - ブトキシ基、t - ブトキシ基などのC 1 ~ 6 アルコキシ基； ビニルオキシ基、アリルオキシ基、プロペニルオキシ基、ブテニルオキシ基などのC 2 ~ 6 アルケニルオキシ基； エチニルオキシ基、プロパルギルオキシ基などのC 2 ~ 6 アルキニルオキシ基； フェニル基、ナフチル基などのC 6 ~ 10 アリール基； フェノキシ基、1 - ナフトキシ基などのC 6 ~ 10 アリールオキシ基； ベンジル基、フェネチル基などのC 7 ~ 11 アラルキル基； ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基などのC 7 ~ 11 アラルキルオキシ基； ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ベンゾイル基、シクロヘキシルカルボニル基などのC 1 ~ 7 アシル基； ホルミルオキシ基、アセチルオキシ基、プロピオニルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、シクロヘキシルカルボニルオキシ基などのC 1 ~ 7 アシルオキシ基； メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、n - プロポキシカルボニル基、i - プロポキシカルボニル基、n - ブトキシカルボニル基、t - ブトキシカルボニル基などのC 1 ~ 6 アルコキシカルボニル基； カルボキシル基；

## 【 0 0 2 5 】

水酸基； オキソ基 ( = O )； クロロメチル基、クロロエチル基、トリフルオロメチル基、1, 2 - ジクロロ - n - プロピル基、1 - フルオロ - n - ブチル基、パーフルオロ - n - ペンチル基などのC 1 ~ 6 ハロアルキル基； 2 - クロロ - 1 - プロペニル基、2 - フルオロ - 1 - ブテニル基などのC 2 ~ 6 ハロアルケニル基； 4, 4 - ジクロロ - 1 - ブチニル基、4 - フルオロ - 1 - ペンチニル基、5 - プロモ - 2 - ペンチニル基などのC 2 ~ 6 ハロアルキニル基； 2 - クロロ - n - プロポキシ基、2, 3 - ジクロロブトキシ基などのC 1 ~ 6 ハロアルコキシ基； 2 - クロロプロペニルオキシ基、3 - プロモブテニルオキシ基などのC 2 ~ 6 ハロアルケニルオキシ基； 4 - クロロフェニル基、4 - フルオロフェニル基、2, 4 - ジクロロフェニル基などのC 6 ~ 10 ハロアリール基； 4 - フルオロフェニルオキシ基、4 - クロロ - 1 - ナフトキシ基などのC 6 ~ 10 ハロアリールオキシ基； クロロアセチル基、トリフルオロアセチル基、トリクロロアセチル基、4 - クロロベンゾイル基などのC 1 ~ 7 ハロアシル基；

## 【 0 0 2 6 】

シアノ基； イソシアノ基； ニトロ基； イソシアナト基； シアナト基； アジド基； アミノ基； メチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基などのC 1 ~ 6 アルキルアミノ基； アニリノ基、ナフチルアミノ基などのC 6 ~ 10 アリールアミノ基； ベンジルアミノ基、フェニルエチルアミノ基などのC 7 ~ 11 アラルキルアミノ基； ホルミルアミノ基、アセチルアミノ基、プロパノイルアミノ基、ブチリルアミノ基、i - プロピルカルボニルアミノ基、ベンゾイルアミノ基などのC 1 ~ 7 アシルアミノ基； メトキシカルボニルアミノ基、エトキシカルボニルアミノ基、n - プロポキシカルボニルアミノ基、i - プロポキシカルボニルアミノ基などのC 1 ~ 6 アルコキシカルボニルアミノ基； カルバモイル基； ジメチルカルバモイル基、フェニルカルバモイル基、N - フェニル - N - メチルカルバモイル基などの置換カルバモイル基； イミノメチル基、( 1 - イミノ ) エチル基、( 1 - イミノ ) - n - プロピル基などのイミノC 1 ~ 6 アルキル基； ヒドロキシイミノメチル基、( 1 - ヒドロキシイミノ ) エチル基、( 1 - ヒドロキシイミノ ) プロピル基などのヒドロキシイミノC 1 ~ 6 アルキル基；メトキシイミノメチル基、( 1 - メトキシイミノ ) エチル基などのC 1 ~ 6 アルコキシイミノC 1 ~ 6 アルキ

10

20

30

40

50



ル基；

【0027】

メルカプト基； イソチオシアナト基； チオシアナト基； メチルチオ基、エチルチオ基、*n*-プロピルチオ基、*i*-プロピルチオ基、*n*-ブチルチオ基、*i*-ブチルチオ基、*s*-ブチルチオ基、*t*-ブチルチオ基などのC1～6アルキルチオ基； ビニルチオ基、アリルチオ基などのC2～6アルケニルチオ基； エチニルチオ基、プロパルギルチオ基などのC2～6アルキニルチオ基； フェニルチオ基、ナフチルチオ基などのC6～10アリールチオ基； チアゾリルチオ基、ピリジルチオ基などのヘテロアリールチオ基； ベンジルチオ基、フェネチルチオ基などのC7～11アラルキルチオ基； (メチルチオ)カルボニル基、(エチルチオ)カルボニル基、(*n*-プロピルチオ)カルボニル基、(*i*-プロピルチオ)カルボニル基、(*n*-ブチルチオ)カルボニル基、(*i*-ブチルチオ)カルボニル基、(*s*-ブチルチオ)カルボニル基、(*t*-ブチルチオ)カルボニル基などの(C1～6アルキルチオ)カルボニル基；

10

【0028】

メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、*t*-ブチルスルフィニル基などのC1～6アルキルスルフィニル基； アリルスルフィニル基などのC2～6アルケニルスルフィニル基； プロパルギルスルフィニル基などのC2～6アルキニルスルフィニル基； フェニルスルフィニル基などのC6～10アリールスルフィニル基； チアゾリルスルフィニル基、ピリジルスルフィニル基などのヘテロアリールスルフィニル基； ベンジルスルフィニル基、フェネチルスルフィニル基などのC7～11アラルキルスルフィニル基；

メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、*t*-ブチルスルホニル基などのC1～6アルキルスルホニル基； アリルスルホニル基などのC2～6アルケニルスルホニル基； プロパルギルスルホニル基などのC2～6アルキニルスルホニル基； フェニルスルホニル基などのC6～10アリールスルホニル基； チアゾリルスルホニル基、ピリジルスルホニル基などのヘテロアリールスルホニル基； ベンジルスルホニル基、フェネチルスルホニル基などのC7～11アラルキルスルホニル基；

20

【0029】

ピロリル基、フリル基、チエニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、オキサゾリル基、イソオキサゾリル基、チアゾリル基、イソチアゾリル基、トリアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、テトラゾリル基などの5員ヘテロアリール基；

ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、トリアジニル基などの6員ヘテロアリール基；

ピロリジニル基、テトラヒドロフラニル基、ピペリジル基、ピペラジニル基、モルホリニル基などの飽和ヘテロ環基；

トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基などのトリC1～6アルキルシリル基；

トリフェニルシリル基；

などを挙げるができる。

30

【0030】

また、これらの「置換基」はそれの中にさらに別の「置換基」を有するものであってもよい。例えば、置換基としてのブチル基に、別の置換基としてエトキシ基を有するもの、すなわち、エトキシブチル基のようなものであってもよい。

【0031】

{Cy}

Cyは、無置換の若しくは置換基を有するオキシラニル基、または無置換の若しくは置換基を有する5～6員ヘテロ環基を示す。

「5～6員ヘテロ環基」は、窒素原子、酸素原子および硫黄原子からなる群から選ばれる1～4個のヘテロ原子を環の構成原子として含むものである。

Cyとしては、無置換の若しくは置換基を有するオキシラニル基、無置換の若しくは置換基を有する5員ヘテロアリール基、無置換の若しくは置換基を有する6員ヘテロアリール基、無置換の若しくは置換基を有する部分不飽和の5員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有する部分不飽和の6員ヘテロ環基、基無置換の若しくは置換基を有する飽和5員ヘテロ環基、または無置換の若しくは置換基を有する飽和6員ヘテロ環基であることが好

40

50

ましい。

【 0 0 3 2 】

5員ヘテロアリアル基としては、ピロール - 1 - イル基、ピロール - 2 - イル基、ピロール - 3 - イル基などのピロリル基；フラン - 2 - イル基、フラン - 3 - イル基などのフリル基；チオフェン - 2 - イル基、チオフェン - 3 - イル基などのチエニル基；イミダゾール - 1 - イル基、イミダゾール - 2 - イル基、イミダゾール - 4 - イル基、イミダゾール - 5 - イル基などのイミダゾリル基；ピラゾール - 1 - イル基、ピラゾール - 3 - イル基、ピラゾール - 4 - イル基、ピラゾール - 5 - イル基などのピラゾリル基；オキサゾール - 2 - イル基、オキサゾール - 4 - イル基、オキサゾール - 5 - イル基などのオキサゾリル基；イソオキサゾール - 3 - イル基、イソオキサゾール - 4 - イル基、イソオキサゾール - 5 - イル基などのイソオキサゾリル基；チアゾール - 2 - イル基、チアゾール - 4 - イル基、チアゾール - 5 - イル基などのチアゾリル基；イソチアゾール - 3 - イル基、イソチアゾール - 4 - イル基、イソチアゾール - 5 - イル基などのイソチアゾリル基；1, 2, 3 - トリアゾール - 1 - イル基、1, 2, 3 - トリアゾール - 4 - イル基、1, 2, 3 - トリアゾール - 5 - イル基、1, 2, 4 - トリアゾール - 1 - イル基、1, 2, 4 - トリアゾール - 3 - イル基、1, 2, 4 - トリアゾール - 5 - イル基などのトリアゾリル基；1, 2, 4 - オキサジアゾール - 3 - イル基、1, 2, 4 - オキサジアゾール - 5 - イル基、1, 3, 4 - オキサジアゾール - 2 - イル基などのオキサジアゾリル基；1, 2, 4 - チアジアゾール - 3 - イル基、1, 2, 4 - チアジアゾール - 5 - イル基、1, 3, 4 - チアジアゾール - 2 - イル基などのチアジアゾリル基；テトラゾール - 1 - イル基、テトラゾール - 2 - イル基などのテトラゾリル基；などが挙げられる。

10

20

【 0 0 3 3 】

6員ヘテロアリアル基としては、ピリジン - 2 - イル基、ピリジン - 3 - イル基、ピリジン - 4 - イル基などのピリジル基；ピラジン - 2 - イル基、ピラジン - 3 - イル基などのピラジニル基；ピリミジン - 2 - イル基、ピリミジン - 4 - イル基、ピリミジン - 5 - イル基などのピリミジニル基；ピリダジン - 3 - イル基、ピリダジン - 4 - イル基などのピリダジニル基；トリアジニル基；などが挙げられる。

【 0 0 3 4 】

部分不飽和の5員ヘテロ環基としては、2 - ピロリン - 3 - イル基などのピロリニル基；2 - イミダゾリン - 1 - イル基、2 - イミダゾリン - 2 - イル基、2 - イミダゾリン - 4 - イル基、2 - イミダゾリン - 5 - イル基などのイミダゾリニル基（ジヒドロイミダゾリニル基）；3 - ピラゾリン - 1 - イル基、3 - ピラゾリン - 2 - イル基、3 - ピラゾリン - 3 - イル基、3 - ピラゾリン - 4 - イル基、3 - ピラゾリン - 5 - イル基などのピラゾリニル基；2 - オキサゾリン - 2 - イル基、2 - オキサゾリン - 4 - イル、2 - オキサゾリン - 5 - イルなどのオキサゾリニル基；2 - イソオキサゾリン - 3 - イル基、2 - イソオキサゾリン - 4 - イル基、2 - イソオキサゾリン - 5 - イル基、イソオキサゾリン - 3 - イル基などのイソオキサゾリニル；2 - チアゾリン - 2 - イル基、2 - チアゾリン - 4 - イル基、3 - チアゾリン - 2 - イル基などのチアゾリニル基；などが挙げられる。

30

40

【 0 0 3 5 】

部分不飽和の6員ヘテロ環基としては、2H - ピラン - 3 - イル基などのピラニル基；2H - チオピラン - 3 - イル基などのチオピラニル基；2H - ピリジン - 1 - イル基、4H - ピリジン - 1 - イル基；などが挙げられる。

【 0 0 3 6 】

飽和5員ヘテロ環基としては、ピロリジン - 1 - イル基、ピロリジン - 2 - イル基、ピロリジン - 3 - イル基などのピロリジニル基；テトラヒドロフラン - 2 - イル基、テトラヒドロフラン - 3 - イル基などのテトラヒドロフラニル基；[ 1, 3 ] ジオキシラン - 2 - イル基などのジオキシラニル基；などが挙げられる。

飽和6員ヘテロ環基としては、ピペリジン - 1 - イル基、ピペリジン - 2 - イル基、ピ

50

ペリジン - 3 - イル基、ピペリジン - 4 - イル基などのピペリジニル基；ピペラジン - 1 - イル基、ピペラジン - 2 - イル基などのピペラジニル基；モルホリン - 2 - イル基、モルホリン - 3 - イル基、モルホリン - 4 - イル基などのモルホリニル基などが挙げられる。

【0037】

C<sub>y</sub>としては、ピロリル基、フリル基、チエニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、オキサゾリル基、イソオキサゾリル基、チアゾリル基、トリアゾリル基、オキサジアゾリル基、ピリジリル基、イソオキサゾリニル基、ピロリジニル基、又はジオキサソラニル基であることがより好ましい。

【0038】

C<sub>y</sub>上の置換基としては、上記の「置換基」として例示したものと同一ものが挙げられる。好ましくは、ハロゲノ基、C<sub>1</sub>～6アルキル基、C<sub>3</sub>～6シクロアルキル基、C<sub>2</sub>～6アルケニル基、C<sub>2</sub>～6アルキニル基、C<sub>1</sub>～6アルコキシ基、C<sub>6</sub>～10アリール基、C<sub>6</sub>～10アリールオキシ基、C<sub>7</sub>～11アラルキル基、C<sub>7</sub>～11アラルキルオキシ基、C<sub>1</sub>～7アシル基、C<sub>1</sub>～7アシルオキシ基、C<sub>1</sub>～6アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、水酸基、オキソ基(=O)、C<sub>1</sub>～6ハロアルキル基、C<sub>1</sub>～6ハロアルコキシ基、C<sub>1</sub>～7ハロアシル基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、C<sub>1</sub>～6アルキルアミノ基、C<sub>1</sub>～7アシルアミノ基、C<sub>1</sub>～6アルコキシカルボニルアミノ基、カルバモイル基、置換カルバモイル基、メルカプト基、C<sub>1</sub>～6アルキルチオ基、C<sub>1</sub>～6アルキルスルホニル基、C<sub>6</sub>～10アリールスルホニル基、5員ヘテロアリール基、6員ヘテロアリール基、飽和ヘテロ環基、およびトリC<sub>1</sub>～6アルキルシリル基などを挙げることができる。これらの中でも、ハロゲノ基、C<sub>1</sub>～6アルキル基、および水酸基の中から選択された置換基が好ましい。

【0039】

オキソ基(=O)を有する5～6員ヘテロ環基としては、2-オキソ-ピロリジン-1-イル、2-オキソ-ピペリジン-1-イル、2-オキソ-2H-ピリジン-1-イルなどが挙げられる。これらの中でも、2-オキソ-ピロリジン-1-イルが好ましい。

【0040】

C<sub>y</sub>が5～6員ヘテロ環基である場合、C<sub>y</sub>上の置換基が隣接して存在する場合が、一緒にあって、無置換の若しくは置換基を有する5～8員環を形成してもよい。

一緒にあって形成し得る5～8員環としては、ベンゼン環などの芳香族炭化水素環；シクロペンテン環、シクロペンタジエン環、シクロヘキセン環、シクロヘプテン環、シクロオクテン環などのC<sub>5</sub>～8シクロアルケン環；などが挙げられる。

【0041】

{B、D}

Bは、炭素原子または窒素原子を示す。すなわち、「D」が縮合してなるピリジン環または「D」が縮合してなるピラジン環を構成する。

Dは、ピリジン環又はピラジン環を構成する環の一部であり、5～7員炭化水素環または5～7員ヘテロ環を示す。

5～7員炭化水素環としては、ベンゼン環などの芳香族炭化水素環；シクロペンテン環、シクロヘキセン環、シクロヘプテン環などのシクロアルケン環；シクロペンタン環、シクロヘキサラン環、シクロヘプタン環などのシクロアルカン環などが挙げられる。

また、5～7員のヘテロ環としては、フラン環、チオフェン環、ピロ-ル環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、アゼピン環、ジアゼピン環；ジヒドロ-2H-ピラン環、ジヒドロ-2H-チオピラン環、テトラヒドロピリジン環；ヘキサメチレンイミン環、2-ケトヘキサメチレンイミン環、ホモピペラジン環などが挙げられる。

式(1)中、Dとしては、芳香族炭化水素環が好ましく、ベンゼン環がより好ましい。具体的には、化合物(1)は、キノリン環若しくはキノキサリン環を有する化合物である

10

20

30

40

50

ことが好ましい。

【0042】

[X<sup>1</sup>]

X<sup>1</sup>は、D、および/または、ピリジン環もしくはピラジン環の置換基であり、それぞれ独立に、無置換の若しくは置換基を有するC1～8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC2～8アルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC2～8アルキニル基、無置換の若しくは置換基を有するC3～8シクロアルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC4～8シクロアルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC6～10アリール基、無置換の若しくは置換基を有する5～6員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有するC1～8アシル基、無置換の若しくは置換基を有する(1-イミノ)C1～8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するカルボキシル基、無置換の若しくは置換基を有するカルバモイル基、無置換の若しくは置換基を有する水酸基、無置換の若しくは置換基を有するアミノ基、無置換の若しくは置換基を有するメルカプト基、置換基を有するスルホニル基、ハロゲノ基、シアノ基、またはニトロ基を示す。mは、X<sup>1</sup>の個数を示し、0～6のいずれかの整数(好ましくは0～2の整数)である。

10

【0043】

X<sup>1</sup>における、「C1～8アルキル基」は、炭素原子1～8個で構成される飽和炭化水素基である。C1～8アルキル基は直鎖であってもよいし、分岐鎖であってもよい。C1～8アルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、n-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、i-プロピル基、i-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、i-ペンチル基、ネオペンチル基、2-メチルブチル基、2,2-ジメチルプロピル基、i-ヘキシル基などが挙げられる。これらのうち、C1～6アルキル基が好ましい。

20

【0044】

「置換基を有するC1～8アルキル基」としては、シクロプロピルメチル基、2-シクロプロピルエチル基、シクロペンチルメチル基、2-シクロヘキシルエチル基などのシクロアルキルアルキル基、好ましくはC3～6シクロアルキルC1～6アルキル基；シクロペンテニルメチル基、3-シクロペンテニルメチル基、3-シクロヘキセニルメチル基、2-(3-シクロヘキセニル)エチル基などのシクロアルケニルアルキル基、好ましくはC4～6シクロアルケニルC1～6アルキル基；フルオロメチル基、クロロメチル基、プロモメチル基、ジフルオロメチル基、ジクロロメチル基、ジプロモメチル基、トリフルオロメチル基、トリクロロメチル基、トリプロモメチル基、2,2,2-トルフルオロエチル基、2,2,2-トリクロロエチル基、ペンタフルオロエチル基、4-フルオロブチル基、4-クロロブチル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基、2,2,2-トリフルオロ-1-トリフルオロメチルエチル基、パーフルオロヘキシル基、パークロロヘキシル基、パーフルオロオクチル基、パークロロオクチル基、2,4,6-トリクロロヘキシル基、パーフルオロデシル基、2,2,4,4,6,6-ヘキサクロロオクチル基などのハロアルキル基、好ましくはC1～6ハロアルキル基；ベンジル基、フェネチル基、3-フェニルプロピル基、1-ナフチルメチル基、2-ナフチルメチル基などのアリールアルキル基(アラルキル基)、好ましくはC6～10アリールC1～6アルキル基；

30

40

【0045】

2-ピリジルメチル基、3-ピリジルメチル基、4-ピリジルメチル基、2-(2-ピリジル)エチル基、2-(3-ピリジル)エチル基、2-(4-ピリジル)エチル基、3-(2-ピリジル)プロピル基、3-(3-ピリジル)プロピル基、3-(4-ピリジル)プロピル基、2-ピラジニルメチル基、3-ピラジニルメチル基、2-(2-ピラジニル)エチル基、2-(3-ピラジニル)エチル基、3-(2-ピラジニル)プロピル基、3-(3-ピラジニル)プロピル基、2-ピリミジルメチル基、4-ピリミジルメチル基、2-(2-ピリミジル)エチル基、2-(4-ピリミジル)エチル基、3-(2-ピリミジル)プロピル基、3-(4-ピリミジル)プロピル基、2-フリルメチル基、3-フリルメチル基、2-(2-フリル)エチル基、2-(3-フリル)エチル基、3-(2-

50

フリル)プロピル基、3-(3-フリル)プロピル基などのヘテロアリールアルキル基、好ましくは5~6員ヘテロアリールC1~6アルキル基；ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、1-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシプロピル基、1-ヒドロキシ-1-メチルエチル基、2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル基、2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルプロピル基、2-ヒドロキシ-2-メチルプロピル基などのヒドロキシアルキル基、好ましくはヒドロキシC1~6アルキル基；  
【0046】

メトキシメチル基、エトキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、メトキシn-プロピル基、n-プロポキシメチル基、i-プロポキシエチル基、s-ブトキシメチル基、t-ブトキシエチル基、2,2-ジメトキシエチル基、2,2-ジメトキシ-1,1-ジメチルエチル基などのアルコキシアルキル基、好ましくはC1~6アルコキシC1~6アルキル基；ホルミルオキシメチル基、アセトキシメチル基、2-アセトキシエチル基、プロピオニルオキシメチル基、プロピオニルオキシエチル基などのアシルオキシアルキル基、好ましくはC1~7アシルオキシC1~6アルキル基；トリメチルシリルオキシメチル基、t-ブチルジメチルシリルオキシメチル基などのトリアルキルシリルオキシアルキル基、好ましくはトリC1~6アルキルシリルオキシC1~6アルキル基；トシルオキシメチル基、2-トシルオキシ-1,1-ジメチルエチル基などのアリールスルホニルオキシアルキル基、好ましくはC1~6アルキル置換C6~10アリールスルホニルオキシC1~6アルキル基；シアノメチル基、2-シアノエチル基、1-シアノ-1-メチルエチル基などのシアノアルキル基、好ましくはシアノC1~6アルキル基；ホルミルメチル基、2-ホルミルエチル基、3-ホルミルプロピル基、1-ホルミル-1-メチルエチル基、2-ホルミル-1,1-ジメチルエチル基、アセチルメチル基、2-アセチルエチル基、3-アセチルプロピル基、1-アセチル-1-メチルエチル基、2-アセチル-1,1-ジメチルエチル基などのアシルアルキル基、好ましくはC1~6アシルC1~6アルキル基；

【0047】

2-ヒドロキシイミノエチル基、2-ヒドロキシイミノ-1-メチルエチル基、2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル基、2-ヒドロキシイミノプロピル基などの2-ヒドロキシイミノアルキル基、好ましくは2-ヒドロキシイミノC2~6アルキル基；アセチルメチル基、2-アセチルエチル基、3-アセチルプロピル基、1-アセチル-1-メチルエチル基、2-アセチル-1,1-ジメチルエチル基などのアシルアルキル基、好ましくはホルミルC1~6アルキル基；カルボキシメチル基、2-カルボキシエチル基、3-カルボキシプロピル基、1-カルボキシ-1-メチルエチル基、2-カルボキシ-1,1-ジメチルエチル基などのカルボキシアルキル基、好ましくはカルボキシC1~6アルキル基；メトキシカルボニルメチル基、2-メトキシカルボニルエチル基、3-メトキシカルボニルプロピル基、1-メトキシカルボニル-1-メチルエチル基、2-メトキシカルボニル-1,1-ジメチルエチル基などのアルコキシカルボニルアルキル基、好ましくはC1~6アルコキシカルボニルC1~6アルキル基；アジドメチル基、2-アジドエチル基、1-アジド-1-メチルエチル基などのアジドアルキル基、好ましくはアジドC1~6アルキル基；などが挙げられる。

【0048】

X<sup>1</sup>における、「C2~8アルケニル基」は、少なくとも1つ炭素-炭素二重結合を有する炭素原子2~8個で構成される不飽和炭化水素基である。C2~8アルケニル基は直鎖であってもよいし、分岐鎖であってもよい。C2~8アルケニル基としては、ビニル基、1-プロペニル基、イソプロペニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、3-ペンテニル基、4-ペンテニル基、1-ヘキセニル基、2-ヘキセニル基、3-ヘキセニル基、4-ヘキセニル基、5-ヘキセニル基、1-ヘプテニル基、6-ヘプテニル基、1-オクテニル基、7-オクテニル基、1-メチル-アリル基、2-メチル-アリル基、1-メチル-2-ブテニル基、2-メチル-2-ブテニル基などが挙げられる。これらのうち、C2~6アルケニル基

10

20

30

40

50

が好ましい。

【0049】

「置換基を有するC2～8アルケニル基」としては、3-クロロ-2-プロペニル基、4-クロロ-2-ブテニル基、4,4-ジクロロ-3-ブテニル基、4,4-ジフルオロ-3-ブテニル基、3,3-ジクロロ-2-プロペニル基、2,3-ジクロロ-2-プロペニル基、3,3-ジフルオロ-2-プロペニル基、2,4,6-トリクロロ-2-ヘキセニル基などのハロアルケニル基、好ましくはC2～6ハロアルケニル基；3-ヒドロキシ-1-プロペニル基、4-ヒドロキシ-1-ブテニル基、1-ヒドロキシアリル基、1-ヒドロキシ-2-メチルアリル基などのヒドロキシアルケニル基、好ましくはヒドロキシC2～6アルケニル基；などが挙げられる。

10

【0050】

X<sup>1</sup>における、「C2～8アルキニル基」は、少なくとも1つ炭素-炭素三重結合を有する炭素原子2～8個で構成される不飽和炭化水素基である。C2～8アルキニル基は直鎖であってもよいし、分岐鎖であってもよい。C2～8アルキニル基としては、エチニル基、1-プロピニル基、プロパルギル基、1-ブチニル基、2-ブチニル基、3-ブチニル基、1-ペンチニル基、2-ペンチニル基、3-ペンチニル基、4-ペンチニル基、1-ヘキシニル基、1-メチル-2-プロピニル基、2-メチル-3-ブチニル基、1-メチル-2-ブチニル基、2-メチル-3-ペンチニル基、1,1-ジメチル-2-ブチニル基などが挙げられる。これらのうち、C2～6アルキニル基が好ましい。

【0051】

20

「置換基を有するC2～8アルキニル基」としては、3-クロロ-1-プロピニル基、3-クロロ-1-ブチニル基、3-ブromo-1-ブチニル基、3-ブromo-2-プロピニル基、3-ヨード-2-プロピニル基、3-ブromo-1-ヘキシニル基、4,4,6,6-テトラフルオロ-1-ドデシニル基、5,5-ジクロロ-2-メチル-3-ペンチニル基、4-クロロ-1,1-ジメチル-2-ブチニル基などのハロアルキニル基、好ましくはC2～6ハロアルキニル基などが挙げられる。

【0052】

X<sup>1</sup>における、「C3～8シクロアルキル基」は、環状部分を有する炭素原子3～8個で構成されるアルキル基である。C3～8シクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、シクロオクチル基などが挙げられる。これらのうち、C3～6シクロアルキル基が好ましい。

30

【0053】

「置換基を有するC3～8シクロアルキル基」としては、2,3,3-トリメチルシクロブチル基、4,4,6,6-テトラメチルシクロヘキシル基、1,3-ジブチルシクロヘキシル基などのアルキル置換シクロアルキル基、好ましくはC1～6アルキル基が1～3個置換したC3～6シクロアルキル基などが挙げられる。

【0054】

X<sup>1</sup>における、「C4～8シクロアルケニル基」は、環状部分を有する炭素原子4～8個で構成されるアルケニル基である。C4～8シクロアルケニル基としては、1-シクロブテニル基、1-シクロペンテニル基、3-シクロペンテニル基、1-シクロヘキセニル基、3-シクロヘキセニル基、3-シクロヘブテニル基、4-シクロオクテニル基などが挙げられる。

40

【0055】

「置換基を有するC4～8シクロアルケニル基」としては、2-メチル-3-シクロヘキセニル基、3,4-ジメチル-3-シクロヘキセニル基などのアルキル置換シクロアルケニル基、好ましくはC1～6アルキル基が1～3個置換したC4～6シクロアルケニル基などが挙げられる。

【0056】

X<sup>1</sup>における、「C6～10アリール基」は、単環または多環の炭素数6～10のアリール基である。なお、多環アリール基は、少なくとも一つの環が芳香環であれば、残りの

50

環が飽和脂環、不飽和脂環または芳香環のいずれであってもよい。C<sub>6</sub>～10アリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アズレニル基、インデニル基、インダニル基、テトラリニル基などが挙げられる。これらのうち、フェニル基が好ましい。

【0057】

「置換基を有するC<sub>6</sub>～10アリール基」としては、2-クロロフェニル基、3,5-ジクロロフェニル基、4-フルオロフェニル基、3,5-ジフルオロフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基などの、アルキル置換アリール基、ハロゲン置換アリール基、アルコキシ置換アリール基、好ましくはC<sub>1</sub>～6アルキル置換C<sub>6</sub>～10アリール基、ハロゲン置換C<sub>6</sub>～10アリール基、C<sub>1</sub>～6アルコキシ置換アリール基が挙げられる。

10

【0058】

X<sup>1</sup>における、「5～6員ヘテロ環基」は、C<sub>y</sub>で例示したものと同一ものが挙げられる。

【0059】

X<sup>1</sup>における、「C<sub>1</sub>～8アシル基」は、カルボニル基に、水素原子、C<sub>1</sub>～7アルキル基、C<sub>2</sub>～7アルケニル基、C<sub>2</sub>～7アルキニル基、C<sub>6</sub>～7アリール基または5～7員ヘテロ環基が結合した基である。

C<sub>1</sub>～8アシル基としては、ホルミル基；アセチル基、プロピオニル基、n-プロピルカルボニル基、n-ブチルカルボニル基、ペンタノイル基、バレリル基、オクタノイル基、i-プロピルカルボニル基、i-ブチルカルボニル基、ピバロイル基、イソバレリル基などのアルキルカルボニル基、好ましくはC<sub>1</sub>～6アルキルカルボニル基；アクリロイル基、メタクリロイル基などのアルケニルカルボニル基、好ましくはC<sub>2</sub>～6アルケニルカルボニル基；プロピオロイル基などのアルキニルカルボニル基、好ましくはC<sub>2</sub>～6アルキニルカルボニル基；ベンゾイル基などのアリールカルボニル基；2-ピリジルカルボニル基、チエニルカルボニル基などのヘテロ環カルボニル基などが挙げられる。

20

【0060】

「置換基を有するC<sub>1</sub>～8アシル基」としては、モノフルオロアセチル基、モノクロロアセチル基、モノプロモアセチル基、ジフルオロアセチル基、ジクロロアセチル基、ジプロモアセチル基、トリフルオロアセチル基、トリクロロアセチル基、トリプロモアセチル基、3,3,3-トリフルオロプロピオニル基、3,3,3-トリクロロプロピオニル基、2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピオニル基などのハロアシル基、好ましくはC<sub>1</sub>～7ハロアシル基などが挙げられる。

30

【0061】

X<sup>1</sup>における、「(1-イミノ)C<sub>1</sub>～8アルキル基」は、イミノメチル基、若しくはイミノメチル基にC<sub>1</sub>～7のアルキル基が結合した基である。(1-イミノ)C<sub>1</sub>～8アルキル基としては、イミノメチル基、(1-イミノ)エチル基、(1-イミノ)プロピル基、(1-イミノ)ブチル基、(1-イミノ)ペンチル基、(1-イミノ)ヘキシル基、(1-イミノ)ヘプチル基などが挙げられる。これらのうち、(1-イミノ)C<sub>1</sub>～6アルキル基が好ましい。

【0062】

「置換基を有する(1-イミノ)アルキル基」としては、ヒドロキシイミノメチル基、(1-ヒドロキシイミノ)エチル基、(1-ヒドロキシイミノ)プロピル基、(1-ヒドロキシイミノ)ブチル基などの(1-ヒドロキシイミノ)C<sub>1</sub>～8アルキル基；好ましくは(1-ヒドロキシイミノ)C<sub>1</sub>～6アルキル基；メトキシイミノメチル基、(1-エトキシイミノ)メチル基、(1-メトキシイミノ)エチル基、(1-tert-ブトキシイミノ)エチル基、(1-エトキシイミノ)エチル基などの(1-アルコキシイミノ)C<sub>1</sub>～8アルキル基、好ましくは(1-(C<sub>1</sub>～6アルコキシ)イミノ)C<sub>1</sub>～6アルキル基；などが挙げられる。

40

【0063】

X<sup>1</sup>における、「置換基を有するカルボキシル基」は、カルボニル基に、C<sub>1</sub>～6アル

50

キル基、C 2 ~ 6 アルケニル基、C 2 ~ 6 アルキニル基、C 6 ~ 10 アリール基、C 6 ~ 10 アリールC 1 ~ 6 アルキル基または5 ~ 6 員ヘテロ環基が結合した基である。

「置換基を有するカルボキシル基」としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、n - プロポキシカルボニル基、i - プロポキシカルボニル基、n - ブトキシカルボニル基、i - ブトキシカルボニル基、t - ブトキシカルボニル基、n - ペンチルオキシカルボニル基、n - ヘキシルオキシカルボニル基などのアルコキシカルボニル基、好ましくはC 1 ~ 6 アルコキシカルボニル基； ビニルオキシカルボニル基、アリルオキシカルボニル基などのアルケニルオキシカルボニル基、好ましくはC 2 ~ 6 アルケニルオキシカルボニル基； エチニルオキシカルボニル基、プロパルギルオキシカルボニル基などのアルキニルオキシカルボニル基、好ましくはC 2 ~ 6 アルキニルオキシカルボニル基； フェノキシカルボニル基、ナフトキシカルボニル基などのアリールオキシカルボニル基、好ましくはC 6 ~ 10 アリールオキシカルボニル基； ベンジルオキシカルボニル基などのアラルキルオキシカルボニル基、好ましくはC 6 ~ 10 アリールC 1 ~ 6 アルコキシカルボニル基；などが挙げられる。

【0064】

X<sup>1</sup>における、「置換基を有するカルバモイル基」は、カルバモイル基に、C 1 ~ 6 アルキル基、C 2 ~ 6 アルケニル基、C 2 ~ 6 アルキニル基、C 6 ~ 10 アリール基、C 6 ~ 10 アリールC 1 ~ 6 アルキル基、または5 ~ 6 員ヘテロ環基が結合した基である。「置換基を有するカルバモイル基」としては、メチルカルバモイル基、エチルカルバモイル基、ジメチルカルバモイル基、ジエチルカルバモイル基などのモノアルキルカルバモイル基またはジアルキルカルバモイル基、好ましくはモノC 1 ~ 6 アルキルカルバモイル基またはジC 1 ~ 6 アルキルカルバモイル基； フェニルカルバモイル基、4 - メチルフェニルカルバモイル基などのモノアリールカルバモイル基、好ましくはモノC 6 ~ 10 アリールカルバモイル基；などが挙げられる。

【0065】

X<sup>1</sup>における、「置換基を有する水酸基」としては、メトキシ基、エトキシ基、n - プロポキシ基、n - ブトキシ基、n - ペンチルオキシ基、n - ヘキシルオキシ基、デシルオキシ基、ドデシルオキシ基、ラウリルオキシ基、i - プロポキシ基、i - ブトキシ基、s - ブトキシ基、t - ブトキシ基、1 - エチルプロポキシ基、i - ヘキシルオキシ基、4 - メチルペントキシ基、3 - メチルペントキシ基、2 - メチルペントキシ基、1 - メチルペントキシ基、3, 3 - ジメチルブトキシ基、2, 2 - ジメチルブトキシ基、1, 1 - ジメチルブトキシ基、1, 2 - ジメチルブトキシ基、1, 3 - ジメチルブトキシ基、2, 3 - ジメチルブトキシ基、1 - エチルブトキシ基、2 - エチルブトキシ基などのアルコキシ基、好ましくはC 1 ~ 6 アルコキシ基；

【0066】

シクロプロピルメチルオキシ基、2 - シクロペンチルエチルオキシ基などのシクロアルキルアルコキシ基、好ましくはC 3 ~ 8 シクロアルキルC 1 ~ 6 アルコキシ基； ベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基、好ましくはC 6 ~ 10 アリールC 1 ~ 6 アルコキシ基； クロロメトキシ基、ジクロロメトキシ基、トリクロロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、1 - フルオロエトキシ基、1, 1 - ジフルオロエトキシ基、2, 2, 2 - トリフルオロエトキシ基、ペンタフルオロエトキシ基などのハロアルコキシ基、好ましくはC 1 ~ 6 ハロアルコキシ基； ビニルオキシ基、1 - プロペニルオキシ基、アリルオキシ基、1 - ブテニルオキシ基、2 - ブテニルオキシ基、3 - ブテニルオキシ基、1 - ペンテニルオキシ基、2 - ペンテニルオキシ基、3 - ペンテニルオキシ基、4 - ペンテニルオキシ基、1 - ヘキセニルオキシ基、2 - ヘキセニルオキシ基、3 - ヘキセニルオキシ基、4 - ヘキセニルオキシ基、5 - ヘキセニルオキシ基、1 - メチル - 2 - プロペニルオキシ基、2 - メチル - 2 - プロペニルオキシ基、1 - メチル - 2 - ブテニルオキシ基、2 - メチル - 2 - ブテニルオキシ基などのアルケニルオキシ基、好ましくはC 2 ~ 6 アルケニルオキシ基；

【0067】

10

20

30

40

50



エチニルオキシ基、プロピニルオキシ基、プロパルギルオキシ基、1 - ブチニルオキシ基、2 - ブチニルオキシ基、3 - ブチニルオキシ基、1 - ペンチニルオキシ基、2 - ペンチニルオキシ基、3 - ペンチニルオキシ基、4 - ペンチニルオキシ基、1 - ヘキシニルオキシ基、1 - メチル - 2 - プロピニルオキシ基、2 - メチル - 3 - ブチニルオキシ基、1 - メチル - 2 - ブチニルオキシ基、2 - メチル - 3 - ペンチニルオキシ基、1, 1 - ジメチル - 2 - ブチニルオキシ基などのアルキニルオキシ基、好ましくはC 2 ~ 6 アルキニルオキシ基； シクロプロピルオキシ基、シクロブチルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基、シクロヘプチルオキシ基、シクロオクタチルオキシ基、2 - メチルシクロプロピルオキシ基、2 - エチルシクロプロピルオキシ基、2, 3, 3 - トリメチルシクロブチルオキシ基、2 - メチルシクロペンチルオキシ基、2 - エチルシクロヘキシルオキシ基、2 - エチルシクロオクタチルオキシ基、4, 4, 6, 6 - テトラメチルシクロヘキシルオキシ基、1, 3 - ジブチルシクロヘキシルオキシ基などのシクロアルキルオキシ基、好ましくはC 3 ~ 6 シクロアルキルオキシ基； フェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、アズレニルオキシ基、インデニルオキシ基、インダニルオキシ基、テトラリニルオキシ基などのアリールオキシ基、好ましくはC 6 ~ 10 アリールオキシ基； ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基、2 - ナフチルメチルオキシ基などのアリールアルキルオキシ基（アラルキルオキシ基）、好ましくはC 6 ~ 10 アリールC 1 ~ 6 アルキルオキシ基； アセチルオキシ基、プロピオニルオキシ基、n - プロピルカルボニルオキシ基、i - プロピルカルボニルオキシ基、n - ブチルカルボニルオキシ基、i - ブチルカルボニルオキシ基、ペンタノイルオキシ基、ピバロイルオキシ基などのアシルオキシ基、好ましくはC 1 ~ 7 アシルオキシ基； メトキシカルボニルメチルオキシ基、1 - メトキシカルボニル - 1 - メチルエチルオキシ基などのアルコキシカルボニルアルキルオキシ基、好ましくはC 1 ~ 6 アルコキシカルボニルC 1 ~ 6 アルコキシ基； トリメチルシリルオキシ基、t - ブチルジメチルシリルオキシ基などのトリアルキルシリルオキシ基、好ましくはトリC 1 ~ 6 アルキルシリルオキシ基；

などが挙げられる。

#### 【0068】

「置換基を有するアミノ基」としては、メチルアミノ基、エチルアミノ基、n - プロピルアミノ基、n - ブチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基などのアルキルアミノ基、好ましくはモノC 1 ~ 6 アルキルアミノ基またはジC 1 ~ 6 アルキルアミノ基； メチリデンアミノ基、エチリデンアミノ基などのモノC 1 ~ 6 アルキリデンアミノ基； フェニルアミノ基、4 - メチルフェニルアミノ基などのモノアリールアミノ基、好ましくはモノC 6 ~ 10 アリールアミノ基； ジ1 - ナフチルアミノ基などのジアリールアミノ基、好ましくはジC 6 ~ 10 アリールアミノ基； ベンジルアミノ基などのアラルキルアミノ基、好ましくはC 6 ~ 10 アリールC 1 ~ 6 アルキルアミノ基； アセチルアミノ基、トリフルオロアセチルアミノ基、ベンゾイルアミノ基などのアシルアミノ基、好ましくはC 1 ~ 6 アシルアミノ基； メトキシカルボニルアミノ基、t - ブトキシカルボニルアミノ基などのアルコキシカルボニルアミノ基、好ましくはC 1 ~ 6 アルコキシカルボニルアミノ基； などが挙げられる。

#### 【0069】

X<sup>1</sup>における、「置換基を有するメルカプト基」としては、メチルチオ基、エチルチオ基などのアルキルチオ基、好ましくはC 1 ~ 6 アルキルチオ基； フェニルチオ基、4 - メチルフェニルチオ基などのアリールチオ基、好ましくはC 6 ~ 10 アリールチオ基； アセチルチオ基、ベンゾイルチオ基などのアシルチオ基、好ましくはC 1 ~ 6 アシルチオ基； などが挙げられる。

#### 【0070】

X<sup>1</sup>における、「置換基を有するスルホニル基」としては、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、n - プロピルスルホニル基、i - プロピルスルホニル基、n - ブチルスルホニル基、i - ブチルスルホニル基、s - ブチルスルホニル基、t - ブチルスルホニル基、n - ペンチルスルホニル基、i - ペンチルスルホニル基、ネオペンチルスルホニル基

10

20

30

40

50

、1-エチルプロピルスルホニル基、n-ヘキシルスルホニル基、i-ヘキシルスルホニル基などのアルキルスルホニル基、好ましくはC1~6アルキルスルホニル基；トリフルオロメチルスルホニル基などのハロアルキルスルホニル基、好ましくはC1~6ハロアルキルスルホニル基；フェニルスルホニル基、4-メチルフェニルスルホニル基などのアリールスルホニル基、好ましくはC6~10アリールスルホニル基；スルフォ基；メトキシスルホニル基、エトキシスルホニル基などのアルコキシスルホニル基、好ましくはC1~6アルコキシスルホニル基；スルファモイル基；N-メチルスルファモイル基、N-エチルスルファモイル基、N,N-ジメチルスルファモイル基、N,N-ジエチルスルファモイル基などのスルファモイル基、好ましくはモノC1~6アルキルスルファモイル基またはジC1~6アルキルスルファモイル基；フェニルスルファモイル基、4-メチルフェニルスルファモイル基などのモノアリールスルファモイル基、好ましくはモノC6~10アリールスルファモイル基；などが挙げられる。

10

## 【0071】

X<sup>1</sup>における、「ハロゲノ基」としては、フルオロ基、クロロ基、ブロモ基、イオド基などが挙げられる。

これらの中でも、X<sup>1</sup>は、ハロゲノ基又はC1~C8アルキル基であることが好ましい。

## 【0072】

〔E〕

Eは、5~7員炭化水素環または5~7員ヘテロ環を示す。

20

5~7員炭化水素環としては、ベンゼン環などの芳香族炭化水素環；シクロペンテン環、シクロヘキセン環、シクロヘプテン環などのC5~7シクロアルケン環；フラン環、チオフェン環、ピロ-ル環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、イソチアゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、アゼピン環、ジアゼピン環などの芳香族5~7員ヘテロ環；などが挙げられる。

これらのうち芳香族炭化水素環又は芳香族5~6員ヘテロ環が好ましく、ベンゼン環又はピリジン環がより好ましく、ベンゼン環がより更に好ましい。

## 【0073】

〔X<sup>2</sup>〕

X<sup>2</sup>は、それぞれ独立に、無置換の若しくは置換基を有するC1~8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC2~8アルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC2~8アルキニル基、無置換の若しくは置換基を有するC3~8シクロアルキル基、無置換の若しくは置換基を有するC4~8シクロアルケニル基、無置換の若しくは置換基を有するC6~10アリール基、無置換の若しくは置換基を有する5~6員ヘテロ環基、無置換の若しくは置換基を有するC1~8アシル基、無置換の若しくは置換基を有する(1-イミノ)C1~8アルキル基、無置換の若しくは置換基を有するカルボキシ基、無置換の若しくは置換基を有するカルバモイル基、無置換の若しくは置換基を有する水酸基、無置換の若しくは置換基を有するアミノ基、無置換の若しくは置換基を有するメルカプト基、置換基を有するスルホニル基、ハロゲノ基、シアノ基、またはニトロ基を示す。nは、X<sup>2</sup>の個数を示し、0~4のいずれかの整数、好ましくは0~2のいずれかの整数、より更に好ましくは0または1である。

30

40

## 【0074】

X<sup>2</sup>における、「C1~8アルキル基」、「C2~8アルケニル基」、「C2~8アルキニル基」、「C3~8シクロアルキル基」、「C4~8シクロアルケニル基」、「C6~10アリール基」、「5~6員ヘテロ環基」、「C1~8アシル基」、「(1-イミノ)C1~8アルキル基」、「置換基を有するカルボキシ基」、「置換基を有するカルバモイル基」、「置換基を有する水酸基」、「置換基を有するアミノ基」、「置換基を有するメルカプト基」、「置換基を有するスルホニル基」、「ハロゲノ基」は、X<sup>1</sup>で例示したものと同一ものが挙げられる。

50

これらの中でも、 $X^2$  は、ハロゲン基又は C 1 ~ 8 アルキル基であることが好ましい。

【0075】

[X]

X は、酸素原子、硫黄原子、 $-C(=O)-$  基で表される基、または  $-CHOH-$  基で表される基を示す。これらの中でも、X は、酸素原子又は硫黄原子であることが好ましく、酸素原子であることがより好ましい。

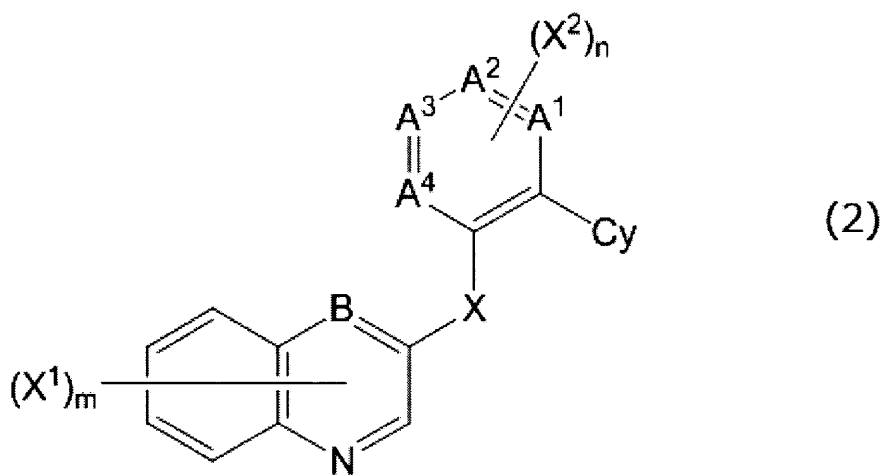
【0076】

[式(2)で表される化合物]

前記化合物(1)は、式(2)で表される化合物(以下、「化合物(2)」と表記することがある。)であることが好ましい。

【0077】

【化6】



【0078】

ここで、上記の式(2)中、Cy、 $X^1$ 、m、 $X^2$ 、n、B、およびXは、上記の式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す。

【0079】

[ $A^1$ 、 $A^2$ 、 $A^3$ 、 $A^4$ ]

$A^1$ 、 $A^2$ 、 $A^3$ 、および $A^4$ は、それぞれ独立して、炭素原子または窒素原子を示す。すなわち、ベンゼン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、またはトリアジン環を構成する。前記ピリジン環としては、 $A^1$ が窒素原子であるピリジン環が好ましい。これらの中でも、 $A^1$ 、 $A^2$ 、 $A^3$ 、および $A^4$ は、ベンゼン環またはピリジン環を構成することが好ましい。

【0080】

[式(3)で表される化合物]

前記化合物(1)は、式(3)で表される化合物(以下、「化合物(3)」と表記することがある。)であることが好ましい。

【0081】

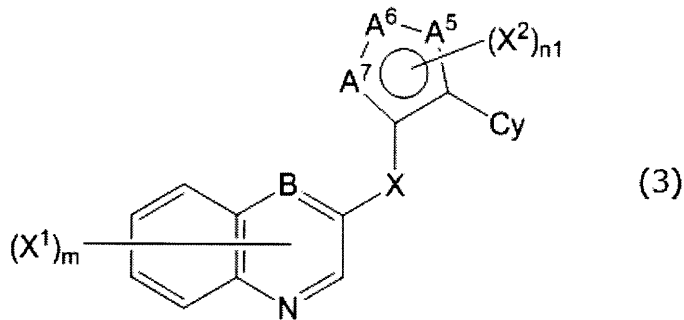
10

20

30

40

## 【化7】



10

## 【0082】

ここで、式(3)中、Cy、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、B、およびXは、上記の式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す。 $n_1$ は、 $X^2$ の個数を示し、0~3のいずれかの整数、好ましくは0~2のいずれかの整数である。

## 【0083】

[ $A^5$ 、 $A^6$ 、 $A^7$ ]

$A^5$ 、 $A^6$ 、および $A^7$ は、それぞれ独立して、炭素原子、窒素原子、酸素原子、または硫黄原子を示す。ただし、酸素原子同士、硫黄原子同士、酸素原子と硫黄原子の組合わせが隣接することはない。

20

すなわち、 $A^5$ 、 $A^6$ 、および $A^7$ を含む環は、フラン環、チオフェン環、ピロ-ル環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、イソチアゾール環を構成する。この場合、ピラゾール環としては、 $A^6$ と $A^7$ が窒素原子であるピラゾール環が好ましい。チオフェン環としては、 $A^7$ が硫黄原子であるチオフェン環が好ましい。

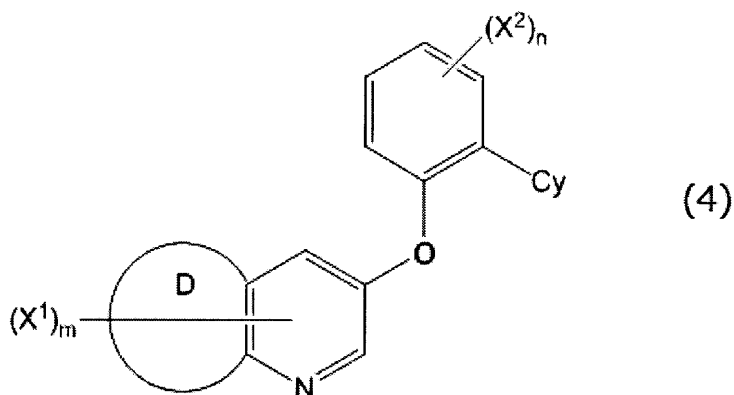
## 【0084】

[式(4)で表される化合物]

前記化合物(1)は、式(4)で表される化合物(以下、「化合物(4)」と表記することがある。)であることが好ましい。

## 【0085】

## 【化8】



40

## 【0086】

ここで、上記の式(4)中、Cy、D、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、およびnは、上記の式(1)中のそれぞれと同じ意味を示す。

式(4)中、Dとしては、芳香族炭化水素環が好ましく、ベンゼン環がより好ましい。具体的には、化合物(4)は、キノリン環を有する化合物であることが好ましい。

## 【0087】

本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物の塩若しくはN-オキサイド化合物は、農園芸学的

50

に許容される塩若しくはN - オキサイド化合物であれば、特に制限されない。塩としては、例えば、塩酸、硫酸などの無機酸の塩；酢酸、乳酸などの有機酸の塩；リチウム、ナトリウム、カリウムなどのアルカリ金属の塩；カルシウム、マグネシウムなどのアルカリ土類金属の塩；鉄、銅などの遷移金属の塩；アンモニア、トリエチルアミン、トリブチルアミン、ピリジン、ヒドラジンなどの有機塩基の塩などが挙げられる。

## 【0088】

〔本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物の製造方法〕

本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物は、例えば、以下に示す合成方法によって製造することができる。

## 【0089】

(合成方法1)

式(A)で表される化合物と式(B)で表される化合物とを公知の方法によって反応させて化合物(2)を製造することができる。

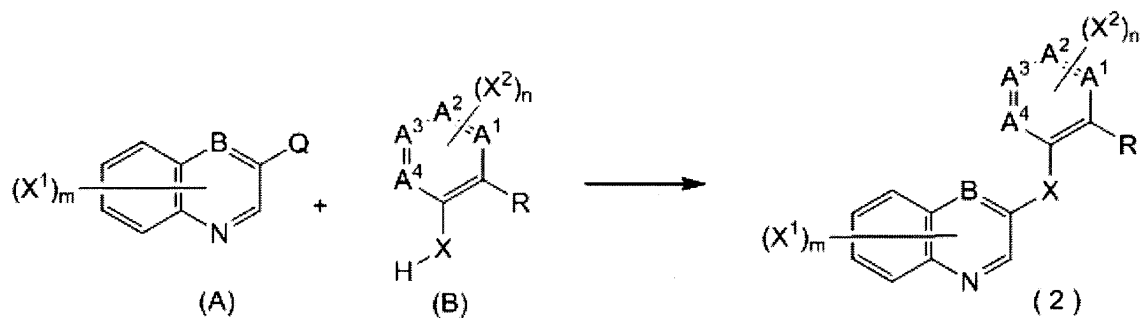
式中、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、 $n$ 、 $A^1 \sim A^4$ 、 $B$ 、および $X$ は前記と同じ意味を示す。 $Q$ はハロゲン基を示す。

式中、 $R$ は、前記の $Cy$ に挙げるヘテロ環基またはヘテロ環基に誘導可能な官能基を表す。官能基の例としては、オキサゾール-2-イル基の場合は、ホルミル基(イソニトリル類との縮合により誘導できる。)；イソオキサゾリン-3-イル基の場合は、ヒドロキシミノ基(オレフィン類との2+3環化反応により誘導できる。)；鈴木・宮浦カップリングを用いる場合は、ハロゲン原子またはホウ素基；などが挙げられる。

本発明においては、7,8-ジフルオロ-3-ヨード-キノリンが、有用な製造中間体である。

## 【0090】

【化9】



## 【0091】

(合成方法2)

式(C)で表される化合物と式(D)で表される化合物とを公知の方法によって反応させて化合物(2)を製造することができる。

式中、 $R$ 、 $X^1$ 、 $m$ 、 $X^2$ 、 $n$ 、 $A^1 \sim A^4$ 、 $B$ 、 $X$ 、および $Q$ は前記と同じ意味を示す。

本発明においては、8-フルオロ-3-ヒドロキシキノリン、7,8-ジフルオロ-3-ヒドロキシキノリン、8-フルオロ-3-ヒドロキシ-2-メチルキノリン、または7,8-ジフルオロ-3-ヒドロキシ-2-メチルキノリンが、有用な製造中間体である。

## 【0092】

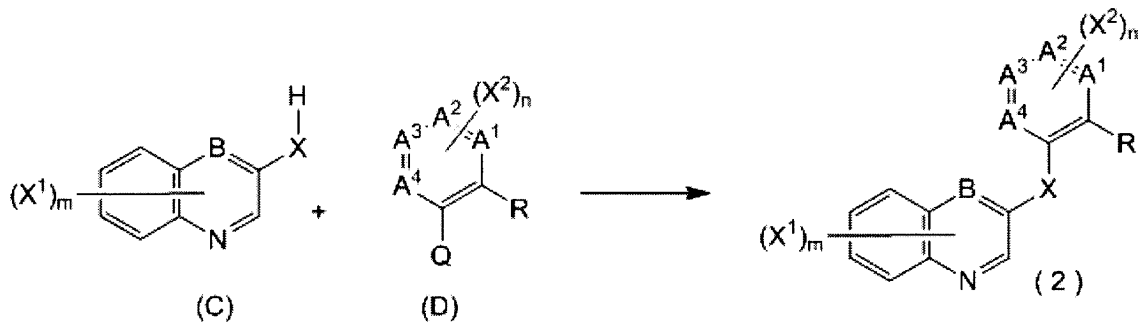
10

20

30

40

【化10】



10

【0093】

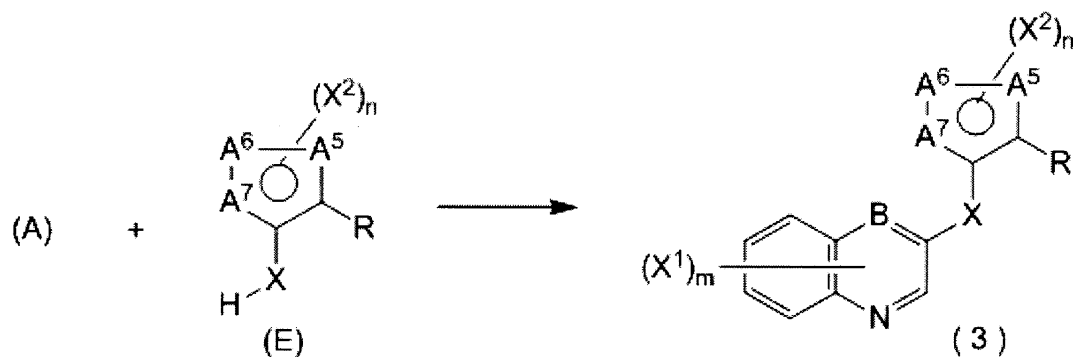
(合成方法3)

式(A)で表される化合物と式(E)で表される化合物とを公知の方法によって反応させて化合物(3)を製造することができる。

式中、R、 $X^1$ 、m、 $X^2$ 、n、 $A^5 \sim A^7$ 、B、X、およびQは前記と同じ意味を示す。

【0094】

【化11】



20

【0095】

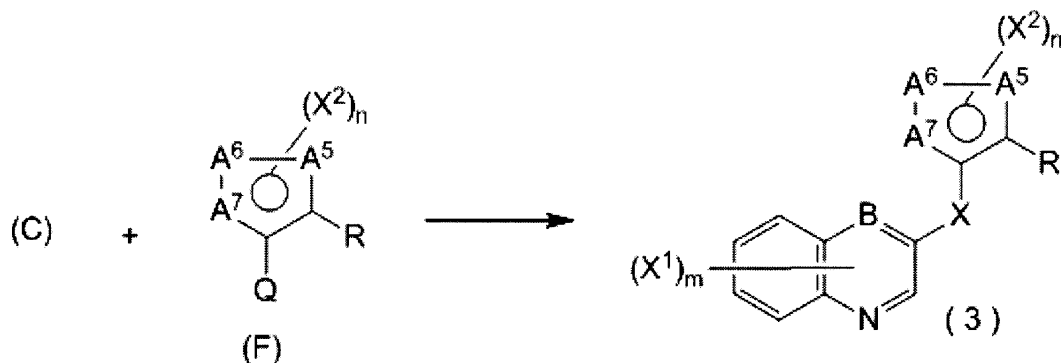
(合成方法4)

式(C)で表される化合物と式(F)で表される化合物とを公知の方法によって反応させて化合物(3)を製造することができる。

式中、R、 $X^1$ 、m、 $X^2$ 、n、 $A^5 \sim A^7$ 、B、X、およびQは前記と同じ意味を示す。

【0096】

【化12】



40

【0097】

(合成方法5)

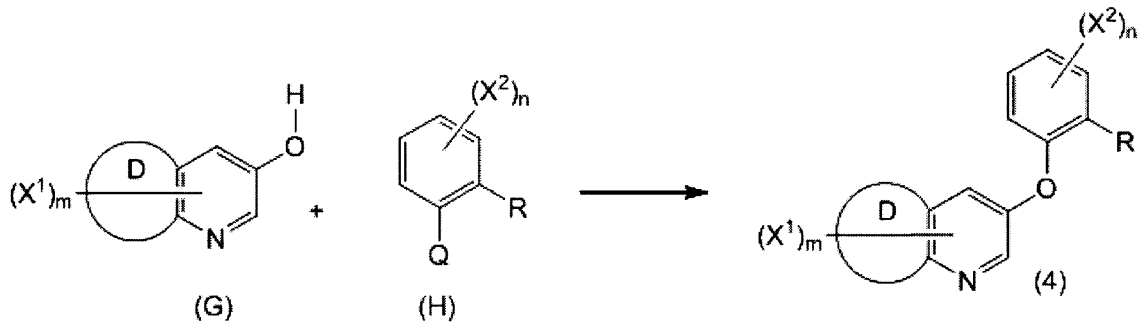
式(G)で表される化合物と式(H)で表される化合物とを公知の方法によって反応さ

50

せて化合物(4)を製造することができる。

【0098】

【化13】



10

【0099】

式中、 $X^1$ 、 $X^2$ 、D、m、n、Q、およびRは前記と同じ意味を表す。

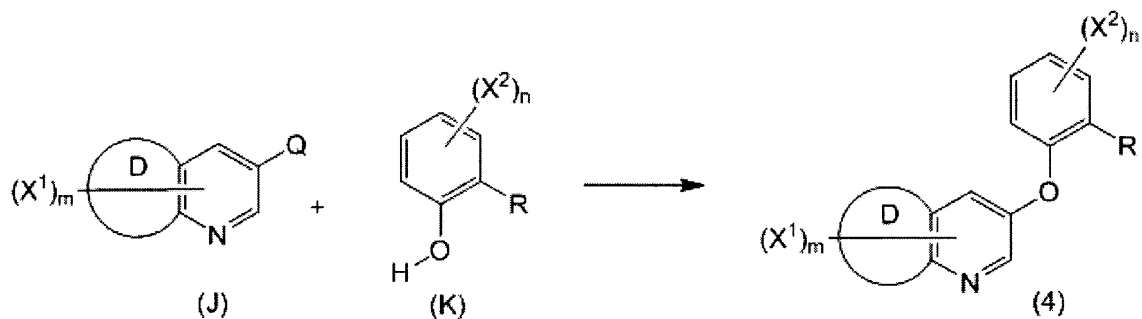
【0100】

(合成方法6)

式(J)で表される化合物と式(K)で表される化合物とを公知の方法によって反応させて化合物(4)を製造することができる。

【0101】

【化14】



30

【0102】

式中、R、 $X^1$ 、 $X^2$ 、D、Q、m、およびnは前記と同じ意味を表す。

【0103】

本発明に係る化合物の塩は、無機酸化合物、有機酸化合物、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物、遷移金属化合物、アンモニウム化合物などを化合物(1)に接触させることによって調製することができる。

また、本発明に係るN-オキサイド化合物は、既知の酸化反応によって調製することができる。例えば、溶媒中または無溶媒において、化合物(1)と、過酸化水素などの過酸化化合物とを接触させることによって調製することができる。

40

【0104】

いずれの反応においても、反応終了後は、有機合成化学における通常の後処理操作、および、必要に応じて従来公知の分離精製手段を施すことによって、目的物を効率よく単離することができる。

【0105】

目的物の構造は、 $^1\text{H}$ -NMRスペクトル、IRスペクトル、マススペクトルの測定や、元素分析などによって、同定・確認することができる。

【0106】

## 2) 農園芸用殺菌剤

本発明に係る農園芸用殺菌剤は、本発明に係る含窒素ヘテロ環化合物またはその塩若し

50

くはN - オキサイド化合物から選ばれる少なくとも1種を有効成分として含有するものである。

【0107】

本発明の農園芸用殺菌剤は、広範囲の種類の子実菌、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。

【0108】

本発明の農園芸用殺菌剤は、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のために、種子処理、茎葉散布、土壌施用または水面施用などの方法において使用することができる。

【0109】

例えば、

テンサイ：褐斑病(*Cercospora beticola*)、黒根病(*Aphanomyces cochlioides*)、根腐病(*Thanatephorus cucumeris*)、葉腐病(*Thanatephorus cucumeris*)；

ラッカセイ：褐斑病(*Mycosphaerella arachidis*)、黒渋病(*Mycosphaerella berkeleyi*)；

キュウリ：うどんこ病(*Sphaerotheca fuliginea*)、べと病(*Pseudoperonospora cubensis*)、つる枯病(*Mycosphaerella melonis*)、つる割病(*Fusarium oxysporum*)、菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)、灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、炭そ病(*Colletotrichum orbiculare*)、黒星病(*Cladosporium cucumerinum*)、褐斑病(*Corynespora cassicola*)、苗立枯病(*Pythium debaryanum*、*Rhizoctonia solani* Kuhn)、斑点細菌病(*Pseudomonas syringae* p.v.*Lecrymans*)；

トマト：灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、葉かび病(*Cladosporium fulvum*)、疫病(*Phytophthora infestans*)；

ナス：灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、黒枯病(*Corynespora melongenae*)、うどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、すすかび病(*Mycovellosiella nattrassii*)；

【0110】

イチゴ：灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、うどんこ病(*Sphaerotheca humuli*)、炭そ病(*Colletotrichum acutatum*、*Colletotrichum fragariae*)、疫病(*Phytophthora cactorum*)；

タマネギ：灰色腐敗病(*Botrytis allii*)、灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、白斑葉枯病(*Botrytis squamosa*)、べと病(*Peronospora destructor*)；

キャベツ：根こぶ病(*Plasmodiophora brassicae*)、軟腐病(*Erwinia carotovora*)、べと病(*Peronospora parasitica*)；

インゲン：菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)、灰色かび病(*Botrytis cinerea*)；

りんご：うどんこ病(*Podosphaera leucotricha*)、黒星病(*Venturia inaequalis*)、モニリア病(*Monilinia mali*)、黒点病(*Mycosphaerella pomi*)、腐らん病(*Valsa mali*)、斑点落葉病(*Alternaria mali*)、赤星病(*Gymnosporangium yamadae*)、輪紋病(*Botryosphaeria berengeriana*)、炭そ病(*Glomerella cingulata*、*Colletotrichum acutatum*)、褐斑病(*Diplocarpon mali*)、すす点病(*Zygophiala jamaicensis*)、すす斑病(*Gloeodes pomigena*)；

カキ：うどんこ病(*Phyllactinia kakicola*)、炭そ病(*Gloeosporium kaki*)、角斑落葉病(*Cercospora kaki*)；

【0111】

モモ：灰星病(*Monilinia fructicola*)、黒星病(*Cladosporium carpophilum*)、ホモプシス腐敗病(*Phomopsis* sp.)；

オウトウ：灰星病(*Monilinia fructicola*)；

ブドウ：灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、うどんこ病(*Uncinula necator*)、晩腐病(*Glomerella cingulata*、*Colletotrichum acutatum*)、べと病(*Plasmopara viticola*)、黒とう病(*Elsinoe ampelina*)、褐斑病(*Pseudocercospora vitis*)、黒腐病(*Guignardia bidwellii*)；

10

20

30

40

50



ナシ：黒星病(*Venturia nashicola*)、赤星病(*Gymnosporangium asiaticum*)、黒斑病(*Alternaria kikuchiana*)、輪紋病(*Botryosphaeria berengeriana*)、うどんこ病(*Phyllactinia mali*)；

チャ：輪斑病(*Pestalotia theae*)、炭そ病(*Colletotrichum theae-sinensis*)；

カンキツ：そうか病(*Elsinoe fawcetti*)、青かび病(*Penicillium italicum*)、緑かび病(*Penicillium digitatum*)、灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、黒点病(*Diaporthe citri*)、かいよう病(*Xanthomonas campestris* pv.*Citri*)；

コムギ：うどんこ病(*Erysiphe graminis* f.sp.*tritici*)、赤かび病(*Gibberella zeae*)、赤さび病(*Puccinia recondita*)、褐色雪腐病(*Pythium iwayamai*)、紅色雪腐病(*Monographella nivalis*)、眼紋病(*Pseudocercospora herpotrichoides*)、葉枯病(*Septoria tritici*)、ふ枯病(*Leptosphaeria nodorum*)、雪腐小粒菌核病(*Typhula incarnata*)、雪腐大粒菌核病(*Myriosclerotinia borealis*)、立枯病(*Gaeumanomyces graminis*)；

#### 【 0 1 1 2 】

オオムギ：斑葉病(*Pyrenophora graminea*)、雲形病(*Rhynchosporium secalis*)、裸黒穂病(*Ustilago tritici*、*U.nuda*)；

イネ：いもち病(*Pyricularia oryzae*)、紋枯病(*Rhizoctonia solani*)、馬鹿苗病(*Gibberella fujikuroi*)、ごま葉枯病(*Cochliobolus miyabeanus*)、苗立枯病(*Pythium graminicola*)、白葉枯病(*Xanthomonas oryzae*)、苗立枯細菌病(*Burkholderia plantarii*)、褐条病(*Acidovorax avenae*)、もみ枯細菌病(*Burkholderia glumae*)；

タバコ：菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)、うどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)；

チューリップ：灰色かび病(*Botrytis cinerea*)；

ペントグラス：雪腐大粒菌核病(*Sclerotinia borealis*)、赤焼病(*Pythium aphanidermatum*)；

オーチャードグラス：うどんこ病(*Erysiphe graminis*)；

ダイズ：紫斑病(*Cercospora kikuchii*)、べと病(*Peronospora Manshurica*)、茎疫病(*Phytophthora sojae*)；

ジャガイモ・トマト：疫病(*Phytophthora infestans*)；

などの防除に使用することができる。

#### 【 0 1 1 3 】

また、本発明の農園芸用殺菌剤は、耐性菌に対しても優れた殺菌効果を有する。耐性菌としては、チオファネートメチル、ベノミル、カルベンダジムなどのベンズイミダゾール系殺菌剤に耐性を示す灰色かび病菌 (*Botrytis cinerea*) やテンサイ褐斑病菌 (*Cercospora beticola*)、リンゴ黒星病菌 (*Venturia inaequalis*)、ナシ黒星病菌 (*Venturia nashicola*)；ジカルボキシイミド系殺菌剤 (例えば、ピンクロゾリン、プロシミドン、イプロジオン) に耐性を示す灰色かび病菌 (*Botrytis cinerea*) などが挙げられる。

#### 【 0 1 1 4 】

本発明の農園芸用殺菌剤の適用がより好ましい病害としては、リンゴの黒星病、キュウリの灰色かび病、コムギのうどんこ病、トマトの疫病、コムギの赤さび病、水稻のいもち病、キュウリのつる割病などが挙げられる。

#### 【 0 1 1 5 】

また、本発明の農園芸用殺菌剤は薬害が少なく、魚類や温血動物への毒性が低く、安全性の高い薬剤である。

本発明の農園芸用殺菌剤は、農薬としてとり得る形態、即ち、水和剤、粒剤、粉剤、乳剤、水溶剤、懸濁剤、顆粒水和剤などの農薬製剤の形態で使用することができる。

#### 【 0 1 1 6 】

固体の製剤に用いられる添加剤および担体としては、大豆粉、小麦粉などの植物性粉末、珪藻土、燐灰石、石こう、タルク、ペントナイト、パイロフィライト、クレーなどの鉱物性微粉末、安息香酸ソーダ、尿素、芒硝などの有機および無機化合物などが挙げられる。

#### 【 0 1 1 7 】

10

20

30

40

50

液体の製剤に用いられる溶剤としては、ケロシン、キシレンおよび石油系の芳香族炭化水素、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、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、水などが挙げられる。

【0118】

さらに、これらの製剤において均一かつ安定な形態をとるために、必要に応じて界面活性剤を添加することができる。

添加することができる界面活性剤は特に限定されない。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など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-無水マレイン酸共重合体などが挙げられる。

【0119】

このようにして得られた水和剤、乳剤、フロアブル剤、水溶剤、若しくは顆粒水和剤は、水で所定の濃度に希釈して、溶解液、懸濁液あるいは乳濁液として植物に散布するなどして使用することができる。また、粉剤・粒剤はそのまま植物に散布するなどして使用することができる。

【0120】

本発明の農園芸用殺菌剤中における有効成分量は、製剤全体に対して、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。

【0121】

本発明の農園芸用殺菌剤の施用量は、気象条件、製剤形態、施用時期、施用方法、施用場所、防除対象病害、対象作物などにより異なるが、通常1ヘクタール当たり有効成分化合物量にして1~1,000g、好ましくは10~100gである。

【0122】

水和剤、乳剤、懸濁剤、水溶剤、顆粒水和剤などを水で希釈して施用する場合、その施用濃度は1~1000ppm、好ましくは10~250ppmである。

【0123】

本発明の農園芸用殺菌剤には、他の殺菌剤や殺虫・殺ダニ剤、共力剤を混合することができる。また、本発明の農園芸用殺菌剤と他の殺菌剤や殺虫・殺ダニ剤、共力剤とを同時にまたは相前後して使用することができる。

このような態様で使用することができる他の殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、植物生長調節剤の代表例を以下に示す。

【0124】

殺菌剤：

(1) ベンゾイミダゾール系：ベノミル、カルベンダジム、フベリダゾール、チアベンダゾール、チオファネートメチル、クロルフェナゾール；

(2) ジカルボキシイミド系：クロゾリネート、イプロジオン、プロシミドン、ピンクロゾリン；

(3) DMI-殺菌剤系：イマザリル、オキシポコナゾール、ペフラゾエート、プロクロラズ、トリフルミゾール、トリホリン、ピリフェノックス、フェナリモル、ヌアリモル、アザコナゾール、ピテルタノール、プロムコナゾール、シプロコナゾール、ジフェノコナゾール、ジニコナゾール、エポキシコナゾール、フェンブコナゾール、フルキンコナゾール、フルシラゾール、フルトリアホル、ヘキサコナゾール、イミベンコナゾール、イブコナゾール、メトコナゾール、ミクロブタニル、ペンコナゾール、プロピコナゾール、プロチオコナゾール、シメコナゾール、テブコナゾール、テトラコナゾール、トリアジメホン

10

20

30

40

50

、トリアジメノール、トリチコナゾール、エタコナゾール、ファーコナゾールシス；ジクロトラゾール、ジニコナゾール - M、ドデモルフ・アセテート、フルコナゾール、イマザリル・サルフェート、ナフチフェン、ユニコナゾールP、ビニコナゾール、ポリコナゾール；

【0125】

(4) フェニルアミド系：ベナラキシル、ベナラキシル - M、クロジラコン、フララキシル、メタラキシル、メタラキシル - M、オキサジキシル、オフラセ；

(5) アミン系：アルジモルフ、ドデモルフ、フェンプロピモルフ、トリデモルフ、フェンプロピジン、ピペラリン、スピロキサミン；

(6) ホスホロチオレート系：EDDP、イプロベンホス、ピラゾホス；

(7) ジチオラン系：イソプロチオラン；

(8) カルボキサミド：ベノダニル、ボスカリド、カルボキシシン、フェンフラン、フルトラニル、フラメトピル、メプロニル、オキシカルボキシシン、ペンチオピラド、チフルザミド、ピキサフェン、イソピラザム、ペンフルフェン、フルキサピロキサド、セダキサシン；

(9) ヒドロキシ - (2 - アミノ)ピリミジン系：ブピリメート、ジメチリモル、エチリモル；

【0126】

(10) AP殺菌剤(アニリノピリミジン)系：シプロジニル、メパニピリム、ピリメタニル、アンドプリム；

(11) N - フェニルカーバメート系：ジエトフェンカルブ；

(12) QoI - 殺菌剤(Qo阻害剤)系：アゾキシストロピン、ピコキシストロピン、ピラクロストロピン、クレソキシム-メチル、トリフロキシストロピン、ジモキシストロピン、メトミノストロピン、オリザストロピン、ファモキサドン、フルオキサストロピン、フェンアミドン、メトミノフェン；アメトクトラジン、ピラメトストロピン、ピラオキシストロピン、ピリベンカルブ；クメトキシストロピン、クモキシストロピン、エネストロブリン、フェノキシストロピン、トリクロピリカルブ；

(13) PP殺菌剤(フェニルピロール)系：フェンピコニル、フルジオキシソニル；

(14) キノリン系：キノキシフェン；

【0127】

(15) AH殺菌剤(芳香族炭化水素)系：ピフェニル、クロロネブ、ジクロラン、キントゼン、テクナゼン、トルクトフォス-メチル；

(16) MBI - R系：フサライド、ピロキロン、トリシクラゾール；

(17) MBI - D系：カルプロパミド、ジクロシメット、フェノキサニル；

(18) SBI剤：フェンヘキサミド、ピリブチカルブ、ターピナフィン；

(19) フェニルウレア：ペンシクロン；

(20) QiI - 殺菌剤(Qi阻害剤)：シアゾファミド、アミスルプロム、フルメシクロックス；

(21) ベンズアミド系：ゾキサミド；

(22) エノピランウロン系：プラストサイジン、ミルディオマイシン；

(23) ヘキサピラノシル系：カスガマイシン、カスガマイシン塩酸塩；

(24) グルコピラノシル系：ストレプトマイシン、バリダマイシン、バリダマイシンA；

(25) シアノアセトアミド系：シモキサニル；

(26) カーバメート系：ヨードカルブ、プロパモカルブ、プロチオカルブ、ポリカーバメート；

(27) 脱共役剤：ピナパクリル、ジノカップ、フェリムゾン、フルアジナム、メブチルジノカップ；

(28) 有機スズ化合物：酢酸トリフェニルスズ、塩化トリフェニルスズ、水酸化トリフェニルスズ；

【0128】

10

20

30

40

50

(29) リン酸エステル：亜リン酸、トルクロホスメチル、ホセチル、トルクトフォスメチル；

(30) フタルアミド酸系：テクロフタラム；

(31) ベンゾトリアジン系：トリアゾキシド；

(32) ベンゼンスルフォナミド系：フルスルファミド；

(33) ピリダジノン：ジクロメジン；

(34) CAA殺菌剤（カルボン酸アミド）系：ジメトモルフ、フルモルフ、ベンチアバリカルブ-イソプロピル、イプロバリカルブ、マンジプロパミド、バリフェナレート；

(35) テトラサイクリン：オキシテトラサイクリン；

(36) チオカーバメート系：メタスルホカルブ；

(37) 抵抗性誘導剤：アシベンゾラルSメチル、プロベナゾール、チアジニル、イソチアニル；

(38) その他の化合物：エトリジアゾール、ポリオキシシ、ポリオクソリム、オキシロニック酸、ヒドロキシイソキサゾール、オクチリノン、シルチオフアム、ジフルメトリム、エタボキサム、シフルフェナミド、プロキナジド、メトラフェノン、フルオピコリド、

ボルドー液、銅ナフタレート、酸化銅、オキシ塩化銅、硫酸銅、マンコッパー、ビス(8-キノリノラト)銅(II)、水酸化第二銅、有機銅、硫黄、多硫化カルシウム、ファーバム、マンゼブ、マンネブ、メチラム、プロピネブ、チウラム、ジネブ、ジラム、キャプタン、カプタホール、フォルベット、クロロタロニル、ジクロフルアニド、トリルフルアニド、

ドジン、グアザチン、イミノクタジン、イミノクタジン酢酸塩、イミノクタジンドキシベンゼンスルホン酸塩、アニラジン、ジチアノン、クロロピクリン、ダゾメット、キノメチオネート、シプロフラム、アグロバクテリウム、フルオルイミド；イソフェタミド、

トルプロカルブ、フェンピラザミン、ピリオフェノン、テブフロキン、フルオピラム、ザリラミド；フルオロフォルベット、プロパミジン、エジフェンホス；ベンチアゾール、

ベトキサジン、カプサイシン、カルボン、クフラネブ、マンコゼブ、シプロスルファミド、デバカルブ、ジクロロフェン、ジフェンゾクワット、ジフェンゾクワット・メチルスルホネート、

ジフェニルアミン、フルメトベル、フルオロイミド、フルチアニル、ホセチル・アルミニウム、ホセチル・カルシウム、ホセチル・ナトリウム、イルママイシン、メチルイソチアネート(MITC)、ミルデオマイシン、ナタマイシン、ニトロタールイソプロピル、

オキサモカルブ、オキシフェンチン、プロパモカルブ・ホセチレート、プロパモシン・ナトリウム、ピリモルフ、ピロールニトリン、トルニファニド、トリクラミド；

#### 【0129】

殺虫・殺ダニ剤、殺線虫剤、殺土壌害虫剤、駆虫剤：

(1) 有機(チオ)ホスフェート系：アセフェート、アザメチホス、アジンホス・メチル、アジンホス・エチル、プロモホス・エチル、プロムフェンピンホス、BRP、クロルピリホス、

クロルピリホス・メチル、クロルピリホス・エチル、クロルフェンピンホス、カズサホス、カルボフェノチオン、クロルエトキシホス、クロルメホス、クマホス、シアノフェンホス、

シアノホス、CYAP、ダイアジノン、ジクロルボス、ジクロトホス、ジメトエート、ジスルホトン、ジメトン-S-メチル、ジメチルピンホス、ジメトン-S-メチルスルホン、

ジアリホス、ダイアジノン、ジクロフェンチオン、ジオキサベンゾホス、ジスルホトン、エチオン、エトプロホス、エトリムホス、EPN、フェナミホス、フェニトロチオン、

フェンチオン、フェンスルホチオン、フルピラゾホス、ホノホス、ホルモチオン、ホスメチラン、ヘプテノホス、イサゾホス、ヨードフェンホス、イソフェンホス、イソキサチオン、

イプロベンホス、マラチオン、メピンホス、メタミドホス、メチダチオン、モノクロトホス、メカルバム、メタクリホス、ナレッド、オメトエート、オキシジメトン・メチル、

パラオクソン、パラチオン、パラチオン・メチル、フェントエート、ホサロン、ホスメット、ホスファミドン、ホレート、ホキシム、ピリミホス・メチル、ピリミホス・エチル、

プロフェノホス、プロチオホス、ホスチアゼート、ホスホカルブ、プロパホス、プロベタムホス、プロトエート、ピリダフェンチオン、ピラクロホス、キナルホス、

10

20

30

40

50

サリチオン、スルプロホス、スルホテップ、テトラクロロピンホス、テルブホス、トリアゾホス、トリクロロホン、テブピリムホス、テメホス、チオメトン、バミドチオン；

【0130】

(2) カルバメート系：アラニカルブ、アルジカルブ、ベンダイオカルブ、ベンフラカルブ、カルバリル、カルボフラン、カルボスルファン、フェノキシカルブ、フェノチオカルブ、メチオカルブ、メソミル、オキサミル、ピリミカーブ、プロボキスル、チオジカルブ、トリアザメート、エチオフエンカルブ、フェノブカルブ、MIPC、MPMC、MTMC、フラチオカルブ、XMC、アルドキシカルブ、アリキシカルブ、アミノカルブ、プフェンカルブ、ブタカルブ、プトカルボキシム、プトキシカルボキシム、クロエトカルブ、ジメチラン、ホルメタネート、イソプロカルブ、メタム・ナトリウム、メトルカルブ、プロメカルブ、チオフアノックス、トリメタカルブ、キシリルカルブ；

10

【0131】

(3) ピレトロイド系：アレトリン、ピフェントリン、シフルトリン、ベータ・シフルトリン、シハロトリン、ラムダ・シハロトリン、シフェノトリン、シペルメトリン、アルファ・シペルメトリン、ベータ・シペルメトリン、ゼータ・シペルメトリン、デルタメトリン、エスフェンバレレート、エトフェンプロックス、フェンプロパトリン、フェンバレレート、イミプロトリン、ベルメトリン、プラレトリン、ピレトリン、ピレトリンI、ピレトリンII、レスメトリン、シラフルオフエン、フルバリネート、テフルトリン、テトラメトリン、トラロメトリン、トランスフルトリン、プロフルトリン、ジメフルトリン、アクリナトリン、シクロプロトリン、ハルフェンプロックス、フルシトリネート、ピオアレスリン、ピオエタノメトリン、ピオペルメトリン、ピオレスメトリン、トランスペルメトリン、エンペントリン、フェンフルトリン、フェンピリトリン、フルプロシトリネート、フルフェンプロックス、フルメトリン、メトフルトリン、フェノトリン、プロトリフェンブト、ピレスメトリン、テラレトリン；

20

【0132】

(4) 成長調節物質：

(a) キチン合成阻害剤：クロルフルアズロン、ジフルベンズロン、フルシクロクスロン、フルフェノクスロン、ヘキサフルムロン、ルフエヌロン、ノバルロン、テフルベンズロン、トリフルムロン、ピストリフルロン、ノビフルムロン、ブプロフェジン、ヘキシチアゾクス、エトキサゾール、クロフェンテジン、フルアズロン、ペンフルロン；

30

(b) エクジソンアンタゴニスト：ハロフェノジド、メトキシフェノジド、テブフェノジド、クロマフェノジド、アザジラクチン；

(c) 幼若ホルモン様物質：ピリプロキシフェン、メトブレン、ジオフェノラン、エポフェノナン、ハイドロブレン、キノブレン、トリブレン；

(d) 脂質生合成阻害剤：スピロジクロフェン、スピロメシフェン、スピロテトラマト、フロニカミド；

【0133】

(5) ニコチン受容体アゴニスト/アンタゴニスト化合物：アセタミプリド、クロチアニジン、ジノテフラン、イミダクロプリド、ニテンピラム、チアクロプリド、チアメトキサム、ニチアジン、ニコチン、ベンスルタップ、カルタップ、フルピラジフロン；

40

(6) GABAアンタゴニスト化合物：

(a) アセトプロール、エチプロール、フィプロニル、パニリプロール、ピラフルプロール、ピリプロール；

(b) 有機塩素系：カンフェクロル、クロルデン、エンドスルファン、HCH、 $\gamma$ -HCH、ヘプタクロル、メトキシクロル；

(7) 大環状ラクトン殺虫剤：アバメクチン、エマメクチン安息香酸塩、ミルベメクチン、レピメクチン、スピノサド、イベルメクチン、セラメクチン、ドラメクチン、エピノメクチン、モキシデクチン、ミルベマイシン、ミルベマイシンオキシム；

(8) METI化合物：フェナザキン、ピリダベン、テブフェンピラド、トルフェンピラド、フルフェネリム、ヒドラメチルノン、フェンピロキシメート、ピリミジフェン、

50

ジコホル；

( 9 ) M E T I I I および I I I 化合物：アセキノシル、フルアクリピリム、ロテノン；

( 1 0 ) 脱共役剤化合物：クロルフェナピル、ピナパクリル、ジノプトン、ジノカップ、D N O C ；

【 0 1 3 4 】

( 1 1 ) 酸化的リン酸化阻害剤化合物：シヘキサチン、ジアフェンチウロン、フェンブタチン・オキシド、プロパルギット、アゾシクロチン；

( 1 2 ) 脱皮かく乱化合物：シロマジン；

( 1 3 ) 混合機能オキシダーゼ阻害剤化合物：ピペロニルブトキシド；

10

( 1 4 ) ナトリウムチャンネル遮断剤化合物：インドキサカルブ、メタフルミゾン；

( 1 5 ) 微生物農薬：B T 剤、昆虫病原ウイルス剤、昆虫病原糸状菌剤、線虫病原糸状菌剤；パチルス属種、白きょう病菌、黒きょう病菌、ペキロマイセス属種、チューリングエンシン、パーティシリウム属種；

( 1 6 ) ラトロフィリン受容体作用薬：デブシペプチド、環状デブシペプチド、2 4 員環状デブシペプチド、エモデブシド；

( 1 7 ) オクトパミン性作用薬：アミトラズ；

( 1 8 ) リアノジン誘導体作用薬：フルベンジアミド、クロラントラニリプロール、シアントラリニプロール；

( 1 9 ) マグネシウム刺激性 A T P アーゼの阻害薬：チオシクラム、チオスルタップ、ネライストキシン；

20

( 2 0 ) 摂食阻害薬：ピメトロジン；

( 2 1 ) ダニ成長阻害薬：クロフェンテジン、エトキサゾール；

( 2 2 ) その他の化合物：ベンクロチアズ、ピフェナゼート、ピリダリル、硫黄、シエノピラフェン、シフルメトフェン、アミドフルメット、テトラジホン、クロルジメホルム、1, 3 - ジクロロプロベン、D C I P、フェニソプロモレート、ベンゾメート、メタアルデヒド、スピネトラム、ピリフルキナゾン、ベンゾキシメート、プロモプロピレート、キノメチオネート、クロルベンジレート、クロルピクリン、クロチアゾベン、ジシクラニル、フェノキサクリム、フェントリファニル、フルベンジミン、フルフェンジン、ゴシップルア、ジャポニルア、メトキサジアゾン、石油、オレイン酸カリウム、スルフルラミド、テトラスル、トリアラセン；アフィドピロベン (afidopyropen)、ピフルブミド (pyflubumide)、フロメトキン、フルフィプロル (flufiprole)、フルエンスルフォン、メペルフルスリン、テトラメチルフルスリン、スルホキサフロール、イミシアホス、トラロピリル、ジフロピダジン、ジメフルスリン、メチルネオデカンアミド；

30

( 2 3 ) 駆虫剤：

( a ) ベンズイミダゾール系：フェンベンダゾール、アルベンダゾール、トリクラベンダゾール、オキシベンダゾール；

( b ) サリチルアニリド系：クロサンテル、オキシクロザニド；

( c ) 置換フェノール系：ニトロキシニル；

( d ) ピリミジン系：ピランテル；

40

( e ) イミダゾチアゾール系：レバミソール；

( f ) テトラヒドロピリミジン：プラジカンテル；

( g ) その他の駆虫薬：シクロジエン、リアニア、クロルスロン、メトロニダゾール；

【 0 1 3 5 】

植物生長調節剤：

アブシジン酸、インドール酪酸、ウニコナゾール、エチクロゼート、エテホン、クロキシホナック、クロルメコート、クロレラ抽出液、過酸化カルシウム、シアナミド、ジクロロプロップ、ジベレリン、ダミノジッド、デシルアルコール、トリネキサバックエチル、メピコートクロリド、パクロブトラゾール、パラフィンワックス、ピペロニルブトキシド、ピラフルフェンエチル、フルルプリミドール、プロヒドロジャスモン、プロヘキサジオ

50

ンカルシウム塩、ベンジルアミノプリン、ペンディメタリン、ホルクロルフェニユロン、マレイン酸ヒドラジドカリウム、1-ナフチルアセトアミド、4-CPA、MCPB、コリン、硫酸オキシキノリン、エチクロゼート、ブトルアリン、1-メチルシクロプロペン、アピグリシン塩酸塩；

【実施例】

【0136】

次に、実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明は以下の実施例により何ら限定されるものではない。

【0137】

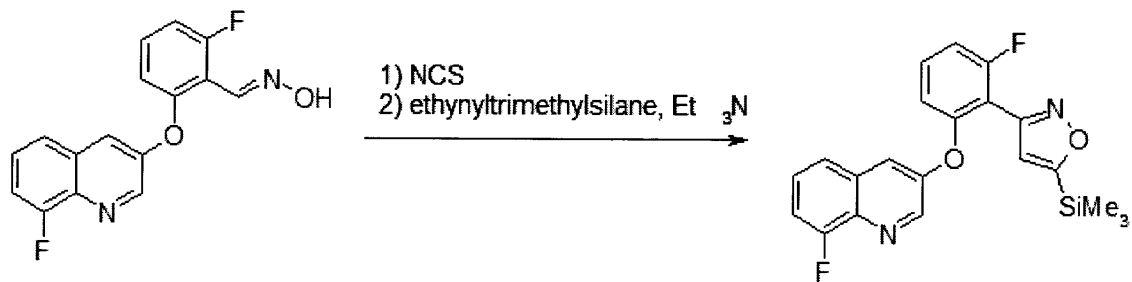
実施例 1

8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-イソキサゾール-3-イルフェノキシ)-キノリンの製造方法

〔工程1〕

【0138】

【化15】



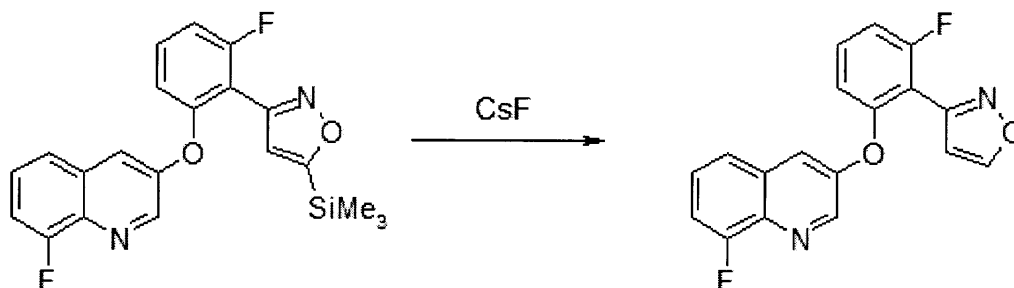
【0139】

2-フルオロ-6-(8-フルオロキノリン-3-イルオキシ)ベンズアルデヒド オキシム 0.42 g を N, N-ジメチルホルムアミド 4 mL に溶解させた。該溶液を 50 に加温し、これに N-クロロコハク酸イミド 0.19 g を加えて 2.5 時間反応させた。次いで、この反応溶液に、エチニルトリメチルシラン 0.18 g を加えて、0 に冷却した。次いで、この反応溶液に、トリエチルアミン 0.18 g を N, N-ジメチルホルムアミド 1.4 mL に溶解させた溶液を滴下し、滴下終了後室温に戻し、そのまま 5 時間反応させた。その後、反応溶液を酢酸エチルと水で分液し、有機相を水洗し、硫酸マグネシウムで乾燥させた。これをろ過し、濃縮した。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して、8-フルオロ-3-[3-フルオロ-2-(5-トリメチルシリルイソキサゾール-3-イル)フェノキシ]-キノリン 0.47 g を得た。

〔工程2〕

【0140】

【化16】



【0141】

8-フルオロ-3-[3-フルオロ-2-(5-トリメチルシリルイソキサゾール-3-イル)フェノキシ]-キノリン 0.30 g をアセトニトリル 4.5 mL およびエタノ

10

20

30

40

50

ール 1.5 mL の混合溶媒に溶解させた。この溶液にフッ化セシウム 0.16 g を加えて、室温で 1 時間攪拌した。その後、反応溶液に飽和塩化アンモニウム水溶液を加えて、反応を停止させた。この溶液を酢酸エチルと水で分液し、有機相を水洗し、硫酸マグネシウムで乾燥させた。これをろ過し、濃縮した。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して、8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-イソオキサゾール-3-イルフェノキシ)-キノリン 0.12 g を得た。

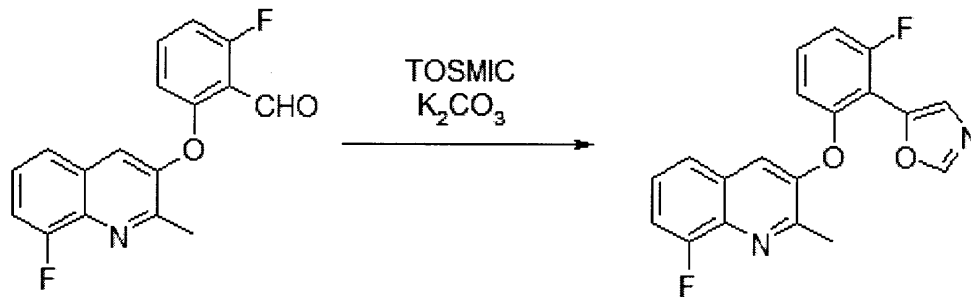
【0142】

実施例 2

8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-オキサゾール-5-イルフェノキシ)-2-メチルキノリンの製造方法

【0143】

【化17】



【0144】

2-フルオロ-6-(8-フルオロ-2-メチルキノリン-3-イルオキシ)ベンズアルデヒド 0.32 g、および p-トルエンスルホニルメチルイソシアニド 0.21 g をメタノール 3.2 mL に溶解させた。この溶液に炭酸カリウム 0.15 g を室温に加え、次いで、攪拌しながら 4.5 時間加熱還流した。その後、反応溶液を室温に戻し、溶媒を留去した。得られた残渣を酢酸エチルと水で分液し、有機相を水洗し、硫酸マグネシウムで乾燥させた。これをろ過し、濃縮した。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して、8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-オキサゾール-5-イルフェノキシ)-2-メチルキノリン 0.27 g を得た。

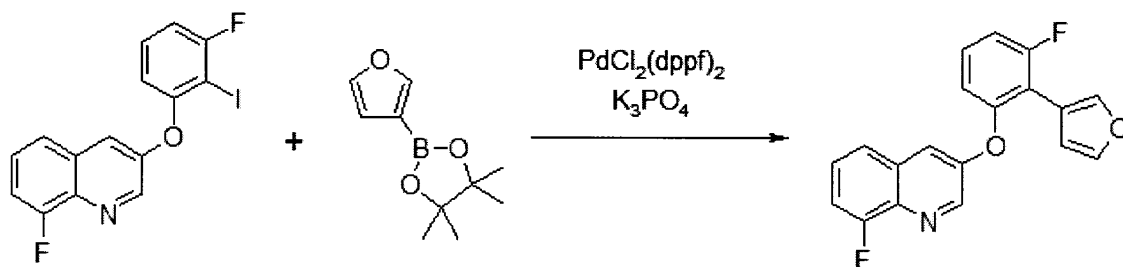
【0145】

実施例 3

8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-フラン-3-イルフェノキシ)-キノリンの製造方法

【0146】

【化18】



【0147】

8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-ヨードフェノキシ)-キノリン 0.50 g、フラン-3-ボロン酸ピナコールエステル 0.25 g、[1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン]パラジウム(II)ジクロリド 0.11 g およびリン酸カリウム 0.55 g を、1,4-ジオキサン 10 mL および水 2 mL の混合溶媒に溶解させた。こ

10

20

30

40

50



の溶液を攪拌しながら5時間加熱還流した。その後、反応溶液を酢酸エチルと水で分液し、有機相を水洗し、硫酸マグネシウムで乾燥させた。これをろ過し、濃縮した。その後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製して、8-フルオロ-3-(3-フルオロ-2-フラン-3-イルフェノキシ)-キノリン0.27gを得た。

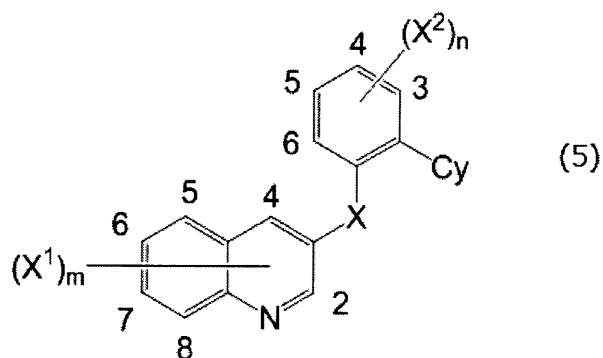
【0148】

上記の実施例で得られた含窒素ヘテロ環化合物、および上記の実施例のいずれかと同様の手法によって合成することができる含窒素ヘテロ環化合物を、第1表～第4表に示す。表中の記号は式(5)～式(8)で表される化合物の置換基である。Pyはピリジンを意味する。物性の欄には、融点( )、屈折率(nD)、性状(Amr.はアモルファス、Oilは常温で油状であることを意味する。)をそれぞれ示す。

10

【0149】

【化19】



20

【0150】

【表 1】

第 1 表

化合物 番号	(X <sup>1</sup> ) <sub>m</sub>	(X <sup>2</sup> ) <sub>n</sub>	Cy	-X-	物性
1-1	8-F	3-F	Py-3-yl	-O-	Amr.
1-2	8-F	3-F	2-CH <sub>3</sub> O-Py-3-yl	-O-	145-148
1-3	8-F	3-F	6-CH <sub>3</sub> O-Py-3-yl	-O-	n <sub>D</sub> <sup>23.3</sup> 1.5922
1-4	8-F	3-F	Py-4-yl	-O-	105-108
1-5	8-F	3-F	2-Cl-Py-4-yl	-O-	Amr.
1-6	8-F	3-F	thien-3-yl	-O-	82-85
1-7	8-F	3-F	1-CH <sub>3</sub> -1H-pyrazole-4-yl	-O-	104-105
1-8	8-F	3-F	4,4-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -2-imidazoline-2-yl	-O-	112-117
1-9	8-F	3-F	isoxazol-3-yl	-O-	106-108
1-10	8-F	3-F	2-isoxazoline-3-yl	-O-	115-117
1-11	8-F	3-F	5,5-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -2-isoxazoline-3-yl	-O-	Oil
1-12	8-F	3-F	5-TMS-isoxazol-3-yl	-O-	103-104
1-13	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	5-TMS-isoxazol-3-yl	-O-	Oil
1-14	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	oxazol-5-yl	-O-	172-173
1-15	8-F	3-F	oxazoline-2-yl	-O-	Oil
1-16	8-F	3-F	furan-3-yl	-O-	69-70
1-17	8-F	3-F	2-oxo-1,3-dioxlan-4-yl	-O-	Amr.
1-18	8-F	3-F	4-CH <sub>3</sub> -1,3-dioxlan-2-yl	-O-	109-111
1-19	8-F	3-F	4,4,5,5-(CH <sub>3</sub> ) <sub>4</sub> -1,3-dioxlan-2-yl	-O-	121-123
1-20	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	isoxazol-3-yl	-O-	Oil
1-21	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	5-CH <sub>3</sub> -isoxazol-3-yl	-O-	Oil
1-22	8-F	3-F	oxazol-2-yl	-O-	80-82

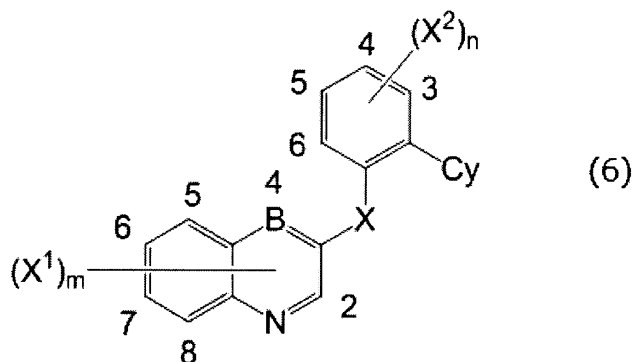
10

20

30

【 0 1 5 1 】

【 化 2 0 】



40

【 0 1 5 2 】

【表 2】

第 2 表

化合物 番号	(X <sup>1</sup> ) <sub>m</sub>	(X <sup>2</sup> ) <sub>n</sub>	Cy	B	-X-	物性
2-1	8-F	3-CH <sub>3</sub>	oxiranyl	C	-O-	Amr.
2-2	8-F	3-F	thiazol-2-yl	C	-O-	95-98
2-3	8-F	3-F	1H-pyrazol-3-yl	C	-O-	138-140
2-4	8-F	3-F	1-CH <sub>3</sub> -1H-pyrazol-3-yl	C	-O-	116-117
2-5	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	1H-imidazol-2-yl	C	-O-	243-244
2-6	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	1-CH <sub>3</sub> -1H-imidazol-2-yl	C	-O-	149-151
2-7	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	4,5-dihydro-1H-imidazol-2-yl	C	-O-	150-152
2-8	8-F	3-Cl	isoxazol-3-yl	C	-O-	Amr.
2-9	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-Cl	5-TMS-isoxazol-3-yl	C	-O-	Amr.
2-10	8-F	3-F	oxazol-4-yl	C	-O-	113-115
2-11	8-F	3-Cl	oxazol-5-yl	C	-O-	Oil
2-12	8-F	3-F	1H-[1,2,3]triazol-4-yl	C	-O-	Amr.
2-13	8-F	3-F	3-CH <sub>3</sub> -3H-[1,2,3]triazol-4-yl	C	-O-	Oil
2-14	8-F	3-F	1-CH <sub>3</sub> -1H-[1,2,3]triazol-4-yl	C	-O-	153-155
2-15	8-F	3-F	1H-[1,2,4]triazol-3-yl	C	-O-	210-211
2-16	8-F	3-F	2-CH <sub>3</sub> -2H-[1,2,4]triazol-3-yl	C	-O-	134-135
2-17	8-F	3-F	[1,3,4]oxadiazol-2-yl	C	-O-	128-130
2-18	-	-	[1,3]dioxolan-2-yl	C	-CO-	134-136
2-19	-	-	[1,3]dioxolan-2-yl	C	-CHOH-	80-83
2-20	8-F	3-F	[1,3]dioxolan-2-yl	C	-CHOH-	159-161
2-21	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	3-Cl	oxazol-5-yl	C	-O-	149-150
2-22	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-Cl	oxazol-5-yl	C	-O-	159-160
2-23	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	3-Cl	isoxazol-3-yl	C	-O-	133-135
2-24	2-CH <sub>3</sub> , 7-F	3-Cl	oxazol-5-yl	C	-O-	Amr.

10

20

30

【 0 1 5 3 】

40

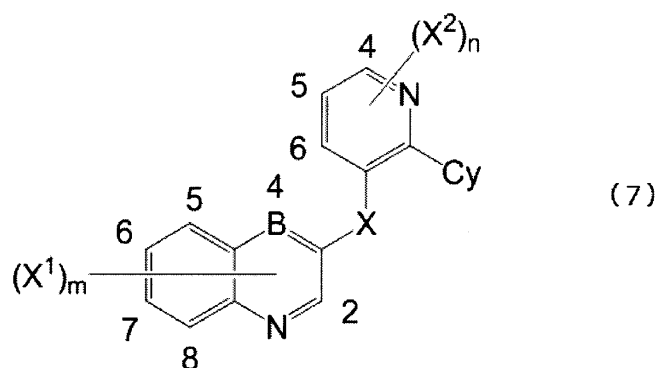
【表 3】

第 2 表

化合物 番号	(X <sup>1</sup> ) <sub>m</sub>	(X <sup>2</sup> ) <sub>n</sub>	Cy	B	-X-	物性
2-25	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	3-F	oxazol-4-yl	C	-O-	
2-26	8-F	3-F	4-CH <sub>3</sub> -isoxazol-3-yl	C	-O-	Oil
2-27	8-F	3-F	5-(CO <sub>2</sub> Et)-isoxazol-3-yl	C	-O-	159-161
2-28	8-F	3-F	5-Ph-isoxazol-3-yl	C	-O-	147-149
2-29	8-F	3-F	oxazol-5-yl	C	-S-	109-111
2-30	8-F	3-F	2,5-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -pyrrol-1-yl	C	-O-	103-105
2-31	8-F	3-F	tetrazol-1-yl	C	-O-	
2-32	8-F	3-F	2-CH <sub>3</sub> -benzimidazol-1-yl	C	-O-	
2-33	8-F	3-F	indazol-2-yl	C	-O-	
2-34	8-F	3-F	isoxazol-3-yl	N	-O-	118-120
2-35	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	isoxazol-3-yl	N	-O-	163-165
2-36	8-F	3-F	oxazol-5-yl	N	-O-	121-123
2-37	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	3-F	oxazol-5-yl	N	-O-	160-161
2-38	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	3-Cl	oxazol-5-yl	N	-O-	157-158
2-39	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	3-F	isoxazol-3-yl	N	-O-	136-137
2-40	2-CH <sub>3</sub> , 7-F	3-F	isoxazol-3-yl	N	-O-	
2-41	2-CH <sub>3</sub> , 7-F	3-Cl	oxazol-5-yl	N	-O-	141-142
2-42	2-CH <sub>3</sub> , 7-F	3-Cl	isoxazol-3-yl	N	-O-	110-112
2-43	8-F	3-F	5-CH <sub>3</sub> -isoxazol-3-yl	C	-O-	119-120
2-44	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	3-Cl	isoxazol-3-yl	N	-O-	140-142
2-45	8-F	3-F	2-oxo-pyrrolidin-1-yl	C	-O-	Amr.

【 0 1 5 4 】

【 化 2 1 】



【 0 1 5 5 】

10

20

30

40

50

【表4】

第3表

化合物 番号	(X <sup>1</sup> ) <sub>m</sub>	(X <sup>2</sup> ) <sub>n</sub>	Cy	B	-X-	物性
3-1	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	furan-3-yl	N	-O-	149-150
3-2	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	pyrimidine-5-yl	N	-O-	194-195
3-3	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	-	pyridine-3-yl	N	-O-	135-136
3-4	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	tetrazole-5-yl	C	-O-	226-228
3-5	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	1-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	C	-O-	154-155
3-6	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	2-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	C	-O-	155-157
3-7	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	oxazol-5-yl	C	-O-	186-187
3-8	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	-	2-CF <sub>3</sub> -oxadiazole-5-yl	C	-O-	142-143
3-9	8-F	-	furan-3-yl	C	-O-	
3-10	8-F	-	pyrimidine-5-yl	C	-O-	
3-11	8-F	-	pyridine-3-yl	C	-O-	
3-12	8-F	-	tetrazole-5-yl	N	-O-	
3-13	8-F	-	1-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	N	-O-	
3-14	8-F	-	2-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	N	-O-	
3-15	8-F	-	oxazol-5-yl	N	-O-	
3-16	8-F	-	2-CF <sub>3</sub> -oxadiazole-5-yl	N	-O-	

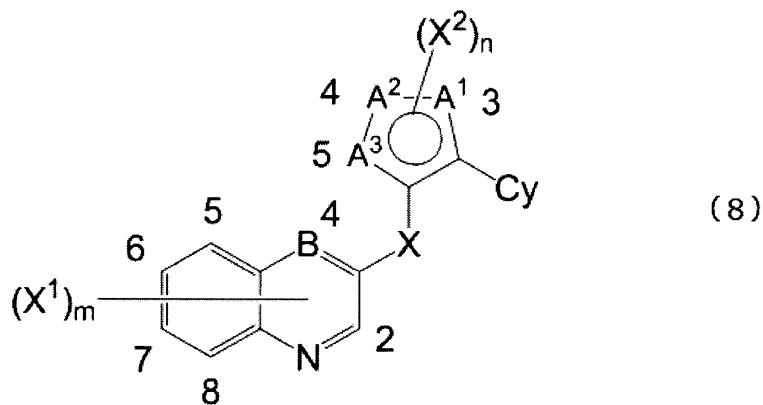
10

20

30

【0156】

【化22】



40

【0157】

【表5】

第4表

化合物 番号	(X <sup>1</sup> ) <sub>m</sub>	(X <sup>2</sup> ) <sub>n</sub>	A <sup>1</sup>	A <sup>2</sup>	A <sup>3</sup>	Cy	B	-X-	物性
4-1	2-CH <sub>3</sub> , 7,8-F <sub>2</sub>	-	S	C	C	oxazol-5-yl	N	-O-	198-199
4-2	2-CH <sub>3</sub> , 8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	oxazol-5-yl	C	-O-	202-203
4-3	8-F	-	S	C	C	furan-3-yl	N	-O-	
4-4	8-F	-	S	C	C	pyrimidine-5-yl	N	-O-	
4-5	8-F	-	S	C	C	pyridine-3-yl	N	-O-	
4-6	8-F	-	S	C	C	tetrazole-5-yl	C	-O-	
4-7	8-F	-	S	C	C	1-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	C	-O-	
4-8	8-F	-	S	C	C	2-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	C	-O-	
4-9	8-F	-	S	C	C	oxazol-5-yl	C	-O-	
4-10	8-F	-	S	C	C	2-CF <sub>3</sub> -oxadiazole-5-yl	C	-O-	
4-11	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	furan-3-yl	N	-O-	
4-12	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	pyrimidine-5-yl	N	-O-	
4-13	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	pyridine-3-yl	N	-O-	
4-14	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	tetrazole-5-yl	C	-O-	
4-15	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	1-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	C	-O-	
4-16	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	2-CH <sub>3</sub> -tetrazole-5-yl	C	-O-	
4-17	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	oxazol-5-yl	C	-O-	
4-18	8-F	1-CF <sub>3</sub> , 5-CH <sub>3</sub>	C	N	N	2-CF <sub>3</sub> -oxadiazole-5-yl	C	-O-	

10

20

30

## 【0158】

上記の表に示した化合物について<sup>1</sup>H-NMR (CDCl<sub>3</sub>, ppm)を測定した。測定結果の一部を以下に示す。

化合物 1 - 1 : 6.94 (d, 1H, J = 8.4 Hz), 7.12 (m, 1H), 7.28-7.32 (m, 2H), 7.38-7.46 (m, 4H), 7.79 (m, 1H), 8.54 (m, 1H), 8.69 (d, 1H, J = 2.8 Hz), 8.72 (s, 1H).

40

化合物 1 - 5 : 6.89 (d, 1H, J = 8.4 Hz), 7.11 (m, 1H), 7.32-7.53 (m, 7H), 8.41 (d, 1H, 5.2 Hz), 8.72 (d, 1H, J = 2.8 Hz).

化合物 1 - 11 : 1.37 (s, 6H), 3.07 (s, 2H), 6.87 (d, 1H), 7.06 (t, 1H), 7.27-7.51 (m, 5H), 8.83 (d, 1H)

化合物 1 - 13 : 0.31 (s, 9H), 2.69 (s, 3H), 6.64 (s, 1H), 6.88 (d, 1H), 7.11 (t, 1H), 7.25-7.46 (m, 5H)

化合物 1 - 15 : 3.95 (t, 2H), 4.28 (t, 2H), 6.88 (d, 1H), 7.05 (t, 1H), 7.29-7.53 (m, 5H), 8.87 (d, 1H).

化合物 1 - 17 : 4.65 (dd, 1H), 4.83 (dd, 1H), 6.21 (t, 1H), 6.74 (d, 1H), 6.99 (t, 1H), 7.37-7.53 (m, 4H), 7.69 (d, 1H), 8.83 (d, 1H).

50

化合物 1 - 2 0 : 2.73 (s, 3H), 6.61 (t, 1H), 6.86 (d, 1H), 7.12 (t, 1H), 7.25-7.49 (m, 5H), 8.45 (d, 1H).

化合物 1 - 2 1 : 2.38 (s, 3H), 2.70 (s, 3H), 6.18 (s, 1H), 6.82 (d, 1H), 7.07 (t, 1H), 7.22-7.44 (m, 5H)

化合物 2 - 1 : 4.09-4.15 (m, 1H), 4.34 (t, 1H), 5.70 (t, 1H), 6.69 (d, 1H), 6.94 (t, 1H), 7.24-7.36 (m, 2H), 7.48-7.50 (m, 2H), 7.64 (s, 1H), 8.84 (d, 1H)

化合物 2 - 8 : 6.48 (d, 1H), 6.99-7.03 (m, 1H), 7.26-7.34 (m, 1H), 7.37-7.44 (m, 5H), 8.44 (d, 1H), 8.71 (d, 1H)

化合物 2 - 9 : 0.28 (s, 9H), 6.49 (s, 1H), 7.04 (t, 1H), 7.26-7.28 (m, 1H), 7.39-7.47 (m, 5H), 8.69 (d, 1H)

化合物 2 - 1 1 : 7.03 (d, 1H), 7.29-7.48 (m, 7H), 7.91 (s, 1H), 8.76 (d, 1H)

化合物 2 - 1 2 : 6.96 (d, 1H), 7.14 (dd, 1H), 7.25-7.46 (m, 5H), 8.09 (d, 1H), 8.85 (d, 1H)

化合物 2 - 1 3 : 4.02 (s, 3H), 6.89 (d, 1H), 7.10 (t, 1H), 7.32-7.38 (m, 1H), 7.47-7.54 (m, 4H), 7.74 (s, 1H), 8.67 (d, 1H)

化合物 2 - 2 4 : 2.62 (s, 3H), 6.86 (dd, 1H), 7.25-7.35 (m, 5H), 7.57-7.61 (m, 2H), 7.92 (s, 1H)

化合物 2 - 2 6 : 2.01 (s, 3H), 6.93 (d, 1H), 7.12 (t, 1H), 7.28-7.33 (m, 1H), 7.45-7.52 (m, 4H), 8.24 (d, 1H), 8.74 (d, 1H)

化合物 2 - 4 5 : 2.00 (m, 1H), 2.14-2.30 (m, 2H), 2.46 (m, 1H), 3.70-3.75 (m, 2H), 6.89 (d, J = 8.4 Hz, 1H), 7.07 (m, 1H), 7.30-7.36 (m, 2H), 7.43-7.50 (m, 2H), 7.61 (m, 1H), 8.87 (d, J = 2.8 Hz, 1H)

#### 【 0 1 5 9 】

( 製 剤 )

次に、本発明に係る農園芸用殺菌剤の実施例を若干示すが、添加物および添加割合は、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。また、製剤実施例中の部は重量部を示す。

#### 【 0 1 6 0 】

製剤実施例 1                   水和剤

本発明の含窒素ヘテロ環化合物	4 0 部
クレー	4 8 部
ジオクチルスルホサクシネートナトリウム塩	4 部
リグニンスルホン酸ナトリウム塩	8 部

以上を均一に混合して微細に粉碎し、有効成分 4 0 % の水和剤を得る。

#### 【 0 1 6 1 】

製剤実施例 2                   乳剤

本発明の含窒素ヘテロ環化合物	1 0 部
ソルベッソ 2 0 0	5 3 部
シクロヘキサノン	2 6 部
ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム塩	1 部
ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル	1 0 部

以上を混合溶解し、有効成分 1 0 % の乳剤を得る。

#### 【 0 1 6 2 】

製剤実施例 3                   粉剤

本発明の含窒素ヘテロ環化合物	1 0 部
クレー	9 0 部

以上を均一に混合して微細に粉碎し、有効成分 1 0 % の粉剤を得る。

#### 【 0 1 6 3 】

製剤実施例 4                   粒剤

10

20

30

40

50

本発明の含窒素ヘテロ環化合物	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
リン酸カリウム	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。

【0164】

製剤実施例5 懸濁剤

本発明の含窒素ヘテロ環化合物	10部	10
ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル	4部	
ポリカルボン酸ナトリウム塩	2部	
グリセリン	10部	
キサンタンガム	0.2部	
水	73.8部	

以上を混合し、粒度が3ミクロン以下になるまで湿式粉碎し、有効成分10%の懸濁剤を得る。

【0165】

製剤実施例6 顆粒水和剤

本発明の含窒素ヘテロ環化合物	40部	20
クレー	36部	
塩化カリウム	10部	
アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム塩	1部	
リグニンスルホン酸ナトリウム塩	8部	
アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム塩のホルムアルデヒド縮合物	5部	

以上を均一に混合して微細に粉碎後、適量の水を加えてから練り込んで粘土状にする。粘土状物を造粒した後乾燥し、有効成分40%の顆粒水和剤を得る。

【0166】

(生物試験例1) リンゴ黒星病防除試験

製剤実施例2において得られた乳剤を有効成分100ppmの濃度に希釈した。素焼きポットで栽培したリンゴ幼苗(品種「国光」、3~4葉期)に前記希釈液を散布し、室温で自然乾燥した。その後、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20、高湿度の室内に2週間保持した。葉上の病斑出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。

化合物番号1-1、1-4、1-5、1-6、1-7、1-9、1-11、1-12、1-16、1-18、1-19、2-1、2-2、2-7、2-8、2-10、2-11、2-16、2-17、2-20、2-21、2-22、2-23、2-24、2-26、2-30、2-35、2-37、2-38、2-39、2-41、2-42、2-44、2-45、および3-1の化合物についてリンゴ黒星病防除試験を行った結果、いずれの化合物も75%以上の防除価を示した。

【0167】

(生物試験例2) キュウリ灰色かび病防除試験

製剤実施例2において得られた乳剤を有効成分100ppmの濃度に希釈した。素焼きポットで栽培したキュウリ幼苗(品種「相模半白」、子葉期)に前記希釈液を散布し、室温で自然乾燥した。その後、キュウリ灰色かび病菌(*Botrytis cinerea*)の分生胞子懸濁液を滴下接種し、20、高湿度の暗室内に4日間保持した。葉上の病斑出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。

化合物番号1-9、1-10、1-14、1-20、1-22、1-22、2-2、2-8、2-10、2-11、2-21、2-22、2-23、2-24、2-26、2-

30

40

50



29、2-30、2-34、2-35、2-36、2-37、2-38、2-39、2-41、2-42、2-44、および3-1の化合物についてキュウリ灰色かび病防除試験を行った結果、いずれの化合物も75%以上の防除価を示した。

【産業上の利用可能性】

【0168】

これらの結果から、本発明の含窒素ヘテロ環化合物は、殺菌性能を示し、農園芸用殺菌剤の有効成分として有用であることがわかる。

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I	
C 0 7 D 409/14	(2006.01)	C 0 7 D 409/14	
C 0 7 D 405/12	(2006.01)	C 0 7 D 405/12	
C 0 7 D 405/10	(2006.01)	C 0 7 D 405/10	
C 0 7 D 409/12	(2006.01)	C 0 7 D 409/12	
C 0 7 D 417/12	(2006.01)	C 0 7 D 417/12	
A 0 1 N 43/42	(2006.01)	A 0 1 N 43/42	1 0 1
A 0 1 N 43/80	(2006.01)	A 0 1 N 43/80	1 0 1
A 0 1 N 43/78	(2006.01)	A 0 1 N 43/78	B
A 0 1 N 43/50	(2006.01)	A 0 1 N 43/50	P
A 0 1 N 43/824	(2006.01)	A 0 1 N 43/82	1 0 1 A
A 0 1 N 43/60	(2006.01)	A 0 1 N 43/60	1 0 1
A 0 1 N 43/56	(2006.01)	A 0 1 N 43/56	C
A 0 1 N 43/76	(2006.01)	A 0 1 N 43/76	
A 0 1 N 43/653	(2006.01)	A 0 1 N 43/653	L
A 0 1 P 3/00	(2006.01)	A 0 1 P 3/00	

- (72)発明者 齊木 勇人  
 神奈川県小田原市高田3 4 5 日本曹達株式会社 小田原研究所内
- (72)発明者 桑 原 頼人  
 神奈川県小田原市高田3 4 5 日本曹達株式会社 小田原研究所内
- (72)発明者 稲垣 準  
 神奈川県小田原市高田3 4 5 日本曹達株式会社 小田原研究所内
- (72)発明者 佐藤 元亮  
 神奈川県小田原市高田3 4 5 日本曹達株式会社 小田原研究所内

審査官 青鹿 喜芳

- (56)参考文献 国際公開第2 0 1 1 / 0 8 1 1 7 4 ( W O , A 1 )  
 特表平1 1 - 5 0 8 2 5 7 ( J P , A )  
 特開昭6 1 - 2 7 5 2 7 1 ( J P , A )  
 BRACHER F. , First Synthesis of the Benzo[f]pyrido[2',3':3,4]-pyrrolo[2,1- ][2,7]napht  
 hydridine Ring System , Journal of Heterocyclic Chemistry , 1 9 9 3 年 , vol.30, no.1 , p.1  
 57-159  
 WIEDERMANNNOVA I. , Synthesis of Some Isomeric Quinoxaline Derivatives with 6-Azaauracil  
 Cycle[1] , Journal of Heterocyclic Chemistry , 2 0 0 1 年 , vol.38, no.6 , p.1465-1468

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C 0 7 D  
 C A p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )