

申請日期	84. 8. 1
案 號	84107008
類 別	263/00 A:IV 96

A4  
C4

440429

(以上各欄由本局填註)

(84107008)

發 明 專 利 說 明 書  
新 型

一、發明 名稱	中 文	經取代之聯苯基嘓唑啉類
	英 文	Substituted biphenyloxazolines
二、發明 創作人	姓 名	1. 藍雷哈 (Reinhard Lantzsch) 2. 馬亞柏 (Albrecht Marhold) 3. 軒渥夫 (Wolfgang Krämer) 4. 伊克莉 (Christoph Erdelen)
	國 籍	5. 瓦尤克 (Ulrike Wachendorff-Neumann) 6. 吐安德 (Andreas Turberg) 7. 門諾伯 (Norbert Mencke)
三、申請人	住、居所	1. - 7. 皆德國 1. 德國烏波區安巴斯街51號 Am Buschhäuschen 51, 42115 Wuppertal, Germany 2. 德國利佛可生城卡爾街329號 Carl-Duisberg-Str. 329, 51373 Leverkusen, Germany 3. 德國布斯區羅斯街25號 Rosenkranz 25, 51399 Burscheid, Germany 4. 德國蘭林區亞特街15號 Unterbüschérhof 15, 42799 Leichlingen, Germany 5. 德國伯恩安史塔德街117C號 Am Stadtwald 117 c, 53177 Bonn, Germany 6. 德國伊戈區奈格街19號 Naheweg 19, 40699 Erkrath, Germany 7. 德國利佛可生城葛洛德街2號 Grundermühle 2, 51381 Leverkusen, Germany
	代 表 人 姓 名	1. 魏哈特 (Gerhard Weber) 2. 足立明朗 (Meiro Adachi)

裝

訂

線

440429

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6  
B6

本案已向：

德 國 (地區) 申請專利，申請日期： 案號： ， 有 無主張優先權

(1)西元1994年 8月12日 P 44 28 536.1

(2)西元1994年12月12日 P 44 44 108.8

有關微生物已寄存於： ， 寄存日期： ， 寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝 訂 線

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

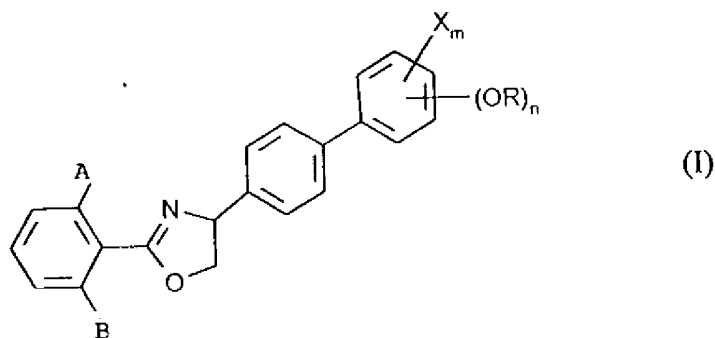
## 五、發明說明(1)

本發明涉及新的取代聯苯基噁唑啉，其多種製備方法，新的中間體，以及應用取代聯苯基噁唑啉防治有害動物。

已知一些取代聯苯基噁唑啉，如2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-氯聯苯基-4)-2-噁唑啉，具有殺蟲和殺蟎活性(參見EP-A-0 432661)。

可見，在各種使用領域，特別是防治一些生物體或當以低劑量使用時，這些已知化合物的活性水平和/或特效性不能令人完全滿意。

現已發見了式(I)的新的取代聯苯基噁唑啉



其中

A 代表氫、氟或氯，

B 代表氟或氯，

R 代表R<sup>1</sup>和R<sup>2</sup>，其中

R<sup>1</sup> 代表在各種情況下至少具有一個氟原子和另外至少一個氫原子或氯原子的鹵代烷基或鹵代環烷基，或代表至少具有一個氟原子的鹵代環鏈烯基，

R<sup>2</sup> 代表氫，鏈烯基，鏈炔基，或代表可選擇取代的環烷基，

## 五、發明說明(2)

或代表可選擇取代的環烷基烷基，  
 或代表可選擇取代的環鏈烯基烷基，  
 或代表可選擇取代的環鏈烯基，  
 或代表各自可選擇取代的苯基烷基或萘基烷基，  
 或代表可選擇取代的雜芳基烷基，  
 或代表COR<sup>3</sup>基，

其中

R<sup>3</sup> 代表烷基，烷氧基，鏈烯基，鏈烯氧基，  
 或代表各自可選擇取代的環烷基，環烷氧基或環  
 烷基烷氧基，  
 或代表各自可選擇取代的苯基或萘基，  
 或代表NR<sup>4</sup>R<sup>5</sup>基，

其中

R<sup>4</sup> 代表氫或烷基和

R<sup>5</sup> 代表烷基，鹵代烷基，或代表各自可選擇取  
 代的環烷基或環烷基烷基，或代表各自可選  
 擇取代的苯基或苯基烷基，

X 代表鹵素，烷基或烷氧基，

m 代表0, 1或2 和

n 代表1 或2 。

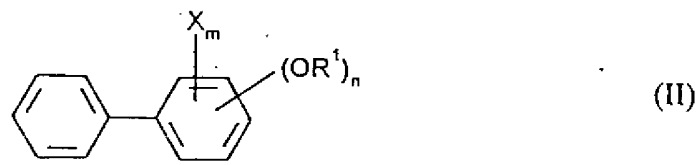
由於存在一個或多個手性中心，通常獲得的是立體異構  
 體混合物形式的式(I)化合物。它們可以是非對映異構體  
 的混合物且也可以純的非對映異構體或對映體的形式使用

。

五、發明說明 ( 3 )

而且，已發現式 ( I ) 的新的取代聯苯基嘔啞啉是通過下述方法獲得的，其中

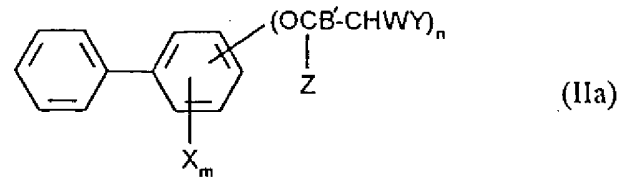
A) 在第一個步驟中，製備式 ( II ) 化合物



其中

R<sup>1</sup> , X, m 和 n 如上述定義，

α) 為了製備式 ( II a ) 化合物，將式 ( III ) 的羥基聯二苯與式 ( IV ) 化合物進行反應



其中

W 和 Y 各自獨立地代表氟，氯或三氟甲基，

B' 代表氫或氟，

Z 代表氟或

W 和 Z 一起代表 -(CF<sub>2</sub>)<sub>l</sub>

其中

l 代表 2, 3, 或 4,

n 任表 1 或 2 和

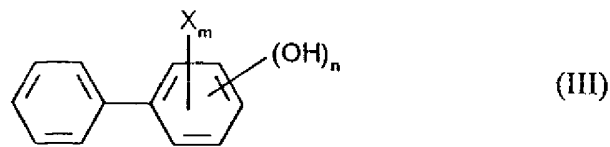
m 代表 0, 1 或 2,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝 訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(4)



其中 X, m 和 n 如上述定義,



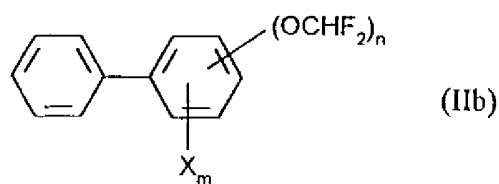
其中

W, Y 和 Z 如上述定義,

如果適宜反應在鹼存在下, 如果適宜, 在催化劑存在下和如果適宜, 在稀釋劑存在下進行, 且如果適宜, 隨後氫化產物,

或

B) 為了製備式 (IIb) 化合物, 將上述式 (III) 的羥基聯二苯與式 (V) 的二氟鹵代甲烷反應



其中

X, m 和 n 如上述定義,



其中

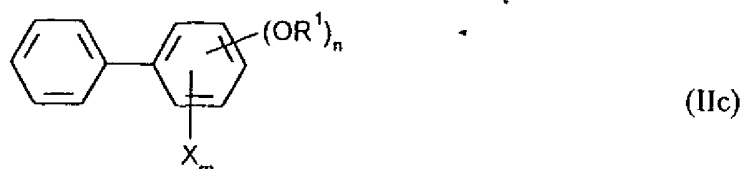
Hal 代表氯或溴,

## 五、發明說明 ( 5 )

如果適宜，在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下，和如果適宜，在稀釋劑存在下進行反應，

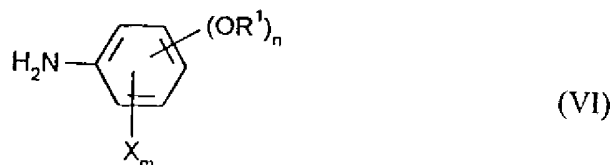
或

γ) 爲了製備式(IIc)的化合物，將式(VI)的氨基苯酚衍生物重氮化，且所得的重氮鹽與苯在酸和鐵粉存在下或在鹼存在下，且在每種情況下，如果適宜，在稀釋劑存在下進行反應。



其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義，

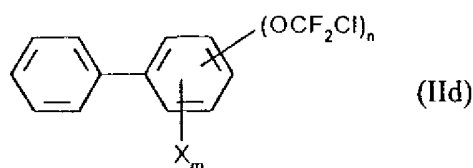


其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義，

或

δ) 爲了製備式(II d)的化合物，將上述式(III)的經基聯二苯與四氯化碳在氫氟酸存在下，如果適宜，在稀釋劑存在下反應。

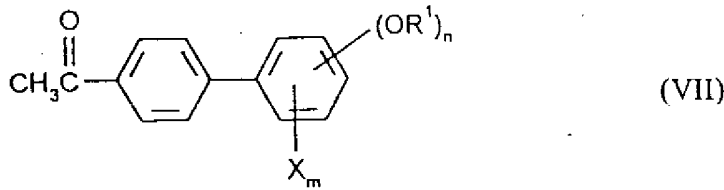


五、發明說明(6)

其中

X, m和n如上述定義,

B)在第二步中,製備式(VII)化合物



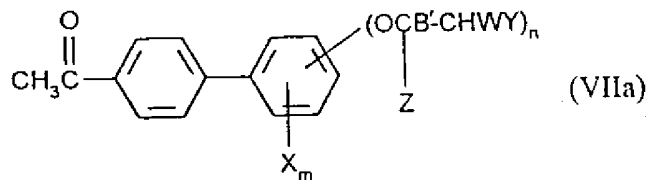
其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義,

α)由方法A)製備的式(II)化合物與乙醯氯,在酸或路易斯酸存在下,且在稀釋劑存在下進行反應,

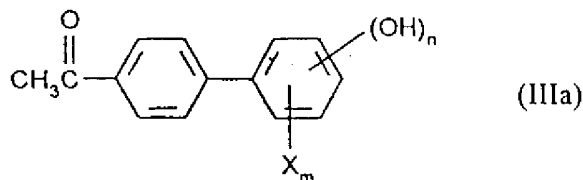
或

B)為了製備式(VIIa)的化合物,將式(IIIa)的羥基聯二苯衍生物與式(IV)的化合物反應



其中

B', X, m, n, W, Y和Z如上述定義,



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線



## 五、發明說明(7)

其中

X, m和n 如上述定義



其中

W, Y和Z 如上述定義,

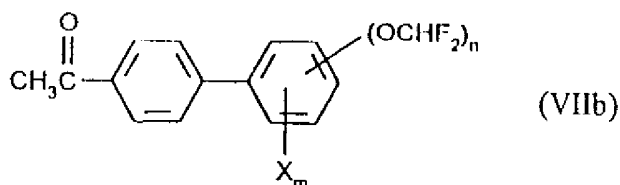
如果適宜在鹼存在下, 如果適宜在催化劑存在下且

如果適宜在溶劑存在下進行反應, 且如果適宜, 可

隨後氫化產物,

或

γ) 爲了製備式(VIIb)的化合物



其中

X, m和n如上述定義,

將上述式(III a)的羥基聯二苯衍生物與上述式(V)的

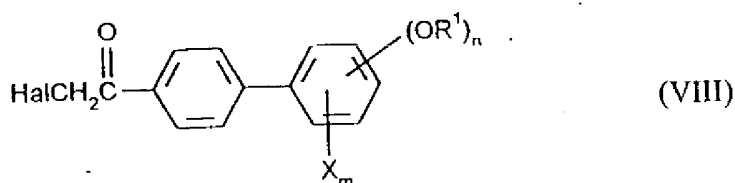
二氟鹵代甲烷, 如果適宜在鹼存在下, 如果適宜在

催化劑存在下, 且如果適宜在稀釋劑存在下進行反

應,

C) 在第三步中, 製備式(VII)的化合物

## 五、發明說明(8)



其中

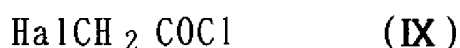
X, R<sup>1</sup>, m和n 如上述定義和

Hal代表氯或溴,

α)將通過方法B)製備的上述式(VII)化合物, 如果適宜, 在稀釋劑存在下, 進行氯化或溴化,

或

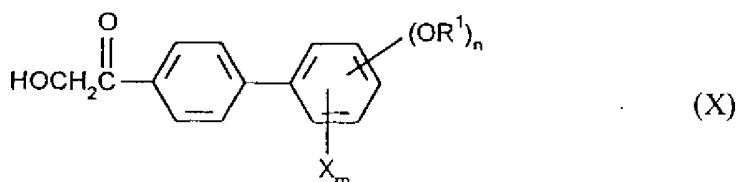
β)通過方法A)製備的上述式(II)化合物與式(IX)的鹵代醯氯在酸或路易斯酸存在下和在稀釋劑存在下進行反應,



其中

Hal代表氯或溴,

D)在第四步中, 製備式(X)化合物



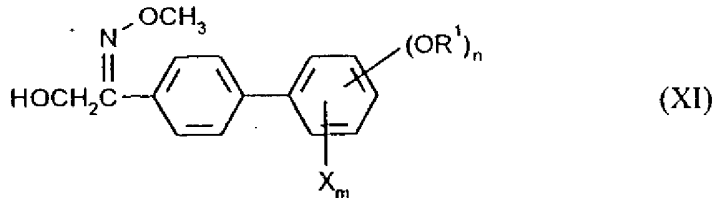
其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義,

將通過方法C)製備的上述式(VII)化合物與甲酸鹽, 在稀

## 五、發明說明(9)

釋劑存在下，且如果適宜，在催化劑存在下進行反應，  
E)在第五步中，製備式(XI)化合物



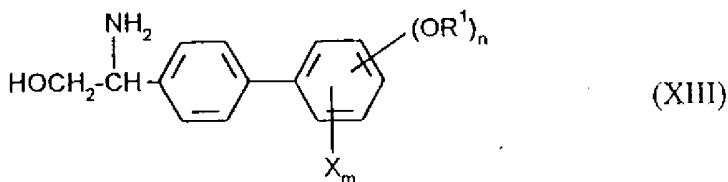
其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義，

將通過方法D)製備的上述式(X)化合物，與式(XII)化合物，如果適宜在稀釋劑存在下進行反應



F)在第六步中，製備式(XIII)化合物

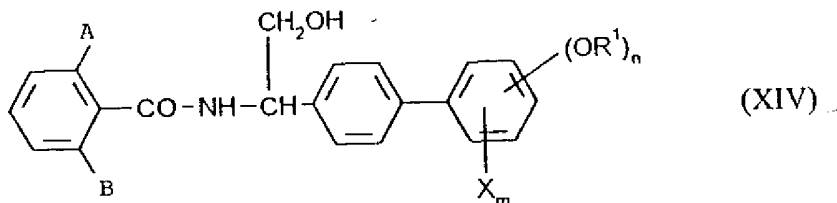


其中

R<sup>1</sup>, X, m和n如上述定義，

將通式方法E)製備的上述式(XI)化合物，在酸存在下，如果適宜，在稀釋劑存在下用還原劑還原，

G)在第七步中，製備式(XIV)化合物



## 五、發明說明(10)

其中

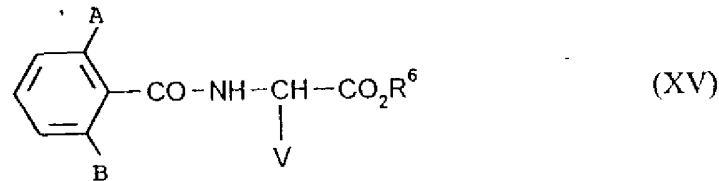
A, B, R<sup>1</sup>, X, m 和 n 如上述定義,

或者是

α) 將通過方法F)製備的上述式(XIII)化合物, 與2-A, 6-B-苯甲醯氯反應, 如果適宜反應在鹼存在下, 且如果適宜在稀釋劑存在下進行,

或者是

β) 將通過方法A)製備的上述式(II)化合物, 首先與式(XV)化合物, 在酸性催化劑存在下, 且如果適宜, 在稀釋劑存在下反應

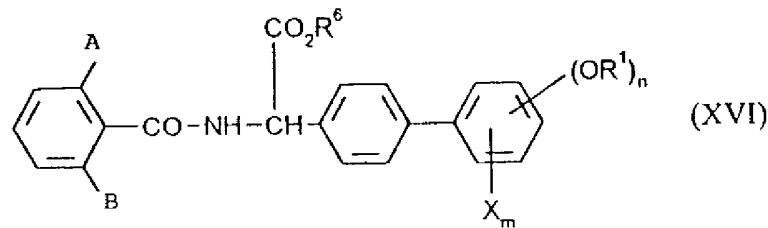


其中

A 及 B 具有前述定義,

V 代表氯, 羥基或 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷氧基和

R<sup>6</sup> 代表氫或烷基, 優先代表氫或 C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基, 並將所得的式(XVI)化合物, 在稀釋劑存在下用還原劑還原,

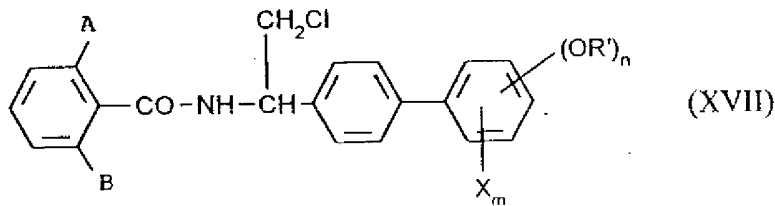


## 五、發明說明(11)

其中

A, B, R<sup>1</sup>, X, m, n和R<sup>6</sup>如上述定義,

H)在第八步中,製備式(XVII)化合物



其中

A, B, X, m 和 n 如上述定義,

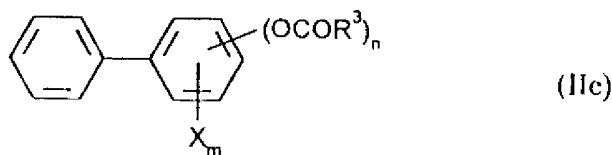
R'代表R<sup>1</sup>或COR<sup>3</sup>, 其中R<sup>1</sup>和R<sup>3</sup>如上述定義

或者是

α)將通式方法G)製備的上述式(XIV)化合物,與氯化劑反應,如果適宜,反應在稀釋劑存在下進行,

或者是

β)將通式方法A)製備的上述式(II)化合物,或下式(IIe)化合物,與式(XVIII)化合物在酸性催化劑存在下,且如果適宜在稀釋劑存在下反應,



其中

R<sup>3</sup>, X, n和m如上述定義,

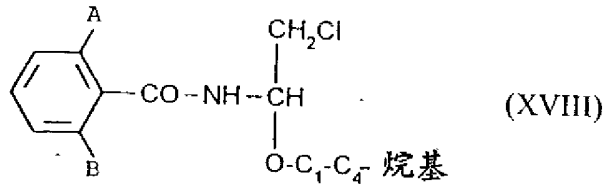
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(12)



其中

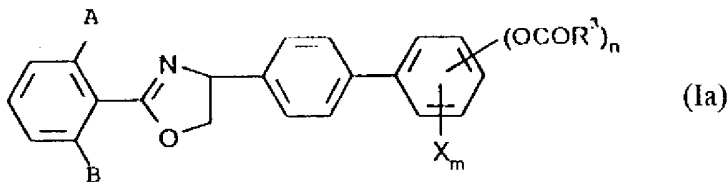
A 及 B 具前述定義，

且

I) 在第九步中，將通過方法 H) 製備的上述式 (XVII) 化合物，在鹼存在下環化，如果適宜，反應在催化劑存在下，且如果適宜，在稀釋劑存在下進行，

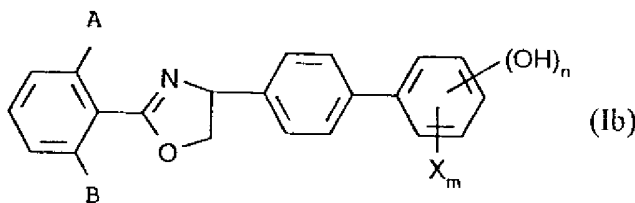
且，如果適宜

J) 將對於  $R = COR^3$  製備的式 (Ia) 化合物水解，得到式 (Ib) 化合物



其中

A, B,  $R^3$ , X, n 和 m 如上述定義



其中

## 五、發明說明(13)

A, B, X, n和m 如上述定義

且, 如果適宜, 將這些化合物隨後

K $\alpha$ )與式(XIX)化合物反應

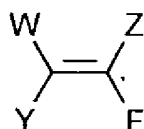


其中

R<sup>3</sup> 如上述定義且

Hal 代表鹵素, 優選代表氯或溴, 如果適宜反應在稀釋劑存在下且如果適宜在鹼存在下進行, 或

B)與式(IV)化合物反應



(IV)

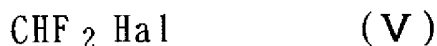
其中

W, Y和Z 如上述定義,

如果適宜反應在鹼存在下, 如果適宜, 在催化劑存在下和如果適宜, 在稀釋劑存在下進行, 且如果適宜, 隨後氫化產物,

或

$\gamma$ )與式(V)的二氟鹵代甲烷反應



其中

Hal 代表氯或溴,

如果適宜在鹼存在下, 如果適宜在催化劑存在下, 且如果適宜在稀釋劑存在下進行反應,

## 五、發明說明 ( 14 )

或

δ) 在氫氟酸存在下，如果適宜在稀釋劑存在下與四氯化碳反應，

或

ε) 與式 (XX) 化合物反應



其中

R<sup>2</sup> 如上述定義且

M 代表離去基，如果適宜在稀釋劑存在下，且如果適宜在鹼存在下進行反應。

而且，已經發現新的式 (I) 取代聯苯基嘧啶非常適合用於防治農業、造林業、貯藏品和材料的保護以及衛生領域中存在的有害動物，特別是昆蟲，蟎類和線蟲。

式 (I) 提供了根據本發明化合物的總定義，

列示於上述和下述式中的優選取代基或基團的範圍被解釋如下。

A 優選代表氫、氟或氯。

B 優選代表氟或氯。

R 優選代表 R<sup>1</sup> 和 R<sup>2</sup>，其中

R<sup>1</sup> 代表在各種情況下至少具有一個氟原子和另外至少一個氫原子或氯原子的 C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鹵代烷基或 C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-鹵代環烷基，或代表至少具有一個氟原子的 C<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>-鹵代環鏈烯基和

R<sup>2</sup> 代表氫，C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-鏈烯基，C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-鏈炔基，或代表



## 五、發明說明(15)

可被 $C_1-C_4$ -烷基， $C_2-C_4$ -鏈烯基， $C_2-C_4$ -鹵代鏈烯基，苯基，鹵代苯基，苯乙烯基或鹵代苯乙烯基可選擇取代的 $C_3-C_6$ -環烷基，

或代表可被鹵素， $C_1-C_4$ -烷基， $C_2-C_4$ -鏈烯基， $C_2-C_4$ -鹵代鏈烯基，苯基，鹵代苯基，苯乙烯基或鹵代苯乙烯基可選擇取代的 $C_3-C_6$ -環烷基- $C_1-C_4$ -烷基，

或代表可被鹵素或 $C_1-C_4$ -烷基可選擇取代的 $C_4-C_6$ -環鏈烯基- $C_1-C_4$ -烷基，

或代表可被 $C_1-C_4$ -烷基可選擇取代的 $C_4-C_6$ -環鏈烯基，

或代表苯基- $C_1-C_6$ -烷基，萘基- $C_1-C_3$ -烷基或四氫萘基- $C_1-C_3$ -烷基，它們各自可被相同或不同的取代基可選擇地單取代至四取代，這些取代基為由硝基，鹵素， $C_1-C_{12}$ -烷基， $C_1-C_{12}$ -鹵代烷基， $C_1-C_{12}$ -烷氧基或 $C_1-C_{12}$ -鹵代烷氧基組成的一系列基團，

或代表5-或6-元雜芳基- $C_1-C_4$ -烷基，其可被相同或不同的取代基可選擇地單取代或雙取代，這些取代基為由硝基，鹵素， $C_1-C_{12}$ -烷基， $C_1-C_{12}$ -鹵代烷基， $C_1-C_{12}$ -烷氧基或 $C_1-C_{12}$ -鹵代烷氧基組成的一系列基團，且其具有1或2個相同或不同的雜原子，雜原子為由氮，氧和硫組成的一系列原子，

或代表COR<sup>3</sup>基。

## 五、發明說明(16)

R<sup>3</sup> 優選代表C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷氧基，C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-鏈烯基，C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>-鏈烯氧基，或代表各自可被鹵素，C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵代烷基，C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-鏈烯基或C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-鹵代鏈烯基可選擇取代的C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>-環烷基，C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>-環烷氧基或C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>-環烷基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷氧基，

或代表苯基或萘基，它們各自可被相同或不同的取代基可選擇地單取代至四取代，取代基為由鹵素，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-鹵代烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷氧基或C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-鹵代烷氧基組成的一系列基團，或代表NR<sup>4</sup>R<sup>5</sup>基。

R<sup>4</sup> 優選代表氫或C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷基。

R<sup>5</sup> 優選代表C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-鹵代烷基，或代表各自可被鹵素，C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵代烷基或C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-鹵代鏈烯基可選擇取代的C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>-環烷基或C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>-環烷基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，或代表苯基或苯基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，它們各自可被相同或不同的取代基可選擇地單取代至四取代，取代基為由鹵素，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-鹵代烷基，C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷氧基或C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-鹵代烷氧基組成的一系列基團。

X 優選代表鹵素，C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-烷氧基，

m 優選代表0，1或2。

n 優選代表1或2。

A 特別優選代表氫、氟或氧。

## 五、發明說明(17)

B 特別優選代表氟或氯。

R 特別優選地代表 $R^1$ 或 $R^2$ ，其中，

$R^1$  代表在各種情況下至少具有一個氟原子和另外至少一個氫原子或氯原子的 $C_1-C_3$ -鹵代烷基或 $C_4-C_5$ -鹵代環烷基，或代表至少具有一個氟原子的 $C_4-C_6$ -鹵代環鏈烯基，和

$R^2$  代表氫， $C_3-C_{12}$ -鏈烯基， $C_3-C_5$ -鏈炔基，或代表可被 $C_1-C_4$ -烷基， $C_2-C_4$ -鏈烯基， $C_2-C_3$ -鹵代鏈烯基，苯基，鹵代苯基，苯乙烯基或鹵代苯乙烯基可選擇取代的 $C_3-C_6$ -環烷基，  
或代表可被鹵素， $C_1-C_4$ -烷基， $C_2-C_4$ -鏈烯基， $C_2-C_3$ -鹵代鏈烯基，苯基，鹵代苯基，苯乙烯基或鹵代苯乙烯基可選擇取代的 $C_3-C_6$ -環烷基- $C_1-C_4$ -烷基，  
或代表可被鹵素可選擇取代的 $C_4-C_6$ -環鏈烯基甲基，或代表 $C_4-C_6$ -環鏈烯基，  
或代表苯基- $C_1-C_6$ -烷基，萘基甲基，四氫萘基甲基，吡啶基-，咪喃基-，噻唑基-，噁唑基-或異噁唑基- $C_1-C_3$ -烷基，它們各自可被相同或不同的取代基可選擇地單取代或二取代，這些取代基為由硝基，鹵素， $C_1-C_4$ -烷基， $C_1-C_4$ -鹵代烷基， $C_1-C_4$ -烷氧基或 $C_1-C_4$ -鹵代烷氧基組成的一系列基團，或代表 $COR^3$ 基。

$R^3$  更優選地代表 $C_1-C_6$ -烷基， $C_1-C_6$ -烷氧基， $C_3-$

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(18)

$C_6$ -鏈烯基， $C_3-C_6$ -鏈烯氧基，或代表各自可被氟，氯， $C_1-C_3$ -烷基， $C_1-C_2$ -鹵代烷基或 $C_2-C_3$ -鹵代鏈烯基可選擇取代的 $C_3-C_6$ -環烷基， $C_3-C_6$ -環烷氧基或 $C_3-C_6$ -環烷基- $C_1-C_2$ -烷氧基，或代表苯基，其可被相同或不同的取代基可選擇地單取代或雙取代，取代基為由鹵素， $C_1-C_4$ -烷基， $C_1-C_3$ -鹵代烷基， $C_1-C_4$ -烷氧基或 $C_1-C_4$ -鹵代烷氧基組成的一系列基團，或代表 $NHR^5$ 基。

$R^5$  更優選地代表 $C_1-C_4$ -烷基，各自可被相同或不同的取代基可選擇地單取代或雙取代的苯基或苄基，取代基為由氟、氯、溴， $C_1-C_4$ -烷基， $C_1-C_4$ -鹵代烷基或 $C_1-C_4$ -鹵代烷氧基組成的一系列基團。

X 更優選地代表氟，氯或溴。

m 更優選地代表0或1。

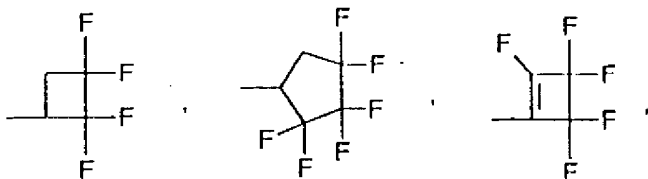
n 更優選地代表1。

A 更特別優選地代表氫、氟或氯。

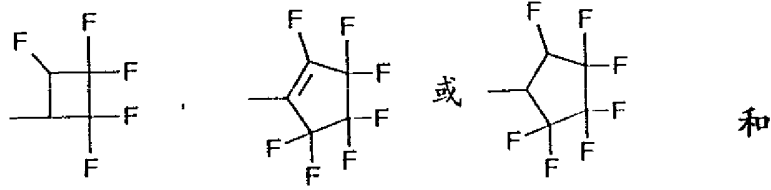
B 更特別優選地代表氟或氯。

R 更特別優選地代表 $R^1$ 或 $R^2$ ，其中

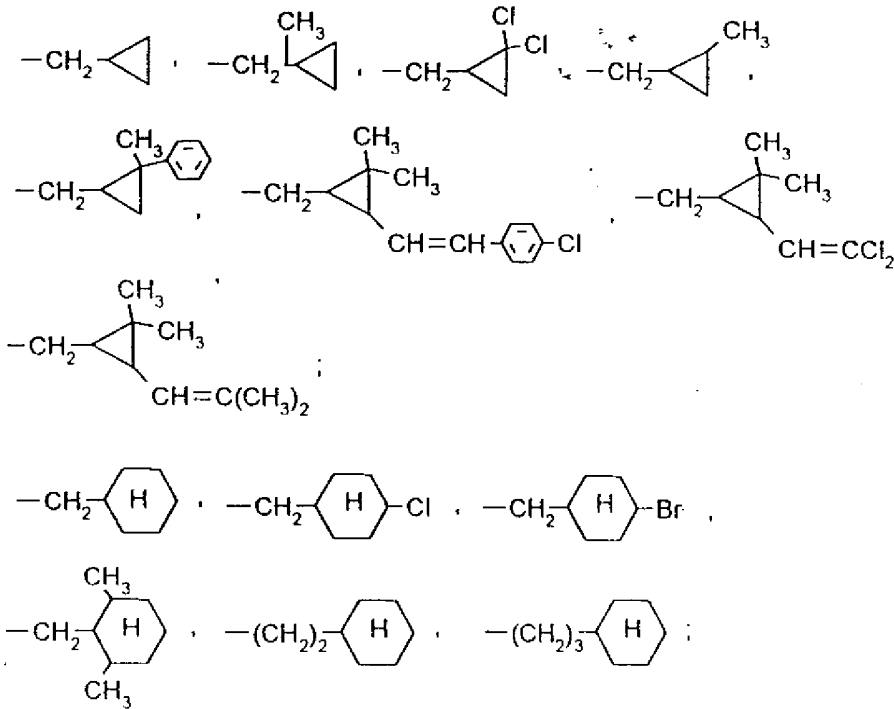
$R^1$  代表下述基團之一： $-CHF_2$ ， $-CClF_2$ ， $-CH_2CHFC1$ ， $-CF_2CH_2F$ ， $-CF_2CHF_2$ ， $-CF_2CCl_3$ ， $-CF_2CHFCF_3$ ， $-CH_2CF_3$ ， $-CH_2CF_2CHF_2$ ， $-CH_2CF_2CF_3$ ，



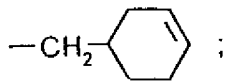
五、發明說明 ( 19 )



R<sup>2</sup> 代表氫，或代表丙烯基，丁烯基，戊烯基，己烯基，  
丙炔基，丁炔基，戊炔基，  
或代表下述任一個基團：



或代表環鏈烯基烷基：



或代表下述任一個苯基烷基：

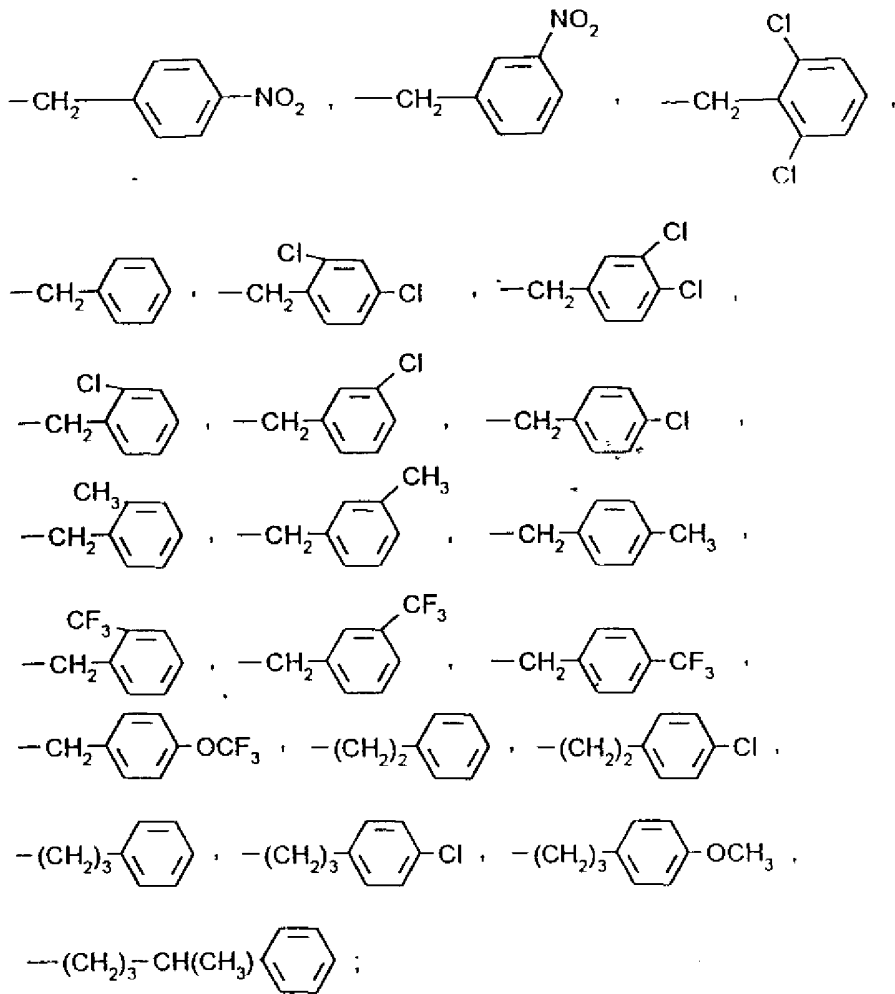
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

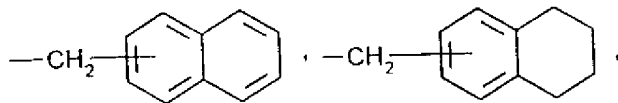
訂

線

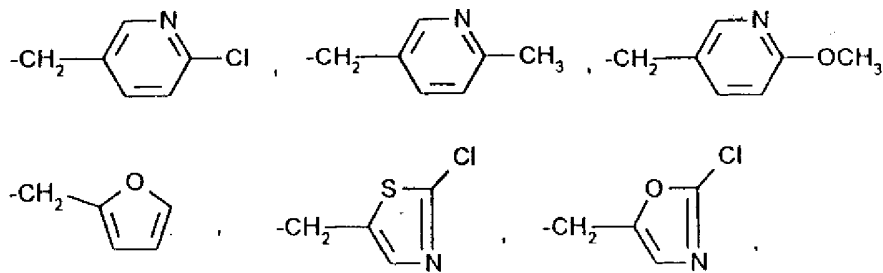
五、發明說明 ( 20 )



或代表



或代表下述任一個雜芳基烷基：



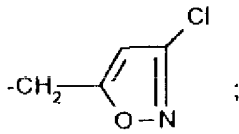
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(21)



或代表-COR<sup>3</sup>基。

R<sup>3</sup> 最特別優選地代表甲基，乙基，丙基；

或代表甲氧基，乙氧基，丙氧基，丁氧基；

或代表環丙基，環己基；

或代表環己氧基；

或代表苯基，2-氯苯基，3-氯苯基，2,6-二氯苯基，2-三氯甲氧苯基，4-三氯甲氧苯基；2,4-二氯苯基；3,4-二氯苯基；

或代表-NHR<sup>5</sup>基。

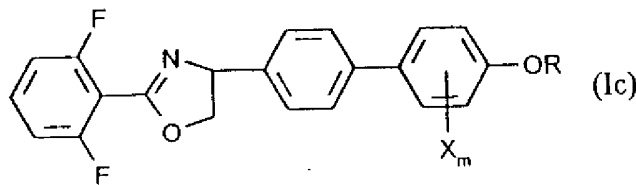
R<sup>5</sup> 最特別優選地代表甲基，乙基，或代表可被氬可選擇地單取代的苯基。

X 最特別優選地代表氟、氯或溴。

m 最特別優選地代表0或1。

n 最特別優選地代表1。

其它優選的化合物是那些式(Ic)的化合物

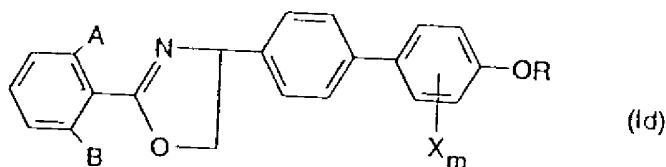


其中

R, X和m 具有上述一般地，優選地，更優選地或最特別優選的定義。

## 五、發明說明(22)

其他較佳之化合物為具式(I d)之化合物：



式中

A 表氫，B 表氟且 R、X 及 m 具前述一般、優選、特別優選或更特別優選之定義。

其他較佳之化合物為上述式(I d)中 A 表氫、B 表氟且 R、X 及 m 具前述一般、優選、特別優選或更特別優選之定義之化合物。

根據本發明化合物的定義在上述已述及的煙基，如烷基或鏈烯基，在直鏈或支鏈的各種情況下，盡可能地，還可與雜原子如烷氧基連接。

上述基團的定義或解釋，已述及的一般或其中優選的範圍，根據需要彼此可以組合，即各自範圍和優選範圍之間的組合範圍也是可能的。它們使用了類似的終產物以及前體和中間體。

根據本發明優選的是上述優選(優選的)定義組合的那些式(I)化合物。

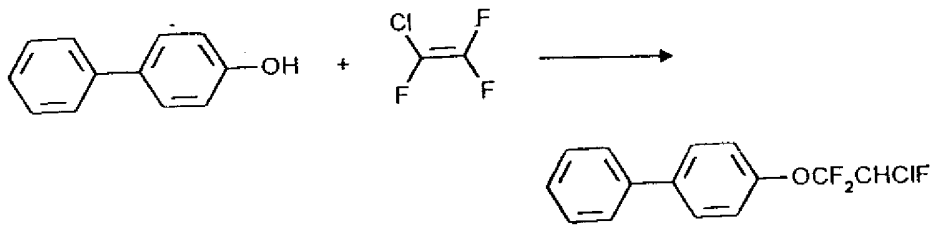
根據本發明更優選的是上述更優選定義組合的那些式(I)化合物。

根據本發明更特別優選的是上述更特別優選定義組合的那些式(I)化合物。

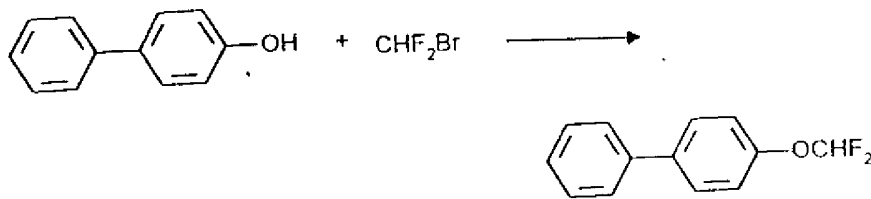


## 五、發明說明 ( 23 )

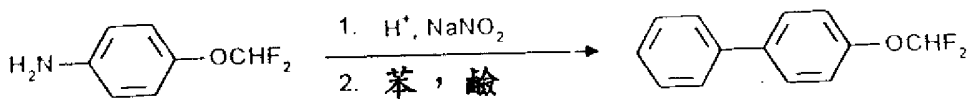
例如，如果根據方法A $\alpha$ )，將4-羥基聯二苯和三氟氯乙  
烯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



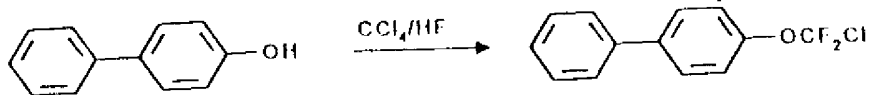
例如，如果根據方法A $\beta$ )，將4-羥基聯二苯和三氟溴甲  
烷用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據方法A $\gamma$ )，將4-二氟甲氧基苯胺用作起始  
物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據方法A $\delta$ )，將4-羥基聯二苯用作起始物  
，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據方法B $\alpha$ )，將4-二氟氯甲氧基聯二苯用  
作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：

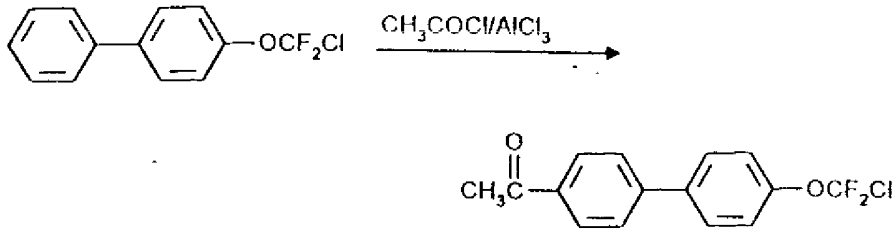
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

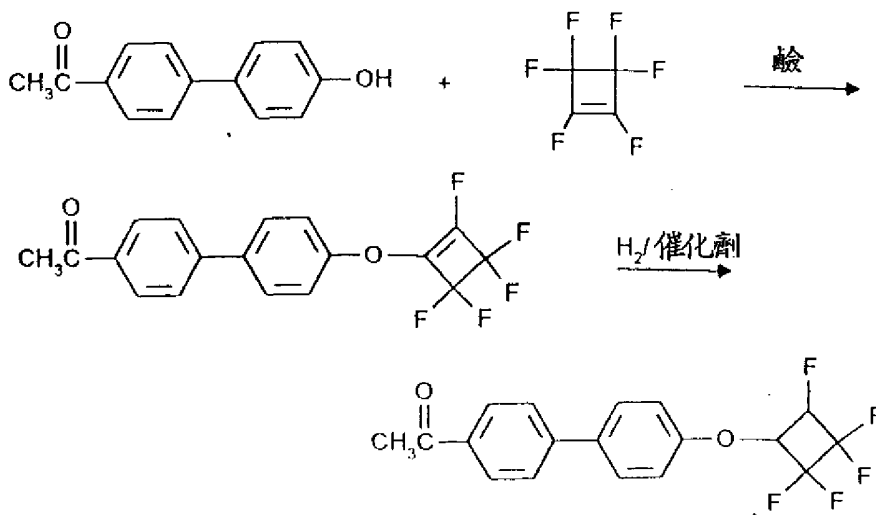
訂

線

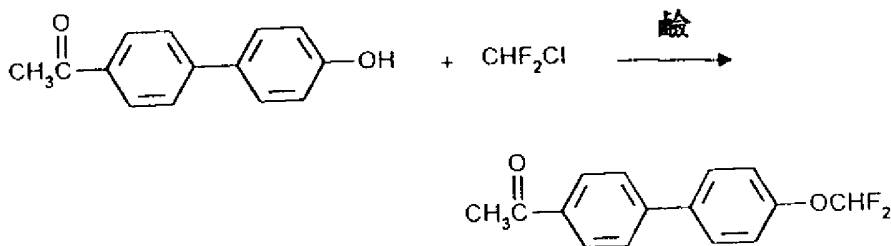
五、發明說明 ( 24 )



例如，如果根據方法Bβ)，將4-乙酰基-4'-羥基聯二苯和六氟環丁烯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據方法Bγ)，將4-乙酰基-4'-羥基聯二苯和氯二氟甲烷用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

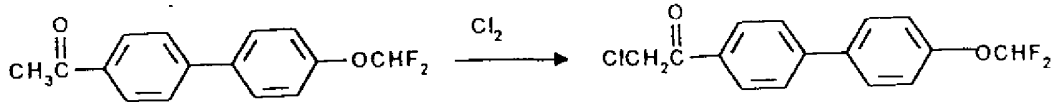
裝

訂

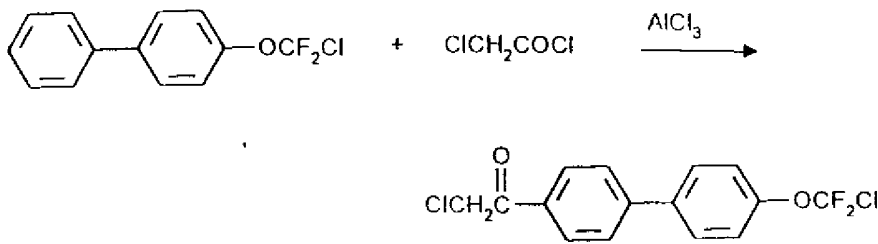
線

## 五、發明說明 ( 25 )

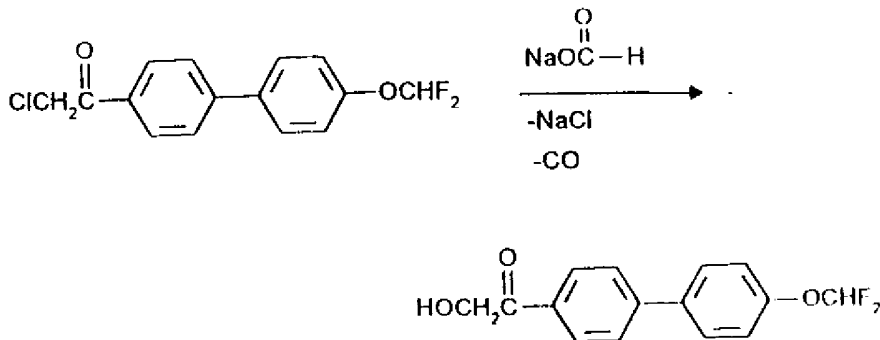
例如，如果根據方法C $\alpha$ )，將4-乙酰基-4'-二氟甲氧基聯二苯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據方法C $\beta$ )，將4-二氟甲氧基聯二苯和氯乙酰氯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



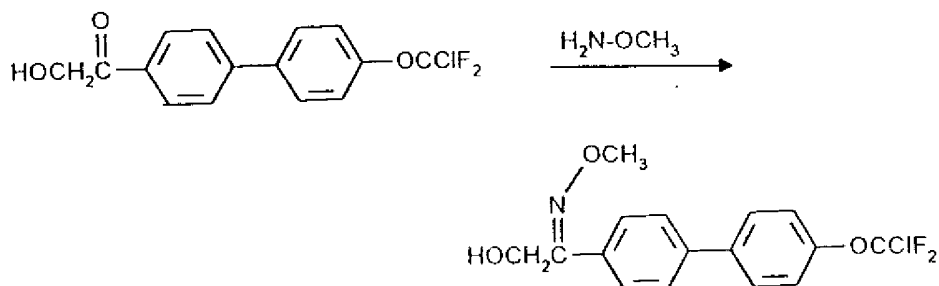
例如，如果根據方法D)，將4-氯乙酰基-4'-二氟甲氧基聯二苯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



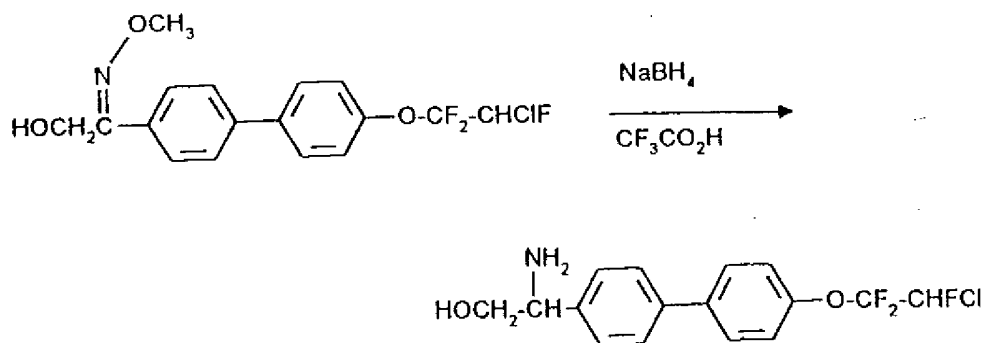
例如，如果根據方法E)，將4-羥基乙酰基-4'-二氟甲氧基聯二苯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式

## 五、發明說明 ( 26 )

表示：

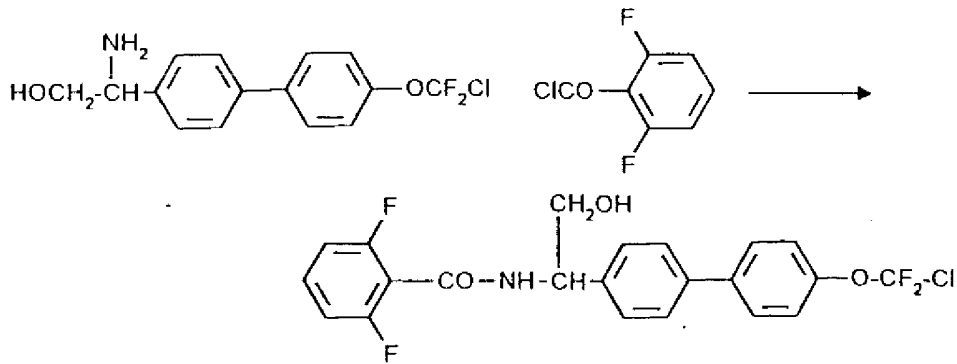


例如，如果根據方法F)，將4-羥基乙醯基-脞 O-甲基醚 4'-三氟氣乙氧基聯二苯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：

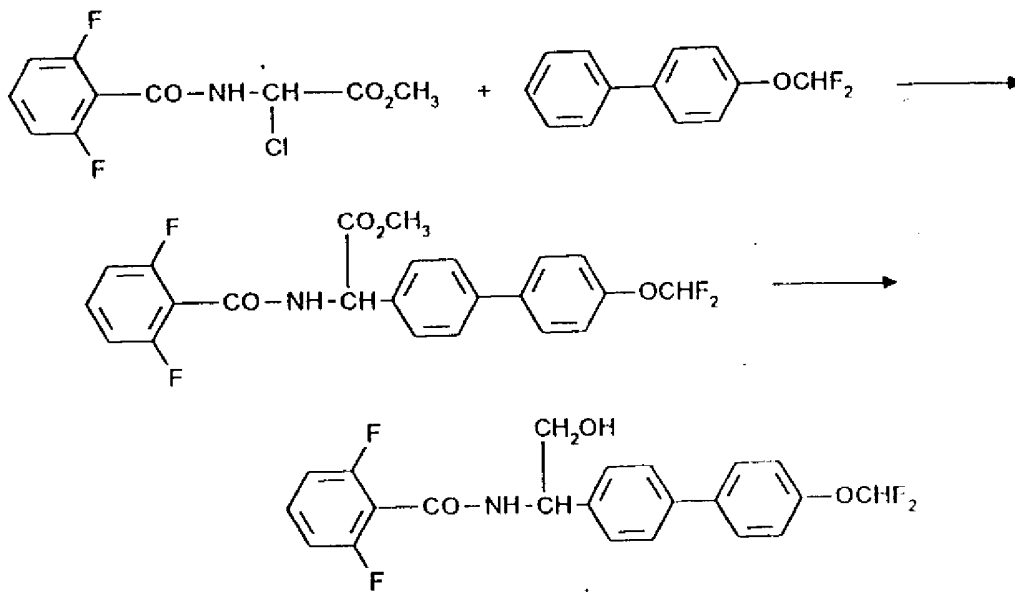


例如，如果根據方法Gα)，將2-胺基-2-(4'-二氟氣甲氧基聯二苯)-4)-乙-1-醇用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：

五、發明說明 ( 27 )

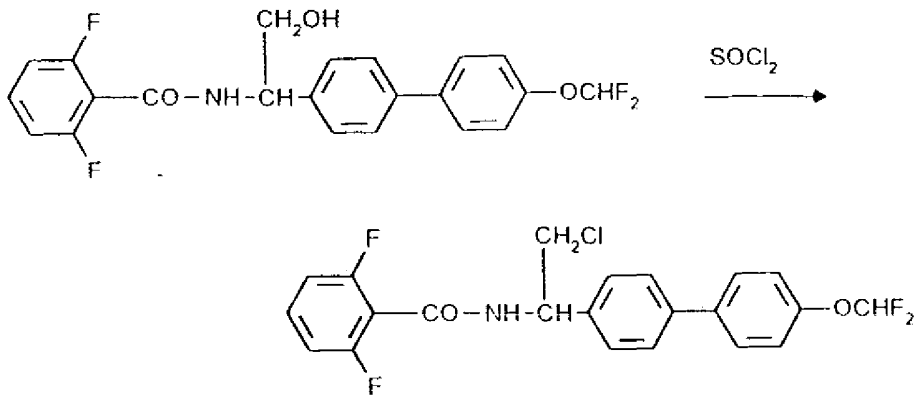


例如，如果根據方法GB)，將N-(羧甲基氣甲基)-2,6-二氟苯甲醯胺和4-二氟甲氧基聯二苯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：

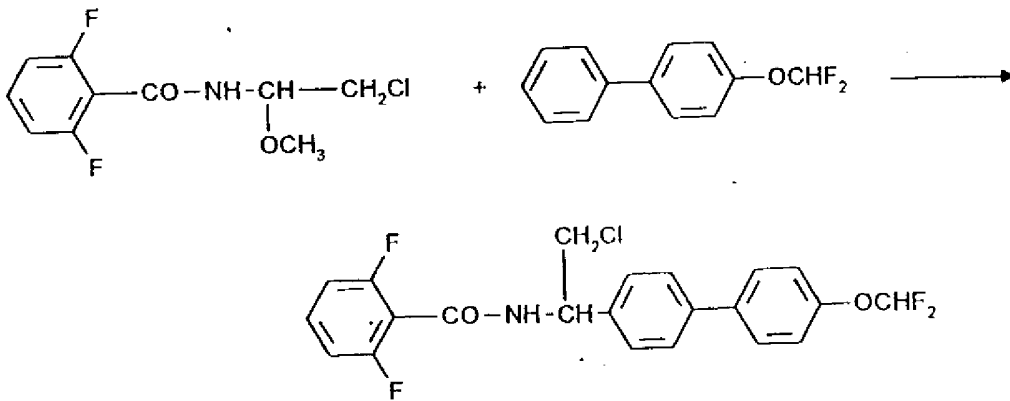


例如，如果根據方法Hα)，將N-(1-(4'-二氟甲氧基聯二苯基-4)-乙基-2-醇)-2,6-二氟苯甲醯胺和亞硫醯氣用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：

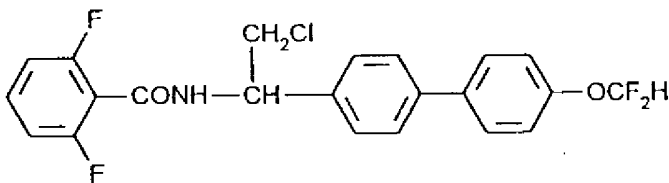
五、發明說明 ( 28 )



例如，如果根據方法H B )，將N- ( 1-甲氧基-2-氯乙基 ) -2, 6-二氟苯甲醯胺和4-二氟甲氧基聯二苯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據方法I )，將N- ( 1- ( 4'-二氟甲氧基聯二苯-4 ) 2-氯乙基 ) -2, 6-二氟苯甲醯胺用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

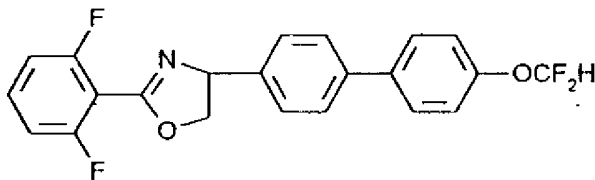
裝

訂

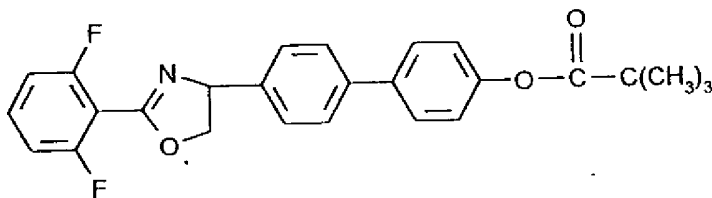
線

## 五、發明說明 ( 29 )

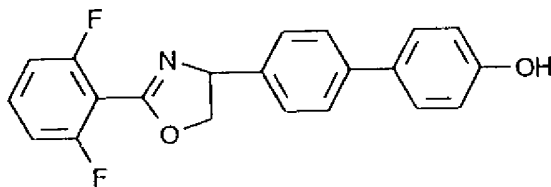
↓ 鹼



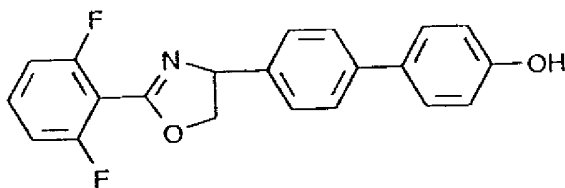
例如，如果根據方法J)，將2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-第三丁基羰基氧聯苯基-4)-2-噁唑啉用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



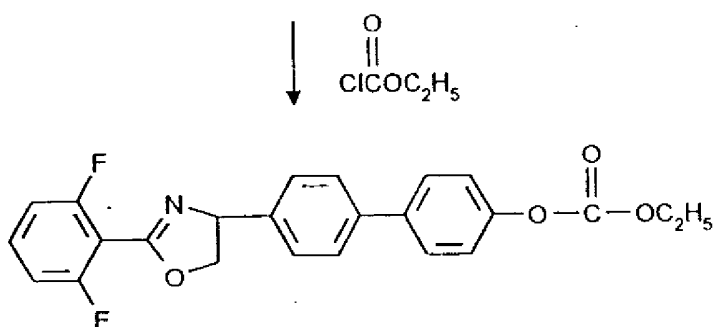
↓ 鹼



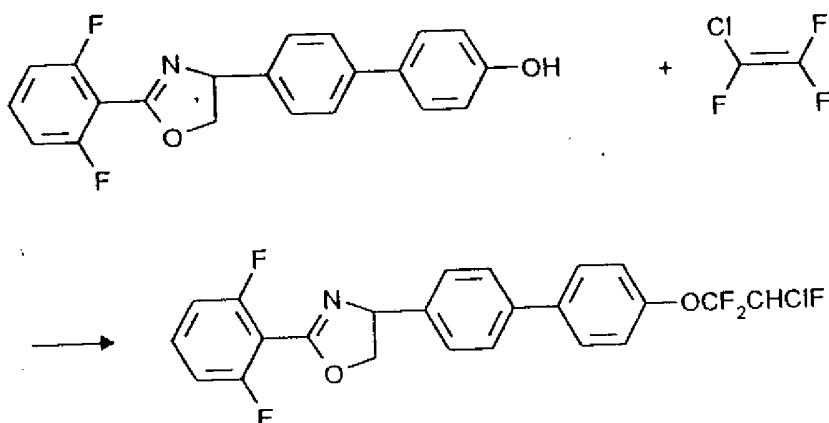
例如，如果根據方法K $\alpha$ )，將2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-羥基聯苯基-4)-2-噁唑啉和氯甲酸乙酯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



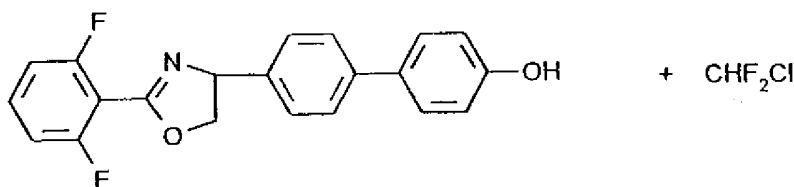
五、發明說明 ( 30 )



例如，如果根據方法KB)，將2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-羥基聯苯基-4)-2-噁唑啉和三氟氯乙烯用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據實例Kγ)，將2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-羥基聯苯基-4)-2-噁唑啉和三氟氯甲烷用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

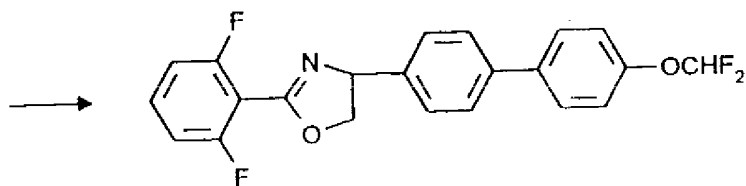
裝

訂

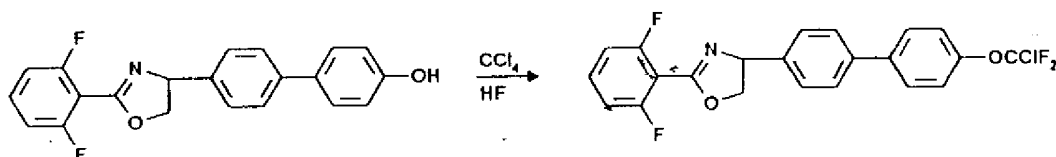
線



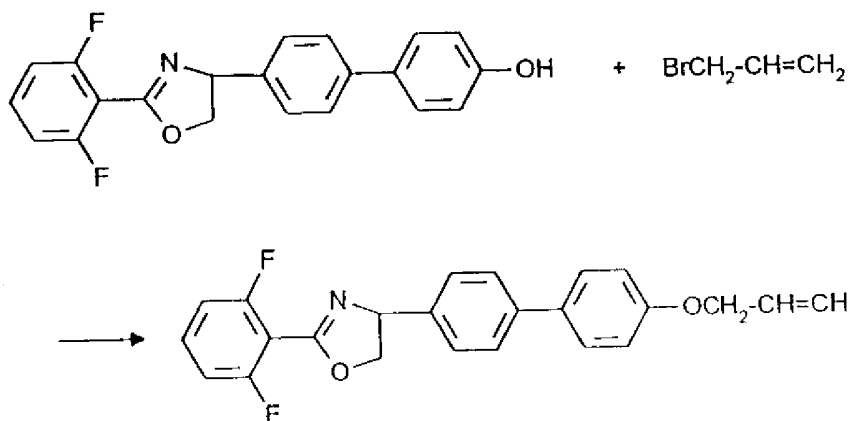
## 五、發明說明(31)



例如，如果根據實施例K $\delta$ )，將2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-羥基聯苯基-4)-2-噁唑啉和四氯化碳用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



例如，如果根據實施例K $\epsilon$ )，將2-(2,6-二氟苯基)-4-(4'-羥基聯苯基-4)-2-噁唑啉和烯丙基溴用作起始物，根據本發明方法的進程可用下式表示：



進行根據本發明的方法A $\alpha$ )中所需要的起始物式(III)化合物是已知的和/或可通過簡單的已知方法製備的。

例如，製備式(III)化合物可通過磺化可選擇取代的聯二苯，然後使產物與鹼金屬氫氧化物反應得到羥基聯二苯，或者通過胺基聯二苯的重氮化作用並蒸發產物(參見，例

## 五、發明說明 ( 32 )

如，Houben-Weyl, VI/1c卷(1976), 216和251頁)而獲得。

進行根據本發明的方法A $\alpha$ )，B $\beta$ )和K $\beta$ )中還需要的起始物式(IV)化合物是已知的，和/或可通過簡單的已知方法製備的(參見，例如，Houben-Weyl, V/3卷(1962), 187頁等，317, 346頁以及下列等等，和377頁等)。

進行根據本發明方法A $\beta$ )和K $\gamma$ )中需要的起始物式(V)的二氟鹵代甲烷是有機化學中一般已知的化合物。

進行根據本發明方法A $\gamma$ )中需要的起始物式(VI)化合物是已知的，和/或通過簡單已知方法製備的。

例如式(VI)化合物是通過還原相應的硝基芳族化合物或處理相應的甲醯胺，例如，進行霍夫曼重排製得的。

進行根據本發明的方法(B)時需要的起始物式(IX)的鹵代乙醯氯是有機化學中常用的，公知的化學品。

進行根據本發明的方法E)時需要的化合物(XII)是有機化學中公知的化學品。

進行根據本發明的方法G $\beta$ )時需要的起始物式(XV)化合物是已知的，和/或可通過簡單的已知方法製備的(參見，例如，W0 93/24 270)。

進行根據本發明的方法H $\beta$ )時需要的起始物式(XVIII)化合物是已知的，和/或可通過簡單的已知方法製備的(參見，例如，EP-A-0 594 179)。進行根據本發明的方法H $\beta$ )時還需要的起始物式(II e)化合物是已知的，和/或可通過簡單的方法製備的，例如通過相應的羥基聯二苯的

## 五、發明說明 ( 33 )

醯化作用。

進行根據本發明的方法K $\alpha$ )時需要的起始物式(XIX)化合物是有機化學中公知的化合物。

進行根據本發明的方法K $\epsilon$ )時需要的起始物式(XX)化合物是機化學中公知的化合物。

M代表常規的離去基，如果R<sup>2</sup>定義為-COR<sup>3</sup>，M優選代表鹵素，特別例如氯或溴，酸酐和咪唑烷基，如果R<sup>2</sup>為上述其它定義，M優選代表鹵素，特別例如，氯或溴，烷基磺醯氧基，特別例如，甲基磺醯氧基；和可選擇取代的芳基磺醯氧基，特別例如，苯基磺醯氧基，對氯苯基磺醯氧基，或甲苯基磺醯氧基。

式(Ia)，(Ib)，(II)，(IIa)，(IIb)，(IIc)，(IId)，(VII)，(VIIa)，(VIIb)，(VIII)，(X)，(XI)，(XIII)，(XIV)，(XVI)和(XVII)的中間體是新的，且也是本發明的主題。在一些情況下，它們本身具有殺蟲和殺蟎的性質，例如式(Ia)，(Ib)，(XIV)和(XVII)的化合物。

方法A $\alpha$ )用於製備式(IIa)化合物，它包括一種方法，其中式(III)化合物與式(IV)化合物進行反應，如果適宜反應在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下和如果適宜，在稀釋劑存在下進行，且如果適宜，隨後氫化產物。

可以使用的稀釋劑是各種常規溶劑。可優選使用的物質例如為腈類，如乙腈和丁腈，或醚類，如甲基第三丁基醚，甲基第三戊基醚，二異丙基醚，1, 2-二甲氧乙烷，四氫呋喃和二噁烷。

## 五、發明說明(34)

可以使用的鹼是各種常規的質子接受體。可述及的實例為第三胺，如三乙胺，吡啶，二氮雜二環辛烷(DABCO)，二氮雜二環十一烷(DBU)，以及鹼金屬氫氧化物和鹼土金屬氫氧化物。可優選使用的物質是鹼金屬氫氧化物，特別是氫氧化鈉或氫氧化鉀，所有的物質還可以水溶液的形式使用。

可使用相轉移催化劑作為催化劑，可述及的實例為季銨鹽，如溴化四辛基銨和氯化苄基三乙基銨。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在20°C至100°C，優選25°C至70°C的溫度下進行。

通常，反應在大氣壓力下或加壓進行。通常，反應在1巴至25巴，優選1巴至6巴的壓力下進行。

鹼與式(III)起始物的比例可在相當大的範圍內變化。原則上，需要催化量的鹼，但也可使用等莫耳量或過量的鹼。通常對每莫耳的式(III)化合物使用0.1至5mol，優選0.5至2mol的鹼。

通常，本發明如下述進行，將式(III)化合物和鹼加入到稀釋劑中，達到所需的反應溫度，並計量加入大約等莫耳量的式(IV)烯烴。

如果本方法在密封的容器或在高壓釜中進行，可獲得一定的內壓，且通過通入惰性氣體，例如，氮氣，可將該壓力提高。

以常規的方法對反應混合物進行加工處理，例如，通過提取或過濾。

## 五、發明說明 ( 35 )

通過一個附加的反應，開鏈的式(IV)化合物與式(III)化合物反應。

通過取代反應，式(IV)的環化合物與式(III)化合物在雙鍵反應，隨後可氫化剩下的雙鍵，例如，如果適合，用貴金屬催化劑，例如鉑或鈀存在下的氫氣（如果需要在加壓條件下）氫化。氫化作用優選在稀釋劑中進行，適合的稀釋劑是各種常規溶劑，例如，（鹵代）烴類，醚類和醇類，如果Y代表氟或氯，優選使用質子惰性溶劑。

方法A B) 製備式(II b)化合物時包括的方法，其中式(III)化合物與式(V)的二氟鹵代甲烷反應，如果適宜反應在鹼存在下，如果適宜在催化劑存在下且如果適宜在稀釋存在下進行。

可以使用的稀釋劑是各種常規溶劑。可優選使用的物質例如為腈類，如乙腈和丁腈，或醚類，如甲基第三丁基醚，甲基第三戊基醚，二異丙基醚，1, 2-二甲氧乙烷，四氫呋喃和二噁烷，或醇類，如乙醇，丙醇異構體或丁醇異構體。

可以使用的鹼是各種常規的質子接受體，下述鹼可被優選地使用：鹼金屬氫氧化物，如氫氧化鈉或氫氧化鉀，各種鹼也可以水溶液的形式使用。

可使用相轉移催化劑作為催化劑，可述及的實例為季銨鹽，如溴化四辛基銨和氯化苄基三乙基銨，和磷鎳鹽，如四丁基溴化鎂。

反應溫度可在相當大的範圍內變化。通常，本方法在20

## 五、發明說明 ( 36 )

°C至150°C，優選40°C至100°C的溫度下進行。

通常，反應在大氣壓力下或加壓進行。通常，本方法在1巴至25巴，優選1巴至10巴的壓力下進行。

鹼與式(III)起始物的比例可在相當大的範圍內變化。通常對每莫耳的式(III)化合物使用1至10莫耳，優選1-5莫耳的鹼。

通常以過量5-倍使用式(V)的二氯鹵代甲烷。

方法Aγ)用於製備式(IIc)化合物，包括一種方法，其中將式(VI)的化合物重氮化，且在酸和鐵粉存在下，或在鹼存在下，如果適宜，在稀釋劑存在下使產物與苯反應。

適合的稀釋劑為各種惰性溶劑。可選擇地，對每莫耳的式(VI)化合物，可使用大量過量的反應物苯作為稀釋劑，優選苯的量為 $\leq 30\text{mol}$ ，更優選地為 $\leq 5\text{mol}$ 。

如果反應在酸和鐵粉的存在下進行，則適合的酸優選為有機酸如三氯乙酸。

如果反應在鹼存在下進行，適合的鹼例如為有機酸鹽，如鹼金屬乙酸鹽，特別是乙酸鈉或乙酸鉀。

通常使用二當量的鹼。

反應溫度可在相當大的範圍內變化。通常本方法在-40°C至140°C，優選在-20°C至80°C的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下進行。

通常，重氮鹽是從酸，如鹽酸或硫酸存在下的式(VI)化合物，以常規的方法通過與鹼金屬亞硝酸鹽，如亞硝酸鈉，或亞硝酸烷基酯，如亞硝酸苯酯或亞硝酸甲酯反應，或

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 37 )

通過與亞硝醯氯反應而製備的。

含有式(IIc)產物的反應混合物是借助常規方法加工處理的。

方法A $\delta$ )用於製備式(II d)化合物包括一種方法，其中式(III)化合物在無水氫氟酸存在下，如果適宜在稀釋劑存在下與四氯化碳反應。

適合的稀釋劑是惰性有機溶劑。優選使用過量2至3倍的四氯化碳作為稀釋劑。

無水氫氟酸的量可在很大範圍內變化。通常對每莫耳的式(III)化合物使用2至40莫耳，優選5至20莫耳的無水氫氟酸。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在60°C至150°C，優選80°C至125°C的溫度下進行。

通常，方法如下述進行，在高壓釜中，將式(III)化合物與四氯化碳和無水氫氟酸混合，將混合物加熱到所需溫度並在有力的壓力下攪拌。

在加工後處理中，例如採用蒸餾的方法，分離掉反應混合物中較高揮發性的成分，如氫氟酸，氟利昂和過量的四氯化碳。

剩餘物用合適的惰性溶劑吸收，用鹼沖洗混合物並通過蒸餾純化。

方法B $\alpha$ )用於製備式(VII)化合物，包括一種方法，其中在酸或路易斯酸的存在下和在稀釋劑存在下，式(II)化合物與乙醯氯反應。

## 五、發明說明 ( 38 )

適合的稀釋劑是合適於弗瑞德-克來福次反應的各種常規溶劑，優選使用氯化烴，例如二氯甲烷或二氯乙烷。

適合的酸或路易酸是適合於弗瑞德-克來福次反應的各種酸。優選使用氯化鋁。無水氫氟酸，四氟硼酸或 $\text{BF}_3$  醚合物。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $-30^\circ\text{C}$ 至 $80^\circ\text{C}$ ，優選 $-15^\circ\text{C}$ 至 $50^\circ\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下或升壓下進行。

通常使用大約等莫耳量的乙醯氯和式(II)化合物。

當反應結束時，用常規的方法對產物加工處理。

方法B $\beta$ )用於製備式(VIIa)化合物，包括一種方法，其中式(IIIa)化合物與式(IV)化合物反應，如果適宜，反應在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下和如果適宜，在稀釋劑存在下進行，且如果適宜，隨後氯化混合物。

對於鹼，催化劑，稀釋劑和其它反應條件，在方法A $\alpha$ )中已描述過的都適用於本方法。

方法B $\gamma$ )用於製備式(VIIb)化合物，包括一種方法，其中式(IIIa)化合物與式(V)化合物反應，如果適宜，反應在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下和如果適宜，在稀釋劑存在下進行。

對於鹼，催化劑，稀釋劑和其它反應條件，在方法A $\alpha$ )中已描述過的都適用於本方法。

方法C $\alpha$ )用於製備式(VIII)化合物，包括一種方法，其中如果適合，在稀釋存在下氯化或溴化式(VII)化合物。



## 五、發明說明 ( 39 )

適合的稀釋劑是對氣或溴惰性的各種溶劑，優選使用的稀釋劑的實例為烴類，如二氯甲烷，氯仿或四氯化碳，或醇類如甲醇或乙醇。

反應溫度可在相當大的範圍內變化。通常，本方法在 $-30^{\circ}\text{C}$ 至 $50^{\circ}\text{C}$ ，優選 $-10^{\circ}\text{C}$ 至 $25^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下進行。

通常，本方法如下述進行，將式(VI)化合物導入到適合稀釋劑中，然後在所需溫度下，計量加入大約等莫耳量的氯或溴。還可能使用少量過量，或稍不足於化學計算量的鹵素。

方法C $\beta$ )用於製備式(VII)化合物，包括一種方法，其中在酸或路易斯酸存在下和在稀釋劑存在下，由式(III)化合物與式(IX)鹵代乙醯氯反應。

適合的稀釋劑是合適於弗瑞德-克來福次反應的各種常規溶劑，優選使用氯化烴，例如二氯甲烷或二氯乙烷。

適合的酸或路易酸是適合於弗瑞德-克來福次反應的各種酸。優選使用氯化鋁或四氯硼酸。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $-30^{\circ}\text{C}$ 至 $50^{\circ}\text{C}$ ，優選 $-15^{\circ}\text{C}$ 至 $30^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下或升壓下進行。

通常使用大約等莫耳量的式(IX)鹵代乙醯氯和式(II)化合物。

當反應結束時，用常規的方法對產物加工處理。

方法D)用於製備式(X)化合物，包括一種方法，其中式

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(40)

(VII)化合物與甲酸的鹽反應，如果適合反應在催化劑存在下進行。

適合的稀釋劑是在反應條件下惰性的各種常規的溶劑，優選使用下述的：烴類，如甲苯二甲苯，苯，環己烷，甲基環己烷，氯代烴類，如氯苯，對二氯苯，四氯化碳，醇類，如甲醇，乙醇，丙醇異構體，丁醇異構體和戊醇異構體，醚類，如二異丙基醚，四氫呋喃，二噁烷，腈類，如乙腈和丁腈，醯胺類，如二甲基甲醯胺，還有強極性溶劑，如二甲基亞砜和環丁砜。

如果適宜，上述稀釋劑還可以以與水的混合物形式使用，如果適宜，可存在相轉移催化劑，例如：季銨鹽類，如溴化四辛基銨或氯化苄基三乙基銨。

可優選使用的甲酸鹽為甲酸鈉和甲酸鉀。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在50°C至200°C，優選80°C至160°C的溫度下進行。

通常，本方法如下述進行，將式(VII)化合物與1至20莫耳，優選1至5莫耳的甲酸鹽在稀釋劑中加熱，然後，如果適宜，加入水，進行相分離，蒸餾掉稀釋劑。

方法E)用於製備式(XI)化合物，包括一種方法，其中式(X)化合物與式(XII)化合物反應，如果適宜反應在稀釋劑存在下進行。

適合的稀釋劑是各種常規的溶劑。優選使用的稀釋劑實例為醇類，如甲醇，乙醇，丙醇異構體，丁醇異構體和戊醇異構體，醚類，如二異丙基醚，四氫呋喃，二噁烷，如

## 五、發明說明 ( 41 )

果適宜，所有的溶劑可以其和水的混合物的形式使用。

式(XII)的O-甲基羥基胺可以其游離鹼的形式或者以其酸鹽的形式使用。在第二種情況中本方法在鹼，優選乙酸鈉的存在下進行。式(XII)化合物通常以等莫耳量使用。

反應溫度可在很大的範圍內變化。通常本方法在 $-20^{\circ}\text{C}$ 至 $100^{\circ}\text{C}$ ，優選 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $60^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

本方法通常在大氣壓力下進行。

以常規方法，例如通過過濾或提取，進行加工處理。

方法F)用於製備式(XIII)化合物，包括一種方法，其中在酸存在下，如果適宜在稀釋劑存在下，式(XI)化合物與還原劑反應。

適合的稀釋劑是對反應物惰性的各種溶劑，優選使用的稀釋劑是醚類，例如，二異丙基醚，甲基第三丁基醚，四氫呋喃，1, 2-二甲氧基乙烷和二噁烷。

優選的還原劑是以等莫耳量或過量使用的硼酸鈉。

優選的酸是以等莫耳量或過量使用的三氟乙酸。

反應溫度可在相當大的範圍內變化。通常反應開始在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $50^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行，在反應過程中提高溫度，如果適宜升至 $120^{\circ}\text{C}$ 。

反應通常在大氣壓力下進行。

借助常規的方法進行加工處理。

優選以鹽的形式分離式(XIII)反應產物，例如鹽酸鹽。

方法G $\alpha$ )包括一種方法，其中式(XIII)化合物與2-A, 6-B-苯甲醯氣，如果適宜在鹼存在下，和如果適宜在稀釋劑

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(42)

存在下反應。

可使用的稀釋劑是對這些化合物惰性的各種溶劑。優選使用下述的：烴類，如汽油，苯，甲苯，二甲苯和1, 2, 3, 4-四氫化萘，還有鹵代烴類，如二氯甲烷，氯仿，四氯化碳，氯苯和對二氯苯，還有酮類，如丙酮和甲基異丙基酮，還有醚類，如乙醚，四氫呋喃和二噁烷，還有羧酸酯類，如乙酸乙酯，還有強極性溶劑，如二甲基亞砷和環丁砷。如果醯基鹵對水解足夠穩定，反應還可在水存在下進行。

在反應中適合的鹼是各種常規酸吸收劑。優選可使用下述的：季胺類，如三乙基胺，吡啶，二氮雜二環辛烷(DABCO)，二氮雜二環十一碳烯(DBU)，二氮雜二環壬烯(DBN)，Hünig鹼和N, N-二甲基苯胺，還有鹼土金屬氧化物，如氧化鎂和氧化鈣，還有鹼金屬碳酸鹽和鹼土金屬碳酸鹽如碳酸鈉，碳酸鉀和碳酸鈣，和鹼金屬氫氧化物或鹼土金屬氫氧化物，如氫氧化鈉或氫氧化鉀。

反應溫度可在相當大的範圍內變化，通常反應在 $-20^{\circ}\text{C}$ 至 $+100^{\circ}\text{C}$ ，優選在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $30^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下進行。

進行本方法時，通常使用大約等莫耳量的式(XIII)起始物和苯甲醯氯。可是還可能使用大量過量(多至5莫耳)的羧醯基鹵。通過常規方法進行加工處理。

方法GB)用於製備式(XIV)化合物，包括一種方法，其中(步驟1)在酸性催化劑存在下，和如果適宜在稀釋劑

## 五、發明說明(43)

存在下，由式(II)化合物首先與式(XV)化合物反應，然後(步驟2)在稀釋劑存在下，所得的式(XVI)化合物與還原劑反應。

適合第一步的稀釋劑是對反應物惰性的各種溶劑。

優選使用下述的：烴類，如甲苯，二甲苯，1, 2, 3, 4-四氫化萘，鹵代烴類如二氯甲烷，氯仿，氯苯，對二氯苯，醚類如二異丙基醚，甲基第三丁基醚，四氫呋喃，二噁烷，二甲氧乙烷，酮類如丙酮或甲基乙基酮，醇類如甲醇，乙醇和丙醇，醯胺類如二乙基甲醯胺，和亞砒類如二甲基亞砒。

原則上，適合的酸性催化劑是各種無機酸或有機酸或路易斯酸。優選使用的酸的實例為硫酸，甲磺酸，苯磺酸，氯化鋁，四氯化鈦，三氯氧化磷，三氯化硼醚合物。如果適合，過量的酸也可用作稀釋劑。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $-20^{\circ}\text{C}$ 至 $150^{\circ}\text{C}$ ，優選在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $50^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下進行。

通常以等莫耳量使用式(II)化合物和式(XV)化合物，但是也可能使用過量的一種或另一種化合物。

在第二步中特別適合的稀釋劑是醇類和醚類。可述及的實施例是甲醇，乙醇，丙醇異構體，丁醇異構體和戊醇異構體，還有乙醚，二異丙基醚，甲基第三丁基醚，四氫呋喃，二噁烷和二甲氧基乙烷。

對每莫耳的式(XVI)化合物，優選使用1至5莫耳的還

## 五、發明說明(44)

原劑硼氫化鈉。

如果式(XVI)化合物是一種酸( $R^6 = H$ )形式，在與硼氫化鈉進行反應之前，必須將該酸轉化成烷基酯。

反應溫度可在很大的範圍內變化。通常，本方法在 $20^{\circ}\text{C}$ 至 $150^{\circ}\text{C}$ ，優選 $50^{\circ}\text{C}$ 至 $100^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

通常反應在大氣壓力下進行。

借助常規方法加工處理產物。

方法H $\alpha$ )用於製備式(XVII)化合物，包括一種方法，其中式(XIV)化合物與氯化劑反應，如果適宜反應在稀釋劑存在下進行。

適合的稀釋劑是各種惰性有機溶劑。優選使用的稀釋劑是烴類如甲苯，二甲苯，己烷，環己烷，鹵代烴類如氯苯，氯仿，二氯甲烷，和醚類如乙醚，二異丙基醚，二甲氧乙烷，四氫呋喃和二噁烷。

適合的氯化劑是常規用於此目的各種反應物。可述及的實施例是硫磺氯，光氯和三氯氧化磷，通常至少以等莫耳量使用這些氯化劑。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $120^{\circ}\text{C}$ ，優選 $20^{\circ}\text{C}$ 至 $100^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

如果適宜，反應在鹼，特別是季胺，如三乙基胺或吡啶存在下反應。

方法H $\beta$ )用於製備式(XVII)化合物，包括一種方法，其中在酸催化劑存在下和如果適宜在稀釋劑存在下式(II)或(IIe)化合物與式(XVIII)化合物反應。

## 五、發明說明(45)

適合的稀釋劑是對反應物惰性的各種溶劑。

優選使用下述的：烴類，如甲苯，二甲苯，1, 2, 3, 4-四氫化萘，鹵代烴類如二氯甲烷，氯仿，氯苯，對二氯苯，醚類如二異丙基醚，甲基第三丁基醚，四氫呋喃，二噁烷，二甲氧乙烷，酮類如丙酮或甲基乙基酮，醇類如甲醇，乙醇和丙醇，醯胺類如二乙基甲醯胺，和亞颯類如二甲基亞颯。

原則上，適合的酸性催化劑是各種無機酸或有機酸或路易斯酸。優選使用的酸的實例為硫酸，甲磺酸，苯磺酸，無水氫氟酸，氯化鋁，四氯化鈦，三氯氧化磷，三氯化硼醚合物。如果適合，過量的酸也可用作稀釋劑。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $-20^{\circ}\text{C}$ 至 $150^{\circ}\text{C}$ ，優選在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $80^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓下或升壓下進行。

通常，以等莫耳量使用式(II)或式(IIe)化合物和式(XVIII)化合物；可是也可過量使用一種或另一種化合物。

方法I)用於製備式(I)化合物，包括一種方法，其中，在鹼存在下使式(XVII)化合物環化，如果適宜在催化劑存在下，且如果適宜在稀釋劑存在下進行反應。

適合的稀釋劑是各種有機溶劑。如果適宜，它們可以以與水的混合物形式使用。優選使用下述的：烴類如甲苯，二甲苯，1, 2, 3, 4-四氫化萘，己烷，環己烷，鹵代烴類如二氯甲烷，氯仿，氯苯，對二氯苯，醇類如甲醇，乙

## 五、發明說明(46)

醇，乙二醇，丙醇異構體，丁醇異構體和戊醇異構體，醚類如乙醚，二異丙醚，二甲氧乙烷，四氫呋喃，二噁烷，腈類如乙腈或丁腈，醯胺類如二甲基甲醯胺，亞砒類如二甲基亞砒，還有環丁砒。特別優選使用醇類。

適合的鹼是各種常用的酸接受劑。

優選使用下述的：第三胺如三乙基胺，吡啶，DABCO，DBU，DBN，N，N-二甲基苯胺，還有鹼土金屬氧化物和氧化鎂和氧化鈣，另外鹼金屬碳酸鹽和鹼土金屬碳酸鹽如碳酸鈉，碳酸鉀和碳酸鈣，鹼金屬氫氧化物如氫氧化鈉和氫氧化鉀，還有醇化物如乙醇鈉或第三丁基化鉀。

如果適宜，本方法在相轉移催化劑存在下進行。適合的相轉移催化劑的實例是銨化合物，如溴化四辛基銨或氯化苄基三乙基銨。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常本方法在 $-10^{\circ}\text{C}$ 至 $150^{\circ}\text{C}$ ，優選在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $100^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在常壓下進行。

通常，使用等莫耳量的鹼。可是，還可能使用過量的鹼。

以常規方法進行加工處理。

方法J)用於製備式(Ib)化合物，其特徵在於水解式(Ia)化合物。

方法J)優選在稀釋劑存在下進行。優選使用的稀釋劑是水/醇混合物，例如，水/甲醇，水/乙醇或水/丙醇，或水/醯胺，例如，水/二甲基甲醯胺(DMF)或水/二甲



## 五、發明說明(47)

基乙醯胺。

方法J)在鹼存在下進行。適合的鹼是無機鹼和有機鹼，特別是鹼金屬氫氧化物，如氫氧化鈉或氫氧化鉀，或氨。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $-10^{\circ}\text{C}$ 至 $60^{\circ}\text{C}$ ，優選 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $40^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。反應通常在大氣壓力下進行。

方法K $\alpha$ )的特徵在於式(Ib)化合物與式(XIX)化合物反應，如果適宜在稀釋劑存在下，和如果適宜在鹼存在下進行反應。

可使用的稀釋劑是對這些化合物惰性的各種溶劑。優選使用下述的：烴類，如汽油，苯，甲苯，二甲苯和1, 2, 3, 4-四氫化萘，還有鹵代烴類，如二氯甲烷，氯仿，四氯化碳，氯苯和對二氯苯，還有酮類，如丙酮和甲基異丙基酮，還有醚類，如乙醚，四氫呋喃和二噁烷，還有羧酸酯類，如乙酸乙酯，還有強極性溶劑，如二甲基亞砷和環丁砷。如果醯基鹵對水解足夠穩定，反應還可在水存在下進行。

適合於反應的酸接合劑是各種常規的酸接受劑，優選使用下述的：季胺類，如三乙基胺，吡啶，二氮雜二環辛烷(DABCO)，二氮雜二環十一碳烯(DBU)，二氮雜二環壬烯(DBN)，Hünig鹼和N, N-二甲基苯胺，還有鹼土金屬氧化物，如氧化鎂和氧化鈣，還有鹼金屬碳酸鹽和鹼土金屬碳酸鹽如碳酸鈉，碳酸鉀和碳酸鈣，和鹼金屬氫氧化物或鹼土金屬氫氧化物，如氫氧化鈉或氫氧化鉀。

## 五、發明說明 ( 48 )

反應溫度可在相當大的範圍內變化。通常反應在 $-20^{\circ}\text{C}$ 至 $+100^{\circ}\text{C}$ ，優選在 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $30^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下進行。

進行本方法時，通常使用大約等莫耳量的式(Ib)和(XIX)起始物。可是還可能使用大量過量(多至5莫耳)的式(XIX)化合物。通過常規方法加工處理。

方法K $\beta$ )的特徵在於式(Ib)化合物與式(IV)化合物反應，如果適宜反應在鹼存在下，如果適宜在催化劑存在下，和如果適宜在稀釋劑存在下進行，和如果適宜隨後氫化產物。

使用類似於上述方法A $\alpha$ )中的有關稀釋劑，鹼，催化劑，溫度壓力，對式(Ib)起始物的鹼的比例進行本方法並加工處理產物。

方法K $\gamma$ )的特徵在於式(Ib)化合物與式(V)的二氟鹼代甲烷反應，如果適宜反應在鹼存在下，如果適宜在催化劑存在下且如果適宜在催化劑存在下進行。

使用類似於上述方法A $\beta$ )中有關的稀釋劑，鹼，催化劑，溫度，壓力和有關物質的重量比。

方法K $\delta$ )的特徵在於式(Ib)化合物與四氯化碳在鹽酸存在下反應，如果適宜反應在稀釋劑存在下進行。

使用類似於上述方法A $\delta$ )中有關的稀釋劑，氫氟酸量，溫度，進行本方法和加工處理產物。

方法K $\epsilon$ )的特徵在於式(Ib)化合物與式(XX)化合物反應，如果適宜反應在稀釋劑存在下和如果適宜在鹼存在下進

## 五、發明說明 ( 49 )

行。

適合的稀釋劑是各種常規溶劑。優選使用下述的：可選擇鹵化的，芳族烴或脂肪烴，酮類，腈類和醯胺類。可述及的實例為甲苯，丙酮，乙腈，二甲基甲醯胺和二甲基乙醯胺。

適合的鹼是各種常規的無機鹼和有機鹼，可述及的實例是第三胺如三乙胺，DBN，DBU，DABCO，鹼金屬氫氧化物和鹼土金屬氫氧化物，例如，氫氧化鈉，氫氧化鉀和氫氧化鈣，還有鹼金屬碳酸鹽和鹼土金屬碳酸鹽，例如，碳酸鈉或碳酸鉀。

反應溫度可在很大範圍內變化。通常，本方法在 $-20^{\circ}\text{C}$ 至 $100^{\circ}\text{C}$ ，優選 $0^{\circ}\text{C}$ 至 $60^{\circ}\text{C}$ 的溫度下進行。

反應通常在大氣壓力下進行。

通常，以大約等莫耳量使用式(Ib)化合物和式(XX)化合物。可是，還可能應用過量的式(XX)化合物。

該活性化合物適用於防治有害動物，特別是農業、林業、儲物防護、獸醫及衛生領域中的節肢動物和線蟲，尤其是有害的昆蟲和蜘蛛類。該化合物能有效地防治一般敏感的和有抗性的種類，並能防治所有各蟲期的害蟲（或這些害蟲的某些發育階段）。上述害蟲包括：

等足目，如潮蟲，平甲蟲和鼠婦。

倍足亞綱，如具斑馬陸。

唇足綱，如食果地蜈蚣和蚰蜒屬的種類。

綜合綱，如庭院么蚋。

## 五、發明說明 ( 50 )

纓尾目，如西洋衣魚。

彈尾目，如具刺跳蟲。

直翅目，如東方蜚蠊，美洲大蠊，馬得拉蜚蠊，德國小蠊，家蟋蟀，螻蛄屬的種類，熱帶飛蝗，殊種蚱蜢，荒地蚱蜢和蜚蠊屬(Supella)的種類。

革翅目，如歐洲球蝨。

等翅目，如白蟻屬的種類。

虱目，如葡萄根瘤蚜，綿蚜屬的種類，頭虱屬的種類，體虱屬的種類，血虱屬的種類，長頸虱屬的種類和盲虱屬的種類。

食毛目，如嚼虱屬的種類，畜虱屬的種類，毛羽虱屬種類，皮羽虱屬種類，毛虱屬的種類，羽虱屬的種類，綠領虱屬種類，鱗角虱屬種類和獸羽虱屬的種類。

纓翅目，如溫室條薊馬和蔥薊馬。

異翅亞目，如褐盾蝨屬的種類，介中紅蝨，方背皮蝨，溫帶臭蟲，長紅蠟蝨，獵蝨屬的種類和全堅蝨屬的種類。

同翅亞目，如甘藍粉虱，木薯粉虱，溫室粉虱，棉蚜，甘藍蚜，茶蘆隱瘤蚜，甜菜蚜，波密角蚜，蘋果綿蚜，桃大尾蚜，麥長管蚜，瘤蚜屬的種類，忽布疣蚜，禾谷縊管蚜，小綠葉蟬屬的種類，雙葉葉蟬，黑尾葉蟬，李蠟蚧，油欖黑蓋蚧，灰飛虱，稻褐飛虱，紅圓蚧，夾竹桃園蚧，粉蚧屬的木虱屬的種類。

鱗翅目，如棉紅鈴蟲，松尺蠖，冬天蛾，蘋細蛾，蘋果巢蛾，小菜蛾，黃褐天幕毛蟲，棕尾毒蛾，舞毒蛾屬的種

## 五、發明說明(51)

類，棉葉穿孔潛蛾，桔細潛蛾，地老虎屬的種類，切根蟲屬的種類，夜蛾屬種類，埃及金剛钻，實夜蛾屬的種類，甜菜夜蛾，甘藍夜蛾，松夜蛾，斜紋夜蛾，粘蟲屬的種類，粉紋夜蛾，蘋果蠹蛾，菜粉蝶屬的種類，螟屬的種類，玉米螟，地中海粉螟，大蠟螟，負袋衣蛾，織網衣蛾，褐織葉蛾，亞麻黃卷蛾，具網卷葉蛾；雲杉卷葉蛾，葡萄果蠹蛾，茶長卷蛾和櫟綠卷葉蛾。

鞘翅目，如具斑竊蠹，谷蠹，大豆象，家天牛，赤楊紫跳甲，馬鈴薯甲蟲，辣根猿葉蟲，葉甲屬的種類，油菜蘭跳甲，墨四哥豆瓢蟲，隱食甲屬的種類，鋸谷盜，花象甲屬的種類，谷象屬的種類，葡萄黑象甲，香蕉蛀基象甲，甘藍夾象甲，苜蓿葉象甲，皮蠹屬的種類，斑皮蠹屬的種類，圓皮蠹屬的種類，毛皮蠹屬的種類，粉蠹屬種類，油菜花露尾甲，蛛甲屬的種類，金屬蛛甲，麥蛛甲，擬谷盜屬的種類，大黃粉蟲，叩甲屬的種類，金針蟲屬種類，西方五月鰓角金龜子，六月金龜子和褐新西蘭肋翅鰓角金龜子。

膜翅目，如鋸角葉蜂屬的種類，葉蜂屬的種類，蟻屬的種類，廚蟻和胡蜂屬的種類。

雙翅目，如伊蚊屬的種類，按蚊屬的種類，庫蚊屬的種類，黃猩猩果蠅，家蠅屬種類，廁蠅屬種類，麗蠅屬種類，綠蠅屬種類，金蠅屬種類，疽蠅屬種類，胃蠅屬種類，虱蠅屬種類，廢螫蠅屬種類，狂蠅屬種類，皮蠅屬種類，蛇屬種類，塘 屬種類，花園毛蚊，瑞典麥桿蠅，草種蠅

## 五、發明說明 ( 52 )

屬種類，藜花蠅，地中海實蠅，油櫬實蠅，歐洲大蚊，蚋屬種類，真蚋屬種類，白蛉屬種類，路蛉屬種類，蠛屬種類，斑蚊屬種類，瘧蚊屬種類，黃蚊屬種類，蚊屬種類，麻蚊屬種類，菲蚊屬種類，蜂蠅屬種類，齒股蠅屬種類，螫蠅屬種類，血蠅屬種類，莫蠅屬種類，廁蠅屬種類，螻蛄屬種類，麗蠅屬種類，污蠅屬種類，麻蠅屬種類，狂蠅屬種類，皮蠅屬種類，胃蠅屬種類，虱蠅屬種類，羊虱蠅屬種類，啤蠅屬種類和腐蠅屬種類。

蚤目，如客蚤屬種類，角葉蚤屬種類，蚤屬種類和櫛首蚤屬種類。

蛛形綱，如蝎和盜蛛。

蟬蟎目，如癬蟎屬種類，耳癢蟎屬種類，粗腳粉蟎，銳緣蟎屬種類，鈍緣蟎屬種類，禽刺蟎屬種類，皮刺蟎屬種類，茶蔗癩蟎，桔莖銹蟎，牛蟎屬種類，扇頭蟎屬種類，花蟎屬種類，璃眼蟎屬種類，硬蟎屬種類，癢蟎屬種類，皮癢蟎屬種類，癢蟎屬種類，附線蟎屬種類，首蓿苔蟎，全爪蟎屬種類，葉蟎屬種類，革蟎屬種類，血蟎屬種類，刺利蟎屬種類，肺刺蟎屬種類，胸孔蟎屬種類和蜂蟎屬種類。

前氣門亞目和粉蟎總科，如盾蟎屬種類，拒螫蟎屬種類，禽螫蟎屬種類，肉蟎屬種類，生癢蟎屬種類，蠕形蟎屬種類，恙蟎屬種類，蒼蟎屬種類，粉蟎屬種類，食酪蟎屬種類，嗜木蟎屬種類，頸下蟎屬種類，翅蟎屬種類，癢蟎屬種類，癢蟎屬種類，耳癩蟎屬種類，癢蟎屬種類，疥蟎

## 五、發明說明 ( 53 )

屬種類，疥蟎屬種類，胞蟎屬種類和皮膜蟎屬種類。

本發明的活性化合物具有突出的強力殺蟲和殺蟎活性。

它們可特別成功地防治對植物有害的昆蟲，例如，防治卷葉蛾(*Phaedon cochleariae*)幼蟲或防治黑尾葉蟬(*Nephotettix cincticeps*)幼蟲或防治小菜蛾(*Plutella maculipennis*)幼蟲。

可將活性化合物轉化成常規的製劑，如液劑，乳劑，可濕性粉劑，懸浮劑，粉劑，粉塵劑，可溶粉劑，顆粒劑，乳油，活性化合物浸漬的天然和合成材料，和聚合物的微細膠囊。

這些製劑是以已知的法生產的，例如通過將活性化合物與填充劑，即液體溶液和／或固體載體混合，可選擇地可使用表面活性劑，即乳化劑和／或分散劑，和／或成泡劑。

在用水作為填充劑時，例如，有機溶劑也可用作助溶劑。適合的液體溶劑主要有，芳烴類，如二甲苯，甲苯或烷基苯，氯化芳烴和氯化脂肪烴類，如氯苯，二氯乙烷或二氯甲烷，脂族烴，如環己烷或鏈烷烴，例如礦物油餾分，礦物油和植物油，醇類，如丁醇或乙二醇以及它們的醚類和酯類，酮類如丙酮，甲基乙基酮，甲基異丁基酮或環己酮，強極性溶劑，如二甲基甲醯胺和二甲基亞砜，以及水。

適合的固體載體是：例如銨鹽和天然礦物顆粒，如高嶺土，粘土，滑石，白堊，石英，矽鎂土，蒙脫石或矽藻土

## 五、發明說明 ( 54 )

，和合成礦物顆粒，如高分散二氧化矽，氧化鋁和矽酸鹽；適合顆粒劑的固體載體是：例如碾碎並分級的天然岩石如方解石，大理石，浮石，海泡石和白雲石，以及無機合成顆粒和有機粉末，且有機材料的顆粒如鋸末，堅果殼，玉米軸芯和煙莖；適合的乳化和／或成泡劑為：例如非離子和陰離子乳化劑，如聚氧乙烯脂肪酸酯，聚氧乙烯脂肪醇醚，例如烷基芳基聚乙二醇醚，烷基磺酸鹽，烷基硫酸鹽，芳基磺酸鹽以及白蛋白水解產物；適合的分散劑為，例如木質素亞硫酸廢液和甲基纖維素。

可在製劑中應用的粘著劑如羧甲基纖維素和以粉末，顆粒或膠乳形式的天然和合成聚合物，如阿拉伯膠，聚乙烯醇和聚乙酸乙烯酯，以及天然磷脂，如腦磷脂和卵磷脂，和合成磷脂。其它添加劑可以是礦物油和植物油。

可能使用的著色劑如無機顏料，例如氧化鐵，氧化鈦和普魯士藍，和有機染料，如茜素染料，偶氮染料和金屬酞菁染料，和痕量營養物如鐵，錳，硼，銅，鈷，鉬和鋅鹽。

製劑中通常含有按重量計0.1至95%的活性化合物，優選0.5至90%。

根據本發明的活性化合物可以其市售製劑或從這些製劑製備的應用形式存在，如與其它活性化合物，如殺蟲劑，吸誘劑，消毒劑，殺細菌劑，殺蟎劑，殺線蟲劑，殺真菌劑，生長調節劑或除草劑的混合物。例如這些殺蟲劑特別包括磷酸酯類，氨基甲酸酯類，羧酸酯類，氯化煙類，苯



## 五、發明說明 ( 55 )

基脲類和通過微生物生產的物質。

特別優選的混合物成分的實例為下述化合物：

殺真菌劑：

2-胺基丁烷；2-苯胺基-4-甲基-6-環丙基-嘧啶；2', 6'-二溴-2-甲基-4'-三氟甲氧基-4'-三氟-甲基-1, 3-噻唑-5-甲醯苯胺；2, 6-二氯-N-(4-三氟甲基苄基)-苯甲醯胺；(E)-2-甲氧亞胺基-N-甲基-2-(2-苯氧苄基)-乙醯胺；8-羥基喹啉硫酸鹽；(E)-2-{2-[6-(2-氟基苯氧基)-嘧啶-4-基氧]-苄基}-3-甲氧丙烯酸甲基酯；(E)-甲氧亞胺基[ $\alpha$ -(對甲苄氧基)-對甲苄基]乙酸甲酯；2-苯基酚(OPP)，艾敵嗎啉，ampropylfos，敵菌靈，戊環唑，

苯霜靈，麥銹靈，binapacryl，聯苯酚，雙苯三唑醇，滅瘟素，糖菌唑，乙嘧啶磺酸酯，粉病定，

多硫化鈣，敵菌丹，克菌丹，多菌靈，萎銹靈，滅蝨猛，地茂散，氣化苦，百菌清，乙菌利，硫雜靈，霜脲氣，環唑醇，酯菌胺，雙氣酚，苄氣三唑醇，苯氣磺胺，噠菌清，氣硝胺，乙霉威，嘔醚唑，甲菌定，烯醯嗎啉，烯唑醇，敵蝨普，二苯胺，dipyrrithion，滅菌磷二噻農，多果定，敵菌酮，

克瘟散，Epoxyconazole，乙菌克，氣唑靈，

異嘧菌醇，Fenbuconazole，呋菌胺，種衣酯，攪種咯，

苯銹啞，丁苯嗎啉，薯瘟錫，毒菌錫，福美鐵，嘧菌脞，

氣啞胺，Fludioxonil，氣菌安，Fluquinconazole，氣砂

## 五、發明說明 ( 56 )

唑，磺菌胺，氣醯胺，粉唑醇，滅菌丹，乙磷鋁，四氯苯  
 酞，麥穗寧，呋氣丙靈，攪種胺，

雙胍鹽，

氣苯嘧啶醇，己唑醇，土菌消，

烯菌靈，醯胺唑，雙胍辛醋酸鹽，iprobenfos (IBP)，異  
 丙定，富士一號，

春雷霉素，銅製備物如：氫氧化銅，環烷酸銅，氣氧化銅  
 ，硫酸銅，氧化銅，8-羥基喹啉銅，和波爾多液混合物，  
 錳銅混劑，代森錳鋅，代森錳，噻菌胺，滅銹胺，氣丙靈  
 ，metconazol，磺菌威，甲呋菌胺，代森聯，噻菌胺，脲  
 菌唑，福美錄，異丙消，環菌靈，

甲呋醯胺，嘔霜靈，oxamocarb，氧化萎銹靈，稻瘟酯，  
 戊菌唑，戊醇隆，phosdiphen，四氯苯酞，多馬霉素，粉  
 病靈，福美鋅，多氧霉素，噻菌靈，丙氣靈，殺菌利，百  
 維靈，丙環唑，甲基代森鋅，定菌磷，啞斑脰，

pyrimethanil，毛醯素五氣硝基苯(PCNB)，

硫和硫製劑，

戊唑醇，白葉滅，四氣硝基苯，氣醚唑，涕必靈，噻菌脲  
 ，甲基托布津，福美雙，甲基立枯磷，對甲抑菌靈，唑菌  
 酮，唑菌醇，唑菌嗪，揚菌胺，三環唑，克啉菌，氣菌唑  
 ，噻氣靈，triticonazole，有效霉素，烯菌酮，代森鋅  
 ，福美鋅。

殺細菌劑：

拌棉醇，雙氣酚，四氣草定，福美錄，春雷霉素，

## 五、發明說明 ( 57 )

octhilinone, furanecarboxylic, 羥基啞啉, 噻菌靈, 鏈霉素, 白葉滅, 硫酸銅和其它銅製備物。

殺蟲劑 / 殺蟎劑 / 殺線蟲劑：

齊 蟎素, AC303630, 乙醯甲胺磷, 氟酯菊酯, 棉鈴威, 涕滅威, 甲體氣氟菊酯, 蟲蟎脛, AZ60541, azadirachtin, 谷硫磷, 乙基谷硫磷, 唑環錫, 蘇雲菌桿菌, 啞蟲威, 丙硫克百威, 殺蟲磺, 氟氣氟菊酯, 氣氟菊酯, 丁苯威, brofenprox, 溴硫磷, 全殺威, 噻嗪酮, 丁叉威, 噻蟎酮, 硫線磷, 西維因, 呋喃丹, 三硫磷, 丁硫克百威, 殺螟丹, CGA157419, CGA184699, 毒蟲畏, 定蟲隆, 氣甲磷, 毒死蜱, 甲基毒死蜱, 順-苄呋菊酯, clocythrin, 四蟎嗪, 殺螟脲, 乙氟菊酯,  $\beta$ -氟氣氟菊酯, 三氟氣氟菊酯, 三環錫, 氣氟菊酯, 滅蠅胺, 溴氣菊酯, 甲基內吸磷, 內吸磷硫趕式異構體, 甲基內吸磷硫趕式異構體, 殺蟎隆, 二嗪農, 除線磷, 敵敵畏, dicliphos, 百治磷, 乙硫磷, 氣脲殺, 樂果, 甲基毒蟲畏, 敵殺磷, 乙拌磷, 克瘟散, emamectin, 高氣戊菊酯, 苯蟲威, 乙硫磷, 醚菊酯, 氣啞啉磷, 克線磷, 啞蟎醚, 殺蟎錫, 殺螟松, fenobucarb, 苯硫威, 雙氧威, 分撲菊酯, fenpyrad, 啞蟎酯, 倍硫磷, 氣戊菊酯, fipronil, 氣啞啉, 氣蟎脛, 氣氣戊菊酯, 氣蟲脛, flufenprox, 氣胺氣菊酯, 地蟲磷, 安果, 噻啞硫磷, 呋線威, 六六六, 庚蟲磷, 氣鈴脛, 噻蟎酮, 咪蚜胺, iprobenfos, 異啞磷, 丙胺磷, 異丙威, 異啞啞

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(58)

磷， $\alpha$ -三氟氣氟菊酯，lufenuron，馬拉硫磷，滅蚜磷，  
mervinphos，甲丙硫磷，多聚乙醛，蟲蟎畏，甲胺磷，殺  
撲磷，滅蟲威，滅多威，  
metolcarb，milbemectin，久效磷，moxidectin，  
二溴磷，NC184，NI 25，nitenpyram，  
氧化樂果，甲叉丙威，吸磷，oxydeprofos，對硫磷，  
甲基對硫磷，氣菊酯，稻豐散，甲拌磷，伏殺磷，亞胺硫  
磷，磷胺，辛硫磷，抗蚜威，蟲蟎磷，乙基蟲蟎磷，溴丙  
磷，猛殺威，丙蟲磷，殘殺威，丙硫磷，發果，pymetrozin  
，吡啶硫磷，噻嗪硫磷，反滅菊酯，除蟲菊酯，噻蟎酮，  
pyrimidifen，蚊蠅醚，  
啞硫磷，  
RH5992，  
殺抗松，克線丹，silaflofen，治螟磷，乙丙硫磷，  
tebufenozid，tebufenpyrad，tebupirimiphos，伏蟲隆  
，七氟菊酯，雙硫磷，第三丁威，特丁磷，殺蟲威，  
Thiafenox，硫雙滅多威，特氟叉威，甲基乙拌磷，治線  
磷，蘇雲菌桿菌，四溴菊酯，triarathen，三唑磷，  
triazuron，敵百蟲，triflumuron，三甲威，  
蚜滅多，二甲威，  
除草劑：  
例如苯胺類，如吡氟草胺，敵稗；芳基羧酸類，例如二氟  
甲酸，麥草畏和毒莠定；芳氧基鏈烷酸，例如，2，4-滴  
，2，4-滴丁酸，2，4-滴丙酸，氣草定，2甲4氣，2甲

## 五、發明說明 ( 59 )

4 氯丙酸和綠草定；芳氧基-苯氧基-鏈烷酸酯，例如禾草靈，嘧啶禾草靈，精吡氟禾草靈，蓋草能和嗒禾；吡嗪靈類，例如殺草敏和達草滅，氨基甲酸酯類，例如氣苯胺靈，異苯敵草，甜菜寧和苯胺靈，氣乙醯苯胺類，例如甲草胺，乙草胺，去草胺，吡草胺，乙基乙草胺，丙草胺和撲草胺；二硝基苯胺類，例如胺磺靈，胺硝草，氣樂靈；二苯基醚類，例如氣鎖草醚，甲羧除草醚，乙羧氣草醚，氣磺胺草醚，halosafen，克闊樂和氣硝草醚；脲類，例如綠麥隆，敵草隆，伏草隆，異丙隆，利谷隆和甲基苯噻隆，羥基胺類，例如枯殺達，稀草酮，噻草酮，稀禾定和脲草酮；咪唑啉類，例如咪草煙，咪草酯，滅草煙和滅草嗒；脲類，例如溴苯脲，敵草脲和碘苯脲；氣乙醯胺類，例如苯噻草胺；磺醯脲類，例如amidosulfuron，苄噻磺隆，氣噻磺隆，綠磺隆，醚黃隆，甲磺隆，煙噻磺隆，氣噻磺隆，吡噻磺隆，賽苯隆，醚苯磺隆和苯磺隆；硫代氨基甲酸酯類，例如蘇達滅，草滅特，燕麥敵，撲草滅，禾草畏，草達滅，苄草丹，殺草丹和野麥町；三嗪類，例如莠去津，草淨津，西瑪津，西草淨，去草淨和特丁津；三嗪酮類，例如六嗪同，苯嗪草和嗒草酮；其它類例如氨基三嗪，吡草黃，噻草平，惡庚草烷，廣滅寧，clopyralid，燕麥枯，氣硫草定，啞草定，氣咯草酮，草銨磷，草甘膦，異惡草胺，達草止，快殺稗，嗒草酸，草硫磷和滅草環。

根據本發明的活性化合物可以其市售製劑或從這些製劑

## 五、發明說明(60)

製備的應用形式存在，如與增效劑的混合物。增效劑是能夠增加活性化合物活性，而加入的增效劑本身不一定具有活性的化合物。

從市售製劑製備的應用形式的活性化合物含量可在很寬範圍內變化。應用形式的活性化合物濃度可從按重量計0.0000001至95%的活性化合物，優選按重量計0.0001至1%。

適宜的應用形式是以常規方法使用本化合物。

根據本發明的活性化合物不僅對植物害蟲，衛生害蟲和貯藏品害蟲起作用，而且在獸藥領域對動物寄生蟲（外寄生蟲）如蟬，隱喙蟎科，馬癢蟎，恙蟎科，蠅類（刺吸），寄生蠅幼蟲，虱，頭虱，鳥虱和跳蚤起作用。例如，它們對蟬例如微小牛蟬顯示出優越的活性。

根據本發明的式(I)活性化合物還適合於防治攻擊農業家畜例如牛，羊，山羊，馬，豬，驢，駱駝，水牛，兔，雞，火雞，鴨，鵝，蜜蜂，其它家養動物例如狗，貓，籠養鳥，缸養魚，和所謂的驗動物例如倉鼠，豚鼠，大鼠和小鼠的節肢動物。通過防治這些節肢動物，目的在於降低養殖死亡率並降低節肢動物的影響（在肉，牛奶，羊毛，皮革，蛋，蜂蜜等中），由此通過使用本發明的活性化合物，使更經濟和簡單的動物飼養成爲可能。

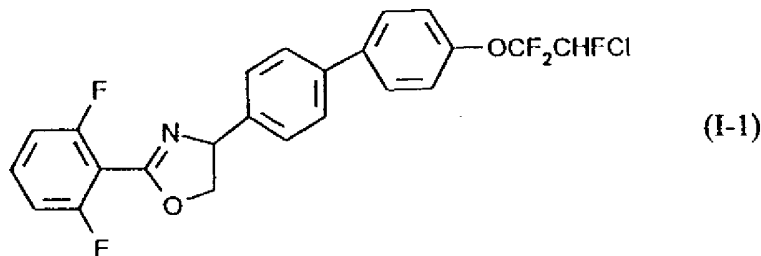
在獸醫領域，根據本發明的活性化合物以已知方法使用，通過內部給藥的方法以例如片劑，膠囊劑，飲劑，浸液，顆粒劑，糊劑，清油，栓劑的形式飼喂給藥，通過非腸

## 五、發明說明(61)

道給藥，例如通過注射(肌內，皮下，靜脈，腹膜)，包埋給藥，通過經鼻施用，經過表皮施用的方法，例如以浸泡或浸沾，噴布，潑澆和點塗，沖洗塗粉的形式施用，並可借助包括活性化合物的成形物品，如鞭，耳箍，尾記，肢帶，馬絡頭，標記設備給藥。

當向牛，家禽，家養動物等使用時，式(I)活性化合物可以其包含按重量計1至80%的活性化合物的製劑形式(例如粉劑，乳劑，懸浮劑)或直接使用或將其稀釋100至10,000倍後使用，或其可以化學浴的形式使用。

從下述的實施例中可以看到根據本發明的活性化合物的製備和應用。

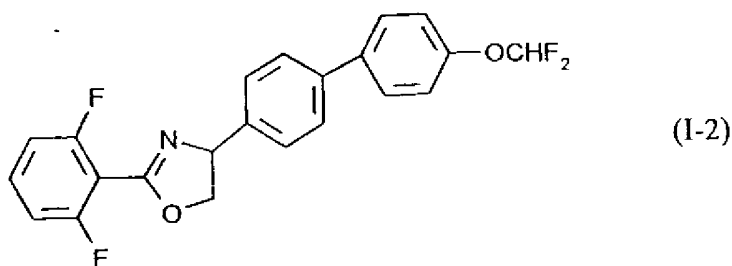
製備實施例實施例(I-1)

將6.1g(0.012mol)的實施例(XVII-1)化合物懸浮於50ml乾燥乙醇中，不需冷卻滴加入6.4g(0.048mol)的30%濃氫氧化鈉溶液，在滴加過程中溫度上升到27°C。加熱混合物，使其沸騰20分鐘然後冷卻。過濾混合物，用水沖洗濾液並乾燥。

產率：4.8g白色結晶(理論值的84%)

## 五、發明說明 ( 62 )

M.p. : 101-103°C

實施例 (I-2)

將17.6g (0.042mol)的實施例(XIY-1)的2, 6-二氟-N-[2-羥乙基-1-苯基-4-(4'-二氟甲氧基)]-苯甲醯胺懸浮於150ml甲苯中，滴加入20g (0.168莫耳)的硫磺氣，並將混合物加熱到70°C。將混合物保持在此溫度下1.5小時，然後使之冷卻，真空蒸發掉甲苯。將剩餘物溶解在150ml甲醇中。然後加入22.4g (0.168莫耳)的30%濃氫氧化鈉，並將混合物在70°C下加熱20分鐘。冷卻後，濃縮混合物，用二氯甲烷吸收產物，並用水沖洗混合物三次。乾燥並濃縮得到14.9g黃色結晶，將其用矽膠充分純化(石油醚/乙酸乙酯1:1)。獲得13.0g的白色結晶m.p.112°C。

產率：理論值的82%。

類似於實施例I-1或I-2，並根據一般的製備方法得到下述的式(I)化合物

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線



## 五、發明說明 (63)

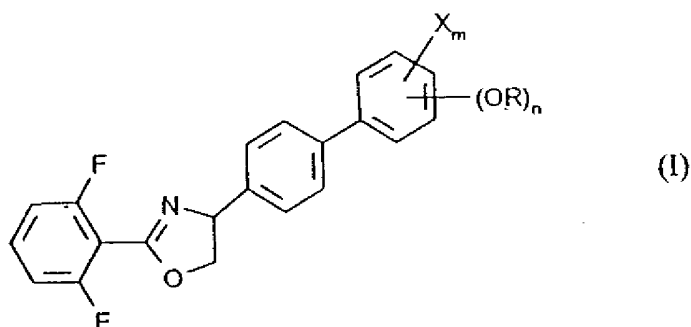
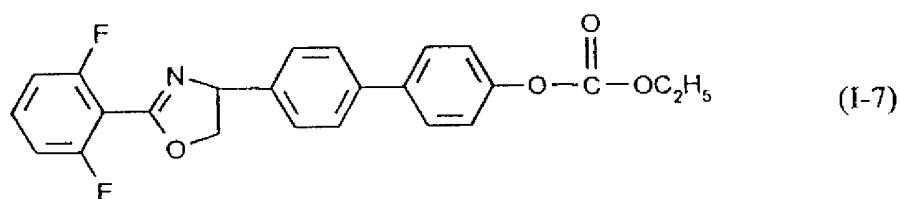


表 1a (n=1, m=0)

實施例號	OR	M.p. [°C]	產 率 (佔理論值的%)
I-3	4-OCF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> H	106	87
I-4	4-OCF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	86-90	64
I-5	4-OCF <sub>2</sub> Cl	115	90
I-6			

## 實施例 (I-7)

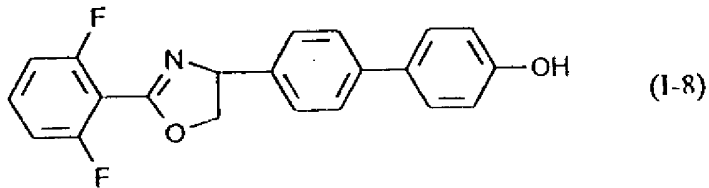


在5°C將4ml (0.045mol)的50%濃氫氧化鈉溶液滴加到在120ml二甲基甲醯胺中的19.8g (0.043莫耳)的實施例(XVII-3)化合物中，在室溫下2小時後，分批倒入500ml冰水中

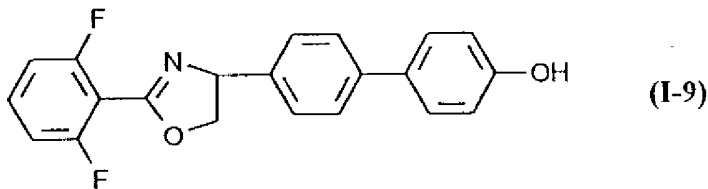
## 五、發明說明(64)

，並吸濾掉已沉澱的催化劑。

產率：15.1g (理論值的83%)，m.p.：98至100°C。

實施例(I-8)

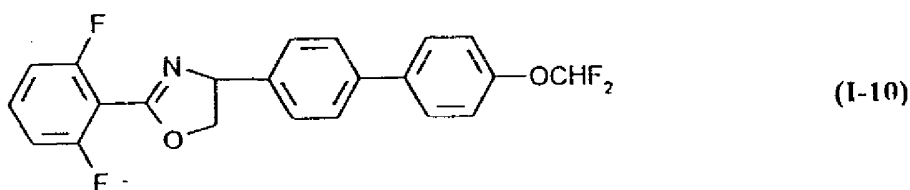
將10.9g (0.026mol)的實施例(I-7)化合物懸浮於50ml 甲醇中，然後在室溫下滴加35.4ml (0.52莫耳)的25%濃氨水溶液。在室溫下28小時後，抽吸過濾掉沉澱，並用少量甲醇沖洗。產率：7.6g (理論值的97.4%)，m.p. 180至182°C。

實施例(I-9)

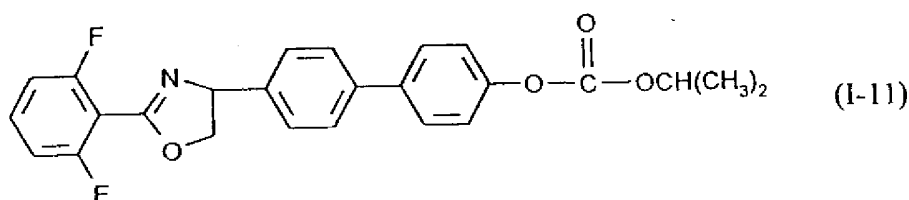
將在DMF中的9.6g實施例(XVII-3)化合物與如實施例(I-7)中所述的氫氧化鈉溶液反應，然後在5°C下，用稀鹽酸中和混合物。加入相應量的氨水溶液(參見實施例I-8)後，攪拌混合物15小時，將混合物導入冰水中並用抽洗過濾。產率7g (理論值的94.5%)。

實施例(I-10)

## 五、發明說明 ( 65 )



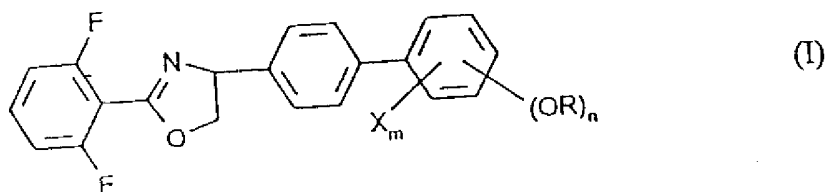
在40至50°C將二氯氣甲烷通入到1.2g (3.4mmol)實施例(I-8)的化合物和2.7g (50mmol) KOH在20ml異丙醇的溶液中冷卻混合物後，將其倒入100ml冰水中，並用每次50ml的二氯甲烷提取兩次，乾燥提取物，蒸發掉溶劑。應用石油醚/乙酸乙酯1/1作為洗脫劑，在矽膠上色譜分離後，得到0.8g (理論值的50%) 無色結晶，m.p. 112°C。

實施例(I-11)

將1.4ml (0.01ml)三乙胺加入到懸浮於20ml乙酸乙酯中的3.5g(0.01mol)實施例(I-8)化合物中，然後用15分鐘的時間滴加入1.2g (0.01mol)氯甲酸異丙酯，在此過程中反應混合物的溫度升至30°C。在室溫下攪拌混合物18小時，並用20ml水沖洗，乾燥有機相，濃縮後，用二氯甲烷作洗脫劑，在矽膠上對有機層進行色譜分離。產率2.1g (理論值的48%) m.p. 104°C。

## 五、發明說明(66)

類似地或遵從一般的製備方法獲得下述式(I)化合物：



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

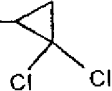


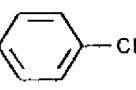
裝

訂

線

## 五、發明說明(67)

表 1b (m=0, n=1)

實施例號	OR	M.p. [°C]
I-12	$4-\text{OC}(=\text{O})-\text{C}(\text{CH}_3)_3$	118-20
I-13	$4-\text{OC}(=\text{O})-\text{CH}_3$	140-44
I-14*	4-O-nC <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	102
I-15	4-O-CH <sub>2</sub> -C≡CH	128-30
I-16*	4-OCH <sub>3</sub>	124
I-17	4-OCH <sub>2</sub> -CH=CH-CH <sub>2</sub> -C(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	油
I-18	4-OCH <sub>2</sub> CH=CH-CH <sub>3</sub>	126-128
I-19	4-O-CH <sub>2</sub> - 	110-112
I-20	4-O-CH <sub>2</sub> - 	129-130
I-21	4-O-CH <sub>2</sub> - 	143-145
I-22	4-O-CH <sub>2</sub> - 	195-197

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)


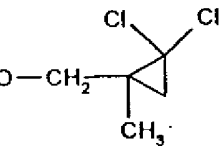


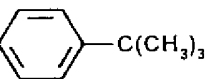

裝

訂

線

## 五、發明說明(68)

表 1b-續

實施例號	OR	Fp. [°C]
I-23	$4-O-(CH_2)_2-$ 	78 - 80
I-24	$4-O-CH_2-$ 	log P: 5,23
I-25	$4-O-CH_2-$ 	142
I-26	$4-O-(CH_2)_3-$ 	140 - 142
I-27	$4-O-CH_2-$ 	138 - 140
I-28	$4-O-(CH_2)_3-C\equiv CH$	105 - 108
I-29*	$4-O-nC_3H_7$	138 - 140
I-30*	$4-O-CH(CH_3)CH_2CH_3$	50
I-31	$4-O-CH_2-CH=CH_2$	130
I-32*	$4-O-CH_2-CH$ 	115

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

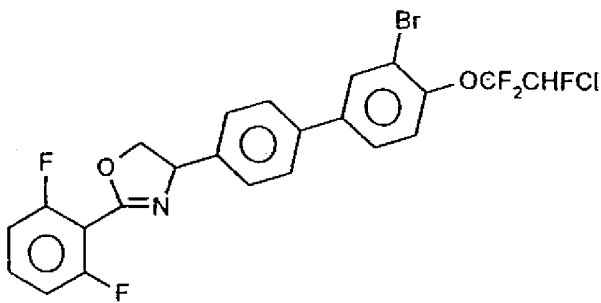
訂

線

## 五、發明說明(69)

實施例號	OR	Fp. [°C]
I-33*		123
I-34		100-110
I-35		68
I-36		140-45

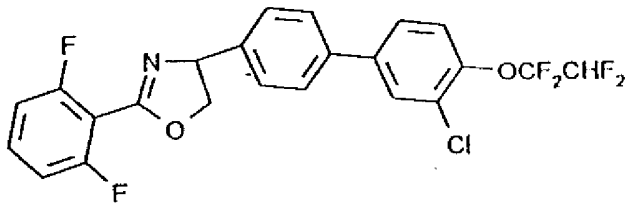
\* 應用實施例I-8化合物的實施例

實施例I-37

$$n_D^{20} = 1.585$$

## 五、發明說明(70)

## 實施例 I-38



m.p. 78-81°C

表 1b-續

實施例號	OR	m.p. [°C]
I-39	4-OCH <sub>2</sub> -C(CH <sub>3</sub> )=CH <sub>2</sub>	135-138
I-40	 異構體的混合物	90-95
I-41		152-154
I-42		138-140

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

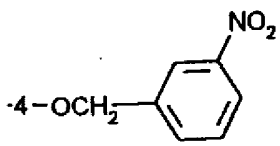
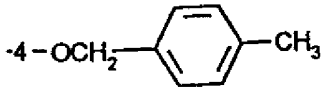
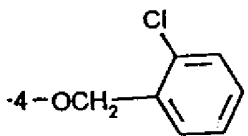
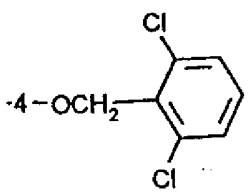
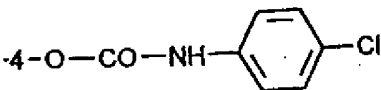
裝

訂

線



## 五、發明說明(71)

表 1b-續		
實施例號	OR	m.p. [°C]
I-43		132-134
I-44		126-130
I-45		130-132
I-46		92-95
I-47		180-190
I-48	4-O-CO-NH-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	120-125

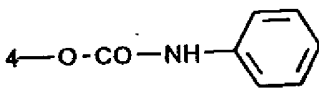
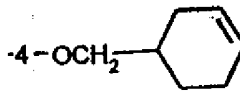

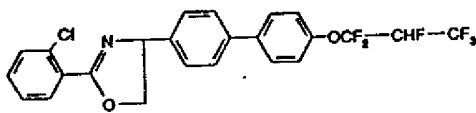
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明(72)

表 1b-續		
實施例號	OR	m.p. [°C]
I-49		168-171
I-50		118-120
I-51		178-180
I-52		75 - 76° C

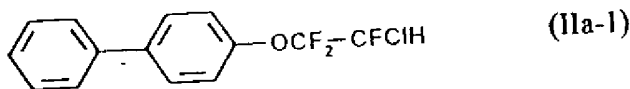
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

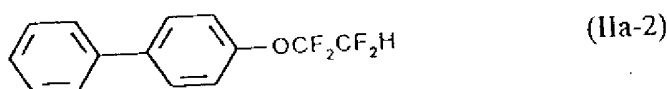
訂

線

## 五、發明說明 ( 73 )

起始化合物的製備實施例 ( II - 1 )

將250g 4-羥基聯二苯的1000ml丙酮液和50g粉狀的氫氧化鈉加入反應容器的底部裝有進氣管的攪拌設備中，並將反應混合物加熱至沸騰。隨後通入三氟氯乙烯直到混合物飽和。混合物冷卻到室溫後，計量加入2000ml水，除去分離的有機相。乾燥後，蒸餾產物，沸點範圍：170-174°C / 20mbar。產率：295g。

實施例 ( II a - 2 )

將250g 4-羥基聯二苯，1000ml N-甲基吡咯烷酮和50g氫氧化鈉粉末導入裝有進氣管的攪拌設備中，並把混合物加熱至130°C。然後通入四氟乙烯直到沒有四氟乙烯被吸收。產物冷卻到室溫後，在3000ml水中攪拌，抽吸過濾掉固體，用水沖洗並在真空乾燥。

獲得391g 4-氟乙氧基-聯二苯 = 理論產率的98%；熔點65°C。

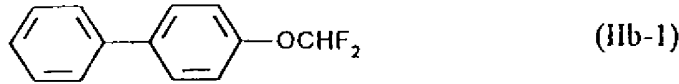
實施例 ( II a - 3 )

類似地，250g 4-羥基聯二苯與六氟丙烷反應，得到4-六氟丙氧基-聯二苯。

產率：180g；沸點：96-98°C / 0.3 mbar，熔點：60°C。

五、發明說明 ( 74 )

實施例 ( II b-1 )

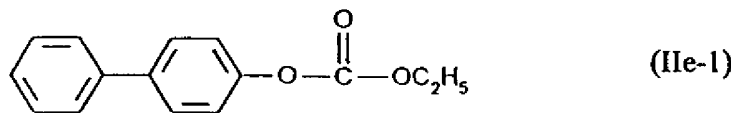


將51.1g (0.3mol)的4-羥基聯二苯溶於250ml二噁烷中，並加入38.3ml，45%的濃氫氧化鈉溶液。將混合物加熱到60°C，在此溫度下，隨後通入100g (1.15mol)的二氯氣甲烷。冷卻後，加入75ml水，抽吸過濾掉不溶沉澱，用第三丁基甲基醚提取水相三次。將合併有機相乾燥並濃縮。得到55.9g的粗產物；產物中還含有20.9%的起始物苯酚，用氫氧化鈉除去苯酚。

產率：40g (理論值的60%)

熔點：35°C

實施例 ( II e-1 )



在10°C，用15分鐘，將22g (0.2mol)氯甲酸乙酯滴加入34g (0.2mol)的4-羥基聯二苯和28ml三乙胺的200ml乙酸乙酯溶液。在室溫下持續攪拌30分鐘，抽吸過濾掉沉澱，用200ml水沖洗液體相，乾燥並真空濃縮。剩餘物用50ml二異丙醚吸收，抽吸過濾掉催化劑。產率47.5g (理論值的98.5%)，m.p. 70°C。

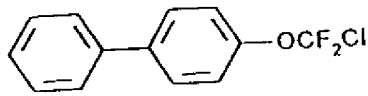
實施例 ( II d-1 )

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

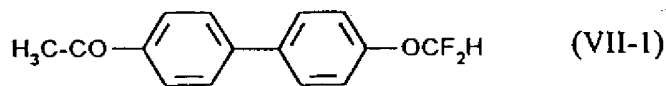
## 五、發明說明 ( 75 )



(II d-1)

將800ml苯，40g鐵粉和350g 4-二氟甲氧苯胺導入反應容器中，在30-38°C，用5小時，將1000g三氯乙酸的1600ml苯溶液滴加入反應容器。同時，按份加入210g亞硝酸鈉（每15分鐘12g）。反應稍微放熱，在加入過程中有氣體放出。加入結束時，在室溫下大約連續攪拌20小時。隨時將混合物加熱至回流溫度（75-76°C），伴隨氣體放出，繼續攪拌直到氣體放出結束（大約4小時）。冷卻反應物，加入2.4升，5%濃鹽酸，並首先蒸餾掉苯直到內部溫度達到100°C，接著蒸餾水蒸氣。分離有機相（液體），用水沖洗，乾燥並蒸餾。

產率：109g，熔點55°C。沸點：135-140°C/26巴。

實施例(VII-1)

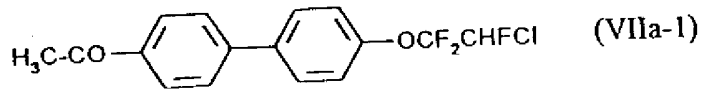
(VII-1)

將5.3g (0.025mol)的4-乙酰基-4'-羥基聯二苯導入35ml甲苯中。在60°C下向此懸浮液中加入6.7g (0.075mol)的45%濃氫氧化鈉溶液。隨後加入0.42g (0.00125mol)的溴化四丁基鎂，在95°C至100°C，用2小時通入20g (0.23mol)的二氟氯甲烷。冷卻混合物，用水稀釋並過濾(0.4g)。分離掉甲苯相，用甲苯提取水相二次。用水沖洗合併的甲苯相，乾燥並濃縮。得到5.9g (理論值的83%)米色結晶，熔點：79-81°C。

440429

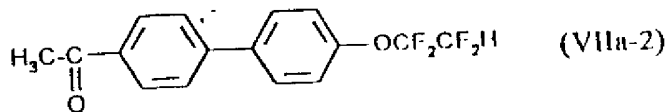
A7  
B7

## 五、發明說明 (76)

實施例 (VIIa-1)

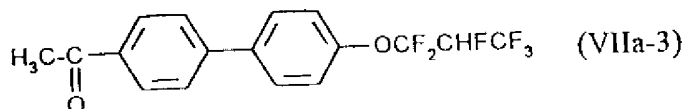
在40°C下，將三氟氯乙烯通入到50g 4-乙醯基-4'-羥基聯二苯，400ml乙腈，60ml水和10g氫氧化鉀的混合物中，直到飽和。然後除去乙腈，且剩餘物用100ml水攪拌。抽吸過濾掉固體產物並乾燥。隨後用20ml熱環己烷攪拌粗產物並過濾。

產量：45g。M.p.：92-94°C。

實施例 (VIIa-2)

類似於實施例 (VIIa-1)，使96g 4-乙醯基-4'-羥基聯二苯和四氯乙烯反應得到107g粗產物，將產物溶於甲基第三丁基醚中，並用300ml，5%濃氫氧化鈉溶液提取，濃縮醚相。

產量：58g，M.p.：95-97°C。

實施例 (VIIa-3)

類似於實施例 (VIIa-1)，用50g 4-乙醯基-4'-羥基聯二苯和六氟丙烷得到50g產物。M.p.：86-87°C。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

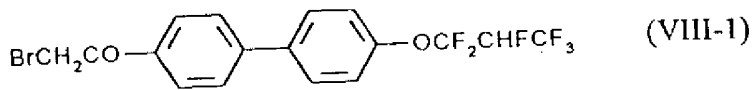
裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 77 )

## 實施例 (VII-1)



將29g (0.08mol)的實施例(VIIa-3)的4-六氟丙氧苯基苯乙酮懸浮於200ml甲醇中，在0°C滴加入13.4g (0.084mol)的溴。連續攪拌12小時，濃縮混合物。得到41.3g棕色結晶。用二氯甲烷作為洗脫液，將其於砂膠上純化。產率：24.6g (理論值的71%)的黃色結晶，m.p. 69-71°C。

類似的並根據一般的製備方法獲得下述的式(VII)化合物

:

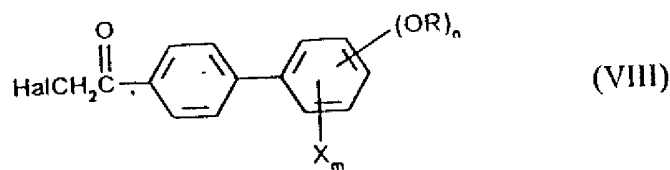
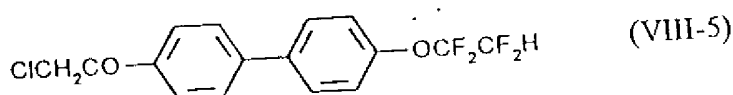


表 2 (m=0, n=1)

實施例號	OR	Hal	M.p. [°C]	產率 (佔理論值的%)
VIII-2	4-OCHF <sub>2</sub>	Br	83-85	62
VIII-3	4-OCF <sub>2</sub> CHFCI	Br	72-74	63
VIII-4	4-OCF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> H	Br	56-61°C	85

## 實施例 (VII-5)

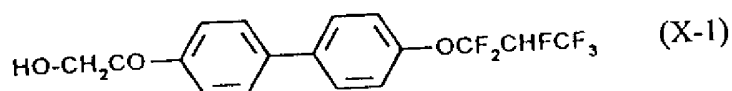


將7g (0.0525mol)氯化鋁懸浮於50ml 1, 2-二氯乙烷中

## 五、發明說明(78)

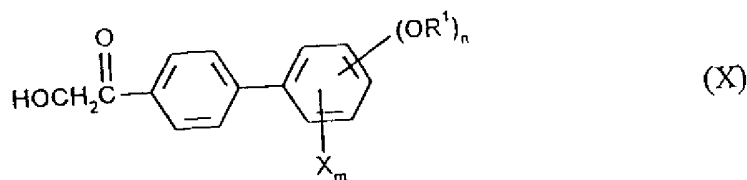
。然後在5至10°C滴加入5.9g (0.0525mol) 氯乙醯氯。將13.5g (0.05mol) 4-四氯乙氧基聯二苯，溶於10ml二氯乙烷中，然後在-10°C進行滴加。再將混合物保持在-10°C一小時，並在室溫下連續攪拌12小時。將反應混合物倒入150ml冰水中，加入乙酸乙酯，並分離掉有機相。有機相用碳酸氫鹽溶液沖洗，然後用水沖洗兩次，乾燥並濃縮。粗產物用矽膠純化(二氯甲烷為洗脫液)。得到14.7g淺米色結晶(理論產率的85%)。熔點74°C。

## 實施例(X-1)



將24.3g (0.055mol)的實施例(VII-1)的溴化酮導入145ml乙醇/水中。將22.5g (0.33mol)甲酸鈉加入到懸浮液中，然後將混合物加熱至沸騰12小時。蒸發掉一部分乙醇，並過濾混合物。用水沖洗和過濾後，乾燥產物。得到20.7g(理論值的93%)結晶。m.p. 135°C。

類似地並根據常規的製備方法得到下述式(X)化合物：



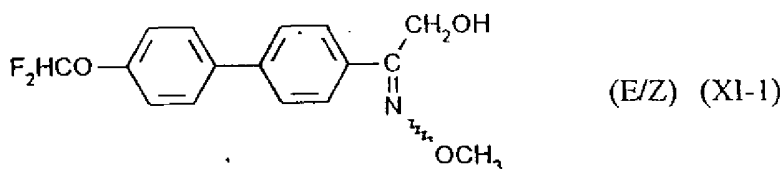


## 五、發明說明(79)

表 3 (m=0, n=1)

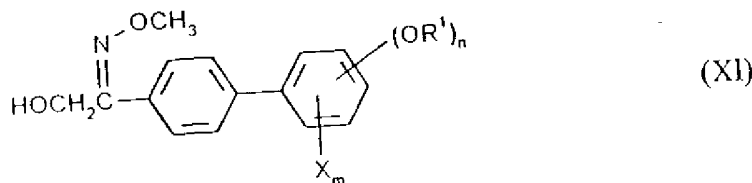
實施例號	OR	M.p. [°C]	產率 (佔理論值的%)
X-2	4-OCHF <sub>2</sub>	115-118	91
X-3	4-OCF <sub>2</sub> CHFCI	160	97
X-4	4-OCF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> H	155-160	90

## 實施例(XI-1)



將5g (0.018mol)實施例(X-2)的4-二氟甲氧苯基- $\omega$ -羥基苯乙酮溶於50ml的1, 2-二甲氧乙烷中，並加入5ml水。隨後加入1.85g (0.025mol)乙酸鈉和1.9g (0.0225mol) 0-甲基羥基胺鹽酸鹽，並在室溫下攪拌混合物過夜。將反應混合物倒入180ml冰水中並通過抽吸過濾，用水沖洗產物並乾燥。由此得到5.4g淺米色結晶，m.p. 65-81°C (E/Z混合物：43/57)。

類似地並根據常規的製備方法得到下述式(XI)化合物：



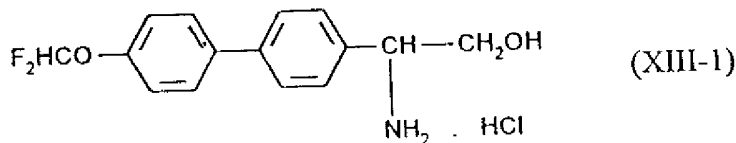
## 五、發明說明(80)

表 4 (m=0, n=1)

實施例號	OR	M.p. [°C]	產 率 (佔理論值的%)
XI-2	4-OCF <sub>2</sub> CHFCI	*)	89
XI-3	4-OCF <sub>2</sub> CHF <sub>2</sub>	*)	83
XI-4	4-OCF <sub>2</sub> CHFCF <sub>3</sub>	*)	82

\*)由於所得E/Z混合物的熔點範圍非常寬，則熔點不是特徵值。

## 實施例(XIII-1)



將9.2g (0.2425mol)的硼酸鈉導入250ml無水THF中，然後在20°C，用10分鐘滴加入27.6g (0.2425mol)三氟乙酸的25ml THF溶液。將14.9g (0.0485mol)實施例(XI-1)的脞醚，溶於25ml THF，隨後在15°C用15分鐘，將其滴加入霧狀，無色的反應混合物中。在室溫下攪拌混合物2小時，並在沸點連續攪拌2小時。冷卻後，在大約10°C，小心地加入150ml水，並在室溫下連續攪拌12小時。過濾混合物，濃縮濾液。用2N HCl攪拌後，抽吸過濾掉白色結晶，用二氯甲烷沖洗並乾燥。

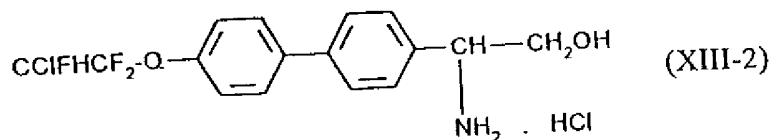
得到13g白色結晶，m.p. 180°C (分解)。

產率：理論值的82%。

## 五、發明說明 ( 81 )

實施例(XIII-2)

類似於實施例(XIII-1)獲得式(XIII-2)的化合物

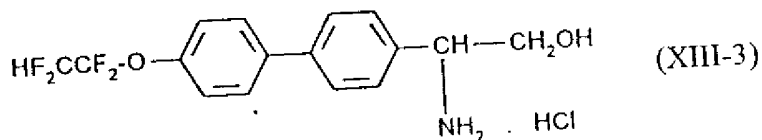


m. p. 197°C。

產率：理論值的91%。

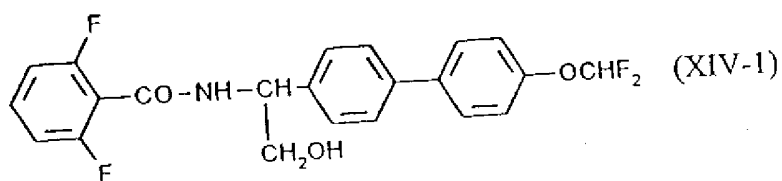
實施例(XIII-3)

類似於實施例(XIII-1)獲得式(XIII-3)的化合物



m. p. 250°C。

產率：理論值的53%。

實施例(XIV-1)

將1.52g (0.0086mol)的2, 6-二氟苯甲醯氯滴加入 (在10至20°C) 2.5g (0.0086mol)的實施例(XIII-1)的2-胺基-2-苯基-(4-二氟甲氧苯基)-乙醇和0.9g (0.009mol)的三乙基胺的50ml THF混合物中。隨後將混合物攪拌3小時並濃縮，產物用二氯甲烷吸收，混合物用水沖洗三次，乾

## 五、發明說明(82)

燥並濃縮。

得到3.3g淺米色結晶，m.p. 146°C。

產率：理論值的83.5%。

類似地並根據常規的製備方法得到下述的式(XIV)化合物：

物：

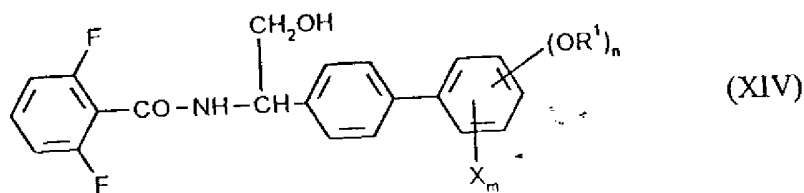
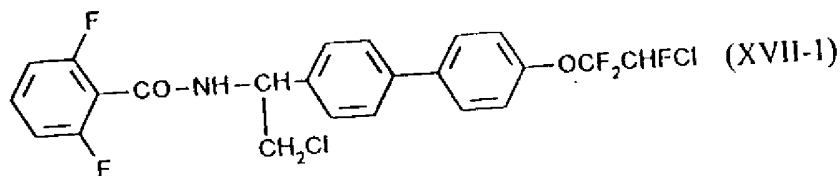


表 5 (m=0, n=1)

實施例號	OR	M.p. [°C]	產率 (佔理論值的%)
XIV-2	4-OCF <sub>2</sub> CHFCI	194-195	54
XIV-3	4-OCF <sub>2</sub> CHFCF <sub>3</sub>	142-145	73
XIV-4	4-OCF <sub>2</sub> CF <sub>2</sub> H	184-186	81

實施例(XVII-1)



將10.6g (0.022mol)的實施例(XIV-2)的羥基乙基醯胺懸浮於100ml乾燥甲苯中。不需要冷卻，滴加入10.5g (0.088mol)的硫醯氯，形成清澈的黃色溶液。將溶液加熱

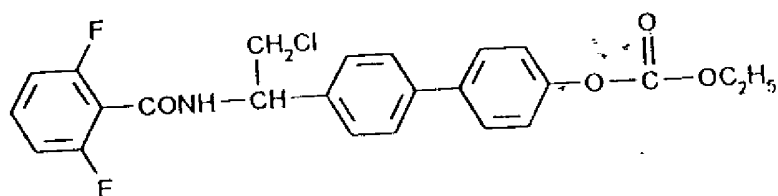
## 五、發明說明 ( 83 )

至70°C，並在此溫度下保持2小時。冷卻到0°C後，過濾混合物，並用少量的甲苯沖洗產物並乾燥。

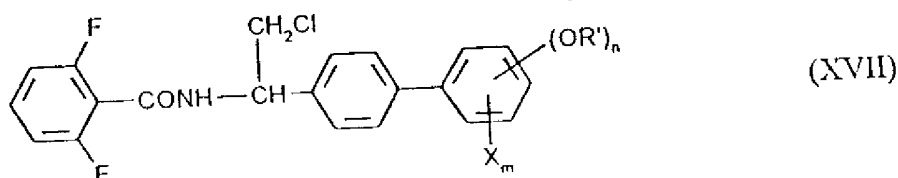
由此得到8.8g (理論值的79%) 白色結晶，  
m.p. 190-192°C。

實施例 (XVII-2)

類似於實施例XVII-1得到下式的白色結晶



m.p. 161-164°C (理論值的83%)。

實施例 (XVII-3)

在5°C，用30分鐘的時間將130.4g (0.98mol)的氯化鋁按份加入到53g (0.213mol)的2-(2,6-二氟苯甲醯氨基)-2-甲氧-1-氯乙烷，48.4g (0.2mol)的4-乙氧羰基氧聯二苯和12ml冰醋酸的200ml二氯甲烷溶液的混合物中。在此過程中，反應物的顏色從藍變成紅紫色。將反應混合物在5°C攪拌1小時並在10°C攪拌1小時，並小心地倒入冰中，從水中小心地傾析懸浮液並在旋轉蒸發器中濃縮，剩餘物用50ml乙腈處理，抽吸過濾掉已沉澱的結晶，產率

440429

五、發明說明(84)

42.8g (理論值的47%), m.p. 209°C。

類似地並根據製備的常規方法，獲得下述式(XVII)化合物

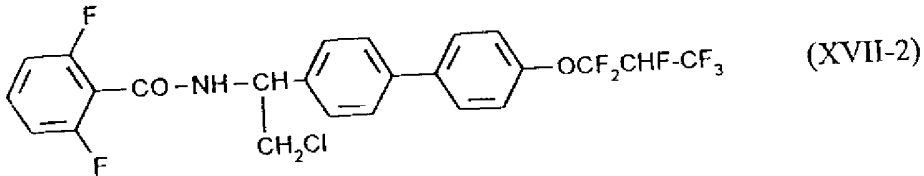
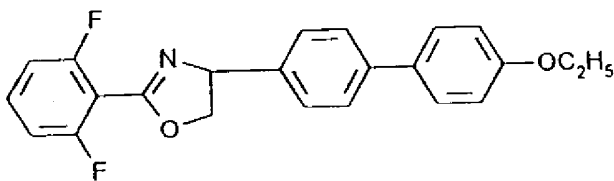


表 6 : (m=0, n=1)

實施例號	OR'	M.p. [°C]
(XVII-4)	$4-\text{OC}-\text{C}(\text{CH}_3)_3$	125-130
(XVII-5)	$4-\text{OC}-\text{CH}_3$	225-130

應用實施例(I-8)化合物的實施例



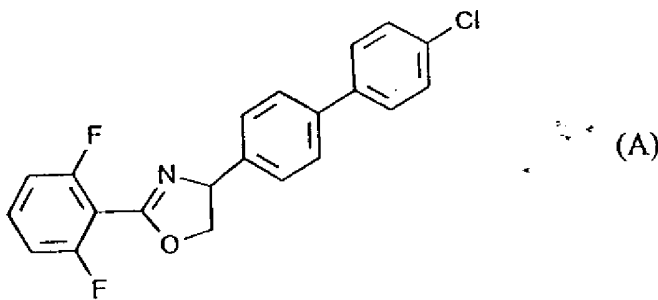
在EP-0 432 661中的實施例142

首先將0.22ml (0.005mol)的45% NaOH溶液，然後在0°C，將0.5g (0.005mol)乙基溴化物滴加入1.75g實施例(I-8)化合物的10ml二甲基甲醯胺溶液中。在室溫下攪拌混合物2小時，並將混合物倒入50ml冰水中，抽吸過濾掉結晶，用乙酸乙酯提取濾液，乾燥乙酸乙酯相並在真空濃縮。合

## 五、發明說明(85)

併結晶，用20ml二異丙基酯攪拌並用抽吸過濾。產率1.1g  
(理論值的58%) m.p. 148至150°C。

在下述應用實施例中，從EP-A-0 432661中已知的式(A)  
化合物用作對比物

應用實施例實施例 A

## 菜蛾試驗

溶劑：7 重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1 重量份的活性化合物與預定量的溶劑和預定量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物得到所需濃度。

通過在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用小菜蛾幼蟲(*Plutella maculipennis*)侵染。

一定時間後，測定殺傷率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如用製備實施例(I-2)的化合物，在典

## 五、發明說明 ( 86 )

型的0.01%的活性化合物濃度下，三天後，殺傷率達100%，且用製備實施例I-11的化合物在典型的0.1%的活性化合物濃度下，七天後，殺傷率達100%。

實施例 B

## 粘蟲試驗

溶劑：7 重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1 重量份的活性化合物與預定量的溶劑和預定量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物得到所需濃度。

通過在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用草地粘蟲(*Spodoptera frugiperda*)幼蟲侵染。

一定時間後，測定殺傷率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如用製備實施例(I-11)的化合物，在典型的0.1%的活性化合物濃度下，七天後，殺傷率達100%。

實施例 C

紅葉蚜試驗 (有機磷抗性 / 噴霧處理)

溶劑：3 重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1 重量份的活性化合物與預定量的溶劑和預定量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物得到所需濃度。



## 五、發明說明(87)

對已被各種發育階段的棉紅蜘蛛(*Tetranychus urticae*)嚴重侵染的大豆(*Phaseolus vulgaris*)植株，用所需濃度的活性化合物製備物噴霧。

一定時間後，測定殺傷率%。100%意為所有的幼蟲已被殺死；0%意為沒有幼蟲被殺死。

在本實驗中，例如用製備實施例(1-2)的化合物，在典型的0.000032%活性化合物濃度下，七天後，殺傷率達95%，同時已知的化合物(A)僅得到80%的殺傷率。

實施例 D

多食性蟬幼蟲蛻皮試驗

供試動物：花蟬(*Amblyomma variegatum*)，已吸食飽的幼蟲階段

溶劑：35重量份的乙烯基乙二醇單甲基醚

乳化劑：35重量份的壬基酚聚乙二醇醚

為了生產適合的製劑，將3重量份的活性化合物與7份上述溶劑-乳化劑混合物混合，並用水稀釋所得乳油得到各種情況下所需濃度。

將已吸食飽的10只幼蟲，在供試活性化合物的製備物中浸沒1分鐘。將動物轉移到裝有濾紙片的培替代表面皿( $\phi 9.5\text{cm}$ )中並蓋上蓋。幼蟲在控制環境的室內放置5-6週後，測定蛻皮率。

100%意為所有的動物進行了正常蛻皮；0%意為沒有動物進行正常蛻皮。

在本試驗中，例如用製備實施例(1-2)的化合物，在典

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 88 )

型的1000ppm的活性化合物濃度下，蛻皮率為0%。

實施例 E

麗蠅幼蟲試驗 / 發育抑制作用

供試動物：麗蠅幼蟲

溶劑：35重量份的乙烯基乙二醇單甲基醚

乳化劑：35重量份的壬基酚聚乙二醇醚

爲了生產適合的製劑，將3重量份的活性化合物與7份上述溶劑—乳化劑混合物混合，並用水稀釋所得乳油得到各種情況下所需濃度。

大約20只麗蠅幼蟲被放入試驗管中，管中含有大約1cm<sup>3</sup>的馬肉和0.5ml供試活性化合物製劑。24和48小時後，測定活性化合物的製劑的效果。將試驗管轉移到底部鋪滿砂子的燒杯中。再過2天後，移去試驗管，數蛹。

活性化合物製備物的活性的評價是通過計算1.5倍發育期後出現的蠅數，和未處理對照的蠅數。100%意爲無麗蠅出現；0%意爲所有的蠅都正常出現。

在本試驗中，例如用製備實施例(1-2)的化合物，在典型的1000ppm的活性化合物濃度下，活性爲100%。

實施例 F

葉蟬試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與預定量的溶劑和預定量的乳化劑混合，用水稀

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

440429

五、發明說明(89)

釋濃縮物得到所需濃度。

水稻秧(*Oryza sativa*)在葉片仍潮濕時，用黑尾葉蟬(*Nephotettix cincticeps*)侵染。

一定時間後，測定殺傷率%。100%意為所有的黑尾葉蟬已被殺死；0%意為沒有黑尾葉蟬被殺死。

在本實驗中，例如用製備實施例I-7，I-8和I-11的化合物，在典型的0.1%的活性化合物濃度下，六天後，殺傷率至少90%。

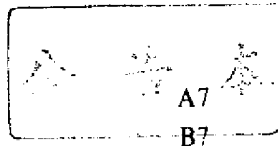
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

440429



86年12月1日 修正  
補充

五、發明說明(90)

專利申請案第84107008號  
ROC Patent Appln. No.84107008  
補充之試驗資料中文本 - 附件二  
Supplemental Test Data in Chinese - Encl.(II)  
(民國 86 年 12 月 1 日送呈)  
(Submitted on December 1, 1997)

實施例 A'

棉鈴蟲試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理黃豆芽(Glycine max)，在葉片仍然潮濕時，用煙草芽蟲幼蟲(棉鈴蟲)侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

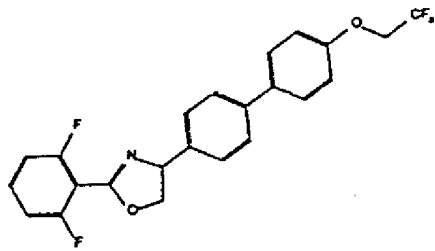
訂

五、發明說明(91)

**表 A**  
(植物傷害之昆蟲)  
棉鈴蟲試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
-------	-------------------	--------------------

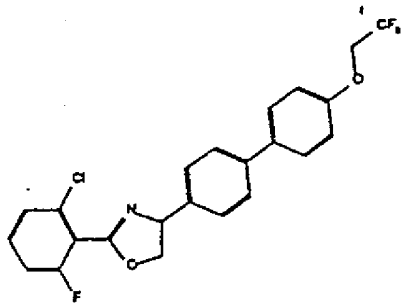
EP-A 0 645 085之實例177



0.000032

55

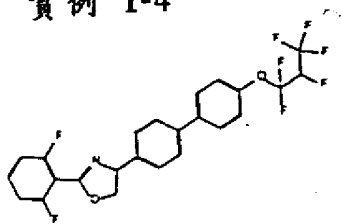
EP-A 0 645 085之實例178



0.000032

20

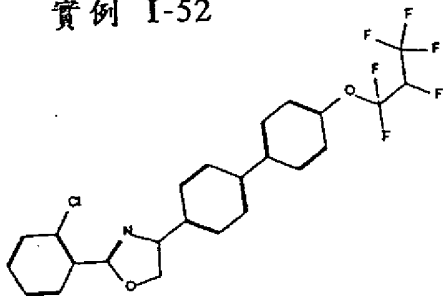
根據本發明  
實例 I-4



0.000032

100

根據本發明  
實例 I-52



0.000032

100

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

紙

## 五、發明說明(92)

### 實施例 B'

#### 美洲菸夜蛾試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理黃豆芽(Glycine max)，在葉片仍然潮濕時，用美洲菸夜蛾幼蟲侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

加

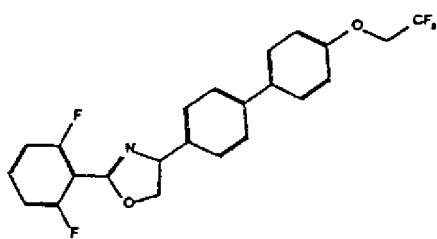
## 五、發明說明(93)

## 表 B (1/3)

(植物傷害之昆蟲)  
美洲菸夜蛾試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
-------	-------------------	--------------------

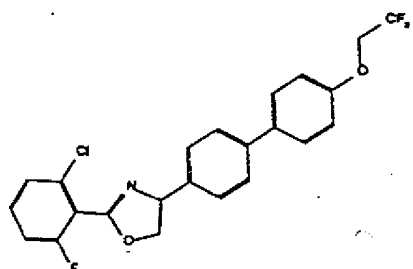
EP-A 0 645 085之實例177



0.00016

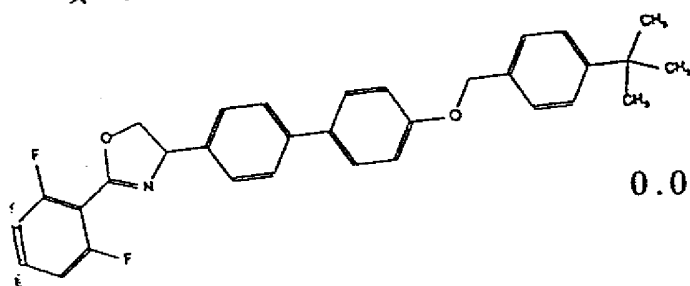
0

EP-A 0 645 085之實例178



0.00016

40

根據本發明  
實例 I-27

0.00016

100

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

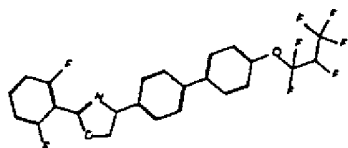
訂

五、發明說明(94)

**表 B (2/3)**  
(植物傷害之昆蟲)  
美洲菸夜蛾試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以%計	6天後之毀滅程度 以%計
-------	-----------------	-----------------

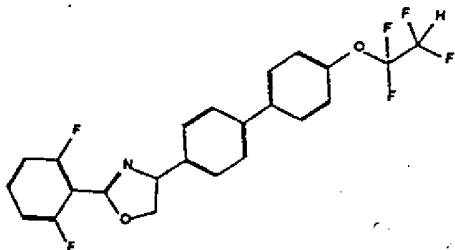
根據本發明  
實例 I-4



0.00016

100

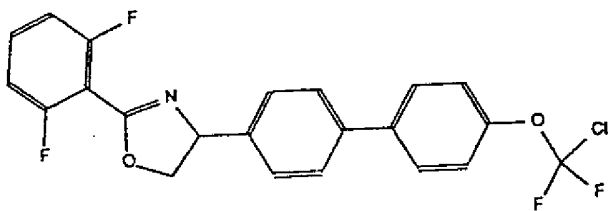
根據本發明  
實例 I-3



0.00016

100

根據本發明  
實例 I-5



0.00016

100

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂



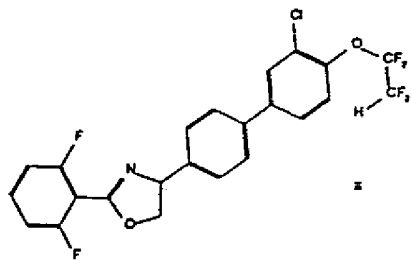
五、發明說明 (95)

表 B (3/3)

(植物傷害之昆蟲)  
美洲菸夜蛾試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
-------	-------------------	--------------------

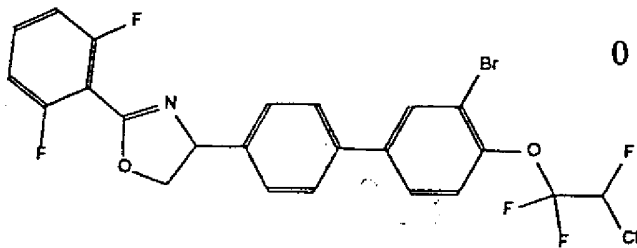
根據本發明  
實例 I-38



0.00016

90

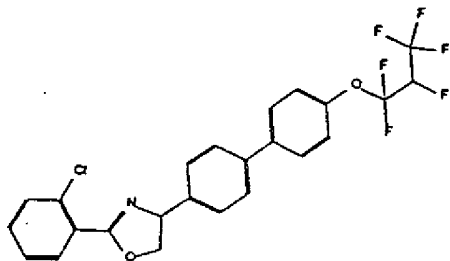
根據本發明  
實例 I-37



0.00016

100

根據本發明  
實例 I-52



0.00016

90

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

紙

## 五、發明說明(96)

實施例 C'

## 蚜蟲試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用蚜蟲(桃蚜)侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

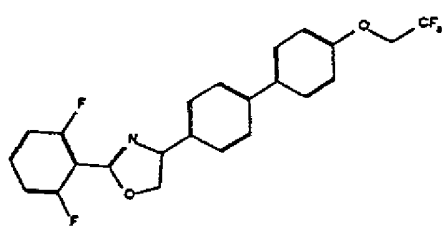
外

五、發明說明(97)

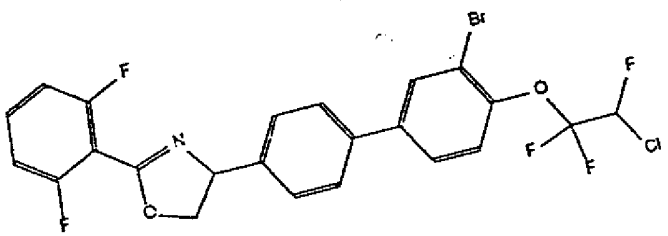
表 C

(植物傷害之昆蟲)

蚜蟲試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
EP-A 0 645 085之實例177		
	0.1	30

根據本發明  
實例 I-37

	0.1	99
---	-----	----

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(98)

### 實施例D'

#### 葉蟬試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理幼稻(*Oryza sativa*)，在葉片仍然潮濕時，用緣稻葉蟬(黑尾葉蟬)侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

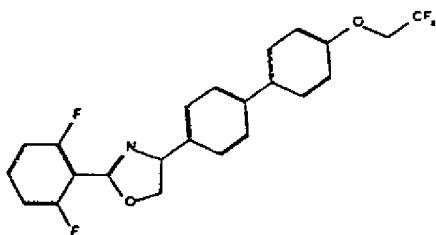
## 五、發明說明(99)

## 表 D (1/2)

(植物傷害之昆蟲)  
葉蟬試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
-------	-------------------	--------------------

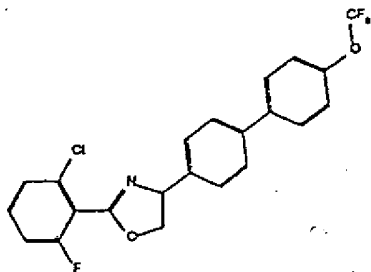
EP-A 0 645 085之實例177



0.1

0

EP-A 0 432 661之實例199



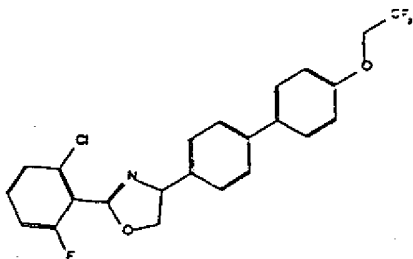
0.01

65

0.001

0

EP-A 0 645 085之實例178



0.1

0

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

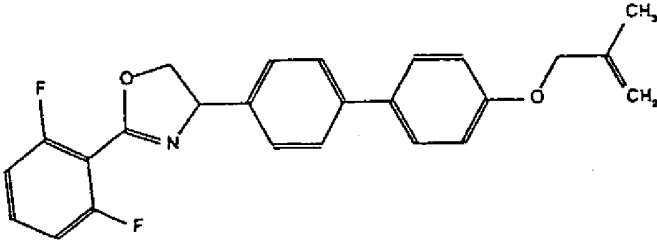
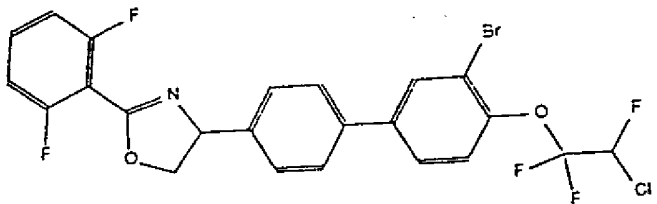
訂

五、發明說明 (100)

表 D (2/2)

(植物傷害之昆蟲)

葉蟬試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
根據本發明 實例 I-39		<p>0.1                    100</p> <p>0.001                80</p>
根據本發明 實例 I-37		<p>0.1                    100</p> <p>0.001                70</p>

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

## 五、發明說明(101)

實施例 E'

## 葉蟲幼蟲試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用芥菜甲蟲幼蟲(*Phaedon cochleariae*)侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

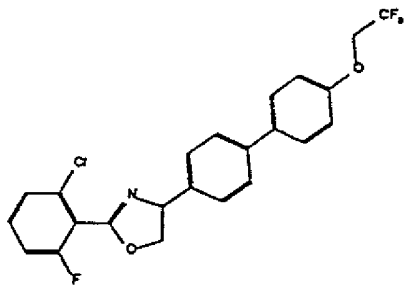
紙

五、發明說明 (102)

表 E (1/2)

(植物傷害之昆蟲)  
葉蟲幼蟲試驗

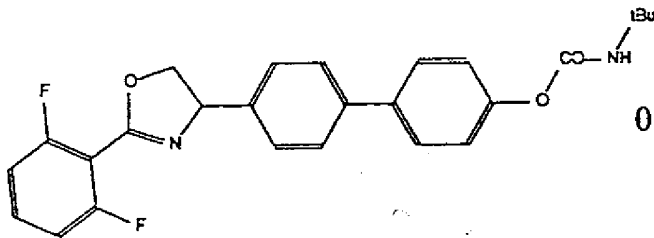
活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
EP-A 0 645 085之實例178		



0.0001

50

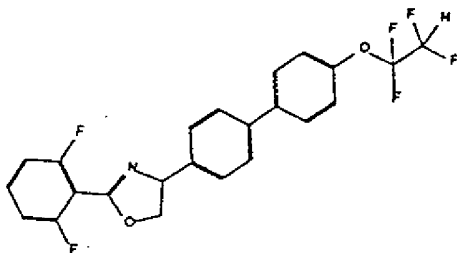
根據本發明  
實例 I-48



0.0001

90

根據本發明  
實例 I-3



0.0001

100

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

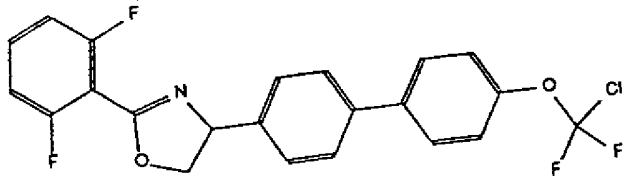


五、發明說明 (103)

**表 E (2/2)**  
(植物傷害之昆蟲)  
葉蟲幼蟲試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
-------	-------------------	--------------------

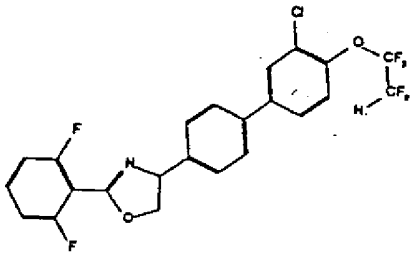
根據本發明  
實例 I-5



0.0001

90

根據本發明  
實例 I-38



0.0001

100

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

紙

## 五、發明說明(104)

實施例 F'

## 菜蛾試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用鑽-黑蛾(小菜蛾)幼蟲侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

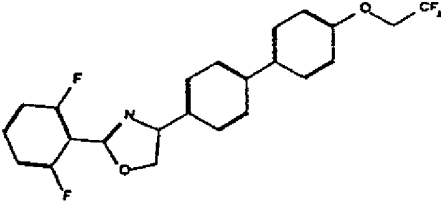
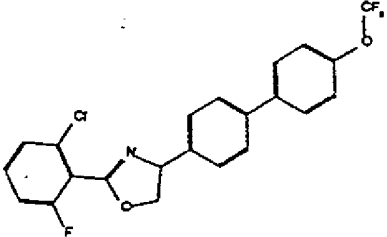
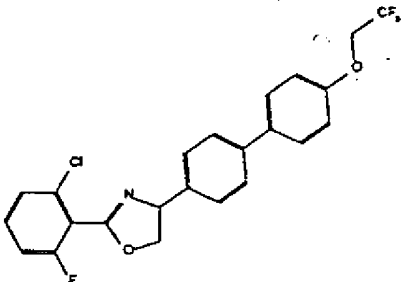
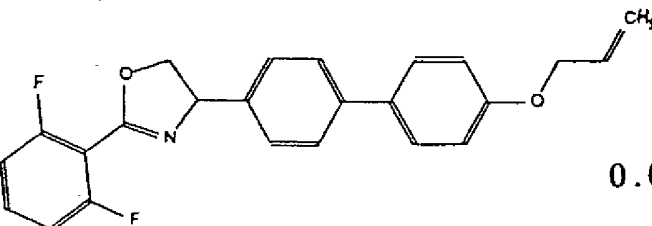
裝

訂

分

## 五、發明說明 (105)

**表 F (1/2)**  
(植物傷害之昆蟲)  
菜蛾試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
EP-A 0 645 085之實例177 	0.000032	0
EP-A 0 432 661之實例199 	0.00000128	55
EP-A 0 645 085之實例178 	0.0000064	20
根據本發明 實例 I-31 	0.000001	100

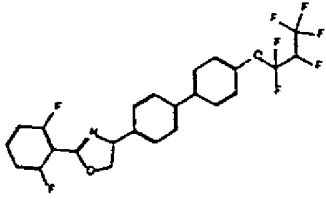
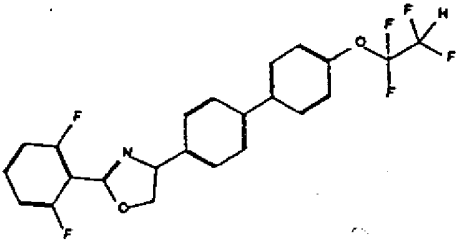
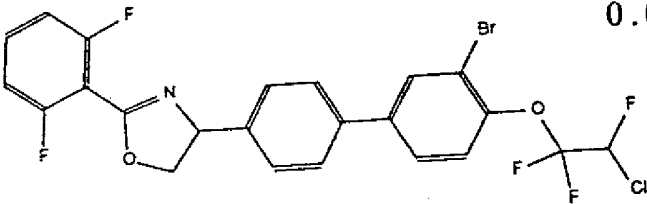
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (106)

**表 F (2/2)**  
(植物傷害之昆蟲)  
菜蛾試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
根據本發明 實例 I-4  	0.000001	100
根據本發明 實例 I-3  	0.000001	75
根據本發明 實例 I-37  	0.000001	90

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

紙

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(107)

實施例 G'

## 甜菜夜蛾試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用甜菜夜蛾幼蟲侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

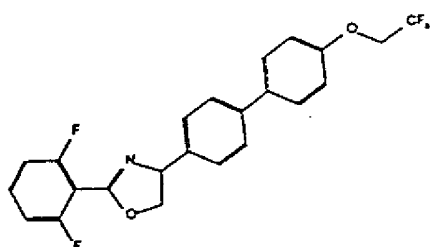
訂

外

五、發明說明(108)

**表 G (1/2)**  
(植物傷害之昆蟲)  
甜菜夜蛾試驗

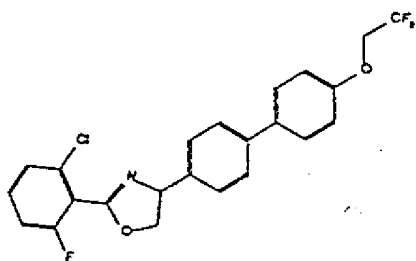
活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
EP-A 0 645 085之實例177		.



0.00000128

0

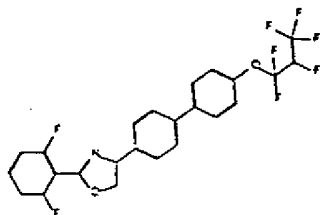
EP-A 0 645 085之實例178



0.00000128

0

根據本發明  
實例 I-4



0.00000128

90

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

外

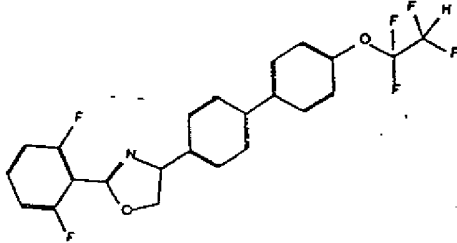
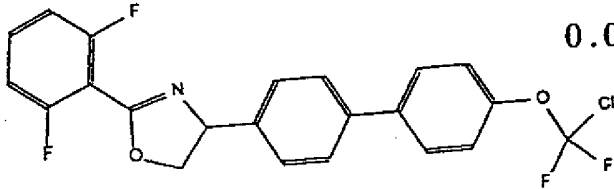
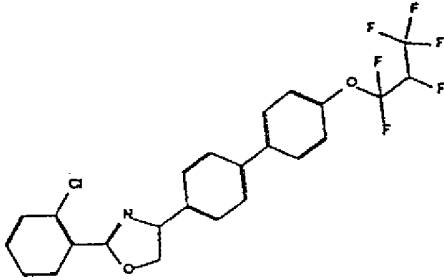
經濟部中央標準局員工消費合作社印製

五、發明說明(109)

表 G (2/2)

(植物傷害之昆蟲)

甜菜夜蛾試驗

活 性 化 合 物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
根據本發明 實例 I-3	0.00000128	90
		
根據本發明 實例 I-5	0.00000128	100
		
根據本發明 實例 I-52	0.00000128	100
		

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

加

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

## 五、發明說明(110)

實施例H'

## 草地粘蟲試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理甘藍葉(*Brassica oleracea*)，在葉片仍然潮濕時，用草地粘蟲幼蟲侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

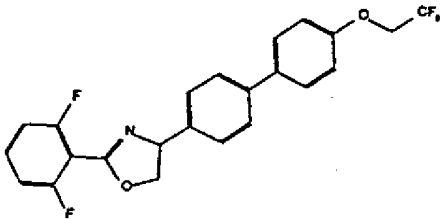
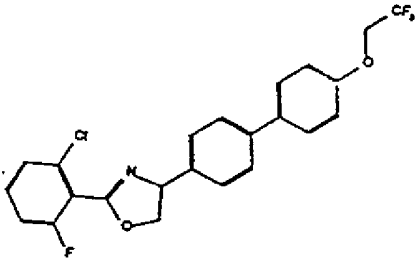
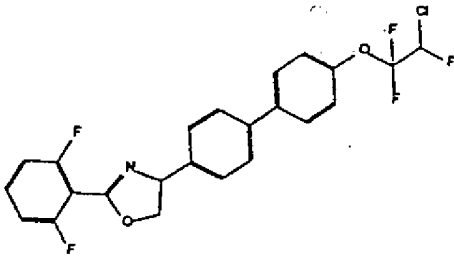
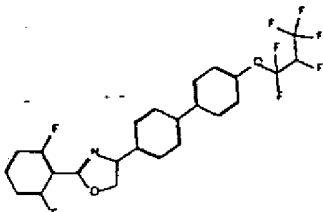
裝

訂



## 五、發明說明(III)

**表 H (1/3)**  
(植物傷害之昆蟲)  
草地粘蟲試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
EP-A 0 645 085之實例177 	0.00000128	0
EP-A 0 645 085之實例178 	0.00000128	0
根據本發明 實例 I-1 	0.00000128	95
根據本發明 實例 I-4 	0.00000128	100

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

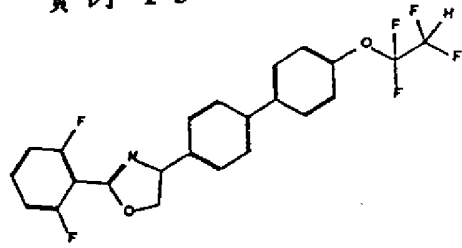
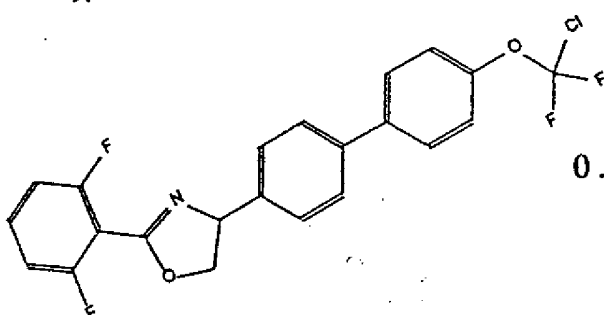
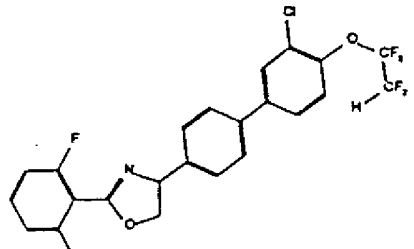
裝

訂

紙

五、發明說明(112)

**表 H (2/3)**  
(植物傷害之昆蟲)  
草地粘蟲試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
根據本發明 實例 I-3 	0.00000128	100
根據本發明 實例 I-5 	0.00000128	100
根據本發明 實例 I-38 	0.00000128	75

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

紙

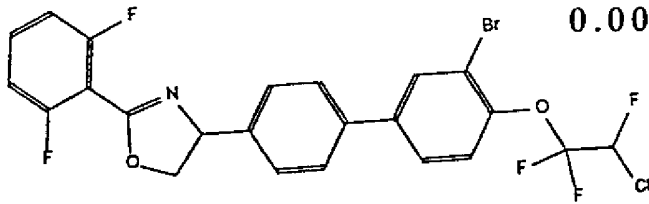
五、發明說明 (113)

表 H (3/3)

(植物傷害之昆蟲)  
草地粘蟲試驗

活性化合物	活性化合物濃度% 以 % 計	6 天後之毀滅程度 以 % 計
-------	-------------------	--------------------

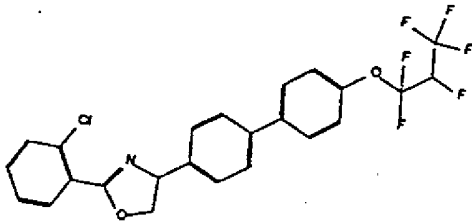
根據本發明  
實例 I-37



0.000001

100

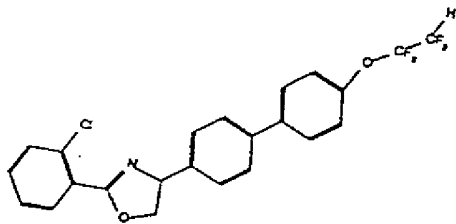
根據本發明  
實例 I-52



0.00000128

100

根據本發明



0.000001

100

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

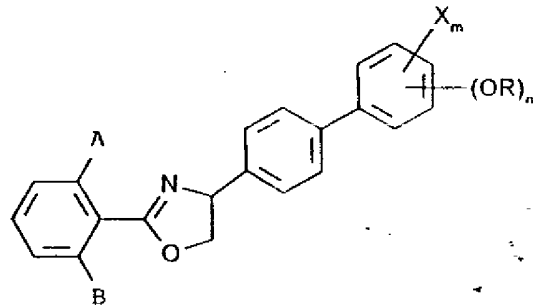
訂

紙

四、中文發明摘要 (發明之名稱:

經取代之聯苯基噁唑啉類

本發明涉及式(I)的新的取代聯苯基噁唑啉類，其製備方法，新的中間體以及應用取代聯苯基噁唑啉防治有害動物，其中A, B, R, X, m和n為說明書中給定的定義。

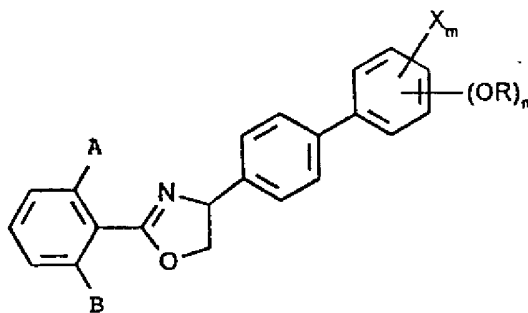


(I)

英文發明摘要 (發明之名稱: Substituted biphenyloxazolines )

The present invention relates to new substituted biphenyloxazolines of the formula

(I)



(I)

in which

A, B, R, X, m and n have the meanings stated in the description,

process for their preparation, new intermediates and the use of the substituted biphenyloxazolines for combating animal pests.

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

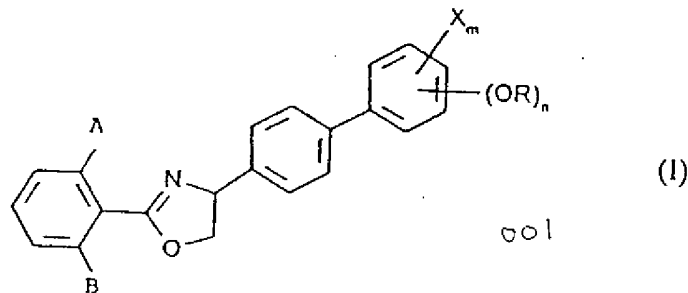
訂

線

## 六、申請專利範圍

專利申請案第 84107008 號  
 ROC Patent Appln. No.84107008  
 修正之申請專利範圍中文本 - 附件一  
 Amended Claims in Chinese - Encl.(I)  
 (民國89年12月13日送呈)  
 (Submitted on December 13, 2000)

## 1. 式(I)化合物



其中

A 代表氫或氟，

B 代表氟或氯，

R 代表 R<sup>1</sup> 或 R<sup>2</sup>，其中R<sup>1</sup> 代表具有至少一個氟原子和另外至少一個氫原子或氯原子的 C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鹵代烷基，R<sup>2</sup> 代表氫、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鏈烯基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鏈炔基，  
或代表可經鹵素或 C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基取代的 C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-環烷基  
C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，或代表 C<sub>6</sub>-環鏈烯基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，或代表各自可經鹵素、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或硝基取代的苯  
基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或萘基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，

## 六、申請專利範圍

或代表可經鹵素取代的吡啶基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，

或代表COR<sup>3</sup>基，

其中

R<sup>3</sup> 代表C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷氧基，

或代表NHR<sup>5</sup>基，

其中

R<sup>5</sup> 代表C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，或代表可經鹵素取代的  
苯基，

Y 代表鹵素，且

m 代表0或1，

n 代表1，

但是2-(2,6-二氟苯基)-4-[4'-(2,2,2-三氟乙氧基)聯  
苯基-4]-2-噁唑啉及2-(2-氟-6-氟苯基)-4-[4'-(2,2,2-  
三氟乙氧基)聯苯基-4]-2-噁唑啉除外。

2. 根據申請專利範圍第1項之式(I)化合物，其中

A 表氫或氟，

B 表氟或氯，

R 代表R<sup>1</sup>或R<sup>2</sup>，其中

R<sup>1</sup> 代表具有至少一個氟原子和另外至少一個氫原子或  
氯原子的C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-鹵代烷基，

R<sup>2</sup> 代表氫，C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-鏈烯基，C<sub>3</sub>-C<sub>5</sub>-鏈炔基，

或代表可被鹵素或C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基選擇取代的C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-環

## 六、申請專利範圍

烷基-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基，

或代表C<sub>6</sub>-環鏈烯基甲基，

或代表苯基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，萘基甲基，四氫萘基甲基或吡啶基-C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-烷基，它們各自可被相同或不同的鹵素選擇地單取代或二取代，

或代表COR<sup>3</sup>基，

R<sup>3</sup> 代表C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷氧基，

或代表NHR<sup>5</sup>基，

R<sup>5</sup> 代表C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基或可被相同或不同的取代基選擇地單取代或雙取代的苯基，取代基為氟、氯、溴，

X 代表氟，氯或溴，且

m 代表0或1，

n 代表1，

但是2-(2,6-二氟苯基)-4-[4'-(2,2,2-三氟乙氧基)聯苯基-4]-2-噁唑啉及2-(2-氟-6-氟苯基)-4-[4'-(2,2,2-三氟乙氧基)聯苯基-4]-2-噁唑啉除外。

3. 根據申請專利範圍第1項之式(I)化合物，其中

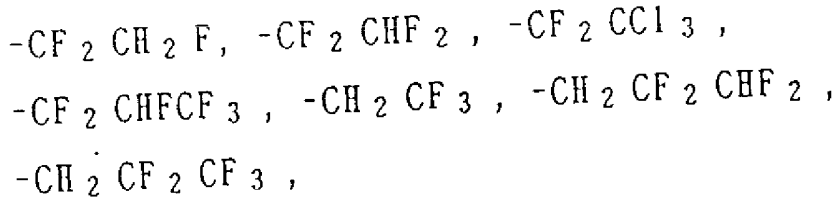
A 表氫或氟，

B 表氟或氯，

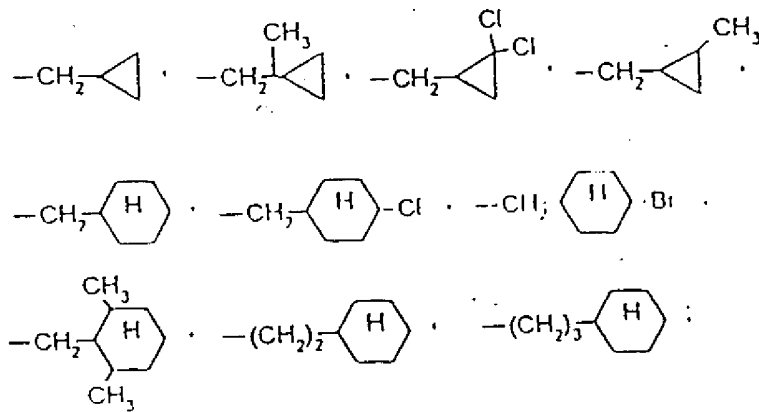
R 代表R<sup>1</sup>或R<sup>2</sup>，其中

R<sup>1</sup> 代表下述基團之一：-CHF<sub>2</sub>，-CClF<sub>2</sub>，-CF<sub>2</sub>CHFCl，

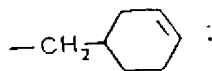
六、申請專利範圍



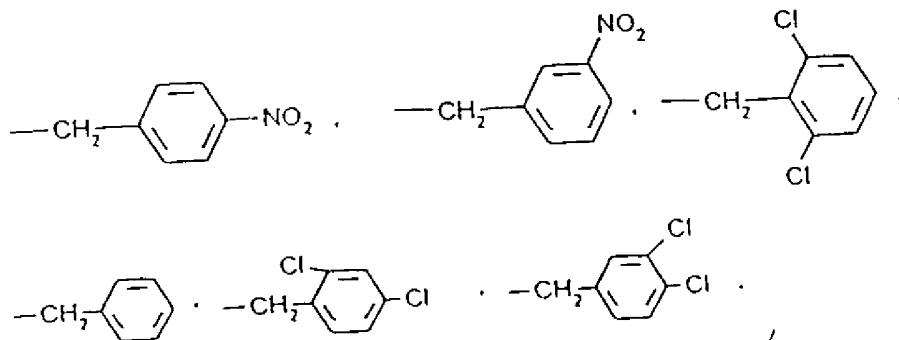
R<sup>2</sup> 代表氫，或代表丙烯基、丁烯基、戊烯基、己烯基、丙炔基、丁炔基、戊炔基，  
 或代表下述任一個基團：



或代表環鏈烯基烷基：



或代表下述任一個苯基烷基：



004

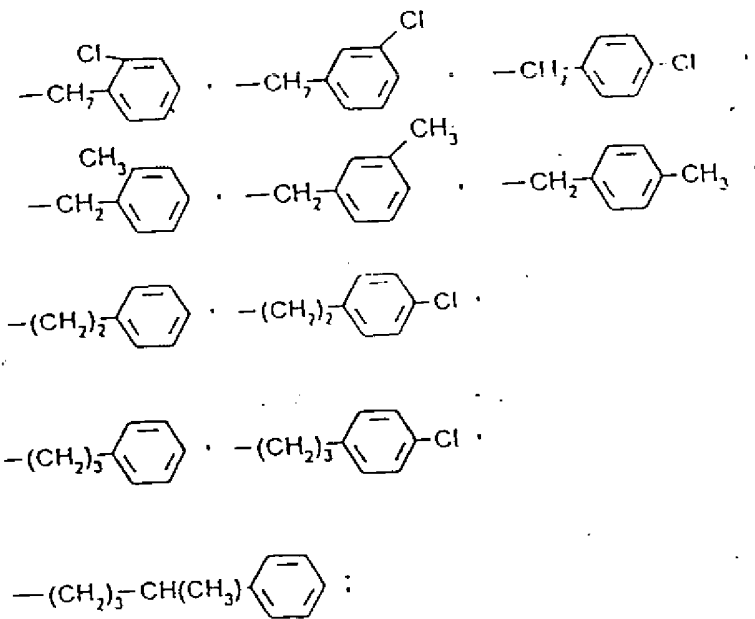
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

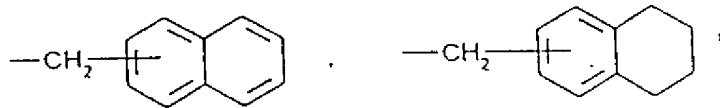
46



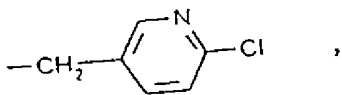
六、申請專利範圍



或代表



或代表



或代表COR<sup>3</sup>基，

R<sup>3</sup> 代表甲基，乙基，丙基；

或代表甲氧基、乙氧基，丙氧基，丁氧基；

或代表-NHR<sup>5</sup>基，

R<sup>5</sup> 代表甲基，乙基或代表可被氣選擇單取代的苯基，

X 代表氟、氯或溴，且

m 代表 0 或 1，

n 代表 1。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

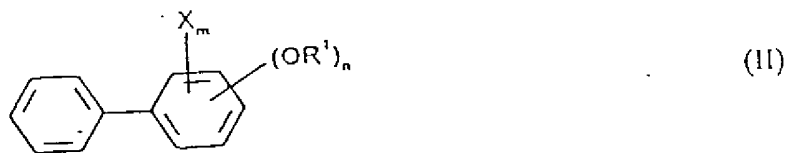
線

## 六、申請專利範圍

但是2-(2,6-二氟苯基)-4-[4'-(2,2,2-三氟乙氧基)聯苯基-4]-2-噁唑啉及2-(2-氟-6-氟苯基)-4-[4'-(2,2,2-三氟乙氧基)聯苯基-4]-2-噁唑啉除外。

4. 一種製備如申請專利範圍第1項之式(I)化合物之方法，其中

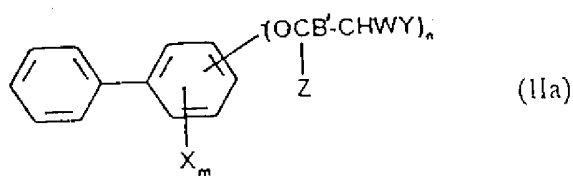
A) 在第一個步驟中，製備式(II)化合物



其中

R<sup>1</sup>、X、m 和 n 如申請專利範圍第1項中所述定義，

α) 為了製備式(IIa)化合物，將式(III)的羥基聯二苯與式(IV)化合物進行反應



其中

W 和 Y 各自獨立地代表氟，氯或三氟甲基，

B' 代表氫或氟，

Z 代表氟或

W 和 Z 一起代表 -(CF<sub>2</sub>)<sub>1</sub>

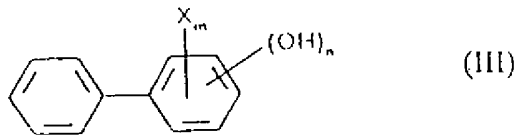
其中

## 六、申請專利範圍

l 代表2, 3或4, 且

m 代表0或1,

n 代表1,



其中 X、m 和 n 如上述定義，



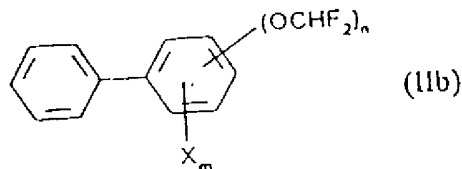
其中

W, Y 和 Z 如上述定義，

如果適宜，反應在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下和如果適宜，在稀釋劑存在下進行，且如果適宜，隨後氫化產物，

或

B) 爲了製備式 (II b) 化合物，將上述式 (III) 的羥基聯二苯與式 (V) 的二氯鹵代甲烷反應



其中

X, m 和 n 如上述定義，

## 六、申請專利範圍



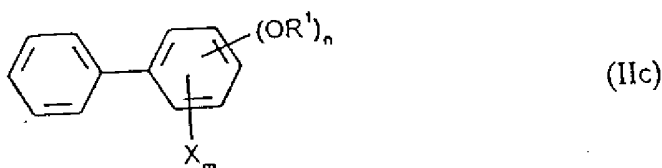
其中

Hal代表氯或溴，

如果適宜，在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下，和如果適宜，在稀釋劑存在下進行反應，

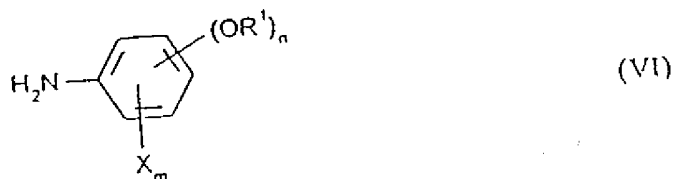
或

γ) 爲了製備式(IIc)的化合物，將式(VI)的氨基苯酚衍生物重氮化，且所得的重氮鹽與苯在酸和鐵粉存在下或在鹼存在下，且在每種情況下，如果適宜，在稀釋劑存在下進行反應，



其中

X, R', m和n如上述定義，

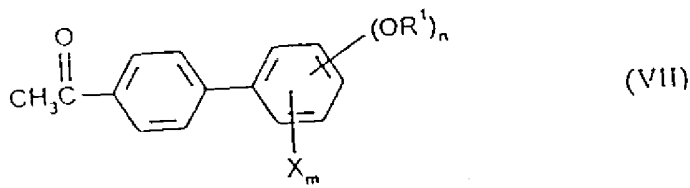


其中

X, R', m和n如上述定義，

B) 在第二步中，製備式(VII)化合物

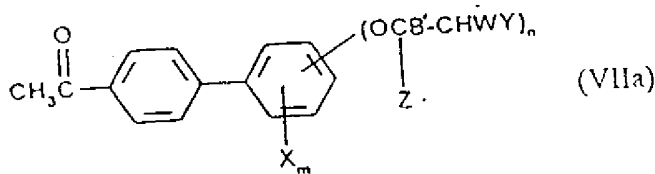
## 六、申請專利範圍



其中

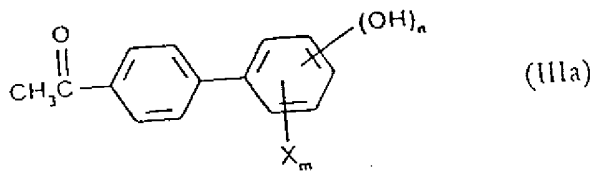
X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義,

B) 爲了製備式(VIIa)的化合物, 將式(IIIa)的羥基聯二苯衍生物與式(IV)的化合物反應



其中

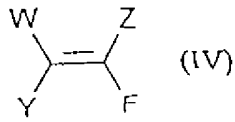
B', X, m, n, W, Y和Z如上述定義,



其中

X, m和n如上述定義

## 六、申請專利範圍



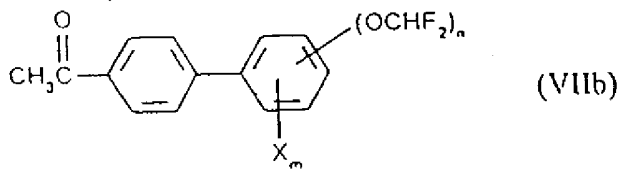
其中

W, Y和Z 如上述定義,

如果適宜在鹼存在下, 如果適宜在催化劑存在下  
且如果適宜在溶劑存在下進行反應, 且如果適宜  
可隨後氫化產物,

或

γ) 爲了製備式(VIIb)的化合物

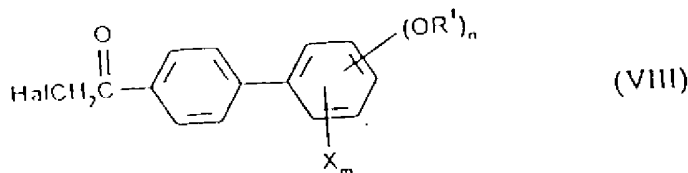


其中

X, m和n 如上述定義,

將上述式(IIIa)的羥基聯二苯衍生物與上述式(V)  
的二氯鹵代甲烷, 如果適宜在鹼存在下, 如果適宜  
在催化劑存在下, 且如果適宜在稀釋劑存在下  
進行反應,

C) 在第三步中, 製備式(VII)的化合物



## 六、申請專利範圍

其中

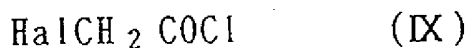
X, R<sup>1</sup>, m和n 如上述定義和

Hal代表氯或溴，

α) 將通過方法B)製備的上述式(VII)化合物，如果適宜，在稀釋劑存在下，進行氯化或溴化，

或

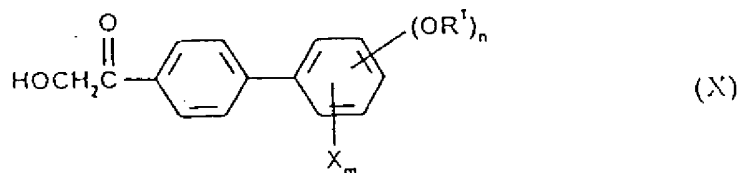
B) 通過方法A)製備的上述式(II)化合物與式(IX)的鹵代醯氯在酸或路易斯酸存在下和在稀釋劑存在下進行反應，



其中

Hal代表氯或溴，

D) 在第四步中，製備式(X)化合物



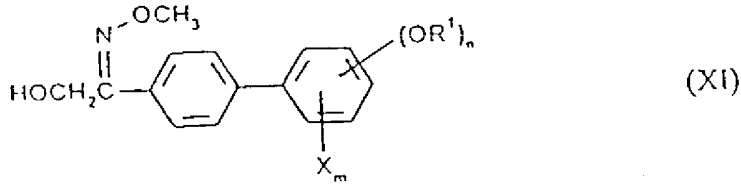
其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義，

將通過方法C)製備的上述式(VII)化合物與甲酸鹽，在稀釋劑存在下，且如果適宜，在催化劑存在下進行反應，

E) 在第五步中，製備式(XI)化合物

## 六、申請專利範圍



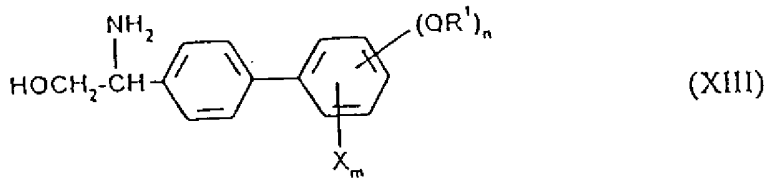
其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義，

將通過方法D)製備的上述式(X)化合物，與式(XII)化合物，如果適宜在稀釋劑存在下進行反應



F)在第六步中，製備式(XIII)化合物

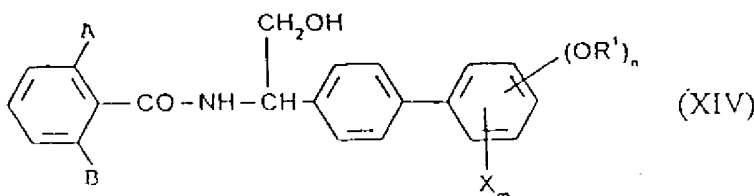


其中

R<sup>1</sup>, X, m和n如上述定義，

將通過方法E)製備的上述式(XI)化合物，在酸存在下，如果適宜，在稀釋劑存在下用還原劑還原，

G)在第七步中，製備式(XIV)化合物



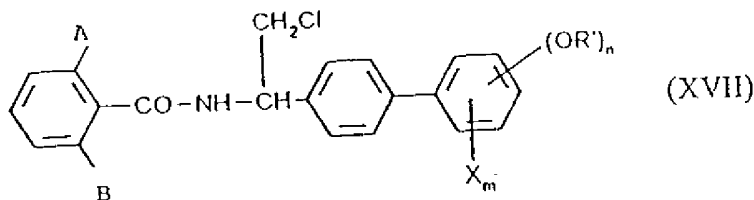
其中



## 六、申請專利範圍

A, B, R<sup>1</sup>, X, m 和 n 如申請專利範圍第 1 項中所述定義，  
且將通過方法 F) 製備的上述式 (XIII) 化合物，與 2,6-二氯苯甲醯氯反應，如果適宜反應在鹼存在下，  
且如果適宜在稀釋劑存在下進行，

H) 在第八步中，製備式 (XVII) 化合物



其中

A, B, X, m 和 n 如申請專利範圍第 1 項中所述定義，

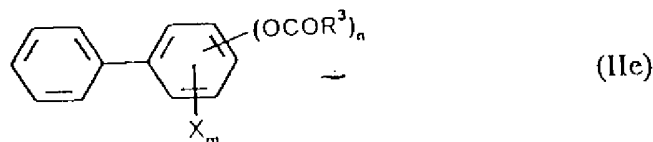
R' 代表 R<sup>1</sup> 或 COR<sup>3</sup>，其中

R<sup>1</sup> 和 R<sup>3</sup> 如申請專利範圍第 1 項中所述定義，

α) 將通過方法 G) 製備的上述式 (XIV) 化合物，與氯化劑反應，如果適宜，反應在稀釋劑存在下進行，

或者是

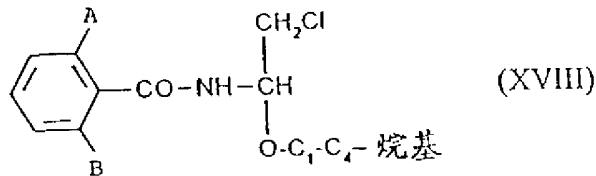
β) 將通過方法 A) 製備的上述式 (II) 化合物，或下式 (IIe) 化合物，與式 (XVIII) 化合物在酸性催化劑存在下，且如果適宜在稀釋劑存在下反應，



## 六、申請專利範圍

其中

R<sup>3</sup>，X，n和m如申請專利範圍第1項中所述定義，



其中

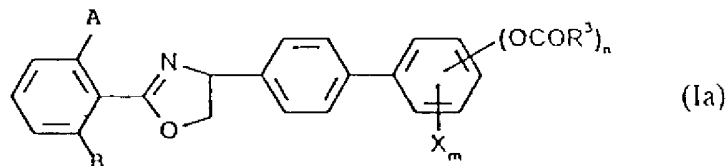
A及B具申請專利範圍第1項中所述定義，

I)在第九步中，將通過方法II)製備的上述式(XVII)化合物，在鹼存在下環化，如果適宜；反應在催化劑存在下，且如果適宜，在稀釋劑存在下進行，

且，如果適宜

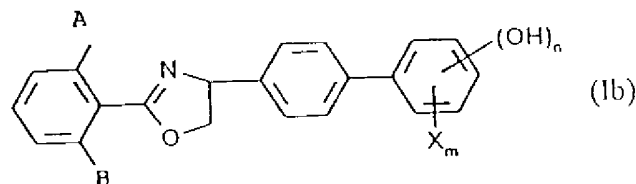
J)將對於R=COR<sup>3</sup>製備的式(1a)化合物水解，得到式(1b)

化合物



其中

A，B，R<sup>3</sup>，X，n和m如申請專利範圍第1項中所述定義

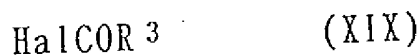


其中

A，B，X，n和m如申請專利範圍第1項中所述定義

## 六、申請專利範圍

且，如果適宜，將這些化合物隨後  
K $\alpha$ )與式(XIX)化合物反應



其中

R<sup>3</sup> 如申請專利範圍第1項中所述定義且

Hal 代表鹵素，

如果適宜反應在稀釋劑存在下且如果適宜在鹼存在下進行，或

B)與式(IV)化合物反應



其中

W, Y和Z 如上述定義，

如果適宜，反應在鹼存在下，如果適宜，在催化劑存在下和如果適宜，在稀釋劑存在下進行，且如果適宜，隨後氫化產物，

或

$\gamma$ )與式(V)的二氯鹵代甲烷反應



其中

Hal 代表氯或溴，

如果適宜在鹼存在下進行，如果適宜在催化劑存在下，且如果適宜在稀釋劑存在下進行反應，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂 線

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

### 六、申請專利範圍

或

δ) 在氫氟酸存在下，如果適宜在稀釋劑存在下與四氯化碳反應，

或

ε) 與式 (XX) 化合物反應



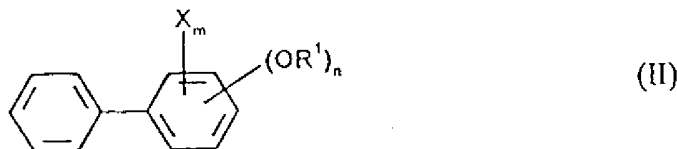
其中

R<sup>2</sup> 如申請專利範圍第 1 項中所述定義且

M 代表離去基，

如果適宜反應在稀釋劑存在下，且如果適宜在鹼存在下進行。

#### 5. 式 (II) 化合物

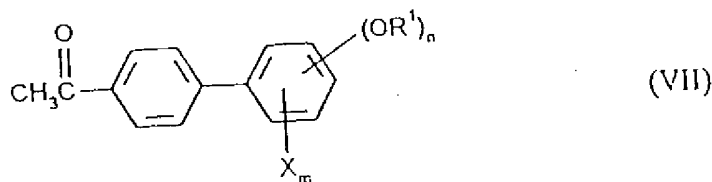


其中

R<sup>1</sup>，X，m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義，

但是 4-(2,2,2-三氟乙氧基)聯苯基、4-(1,1-二氟乙氧基)聯苯基、4-(1,1-二氟-正丙氧基)聯苯基及 4-(2-氟乙氧基)聯苯基除外。

#### 6. 式 (VII) 化合物



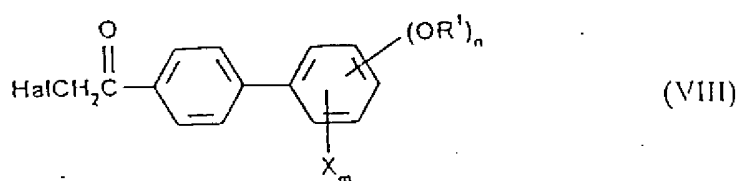
訂線

## 六、申請專利範圍

其中

X, R<sup>1</sup>, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義。

## 7. 式(VIII)化合物

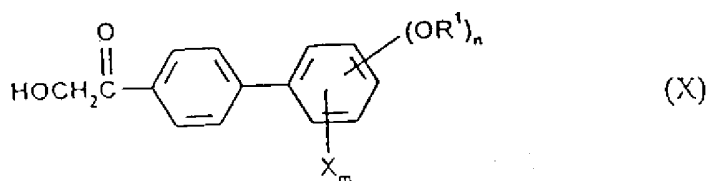


其中

X, R<sup>1</sup>, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義，

Hal 代表氯或溴。

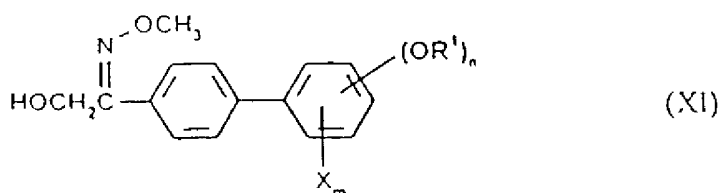
## 8. 式(X)化合物



其中

X, R<sup>1</sup>, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義。

## 9. 式(XI)化合物

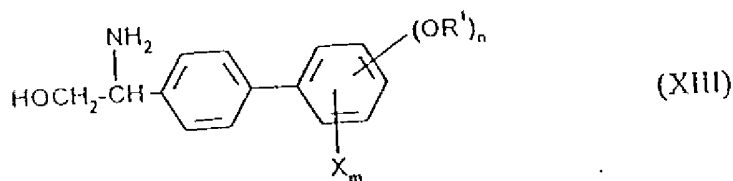


## 六、申請專利範圍

其中

X, R<sup>1</sup>, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義。

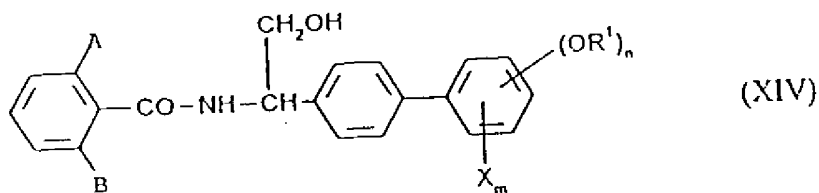
## 10. 式 (XIII) 化合物



其中

R<sup>1</sup>, X, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義。

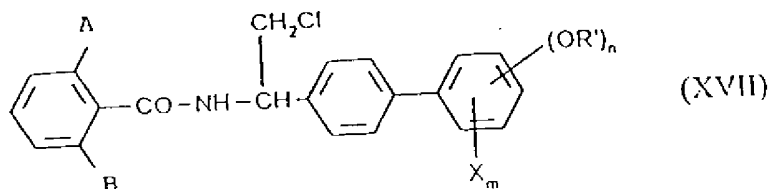
## 11. 式 (XIV) 化合物



其中

A, B, R<sup>1</sup>, X, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述的定義。

## 12. 式 (XVII) 化合物



其中

A, B, X, m 和 n 具申請專利範圍第 1 項中所述定義。

## 六、申請專利範圍

R' 代表R<sup>1</sup>或COR<sup>3</sup> 其中

R<sup>1</sup>和R<sup>3</sup>具申請專利範圍第1項中所述定義。

13. 一種殺蟲組合物，其包括至少一種如申請專利範圍第1項的式(I)化合物。
14. 一種防治昆蟲的方法，其中將根據申請專利範圍第1項的式(I)化合物作用到昆蟲和／或它們的環境。

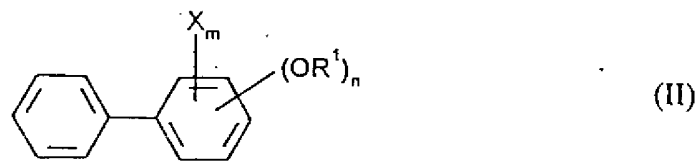
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂  
線

五、發明說明 ( 3 )

而且，已發現式 ( I ) 的新的取代聯苯基嘔啞啉是通過下述方法獲得的，其中

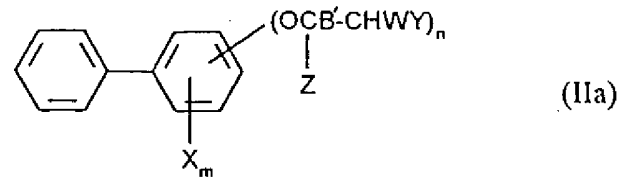
A) 在第一個步驟中，製備式 ( II ) 化合物



其中

R<sup>1</sup> , X , m 和 n 如上述定義，

α) 為了製備式 ( II a ) 化合物，將式 ( III ) 的羥基聯二苯與式 ( IV ) 化合物進行反應



其中

W 和 Y 各自獨立地代表氟，氯或三氟甲基，

B' 代表氫或氟，

Z 代表氟或

W 和 Z 一起代表 -(CF<sub>2</sub>)<sub>l</sub>

其中

l 代表 2, 3, 或 4,

n 任表 1 或 2 和

m 代表 0, 1 或 2,

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝 訂

經濟部中央標準局員工消費合作社印製

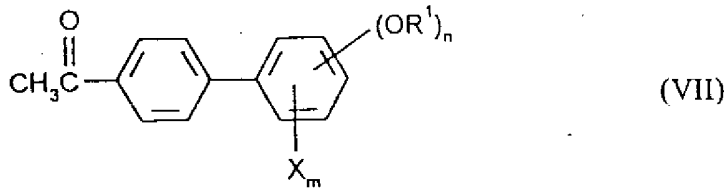


五、發明說明(6)

其中

X, m和n如上述定義,

B)在第二步中,製備式(VII)化合物



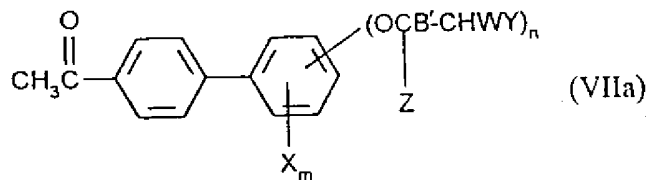
其中

X, R<sup>1</sup>, m和n如上述定義,

α)由方法A)製備的式(II)化合物與乙醯氯,在酸或路易斯酸存在下,且在稀釋劑存在下進行反應,

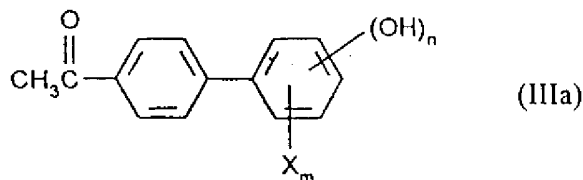
或

B)為了製備式(VIIa)的化合物,將式(IIIa)的羥基聯二苯衍生物與式(IV)的化合物反應



其中

B', X, m, n, W, Y和Z 如上述定義,



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

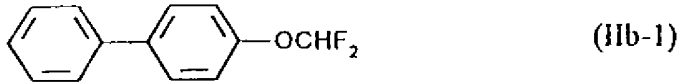
裝

訂

線

五、發明說明 ( 74 )

實施例 ( II b-1 )

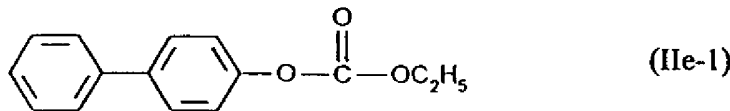


將51.1g (0.3mol)的4-羥基聯二苯溶於250ml二噁烷中，並加入38.3ml，45%的濃氫氧化鈉溶液。將混合物加熱到60°C，在此溫度下，隨後通入100g (1.15mol)的二氯氣甲烷。冷卻後，加入75ml水，抽吸過濾掉不溶沉澱，用第三丁基甲基醚提取水相三次。將合併有機相乾燥並濃縮。得到55.9g的粗產物；產物中還含有20.9%的起始物苯酚，用氫氧化鈉除去苯酚。

產率：40g (理論值的60%)

熔點：35°C

實施例 ( II e-1 )



在10°C，用15分鐘，將22g (0.2mol)氯甲酸乙酯滴加入34g (0.2mol)的4-羥基聯二苯和28ml三乙胺的200ml乙酸乙酯溶液。在室溫下持續攪拌30分鐘，抽吸過濾掉沉澱，用200ml水沖洗液體相，乾燥並真空濃縮。剩餘物用50ml二異丙醚吸收，抽吸過濾掉催化劑。產率47.5g (理論值的98.5%)，m.p. 70°C。

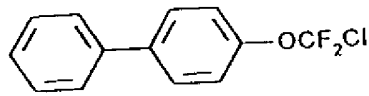
實施例 ( II d-1 )

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

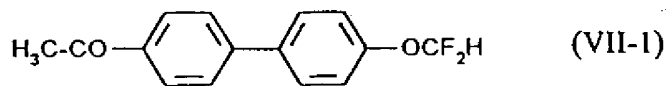
## 五、發明說明 ( 75 )



(II d-1)

將800ml苯，40g鐵粉和350g 4-二氟甲氧苯胺導入反應容器中，在30-38°C，用5小時，將1000g三氯乙酸的1600ml苯溶液滴加入反應容器。同時，按份加入210g亞硝酸鈉（每15分鐘12g）。反應稍微放熱，在加入過程中有氣體放出。加入結束時，在室溫下大約連續攪拌20小時。隨時將混合物加熱至回流溫度（75-76°C），伴隨氣體放出，繼續攪拌直到氣體放出結束（大約4小時）。冷卻反應物，加入2.4升，5%濃鹽酸，並首先蒸餾掉苯直到內部溫度達到100°C，接著蒸餾水蒸氣。分離有機相（液體），用水沖洗，乾燥並蒸餾。

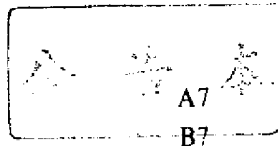
產率：109g，熔點55°C。沸點：135-140°C/26巴。

實施例(VII-1)

(VII-1)

將5.3g (0.025mol)的4-乙酰基-4'-羥基聯二苯導入35ml甲苯中。在60°C下向此懸浮液中加入6.7g (0.075mol)的45%濃氫氧化鈉溶液。隨後加入0.42g (0.00125mol)的溴化四丁基鎂，在95°C至100°C，用2小時通入20g (0.23mol)的二氟氯甲烷。冷卻混合物，用水稀釋並過濾(0.4g)。分離掉甲苯相，用甲苯提取水相二次。用水沖洗合併的甲苯相，乾燥並濃縮。得到5.9g (理論值的83%)米色結晶，熔點：79-81°C。

440429



修正  
86年12月1日  
補充

五、發明說明(90)

專利申請案第84107008號  
ROC Patent Appln. No.84107008  
補充之試驗資料中文本 - 附件二  
Supplemental Test Data in Chinese - Encl.(II)  
(民國 86 年 12 月 1 日送呈)  
(Submitted on December 1, 1997)

實施例 A'

棉鈴蟲試驗

溶劑：7重量份二甲基甲醯胺

乳化劑：1重量份烷基芳基聚乙二醇醚

爲了生產活性化合物的適合的製備物，用1重量份的活性化合物與上述量的溶劑和上述量的乳化劑混合，用水稀釋濃縮物至所需濃度。

藉由在所需濃度的活性化合物的製備物中浸沾，處理黃豆芽(Glycine max)，在葉片仍然潮濕時，用煙草芽蟲幼蟲(棉鈴蟲)侵染。

一定時間後，測定毀滅率%。100%意爲所有的幼蟲已被殺死；0%意爲沒有幼蟲被殺死。

在本試驗中，例如下列之實例化合物顯示出優於先前技藝之活性：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

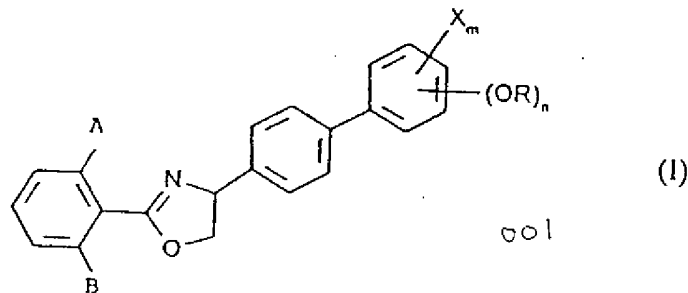
裝

訂

## 六、申請專利範圍

專利申請案第 84107008 號  
 ROC Patent Appln. No.84107008  
 修正之申請專利範圍中文本 - 附件一  
 Amended Claims in Chinese - Encl.(I)  
 (民國89年12月13日送呈)  
 (Submitted on December 13, 2000)

## 1. 式(I)化合物



其中

A 代表氫或氟，

B 代表氟或氯，

R 代表 R<sup>1</sup> 或 R<sup>2</sup>，其中R<sup>1</sup> 代表具有至少一個氟原子和另外至少一個氫原子或氯原子的 C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鹵代烷基，R<sup>2</sup> 代表氫、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鏈烯基、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-鏈炔基，  
或代表可經鹵素或 C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基取代的 C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-環烷基  
C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，或代表 C<sub>6</sub>-環鏈烯基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，或代表各自可經鹵素、C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或硝基取代的苯  
基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基或萘基-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-烷基，