世界知的所有権機関
国際事務局

PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類6 **C07D 231/44, 401/12, 403/12, 405/12, 409/12, 417/12, 231/38, A01N 43/56**	**A1**	(11) 国際公開番号 **WO98/45274** (43) 国際公開日 1998年10月15日(15.10.98)

(21) 国際出願番号 PCT/JP98/01582

(22) 国際出願日 1998年4月6日(06.04.98)

(30) 優先権データ
特願平9/87916 1997年4月7日(07.04.97) JP

(71) 出願人（米国を除くすべての指定国について）
三菱化学株式会社
(MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION)[JP/JP]
〒100-0005 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo, (JP)
(72) 発明者；および
(75) 発明者／出願人（米国についてのみ）
奥井周子(OKUI, Shuko)[JP/JP]
興村伸夫(KYOMURA, Nobuo)[JP/JP]
福地俊樹(FUKUCHI, Toshiki)[JP/JP]
田中 健(TANAKA, Ken)[JP/JP]
〒227-0033 神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社 横浜総合研究所内 Kanagawa, (JP)

(74) 代理人
弁理士 萩野 平, 外(HAGINO, Taira et al.)
〒107-6028 東京都港区赤坂一丁目12番32号
アーク森ビル28階 栄光特許事務所 Tokyo, (JP)

(81) 指定国 AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

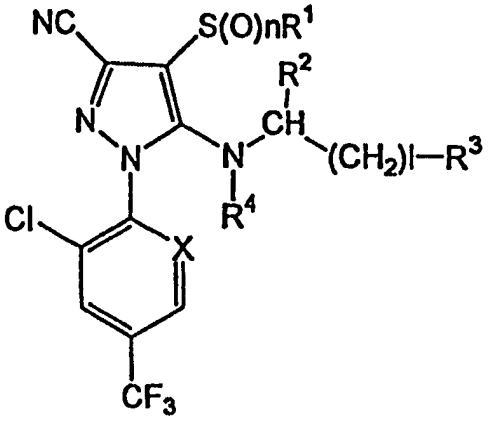
添付公開書類
国際調査報告書

(54)Title: PYRAZOLE DERIVATIVES, PROCESS FOR PREPARING THE SAME, INTERMEDIATES, AND PEST CONTROL AGENT CONTAINING THE SAME AS ACTIVE INGREDIENT

(54)発明の名称 ピラゾール誘導体、その製造法、中間体及びこれを有効成分とする有害生物防除剤

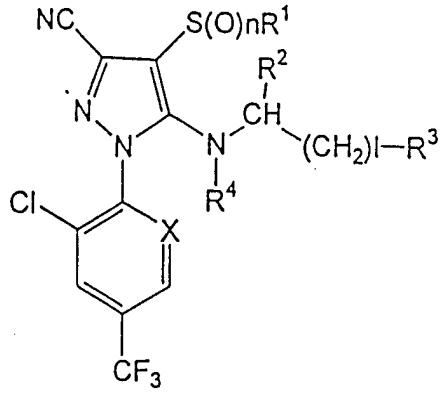
(57) Abstract

1-Aryl-3-cyano-5-(hetero)arylalkylaminopyrazole derivatives represented by general formula (1), a process for preparing the same, intermediates, and a pest control agent containing the same as the active ingredient, wherein R^1 represents a C1 to C4 alkyl group or a C1 to C8 haloalkyl group; R^2 represents a hydrogen atom or a C1 to C4 alkyl group; R^3 represents an aryl or heteroaryl group optionally substituted with a substituent selected from among a hydrogen atom, a hydroxyl group, a C1 to C4 alkyl group, a C1 to C8 haloalkyl group, a C1 to C4 alkoxy group, an optionally substituted phenoxy group, a C1 to C4 haloalkoxy group, a C1 to C4 alkylthio group, a C1 to C4 alkylsulfinyl group, a C1 to C4 alkylsulfonyl group, a halogen atom, a nitro group, and a cyano group; R^4 represents a hydrogen atom, a C1 to C4 alkyl group, or a C1 to C4 acyl group; X represents a nitrogen atom, or a carbon atom substituted with a halogen atom; and 1 and n are each independently any one of 0, 1 and 2.



(1)

(57)要約　下記一般式（１）で表される１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体、その製造法、中間体及びこれを有効成分とする有害生物防除剤である。



……（1）

上記式中、R^1はＣ１～Ｃ４のアルキル基またはＣ１～Ｃ８のハロアルキル基を示し、R^2は水素原子またはＣ１～Ｃ４のアルキル基を示す。R^3は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基、Ｃ１～Ｃ８のハロアルキル基、Ｃ１～Ｃ４のアルコキシ基、置換されていてもよいフェノキシ基、Ｃ１～Ｃ４のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルチオ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキスルフィニル基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基から選ばれる置換基で置換されていてもよい、アリール基またはヘテロアリール基を示す。R^4は水素原子、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基またはＣ１～Ｃ４のアシル基を示す。Ｘは窒素原子、または、ハロゲン原子で置換された炭素原子を示す。ｌ、ｎはそれぞれ独立して０、１、２のうちいずれかを示す。

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

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

明細書

ピラゾール誘導体、その製造法、中間体及びこれを有効成分とする有害生物防除剤

技術分野

本発明は新規な１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体及びこれを有効成分とする農園芸用殺虫剤などの有害生物防除剤に関する。

背景技術

従来、農園芸分野では、各種害虫の防除を目的とした様々な殺虫剤が開発され実用に供されている。

また、殺虫活性を有するピラゾール系化合物としては、特開昭６３－３１６７７１号公報には５－（置換）アミノ－３－シアノ－１－フェニルピラゾール誘導体が開示されており、特開昭６４－４７７６８号公報には１－アリール－５－（ヘト）アリールメチルアミノピラゾール誘導体が開示されており、特開平５－１４８２４０号公報には１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールメチリデンイミノピラゾール誘導体が開示されている。

しかしながら、これらの農園芸用殺虫剤は、いずれも殺虫効果、殺虫スペクトラム及び安全性などの点において全てを満足すべきものではない。

さらに、近年、市販品に対して抵抗性を獲得した害虫の出現も問題となっている。例えば、野菜、果樹、花卉、茶、ムギ類及びイネ等の栽培において、様々な型の農薬（例えば、有機リン系農薬等）に抵抗性を獲得した種種の害虫が各地で出現しており、これらの害虫に起因する各種害虫の防除が年々困難になっており、骨格の異なる新規農薬の出現が望まれている。

一方、ジチオカルバメート系やフタルイミド系農薬等の様に病

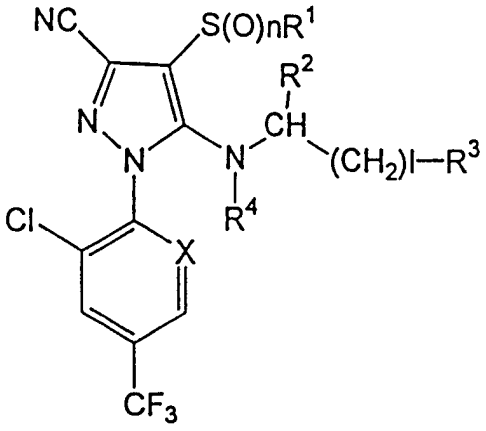
原菌や害虫が未だ抵抗性を獲得していない農薬もあるが、これらについては一般に施用薬量や施用回数が多く、環境汚染などの観点から好ましいものではない。

上記のように、殺虫効果が優れ、殺虫スペクトラムが広く、かつ安全性が高く、環境への悪影響が少ないという特徴を併せ持つ、新規な有害生物防除剤の開発が切望されている。

本発明は、殺虫効果が優れ、殺虫スペクトラムが広く、かつ安全性が高く、環境への悪影響が少ないという特徴を併せ持つ、新規な有害生物防除剤を提供することを目的としている。具体的には、上記の有用性を有する１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体を提供し、これらを効率よく合成する方法を提供するものである。

発明の開示

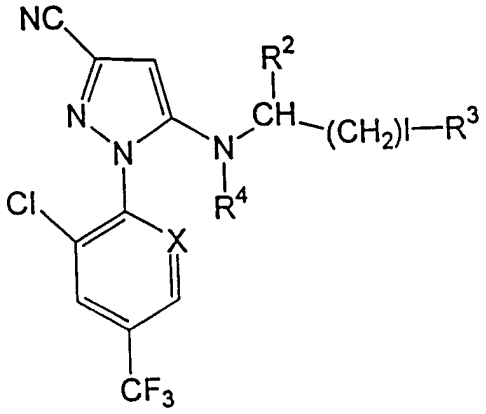
本発明者は上記の課題を解決すべく鋭意努力した結果、下記の式で示される新規なピラゾール化合物が上記の特徴を有する化合物であることを見い出し、本発明を完成するに至った。すなわち本発明の要旨は、下記一般式（１）



..... (1)

（上記式中、Ｒ１は炭素数１～４（以下“Ｃ１～Ｃ４”のごとく表示する。）のアルキル基またはＣ１～Ｃ８のハロアルキル基を示し、Ｒ２は水素原子またはＣ１～Ｃ４のアルキル基を示す。Ｒ

3は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基、Ｃ１～Ｃ８のハロアルキル基、Ｃ１～Ｃ４のアルコキシ基、置換されていてもよいフェノキシ基、Ｃ１～Ｃ４のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルチオ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキスルフィニル基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基から選ばれる置換基で置換されていてもよい、アリール基またはヘテロアリール基を示す。Ｒ４は水素原子、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基またはＣ１～Ｃ５のアシル基を示す。Ｘは窒素原子、または、ハロゲン原子で置換された炭素原子を示す。ｌ、ｎはそれぞれ独立して０、１、２のうちいずれかを示す。）で表される１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体、その製造方法及び下記一般式（３）



..... (3)

（上記式中、Ｒ２、Ｒ３、Ｒ４、Ｘ及びｌはそれぞれ前述の通りである。）で表される製造中間体、並びに、有害生物防除剤としての使用に存する。

本発明を実施するための最良の形態

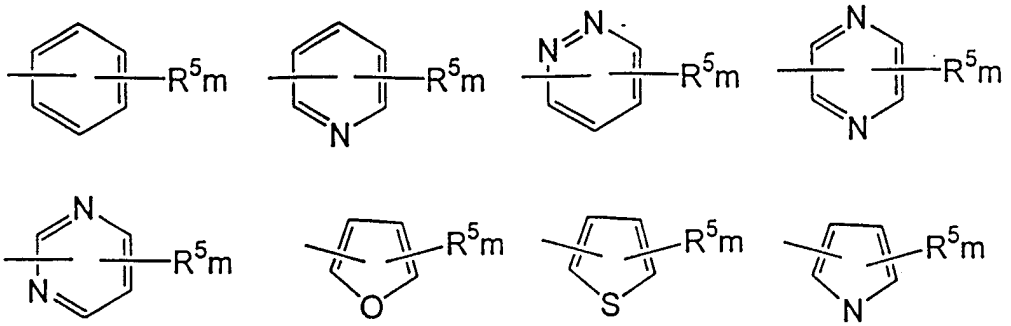
以下、本発明を詳細に説明する。

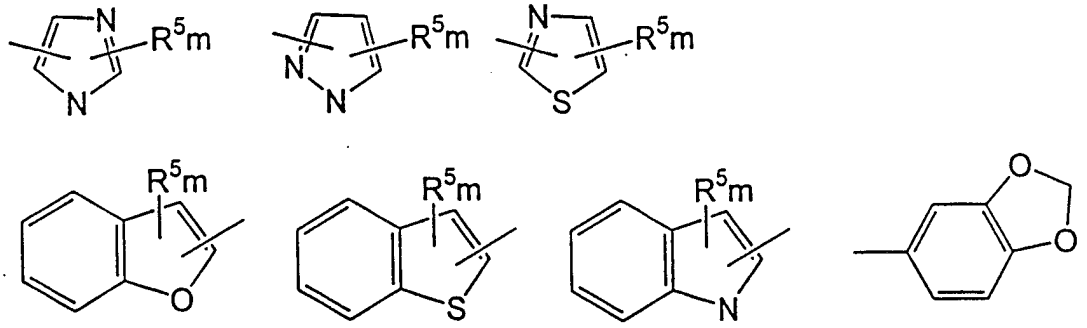
一般式（１）で表される化合物の置換基Ｒ１はメチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基等のＣ１～Ｃ４の直鎖も

しくは分岐鎖アルキル基；またはジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、２－フルオロエチル基、２－クロロエチル基、２、２、２－トリフルオロエチル基、２、２、２－トリクロロエチル基、３－クロロプロピル基、３－ブロモプロピル基、３、３、３－トリフルオロプロピル基、２、２、３、３－テトロフルオロプロピル基、２、２、３、３、３－ペンタフルオロプロピル基、２、２－ジクロロ－３、３、３－トリフルオロプロピル基、１、３－ジフルオロ－２－プロピル基、１、１、１、３、３、３－ヘキサフルオロ－２－プロピル基、３、３、３－トリクロロプロピル基、４－クロロブチル基、４、４、４－トリフルオロブチル基、３、３、４、４、４－ペンタフルオロブチル基、５、５、５－トリフルオロペンチル基、６、６、６－トリフルオロヘキシル基等のＣ１～Ｃ８の直鎖もしくは分岐鎖ハロアルキル基を示す。このうち好ましくは、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基またはＣ１～Ｃ４のハロアルキル基を示す。

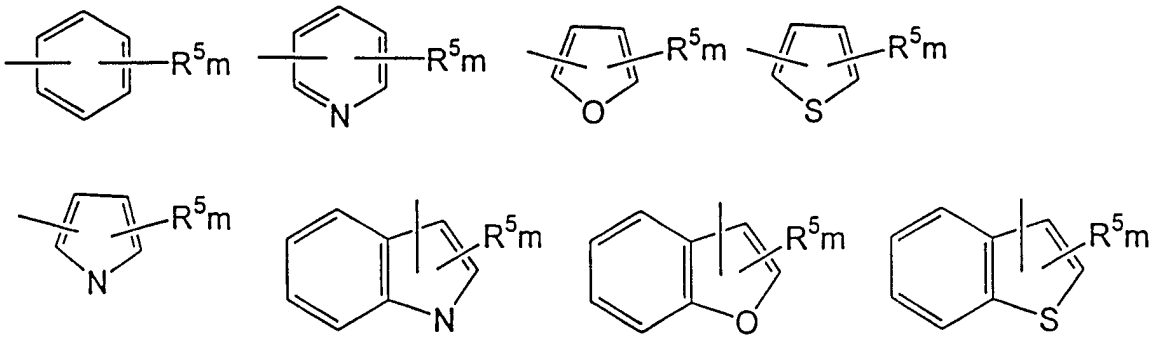
Ｒ^{2}は水素原子；またはメチル基、エチル基、n－プロピル基、イソプロピル基、n－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、t－ブチル基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキル基を示す。このうち好ましくは、水素原子である。

Ｒ^{3}は、フェニル基、ナフチル基等のアリール基；または炭素数が３～８であり窒素原子、酸素原子及び硫黄原子から任意に選ばれるヘテロ原子を１～３個含んでいるヘテロアリール基であり、これらは下記置換基Ｒ^{5}で任意に置換されていてもよい。具体的には、



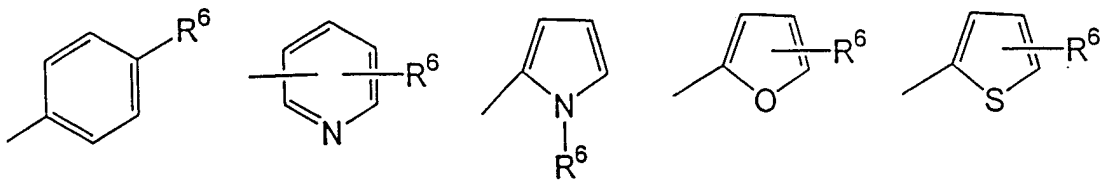


（式中Ｒ５は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基、Ｃ１～Ｃ８のハロアルキル基、Ｃ１～Ｃ４のアルコキシ基、置換されていてもよいフェノキシ基、Ｃ１～Ｃ４のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルチオ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキスルフィニル基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基またはシアノ基を示し、ｍは０、１、２のうちいずれかである。）が挙げられる。このうち好ましくは、



（式中、Ｒ５及びｍは前述の通りである。）

であり、更に好ましくは



（式中Ｒ６は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ２のアルキル基、Ｃ１～Ｃ２のアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のハロアルコキシ基、Ｃ１

～Ｃ２のアルキルチオ基、ハロゲン原子、ニトロ基またはシアノ基を示す。）である。

Ｒ５は水素原子；水酸基；メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキル基；ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、２－フルオロエチル基、２－クロロエチル基、２、２、２－トリフルオロエチル基、２、２、２－トリクロロエチル基、３－クロロプロピル基、３－ブロモプロピル基、３、３、３－トリフルオロプロピル基、２、２、３、３－テトラフルオロプロピル基、２、２、３、３、３－ペンタフルオロプロピル基、２、２－ジクロロ－３、３、３－トリフルオロプロピル基、２、２－ジクロロ－３、３、３－トリフルオロプロピル基、１、３－ジフルオロ－２－プロピル基、１、１、１、３、３、３－ヘキサフルオロ－２－プロピル基、３、３、３－トリクロロプロピル基、４－クロロブチル基、４、４、４－トリフルオロブチル基、３、３、４、４、４－ペンタフルオロブチル基、５－クロロペンチル基、６、６、６－トリフルオロヘキシル基等のＣ１～Ｃ８の直鎖もしくは分岐鎖ハロアルキル基；メトキシ基、エトキシ基、ｎ－プロポキシ基、イソプロポキシ基、ｎ－ブトキシ基、イソブトキシ基、ｓｅｃ－ブトキシ基、ｔ－ブトキシ基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルコキシ基；Ｃ１～Ｃ４のアルコキシ基またはＣ１～Ｃ４のアルキル基で置換されていてもよいフェノキシ基；ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、２－フルオロエトキシ基、２－クロロエトキシ基、２、２、２－トリフルオロエトキシ基、２、２、２－トリクロロエトキシ基、３－クロロプロポキシ基、３－ブロモプロポキシ基、３、３、３－トリフルオロプロポキシ基、２、２、３、３－テトラフルオロプロポキシ基、２、２、３、３、３－ペンタフルオロプロポキシ基、２、２－ジクロロ－３、３、３－トリフルオロプロポキシ基、２、２－ジクロロ－３、３、３－トリ

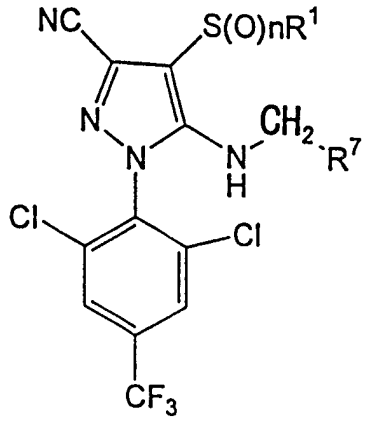
フルオロプロポキシ基、１、３－ジフルオロ－２－プロポキシ基、１、１、１、３、３、３－ヘキサフルオロ－２－プロポキシ基、３、３、３－トリクロロプロポキシ基、４－クロロブトキシ基、４、４、４－トリフルオロブトキシ基、３、３、４、４、４－ペンタフルオロブトキシ基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖ハロアルコキシ基；メチルチオ基、エチルチオ基、n－プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n－ブチルチオ基、イソブチルチオ基、ｓｅｃ－ブチルチオ基、t－ブチルチオ基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキルチオ基；メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、n－プロピルスルフィニル基、イソプロピルスルフィニル基、n－ブチルスルフィニル基、イソブチルスルフィニル基、ｓｅｃ－ブチルスルフィニル基、t－ブチルスルフィニル基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキルスルフィニル基；メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、n－プロピルスルホニル基、イソプロピルスルホニル基、n－ブチルスルホニル基、イソブチルスルホニル基、ｓｅｃ－ブチルスルホニル基、t－ブチルスルホニル基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキルスルホニル基；ハロゲン原子；ニトロ基またはシアノ基を示す。このうち好ましくは、水素原子；水酸基；Ｃ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキル基；Ｃ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルコキシ基；Ｃ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖ハロアルコキシ基；Ｃ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキルチオ基；ニトロ基；またはシアノ基である。

Ｒ６は、水素原子；水酸基；メチル基またはエチル基；メトキシ基またはエトキシ基；ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、２－フルオロエトキシ基、２－クロロエトキシ基、２、２、２－トリフルオロエトキシ基、２、２、２－トリクロロエトキシ基等のＣ１～Ｃ２のハロアルコキシ基；メチルチオ基、エチルチオ基、n－プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n－ブチルチオ基、イソブチルチオ基、ｓｅｃ－ブチルチオ基、t－ブチル

チオ基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキルチオ基；ハロゲン原子、ニトロ基またはシアノ基を示す。

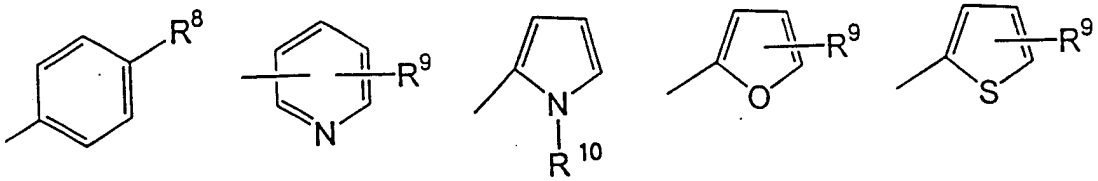
Ｒ４は水素原子；メチル基、エチル基、ｎ－プロピル基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｓｅｃ－ブチル基、ｔ－ブチル基等のＣ１～Ｃ４の直鎖もしくは分岐鎖アルキル基；またはメチルカルボニル基、エチルカルボニル基、ｎ－プロピルカルボニル基、イソプロピルカルボニル基、ｎ－ブチルカルボニル基、イソブチルカルボニル基、ｓｅｃ－ブチルカルボニル基、ｔ－ブチルカルボニル基等のＣ１～Ｃ５の直鎖もしくは分岐鎖アシル基を示す。このうち好ましくは水素原子、Ｃ１～Ｃ４の直鎖アルキル基、又はＣ１～Ｃ４の直鎖アシル基である。

本願化合物の中で好ましいものとしては、下記一般式（２）



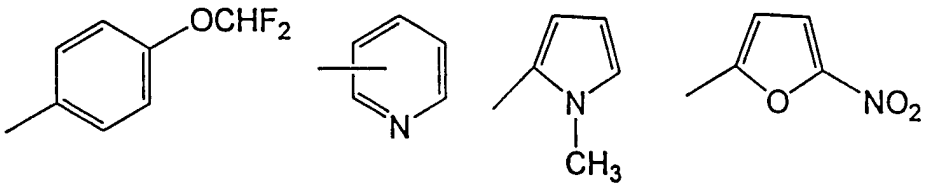
..... (2)

（上記式中Ｒ１及びｎは前述の通りであり、Ｒ７は



であり、Ｒ８はＣ１～Ｃ２のアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のアルキルチオ基、ニトロ基またはシアノ基であり、Ｒ９は水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ２のアルコキシ

基、Ｃ１～Ｃ２のハロアルコキシ基またはニトロ基、Ｒ１０はＣ１～Ｃ２のアルキル基を示す。）で表されるものであり、特に好ましくは、Ｒ７が、



のものである。

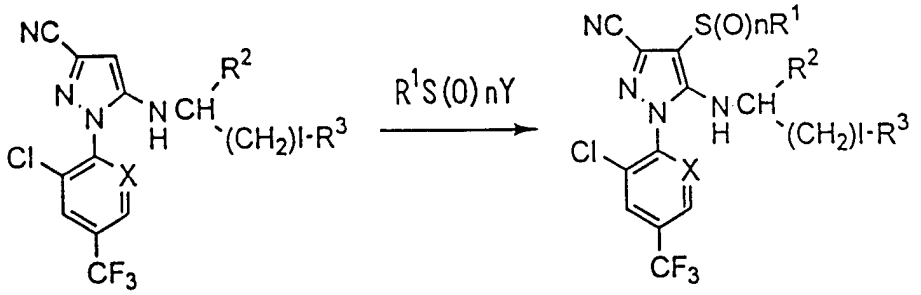
上記化合物の置換基Ｒ８としては、メトキシ基またはエトキシ基；ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、２－フルオロエトキシ基、２－クロロエトキシ基、２、２、２－トリフルオロエトキシ基、２、２、２－トリクロロエトキシ基等のＣ１～Ｃ２のハロアルコキシ基；メチルチオ基またはエチルチオ基；ニトロ基；またはシアノ基を示す。

Ｒ９は水素原子；水酸基；メトキシ基またはエトキシ基；ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、２－フルオロエトキシ基、２－クロロエトキシ基、２、２、２－トリフルオロエトキシ基、２、２、２－トリクロロエトキシ基等のＣ１～Ｃ２のハロアルコキシ基；またはニトロ基を示す。

Ｒ１０はメチル基またはエチル基を示す。

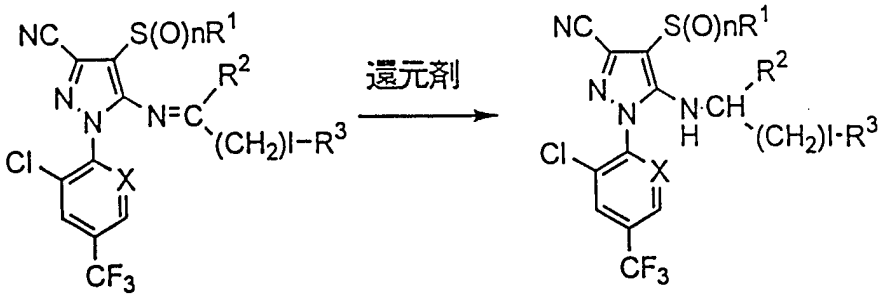
前記一般式（１）で表される本発明の化合物の製造方法としては、例えば下記反応式１～３を挙げることが出来る。

反応式1



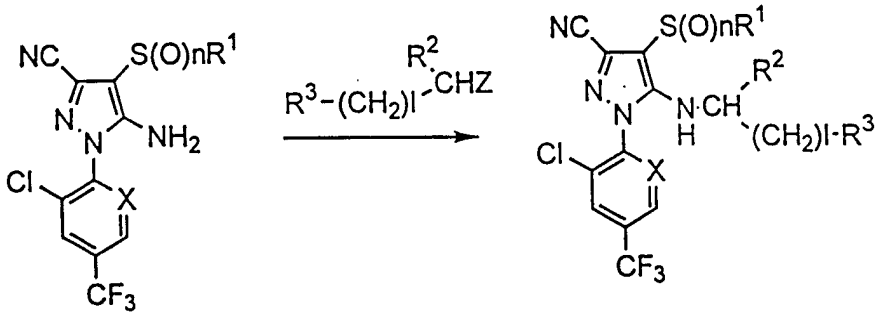
(3') (4)

反応式2



(5) (4)

反応式3



(6) (4)

(上記式中、R1、R2、R3、X、l及びnは前述の通りであり、Yはハロゲン原子、ヒドロキシル基又はその塩、あるいはジアルキルアミノ基であり、Zはハロゲン原子、水酸基等の脱離基を示す。)

反応式１の方法は、一般式（３）の化合物をＳ（Ｏ）ｎＲ^{1}化することを特徴とする。

本反応においては、一般式（３）の化合物とＲ^{1}Ｓ（Ｏ）ｎ－Ｙ（式中、Ｙ及びｎは前述の通りである。）を溶媒中、所要により塩基の存在下で、０℃～１５０℃、好ましくは０℃～１００℃にて反応を行う。

本反応の塩基としては、ジメチルアミン及びピリジン等のアミン化合物のトシレート又は塩酸塩、アルカリ金属の炭酸塩等、一般的に通常用いられる無機塩基が挙げられ、塩基の使用量としては、化合物（３’）に対して０．５～２．０モル当量、好ましくは０．８～１．５モル当量である。

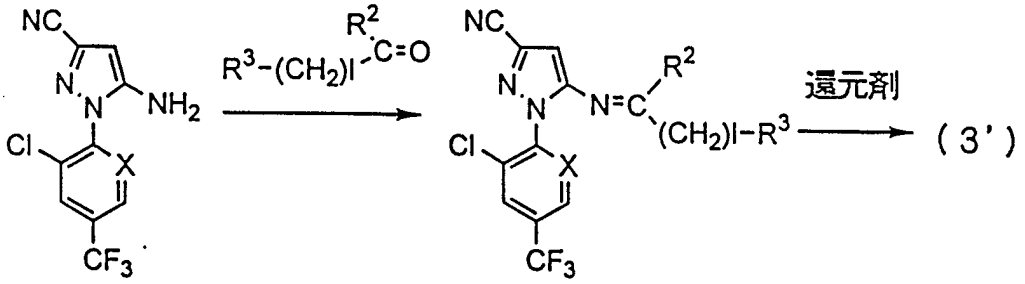
本反応に用いられる溶媒としては、ベンゼン、トルエンまたはキシレン等の芳香族炭化水素；アセトンまたはメチルエチルケトン等のケトン類；クロロホルムまたは塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素；テトラヒドロフランまたはＮ，Ｎ－ジメチルホルムアミド等の極性溶媒が挙げられる。

また、窒素原子のＲ^{4}化反応は必要に応じて上記反応の前または後に行うことが出来る。例えば、化合物（３’）またはそのアルカリ金属誘導体とＲ^{4}Ｚ（式中、Ｚはハロゲン原子、水酸基等の脱離基を示す。）を溶媒中、塩基の存在下または不存在下で、０℃～１５０℃にて反応させることで、化合物（３）を得ることが出来る。本反応における溶媒としては、ベンゼン、トルエンまたはキシレン等の芳香族炭化水素；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類；クロロホルムまたは塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素；テトラヒドロフラン、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド等が挙げられる。

本反応における塩基としては、ピリジン、トリエチルアミン等の有機塩基またはアルカリ金属の炭酸塩等が挙げられる。

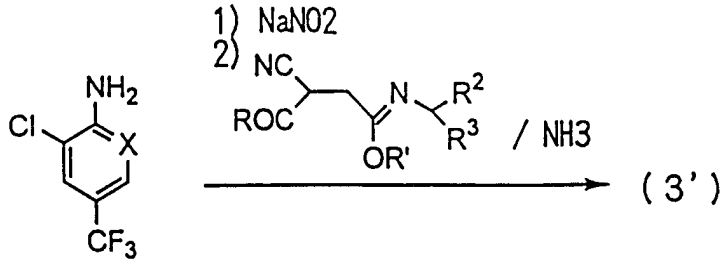
尚、一般式（３）で表される化合物は、例えば下記反応式４～７に従って製造する事が出来る。

反応式４



(7) (8)

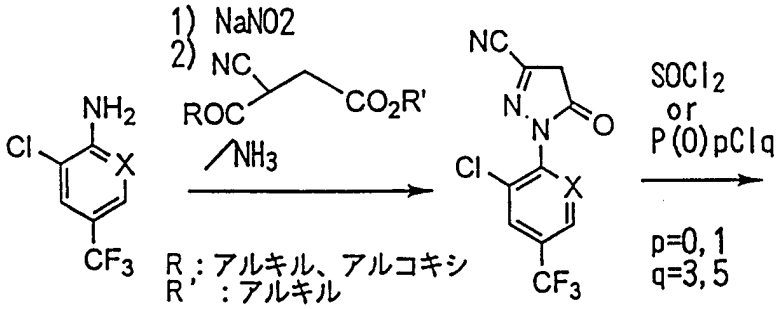
反応式５



(9)

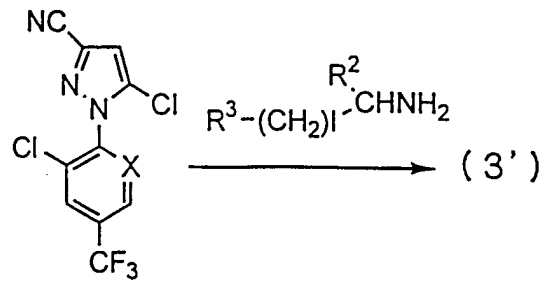
R：アルキル、アルコキシ
R'：アルキル

反応式６



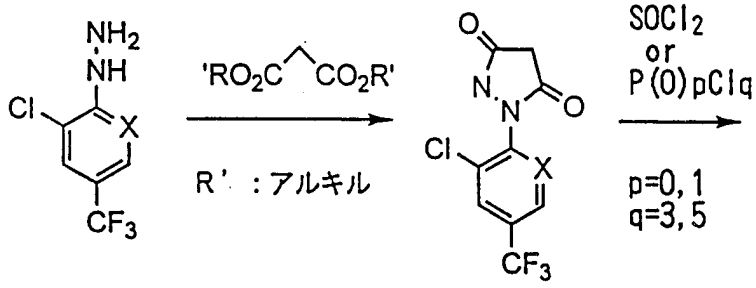
R：アルキル、アルコキシ
R'：アルキル

(9) (10)

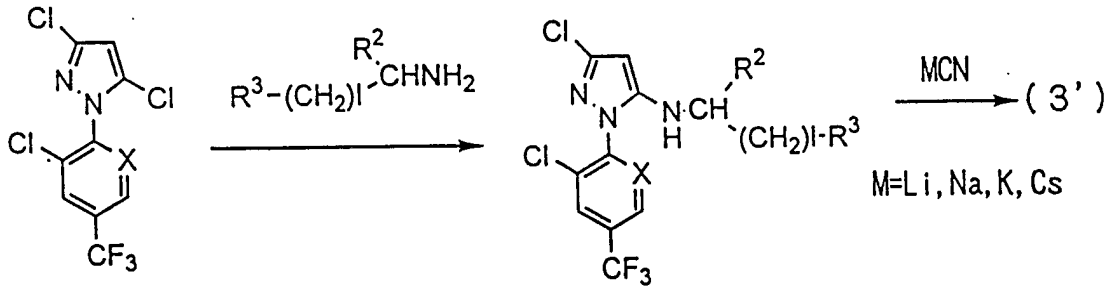


(11)

反応式７



（１２）



（１３） （１４）

反応式２の方法は、一般式（５）の化合物を還元剤によって還元することを特徴とするものである。

本反応においては、一般式（５）の化合物に対して０．２～５．０モル当量、好ましくは０．２５～２．０モル当量の還元剤を、溶媒の存在下又は不存在下で加え、－２０～１５０℃、好ましくは０～１２０℃の温度で反応させることが出来る。

本反応における還元剤としては、水素化ホウ素ナトリウム、水素化シアノホウ素ナトリウム、水素化ホウ素リチウムまたは水素化リチウムアルミニウム等を用いることが出来る。

本反応で用いられる溶媒としては、ジエチルエーテル、ジオキサンもしくはテトラヒドロフラン等のエーテル類；またはメタノール、エタノールもしくはプロパノール等のアルコール類等の極性溶媒を用いることが出来る。

尚、一般式(5)で表される化合物は、例えば特開平5－148240に記載された方法によって製造する事が出来る。

反応式3の方法は、一般式（6）の化合物を（ヘト）アリールアルキル化することを特徴とするものである。（式中、Zはハロゲン原子、水酸基等の脱離基を示す。）

化合物（6）またはそのアルカリ金属誘導体とR^3R^2CHZ（R^2、R^3及びZは前述の通りである。）を溶媒中、必要に応じて塩基の存在下、0℃～150℃にて反応し、得ることが出来る。本反応における溶媒としては、ベンゼン、トルエンまたはキシレン等の芳香族炭化水素；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類；クロロホルムまたは塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素；テトラヒドロフラン、N，Nージメチルホルムアミド等が挙げられる。

本反応における塩基としては、ピリジン、トリエチルアミン等の有機塩基またはアルカリ金属の炭酸塩等が挙げられる。

一般式（1）で表される本発明の化合物は、農園芸用、衣食住関連または家畜・ペット用分野に於いて、節足動物（特にダニ類、昆虫類）、線虫類、蠕虫類もしくは原生動物などの有害生物防除剤として用いることが出来る。具体的には、セジロウンカ、トビイロウンカ、ヒメトビウンカ等のウンカ類、ツマグロヨコバイ、オオヨコバイ等のヨコバイ類、モモアカアブラムシ等のアブラムシ類等の半翅目；ハスモンヨトウ、ニカメイチュウ、コブノメイガ、コナガ等の鱗翅目；アズキゾウムシ等の鞘翅目；イエバエ、ネッタイシマカ、アカイエカ等の双翅目；直翅目の昆虫の卵および幼虫にて対して高い防除活性を有しているので、農園芸用の殺虫剤の有効成分として有用である。もっとも、本発明の化合物の防除対象となる昆虫は上記に例示したものに限定されることはない。

一般式（1）で表される本発明の化合物を農園芸用の殺虫剤として使用する場合には、単独でもよいが、当業界で汎用される農

薬補助剤を加えた組成物として用いるのが好ましい。農園芸用殺虫剤の剤型は特に限定されないが、例えば乳剤、水和剤、粉剤、フロアブル剤、細粒剤、粒剤、錠剤、油剤、噴霧剤、煙霧剤等の形態とすることが好適である。また、本発明の化合物の１種または２種以上を有効成分として配合することが出来る。

上記の農園芸用殺虫剤を製造するために用いられる農薬補助剤は、例えば、農園芸用の殺虫剤の効果の向上、安定化、分散性の向上等の目的で使用するものであり、具体的には、坦体（希釈剤）、展着剤、乳化剤、湿展剤、分散剤、崩壊剤等が挙げられる。液体坦体としては、水、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；メタノール、ブタノール、グリコール等のアルコール類；アセトン等のケトン類；ジメチルホルムアミド等のアミド類；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類；メチルナフタレン：シクロヘキサン；動植物油；または脂肪酸等を挙げることが出来る。また、個体坦体としてはクレー、カオリン、タルク、珪藻土、シリカ、炭酸カルシウム、モンモリナイト、ベントナイト、長石、石英、アルミナ、鋸屑、ニトロセルロース、デンプン、アラビアゴム等を用いることが出来る。乳化剤、分散剤としては、通常の界面活性剤を使用することが出来、例えば、高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ラウリルベタイン等の陰イオン系界面活性剤；陽イオン系界面活性剤；非イオン系界面活性剤；または両性イオン系界面活性剤等を用いることが出来る。また、ポリオキシエチレンオニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエーテル等の展着剤；ジアルキルスルホサクシネート等の湿展剤；カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール等の固着剤；リグニンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸ナトリウム等の崩壊剤を用いることが出来る。

本発明の農園芸用殺虫剤における有効成分の含有量は0.1～99.5%の範囲から選ばれ、製剤形態、施用方法等の種々の条件によ

り適宜決定すればよいが、例えば、粉剤では約0.5～20重量％程度、好ましくは１～10重量％程度、水和剤では約１～90重量％程度、好ましくは10～80重量％、乳剤では１～90重量％程度、好ましくは10～40重量％の有効成分を含有するように製造することが好適である。

例えば、乳剤の場合、有効成分である上記化合物に対して溶剤及び界面活性剤等を混合して原液の乳剤を製造することが出来、さらにこの原液を使用に際して所定濃度に希釈して施用することが出来る。水和剤の場合、有効成分の上記化合物、固形坦体及び界面活性剤等を混合して原液を製造し、さらにこの原液を 使用に際して所定濃度に希釈して施用することが出来る。 粉剤の場合、有効成分である上記化合物及び固形坦体等を混合してそのまま施用する事が出来、粒剤の場合には有効成分の上記化合物、固形坦体及び界面活性剤等を混合して造粒する事により製造し、そのまま施用することが出来る。もっとも、上記の各製剤形態の製造方法は上記のものに限定されることはなく、有効成分の種類や施用目的に応じて当業者が適宜選択することができるものである。

本発明の農園芸用殺虫剤には、有効成分である本発明の化合物以外に他の殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、昆虫生育調整剤、肥料、土壌改良剤等の任意の有効成分を配合してもよい。

本発明の農園芸用殺虫剤の施用方法は、特に限定されるものではなく、茎葉散布、水面施用、土壌処理、種子処理等のいずれの方法でも施用する事が出来る。例えば、茎葉散布の場合、５～10000ppm、好ましくは10～500ppmの濃度範囲の溶液を１０アール当たり100～200Ｌ程度の施用量で用いることが出来る。水面施用の場合の施用量は通常、有効成分が５～15％の粒剤では10アール当たり１～10Ｋｇである。土壌処理の場合、５～1000ppmの濃度範囲の溶液を１ｍ２当たり１～10Ｌ程度の施用量で用いることが出来る。種子処理の場合、種子重量１Ｋｇ当たり10～1000ppmの

濃度範囲の溶液を10～100ｍｌ程度施用処理することが出来る。

本発明の家畜、ペット用殺虫剤の施用方法は特に限定されるものではなく、ペットの首輪に塗布する方法、家畜等に散布する方法等のいずれの方法でも施用することが出来る。

以下、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明の範囲は以下の実施例に限定されることはない。

実施例１　（1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾙｱﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙの製造）

1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-5-ｱﾐﾉﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ2.0ｇ、ﾋﾟﾘｼﾞﾝ-4-ｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞ0.7gとトルエン50mlの混合物にp-トルエンスルホン酸を加え、５時間加熱還流した。不溶物を除去後、溶媒を減圧留去し、残さをヘキサンと少量のクロロホルムで洗浄し、粗な　1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾘﾃﾞﾝｲﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ2.0ｇを得た。

融点　　：194～195℃

^{1}HNMR(CDCl３)：6.87(1H,s),7.57(2H,d),7.79(2H,s),8.69(1H,s),　8.76(2H,d)

1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾘﾃﾞﾝｲﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ1.7ｇのメタノール20ml溶液に水素化ほう素ナトリウム0.3ｇを徐々に加えた。室温にて１時間攪拌後、氷を加えた後濃塩酸を徐々に加え、中和した。酢酸エチルを加え、抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。残さをシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾙｱﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ1.5ｇを得た。

融点　　：＞300℃

^{1}HNMR(CDCl３)：3.98(1H,t),　4.37(2H,d),　5.80(1H,s),　7.22(2H,d),　7.80(2H,s),　8.59(2H,d)

実施例２　（1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙｽﾙﾌｪﾆｴﾙ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾙｱﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ（化合物Ｎｏ．１）の製造）

上記実施例１で得られた、1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾙｱﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ0.5ｇをジクロロメタン10ml中に懸濁し、塩化ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙｽﾙﾌｪﾆﾙ0.2ｇのジクロロメタン10mlを－２０℃にて滴下した。冷浴をはずし、３時間攪拌後、氷水を加え、抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。残さをシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、下記表１に記載の化合物（No.１）0.4gを得た。上記化合物のＮＭＲは以下の通りであった。

^{1}HNMR(CDCl３)：4.51(2H,d)，4.65(1H,b)，7.05(2H,d)，7.70(2H,s)，8.53(2H,d)

実施例３　（1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙｽﾙﾌｪﾆﾙ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾙｱﾐﾉ)ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ（化合物Ｎｏ．１）の製造）

1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙｽﾙﾌｪﾆﾙ-5-(4-ﾋﾟﾘｼﾞﾙﾒﾁﾘﾃﾞﾝｲﾐﾉ]ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ2.6gのメタノール１５ｍｌ溶液に水素化ホウ素ナトリウム0.37gを徐々に加えた。室温にて３時間攪拌後、氷を加えた後濃塩酸を徐々に加え、中和した。酢酸エチルを加え、抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。残さをシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、下記表１に記載の化合物（No.１）1.2gを得た。

実施例４　（1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙｽﾙﾌｪﾆﾙ-5-[(3-ﾒﾄｷｼ-4-ﾋﾄﾞﾛｷｼﾌｪﾆﾙ)ﾒﾁﾙｱﾐﾉ]ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ（化合物Ｎｏ．２）の製造）

1-(2,6-ｼﾞｸﾛﾛ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙﾌｪﾆﾙ)-3-ｼｱﾉ-4-ﾄﾘﾌﾙｵﾛﾒﾁﾙｽﾙﾌｪﾆﾙ-5-[(3-ﾒﾄｷｼ-4-ﾋﾄﾞﾛｷｼﾌｪﾆﾙ)ﾒﾁﾘﾃﾞﾝｲﾐﾉ]ﾋﾟﾗｿﾞｰﾙ2.8gのメタノール

１５ｍｌ溶液に水素化ホウ素ナトリウム0.37gを徐々に加えた。室温にて３時間攪拌後、氷を加えた後濃塩酸を徐々に加え、中和した。酢酸エチルを加え、抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。残さをシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、下記表１に記載の化合物（No.２）1.4gを得た。上記化合物のＮＭＲは以下の通りであった。

^{1}HNMR(CDCl３)：3.87(3H,s)，4.32(2H,m)，4.43(1H,b),5.60(1H,bs)，6.62(2H,m)，6.83(1H,m)，7.73(2H,s)

実施例５

実施例２～４の方法に準じて表１に記載の化合物を得た。

No. 3

^{1}H－NMR(CDCl３):4.42(2H,d),4.54(1H,bt),7.12(2H,m),7.29(3H,m),7.68(2H,s)

No. 4

^{1}H－NMR(CDCl３):2.32(3H,s)，4.36(2H,d)，4.47(1H,t)，7.01(2H,d)，7.10(2H,d)，7.67(2H,s)

No. 5

^{1}H－NMR(CDCl３):1.30(9H,s)，4.38(2H,d)，4.50(1H,m)，7.05(2H,d)，7.32(2H,d)，7.69(2H,s)

No. 6

^{1}H－NMR(CDCl３):4.31(2H,d)，4.38(1H,m),4.83(1H,s)，6.75(2H,d)，7.01(2H,d)，7.71(2H,s)

No. 7

^{1}H－NMR(CDCl３):3.79(3H,s)，4.34(2H,d)，4.43(1H,m)，6.8

2(2H, d), 7.05(2H, d), 7.70(2H, s)

No. 8

^{1}H−NMR(CDCl3):1.32(6H, d), 4.32(2H, d), 4.40(1H, m), 4.51(1H, m), 6.80(2H, d), 7.02(2H, d), 7.71(1H, s)

No. 9

^{1}H−NMR(CDCl3):4.39(2H, d), 4.45(1H, b), 6.9−7.4(9H, m), 7.73(2H, s)

No. 10

^{1}H−NMR(CDCl3):4.42(2H, d), 4.48(1H, m), 7.01(4H, q), 7.15(2H, d), 7.60(2H, d), 7.73(2H, s)

No. 11

^{1}H−NMR(CDCl3):4.43(2H, d), 4.50(1H, bt), 6.25 6.48 6.76(1H, t), 7.05(2H, d), 7.12(2H, d), 7.70(2H, s)

No. 12

^{1}H−NMR(CDCl3):4.44(2H, d), 4.57(1H, t), 7.15(4H, s), 7.69(2H, s)

No. 13

^{1}H−NMR(CDCl3):4.35(4H, m), 4.46(1H, m), 6.87(2H, d), 7.09(2H, d), 7.61(2H, s)

No. 14

^{1}H−NMR(CDCl3):4.39(2H, d), 4.49(1H, t), 6.98(2H, t), 7.10(2H, m), 7.70(2H, s)

No. 15

^{1}H−NMR(CDCl3):4.41(2H, d), 4.52(1H, b), 7.06(2H, d), 7.27(2H, d), 7.69(2H, s)

No. 16

^{1}H−NMR(CDCl3):(4.40, 2H, d), (4.54, 1H, m), (7.00, 2H, d), (7.42, 2H, d), (7.69, 2H, s)

No. 17

^{1}H−NMR(CDCl3):4.47(2H, d), 4.54(1H, m), 6.98(1H, t), 7.09(1H, t), 7.19(1H, d), 7.27(1H, m), 7.69(2H, s)

No. 18

^{1}H−NMR(CDCl3):4.49(2H, d), 7.72(1H, t), 7.23(4H, m), 7.65(2H, s)

No. 19

^{1}H−NMR(CDCl3):4.52(2H, d), 4.68(1H, t), 7.24(2H, d), 7.55(2H, d), 7.66(2H, s)

No. 20

^{1}H−NMR(CDCl3):2.46(3H, s), 4.37(2H, d), 4.46(1H, t), 7.04(2H, d), 7.17(2H, d), 7.70(2H, s)

No. 21

^{1}H−NMR(CDCl3):3.05(3H, s), 4.71(2H, d), 6.19(1H, t), 7.41(2H, d), 7.74(2H, s), 7.88(2H, d)

No. 22

^{1}H−NMR(CDCl 3):1.32(6H, d), 4.32(2H, d), 4.40(1H, m), 4.5 1(1H, m), 6.80(2H, d), 7.02(2H, d), 7.71(1H, s)

No. 23

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.64(3H, m), 7.33(2H, d), 7.70(2H, s), 8.1 6(2H, d)

No. 24

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.77(2H<d), 5.01(1H, m), 7.46(2H, m), 7.6 1(1H, m), 7.66(2H, s), 8.01(1H, d)

No. 25

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.64(2H, d), 6.35(1H, t), 7.43(2H, d), 7.5 4(2H, m), 7.73(2H, s)

No. 26

^{1}H−NMR(CDCl 3):1.44(3H, t), 4.04(2H, q), 4.30(2H, d), 4.4 2(1H, b), 5.65(1H, s), 6.60(2H, d), 6.82(1H, d), 7.71(2H, s)

No. 27

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.47(2H, d), 4.67(1H, t), 7.21(2H, s), 7.3 1(1H, s), 7.68(2H, s)

No. 28

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.43(2H, d), 4.63(1H, b), 6.98(2H, d), 7.2 5(1H, d), 7.70(2H, s)

No. 29

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.49(2H, d), 4.60(1H, m), 6.95(3H, m), 7.7 2(2H, s)

No. 30

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.66(2H, d), 6.48(1H, m), 7.37(1H, dd), 7. 49(1H, d), 7.74(2H, s), 7.76(1H, d)

No. 31

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.31(2H, d), 4.42(1H, t), 5.95(2H, s), 6.5 9(2H, m), 6.71(1H, d), 7.72(2H, s)

No. 32

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.59(2H, d), 4.63(1H, m), 7.19(1H, d), 7.4 9(2H, m), 7.60(3H, d), 7.77(3H, m)

No. 33

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.05(3H, s+b), 7.22(1H, m), 7.48(1H, d), 7.72(2H, s), 8.42(1H, s), 8.53(1H, d)

No. 34

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.60(2H, d), 6.11(1H, b), 7.20(2H, m), 7.67(1H, t), 7.79(2H, s), 8.40(1H, d)

No. 35

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.65(2H, d), 5.74(1H, t), 7.03(2H, d), 7.7 4(2H, d), 7.77(2H, s)

No. 36

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.54(2H, d), 4.71(1H, m), 6.98(1H, d), 7.1

1(1H, s), 7.73(2H, s), 8.29(2H, d)

No. 37

^{1}H−NMR(CDCl3):4.45(1H, b), 4.53(2H, d), 7.28(1H, d), 7.47(1H, dd), 7.74(2H, s), 8.20(1H, d)

No. 38

^{1}H−NMR(CDCl3):3.87(3H, s), 4.4−4.6(3H, m), 7.11(1H, s), 7.25(1H, d), 7.40(2H, m), 8.17(1H, d)

No. 39

^{1}H−NMR(CDCl3):2.33(3H, s), 4.58(2H, d), 6.45(1H, m), 6.99(1H, d), 7.05(1H, d), 7.56(1H, t), 7.81(2H, s)

No. 40

^{1}H−NMR(CDCl3):4.623(2H, d), 6.50(1H, m), 7.12(2H, s), 7.77(2H, s)

No. 41

^{1}H−NMR(CDCl3):4.74(2H, d), 6.09(1H, m), 7.84(2H, s), 7.96(1H, s), 8.65(1H, s)

No. 42

^{1}H−NMR(CDCl3):4.44(3H, s), 6.17(1H, d), 6.29(1H, d), 7.31(1H, d), 7.78(2H, s)

No. 43

^{1}H−NMR(CDCl3):4.28(1H, bm), 4.29(2H, d), 6.22(1H, d), 7.30(1H, s), 7.37(1H, d), 7.77(2H, s)

No. 44

^{1}H−NMR(CDCl 3):2.21(3H, s), 4.36(3H, bs), 5.87(1H, s), 6.04(1H, d), 7.78(2H, s)

No. 45

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.36(1H, m), 4.44(2H, d), 6.17(1H, d), 6.22(1H, d), 7.80(2H, s)

No. 46

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.38(1H, b), 4.45(2H, d), 6.23(1H, s), 7.31(1H, s), 7.79(2H, s)

No. 47

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.58(1H, m), 4.66(2H, d), 6.47(1H, d), 7.22(1H, d), 7.82(2H, s)

No. 48

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.42(1H, m), 4.63(2H, d), 6.88(1H, d), 6.93(1H, t), 7.24(1H, m), 7.75(2H, s)

No. 49

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.44(3H, b), 6.83(1H, d), 7.07(1H, m), 7.28(1H, dd), 7.73(2H, s)

No. 50

^{1}H−NMR(CDCl 3):2.43(3H, s), 4..35(1H, m), 4.52(2H, d), 6.55(1H, d), 6.65(1H, d), 7.76(2H, s)

No. 51

^{1}H−NMR(CDCl 3):3.84(3H, s), 4.29(1H, m), 4.45(2H, d), 5.17(1H, d), 6.50(1H, d), 7.77(2H, s)

No. 52

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.38(1H, t), 4.57(2H, d), 6.64(1H, d), 6.87(1H, d), 7.77(2H, s)

No. 53

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.54(1H, t), 4.73(2H, d), 6.85(1H, d), 7.76(1H, d), 7.79(2H, s)

No. 54

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.83(2H, d), 5.17(1H, t), 7.30(1H, d), 7.66(1H, d), 7.76(2H, s)

No. 55

^{1}H−NMR(CDCl 3):2.27(3H, s), 2.61(3H, s), 4.59(2H, d), 4.97(1H, b), 7.78(2H, s)

No. 56

^{1}H−NMR(CDCl 3):1.53(3H, m), 4.28(1H, t), 4.54(2H, d), 5.52(1H, m), 6.91(1H, s), 7.79(2H, s)

No. 57

^{1}H−NMR(CDCl 3):3.51(3H, s), 4.01(1H, t), 4.47(2H, d), 6.05(2H, m), 6.63(1H, t), 7.78(2H, s)

No. 58

^{1}H−NMR(CDCl 3):1.19(3H, t), 2.57(2H, q), 3.68(3H, s), 4.09(1H, m), 4.50(2H, d), 5.94(1H, s), 7.80(2H, s)

No. 59

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.34(1H, t), 4.58(2H, d), 7.12(2H, m), 7.22(1H, d), 7.38(2H, m), 7.66(2H, s). 8.14(1H, b)

No. 60

^{1}H−NMR(CDCl 3):3.75(3H, s), 4.33(1H, m), 4.56(2H, d), 6.96(1H, s), 7.12(1H, t), 7.26(2H, m), 7.37(1H, d), 7.65(2H, s)

No. 61

^{1}H−NMR(CDCl 3):3.81(3H, s), 4.30(1H, t), 4.56(2H, d), 6.84(1H, s), 6.89(1H, dd), 7.09(1H, d), 7.27(1H, d), 7.69(2H, s), 8.03(1H, b)

No. 62

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.11(2H, m), 6.45(1H, b), 6.48(1H, t), 6.98(4H, q), 7.58(1H, s), 7.63(1H, s)

No. 63

^{1}H−NMR(CDCl 3):4.61(2H, m), 6.58(1H, t), 7.4−7.65(5H, m), 7.94(1H, d)

No. 64

^{1}H−NMR(CDCl 3):3.83(3H, s), 4.01(2H, d), 5.58(1H, s), 6.30(1H, m), 6.40(1H, d), 6.55(1H, s), 6.75(1H, d), 7.63(1H, s), 7.68(1H, s)

No. 65

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. 17(2H, d), 6. 62(1H, m), 6. 89(2H, d), 7. 5 4(1H, s), 7. 61(1H, s), 8. 47(2H, d)

No. 66

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. 16(2H, d), 6. 41(1H, m), 7. 19(1H, m), 7. 3 8(1H, d), 7. 61(1H, s), 7. 67(1H, s), 8. 23(1H, s), 8. 52(1H, d)

No. 67

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. 34(2H, d), 7. 00(1H, b), 7. 17(2H, m), 7. 6 5(1H, m), 7. 71(1H, s), 7. 74(1H, s), 8. 38(1H, d)

No. 68

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. 30(2H, d), 6. 21(1H, t), 6. 74(1H, d), 6. 8 8(1H, t), 7. 21(1H, d), 7. 70(2H, d)

No. 69

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. . 49(2H, d), 4. 73(1H, t), 7. 04(2H, d), 7. 69(2H, s), 8. 51(2H, m)

No. 70

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. 50(2H, d), 4. . 73(1H, m), 7. 04(2H, d), 7. 69(2H, s), 8. 52(2H, d)

No. 71

^{1}H−NMR(CDCl 3):4. 50(2H, d), 4. . 75(1H, t), 7. 04(2H, d), 7. 69(2H, s), 8. 52(2H, d)

No. 72

^{1}H−NMR(CDCl 3):2.25(3H, s), 4.31(1H, b), 4.37(2H, d), 7.14(2H, m), 7.29(3H, m), 7.67(2H, s)

No. 73

^{1}H−NMR(CDCl 3):2.24(3H, s), 4.40(1H, m), 4.51(2H, d), 7.10(2H, d), 7.70(2H, s), 8.52(2H, d)

No. 74

^{1}H−NMR(CDCl 3):1.24(3H, t), 2.66(2H, q), 4.45(2H, d), 4.54(1H, t), 7.06(2H, d), 7.66(2H, s), 8.49(2H, d)

No. 75

^{1}H−NMR(CDCl 3):1.28(6H, d), 3.13(1H, m), 4.39(2H, d), 4.64(1H, t), 7.04(2H, d), 7.64(2H, s), 8.47(2H, d)

No. 76

^{1}H−NMR(CDCl 3):3.87(3H, s), 4.24(2H, s), 6.87(2H, d), 7.73(2H, s), 8.48(2H, d)

No. 77

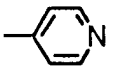
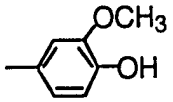
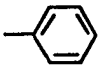
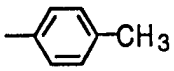
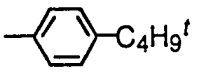
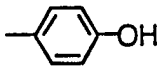
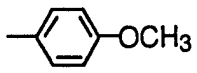
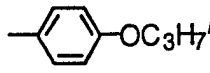
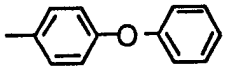
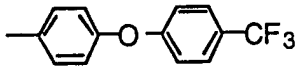
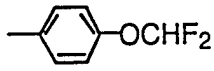
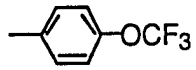
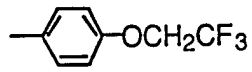
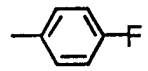
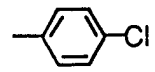
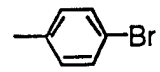
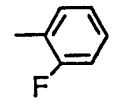
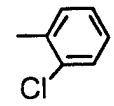
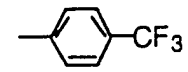
^{1}H−NMR(CDCl 3):2.25(3H, s), 4.17(1H, d), 5.16(1H, d), 6.72(2H, d), 7.26(1H, s), 7.71(1H, s), 8.33(2H, d)

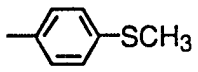
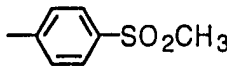
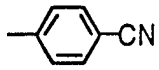
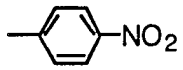
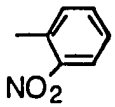
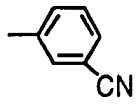
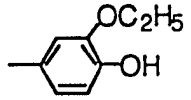
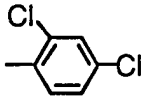
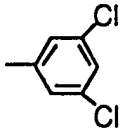
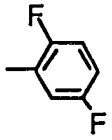
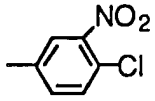
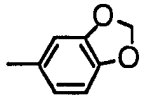
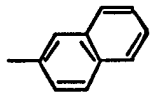
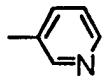
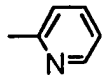
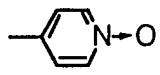
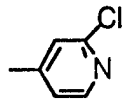
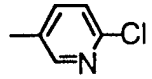
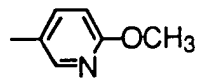
No. 78

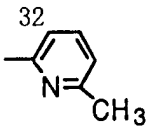
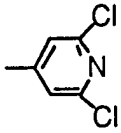
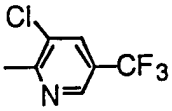
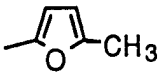
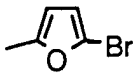
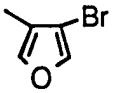
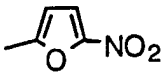
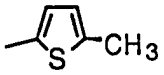
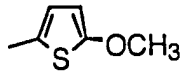
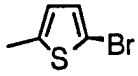
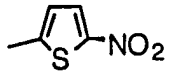
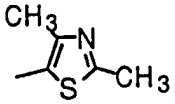
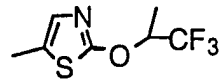
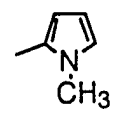
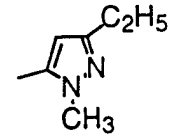
^{1}H−NMR(CDCl 3):4.61(2H, d), 4.67(1H, m), 7.49(2H, m), 7.70(2H, s), 8.00(1H, s), 8.13(1H, m)

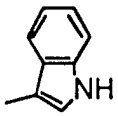
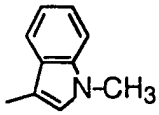
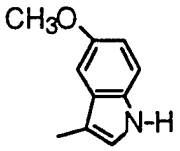
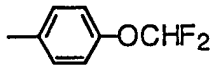
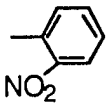
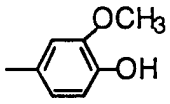
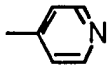
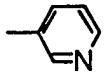
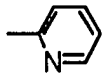
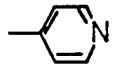
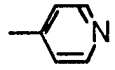
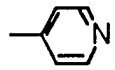
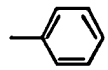
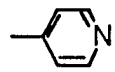
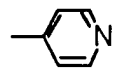
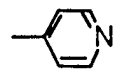
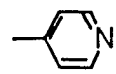
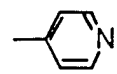
表1

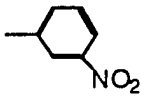
X = CCl, R^2 = H

化合物No.	S(O)nR^1	R^3	R^4	m.p.(℃)
1	SCF_3		H	148-150
2	SCF_3		H	143-145
3	SCF_3		H	152-154
4	SCF_3		H	175
5	SCF_3		H	136-137
6	SCF_3		H	180-182
7	SCF_3		H	124-126
8	SCF_3		H	150-151
9	SCF_3		H	167-168
10	SCF_3		H	139-141
11	SCF_3		H	122-124
12	SCF_3		H	141-143
13	SCF_3		H	153-154
14	SCF_3		H	164
15	SCF_3		H	158-160
16	SCF_3		H	157-159
17	SCF_3		H	140-141
18	SCF_3		H	168-169
19	SCF_3		H	158-159

20	SCF_3		H	157-159
21	SCF_3		H	216-217
22	SCF_3		H	174-175
23	SCF_3		H	169-171
24	SCF_3		H	157-158
25	SCF_3		H	226-228
26	SCF_3		H	125-127
27	SCF_3		H	197-198
28	SCF_3		H	174-176
29	SCF_3		H	156-158
30	SCF_3		H	236-237
31	SCF_3		H	141-143
32	SCF_3		H	159-160
33	SCF_3		H	148-149
34	SCF_3		H	131-133
35	SCF_3		H	191-193
36	SCF_3		H	181-182
37	SCF_3		H	129-131
38	SCF_3		H	143-145

39	SCF_3		H	117-119
40	SCF_3		H	216-218
41	SCF_3		H	121-123
42	SCF_3		H	144-145
43	SCF_3		H	152-154
44	SCF_3		H	131-133
45	SCF_3		H	141-142
46	SCF_3		H	157-159
47	SCF_3		H	154-156
48	SCF_3		H	171-172
49	SCF_3		H	169-171
50	SCF_3		H	173-175
51	SCF_3		H	152-153
52	SCF_3		H	160-161
53	SCF_3		H	177-179
54	SCF_3		H	148-149
55	SCF_3		H	201-203
56	SCF_3		H	181-182
57	SCF_3		H	120-121
58	SCF_3		H	179-180

59	SCF_3		H	183-185
60	SCF_3		H	167-169
61	SCF_3		H	160-162
62	$S(O)CF_3$		H	133-134
63	$S(O)CF_3$		H	146-148
64	$S(O)CF_3$		H	182-183
65	$S(O)CF_3$		H	88-90
66	$S(O)CF_3$		H	165-167
67	$S(O)CF_3$		H	179-181
68	$S(O)CF_3$		H	179-181
69	SCF_2CF_3		H	191-193
70	$SCF_2(CF_2)_2CF_3$		H	133-134
71	$SCF_2(CF_2)_6CF_3$		H	127-129
72	SCH_3		H	127-128
73	SCH_3		H	118-120
74	SC_2H_5		H	139-140
75	$SC_3H_7^i$		H	140-142
76	SCF_3		CH_3	114-115
77	SCF_3		$COCH_3$	184-186

78	SCF_3		H	206-208

以下、本発明の化合物を有効成分として含む農園芸用殺虫剤の製剤例、試験例を示すが、本発明化合物の使用形態は下記のものに限定されることはない。

製剤例１　（水和剤）

本発明の化合物２０重量部、カープレックス＃８０（ホワイトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名）２０重量部、ＳＴカオリンクレー（カオリナイト、土屋カオリン社、商品名）５２重量部、ソルポール９０４７Ｋ（アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名）５重量部、ルノックスＰ６５Ｌ（アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名）３重量部を配合し、均一に混合粉砕して、有効成分２０重量％の水和剤を得た。

製剤例２　（粉剤）

本発明の化合物２重量部、クレー（日本タルク社製）９３重量部、カープレックス＃８０（ホワイトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名）５重量部を均一に混合粉砕して、有効成分２重量％の粉剤を製造した。

製剤例３　（乳剤）

本発明の化合物２０重量部をキシレン３５重量部及びジメチルホルムアミド３０重量部からなる混合溶媒に溶解し、これにソルポール３００５Ｘ（非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤の混合物、東邦化学株式会社、商品名）１５重量部を加えて、有効成分２０重量％の乳剤を得た。

製剤例４　（フロアブル剤）

本発明の化合物３０重量部、ソルポール９０４７Ｋ　５重量部、ソルボンＴ－２０（非イオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名）３重量部、エチレングリコール８重量部および水４４重量部をダイノミル（シンマルエンタープライゼス社製）で混合粉砕し、このスラリー状混合物に１重量％キサンタンガム（天然高分子）水溶液１０重量部を加え、良く混合粉砕して、有効成分２０重量％のフロアブル剤を得た。

試験例１：トビイロウンカの幼虫に対する殺虫効果

ガラス円筒（内径３cm X 長さ１７cm）に稲の芽だし苗をセットし、トビイロウンカ4令 幼虫を5頭放虫した。製剤例３の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺虫剤の水希釈液0.5mlを上記のガラス円筒に散布塔（みずほ理化製）を用いて散布した（１濃度、２反復）。25℃の恒温室内に保持し、処理5日後に幼虫の生死及び苦悶を調査し、苦悶虫を１／２頭死として殺虫率（％）を求めた。結果を表２に示す（表中の化合物番号は表１に対応している）。

表２

化合物Ｎｏ．	濃度(ppm)	殺虫率(%)
1	５００	１００
2	５００	１００
3	５００	１００
4	５００	１００
5	５００	１００
6	５００	１００
7	５００	１００
8	５００	１００

1 1	5 0 0	1 0 0
1 2	5 0 0	1 0 0
1 3	5 0 0	1 0 0
1 4	5 0 0	1 0 0
1 5	5 0 0	1 0 0
1 6	5 0 0	1 0 0
1 7	5 0 0	1 0 0
1 8	5 0 0	1 0 0
1 9	5 0 0	1 0 0
2 0	5 0 0	1 0 0
2 2	5 0 0	1 0 0
2 3	5 0 0	1 0 0
2 4	5 0 0	1 0 0
2 5	5 0 0	1 0 0
2 6	5 0 0	1 0 0
2 7	5 0 0	1 0 0
2 8	5 0 0	1 0 0
2 9	5 0 0	1 0 0
3 0	5 0 0	1 0 0
3 1	5 0 0	1 0 0
3 2	5 0 0	1 0 0
3 3	5 0 0	1 0 0
3 4	5 0 0	1 0 0
3 5	5 0 0	1 0 0
3 6	5 0 0	1 0 0
3 7	5 0 0	1 0 0
3 9	5 0 0	1 0 0
4 0	5 0 0	1 0 0
4 1	5 0 0	1 0 0
4 2	5 0 0	1 0 0

43	500	100
44	500	100
45	500	100
46	500	100
47	500	100
48	500	100
49	500	100
50	500	100
51	500	100
52	500	100
54	500	100
57	500	100
58	500	100
59	500	100
60	500	100
62	500	100
64	500	100
65	500	100
66	500	100
67	500	100
69	500	100
73	500	100
74	500	100
75	500	100

試験例２：コナガの幼虫に対する殺虫効果

製剤例１の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺虫剤の水希釈液中に、キャベツ切葉（直径６cm）を１分間浸漬した。浸漬後風乾しプラスチックカップ（内径７cm）にいれ、このカップ内にコナガの３令幼虫を５頭放虫した（１濃度、２反復）。2

5℃の恒温室内に保持し、放虫４日後に幼虫の生死及び苦悶を調査し、苦悶虫を１／２頭死として殺虫率（％）を求めた。結果を表３に示す（以下の表中、化合物番号は表１に対応している）。

表３

化合物Ｎｏ．	濃度(ppm)	殺虫率(%)
1	５００	１００
2	５００	１００
3	５００	１００
4	５００	１００
6	５００	１００
7	５００	１００
8	５００	１００
１１	５００	１００
１２	５００	１００
１３	５００	１００
１４	５００	１００
１５	５００	１００
１６	５００	１００
１７	５００	１００
１８	５００	１００
１９	５００	１００
２０	５００	１００
２１	５００	１００
２２	５００	１００
２３	５００	１００
２４	５００	１００
２５	５００	１００
２６	５００	１００
２７	５００	１００

2 8	5 0 0	1 0 0
2 9	5 0 0	1 0 0
3 0	5 0 0	1 0 0
3 1	5 0 0	1 0 0
3 2	5 0 0	1 0 0
3 3	5 0 0	1 0 0
3 4	5 0 0	1 0 0
3 5	5 0 0	1 0 0
3 6	5 0 0	1 0 0
3 7	5 0 0	1 0 0
3 9	5 0 0	1 0 0
4 0	5 0 0	1 0 0
4 1	5 0 0	1 0 0
4 2	5 0 0	1 0 0
4 3	5 0 0	1 0 0
4 4	5 0 0	1 0 0
4 5	5 0 0	1 0 0
4 6	5 0 0	1 0 0
4 7	5 0 0	1 0 0
4 8	5 0 0	1 0 0
4 9	5 0 0	1 0 0
5 0	5 0 0	1 0 0
5 1	5 0 0	1 0 0
5 2	5 0 0	1 0 0
5 4	5 0 0	1 0 0
5 7	5 0 0	1 0 0
5 8	5 0 0	1 0 0
5 9	5 0 0	1 0 0
6 0	5 0 0	1 0 0
6 2	5 0 0	1 0 0

64	500	100
65	500	100
66	500	100
67	500	100
69	500	100
70	500	100
73	500	100
74	500	100
75	500	100

試験例３：ハスモンヨトウの幼虫に対する殺虫効果

製剤例１の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺虫剤の水希釈液中に、キャベツ切葉（直径６cm）を１分間浸漬した。浸漬後風乾しプラスチックカップ（内径７cm）にいれ、このカップ内にハスモンヨトウの３令幼虫を５頭放虫した（１濃度、２反復）。25℃の恒温室内に保持し、放虫５日後に幼虫の生死及び苦悶を調査し、苦悶虫を１／２頭死として殺虫率（%）を求めた。結果を表４に示す（以下の表中、化合物番号は表１に対応している）。

表４

化合物Ｎｏ.	濃度(ppm)	殺虫率(%)
1	500	100
2	500	100
3	500	100
7	500	100
11	500	100
15	500	100
16	500	100
17	500	100

1 8	5 0 0	1 0 0
2 0	5 0 0	1 0 0
2 2	5 0 0	1 0 0
2 3	5 0 0	1 0 0
2 4	5 0 0	1 0 0
2 8	5 0 0	1 0 0
2 9	5 0 0	1 0 0
3 3	5 0 0	1 0 0
3 4	5 0 0	1 0 0
3 5	5 0 0	1 0 0
3 6	5 0 0	1 0 0
3 7	5 0 0	1 0 0
3 9	5 0 0	1 0 0
4 0	5 0 0	1 0 0
4 2	5 0 0	1 0 0
4 3	5 0 0	1 0 0
4 4	5 0 0	1 0 0
4 5	5 0 0	1 0 0
4 6	5 0 0	1 0 0
4 7	5 0 0	1 0 0
4 8	5 0 0	1 0 0
4 9	5 0 0	1 0 0
5 1	5 0 0	1 0 0
5 4	5 0 0	1 0 0
5 7	5 0 0	1 0 0
5 9	5 0 0	1 0 0
6 0	5 0 0	1 0 0
6 2	5 0 0	1 0 0
6 5	5 0 0	1 0 0
6 6	5 0 0	1 0 0

６７	５００	１００
６８	５００	１００
６９	５００	１００

試験例４：アズキゾウムシの成虫に対する殺虫効果

ガラス円筒（内径３cm X 長さ１５cm）にあずき豆２個し、アズキゾウムシ成虫を１０頭 放虫した。製剤例３の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺虫剤の水希釈液０．３ml を上記のガラス円筒に散布塔（みずほ理化製）を用いて散布した（１濃度、２反復）。25 ℃の恒温室内に保持し、処理４日後に幼虫の生死及び苦悶を調査し、苦悶虫を１／２頭死 として殺虫率（%）を求めた。結果を表５に示す（表中の化合物番号は表１に対応している）。

表５

化合物Ｎｏ．	濃度(ppm)	殺虫率(%)
１	５００	１００
２	５００	１００
３	５００	１００
４	５００	１００
５	５００	１００
６	５００	１００
７	５００	１００
８	５００	１００
９	５００	１００
１０	５００	１００
１１	５００	１００
１２	５００	１００
１３	５００	１００
１４	５００	１００

15	500	100
16	500	100
17	500	100
18	500	100
19	500	100
20	500	100
21	500	100
22	500	100
23	500	100
24	500	100
25	500	100
26	500	100
27	500	100
28	500	100
29	500	100
30	500	100
31	500	100
32	500	100
33	500	100
34	500	100
35	500	100
36	500	100
37	500	100
39	500	100
40	500	100
41	500	100
42	500	100
43	500	100
44	500	100
45	500	100

４６	５００	１００
４７	５００	１００
４８	５００	１００
４９	５００	１００
５０	５００	１００
５１	５００	１００
５２	５００	１００
５４	５００	１００
５７	５００	１００
５８	５００	１００
５９	５００	１００
６０	５００	１００
６２	５００	１００
６４	５００	１００
６５	５００	１００
６６	５００	１００
６７	５００	１００
６９	５００	１００
７３	５００	１００
７４	５００	１００

試験例５：モモアカアブラムシの幼虫に対する殺虫効果

水を入れたスクリュービン（容量：10ml）に、だいこん葉の葉柄部を挿し、モモアカアブ ラムシを1葉当り5～6頭接種した。接種後、ガラス円筒（径：3.5cm、高さ：15cm、メッ シュの蓋付き）に入れ、3日間25℃の恒温室内でアブラムシを増殖させた。だいこん葉上 のアブラムシ成虫を除去した後、葉を製剤例３の処方に従って製造した本発明の農園芸用 殺虫剤の水希釈液に浸漬処理（約5秒間）し、ガラス円筒内に戻した（１濃度、２反復）。 25℃の恒温室内に保持し、処理後4日目にだいこん葉上

のアブラムシ数を調査し、その結 果に基づき殺虫率（%）を求めた。結果を表６に示す（表中の化合物番号は表１に対応している）。

表６

化合物Ｎｏ．	濃度(ppm)	殺虫率(%)
１	５００	１００
２	５００	１００
１１	５００	１００
２４	５００	１００
４２	５００	１００
４７	５００	１００
５７	５００	１００
６５	５００	１００
７３	５００	１００

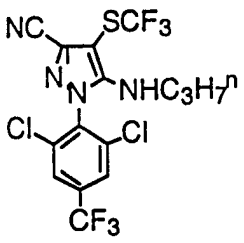
試験例６：低濃度試験

本発明化合物Ｎｏ．２、５７を、対照化合物として特開昭６３－３１６７７１に記載の化合物Ｉ、特開平５－１４８２４０記載の化合物ＩＩ、ＩＩＩを用い、濃度を変えてコナガの幼虫に対する効果を調査した。その結果を表７に示す（表中の化合物番号は表１に対応している）。

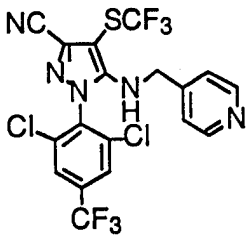
表7

化合物	濃度(ppm)	殺虫率（%） ハスモンヨトウ	コナガ	モモアカアブラムシ
	200	100	100	50
	50	100	100	60
	12.5	50	100	50
	3.1	0	100	0
	0.8	–	85	–
	0.2	–	20	–
I	0.05	–	–	–
	200	100	100	100
	50	100	100	100
	12.5	100	100	98
	3.1	95	100	–
	0.8	–	100	–
	0.2	–	100	–
No.1	0.05	–	95	–
	200	100	100	0
	50	100	100	–
	12.5	95	100	–
	3.1	60	100	–
	0.8	–	100	–
	0.2	–	100	–
II	0.05	–	80	–
	200	100	100	100
	50	100	100	90
	12.5	70	100	80
	3.1	–	100	–
	0.8	–	100	–
	0.2	–	40	–
No.57	0.05	–	–	–

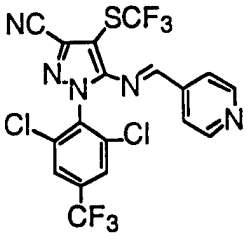
	200	100	100	0
	50	95	100	–
	12.5	65	100	–
	3.1	–	75	–
	0.8	–	20	–
	0.2	–	–	–
III	0.05	–	–	–



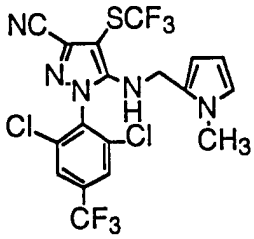
I



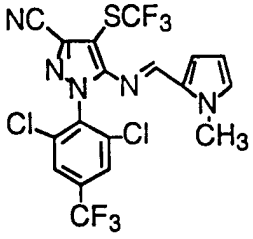
No.1



II



No.57



III

試験例７：マウスにおける強制経口投与による単回投与試験例

本発明化合物としてＮｏ．１を用い、マウスにおける急性毒性（経口）を調べた。対照化合物として特開昭６３－３１６７７１号公報に記載の化合物ＩＶを同様に試験に供した。

０．５％ＣＭＣ－Ｎａ水溶液１０ｍｌに各化合物３００ｍｇを懸濁させ、ＣＤ－１マウス雄（６週齢、チャールズリバー社製）にマウス１Ｋｇ当たり１０ｍｌになるように調整液を強制経口投与した（５匹/群）、投与７日後に死亡したマウスの数を調査し、死亡率を求めた。結果を表８に示す。

表8

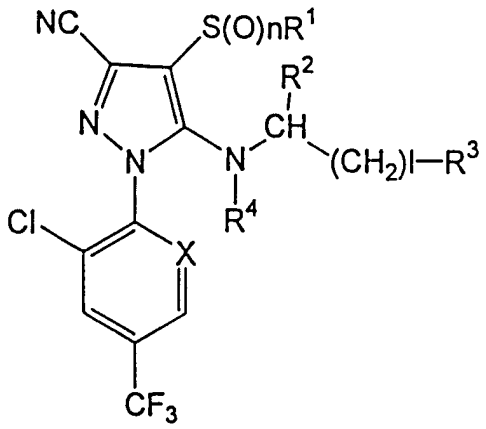
化合物	用量（mg/kg）	死亡率（%）
 IV	300	8
No.2	300	0

産業上の利用可能性

本発明の１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体は、殺虫効果が優れ、殺虫スペクトラムが広く、かつ安全性が高く、環境への悪影響が少ないという特徴を併せ持つ、新規な有害生物防除剤として有用である。

請求の範囲

1、 下記一般式（1）で表される1－アリール－3－シアノ－5－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

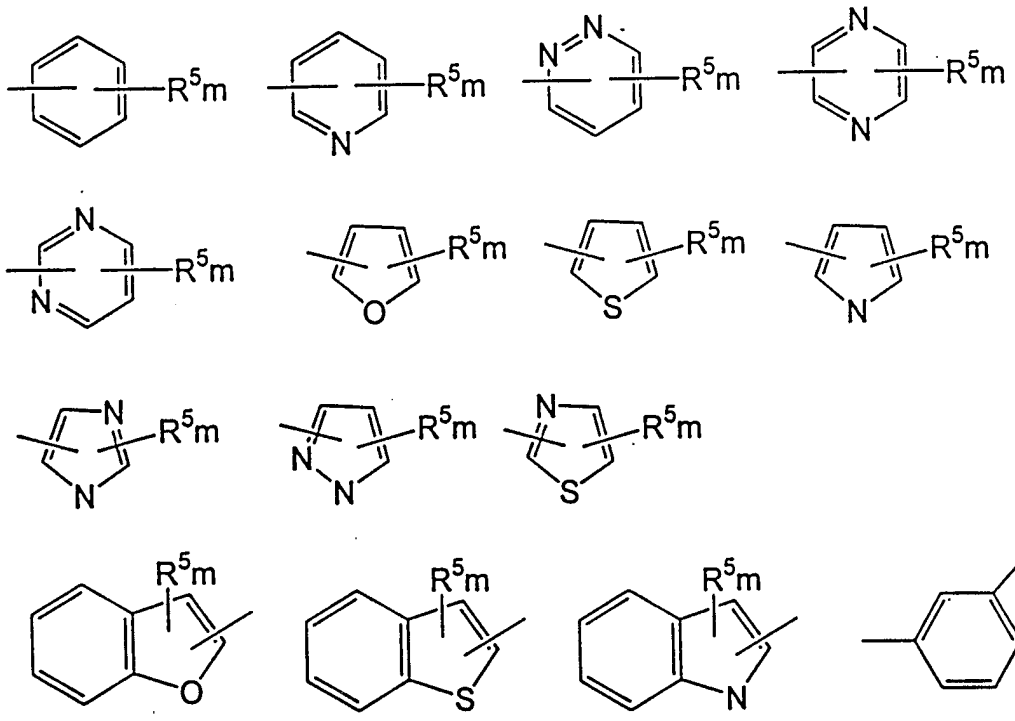


……… (1)

（上記式中、R^1はC1～C4のアルキル基またはC1～C8のハロアルキル基を示し、R^2は水素原子またはC1～C4のアルキル基を示す。R^3は、水素原子、水酸基、C1～C4のアルキル基、C1～C8のハロアルキル基、C1～C4のアルコキシ基、置換されていてもよいフェノキシ基、C1～C4のハロアルコキシ基、C1～C4のアルキルチオ基、C1～C4のアルキスルフィニル基、C1～C4のアルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基から選ばれる置換基で置換されていてもよい、アリール基またはヘテロアリール基を示す。R^4は水素原子、C1～C4のアルキル基またはC1～C5のアシル基を示す。Xは窒素原子、または、ハロゲン原子で置換された炭素原子を示す。1、nはそれぞれ独立して0、1、2のうちいずれかを示す。）

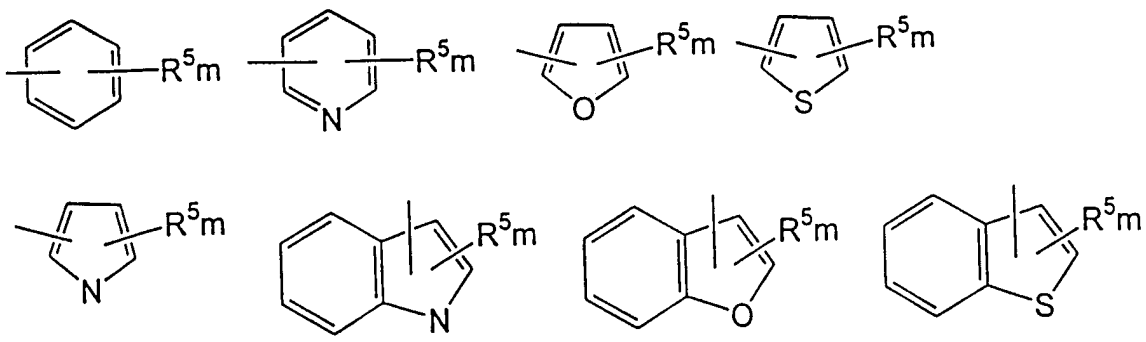
2、 R^2が水素元素である請求の範囲第1項記載の1－アリール－3－シアノ－5－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

3、 R^3が



（上記式中Ｒ５は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基、Ｃ１～Ｃ８のハロアルキル基、Ｃ１～Ｃ４のアルコキシ基、置換されていてもよいフェノキシ基、Ｃ１～Ｃ４のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルチオ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルスルフィニル基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基またはシアノ基を示す。ｍは０、１、２のうちいずれかを示す。）である請求の範囲第１項記載の１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

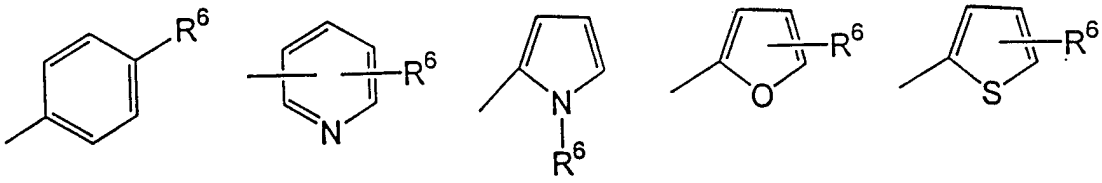
４、　Ｒ３が



（上記式中Ｒ５は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ４のアルキル基、

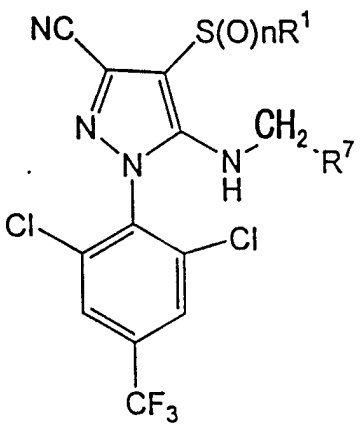
Ｃ１～Ｃ８のハロアルキル基、Ｃ１～Ｃ４のアルコキシ基、置換されていてもよいフェノキシ基、Ｃ１～Ｃ４のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルチオ基、Ｃ１～Ｃ４のアルキスルフィニル基、Ｃ１～Ｃ４のアルキルスルホニル基、ハロゲン原子、ニトロ基またはシアノ基を示す。ｍは０、１、２のうちいずれかを示す。）である請求の範囲第１項記載の１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

５、　Ｒ３が



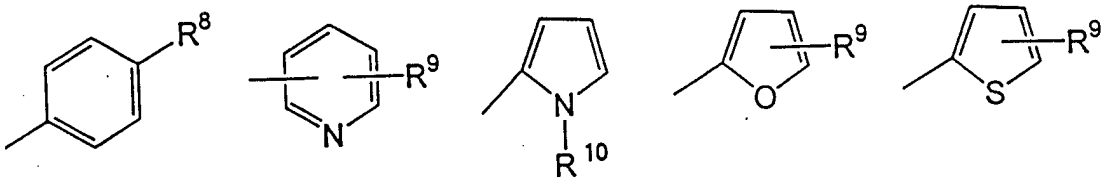
（上記式中Ｒ６は、水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ２のアルキル基、Ｃ１～Ｃ２のアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のアルキルチオ基、ハロゲン原子、ニトロ基またはシアノ基を示す。）である請求の範囲第１項記載の１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

６、　下記一般式（２）



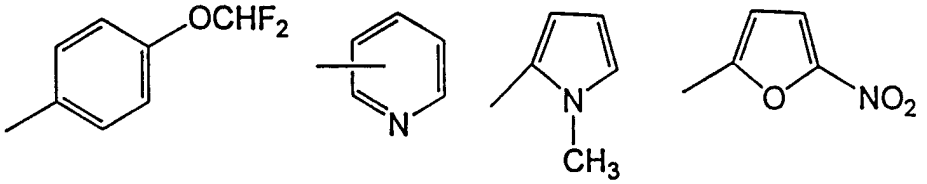
..... (2)

（上記式中Ｒ７は、



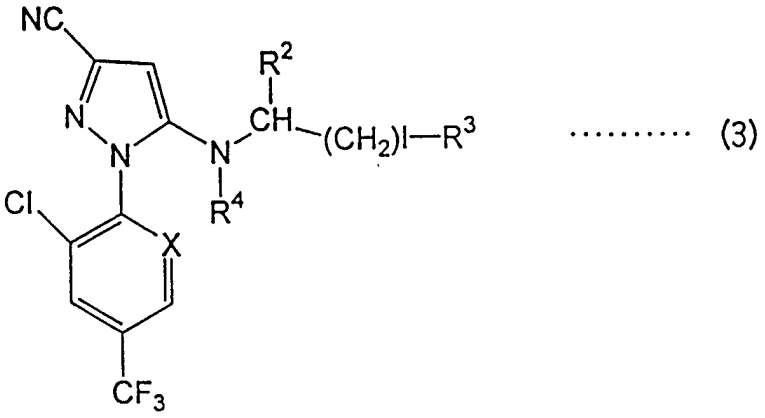
であり、Ｒ８はＣ１～Ｃ２のアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のハロアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のアルキルチオ基、ニトロ基またはシアノ基、Ｒ９は水素原子、水酸基、Ｃ１～Ｃ２のアルコキシ基、Ｃ１～Ｃ２のハロアルコキシ基またはニトロ基、Ｒ１０はＣ１～Ｃ２のアルキル基を示す。）で表される１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

７、　Ｒ７が



である請求の範囲第６項記載の１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

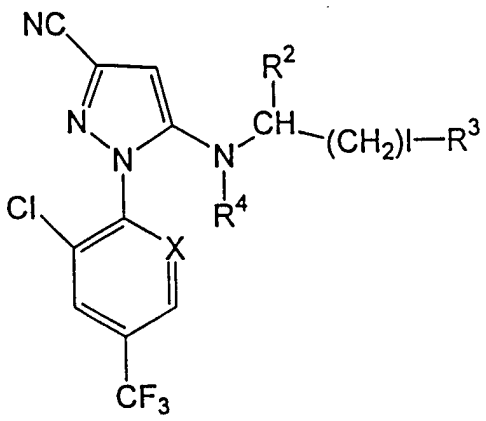
８、　下記一般式（３）



（3）

（上記式中、Ｒ２、Ｒ３、Ｒ４、Ｘ及びｌはそれぞれ請求の範囲第１項で示した通りである。）で表される１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

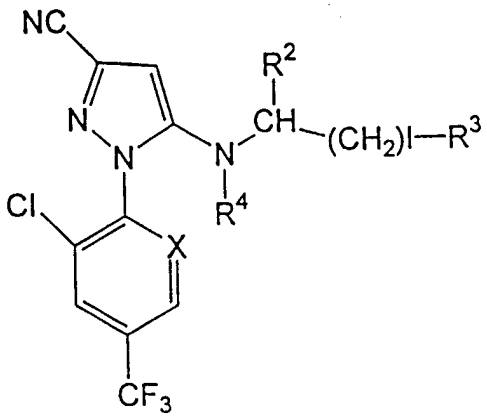
９、下記一般式（３）



……（3）

（上記式中、Ｒ２、Ｒ３、Ｒ４、Ｘ及びｌはそれぞれ請求の範囲第１項で示した通りである。）で表される化合物をＲ１Ｓ（Ｏ）ｎ－Ｙ（式中、Ｒ１及びｎは請求項１で示したとおりであり、Ｙはハロゲン原子、水酸基又はその塩、あるいはジアルキルアミノ基を示す）と反応させて得られることを特徴とする請求の範囲第１項記載の１－アリール－３－シアノ－５－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体。

１０、下記一般式（３）



……（3）

（上記式中、R^2、R^3、R^4、X及びlはそれぞれ請求の範囲第1項で示した通りである。）で表される化合物を$R^1S(O)_n-Y$（式中、R^1及びnは請求の範囲第1項で示したとおりであり、Yはハロゲン原子、水酸基又はその塩、あるいはジアルキルアミノ基を示す）と反応させることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の化合物の製造方法。

11、請求の範囲第1項に記載の1－アリール－3－シアノ－5－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体を有効成分として含む有害生物防除剤。

12、請求の範囲第1項に記載の1－アリール－3－シアノ－5－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体を有効成分として含む殺虫剤。

13、請求の範囲第1項に記載の1－アリール－3－シアノ－5－（ヘト）アリールアルキルアミノピラゾール誘導体を有効成分として含む農園芸用殺虫剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP98/01582

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl[6] C07D231/44, 401/12, 403/12, 405/12, 409/12, 417/12, 231/38, A01N43/56
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl[6] C07D231/44, 401/12, 403/12, 405/12, 409/12, 417/12, 231/38, A01N43/56

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L (QUESTEL)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 63-316771, A (May & Baker Ltd.), December 26, 1988 (26. 12. 88) & EP, 295117, A	1-13
X	JP, 7-278106, A (Rhone-Poulenc Agrochim), October 24, 1995 (24. 10. 95) & EP, 668269, A & US, 5618945, A	8-10
Y	JP, 62-228065, A (May & Baker Ltd.), October 6, 1987 (06. 10. 87) & WO, 87/03781, A1 & EP, 234119, A	1-13
Y	JP, 1-47768, A (Bayer AG.), February 22, 1989 (22. 02. 89) & EP, 301339, A & DE, 3724920, A	1-13
Y	JP, 3-118369, A (Rhone-Poulenc Agriculture Ltd.), May 20, 1991 (20. 05. 91) & EP, 418016, A	1-13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
June 4, 1998 (04. 06. 98)	June 16, 1998 (16. 06. 98)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP98/01582

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 5-148240, A (Rhone-Poulenc Agrochim), June 15, 1993 (15. 06. 93) & EP, 511845, A & US, 5236938, A	1-13

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ９８／０１５８２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Ｉｎｔ．Ｃｌ⁶　Ｃ０７Ｄ２３１／４４，４０１／１２，４０３／１２，４０５／１２，
４０９／１２，４１７／１２，２３１／３８，Ａ０１Ｎ４３／５６

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Ｉｎｔ．Ｃｌ⁶　Ｃ０７Ｄ２３１／４４，４０１／１２，４０３／１２，４０５／１２，
４０９／１２，４１７／１２，２３１／３８，Ａ０１Ｎ４３／５６

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

ＷＰＩ／Ｌ（ＱＵＥＳＴＥＬ）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求の範囲の番号
Ｘ	ＪＰ，６３－３１６７７１，Ａ（メイ・アンド・ベイカー・リミテッド）２６．１２月．１９８８（２６．１２．８８）＆ＥＰ，２９５１１７，Ａ	１－１３
Ｘ	ＪＰ，７－２７８１０６，Ａ（ローヌ－プーラン・アグロシミ）、２４．１０月．１９９５（２４．１０．９５）＆ＥＰ，６６８２６９，Ａ＆ＵＳ，５６１８９４５，Ａ	８－１０
Ｙ	ＪＰ，６２－２２８０６５，Ａ（メイ・アンド・ベイカー・リミテッド）、６．１０月．１９８７（０６．１０．８７）＆ＷＯ，８７／０３７８１，Ａ１＆ＥＰ，２３４１１９，Ａ	１－１３
Ｙ	ＪＰ，１－４７７６８，Ａ（バイエル・アクチエンゲゼルシヤフト）、２２．２月．１９８９（２２．０２．８９）＆ＥＰ，３０１３３９，Ａ＆ＤＥ，３７２４９２０，Ａ	１－１３

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

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

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
０４．０６．９８	16.06.98

国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官（権限のある職員）	４Ｃ	７０１９
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	佐　野　整　博		
	電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５２		

様式ＰＣＴ／ＩＳＡ／２１０（第２ページ）（１９９２年７月）

国際調査報告	国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ９８／０１５８２

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求の範囲の番号
Ｙ	ＪＰ，３－１１８３６９，Ａ（ローヌープーラン・アグリカルチャー・リミテツド）、２０．５月．１９９１（２０．０５．９１）＆ＥＰ，４１８０１６，Ａ	１－１３
Ｙ	ＪＰ，５－１４８２４０，Ａ（ローヌープーラン・アグロシミ）、１５．６月．１９９３（１５．０６．９３）＆ＥＰ，５１１８４５，Ａ＆ＵＳ，５２３６９３８，Ａ	１－１３