

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7631346号
(P7631346)

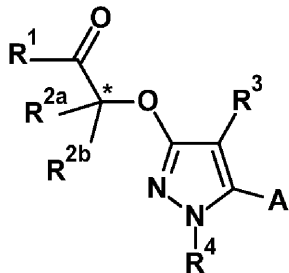
(45)発行日 令和7年2月18日(2025.2.18)

(24)登録日 令和7年2月7日(2025.2.7)

(51)国際特許分類		F I	
C 0 7 D 231/22 (2006.01)	C 0 7 D 231/22	Z C S P	
C 0 7 D 409/04 (2006.01)	C 0 7 D 231/22	A	
A 0 1 N 43/56 (2006.01)	C 0 7 D 409/04		
A 0 1 P 13/00 (2006.01)	A 0 1 N 43/56	B	
	A 0 1 P 13/00		
請求項の数 12 (全172頁)			
(21)出願番号	特願2022-537130(P2022-537130)	(73)特許権者	313006625
(86)(22)出願日	令和2年12月16日(2020.12.16)		バイエル・アクチエンゲゼルシャフト
(65)公表番号	特表2023-506301(P2023-506301 A)		ドイツ連邦共和国、5 1 3 7 3・レーフ
(43)公表日	令和5年2月15日(2023.2.15)		エルクーゼン、カイザー・ヴイルヘルム
(86)国際出願番号	PCT/EP2020/086397	(74)代理人	100114188
(87)国際公開番号	WO2021/122728		弁理士 小野 誠
(87)国際公開日	令和3年6月24日(2021.6.24)	(74)代理人	100119253
審査請求日	令和5年7月24日(2023.7.24)		弁理士 金山 賢教
(31)優先権主張番号	19218173.3	(74)代理人	100124855
(32)優先日	令和1年12月19日(2019.12.19)		弁理士 坪倉 道明
(33)優先権主張国・地域又は機関	欧州特許庁(EP)	(74)代理人	100129713
			弁理士 重森 一輝
		(74)代理人	100137213
			弁理士 安藤 健司
最終頁に続く			

(54)【発明の名称】 1，5－ジフェニルピラゾリル－3－オキシアルキル酸及び1－フェニル－5－チエニルピラゾリル－3－オキシアルキル酸並びに望ましくない植物の生長を制御するためのそれ

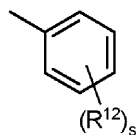
(57)【特許請求の範囲】
【請求項1】
一般式（I）
【化1】



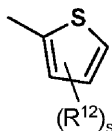
(I)

〔式中、
Aは、A1－A3

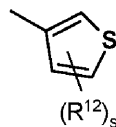
【化 2】



A1



A2



A3 ;

からなる群から選択され；

R^1 は、

- OR^{1a} ；及び、
- NR^9R^{10} ；

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- 水素；
- メチル、エチル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキル、 $(C_1 - C_4)$ - トリアルキルシリル、 $(C_1 - C_6)$ - アルコキシ、シアノ及びニトロからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている]；
- $(C_2 - C_6)$ - アルケニル、 $(C_2 - C_6)$ - ハロアルケニル；

- $(C_2 - C_6)$ - アルキニル；
- $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている]；

- $(C_1 - C_4)$ - アルキル - $SO - (C_1 - C_4)$ - アルキル、 $(C_1 - C_4)$ - アルキル - $SO_2 - (C_1 - C_4)$ - アルキル；

- ヘテロシクリル、ヘテロアリール及びアリール [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている]；

- ヘテロシクリル - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、ヘテロアリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル及びアリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル [ここで、該ヘテロシクリル、ヘテロアリール及びアリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている]；

からなる群から選択され；

R^9 は、水素、 $(C_1 - C_{12})$ - アルキルからなる群から選択され；

R^{10} は、

- 水素；
- アリール、ヘテロアリール、ヘテロシクリル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている]；

- $(C_3 - C_7)$ - シクロアルキル - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、ヘテロシクリル - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、ヘテロアリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、アリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、アリール - $(C_1 - C_4)$ - アルコキシ [ここで、該シクロアルキル、ヘテロシクリル、ヘテロアリール及びアリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている]；

- $(C_1 - C_{12})$ - アルキル； $(C_3 - C_8)$ - シクロアルキル、 $(C_2 - C_{12})$ - アルケニル、 $(C_5 - C_8)$ - シクロアルケニル、 $(C_2 - C_{12})$ - アルキニル [ここで、上記アルキル、シクロアルケニル、アルケニル、シクロアルケニル及びアルキニル

ラジカルは、置換されていないか、又は、シアノ、ニトロ、 OR^5 、 $S(O)_nR^5$ 、 $SO_2NR^6R^7$ 、 $C(O)OR^8$ 、 $CONR^6R^8$ 、 COR^6 、 NR^6R^8 、 NR^6COR^8 、 $NR^6CONR^8R^8$ 、 $NR^6CO_2R^8$ 、 $NR^6SO_2R^8$ 、 $NR^6SO_2NR^6R^8$ 、 $C(R^6)=NOR^8$ からなる群から選択される m のラジカルでそれぞれ独立して置換されている]；

- ・ (C_1-C_{12}) －ハロアルキル；

- ・ $S(O)_nR^5$ 、シアノ、ニトロ、 OR^5 、 $SO_2NR^6R^7$ 、 CO_2R^8 、 COR^8 、 NR^6R^8 、 NR^6COR^8 、 $NR^6CO_2R^8$ 、 $NR^6SO_2R^8$ ；

からなる群から選択され；又は、

R^9 と R^{10} は、それらが結合している窒素原子と一緒に、飽和、部分的不飽和又は完全不飽和の5員、6員又は7員の環[ここで、該環は、ハロゲン、 (C_1-C_6) －アルキル、ハロ－ (C_1-C_6) －アルキル、 OR^5 、 $S(O)_nR^5$ 、 CO_2R^8 、 $CONR^6R^8$ 、 COR^6 及び $C(R^6)=NOR^8$ からなる群から選択されるラジカルで1～6置換されていてもよく、並びに、該環は、環原子として、該窒素原子に加えて、 r 個の炭素原子、 o 個の酸素原子、 p 個の硫黄原子並びに NR^7 、 CO 及び $NCOR^7$ からなる群から選択される q の構成要素を含んでいる]を形成し；

R^5 は、 (C_1-C_6) －アルキル、 (C_3-C_6) －シクロアルキル、 (C_1-C_6) －ハロアルキル又はアリールであり；

R^6 は、水素又は R^5 であり；

R^7 は、水素、 (C_1-C_6) －アルキル、 (C_3-C_6) －シクロアルキル、 (C_3-C_4) －アルケニル又は (C_3-C_4) －アルキニルであり；

R^8 は、水素、 (C_1-C_6) －アルキル、 (C_3-C_6) －シクロアルキル、 (C_3-C_4) －アルケニル又は (C_3-C_4) －アルキニルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

R^3 は、

- ・ ハロゲン、シアノ、イソシアノ、 NO_2 ；
- ・ (C_1-C_6) －アルキル、 (C_3-C_6) －シクロアルキル、 (C_1-C_6) －ハロアルキル、 (C_1-C_6) －アルキルカルボニル、 (C_1-C_6) －ハロアルキルカルボニル、 (C_1-C_4) －アルキルオキシカルボニル；
- ・ (C_2-C_3) －アルケニル、 (C_2-C_3) －ハロアルケニル；
- ・ (C_2-C_3) －アルキニル、 (C_2-C_3) －ハロアルキニル；
- ・ (C_1-C_2) －アルキル－ $S(O)_n$ 及び (C_1-C_2) －ハロアルキル－ $S(O)_n$ ；
- ・ CHO ；
- ・ NH_2 ；

からなる群から選択され；

R^4 は、フェニル[ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

- ・ ハロゲン、シアノ、イソシアノ、ニトロ；
- ・ (C_1-C_6) －アルキル、 (C_1-C_6) －ハロアルキル、 (C_1-C_3) －ハロアルコキシ；
- ・ (C_2-C_3) －アルケニル、 (C_2-C_3) －ハロアルケニル、 (C_1-C_6) －アルコキシ；
- ・ (C_2-C_3) －アルキニル、 (C_2-C_3) －ハロアルキニル、 (C_1-C_4) －アルキル－ $S(O)_n$ ；
- ・ CHO 、 (C_1-C_4) －アルキルオキシカルボニル及び NH_2

からなる群から選択されるラジカルで1置換若しくは多置換されている]であり；

R^{12} は、

- ・ ハロゲン、シアノ、イソシアノ、 NO_2 ；
- ・ (C_1-C_6) - アルキル、 (C_1-C_6) - ハロアルキル、 (C_1-C_6) - アルキルカルボニル、 (C_1-C_6) - ハロアルキルカルボニル、 (C_1-C_4) - アルキルオキシカルボニル、 (C_1-C_6) - アルコキシ、 (C_1-C_3) - ハロアルコキシ、 (C_1-C_4) - アルキル-S(O) $_n$ ；
- ・ (C_2-C_3) - アルケニル、 (C_2-C_3) - ハロアルケニル；
- ・ (C_2-C_3) - アルキニル、 (C_2-C_3) - ハロアルキニル；
- ・ NH_2 ；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである：

- m は、0、1 又は 2 であり；
- n は、0、1 又は 2 であり；
- o は、0、1 又は 2 であり；
- p は、0 又は 1 であり；
- q は、0 又は 1 であり；
- r は、3、4、5 又は 6 であり；及び、
- s は、0、1、2、3、4 又は 5 である]

で表される 1，5 - ジフェニルピラゾリル - 3 - オキシアリル酸及び 1 - フェニル - 5 - チエニルピラゾリル - 3 - オキシアリル酸又はそれらの農薬的に許容される塩；

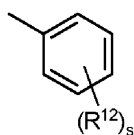
但し、以下の化合物は除外する：

[(4 - クロロ - 1，5 - ジフェニル - 1H - ピラゾール - 3 - イル) オキシ] 酢酸、{ [4 - クロロ - 5 - (4 - メチルフェニル) - 1 - フェニル - 1H - ピラゾール - 3 - イル] オキシ} 酢酸、{ [4 - クロロ - 5 - (3 - クロロフェニル) - 1 - フェニル - 1H - ピラゾール - 3 - イル] オキシ} 酢酸、[(4 - クロロ - 1，5 - ジフェニル - 1H - ピラゾール - 3 - イル) オキシ] 酢酸エチル、{ [4 - クロロ - 5 - (4 - メチルフェニル) - 1 - フェニル - 1H - ピラゾール - 3 - イル] オキシ} 酢酸エチル、{ [4 - クロロ - 5 - (3 - クロロフェニル) - 1 - フェニル - 1H - ピラゾール - 3 - イル] オキシ} 酢酸エチル、2 - (4 - クロロ - 1，5 - ジフェニル - ピラゾール - 3 - イル) オキシプロパン酸、2 - (4 - ブロモ - 1，5 - ジフェニルピラゾール - 3 - イル) オキシプロパン酸。

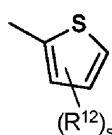
【請求項 2】

A は、A1 - A3

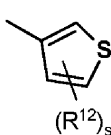
【化 3】



A1



A2



A3 ;

からなる群から選択され；

R^1 は、

- ・ OR^{1a} ；及び、
- ・ NR^9R^{10} ；

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル、エチル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_3$

10

20

30

40

50

－C₆)－シクロアルキル、(C₁－C₄)－トリアルキルシリル、(C₁－C₄)－アルコキシ、シアノ及びニトロからなる群から選択される1以上の置換基で置換されている]；

・ (C₂－C₆)－アルケニル、(C₂－C₆)－ハロアルケニル；

・ アリール－(C₁－C₄)－アルキル [ここで、該アリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、(C₁－C₄)－アルキル、(C₁－C₄)－ハロアルキルからなる群から選択される1以上の置換基で置換されている]；

からなる群から選択され；

R⁹は、水素、(C₁－C₆)－アルキルからなる群から選択され；

R¹⁰は、

・ 水素；

・ (C₃－C₇)－シクロアルキル－(C₁－C₄)－アルキル、アリール－(C₁－C₄)－アルキル、アリール－(C₁－C₄)－アルコキシ [ここで、該シクロアルキル及びアリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、(C₁－C₄)－アルキル、(C₁－C₄)－ハロアルキルからなる群から選択される1以上の置換基で置換されている]；

・ (C₁－C₆)－アルキル、(C₂－C₆)－アルケニル、(C₂－C₆)－アルキニル；(C₃－C₈)－シクロアルキル [ここで、上記アルキル、アルケニル、アルキニル及びシクロアルケニルラジカルは、置換されていないか、又は、シアノ、C(O)OR⁸からなる群から選択されるmのラジカルでそれぞれ独立して置換されている]；

・ (C₁－C₆)－ハロアルキル；

からなる群から選択され；

R⁸は、水素、(C₁－C₆)－アルキル、(C₃－C₆)－シクロアルキルであり；

R^{2a}は、

・ 水素；

・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b}は、水素であり；

R³は、

・ フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、シアノ、イソシアノ、NO₂；

・ (C₁－C₆)－アルキル、(C₃－C₆)－シクロアルキル、(C₁－C₆)－ハロアルキル、(C₁－C₄)－アルキルオキシカルボニル；

・ (C₂－C₃)－アルキニル、(C₂－C₃)－ハロアルキニル；

からなる群から選択され；

R⁴は、フェニル [ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

・ フッ素、塩素、臭素；

・ メチル、エチル；

・ メトキシ、エトキシ；

からなる群から選択されるラジカルで1置換若しくは多置換されている]であり；

R¹²は、

・ ハロゲン、シアノ、ニトロ；

・ (C₁－C₆)－アルキル、(C₁－C₆)－ハロアルキル、(C₁－C₃)－ハロアルコキシ；

・ (C₁－C₆)－アルコキシ；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである：

mは、0、1又は2であり；

sは、0、1、2、3である；

請求項1に記載の式(I)で表される化合物又はそれらの農業的に許容される塩；

但し、以下の化合物は除外する：

[(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸、 { [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イ

10

20

30

40

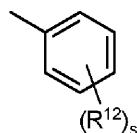
50

ル] オキシ} 酢酸、{ [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、[(4-クロロ-1,5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸エチル、{ [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸エチル、{ [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸エチル、2-(4-クロロ-1,5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸、2-(4-ブromo-1,5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸。

【請求項3】

Aは、A1

【化4】



A1

であり；

R^1 は、

- ・ OR^{1a} ；及び、
- ・ NR^9R^{10} ；

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル、エチル、トリメチルシリルメチル；
- ・ 1-プロペニル、2-プロペニル；
- ・ ベンジル、1-フェニルエチル、2-フェニルエチル [ここで、挙げられている3つの基のそれぞれにおけるフェニルラジカルは、置換されていないか、又は、ハロゲンで置換されている]；

からなる群から選択され；

R^9 は、水素であり；

R^{10} は、

- ・ 水素；
- ・ シクロプロピルメチル；
- ・ ベンジル、1-フェニルエチル、2-フェニルエチル、ベンジルオキシ [ここで、挙げられている4つの基のそれぞれにおけるフェニルラジカルは、置換されていないか、又は、ハロゲンで置換されている]；

・ メチル、エチル、プロピル、1-メチルエチル、ブチル、1-メチルプロピル、2-メチルプロピル、1,1-ジメチルエチル、ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、2,2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、ヘキシル [ここで、上記ラジカルは、置換されていないか、又は、 $C(O)OR^8$ ラジカルでそれぞれ独立して1置換されている]；

・ シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル [ここで、挙げられている3つのラジカルは、置換されていないか、又は、 $C(O)OR^8$ ラジカルでそれぞれ独立して1置換されている]；

・ 1-プロペニル、2-プロペニル、2-メチル-2-プロペニル、プロパー-2-イン-1-イル、ブター-2-イン-1-イル；

からなる群から選択され；

R^8 は、水素、メチル、エチルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

R^3 は、

- ・ フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、シアノ、 NO_2 ；
- ・ トリフルオロメチル；
- ・ エチニル；
- ・ $C(O)OMe$ ；

からなる群から選択され；

R^4 は、フェニル [ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

- ・ フッ素、塩素、臭素；
- ・ メチル、エチル；
- ・ メトキシ、エトキシ；

からなる群から選択されるラジカルで1置換若しくは多置換されている]であり；

R^{12} は、

- ・ フッ素、塩素、 NO_2 ；
- ・ トリフルオロメチル、メトキシ、エトキシ；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである：

s は、1、2、3である；

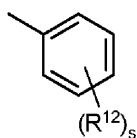
請求項1又は2に記載の式(I)で表される化合物又はそれらの農薬的に許容される塩；
但し、以下の化合物は除外する：

[(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸、 { [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、 { [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、 [(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸エチル、 { [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸エチル、 { [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸エチル、 2-(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸、 2-(4-ブromo-1, 5-ジフェニルピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸。

【請求項4】

A は、A1

【化5】



A1 ;

であり；

R^1 は、

- ・ OR^{1a} ；及び、
- ・ NR^9R^{10} ；

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル、エチル；
- ・ 2-プロペニル；

からなる群から選択され；

R^9 は、水素であり；

R^{10} は、

- ・ $C(O)OR^8$ で1置換されているシクロペンチル；
- ・ シクロプロピルメチル；
- ・ $CH_2C(O)OR^8$ 、 $CH_2CH_2C(O)OR^8$ ；
- ・ 2-プロペニル、プロパー2-イン-1-イル；

からなる群から選択され；

R^8 は、水素、メチル、エチルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

R^3 は、

- ・ 塩素、臭素、ヨウ素、シアノ、 NO_2 ；

からなる群から選択され；

R^4 は、フェニル〔ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

- ・ フッ素、塩素；

からなる群から選択されるラジカルで1置換若しくは多置換されている〕であり；

R^{12} は、

- ・ フッ素、塩素；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである：

s は、1、2である；

請求項1～3のいずれかに記載の式(I)で表される化合物又はそれらの農業的に許容される塩；

但し、以下の化合物は除外する：

〔(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル)オキシ〕酢酸、{〔4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ}酢酸、{〔4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ}酢酸、〔(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル)オキシ〕酢酸エチル {〔4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ}酢酸、エチル、{〔4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ}酢酸エチル、2-(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル)オキシプロパン酸、2-(4-ブromo-1, 5-ジフェニルピラゾール-3-イル)オキシプロパン酸。

【請求項5】

請求項1～4のいずれかに記載の一般式(Ia)で表される化合物又はそれらの農業的に許容される塩を調製する方法であって、一般式(II)で表される化合物と一般式(III)で表される化合物を反応させて一般式(IV)で表される化合物を生成させ、それらを一般式(V)で表される化合物と反応させて式(Ia)で表される化合物を生成させることによる、前記方法：

10

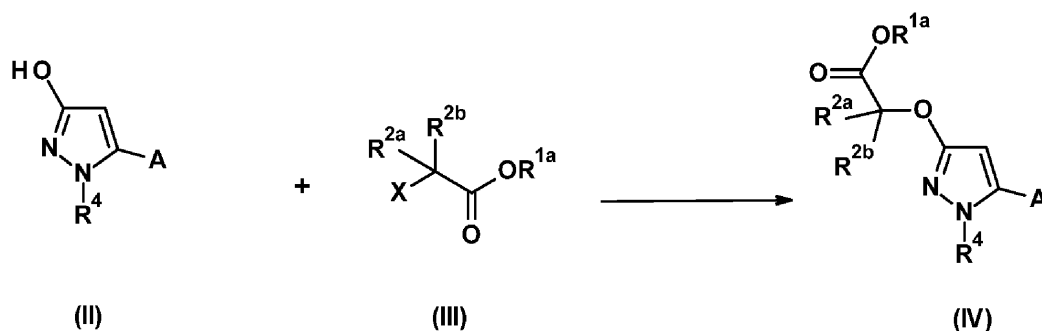
20

30

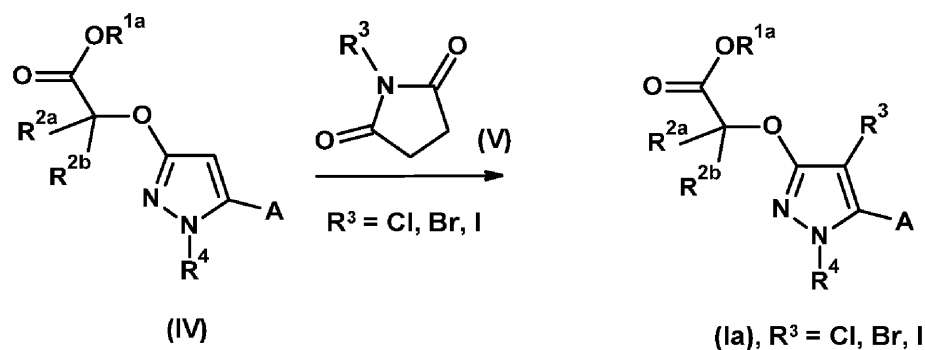
40

50

【化 6】



10



20

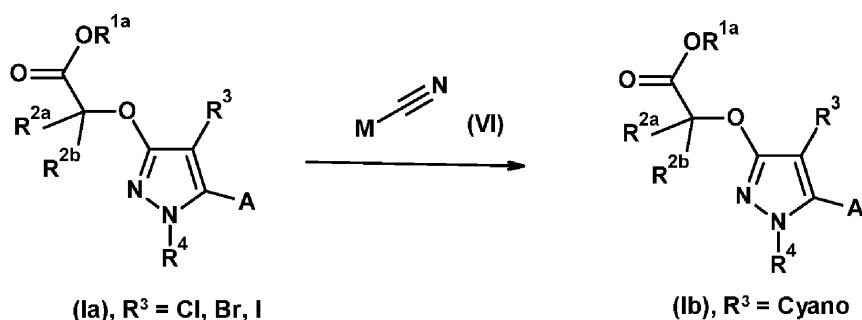
ここで、 R^4 、 R^{2a} 、 R^{2b} 、 R^{1a} 、 R^3 及びAは上記で与えられている定義を有し、並びに、Xは、塩素、臭素又はヨウ素である。

【請求項 6】

請求項 1～4 のいずれかに記載の式 (I b) で表される化合物又はそれらの農薬的に許容される塩を調製する方法であって、一般式 (I a) (式中、 R^4 、 R^{2a} 、 R^{2b} 、 R^{1a} 、 R^3 及びAは上記で与えられている定義を有する) で表される化合物を式 (V I) で表される化合物とさらに反応させて式 (I b) で表される化合物を生成させることによる、前記方法：

30

【化 7】



40

【請求項 7】

農薬組成物であって、(a) 請求項 1～4 の 1 項以上で定義されている式 (I) で表される少なくとも 1 の化合物又はそれらの農薬的に許容される塩、及び、(b) 作物保護において慣習的な補助剤及び添加剤、を含んでいる、前記農薬組成物。

【請求項 8】

農薬組成物であって、

(a) 請求項 1～4 の 1 項以上で定義されている式 (I) で表される少なくとも 1 の化合物又はそれらの農薬的に許容される塩；

50

(b) 成分(a)以外の1以上の農薬活性成分；及び、場合により、
(c) 作物保護において慣習的な補助剤及び添加剤；
を含んでいる、前記農薬組成物。

【請求項9】

望ましくない植物を防除する方法又は植物の成長を調節する方法であって、有効量の請求項1～4の1項以上で定義されている式(I)で表される少なくとも1の化合物又はそれらの農薬的に許容される塩を、当該植物、当該種子又は当該植物が生育している領域に施用する、前記方法。

【請求項10】

除草剤又は植物成長調節剤としての、請求項1～4の1項以上で定義されている式(I)で表される化合物又はそれらの農薬的に許容される塩の使用。

【請求項11】

式(I)で表される化合物又はそれらの農薬的に許容される塩が有害な植物を防除するために又は作物植物における成長を調節するために使用される、請求項10に記載の使用。

【請求項12】

前記作物植物がトランスジェニック作物植物又は非トランスジェニック作物植物である、請求項11に記載の使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、除草活性を有する一般式(I)で表される新規置換1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及びそれらの誘導体又はそれらの農薬的に許容される塩、それらを調製する方法、並びに、有用な植物の作物における広葉雑草とイネ科雑草を防除するための及び植物の生長が問題となる環境の地域における広葉雑草とイネ科雑草を一般的に防除するためのそれらの使用に関する。

【0002】

該1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類の誘導体には、特に、それらのエステル、塩及びアミドが包含される。

【背景技術】

【0003】

従来技術は、置換1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシ酢酸類及び置換1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類の生物学的効果並びにこれら化合物を調製する方法について開示している。DE 2828529A1には、1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシ酢酸類の調製方法及びその脂質低減効果が記載されている。CN 101284815には、殺細菌活性農薬としての1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシ酢酸誘導体が開示されている。「Journal of Heterocyclic Chemistry (2012), 49(6), 1370-1375」には、1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシ酢酸類のさらなる合成方法及び殺菌作用について記載されている。置換1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類の合成方法並びにFXR及びLXRモジュレーターとしてのそれらの薬学的作用は、WO 2008/073825A1に記載されている。

【0004】

置換1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及び置換1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類は、今日まで、除草剤としては知られていない。

【0005】

上記資料の全ての1, 5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸誘導体及び全ての1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸誘導体の特徴は、そ

10

20

30

40

50

のピラゾールの4位が置換されていないということである。

【0006】

それに反して、本発明による1,5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類の共通する特徴は、そのピラゾール環の4位におけるさらなる置換基である。従って、本発明は、ピラゾールの4位においてもっぱら置換されている($R^3 \neq$ 水素)1,5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類並びにそれらの誘導体を提供する。

【0007】

WO 2008/083233 A2には、細胞集合体を分解させるのに適した物質としてのピラゾールの4位において置換されている1,5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及びそれらの誘導体が記載されている。[(4-クロロ-1,5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル)オキシ]酢酸エチルが具体的に開示されている。

10

【0008】

さらにさらに、数種類の4-クロロ-1,5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシ酢酸及びそのエチルエステル合成については「European Journal of Organic Chemistry (2011), 2011 (27), 5323-5330」に具体的に記載されている：

[(4-クロロ-1,5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル)オキシ]酢酸

{ [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ } 酢酸

20

{ [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ } 酢酸

[(4-クロロ-1,5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル)オキシ]酢酸エチル

{ [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ } 酢酸エチル

{ [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ } 酢酸エチル。

【0009】

WO 2008/141154には、以下のものが開示されている： 2-(4-クロロ-1,5-ジフェニルピラゾール-3-イル)オキシプロパン酸、及び、2-(4-ブromo-1,5-ジフェニルピラゾール-3-イル)オキシプロパン酸。

30

【0010】

これらの化合物の除草作用については、記載されていない。

【0011】

本出願に包含される1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシ酢酸類又は1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸類及びそれらの誘導体は、今日まで知られていない。

【先行技術文献】

【特許文献】

40

【0012】

【文献】DE 2828529 A1

【文献】CN 101284815

【文献】WO 2008/073825 A1

【文献】WO 2008/083233 A2

【文献】WO 2008/141154

【非特許文献】

【0013】

【文献】Journal of Heterocyclic Chemistry (2012), 49 (6), 1370-1375

50

【文献】 European Journal of Organic Chemistry (2011), 2011 (27), 5323-5330

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0014】

本発明の目的は、有害な植物に対する十分な除草作用及び広い活性スペクトルを有し、並びに／又は、有用な植物の作物において高度な選択性を有して、除草剤又は植物成長調節剤として使用することが可能な、新規ピラゾール誘導体、即ち、1,5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアシル酸類及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアシル酸類及びそれらの誘導体を提供することである。

10

【課題を解決するための手段】

【0015】

該目的は、極めて良好な除草作用を有し、極めて良好な選択性も有している、ピラゾール環の4位におけるさまざまな置換基を特徴とする置換ピラゾリル-3-オキソアルキル酸によって、即ち、4-置換1,5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアシル酸誘導体及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアシル酸誘導体によって、達成される。

【0016】

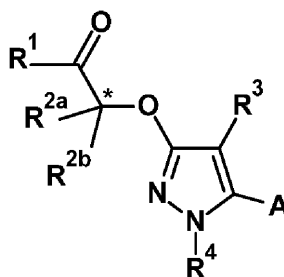
驚くべきことに、これらの化合物は、経済的に重要な広範囲のイネ科雑草及び広葉雑草に対して極めて有効である。同時に、該化合物は、良好な作物植物適合性を示す。従って、それらは、有害な植物に対して優れた効力を有する場合、作物植物において選択的に使用することができる。

20

【0017】

従って、本発明は、一般式 (I)

【化1】



30

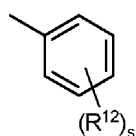
(I)

〔式中、

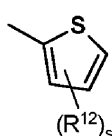
A は、A1 - A3

【化2】

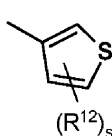
40



A1



A2



A3 ;

からなる群から選択され；

R¹ は、

50

- OR^{1a} ; 及び、
- NR^9R^{10} ;

からなる群から選択され ; ここで、

R^{1a} は、

- 水素 ;
- メチル、エチル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキル、 $(C_1 - C_4)$ - トリアルキルシリル、 $(C_1 - C_6)$ - アルコキシ、シアノ及びニトロからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている] ;

• $(C_2 - C_6)$ - アルケニル、 $(C_2 - C_6)$ - ハロアルケニル ;

• $(C_2 - C_6)$ - アルキニル ;

• $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている] ;

• $(C_1 - C_4)$ - アルキル - $SO - (C_1 - C_4)$ - アルキル、 $(C_1 - C_4)$ - アルキル - $SO_2 - (C_1 - C_4)$ - アルキル ;

• ヘテロシクリル、ヘテロアリール及びアリール [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている] ;

• ヘテロシクリル - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、ヘテロアリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル及びアリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル [ここで、該ヘテロシクリル、ヘテロアリール及びアリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている] ;

からなる群から選択され ;

R^9 は、水素、 $(C_1 - C_{12})$ - アルキルからなる群から選択され ;

R^{10} は、

- 水素 ;
- アリール、ヘテロアリール、ヘテロシクリル [ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている] ;

• $(C_3 - C_7)$ - シクロアルキル - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、ヘテロシクリル - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、ヘテロアリール - $(C_1 - C_4)$ - アルキル、アリール - $(C_1 - C_4)$ - アルコキシ [ここで、該シクロアルキル、ヘテロシクリル、ヘテロアリール及びアリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキルからなる群から選択される 1 以上の置換基で置換されている] ;

• $(C_1 - C_{12})$ - アルキル ; $(C_3 - C_8)$ - シクロアルキル、 $(C_2 - C_{12})$ - アルケニル、 $(C_5 - C_8)$ - シクロアルケニル、 $(C_2 - C_{12})$ - アルキニル [ここで、上記アルキル、シクロアルケニル、アルケニル、シクロアルケニル及びアルキニルラジカルは、置換されていないか、又は、シアノ、ニトロ、 OR^5 、 $S(O)_nR^5$ 、 $SO_2NR^6R^7$ 、 $C(O)OR^8$ 、 $CONR^6R^8$ 、 COR^6 、 NR^6R^8 、 NR^6COR^8 、 $NR^6CONR^8R^8$ 、 $NR^6CO_2R^8$ 、 $NR^6SO_2R^8$ 、 $NR^6SO_2NR^6R^8$ 、 $C(R^6) = NOR^8$ からなる群から選択される m のラジカルでそれぞれ独立して置換されている] ;

• $(C_1 - C_{12})$ - ハロアルキル ;

• $S(O)_nR^5$ 、シアノ、ニトロ、 OR^5 、 $SO_2NR^6R^7$ 、 CO_2R^8 、 COR^8 、 NR^6R^8 、 NR^6COR^8 、 $NR^6CO_2R^8$ 、 $NR^6SO_2R^8$;

からなる群から選択され ; 又は、

R^9 と R^{10} は、それらが結合している窒素原子と一緒に、飽和、部分的不飽和又は完全不飽和の 5 員、6 員又は 7 員の環 [ここで、該環は、ハロゲン、 $(C_1 - C_6)$ - アル

10

20

30

40

50

キル、ハロ- (C_1-C_6) -アルキル、 OR^5 、 $S(O)_nR^5$ 、 CO_2R^8 、 $CONR^6R^8$ 、 COR^6 及び $C(R^6)=NOR^8$ からなる群から選択されるラジカルで 1~6 置換されていてよく、並びに、該環は、環原子として、該窒素原子に加えて、 r 個の炭素原子、 o 個の酸素原子、 p 個の硫黄原子並びに NR^7 、 CO 及び $NCOR^7$ からなる群から選択される q の構成要素を含んでいる] を形成し；

R^5 は、(C_1-C_6) -アルキル、(C_3-C_6) -シクロアルキル、(C_1-C_6) -ハロアルキル又はアリールであり；

R^6 は、水素又は R^5 であり；

R^7 は、水素、(C_1-C_6) -アルキル、(C_3-C_6) -シクロアルキル、(C_3-C_4) -アルケニル又は (C_3-C_4) -アルキニルであり；

R^8 は、水素、(C_1-C_6) -アルキル、(C_3-C_6) -シクロアルキル、(C_3-C_4) -アルケニル又は (C_3-C_4) -アルキニルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

R^3 は、

- ・ ハロゲン、シアノ、イソシアノ、 NO_2 ；
- ・ (C_1-C_6) -アルキル、(C_3-C_6) -シクロアルキル、(C_1-C_6) -ハロアルキル、(C_1-C_6) -アルキルカルボニル、(C_1-C_6) -ハロアルキルカルボニル、(C_1-C_4) -アルキルオキシカルボニル；
- ・ (C_2-C_3) -アルケニル、(C_2-C_3) -ハロアルケニル；
- ・ (C_2-C_3) -アルキニル、(C_2-C_3) -ハロアルキニル；
- ・ (C_1-C_2) -アルキル- $S(O)_n$ 及び (C_1-C_2) -ハロアルキル- $S(O)_n$ ；
- ・ CHO ；
- ・ NH_2 ；

からなる群から選択され；

R^4 は、フェニル [ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

- ・ ハロゲン、シアノ、イソシアノ、ニトロ；
- ・ (C_1-C_6) -アルキル、(C_1-C_6) -ハロアルキル、(C_1-C_3) -ハロアルコキシ；
- ・ (C_2-C_3) -アルケニル、(C_2-C_3) -ハロアルケニル、(C_1-C_6) -アルコキシ；
- ・ (C_2-C_3) -アルキニル、(C_2-C_3) -ハロアルキニル、(C_1-C_4) -アルキル- $S(O)_n$ ；
- ・ CHO 、(C_1-C_4) -アルキルオキシカルボニル及び NH_2

からなる群から選択されるラジカルで 1 置換若しくは多置換されている] であり；

R^{12} は、

- ・ ハロゲン、シアノ、イソシアノ、 NO_2 ；
- ・ (C_1-C_6) -アルキル、(C_1-C_6) -ハロアルキル、(C_1-C_6) -アルキルカルボニル、(C_1-C_6) -ハロアルキルカルボニル、(C_1-C_4) -アルキルオキシカルボニル、(C_1-C_6) -アルコキシ、(C_1-C_3) -ハロアルコキシ、(C_1-C_4) -アルキル- $S(O)_n$ ；
- ・ (C_2-C_3) -アルケニル、(C_2-C_3) -ハロアルケニル；
- ・ (C_2-C_3) -アルキニル、(C_2-C_3) -ハロアルキニル；
- ・ NH_2 ；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである：

mは、0、1又は2であり；
 nは、0、1又は2であり；
 oは、0、1又は2であり；
 pは、0又は1であり；
 qは、0又は1であり；
 rは、3、4、5又は6であり；及び、
 sは、0、1、2、3、4又は5である）

で表される置換1，5-ジフェニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸及び1-フェニル-5-チエニルピラゾリル-3-オキシアルキル酸及びそれらの農薬的に許容される塩を提供する；

10

但し、以下の化合物は除外する：

〔（4-クロロ-1，5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル）オキシ〕酢酸、〔〔4-クロロ-5-（4-メチルフェニル）-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ〕酢酸、〔〔4-クロロ-5-（3-クロロフェニル）-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ〕酢酸、〔（4-クロロ-1，5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル）オキシ〕酢酸エチル、〔〔4-クロロ-5-（4-メチルフェニル）-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ〕酢酸エチル、〔〔4-クロロ-5-（3-クロロフェニル）-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕オキシ〕酢酸エチル、2-（4-クロロ-1，5-ジフェニルピラゾール-3-イル）オキシプロパン酸、2-（4-ブromo-1，5-ジフェニルピラゾール-3-イル）オキシプロパン酸。

20

【0018】

定義

上記式において使用されている記号の定義では、概して下記置換基を表す集合語を使用した。

【0019】

ハロゲン： フッ素、塩素、臭素又はヨウ素、好ましくは、フッ素、塩素又は臭素、及び、さらに好ましくは、フッ素又は塩素。

【0020】

アルキル： 1～8個（好ましくは、1～6個、及び、さらに好ましくは、1～4個）の炭素原子を有している直鎖又は分枝鎖の飽和炭化水素ラジカル、例えば、（限定するものではないが）C₁-C₆-アルキル、例えば、メチル、エチル、プロピル（n-プロピル）、1-メチルエチル（イソプロピル）、ブチル（n-ブチル）、1-メチルプロピル（sec-ブチル）、2-メチルプロピル（イソブチル）、1，1-ジメチルエチル（tert-ブチル）、ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、2，2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、1，1-ジメチルプロピル、1，2-ジメチルプロピル、ヘキシル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1，1-ジメチルブチル、1，2-ジメチルブチル、1，3-ジメチルブチル、2，2-ジメチルブチル、2，3-ジメチルブチル、3，3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1，1，2-トリメチルプロピル、1，2，2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル及び1-エチル-2-メチルプロピル。この基は、特に、C₁-C₄-アルキル基、例えば、メチル、エチル、プロピル、1-メチルエチル（イソプロピル）、ブチル、1-メチルプロピル（sec-ブチル）、2-メチルプロピル（イソブチル）又は1，1-ジメチルエチル（tert-ブチル）基である。別途定義されていない限り、例えば、アルキルスルファニル、アルキルスルフィニル、アルキルスルホニル、ハロアルキル又はハロアルキルスルファニルに関して、この定義は、複合置換基（例えば、シクロアルキルアルキル又はヒドロキシアルキル）の一部としてのアルキルにも当てはまる。

30

40

【0021】

アルケニル： 2～8個（好ましくは、2～6個、及び、さらに好ましくは、2～4個）

50

の炭素原子及び任意の位置において二重結合を有している直鎖又は分枝鎖の不飽和炭化水素基、例えば、(限定するものではないが) C_2-C_6 -アルケニル、例えば、ビニル、アリル、(E)-2-メチルビニル、(Z)-2-メチルビニル、イソプロベニル、ホモアリル、(E)-ブター-2-エニル、(Z)-ブター-2-エニル、(E)-ブター-1-エニル、(Z)-ブター-1-エニル、2-メチルプロパー-2-エニル、1-メチルプロパー-2-エニル、2-メチルプロパー-1-エニル、(E)-1-メチルプロパー-1-エニル、(Z)-1-メチルプロパー-1-エニル、ペンター-4-エニル、(E)-ペンター-3-エニル、(Z)-ペンター-3-エニル、(E)-ペンター-2-エニル、(Z)-ペンター-2-エニル、(E)-ペンター-1-エニル、(Z)-ペンター-1-エニル、3-メチルブター-3-エニル、2-メチルブター-3-エニル、1-メチルブター-3-エニル、3-メチルブター-2-エニル、(E)-2-メチルブター-2-エニル、(Z)-2-メチルブター-2-エニル、(E)-1-メチルブター-2-エニル、(Z)-1-メチルブター-2-エニル、(E)-3-メチルブター-1-エニル、(Z)-3-メチルブター-1-エニル、(E)-2-メチルブター-1-エニル、(Z)-2-メチルブター-1-エニル、(E)-1-メチルブター-1-エニル、(Z)-1-メチルブター-1-エニル、1, 1-ジメチルプロパー-2-エニル、1-エチルプロパー-1-エニル、1-プロピルビニル、1-イソプロピルビニル、(E)-3, 3-ジメチルプロパー-1-エニル、(Z)-3, 3-ジメチルプロパー-1-エニル、ヘキサー-5-エニル、(E)-ヘキサー-4-エニル、(Z)-ヘキサー-4-エニル、(E)-ヘキサー-3-エニル、(Z)-ヘキサー-3-エニル、(E)-ヘキサー-2-エニル、(Z)-ヘキサー-2-エニル、(E)-ヘキサー-1-エニル、(Z)-ヘキサー-1-エニル、4-メチルペンター-4-エニル、3-メチルペンター-4-エニル、2-メチルペンター-4-エニル、1-メチルペンター-4-エニル、4-メチルペンター-3-エニル、(E)-3-メチルペンター-3-エニル、(Z)-3-メチルペンター-3-エニル、(E)-2-メチルペンター-3-エニル、(Z)-2-メチルペンター-3-エニル、(E)-1-メチルペンター-3-エニル、(Z)-1-メチルペンター-3-エニル、(E)-4-メチルペンター-2-エニル、(Z)-4-メチルペンター-2-エニル、(E)-3-メチルペンター-2-エニル、(Z)-3-メチルペンター-2-エニル、(E)-2-メチルペンター-2-エニル、(Z)-2-メチルペンター-2-エニル、(E)-1-メチルペンター-2-エニル、(Z)-1-メチルペンター-2-エニル、(E)-4-メチルペンター-1-エニル、(Z)-4-メチルペンター-1-エニル、(E)-3-メチルペンター-1-エニル、(Z)-3-メチルペンター-1-エニル、(E)-2-メチルペンター-1-エニル、(Z)-2-メチルペンター-1-エニル、(E)-1-メチルペンター-1-エニル、(Z)-1-メチルペンター-1-エニル、3-エチルブター-3-エニル、2-エチルブター-3-エニル、1-エチルブター-3-エニル、(E)-3-エチルブター-2-エニル、(Z)-3-エチルブター-2-エニル、(E)-2-エチルブター-2-エニル、(Z)-2-エチルブター-2-エニル、(E)-1-エチルブター-2-エニル、(Z)-1-エチルブター-2-エニル、(E)-3-エチルブター-1-エニル、(Z)-3-エチルブター-1-エニル、2-エチルブター-1-エニル、(E)-1-エチルブター-1-エニル、(Z)-1-エチルブター-1-エニル、2-プロピルプロパー-2-エニル、1-プロピルプロパー-2-エニル、2-イソプロピルプロパー-2-エニル、1-イソプロピルプロパー-2-エニル、(E)-2-プロピルプロパー-1-エニル、(Z)-2-プロピルプロパー-1-エニル、(E)-1-プロピルプロパー-1-エニル、(Z)-1-プロピルプロパー-1-エニル、(E)-2-イソプロピルプロパー-1-エニル、(Z)-2-イソプロピルプロパー-1-エニル、(E)-1-イソプロピルプロパー-1-エニル、(Z)-1-イソプロピルプロパー-1-エニル、1-(1, 1-ジメチルエチル)エテニル、ブター-1, 3-ジエニル、ペンター-1, 4-ジエニル、ヘキサー-1, 5-ジエニル又はメチルヘキサジエニル。この基は、特に、ビニル又はアリルである。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基(例えば、ハロアルケニル)の一部としてのアルケニルにも当てはまる。

【0022】

10

20

30

40

50

アルキニル： 2～8個（好ましくは、2～6個、及び、さらに好ましくは、2～4個）の炭素原子及び任意の位置において三重結合を有している直鎖又は分枝鎖の炭化水素基、例えば、（限定するものではないが） C_2-C_6 -アルキニル、例えば、エチニル、プロパー1-イニル、プロパー2-イニル、ブター1-イニル、ブター2-イニル、ブター3-イニル、1-メチルプロパー2-イニル、ペンター1-イニル、ペンター2-イニル、ペンター3-イニル、ペンター4-イニル、2-メチルブター3-イニル、1-メチルブター3-イニル、1-メチルブター2-イニル、3-メチルブター1-イニル、1-エチルプロパー2-イニル、ヘキサー1-イニル、ヘキサー2-イニル、ヘキサー3-イニル、ヘキサー4-イニル、ヘキサー5-イニル、3-メチルペンター4-イニル、2-メチルペンター4-イニル、1-メチルペンター4-イニル、2-メチルペンター3-イニル、1-メチルペンター3-イニル、4-メチルペンター2-イニル、1-メチルペンター2-イニル、4-メチルペンター1-イニル、3-メチルペンター1-イニル、2-エチルブター3-イニル、1-エチルブター3-イニル、1-エチルブター2-イニル、1-プロピルプロパー2-イニル、1-イソプロピルプロパー2-イニル、2, 2-ジメチルブター3-イニル、1, 1-ジメチルブター3-イニル、1, 1-ジメチルブター2-イニル又は3, 3-ジメチルブター1-イニル。該アルキニル基は、特に、エチニル、プロパー1-イニル又はプロパー2-イニルである。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、ハロアルキニル）の一部分としてのアルキニルにも当てはまる。

【0023】

アルコキシ： 1～8個（好ましくは、1～6個、及び、さらに好ましくは、1～4個）の炭素原子を有している直鎖又は分枝鎖の飽和アルコキシラジカル、例えば、（限定するものではないが） C_1-C_6 -アルコキシ、例えば、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、1-メチルエトキシ、ブトキシ、1-メチルプロポキシ、2-メチルプロポキシ、1, 1-ジメチルエトキシ、ペントキシ、1-メチルブトキシ、2-メチルブトキシ、3-メチルブトキシ、2, 2-ジメチルプロポキシ、1-エチルプロポキシ、1, 1-ジメチルプロポキシ、1, 2-ジメチルプロポキシ、ヘキソキシ、1-メチルペントキシ、2-メチルペントキシ、3-メチルペントキシ、4-メチルペントキシ、1, 1-ジメチルブトキシ、1, 2-ジメチルブトキシ、1, 3-ジメチルブトキシ、2, 2-ジメチルブトキシ、2, 3-ジメチルブトキシ、3, 3-ジメチルブトキシ、1-エチルブトキシ、2-エチルブトキシ、1, 1, 2-トリメチルプロポキシ、1, 2, 2-トリメチルプロポキシ、1-エチル-1-メチルプロポキシ及び1-エチル-2-メチルプロポキシ。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、ハロアルコキシ、アルキニルアルコキシ）の一部分としてのアルコキシにも当てはまる。

【0024】

アルコキシカルボニル： カルボニル基（ $-C(=O)-$ ）を介して当該骨格に結合している、1～8個（好ましくは、1～6個、及び、さらに好ましくは、1～4個）の炭素原子を有しているアルコキシ基（上記のとおり）。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、シクロアルキルアルコキシカルボニル）の一部分としてのアルコキシカルボニルにも当てはまる。

【0025】

シクロアルキル： 3～10個（好ましくは、3～8個、及び、さらに好ましくは、3～6個）の炭素環員を有している単環式の飽和ヒドロカルビル基、例えば、（限定するものではないが）シクロプロピル、シクロペンチル及びシクロヘキシル。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、シクロアルキルアルキル）の一部分としてのシクロアルキルにも当てはまる。

【0026】

シクロアルケニル： 3～10個（好ましくは、3～8個、及び、さらに好ましくは、3～6個）の炭素環員を有している単環式の部分的不飽和ヒドロカルビル基、例えば、（限定するものではないが）シクロプロペニル、シクロペンテニル及びシクロヘキセニル。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、シクロアルケニルアルキル

）の一部分としてのシクロアルケニルにも当てはまる。

【0027】

シクロアルコキシ： 3～10個（好ましくは、3～8個、及び、さらに好ましくは、3～6個）の炭素環員を有している単環式の飽和シクロアルキルオキシラジカル、例えば、（限定するものではないが）シクロプロピルオキシ、シクロペンチルオキシ及びシクロヘキシルオキシ。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、シクロアルコキシアルキル）の一部分としてのシクロアルコキシにも当てはまる。

【0028】

ハロアルキル： 1～8個（好ましくは、1～6個、及び、さらに好ましくは、1～4個）の炭素原子を有している直鎖又は分枝鎖のアルキル基（上記のとおり）において、これらの基内の水素原子の一部又は全てが上記で記載したハロゲン原子で置き換えられている前記アルキル基、例えば、（限定するものではないが）C₁－C₃－ハロアルキル、例えば、クロロメチル、ブromoメチル、ジクロロメチル、トリクロロメチル、フルオロメチル、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル、クロロフルオロメチル、ジクロロフルオロメチル、クロロジフルオロメチル、1－クロロエチル、1－ブromoエチル、1－フルオロエチル、2－フルオロエチル、2，2－ジフルオロエチル、2，2，2－トリフルオロエチル、2－クロロ－2－フルオロエチル、2－クロロ－2，2－ジフルオロエチル、2，2－ジクロロ－2－フルオロエチル、2，2，2－トリクロロエチル、ペンタフルオロエチル及び1，1，1－トリフルオロプロパー2－イル。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、ハロアルキルアミノアルキル）の一部分としてのハロアルキルにも当てはまる。

【0029】

ハロアルケニル及びハロアルキニルは、アルキル基の代わりにそれぞれアルケニル基及びアルキニル基が当該置換基の一部分として存在していることを除いて、ハロアルキルと同様に定義される。

【0030】

ハロアルコキシ： 1～8個（好ましくは、1～6個、及び、さらに好ましくは、1～4個）の炭素原子を有している直鎖又は分枝鎖のアルコキシ基（上記のとおり）において、これらの基内の水素原子の一部又は全てが上記で記載したハロゲン原子で置き換えられている前記アルコキシ基、例えば、（限定するものではないが）C₁－C₃－ハロアルコキシ、例えば、クロロメトキシ、ブromoメトキシ、ジクロロメトキシ、トリクロロメトキシ、フルオロメトキシ、ジフルオロメトキシ、トリフルオロメトキシ、クロロフルオロメトキシ、ジクロロフルオロメトキシ、クロロジフルオロメトキシ、1－クロロエトキシ、1－ブromoエトキシ、1－フルオロエトキシ、2－フルオロエトキシ、2，2－ジフルオロエトキシ、2，2，2－トリフルオロエトキシ、2－クロロ－2－フルオロエトキシ、2－クロロ－2，2－ジフルオロエトキシ、2，2－ジクロロ－2－フルオロエトキシ、2，2，2－トリクロロエトキシ、ペンタフルオロエトキシ及び1，1，1－トリフルオロプロパー2－オキシ。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、ハロアルコキシアルキル）の一部分としてのハロアルコキシにも当てはまる。

【0031】

アリール： 6～14個の炭素原子を有している単環式、二環式又は三環式の芳香族又は部分的芳香族の基、例えば、（限定するものではないが）フェニル、ナフチル、テトラヒドロナフチル、インデニル及びインダニル。その親一般構造への結合は、該アリールラジカルの任意の望ましい適切な環員を介することができる。アリールは、好ましくは、フェニル、1－ナフチル及び2－ナフチルから選択される。特に好ましいのは、フェニルである。

【0032】

ヘテロアリール： 少なくとも1個のヘテロ原子又は場合により2個、3個、4個若しくは5個のヘテロ原子を有している5員又は6員の環状芳香族基〔ここで、該ヘテロ原子は、S、N及びOの群からそれぞれ独立して選択され、ここで、該基は、最大で14個まで

10

20

30

40

50

の環員を有している二環式系又は三環式系の一部分であることもでき、ここで、該環系は、1又は2のさらなるシクロアルキル、シクロアルケニル、ヘテロシクリル、アリアル及び／若しくはヘテロアリアルラジカルと一緒に形成されることができ、並びに、ここで、ベンゾ縮合した5員又は6員のヘテロアリアル基が好ましい]。その親一般構造への結合は、該ヘテロアリアルラジカルの任意の望ましい適切な環員を介することができる。その炭素環員のうちの1つを介して当該骨格に結合している5員ヘテロアリアル基の例は、フラ-2-イル、フラ-3-イル、チエン-2-イル、チエン-3-イル、ピロール-2-イル、ピロール-3-イル、イソオキサゾール-3-イル、イソオキサゾール-4-イル、イソオキサゾール-5-イル、イソチアゾール-3-イル、イソチアゾール-4-イル、イソチアゾール-5-イル、ピラゾール-3-イル、ピラゾール-4-イル、ピラゾール-5-イル、オキサゾール-2-イル、オキサゾール-4-イル、オキサゾール-5-イル、チアゾール-2-イル、チアゾール-4-イル、チアゾール-5-イル、イミダゾール-2-イル、イミダゾール-4-イル、1, 2, 4-オキサジアゾール-3-イル、1, 2, 4-オキサジアゾール-5-イル、1, 2, 4-チアジアゾール-3-イル、1, 2, 4-チアジアゾール-5-イル、1, 2, 4-トリアゾール-3-イル、1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル、1, 3, 4-チアジアゾール-2-イル及び1, 3, 4-トリアゾール-2-イルである。窒素環員を介して当該骨格に結合している5員ヘテロアリアル基の例は、ピロール-1-イル、ピラゾール-1-イル、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル、イミダゾール-1-イル、1, 2, 3-トリアゾール-1-イル及び1, 3, 4-トリアゾール-1-イルである。6員ヘテロアリアル基の例は、ピリジン-2-イル、ピリジン-3-イル、ピリジン-4-イル、ピリダジン-3-イル、ピリダジン-4-イル、ピリミジン-2-イル、ピリミジン-4-イル、ピリミジン-5-イル、ピラジン-2-イル、1, 3, 5-トリアジン-2-イル、1, 2, 4-トリアジン-3-イル及び1, 2, 4, 5-テトラジン-3-イルである。ベンゾ縮合5員ヘテロアリアル基の例は、インドール-1-イル、インドール-2-イル、インドール-3-イル、インドール-4-イル、インドール-5-イル、インドール-6-イル、インドール-7-イル、ベンゾイミダゾール-1-イル、ベンゾイミダゾール-2-イル、ベンゾイミダゾール-4-イル、ベンゾイミダゾール-5-イル、インダゾール-1-イル、インダゾール-3-イル、インダゾール-4-イル、インダゾール-5-イル、インダゾール-6-イル、インダゾール-7-イル、インダゾール-2-イル、1-ベンゾフラン-2-イル、1-ベンゾフラン-3-イル、1-ベンゾフラン-4-イル、1-ベンゾフラン-5-イル、1-ベンゾフラン-6-イル、1-ベンゾフラン-7-イル、1-ベンゾチオフェン-2-イル、1-ベンゾチオフェン-3-イル、1-ベンゾチオフェン-4-イル、1-ベンゾチオフェン-5-イル、1-ベンゾチオフェン-6-イル、1-ベンゾチオフェン-7-イル、1, 3-ベンゾチアゾール-2-イル、1, 3-ベンゾチアゾール-4-イル、1, 3-ベンゾチアゾール-5-イル、1, 3-ベンゾチアゾール-6-イル、1, 3-ベンゾチアゾール-7-イル、1, 3-ベンゾオキサゾール-2-イル、1, 3-ベンゾオキサゾール-4-イル、1, 3-ベンゾオキサゾール-5-イル、1, 3-ベンゾオキサゾール-6-イル及び1, 3-ベンゾオキサゾール-7-イルである。ベンゾ縮合6員ヘテロアリアル基の例は、キノリン-2-イル、キノリン-3-イル、キノリン-4-イル、キノリン-5-イル、キノリン-6-イル、キノリン-7-イル、キノリン-8-イル、イソキノリン-1-イル、イソキノリン-3-イル、イソキノリン-4-イル、イソキノリン-5-イル、イソキノリン-6-イル、イソキノリン-7-イル及びイソキノリン-8-イルである。二環式環系の一部分である5員又は6員のヘテロアリアルラジカルのさらなる例は、1, 2, 3, 4-テトラヒドロキノリン-1-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロキノリン-2-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロキノリン-7-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロキノリン-8-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロイソキノリン-1-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロイソキノリン-2-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロイソキノリン-5-イル、1, 2, 3, 4-テトラヒドロイソキノリン-6-イル及び1, 2, 3, 4-テトラヒドロイソキノリン-7-イルである

10

20

30

40

50

。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、ヘテロアリアルアルキル）の一部としてのヘテロアリアルにも当てはまる。

【0033】

ヘテロシクリル： N、O、S、S(=O)、S(=O)₂及びジ- (C₁-C₄) アルキルシリルからなる群から独立して選択される少なくとも1個（場合により、最大で4個まで）のヘテロ原子及び／又はヘテロ基を有している3～7員の飽和又は部分的不飽和のヘテロ環式基〔ここで、該基は、ベンゾ縮合してもよい〕。その親一般構造への結合は、該ヘテロ環式基の環炭素原子を介することができるか、又は、可能な場合には、該ヘテロ環式基の環窒素原子を介することができる。本発明に関連して、飽和ヘテロ環式基は、例えば、（限定するものではないが）、オキシラニル、アジリジニル、テトラヒドロフラン-2-イル、テトラヒドロフラン-3-イル、テトラヒドロチエン-2-イル、テトラヒドロチエン-3-イル、ピロリジン-2-イル、ピロリジン-3-イル、イソオキサゾリジン-3-イル、イソオキサゾリジン-4-イル、イソオキサゾリジン-5-イル、イソチアゾリジン-3-イル、イソチアゾリジン-4-イル、イソチアゾリジン-5-イル、ピラゾリジン-3-イル、ピラゾリジン-4-イル、ピラゾリジン-5-イル、オキサゾリジン-2-イル、オキサゾリジン-4-イル、オキサゾリジン-5-イル、チアゾリジン-2-イル、チアゾリジン-4-イル、チアゾリジン-5-イル、イミダゾリジン-2-イル、イミダゾリジン-4-イル、1, 2, 4-オキサジアゾリジン-3-イル、1, 2, 4-オキサジアゾリジン-5-イル、1, 3, 4-オキサジアゾリジン-2-イル、1, 2, 4-チアジアゾリジン-3-イル、1, 2, 4-チアジアゾリジン-5-イル、1, 3, 4-チアジアゾリジン-2-イル、1, 2, 4-トリアゾリジン-3-イル、1, 3, 4-トリアゾリジン-2-イル、ピペリジン-2-イル、ピペリジン-3-イル、ピペリジン-4-イル、1, 3-ジオキサン-5-イル、テトラヒドロピラン-2-イル、テトラヒドロピラン-4-イル、テトラヒドロチエン-2-イル、ヘキサヒドロピリダジン-3-イル、ヘキサヒドロピリダジン-4-イル、ヘキサヒドロピリミジン-2-イル、ヘキサヒドロピリミジン-4-イル、ヘキサヒドロピリミジン-5-イル、ピペラジン-2-イル、1, 3, 5-ヘキサヒドロトリアジン-2-イル及び1, 2, 4-ヘキサヒドロトリアジン-3-イルである。本発明に関連して、部分的に不飽和ヘテロ環式基は、例えば、（限定するものではないが）、2, 3-ジヒドロフラ-2-イル、2, 3-ジヒドロフラ-3-イル、2, 4-ジヒドロフラ-2-イル、2, 4-ジヒドロフラ-3-イル、2, 3-ジヒドロチエン-2-イル、2, 3-ジヒドロチエン-3-イル、2, 4-ジヒドロチエン-2-イル、2, 4-ジヒドロチエン-3-イル、2-ピロリン-2-イル、2-ピロリン-3-イル、3-ピロリン-2-イル、3-ピロリン-3-イル、2-イソオキサゾリン-3-イル、3-イソオキサゾリン-3-イル、4-イソオキサゾリン-3-イル、2-イソオキサゾリン-4-イル、3-イソオキサゾリン-4-イル、4-イソオキサゾリン-4-イル、2-イソオキサゾリン-5-イル、3-イソオキサゾリン-5-イル、4-イソオキサゾリン-5-イル、2-イソチアゾリン-3-イル、3-イソチアゾリン-3-イル、4-イソチアゾリン-3-イル、2-イソチアゾリン-4-イル、3-イソチアゾリン-4-イル、4-イソチアゾリン-4-イル、2-イソチアゾリン-5-イル、3-イソチアゾリン-5-イル、4-イソチアゾリン-5-イル、2, 3-ジヒドロピラゾール-1-イル、2, 3-ジヒドロピラゾール-2-イル、2, 3-ジヒドロピラゾール-3-イル、2, 3-ジヒドロピラゾール-4-イル、2, 3-ジヒドロピラゾール-5-イル、3, 4-ジヒドロピラゾール-1-イル、3, 4-ジヒドロピラゾール-3-イル、3, 4-ジヒドロピラゾール-4-イル、3, 4-ジヒドロピラゾール-5-イル、4, 5-ジヒドロピラゾール-1-イル、4, 5-ジヒドロピラゾール-3-イル、4, 5-ジヒドロピラゾール-4-イル、4, 5-ジヒドロピラゾール-5-イル、2, 3-ジヒドロオキサゾール-2-イル、2, 3-ジヒドロオキサゾール-3-イル、2, 3-ジヒドロオキサゾール-4-イル、2, 3-ジヒドロオキサゾール-5-イル、3, 4-ジヒドロオキサゾール-2-イル、3, 4-ジヒドロオキサゾール-3-イル、3, 4-ジヒドロオキサゾール-4-イル、3, 4-ジヒドロオキサゾール-5-

10

20

30

40

50

イル、3,4-ジヒドロオキサゾール-2-イル、3,4-ジヒドロオキサゾール-3-イル、3,4-ジヒドロオキサゾール-4-イルである。ベンゾ縮合ヘテロ環式基の例は、インドリン-1-イル、インドリン-2-イル、インドリン-3-イル、イソインドリン-1-イル、イソインドリン-2-イル、2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル及び2,3-ジヒドロベンゾフラン-3-イルである。別途定義されていない限り、この定義は、複合置換基（例えば、ヘテロシクリルアルキル）の一部としてのヘテロシクリルにも当てはまる。

【0034】

自然法則に反し、従って、当業者が自身の専門知識に基づいて除外するであろう組合せは含まれない。例えば、隣接する3個以上の酸素原子を有する環構造は除外される。

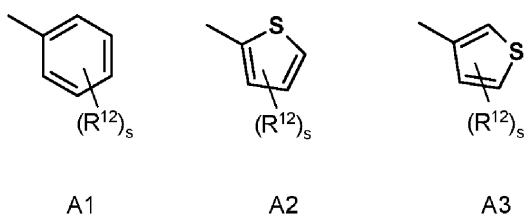
【発明を実施するための形態】

【0035】

好ましいのは、一般式（I）〔式中、

Aは、A1-A3

【化3】



からなる群から選択され；

R^1 は、

- ・ OR^{1a} ；及び、
- ・ NR^9R^{10} ；

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル、エチル〔ここで、これは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 (C_3-C_6) -シクロアルキル、 (C_1-C_4) -トリアルキルシリル、 (C_1-C_4) -アルコキシ、シアノ及びニトロからなる群から選択される1以上の置換基で置換されている〕；
- ・ (C_2-C_6) -アルケニル、 (C_2-C_6) -ハロアルケニル；
- ・ アリール- (C_1-C_4) -アルキル〔ここで、該アリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -ハロアルキルからなる群から選択される1以上の置換基で置換されている〕；

からなる群から選択され；

R^9 は、水素、 (C_1-C_6) -アルキルからなる群から選択され；

R^{10} は、

- ・ 水素；
- ・ (C_3-C_7) -シクロアルキル- (C_1-C_4) -アルキル、アリール- (C_1-C_4) -アルキル、アリール- (C_1-C_4) -アルコキシ〔ここで、該シクロアルキル及びアリールは、置換されていないか、又は、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -ハロアルキルからなる群から選択される1以上の置換基で置換されている〕；
- ・ (C_1-C_6) -アルキル、 (C_2-C_6) -アルケニル、 (C_2-C_6) -アルキニル； (C_3-C_8) -シクロアルキル〔ここで、上記アルキル、アルケニル、アルキニル及びシクロアルケニルラジカルは、置換されていないか、又は、シアノ、 $C(O)OR^8$ からなる群から選択されるmのラジカルでそれぞれ独立して置換されている〕；
- ・ (C_1-C_6) -ハロアルキル；

からなる群から選択され；

R^8 は、水素、 $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

R^3 は、

- ・ フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、シアノ、イソシアノ、 NO_2 ；
- ・ $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_3 - C_6)$ - シクロアルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキル、 $(C_1 - C_4)$ - アルキルオキシカルボニル；
- ・ $(C_2 - C_3)$ - アルキニル、 $(C_2 - C_3)$ - ハロアルキニル；

からなる群から選択され；

R^4 は、フェニル [ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

- ・ フッ素、塩素、臭素；
- ・ メチル、エチル；
- ・ メトキシ、エトキシ；

からなる群から選択されるラジカルで 1 置換若しくは多置換されている] であり；

R^{12} は、

- ・ ハロゲン、シアノ、ニトロ；
- ・ $(C_1 - C_6)$ - アルキル、 $(C_1 - C_6)$ - ハロアルキル、 $(C_1 - C_3)$ - ハロアルコキシ；
- ・ $(C_1 - C_6)$ - アルコキシ；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである：

m は、0、1 又は 2 であり；

s は、0、1、2、3 である) で表される化合物及びそれらの農薬的に許容される塩である；

但し、以下の化合物は除外する：

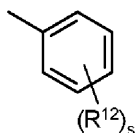
[(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸、{ [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、{ [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、[(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸エチル、{ [4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸エチル、{ [4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸エチル、2-(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸、2-(4-ブromo-1, 5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸。

【0036】

特に好ましいのは、一般式 (I) (式中、

A は、 $A1$

【化4】



A1

であり；

R^{1a} は、

- ・ OR^{1a} ；及び、
- ・ NR^9R^{10} ；

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル、エチル、トリメチルシリルメチル；
- ・ 1-プロペニル、2-プロペニル；
- ・ ベンジル、1-フェニルエチル、2-フェニルエチル [ここで、挙げられている3つの基のそれぞれにおけるフェニルラジカルは、置換されていないか、又は、ハロゲンで置換されている]；

からなる群から選択され；

R^9 は、水素であり；

R^{10} は、

- ・ 水素；
- ・ シクロプロピルメチル；
- ・ ベンジル、1-フェニルエチル、2-フェニルエチル、ベンジルオキシ [ここで、挙げられている4つの基のそれぞれにおけるフェニルラジカルは、置換されていないか、又は、ハロゲンで置換されている]；

・ メチル、エチル、プロピル、1-メチルエチル、ブチル、1-メチルプロピル、2-メチルプロピル、1, 1-ジメチルエチル、ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、2, 2-ジメチルプロピル、1-エチルプロピル、ヘキシル [ここで、上記ラジカルは、置換されていないか、又は、 $C(O)OR^8$ ラジカルでそれぞれ独立して1置換されている]；

・ シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル [ここで、挙げられている3つのラジカルは、置換されていないか、又は、 $C(O)OR^8$ ラジカルでそれぞれ独立して1置換されている]；

・ 1-プロペニル、2-プロペニル、2-メチル-2-プロペニル、プロパー-2-イン-1-イル、ブター-2-イン-1-イル；

からなる群から選択され；

R^8 は、水素、メチル、エチルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

R^3 は、

- ・ フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、シアノ、 NO_2 ；
- ・ トリフルオロメチル；
- ・ エチニル；
- ・ $C(O)OMe$ ；

からなる群から選択され；

R^4 は、フェニル [ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、

- ・ フッ素、塩素、臭素；
- ・ メチル、エチル；
- ・ メトキシ、エトキシ；

からなる群から選択されるラジカルで1置換若しくは多置換されている]であり；

R^{12} は、

- ・ フッ素、塩素、 NO_2 ；

・ トリフルオロメチル、メトキシ、エトキシ；

からなる群から選択され；

及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである；

s は、1、2、3である〕で表される化合物及びそれらの農薬的に許容される塩である；
但し、以下の化合物は除外する；

〔(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ〕酢酸、{〔4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕 オキシ} 酢酸、{〔4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕 オキシ} 酢酸、〔(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ〕酢酸エチル、{〔4-クロロ-5-(4-メチルフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕 オキシ} 酢酸エチル、{〔4-クロロ-5-(3-クロロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル〕 オキシ} 酢酸エチル、2-(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸、2-(4-ブromo-1, 5-ジフェニルピラゾール-3-イル) オキシプロパン酸。

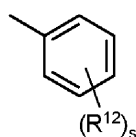
10

【0037】

極めて特に好ましいのは、一般式 (I) (式中、

A は、A 1

【化5】



20

A1 ;

であり；

R^1 は、

- ・ OR^{1a} ；及び、
- ・ NR^9R^{10} ；

30

からなる群から選択され；ここで、

R^{1a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル、エチル；
- ・ 2-プロペニル；

からなる群から選択され；

R^9 は、水素であり；

R^{10} は、

- ・ $C(O)OR^8$ で 1 置換されているシクロペンチル；
- ・ シクロプロピルメチル；
- ・ $CH_2C(O)OR^8$ 、 $CH_2CH_2C(O)OR^8$ ；
- ・ 2-プロペニル、プロパー 2-イン-1-イル；

40

からなる群から選択され；

R^8 は、水素、メチル、エチルであり；

R^{2a} は、

- ・ 水素；
- ・ メチル；

からなる群から選択され；

R^{2b} は、水素であり；

50

R^3 は、
 ・ 塩素、臭素、ヨウ素、シアノ、 NO_2 ;
 からなる群から選択され ;
 R^4 は、フェニル [ここで、該フェニルラジカルは、置換されていないか、又は、
 ・ フッ素、塩素 ;
 からなる群から選択されるラジカルで 1 置換若しくは多置換されている] であり ;
 R^{12} は、
 ・ フッ素、塩素 ;
 からなる群から選択され ;
 及び、ここで、該添え字は、以下のとおりである :

10

s は、1、2 である] で表される化合物及びそれらの農薬的に許容される塩である ;
 但し、以下の化合物は除外する :

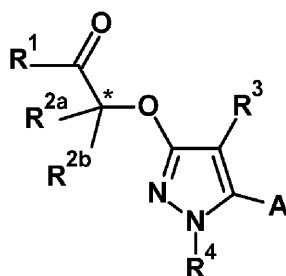
[(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸、 {
 [4-クロロ-5- (4-メチルフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル]
 オキシ} 酢酸、 { [4-クロロ-5- (3-クロロフェニル) -1-フェニル-1H-
 ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、 [(4-クロロ-1, 5-ジフェニル-1H-
 ピラゾール-3-イル) オキシ] 酢酸エチル { [4-クロロ-5- (4-メチルフェニル)
 -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} 酢酸、エチル、 { [4-クロ
 ロ-5- (3-クロロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ
 } 酢酸エチル、2- (4-クロロ-1, 5-ジフェニル-ピラゾール-3-イル) オキシ
 プロパン酸、2- (4-ブromo-1, 5-ジフェニルピラゾール-3-イル) オキシプロ
 パン酸。

20

【0038】

一般式 (I) で表される本発明の化合物は、該アルキル酸構造の第 2 の炭素において、
 以下に示されている構造の中で印 (*) によって示されているキラル炭素原子を有してい
 る :

【化 6】



30

(I)

Cahn、Ingold及びPrelogの規則 (CIP規則) によれば、この炭素原子は、(R) 立体配置又は (S) 立体配置のいずれかを有することができる。

40

【0039】

本発明は、(S) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物と (R) 立体配置を
 有する一般式 (I) で表される化合物の両方を包含する。このことは、本発明が、一般式
 (I) (式中、当該炭素原子は、

(1) (R) 立体配置 ; 又は、

(2) (S) 立体配置

を有している]

で表される化合物を包含することを意味している。

【0040】

50

さらに、本発明の範囲には、以下のものも包含される：

(3) (R) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物 (一般式 (I) - (R) で表される化合物) と (S) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物 (一般式 (I) - (S) で表される化合物) の任意の混合物： 本発明は、(R) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物と (S) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物のラセミ混合物も包含する。

【0041】

しかしながら、本発明に関連して、好ましいのは、特に、60～100% (好ましくは、80～100%、特に、90～100%、極めて特に、95～100%) の選択性を示す (R) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物であり、ここで、特定の (R) 化合物は、当該 (R) 化合物の総含有量に基づいて、いずれの場合にも、50% ee を超えるエナンチオ選択性 (好ましくは、60～100% ee のエナンチオ選択性、特に、80～100% ee のエナンチオ選択性、極めて特に、90～100% ee のエナンチオ選択性、最も好ましくは、95～100% ee のエナンチオ選択性) で存在している。

【0042】

従って、本発明は、特に、一般式 (I*) (式中、(*) が付けられている炭素原子における立体化学的配置が、60～100% (R) (好ましくは、80～100% (R)、特に、90～100% (R)、極めて特に、95～100% (R)) の立体化学的純度で存在している) で表される化合物に関する。

【0043】

さらに、選択された個々のラジカルに応じて、本発明による一般式 (I) で表される化合物の中には、さらなる立体成分 (stereo element) が存在し得る。

【0044】

好ましいのは、下記表中に記載されている化合物である。(R) 立体配置を有する一般式 (I) で表される化合物は、それに応じて、ラジカル R^{2a} が記載されている列中に印が付けられている。例えば、 R^{2a} = アルキルである場合、一般式 (I) の (*) が付けられている炭素原子における好ましい立体化学的配置は、(R) 立体配置である。

【0045】

Cahn、Ingold及びPrelogの規則を考慮すれば、(*) が付けられている炭素原子において、当該置換基の優先順位に起因して、(*) が付けられている炭素原子では (S) 立体配置が好ましい状況もあり得る。これは、例えば、 R^{2a} ラジカルが ($C_1 - C_6$) - アルコキシラジカルに対応しているような場合である。

【0046】

従って、本発明に関連して、好ましいのは、特に、それらの空間的な配置に関して、一般式 (I) (式中、 R^{2a} は、60%～100% (好ましくは、80%～100%、特に、90%～100%、極めて特に、95%～100%) の選択性で (R) 立体配置を有しているメチルである) で表される化合物に対応する一般式 (I) で表される化合物であり、その際、個々の (R) 類似化合物は、当該 (R) 類似化合物の総含有量に基づいて、いずれの場合にも、50% ee を超える (好ましくは、60%～100% ee の、特に、80%～100% ee の、極めて特に、90%～100% ee の、最も好ましくは、95%～100% ee の) エナンチオ選択性で存在している。

【0047】

従って、本発明は、特に、式中の (*) が付けられている炭素原子における立体化学的配置が 60%～100% (R 又は R 類似体) (好ましくは、80%～100% (R 又は R 類似体)、特に、90%～100% (R 又は R 類似体)、極めて特に、95%～100% (R 又は R 類似体)) の立体化学的純度で存在している一般式 (I) で表される化合物に関する。

【0048】

表 I： エステル

10

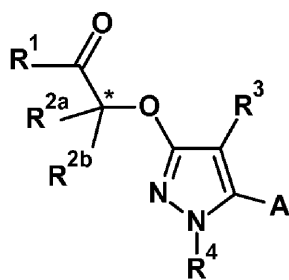
20

30

40

50

【化 7】



(I)

【表 1】

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
I-001	MeO	H	H	Cl	4-Cl-Ph	Ph
I-002	MeO	H	H	Cl	Ph	3-F-Ph
I-003	MeO	H	H	Cl	3-F-Ph	3-F-Ph
I-004	MeO	H	H	Cl	Ph	4-Cl-Ph
I-005	MeO	H	H	Cl	3-F-Ph	4-Cl-Ph
I-006	MeO	H	H	Cl	4-F-Ph	4-F-Ph
I-007	MeO	H	H	Cl	4-Cl-Ph	4-F-Ph
I-008	MeO	H	H	Cl	Ph	4-F-Ph
I-009	MeO	H	H	CN	4-F-Ph	4-F-Ph
I-010	MeO	H	H	CN	4-F-Ph	4-Cl-Ph
I-011	MeO	H	H	CN	4-F-Ph	Ph
I-012	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	4-F-Ph
I-013	MeO	H	H	CN	4-Cl-Ph	4-F-Ph
I-014	MeO	H	H	CN	Ph	4-F-Ph
I-015	MeO	H	H	Cl	2-F-Ph	Ph
I-016	MeO	H	H	Cl	3-F-Ph	Ph
I-017	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	4-Cl-Ph
I-018	MeO	H	H	CN	Ph	4-Cl-Ph
I-019	MeO	H	H	CN	4-MeO-Ph	3-F-Ph
I-020	MeO	H	H	CN	4-Me-Ph	3-F-Ph
I-021	MeO	H	H	CN	Ph	3-F-Ph
I-022	MeO	H	H	CN	2-F-Ph	Ph
I-023	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	Ph
I-024	MeO	H	H	CN	4-Cl-Ph	Ph
I-025	MeO	H	H	Cl	4-F-Ph	3,4-ジ`F-Ph
I-026	MeO	H	H	Cl	3-ClPh	3,4-ジ`F-Ph
I-027	MeO	H	H	Cl	3,4-ジ`Cl-Ph	3,4-ジ`F-Ph
I-028	MeO	H	H	Cl	Ph	4-EtO-3-F-Ph
I-029	MeO	H	H	Cl	4-Cl-Ph	3-F-Ph
I-030	MeO	H	H	Cl	3-F-Ph	4-MeO-Ph
I-031	MeO	H	H	Cl	3-F-Ph	2,4-ジ`Cl-Ph

10

20

30

40

50

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
I-032	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	4-MeO-Ph
I-033	MeO	H	H	CN	4-Cl-Ph	4-MeO-Ph
I-034	MeO	H	H	CN	Ph	4-MeO-Ph
I-035	MeO	H	H	Cl	2,4-ジ Cl-Ph	4-F-Ph
I-036	MeO	H	H	CN	4-F-Ph	3,4-ジ F-Ph
I-037	MeO	H	H	CN	3-ClPh	4-MeO-Ph
I-038	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	3-ClPh
I-039	MeO	H	H	CN	4-MeO-Ph	3-ClPh
I-040	MeO	H	H	CN	4-Me-Ph	3-ClPh
I-041	MeO	H	H	CN	3-ClPh	4-Cl-Ph
I-042	MeO	H	H	CN	3-Cl-4-F-Ph	4-EtO-3-F-Ph
I-043	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	4-EtO-3-F-Ph
I-044	MeO	H	H	CN	2,4-ジ Cl-Ph	4-EtO-3-F-Ph
I-045	MeO	H	H	CN	Ph	4-EtO-3-F-Ph
I-046	MeO	H	H	CN	3-ClPh	3-F-Ph
I-047	MeO	H	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-048	MeO	H	H	CN	4-Cl-Ph	3-F-Ph
I-049	MeO	H	H	CN	3-Cl-4-EtO-Ph	3-ClPh
I-050	MeO	H	H	CN	3-Cl-4-EtO-Ph	4-Cl-Ph
I-051	MeO	H	H	CN	3-ClPh	3,4-ジ F-Ph
I-052	MeO	H	H	CF ₃	Ph	4-F-Ph
I-053	MeO	(R)-Me	H	CF ₃	Ph	4-F-Ph
I-054	MeO	H	H	Br	2-F-Ph	Ph
I-055	MeO	H	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジ F-Ph
I-056	EtO	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-057	OH	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-058	EtO	H	H	I	2-F-Ph	Ph
I-059	EtO	H	H	F	2-F-Ph	Ph
I-060	EtO	H	H	Cl	2-F-Ph	Ph
I-061	MeO	Me	H	CN	2-F-Ph	Ph
I-062	MeO	H	H	CO ₂ Me	2-F-Ph	Ph
I-063	MeO	H	H	CCH	2-F-Ph	Ph
I-064	MeO	Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
I-065	MeO	H	H	CO ₂ Me	Ph	4-F-Ph
I-066	MeO	H	H	CCH	Ph	4-F-Ph
I-067	MeO	Me	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-068	MeO	H	H	CO ₂ Me	3-F-Ph	3-F-Ph
I-069	MeO	H	H	CCH	3-F-Ph	3-F-Ph
I-070	EtO	H	H	Br	Ph	Ph
I-071	EtO	H	H	Br	Ph	4-Cl-Ph
I-072	EtO	H	H	Br	4-F-Ph	Ph
I-073	EtO	H	H	Br	4-Cl-Ph	Ph
I-074	EtO	H	H	Br	4-Cl-Ph	4-Cl-Ph
I-075	EtO	H	H	NO ₂	2-F-Ph	Ph

10

20

30

40

50

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
I-076	EtO	H	H	Br	4-F-Ph	4-F-Ph
I-077	EtO	H	H	Br	4-F-Ph	4-Cl-Ph
I-078	EtO	H	H	Br	4-Cl-Ph	4-F-Ph
I-079	EtO	H	H	Br	2,4-ジ [○] F-Ph	Ph
I-080	EtO	H	H	Br	2,4-ジ [○] F-Ph	4-Cl-Ph
I-081	EtO	H	H	Br	2,4-ジ [○] FPh	4-F-Ph
I-082	OH	H	H	Br	2-F-Ph	Ph
I-082	OH	H	H	Br	2-F-Ph	Ph
I-083	MeO	H	H	Br	4-F-Ph	3-CF ₃ -Ph
I-084	MeO	H	H	Br	2-F-Ph	2,3,4-トリ [○] F-Ph
I-085	EtO	H	H	Br	Ph	2,4-ジ [○] F-Ph
I-086	EtO	H	H	Br	4-F-Ph	2,4-ジ [○] F-Ph
I-087	EtO	H	H	Br	4-Cl-Ph	2,4-ジ [○] F-Ph
I-088	EtO	H	H	Br	2,4-ジ [○] F-Ph	2,4-ジ [○] F-Ph
I-089	EtO	H	H	Br	2-MeO-Ph	4-F-Ph
I-090	EtO	H	H	Br	2-MeO-Ph	4-Cl-Ph
I-091	EtO	H	H	Br	2-MeO-Ph	2,4-ジ [○] F-Ph
I-092	EtO	H	H	Br	2-MeO-Ph	Ph
I-093	EtO	H	H	Cl	2,4,5-トリ [○] F-Ph	Ph
I-094	MeO	H	H	Cl	2-F-Ph	5-F-2-チエニ [○]
I-095	MeO	H	H	Br	2-F-Ph	5-F-2-チエニ [○]
I-096	OH	H	H	Cl	2,4,5-トリ [○] F-Ph	Ph
I-097	EtO	H	H	Cl	2,4,5-トリ [○] F-Ph	3-F-Ph
I-098	EtO	H	H	Cl	2,4-ジ [○] F-Ph	3-F-Ph
I-099	MeO	H	H	NO ₂	2-F-Ph	4-NO ₂ -Ph
I-100	EtO	H	H	Cl	2,4-ジ [○] F-Ph	Ph
I-101	MeO	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-102	Me ₃ SiCH ₂ O	H	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジ [○] F-Ph
I-103	OH	Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
I-104	MeO	Me	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-105	MeO	Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
I-106	OH	Me	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-107	MeO	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
I-108	MeO	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
I-109	MeO	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
I-110	MeO	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
I-111	3-F- PhCH ₂ O	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-112	PhCH ₂ O	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-113	CH ₂ =CHC H ₂ O	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-114	MeO	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
I-115	MeO	H	H	I	3-F-Ph	Ph
I-116	OH	Me	H	CN	Ph	4-F-Ph

10

20

30

40

50

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
I-117	OH	Me	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-118	OH	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
I-119	OH	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
I-120	OH	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
I-121	OH	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
I-122	MeO	H	H	NO ₂	3-F-Ph	Ph
I-123	3-F- PhCH ₂ O	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
I-124	PhCH ₂ O	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
I-125	MeO	(R)-Me	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-126	MeO	(S)-Me	H	CN	3-F-Ph	3-F-Ph
I-127	OH	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
I-128	OH	H	H	I	3-F-Ph	Ph
I-129	OH	H	H	NO ₂	3-F-Ph	Ph
I-130	MeO	(R)-Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
I-131	EtO	H	H	Cl	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-132	MeO	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-133	EtO	H	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-134	EtO	H	H	Br	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-135	MeO	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
I-136	OH	H	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-137	OH	H	H	Br	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-138	OH	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
I-139	OH	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
I-140	OH	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
I-141	MeO	(S)-Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
I-142	EtO	H	H	Cl	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-143	EtO	H	H	NO ₂	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-144	EtO	H	H	NO ₂	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-145	MeO	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
I-146	CH ₂ =CHC H ₂ O	H	H	Cl	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-147	CH ₂ =CHC H ₂ O	H	H	Cl	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-148	CH ₂ =CHC H ₂ O	H	H	NO ₂	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-149	CH ₂ =CHC H ₂ O	H	H	NO ₂	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-150	EtO	H	H	Br	4-Cl-2-F-Ph	2,4-ジフルオロフェニル
I-151	EtO	H	H	Br	4-Cl-2-F-Ph	4-Cl-2-F-Ph
I-152	EtO	H	H	Br	2,4-ジクロロフェニル	4-Cl-2-F-Ph
I-153	EtO	H	H	Br	2,4-ジクロロフェニル	2,4-ジフルオロフェニル

10

20

30

40

50

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
I-154	EtO	H	H	Br	4-Cl-2-F-Ph	2,4-ジフルオロフェニル
I-155	EtO	H	H	Br	4-Cl-2-F-Ph	2-Cl-4-F-Ph
I-156	EtO	H	H	Br	4-Cl-2-F-Ph	4-F-Ph
I-157	EtO	H	H	Br	4-Cl-2-F-Ph	4-Cl-Ph
I-158	EtO	H	H	Br	2,4-ジフルオロフェニル	4-F-Ph
I-159	EtO	H	H	Br	2,4-ジフルオロフェニル	4-Cl-Ph
I-160	EtO	H	H	Br	4-F-Ph	4-Cl-2-F-Ph
I-161	EtO	H	H	Br	4-Cl-Ph	4-Cl-2-F-Ph
I-162	EtO	H	H	Br	2-Cl-4-F-Ph	4-Cl-2-F-Ph
I-163	EtO	H	H	Br	2,4-ジフルオロフェニル	4-Cl-2-F-Ph
I-164	MeO	Me	H	Cl	Ph	3-F-Ph
I-165	MeO	Me	H	Cl	Ph	3,5-ジフルオロフェニル
I-166	MeO	Me	H	Cl	Ph	2-F-Ph
I-167	OH	Me	H	Br	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-168	OH	Me	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-169	MeO	Me	H	Br	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-170	MeO	Me	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-171	MeO	Me	H	CN	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-172	MeO	(S)-Me	H	CN	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-173	MeO	(R)-Me	H	CN	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-174	MeO	(R)-Me	H	Br	3-F-Ph	Ph
I-175	OH	(R)-Me	H	Br	3-F-Ph	Ph
I-176	MeO	(S)-Me	H	Br	3-F-Ph	Ph
I-177	OH	(S)-Me	H	Br	3-F-Ph	Ph
I-178	MeO	(R)-Me	H	CN	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-179	MeO	(S)-Me	H	CN	2,6-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-180	EtO	H	H	Br	2-F-Ph	2-F-Ph
I-181	MeO	H	H	Br	2,5-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-182	MeO	(R)-Me	H	Br	2,5-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-183	MeO	H	H	CN	2,5-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル
I-184	MeO	(R)-Me	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジフルオロフェニル
I-185	MeO	(R)-Me	H	CN	2,5-ジフルオロフェニル	3,4-ジフルオロフェニル

【 0 0 4 9 】

表 I I : 塩

10

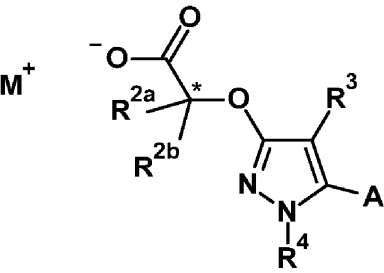
20

30

40

50

【化 8】



(I)

10

【表 2】

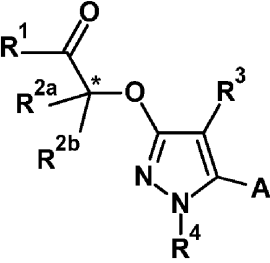
実施例番号	M ⁺	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
II-01	K ⁺	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-02	Na ⁺	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-03	Li ⁺	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-04	モルホリン-4-イウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-05	2-プロピルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-06	プロピルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-07	トリプロピルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-08	エチル(メチル)アンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-09	tert-ブチルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-10	2-フェニルエチルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-11	ピペリジン-1-イウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-12	オクチルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-13	ヘンシールアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph
II-14	トリエチルアンモニウム	H	H	I	3-F-Ph	Ph

20

【0050】

表III：アミド

【化 9】



(I)

30

40

50

【表 3】

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
III-001	2-メチルプロパ-2-エン-1-イルアミノ	H	H	Br	2-F-Ph	Ph
III-002	シクロプロピルアミノ	H	H	Br	2-F-Ph	Ph
III-003	2-プロピルアミノ	H	H	Br	2-F-Ph	Ph
III-004	2-プロピルアミノ	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-005	シクロプロピルメチルアミノ	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-006	プロパ-2-イン-1-イルアミノ	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-007	2-メチルプロピルアミノ	H	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-008	2-プロピルアミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-009	ブチルアミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-010	ヘンジールアミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-011	シクロプロピルアミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-012	シクロプロピルメチルアミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-013	2-メチルプロピルアミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-014	2-プロピル(メチル)アミノ	H	H	I	4-F-Ph	3-F-Ph
III-015	2-プロピルアミノ	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
III-016	プロパ-2-イン-1-イルアミノ	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
III-017	ブタ-2-イン-1-イルアミノ	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
III-018	シクロプロピルアミノ	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
III-019	(3-エトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	H	H	Br	4-F-Ph	3-F-Ph
III-020	2-プロピルアミノ	Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
III-021	(3-メトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	Me	H	CN	Ph	4-F-Ph
III-022	2-プロピルアミノ	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
III-023	プロパ-2-イン-1-イルアミノ	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
III-024	シクロプロピルアミノ	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
III-025	シクロプロピルメチルアミノ	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
III-026	(3-メトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
III-027	(2-メトキシ-2-オキソエチル)アミノ	H	H	Cl	4-F-Ph	3-F-Ph
III-028	シクロプロピルアミノ	H	H	NO ₂	4-F-Ph	Ph
III-029	(2-メトキシ-2-オキソエチル)アミノ	H	H	NO ₂	3-F-Ph	Ph
III-030	ヘンジールアミノ	H	H	NO ₂	3-F-Ph	Ph
III-031	2-プロピルアミノ	H	H	NO ₂	3-F-Ph	Ph
III-032	2-フェニルエチルアミノ	H	H	Br	3-F-Ph	Ph

10

20

30

40

50

実施例番号	R ¹	R ^{2a}	R ^{2b}	R ³	R ⁴	A
III-033	(3-エトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
III-034	ヘキシルアミノ	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
III-035	シクロプロピルメチルアミノ	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
III-036	シクロプロピルアミノ	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
III-037	2-プロペニルアミノ	H	H	Br	3-F-Ph	Ph
III-038	ベンジルオキシアミノ	H	H	I	3-F-Ph	Ph
III-039	ベンチルアミノ	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
III-040	シクロプロピルメチルアミノ	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
III-041	シクロプロピルアミノ	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
III-042	プロパ-2-イン-1-イルアミノ	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
III-043	2-プロペニルアミノ	H	H	NO ₂	4-F-Ph	3-F-Ph
III-044	3,3,3-トリフルオロプロピルアミノ	H	H	Br	3-F-Ph	3-F-Ph
III-045	2-プロペニルアミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-046	プロピルアミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-047	シクロプロピルメチルアミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-048	2-メチルプロピルアミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-049	2-プロペニルアミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-050	プロピルアミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-051	シクロプロピルメチルアミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-052	2-メチルプロピルアミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-053	2-プロペニルアミノ	H	H	Br	2-F-Ph	3,4-ジF-Ph
III-054	2-プロペニルアミノ	H	H	Br	2,6-ジF-Ph	3,4-ジF-Ph
III-055	[3-(メトキシカルボニル)シクロヘンチル]アミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-056	(2-メトキシ-2-オキソエチル)アミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-057	(3-メトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	Me	H	Br	Ph	4-F-Ph
III-058	(2-メトキシ-2-オキソエチル)アミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-059	[3-(メトキシカルボニル)シクロヘンチル]アミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-060	(3-メトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	Me	H	Cl	Ph	4-F-Ph
III-061	(3-メトキシ-3-オキソプロピル)アミノ	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
III-062	[3-(メトキシカルボニル)シクロヘンチル]アミノ	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
III-063	2-プロペニルアミノ	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
III-064	プロピルアミノ	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
III-065	(2-メトキシ-2-オキソエチル)アミノ	Me	Me	Br	Ph	4-F-Ph
III-066	2-プロペニルアミノ	H	H	NO ₂	2-F-Ph	3,4-ジF-Ph
III-067	2-プロペニルアミノ	H	H	Cl	2-F-Ph	3,4-ジF-Ph
III-068	2-プロペニルアミノ	H	H	Cl	2,6-ジF-Ph	3,4-ジF-Ph
III-069	2-プロペニルアミノ	H	H	NO ₂	2,6-ジF-Ph	3,4-ジF-Ph

【0051】

本発明のさらなる態様は、本発明による一般式（I）で表される化合物の調製に関する。本発明による化合物は、さまざまな方法で調製することができる。

【0052】

本発明による化合物は、例えば、下記スキーム1に示されている合成方法によって、置換されている1，5-ジフェニル-1H-ピラゾール-3-オール又は1-フェニル-5-チエニル-1H-ピラゾール-3-オール（II）から、調製することができる。

10

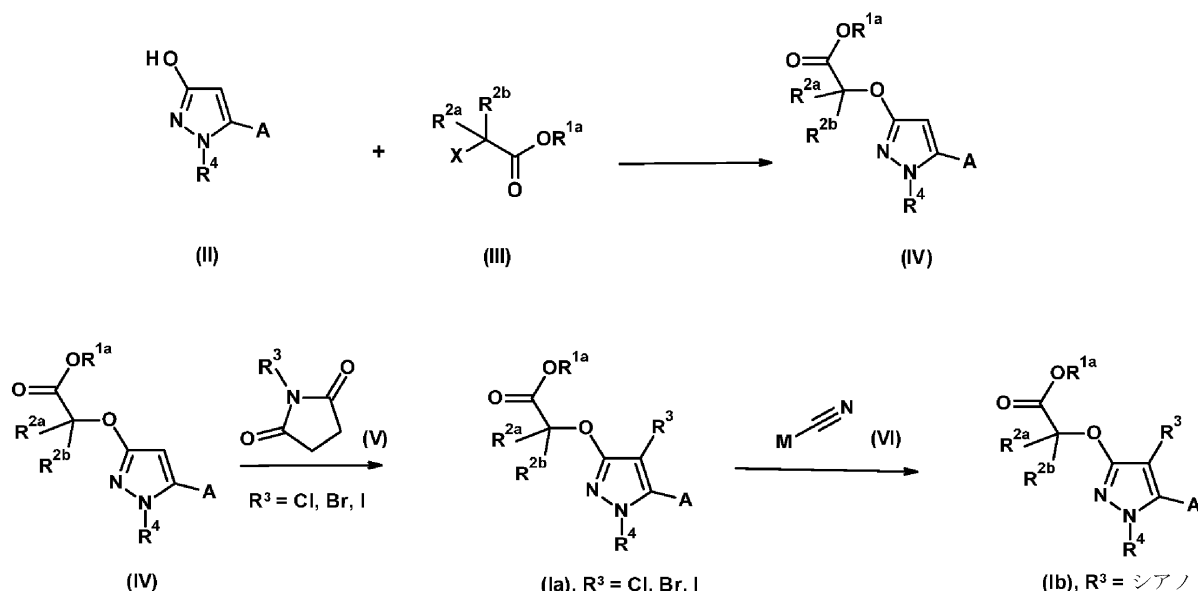
20

30

40

50

【化 10】



スキーム 1

スキーム 1 は、一般式 (I V) で表される置換ピラゾールを一般式 V で表される求電子性ハロゲン化試薬 (例えば、N-クロロスクシンイミド (V、 $R^3 = Cl$)、N-ブロモスクシンイミド (V、 $R^3 = Br$) 又は N-ヨードスクシンイミド (V、 $R^3 = I$)) との反応させることによる、一般式 (I a、 $R^3 = Cl, Br, I$) で表される化合物の合成について記載している。同様の方法で、他の求電子試薬、例えば、求電子性ニトロ化試薬 (例えば、硝酸、テトラフルオロホウ酸ニトロニウム又は硝酸アンモニウム/トリフルオロ酢酸) ($R^3 = NO_2$ の場合) 又は求電子性フッ素化試薬 (例えば、DAST、Selectfluor 又は N-フルオロベンゼンスルホンイミド) ($R^3 = F$ の場合) を使用することも可能である。該反応は、好ましくは、適切な溶媒 (例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、1, 2-ジクロロエタン又はアセトニトリル) の中で、 $0^\circ C \sim 120^\circ C$ の温度範囲内で実施する。

【0053】

一般式 (I b ; $R^3 = CN$) で表される化合物は、例えば、式 (I a ; $R^3 = Cl, Br, I$ 、好ましくは、 $R^3 = Br, I$) で表される化合物を、適切な溶媒の中で、適切な量の遷移金属触媒 (特に、パラジウム触媒 (例えば、パラジウム (0) テトラキス (トリフェニルホスフィン) 又は二酢酸パラジウム又はビス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (II) ジクロリド)、又は、ニッケル触媒 (例えば、ニッケル (II) アセチルアセトネート又はビス (トリフェニルホスフィン) ニッケル (II) クロリド)) を添加して、金属シアン化物 $M-CN$ (VI) と反応させることによって、好ましくは、高温で、有機溶媒 (例えば、1, 2-ジメトキシエタン又は N, N-ジメチルホルムアミド) の中で反応させることによって、調製することができる。「M」ラジカルは、例えば、マグネシウム、亜鉛、リチウム又はナトリウムを表す。一般に適しているクロスカップリング法は、「R. D. Larsen, Organometallics in Process Chemistry 2004 Springer Verlag」、「I. Tsuji, Palladium Reagents and Catalysts 2004 Wiley」及び「M. Belier, C. Bolm, Transition Metals for Organic Synthesis 2004 VCH-Wiley」に記載されているクロスカップリング法である。適切なさらなる合成方法は、「Chem. Rev. 2006, 106, 2651」、「Platinum Metals Review, 2009, 53, 183」、「Platinum Metals R

review 2008, 52, 172」及び「Acc. Chem. Res. 2008, 41, 1486」に記載されている。

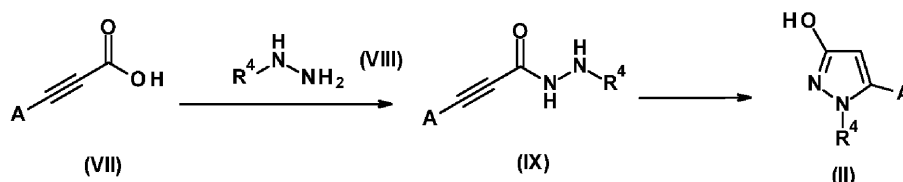
【0054】

一般式(I V)で表される化合物は、一般式(I I)で表される3-ヒドロキシピラゾールを塩基の存在下で一般式(I I I)で表されるハロゲン化物を用いてアルキル化することによって、又は、当業者には既知の方法によって若しくは当業者には既知の方法と同様にして、調製することができる。好ましくは、該塩基は、リチウム、ナトリウム、カリウム及びセシウムからなる群から選択されるアルカリ金属の炭酸塩である。該反応は、好ましくは、適切な溶媒(例えば、ジクロロメタン、アセトニトリル、N, N-ジメチルホルムアミド又は酢酸エチル)の中で、室温~150℃の温度範囲内で、実施する。「J. Med. Chem. 2011, 54(16), 5820-5835」及びWO2010/010154を参照されたい。「X」ラジカルは、例えば、塩素、臭素又はヨウ素を表す。

【0055】

3-ヒドロキシピラゾール(I I)は、例えば、文献から知られている方法と同様にし、一般式(V I I)で表される置換3-フェニル-又はチエニルプロピオン酸誘導体から2段階で、調製することができる(スキーム2; 例えば、以下のものを参照されたい: Adv. Synth. Catal. 2014, 356, 3135-3147)。

【化11】



スキーム2

第1段階(スキーム2)では、アミドカップリング試薬(例えば、プロパンホスホン酸無水物(T3P)、ジシクロヘキシルカルボジイミド、N-(3-ジメチルアミノプロピル)-N'-エチルカルボジイミド、N, N'-カルボニルジイミダゾール、2-クロロ-1, 3-ジメチルイミダゾリウムクロリド又は2-クロロ-1-メチルピリジニウムヨージド)の存在下における一般式(V I I)で表される置換プロピオン酸と一般式(V I I I)で表されるアリアルヒドラジンのアミドカップリングを介して、一般式(I X)で表される化合物を合成する(以下のものを参照されたい: Chemistry of Peptide Synthesis, Ed. N. Leo Benoiton, Taylor & Francis, 2006, ISBN-10: 1-57444-454-9)。ポリマー結合試薬(例えば、ポリマー結合ジシクロヘキシルカルボジイミド)も、このカップリング反応に適している。該反応は、好ましくは、適切な溶媒(例えば、ジクロロメタン、テトラヒドロフラン、アセトニトリル、N, N-ジメチルホルムアミド又は酢酸エチル)の中で、塩基(例えば、トリエチルアミン、N, N-ジイソプロピルエチルアミン又は1, 8-ジアザビシクロ[5. 4. 0]ウンデカ-7-エン)の存在下、0℃~80℃の温度範囲内で、実施する(スキーム2を参照されたい)。T3Pペプチドカップリング条件に関しては、「Organic Process Research & Development 2009, 13, 900-906」を参照されたい。

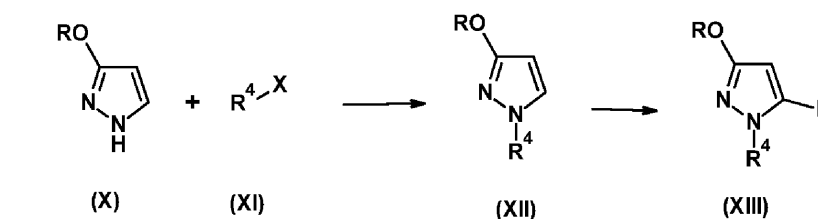
【0056】

第2段階(スキーム2)では、一般式(I X)で表される化合物をハロゲン化銅(例えば、ヨウ化銅(I)、臭化銅(I))又は塩基(例えば、ナトリウムメトキシド)又は酸(例えば、メタンスルホン酸)の存在下で環化させて、一般式(I I)で表される3-ヒドロキシピラゾールを生成させる。該反応は、好ましくは、適切な溶媒(例えば、1, 2-ジクロロエタン、アセトニトリル、N, N-ジメチルホルムアミド、n-プロパノール、n-ブタノール又は酢酸エチル)の中で、0℃~120℃の温度範囲内で、実施する。

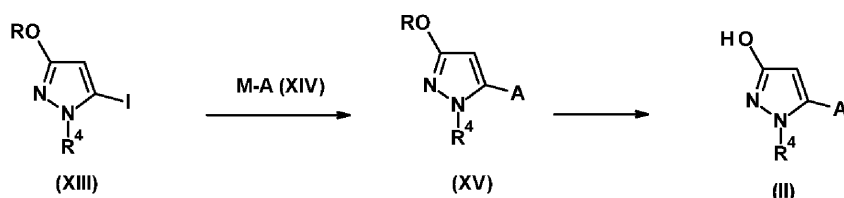
【0057】

3-ヒドロキシピラゾール(II)は、さらにまた、例えば、一般式(X)で表される保護された3-ヒドロキシピラゾールから調製することもできる。この場合の保護基Rは、好ましくは、ベンジル基又はトリアルキルシリル基である。

【化12】



R = 保護基



スキーム3

スキーム3の第1段階では、ハロゲン化銅(例えば、ヨウ化銅(I))の存在下において一般式(XI)で表されるハロゲン化アリールを用いた一般式(X)で表される保護された3-ヒドロキシピラゾールのN-アリール化によって、一般式(XII)で表される化合物を調製する。該反応は、好ましくは、適切な溶媒(例えば、アセトニトリル又はN,N-ジメチルホルムアミド)の中で、塩基(例えば、トリエチルアミン又は炭酸セシウム)の存在下、0℃~120℃の温度範囲内で実施する。一般式(XII)で表される化合物は、当業者には既知の類似した方法に従って調製することができる(例えば、「Chem. Med. Chem. 2015, 10, 1184-1199」を参照されたい)。一般式(XI)で表される化合物における「X」ラジカルは、例えば、塩素、臭素又はヨウ素である。

【0058】

第2段階では、一般式(XIII)で表される5-ヨードピラゾールを一般式(XII)で表される化合物から調製する。該反応は、強塩基(例えば、n-ブチルリチウム又はリチウムジイソプロピルアミド)及びヨウ素の存在下で行う。該反応は、好ましくは、適切な溶媒(例えば、ジエチルエーテル又はテトラヒドロフラン)の中で、-78℃~-60℃の温度範囲内で実施する。

【0059】

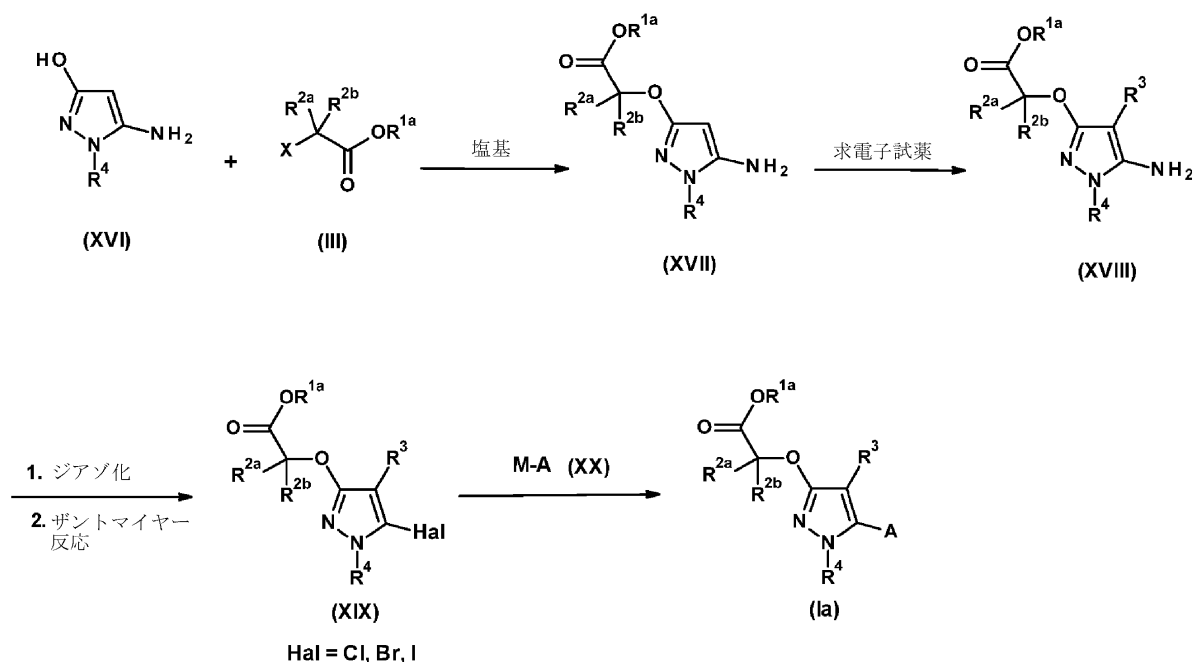
式(XV)で表される化合物は、例えば、式(XIII)で表される化合物を、適切な溶媒の中で、適切な量の遷移金属触媒(特に、パラジウム触媒(例えば、二酢酸パラジウム又はビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド)、又は、ニッケル触媒(例えば、ニッケル(II)アセチルアセトネート又はビス(トリフェニルホスフィン)ニッケル(II)クロリド))を添加して、化合物M-A(XIV)と反応させることによって、好ましくは、高温で、有機溶媒(例えば、1,2-ジメトキシエタン)の中で反応させることによって、調製することができる。「M」ラジカルは、例えば、B(OR^b)(OR^c)を表し、ここで、R^b及びR^cラジカルは、独立して、例えば、水素若しくは(C₁-C₄)-アルキルであるか、又は、ラジカルR^bとR^cが互いに結合している場合、一緒になってエチレン又はプロピレンである。当業者にはよく知られている標準的な方法によって式(XV)で表される化合物を脱保護することで、最終的に、一般式(

ⅠⅠ) で表される 3-ヒドロキシピラゾールが得られる。これは、例えばスキーム 1 に記載されているようにして、本発明による化合物にさらに変換させることができる。

【0060】

本発明による化合物は、さらにまた、例えば、以下のスキーム 4 に示されている合成方法によって、一般式 (XVI) で表される置換 5-アミノ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-オールから調製することができる。

【化 13】



スキーム 4

スキーム 4 は、当業者に知られている方法による又は当業者に知られている方法と類似した方法による、式 (Ia) で表される化合物の合成について記載しており、ここで、該合成は、一般式 (XIX) [式中、Hal は、好ましくは、臭素又はヨウ素であり、さらに好ましくは、ヨウ素である] で表される化合物を、適切な量の遷移金属触媒 [特に、パラジウム触媒 (例えば、二酢酸パラジウム又はビス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (ⅠⅠ) ジクロリド)、又は、ニッケル触媒 (例えば、ニッケル (ⅠⅠ) アセチルアセトネート又はビス (トリフェニルホスフィン) ニッケル (ⅠⅠ) クロリド)] 添加して、化合物 M-A (XX) と、好ましくは、高温で、有機溶媒 (例えば、1, 2-ジメトキシエタン又はジオキサン) の中で、反応させることによる。「M」ラジカルは、例えば、Mg-Hal、Zn-Hal、Sn (C₁-C₄)-アルキル)₃、リチウム、銅又は B (OR^b) (OR^c) を表し、ここで、R^b 及び R^c ラジカルは、独立して、例えば、水素、(C₁-C₄)-アルキルであるか、又は、ラジカル R^b と R^c が互いに結合している場合、一緒になってエチレン又はプロピレンである。

【0061】

一般式 (XIX) で表される化合物は、ジアゾ化と、それに続く、使用し得る試薬 (例えば、銅 (Ⅰ) と銅 (ⅠⅠ) の臭化物/塩化物の混合物、ヨウ素又はジヨードメタン) の存在下における一般式 (XVII) で表される 5-アミノピラゾールと慣習的な有機及び無機の亜硝酸エステル (例えば、亜硝酸 1, 1-ジメチルエチル、亜硝酸 tert-ブチル又は亜硝酸イソアミル) の反応によって、調製することができる (スキーム 4)。該反応は、好ましくは、適切な溶媒 (例えば、ジクロロメタン、アセトニトリル又は N, N-ジメチルホルムアミド) の中で、0℃~120℃の温度範囲内で実施する。

【0062】

一般式 (XVII) で表される化合物は、当業者には既知の方法によって又は当業者

には既知の方法と同様の方法によって、一般式 (X V I I) で表される置換ピラゾールを、求電子試薬、例えば、求電子性ハロゲン化試薬〔例えば、N-クロロスクシンイミド ($R^3 = Cl$ の場合)、N-ブロモスクシンイミド ($R^3 = Br$ の場合)、N-ヨードスクシンイミド ($R^3 = I$ の場合)〕又は求電子性ニトロ化試薬〔例えば、硝酸、テトラフルオロオロホウ酸ニトロニウム、硝酸アンモニウム／トリフルオロ酢酸〕 ($R^3 = NO_2$ の場合) 又は求電子性フッ素化試薬〔例えば、D A S T、S e l e c t f l u o r、N-フルオロベンゼンスルホンイミド〕 ($R^3 = F$ の場合) と反応させることによって、合成する。該反応は、好ましくは、適切な溶媒 (例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、1, 2-ジクロロエタン又はアセトニトリル) の中で、 $0^{\circ}C \sim 120^{\circ}C$ の温度範囲内で実施する。一般式 (X V I I I) ; 式中、 $R^3 = CN$ で表される化合物は、例えば、式 (X V I I I) ; 式中、 $R^3 =$ ハロゲン、好ましくは、 $R^3 = Br, I$ で表される化合物を、適切な溶媒の中で、適切な量の遷移金属触媒 (特に、パラジウム触媒 (例えば、パラジウム (0) テトラキス (トリフェニルホスフィン) 又は二酢酸パラジウム又はビス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (II) ジクロリド)、又は、ニッケル触媒 (例えば、ニッケル (II) アセチルアセトネート又はビス (トリフェニルホスフィン) ニッケル (II) クロリド)) を添加して、金属シアン化物 (例えば、シアン化亜鉛) と反応させることによって、好ましくは、高温で、有機溶媒 (例えば、1, 2-ジメトキシエタン又はN, N-ジメチルホルムアミド) の中で反応させることによって、調製することができる。一般に適しているクロスカップリング法は、「R. D. Larsen, Organometallics in Process Chemistry 2004 Springer Verlag」、 「I. Tsuji, Palladium Reagents and Catalysts 2004 Wiley」及び「M. Belier, C. Bolm, Transition Metals for Organic Synthesis 2004 VCH-Wiley」に記載されているクロスカップリング法である。適切なさらなる合成方法は、「Chem. Rev. 2006, 106, 2651」、「Platinum Metals Review, 2009, 53, 183」、「Platinum Metals Review 2008, 52, 172」及び「Acc. Chem. Res. 2008, 41, 1486」に記載されている。

【0063】

一般式 (X V I I) で表される化合物は、当業者には既知の方法によって又は当業者には既知の方法と同様の方法によって、塩基の存在下、一般式 (X V I) で表される置換5-アミノ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-オールを一般式 (I I I) で表されるハロゲン化物でアルキル化することにより、合成することができる (スキーム4を参照されたい)。該塩基は、アルカリ金属 (例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム又はセシウム) の炭酸塩であり得る。該反応は、好ましくは、適切な溶媒 (例えば、ジクロロメタン、アセトニトリル、N, N-ジメチルホルムアミド又は酢酸エチル) の中で、室温 $\sim 150^{\circ}C$ の温度範囲内で実施する。一般式 (I I I) で表される化合物における「X」ラジカルは、例えば、塩素、臭素又はヨウ素である。一般式 (X V I) で表される化合物は、市販されているか、又は、文献から知られている。

【0064】

一般式 (I a) で表される上記化合物を使用して、当業者によく知られている標準的な方法によって、一般式 (I c) (式中、 $R^{1a} = H$) 及び一般式 (I d) (式中、 $R^1 = NR^9R^{10}$) で表される本発明化合物を調製することができる。

10

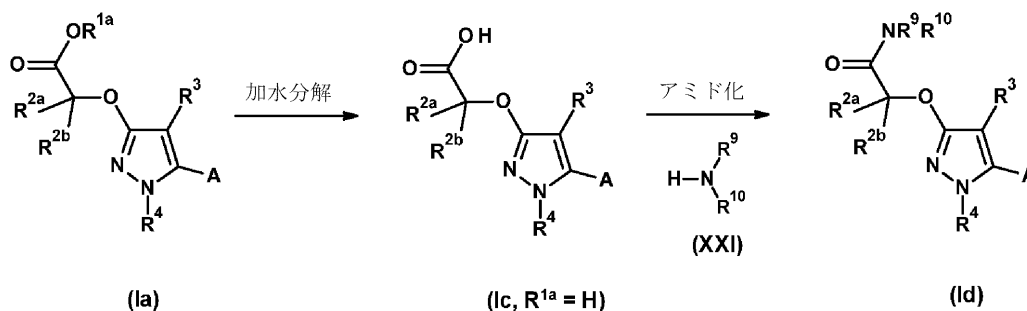
20

30

40

50

【化 14】



10

スキーム 5

スキーム 5 に示されているように、一般式 (Ic) で表される酸は、当業者には既知の方法によって又は当業者には既知の方法と同様の方法によって、一般式 (Ia) で表されるエステルを加水分解することによって調製することができる。該加水分解は、塩基又はルイス酸の存在下で実施することができる。該塩基は、アルカリ金属（例えば、リチウム、ナトリウム又はカリウム）の水酸化物塩であることができ、そして、該加水分解反応は、好ましくは、室温～120℃の温度範囲内で実施する。

【0065】

一般式 (Id) で表される本発明化合物は、アミドカップリング試薬（例えば、プロパンホスホン酸無水物 (T3P)、ジシクロヘキシルカルボジイミド、N-(3-ジメチルアミノプロピル)-N'-エチルカルボジイミド、N,N'-カルボニルジイミダゾール、2-クロロ-1,3-ジメチルイミダゾリウムクロリド又は2-クロロ-1-メチルピリジニウムヨード）の存在下における一般式 (Ic) で表される酸と一般式 (XXI) で表されるアミンのアミドカップリングを介して、合成する（以下のものを参照されたい：Chemistry of Peptide Synthesis, Ed. N. Leo Benoiton, Taylor & Francis, 2006, ISBN-10: 1-57444-454-9）。ポリマー結合試薬（例えば、ポリマー結合ジシクロヘキシルカルボジイミド）も、このカップリング反応に適している。該反応は、好ましくは、適切な溶媒（例えば、ジクロロメタン、アセトニトリル、N,N-ジメチルホルムアミド又は酢酸エチル）の中で、塩基（例えば、トリエチルアミン、N,N-ジイソプロピルエチルアミン又は1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデカ-7-エン）の存在下、0℃～80℃の温度範囲内で、実施する。T3Pペプチドカップリング条件に関しては、「Organic Process Research & Development 2009, 13, 900-906」を参照されたい。

20

30

【0066】

式 (I) で表される本発明化合物（及び／又はそれらの塩）〔以下では、集合的に、「本発明の化合物」と称される〕は、広範囲の経済的に重要な単子葉及び双子葉の一年生有害植物に対して優れた除草効力を示す。

【0067】

本発明は、従って、望ましくない植物を防除する方法又は植物の成長を調節する方法、好ましくは作物植物内において、望ましくない植物を防除する方法又は植物の成長を調節する方法も提供し、ここで、該方法においては、本発明による1種類以上の化合物を、該植物（例えば、有害植物、例えば、単子葉雑草若しくは双子葉雑草、又は、望ましくない作物植物）に施用するか、又は、種子（例えば、穀粒、種子、又は、栄養繁殖器官、例えば、塊茎、若しくは、芽を有する苗条部分）に施用するか、又は、当該植物がそこで成長している区域（例えば、耕作地）に施用する。本発明の化合物は、例えば、植え付け前（適切な場合には、さらに、土壤に混和することによって）、発生前又は発生後に使用することができる。本発明の化合物によって防除することが可能な何種類かの代表的な単子葉雑草植物相及び双子葉雑草植物相の具体的な例は以下のとおりであるが、そのような列挙

40

50

されたものは特定の種に限定することを意図するものではない。

【0068】

以下の属の単子葉有害植物： アエギロプス属 (Aegilops)、カモジグサ属 (Agropyron)、ヌカボ属 (Agrostis)、スズメノテッポウ属 (Alopecurus)、セイヨウヌカボ属 (Apera)、カラスムギ属 (Avena)、ビロードキビ属 (Brachiaria)、スズメノチャヒキ属 (Bromus)、クリノイガ属 (Cenchrus)、ツユクサ属 (Commelina)、ギョウギシバ属 (Cynodon)、カヤツリグサ属 (Cyperus)、タツノツメガヤ属 (Dactyloctenium)、メヒシバ属 (Digitaria)、ヒエ属 (Echinochloa)、ハリイ属 (Eleocharis)、オヒシバ属 (Eleusine)、スズメガヤ属 (Eragrostis)、ナルコビエ属 (Eriochloa)、ウシノケグサ属 (Festuca)、テンツキ属 (Fimbristylis)、アメリカコナギ属 (Heteranthera)、チガヤ属 (Imperata)、カモノハシ属 (Ischaemum)、アゼガヤ属 (Leptochloa)、ドクムギ属 (Lolium)、ミズアオイ属 (Monochoria)、キビ属 (Panicum)、スズメノヒエ属 (Paspalum)、クサヨシ属 (Phalaris)、アワガエリ属 (Phleum)、イチゴツナギ属 (Poa)、ツノアイアシ属 (Rottboellia)、オモダカ属 (Sagittaria)、ホタルイ属 (Scirpus)、エノコログサ属 (Setaria)、モロコシ属 (Sorghum)。

【0069】

以下の属の双子葉雑草： イチビ属 (Abutilon)、ヒユ属 (Amaranthus)、ブタクサ属 (Ambrosia)、アノダ属 (Anoda)、カミツレ属 (Anthemis)、アフアネス属 (Aphanes)、ヨモギ属 (Artemisia)、ハマアカザ属 (Atriplex)、ヒナギク属 (Bellis)、センダングサ属 (Bidens)、ナズナ属 (Capsella)、ヒレアザミ属 (Carduus)、カワラケツメイ属 (Cassia)、ヤグルマギク属 (Centaurea)、アカザ属 (Chenopodium)、アザミ属 (Cirsium)、セイヨウヒルガオ属 (Convolvulus)、チョウセンアサガオ属 (Datura)、ヌスビトハギ属 (Desmodium)、エメキス属 (Emex)、エゾスズシロ属 (Erysimum)、トウダイグサ属 (Euphorbia)、チシマオドリコソウ属 (Galeopsis)、コゴメギク属 (Galinsoga)、ヤエムグラ属 (Galium)、フヨウ属 (Hibiscus)、サツマイモ属 (Ipomoea)、ホウキギ属 (Kochia)、オドリコソウ属 (Lamium)、マメグンバイナズナ属 (Lepidium)、アゼトウガラシ属 (Lindernia)、シカギク属 (Matricaria)、ハッカ属 (Mentha)、ヤマアイ属 (Mercurialis)、ザクロソウ属 (Mullugo)、ワスレナグサ属 (Myosotis)、ケシ属 (Papaver)、アサガオ属 (Pharbitis)、オオバコ属 (Plantago)、タデ属 (Polygonum)、スベリヒユ属 (Portulaca)、キンポウゲ属 (Ranunculus)、ダイコン属 (Raphanus)、イヌガラシ属 (Rorippa)、キカシグサ属 (Rotala)、ギシギシ属 (Rumex)、オカヒジキ属 (Salsola)、キオン属 (Senecio)、セสบニア属 (Sesbania)、キンゴジカ属 (Sida)、シロガラシ属 (Sinapis)、ナス属 (Solanum)、ノゲシ属 (Sonchus)、ナガボノウルシ属 (Sphenoclea)、ハコベ属 (Stellaria)、タンポポ属 (Taraxacum)、グンバイナズナ属 (Thlaspi)、シャジクソウ属 (Trifolium)、イラクサ属 (Urtica)、クワガタソウ属 (Veronica)、スミレ属 (Viola)、オナモミ属 (Xanthium)。

【0070】

本発明の化合物が発芽前に土壌表面に施用される場合、雑草の実生の出芽が完全に防止されるか、又は、雑草は、子葉期に達するまで成長するが、その後成長を停止する。

【0071】

該活性成分が植物の緑色の部分に発生後施用される場合は、その処理の後で成長は停止し、そして、当該有害植物は、施用時点における成長段階にとどまるか、又は、一定期間の後、完全に枯死し、その結果、このようにして、作物植物にとって有害である雑草との競合が、極めて早期に持続的に排除される。

【0072】

本発明の化合物は、有用な植物の作物の中で選択的であることができ、そして、非選択的除草剤として使用することも可能である。

【0073】

該活性成分は、それらの除草特性及び植物成長調節特性によって、既知遺伝子組換え植物又は今後開発される遺伝子組換え植物の作物の中の有害な植物を防除するために用いることもできる。一般に、トランスジェニック植物は、特定の有利な特性によって、例えば、農業産業において使用される特定の活性成分（特に、特定の除草剤）に対する抵抗性、植物病害又は植物病害の病原体（例えば、特定の昆虫類又は微生物、例えば、菌類、細菌類若しくはウイルス類）に対する抵抗性などによって、特徴付けられる。別の特定の特性は、例えば、収穫物の、量、質、貯蔵性、組成及び特定の成分などに関する。例えば、デンプン含有量が増大されているか若しくはデンプンの質が変性されている既知トランスジェニック植物、又は、収穫物内の脂肪酸組成が異なっている既知トランスジェニック植物が存在している。特定のさらなる特性は、非生物学的ストレス因子、例えば、熱、低温、渇水、塩分及び紫外線などに対する耐性又は抵抗性である。

【0074】

好ましくは、有用な植物及び観賞植物の経済的に重要なトランスジェニック作物において、式（I）で表される本発明化合物又はその塩を使用する。

【0075】

式（I）で表される化合物は、除草剤として、当該除草剤の植物毒性効果に対して抵抗性であるか又は遺伝子工学によって抵抗性にされた有用な植物の作物において、使用することができる。

【0076】

既存の植物と比較して改質された特性を有する新規植物を生成させる慣習的な方法は、例えば、従来の栽培法及び突然変異体の生成である。別法として、変更された特性を有する新規植物は、組換え法を用いて生成させることができる（例えば、EP 0221044、EP 0131624を参照されたい）。例えば、記載されているのは、以下のことに関するいくつかの場合である：植物体内で合成されるデンプンを改質することを目的とする作物植物の遺伝子組換え（例えば、WO 92/011376A、WO 92/014827A、WO 91/019806A）；グルホシネートタイプ（cf. 例えば、EP 0242236A、EP 0242246A）若しくはグリホセートタイプ（WO 92/000377A）若しくはスルホニル尿素タイプ（EP 0257993A、US 5,013,659）の特定の除草剤に対して抵抗性を示す、又は、「遺伝子スタッキング（gene stacking）」によってそれら除草剤の組合せ若しくは混合物に対して抵抗性を示す、トランスジェニック作物植物、例えば、Optimum™ GAT™（グリホセートALS耐性）の商品名又は名称を有するトランスジェニック作物植物、例えば、トウモロコシ又はダイズ；

- ・ 植物を特定の害虫に対して抵抗性を示すようにするバシルス・ツリングエンシス毒素（Bt毒素）を産生することができるトランスジェニック作物植物（例えば、ワタ）（EP 0142924A、EP 0193259A）；

- ・ 改変された脂肪酸組成を有するトランスジェニック作物植物（WO 91/013972A）；

- ・ 新規成分又は二次代謝産物（例えば、耐病性を向上させる新規フィトアレキシンなど）を有する遺伝子組換えされた作物植物（EP 0309862A、EP 0464461A）；

- ・ より多い収穫量及びより高いストレス耐性を有する、光呼吸が低下した遺伝子組換

え植物 (EP 0305398A) ;

- ・ 薬学的に又は診断的に重要なタンパク質を産生するトランスジェニック作物植物 (「分子ファーミング (molecular pharming)」) ;
- ・ より多い収穫量又はより優れた品質を特徴とするトランスジェニック作物植物 ;
- ・ 例えば上記で記載した新規特性の組み合わせによって区別される、トランスジェニック作物植物 (「遺伝子スタッキング」) 。

【0077】

改質された特性を有する新規トランスジェニック植物を産生させるために使用することが可能な多くの分子生物学的技術が、原則として知られている ; 例えば、以下のものを参照されたい : 「I. Potrykus and G. Spangenberg (eds), Gene Transfer to Plants, Springer Lab Manual (1995), Springer Verlag Berlin, Heidelberg or Christou, "Trends in Plant Science" 1 (1996) 423-431」。

【0078】

そのような遺伝子操作に関して、突然変異誘発又はDNA配列の組換えによる配列変更を可能にする核酸分子をプラスミドの中に導入することができる。標準的な方法を用いて、例えば、塩基交換を実施することが可能であり、部分配列を除去することが可能であり、又は、天然配列若しくは合成配列を加えることが可能である。DNA断片を互いに連結させるために、その断片にアダプター又はリンカーを加えることができる ; 例えば、以下のものを参照されたい : 「Sambrook et al., 1989, Molecular Cloning, A Laboratory Manual, 2nd ed., Cold Spring Harbor Laboratory Press, Cold Spring Harbor, NY」、又は、「Winnacker "Gene und Klone" [Genes and Clones], VCH Weinheim, 2nd edition, 1996」。

【0079】

例えば、遺伝子産物の活性が低下した植物細胞の生成は、少なくとも1の対応するアンチセンスRNAを発現させることによって、又は、コサプレッション効果を達成するためのセンスRNAを発現させることによって、又は、前記遺伝子産物の転写産物を特異的に切断する少なくとも1の適切に構築されたリボザイムを発現させることによって、達成することができる。この目的のために、最初に、存在し得る全てのランキング配列を含む遺伝子産物の全コード配列を含んでいるDNA分子を使用することが可能であり、さらにまた、コード配列の一部分だけを含んでいるDNA分子 (この場合、これらの部分は、細胞内においてアンチセンス効果を有するのに十分なほど長いことが必要である) を使用することも可能である。さらにまた、遺伝子産物のコード配列と高度に相同性を有するが、それらと完全に同一であるわけではないDNA配列を用いることもできる。

【0080】

植物体内で核酸分子を発現させる場合、合成されたタンパク質は、植物細胞の任意の望ましい区画内に局在化させ得る。しかしながら、特定の区画内に局在化させるためには、例えば、特定の区画内に局在化することを保証するDNA配列にコード領域を連結させることが可能である。そのような配列は、当業者には知られている (例えば、以下のものを参照されたい : 「Braun et al., EMBO J. 11 (1992), 3219-3227」、「Wolter et al., Proc. Natl. Acad. Sci. USA 85 (1988), 846-850」、「Sonnewald et al., Plant J. 1 (1991), 95-106」)。さらにまた、そのような核酸分子は、植物細胞の細胞小器官内で発現させることも可能である。

【0081】

トランスジェニック植物細胞は、完全な植物を生じさせるための既知技術によって再生させることができる。原則として、トランスジェニック植物は、任意の望ましい植物種の

10

20

30

40

50

植物であり得る、即ち、単子葉植物であり得るのみではなく、双子葉植物でもあり得る。

【0082】

このようにして、相同性の（＝天然の）遺伝子若しくは遺伝子配列の過剰発現、抑制若しくは阻害又は非相同性の（＝外来の）遺伝子若しくは遺伝子配列の発現によって変更された特性を有するトランスジェニック植物を得ることができる。

【0083】

本発明の化合物（I）は、好ましくは、成長調節剤（例えば、2，4-D、ジカンバ）に対して抵抗性を示すトランスジェニック作物の中で、又は、必須植物酵素（例えば、アセト乳酸シンターゼ（ALS）、EPSPシンターゼ、グルタミンシンターゼ（GS）又はヒドロキシフェニルピルビン酸ジオキシゲナーゼ（HPPD））を阻害する除草剤に対して抵抗性を示すトランスジェニック作物の中で、又は、スルホニル尿素類、グリホセート類、グルホシネート類若しくはベンゾイルイソオキサゾール類及び類似した活性成分の群から選択される除草剤に対して抵抗性を示すトランスジェニック作物の中で、又は、これらの活性成分の任意の望ましい組合せに対して抵抗性を示すトランスジェニック植物の中で、使用することができる。

【0084】

本発明の化合物は、特に好ましくは、グリホセート類とグルホシネート類の組合せ、グリホセート類とスルホニル尿素類又はイミダゾリノン類の組合せに対して抵抗性を示すトランスジェニック作物植物において使用することができる。最も好ましくは、本発明の化合物は、例えば、Optimum™ GATM（グリホセートALS耐性）の商品名又は名称を有するトランスジェニック作物植物（例えば、トウモロコシ又はダイズ）において使用することができる。

【0085】

トランスジェニック作物の中で本発明の活性成分を使用する場合、別の作物の中で観察される有害な植物に対する効果が生じるのみではなく、多くの場合、特定のトランスジェニック作物の中における施用に特異的な効果、例えば、防除可能な雑草の改変されたスペクトル又は特に拡大されたスペクトル、当該施用に使用し得る改変された施用量、好ましくは、そのトランスジェニック作物が抵抗性を示す除草剤との良好な組合せ可能性、並びに、そのトランスジェニック作物植物の成長及び収穫量に対する影響なども生じる。

【0086】

従って、本発明は、さらにまた、トランスジェニック作物植物の中で有害な植物を防除するための除草剤としての、式（I）で表される本発明化合物の使用にも関する。

【0087】

本発明の化合物は、慣習的な製剤における水和剤、乳剤、散布可能溶液剤、散粉性製品（dusting product）又は顆粒剤の形態で施用することができる。従って、本発明は、さらにまた、本発明の化合物を含んでいる除草剤組成物及び植物成長調節性組成物も提供する。

【0088】

本発明の化合物は、必要とされる生物学的及び／又は物理化学的パラメータに応じて、さまざまな方法で製剤することができる。可能な製剤としては、例えば、以下のものを挙げることができる：水和剤（WP）、水溶剤（water-soluble powders）（SP）、水溶性濃厚剤（water-soluble concentrates）、乳剤（EC）、エマルション剤（EW）、例えば、水中油型エマルション剤及び油中水型エマルション剤、散布可能溶液剤（sprayable solutions）、懸濁製剤（SC）、油又は水に基づく分散液剤、油混和性溶液剤、カプセル懸濁製剤（capsule suspensions）（CS）、散粉性製品（dusting products）（DP）、粉衣剤（dressings）、ばらまき用顆粒剤及び土壌施用用顆粒剤、微粒剤の形態にある顆粒剤（GR）、噴霧剤（spray granules）、吸収粒剤（absorption granules）及び含浸粒剤（adsorption granules）、顆粒水和剤（WG）、水溶性粒剤（SG）、微量散布

製剤、マイクロカプセル剤、並びに、蠟剤 (waxes)。これらの個々の製剤の型は原則として知られており、そして、例えば、以下のものに記載されている：「Winnacker-Kuchler, “Chemische Technologie” [Chemical Technology], Volume 7, C. Hanser Verlag Munich, 4th Ed. 1986」、「Wade van Valkenburg, “Pesticide Formulations”, Marcel Dekker, N. Y., 1973」、「K. Martens, “Spray Drying” Handbook, 3rd Ed. 1979, G. Goodwin Ltd. London」。

【0089】

不活性物質、界面活性剤、溶媒及びさらなる添加剤などの必要な製剤助剤も同様に知られており、そして、例えば、以下のものに記載されている：「Watkins, “Handbook of Insecticide Dust Diluents and Carriers”, 2nd ed., Darland Books, Caldwell N. J.」、「H. v. Olphen, “Introduction to Clay Colloid Chemistry”, 2nd ed., J. Wiley & Sons, N. Y.」、「C. Marsden, “Solvents Guide”, 2nd ed., Interscience, N. Y. 1963」、「McCutcheon’s “Detergents and Emulsifiers Annual”, MC Publ. Corp., Ridgewood N. J.」、「Sisley and Wood, “Encyclopedia of Surface Active Agents”, Chem. Publ. Co. Inc., N. Y. 1964」、「Schoenfeldt, “Grenzflächenaktive Äthylenoxidaddukte” [Interface-active Ethylene Oxide Adducts], Wiss. Verlagsgesell., Stuttgart 1976」、「Winnacker-Kuchler, “Chemische Technologie”, volume 7, C. Hanser Verlag Munich, 4th ed. 1986」。

【0090】

これらの製剤に基づいて、別の活性成分（例えば、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、殺菌剤）との組合せ物や、さらにまた、薬害軽減剤、肥料及び／若しくは成長調節剤との組合せ物を、例えば、完成した製剤の形態で又はタンクミックスとして、製造することも可能である。

【0091】

混合製剤中で又はタンクミックスの中で本発明の化合物に対して使用することが可能な組み合わせ相手剤は、例えば、「Weed Research 26 (1986) 441-445 or “The Pesticide Manual”, 16th edition, The British Crop Protection Council and the Royal Soc. of Chemistry, 2006」及びそれらの中で引用されている文献から知られている、例えば、アセト乳酸シンターゼ、アセチル-CoAカルボキシラーゼ、セルロースシンターゼ、エノールピルビルシキミ酸-3-リン酸シンターゼ、グルタミンシンターゼ、p-ヒドロキシフェニルピルビン酸ジオキシゲナーゼ、フィトエンデサチュラーゼ、光化学系Ⅰ、光化学系Ⅱ又はプロトポルフィリノーゲンオキシダーゼなどを阻害することに基づく、例えば、既知活性成分である。本発明の化合物と組み合わせることが可能な既知除草剤又は既知植物成長調節剤は、例えば、以下のものであり、ここで、該活性成分は、国際標準化機構 (ISO) に従う「一般名」で示されているか、又は、化学名で示されているか、又は、コード番号で示されている。それらは、たとえ明示的に言及されていなくても、常に、全ての使用形態、例えば、酸、塩、エステルなどを包含し、並びに、全ての異性体形態、例えば、立体異性体及び光学異性体なども包含する。

【0092】

そのような除草性混合相手剤の例は、以下のとおりである：

アセトクロル、アシフルオルフェン、アシフルオルフェン－ナトリウム、アクロニフェン、アラクロール、アリドクロール、アロキシジム、アロキシジム－ナトリウム、アメトリン、アミカルバゾン、アミドクロル、アミドスルフロソ、4－アミノ－3－クロロ－5－フルオロ－6－（7－フルオロ－1H－インドール－6－イル）ピリジン－2－カルボン酸、アミノシクロピラクロル、アミノシクロピラクロル－カリウム、アミノシクロピラクロル－メチル、アミノピラリド、アミトロール、アンモニウムスルファメート、アニロホス、アスラム、アトラジン、アザフェニジン、アジムスルフロソ、ベフルブタミド、ベナゾリン、ベナゾリン－エチル、ベンフルラリン、ベンフレセート、ベンスルフロソ、ベン
 スルフロソ－メチル、ベンスリド、ベントゾン、ベンゾビシクロソ、ベンゾフェナップ、
 ビシクロピロソ、ビフェノックス、ピラナホス、ピラナホス－ナトリウム、ビスピリバック、
 ビスピリバック－ナトリウム、ビクスロゾソ、ブロマシル、ブロモブチド、ブロモフェノキシム、
 ブロモキシニル、ブロモキシニル－ブチレート、－カリウム、－ヘプタノエート及び－オクタノエート、
 ブソキシノソ（busoxinone）、ブタクロール、ブタフェナシル、ブタミホス、ブテナクロール、
 ブトラリン、ブトロキシジム、ブチレート、カフェンストロール、カルベタミド、カルフェントラゾソ、
 カルフェントラゾソ－エチル、クロランベン、クロルブロムロソ、1－{2－クロロ－3－[(3－シクロプロピル
 －5－ヒドロキシ－1－メチル－1H－ピラゾール－4－イル)カルボニル]－6－(トリフルオロメチル)
 フェニル}ピペリジン－2－オン、4－{2－クロロ－3－[(3, 5－ジメチル－1H－ピラゾール－1－イル)
 メチル]－4－(メチルスルホニル)ベンゾイル}－1, 3－ジメチル－1H－ピラゾール－4－カルボキシ
 レート、クロルフェナク、クロルフェナク－ナトリウム、クロルフェンプロップ、クロルフル
 レノール、クロルフルレノール－メチル、クロリダゾソ、クロリムロソ、クロリムロソ－エチル、
 2－[2－クロロ－4－(メチルスルホニル)－3－(モルホリン－4－イルメチル)ベンゾイル]－3－ヒ
 ドロキシシクロヘキサ－2－エン－1－オン、4－{2－クロロ－4－(メチルスルホニル)－3－[(2, 2, 2
 －トリフルオロエトキシ)メチル]ベンゾイル}－1－エチル－1H－ピラゾール－5－イル 1, 3－
 ジメチル－1H－ピラゾール－4－カルボキシレート、クロロフタリム、クロロトルロソ、クロ
 ルタール－ジメチル、クロルスルフロソ、3－[5－クロロ－4－(トリフルオロメチル)ピリジン
 －2－イル]－4－ヒドロキシ－1－メチルイミダゾリジン－2－オン、シニドン、シニドン－エチル、
 シンメチリン、シノスルフロソ、クラシホス、クレトジム、クロジナホップ、クロジナホップ
 －プロパルギル、クロマゾソ、クロメプロップ、クロピラリド、クロランスラム、クロランス
 ラム－メチル、クミルロソ、シアナミド、シアナジン、シクロエート、シクロピラニル、シ
 クロピリモレート、シクロスルファミロソ、シクロキシジム、シハロホップ、シハロホップ
 －ブチル、シブラジン、2, 4－D、2, 4－D－ブチル、－ブチル、－ジメチルアンモニウム、
 －ジオールアミン、－エチル、－2－エチルヘキシル、－イソブチル、－イソオクチル、－
 イソプロピルアンモニウム、－カリウム、－トリイソプロパノールアンモニウム及び－
 トロールアミン（trolamine）、2, 4－DB、2, 4－DB－ブチル、－ジメチルアンモニウム、
 －イソオクチル、－カリウム及び－ナトリウム、ダイムロソ（daimuron）（dymron）、
 ダラポン、ダゾメット、n－デカノール、デスメジファミン、デトシル－ピラゾレート
 （DTP）、ジカンバ、ジクロベニル、ジクロルプロップ、ジクロルプロップ－P、
 ジクロホップ、ジクロホップ－メチル、ジクロホップ－P－メチル、ジクロスラム、
 ジフェンゾコート、ジフルフェニカン、ジフルフェンゾピル、ジフルフェンゾピル
 －ナトリウム、ジメフロソ、ジメピペレート、ジメタクロール、ジメタメトリン、ジメテ
 ナミド、ジメテナミド－P、3－(2, 6－ジメチルフェニル)－6－[(2－ヒドロキシ
 －6－オキソシクロヘキサ－1－エン－1－イル)カルボニル]－1－メチルキナゾリン
 －2, 4(1H, 3H)－ジオソ、1, 3－ジメチル－4－[2－(メチルスルホニル)－4－(トリフル
 オロメチル)ベンゾイル]－1H－ピラゾール－5－イル 1, 3－ジ

10

20

30

40

50

メチル-1H-ピラゾール-4-カルボキシレート、ジメトラスルフロ、ジニトラミン、ジノテルブ、ジフェナミド、ジクワット、ジクワットジブロミド、ジチオピル、ジウロン、DMPA、DNOC、エンドタール、EPTC、エスプロカルブ、エタルフルラリン、エタメトスルフロ、エタメトスルフロ-メチル、エチオジン、エトフメセート、エトキシフェン、エトキシフェン-エチル、エトキシスルフロ、エトベンザニド、〔(3-〔2-クロロ-4-フルオロ-5-〔3-メチル-2, 6-ジオキソ-4-(トリフルオロメチル)-3, 6-ジヒドロピリミジン-1(2H)-イル〕フェノキシ〕ピリジン-2-イル)オキシ〕酢酸エチル、F-9960、F-5231、即ち、N-〔2-クロロ-4-フルオロ-5-〔4-(3-フルオロプロピル)-4, 5-ジヒドロ-5-オキソ-1H-テトラゾール-1-イル〕-フェニル〕エタンスルホンアミド、F-7967、即ち、3-〔7-クロロ-5-フルオロ-2-(トリフルオロメチル)-1H-ベンゾイミダゾール-4-イル〕-1-メチル-6-(トリフルオロメチル)ピリミジン-2, 4(1H, 3H)-ジオン、フェノキサプロップ、フェノキサプロップ-P、フェノキサプロップ-エチル、フェノキサプロップ-P-エチル、フェノキサスルホン、フェンキノトリオン、フェントラザミド、フラムプロップ、フラムプロップ-M-イソプロピル、フラムプロップ-M-メチル、フラザスルフロ、フロラスラム、フロルピラウキシフェン、フロルピラウキシフェン-ベンジル、フルアジホップ、フルアジホップ-P、フルアジホップ-ブチル、フルアジホップ-P-ブチル、フルカルバゾン、フルカルバゾン-ナトリウム、フルセトスルフロ、フルクロラリン、フルフェナセット、フルフェンピル、フルフェンピル-エチル、フルメツラム、フルミクロラック、フルミクロラック-ペンチル、フルミオキサジン、フルオメツロン、フルレノール、フルレノール-ブチル、-ジメチルアンモニウム及び-メチル、フルオログリコフェン、フルオログリコフェン-エチル、フルプロパネート、フルピルスルフロ、フルピルスルフロ-メチル-ナトリウム、フルリドン、フルロクロリドン、フルロキシピル、フルロキシピル-メブチル、フルルタモン、フルチアセット、フルチアセット-メチル、ホメサフェン、ホメサフェン-ナトリウム、ホラムスルフロ、ホサミン、グルホシネート、グルホシネート-アンモニウム、グルホシネート-P-ナトリウム、グルホシネート-P-アンモニウム、グルホシネート-P-ナトリウム、グリホセート、グリホセート-アンモニウム、-イソプロピルアンモニウム、-ジアンモニウム、-ジメチルアンモニウム、-カリウム、-ナトリウム及び-トリメシウム、H-9201、即ち、O-(2, 4-ジメチル-6-ニトロフェニル) O-エチル イソプロピルホスホルアミドチオエート、ハラウキシフェン、ハラウキシフェン-メチル、ハロサフェン、ハロスルフロ、ハロスルフロ-メチル、ハロキシホップ、ハロキシホップ-P、ハロキシホップ-エトキシエチル、ハロキシホップ-P-エトキシエチル、ハロキシホップ-メチル、ハロキシホップ-P-メチル、ヘキサジノン、HW-02、即ち、1-(ジメトキシホスホリル)エチル(2, 4-ジクロロフェノキシ)アセテート、4-ヒドロキシ-1-メトキシ-5-メチル-3-〔4-(トリフルオロメチル)ピリジン-2-イル〕イミダゾリジン-2-オン、4-ヒドロキシ-1-メチル-3-〔4-(トリフルオロメチル)ピリジン-2-イル〕イミダゾリジン-2-オン、(5-ヒドロキシ-1-メチル-1H-ピラゾール-4-イル)(3, 3, 4-トリメチル-1, 1-ジオキド-2, 3-ジヒドロ-1-ベンゾチオフェン-5-イル)メタノン、6-〔(2-ヒドロキシ-6-オキソシクロヘキサ-1-エン-1-イル)カルボニル〕-1, 5-ジメチル-3-(2-メチルフェニル)キナゾリン-2, 4(1H, 3H)-ジオン、イマザメタベンズ、イマザメタベンズ-メチル、イマザモックス、イマザモックス-アンモニウム、イマザピック、イマザピック-アンモニウム、イマザピル、イマザピル-イソプロピルアンモニウム、イマザキン、イマザキン-アンモニウム、イマゼタピル、イマゼタピル-インモニウム、イマゾスルフロ、インダノファン、インダジフラム、ヨードスルフロ、ヨードスルフロ-メチル-ナトリウム、アイオキシニル、アイオキシニル-オクタノエート、-カリウム及び-ナトリウム、イブフェンカルバゾン、イソプロツロン、イソウロン、イソキサベン、イソキサフルトール、カルブチレート、KUH-043、即ち、3-(〔〔5-(ジフルオロメチル)-1-メチル-3-(トリフルオロメ

10

20

30

40

50

チル) - 1H-ピラゾール-4-イル] メチル} スルホニル) - 5, 5-ジメチル-4,
 5-ジヒドロ-1, 2-オキサゾール、ケトスピラドックス (ketospiradox)
)、ラクトフェン、レナシル、リニュロン、MCPA、MCPA-ブトチル、-ジメチル
 アンモニウム、-2-エチルヘキシル、-イソプロピルアンモニウム、-カリウム及び-
 ナトリウム、MCPB、MCPB-メチル、-エチル及び-ナトリウム、メコプロップ、
 メコプロップ-ナトリウム及び-ブトチル、メコプロップ-P、メコプロップ-P-ブト
 チル、-ジメチルアンモニウム、-2-エチルヘキシル及び-カリウム、メフェナセット
 、メフルイジド、メソスルフロニ、メソスルフロニ-メチル、メソトリオン、メタベンズ
 チアズロン、メタム、メタミホップ、メタミトロン、メタザクロール、メタゾスルフロ
 ン、メタベンズチアズロン、メチオピルスルフロニ (methiopyrsulfuron)
)、メチオゾリン、2- ({ 2- [(2-メトキシエトキシ) メチル] - 6- (トリフル
 オロメチル) ピリジン-3-イル} カルボニル) シクロヘキサン-1, 3-ジオン、イソ
 チオシアン酸メチル、1-メチル-4- [(3, 3, 4-トリメチル-1, 1-ジオキシ
 ド-2, 3-ジヒドロ-1-ベンゾチオフエン-5-イル) カルボニル] - 1H-ピラゾ
 ール-5-イル プロパン-1-スルホネート、メトプロムロン、メトラクロール、S-
 メトラクロール、メトスラム、メトクスロン、メトリブジン、メトスルフロニ、メトスル
 フロニ-メチル、モリネート、モノリニュロン、モノスルフロニ、モノスルフロニ-エス
 テル、MT-5950、即ち、N- [3-クロロ-4- (1-メチルエチル) -フェニル
] - 2-メチルペンタンアミド、NGGC-011、ナプロパミド、NC-310、即ち
 、4- (2, 4-ジクロロベンゾイル) - 1-メチル-5-ベンジルオキシピラゾール、
 ネブロン、ニコスルフロニ、ノナン酸 (ペラルゴン酸)、ノルフルラゾン、オレイン酸 (
 脂肪酸)、オルベンカルブ、オルソスルファミロン、オリザリン、オキサジアルギル、オ
 キサジアゾン、オキサスルフロニ、オキサジクロメフォン、オキソトリオン (oxotri
 one) (ランコトリオン)、オキシフルオルフェン、パラコート、パラコートジクロ
 リド、ペブレート、ペンジメタリン、ペノキススラム、ペンタクロロフェノール、ペント
 キサゾン、ペトキサミド、石油、フェンメジファミ、ピクロラム、ピコリナフェン、ピノ
 キサデン、ピペロホス、プレチラクロール、プリミスルフロニ、プリミスルフロニ-メチ
 ル、プロジアミン、プロホキシジム、プロメトン、プロメトリン、プロパクロール、プロ
 パニル、プロパキサホップ、プロパジン、プロファミ、プロビスクロール、プロボキシカ
 ルバゾン、プロボキシカルバゾン-ナトリウム、プロピリスルフロニ、プロピザミド、プ
 ロスルホカルブ、プロスルフロニ、ピラクロニル、ピラフルフェン、ピラフルフェン-エ
 チル、ピラスルホトール、ピラゾリネート (ピラゾレート)、ピラゾスルフロニ、ピラゾ
 スルフロニ-エチル、ピラゾキシフェン、ピリバムベンズ (pyribambenz)、
 ピリバムベンズ-イソプロピル、ピリバムベンズ-プロピル、ピリベンゾキシム、ピリブ
 チカルブ、ピリダフォル、ピリデート、ピリフタリド、ピリミノバック、ピリミノバック
 -メチル、ピリミスルファン、ピリチオバック、ピリチオバック-ナトリウム、ピロキサ
 スルホン、ピロキシスラム、キンクロラック、キンメラック、キノクラミン、キサロホッ
 プ、キサロホップ-エチル、キサロホップ-P、キサロホップ-P-エチル、キサロホッ
 プ-P-テフリル、QYM-201、QYR-301、リムスルフロニ、サフルフェナシ
 ル、セトキシジム、シデュロン、シマジン、シメトリン、スルコトリオン、スルフェント
 ラゾン、スルホメツロン、スルホメツロン-メチル、スルホスルフロニ、SYN-523
 、SYP-249、即ち、1-エトキシ-3-メチル-1-オキソブタ-3-エン-2-
 イル 5- [2-クロロ-4- (トリフルオロメチル) フェノキシ] - 2-ニトロベンゾ
 エート、SYP-300、即ち、1- [7-フルオロ-3-オキソ-4- (プロパー-2-
 イン-1-イル) - 3, 4-ジヒドロ-2H-1, 4-ベンゾオキサジン-6-イル] -
 3-プロピル-2-チオキソイミダゾリジン-4, 5-ジオン、2, 3, 6-TBA、T
 CA (トリフルオロ酢酸)、TCA-ナトリウム、テブチウロン、テフリルトリオン、テ
 ンボトリオン、テブラロキシジム、ターバシル、テルブカルブ、テルブメトン、テルブチ
 ラジン、テルブトリン、テトフルピロリメット (tetflupyrolimett)、テ
 ニルクロール、チアゾピル、チエンカルバゾン、チエンカルバゾン-メチル、チフェンス

10

20

30

40

50

ルフロン、チフェンスルフロン-メチル、チオベンカルブ、チアフェナシル、トルピラレート、トプラメゾン、トラルコキシジム、トリアファモン、トリアレート、トリアスルフロン、トリアジフラム、トリベヌロン、トリベヌロン-メチル、トリクロピル、トリエタジン、トリフロキシスルフロン、トリフロキシスルフロン-ナトリウム、トリフルジモキサジン (trifludimoxazin)、トリフルラリン、トリフルスルフロン、トリフルスルフロン-メチル、トリトスルフロン、尿素硫酸塩 (urea sulfate)、ベルノレート、ZJ-0862、即ち、3, 4-ジクロロ-N- {2- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) オキシ] ベンジル} アニリン。

【0093】

可能な混合相手剤としての植物成長調節剤の例は、以下のものである：

アシベンゾラル、アシベンゾラル-S-メチル、5-アミノレブリン酸、アンシミドール、6-ベンジルアミノプリン、ブラシノリド、カテコール、クロルメコート-クロリド、クロプロップ、シクラニリド、3-(シクロプロパー-1-エニル) プロピオン酸、ダミノジド、ダゾメット、n-デカノール、ジケグラック、ジケグラック-ナトリウム、エンドタール、エンドタール-ニカリウム、-ニナトリウム及びモノ (N, N-ジメチルアルキルアンモニウム)、エテホン、フルメトラリン、フルレノール、フルレノール-ブチル、フルプリミドール、ホルクロルフェニユロン、ジベレリン酸、イナベンフィド、インドール-3-酢酸 (IAA)、4-インドール-3-イル酪酸、イソプロチオラン、プロベナゾール、ジャスモン酸、ジャスモン酸メチルエステル、マレイン酸ヒドラジド、メピコートクロリド、1-メチルシクロプロペン、2-(1-ナフチル) アセトアミド、1-ナフチル酢酸、2-ナフチルオキシ酢酸、ニトロフェノレート混合物、4-オキソ-4- [(2-フェニルエチル) アミノ] 酪酸、パクロブトラゾール、N-フェニルフタルアミド酸、プロヘキサジオン、プロヘキサジオン-カルシウム、プロヒドロジャスモン、サリチル酸、ストリゴラクトン、テクナゼン、チジアズロン、トリアコンタノール、トリネキサパック、トリネキサパック-エチル、チトデフ (tsitodef)、ウニコナゾール、ウニコナゾール-P。

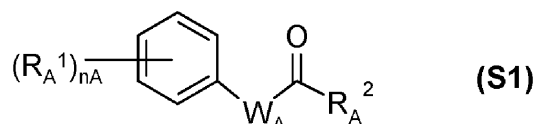
【0094】

式 (I) で表される本発明化合物と組み合わせて使用することが可能な、及び、場合により、さらなる活性化合物 (例えば、上記で挙げられている殺菌剤、除草剤、殺ダニ剤、殺虫剤) と組み合わせて使用することが可能な、薬害軽減剤は、好ましくは、以下のものからなる群から選択される。

【0095】

(S1) 式 (S1)

【化15】



〔式中、記号及び添え字は、以下のように定義される：

n_A は、0～5の自然数、好ましくは、0～3の自然数であり；

R_A^1 は、ハロゲン、 $(C_1 - C_4)$ -アルキル、 $(C_1 - C_4)$ -アルコキシ、ニトロ又は $(C_1 - C_4)$ -ハロアルキルであり；

W_A は、N及びOの群から選択される1～3個の環ヘテロ原子を有する部分的不飽和又は芳香族の5員ヘテロ環の群から選択される置換されていないか又は置換されている二価ヘテロ環式ラジカル (ここで、該環中には、少なくとも1個の窒素原子及び最大で1個の酸素原子が存在している) であり、好ましくは、 $(W_A^1) \sim (W_A^4)$

10

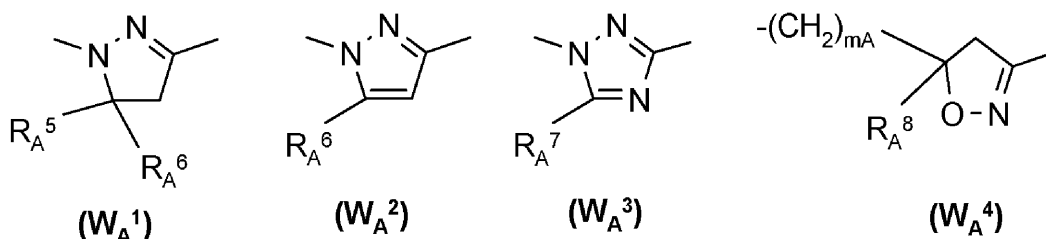
20

30

40

50

【化 16】



の群から選択されるラジカルであり；

m_A は、0 又は 1 であり；

R_A^2 は、 OR_A^3 、 SR_A^3 若しくは $NR_A^3R_A^4$ であるか、又は、少なくとも 1 個の窒素原子と最大で 3 個までのヘテロ原子（好ましくは、O 及び S からなる群から選択されるヘテロ原子）を有する飽和若しくは不飽和の 3～7 員のヘテロ環（ここで、該ヘテロ環は、窒素原子を介して（S1）内のカルボニル基に結合しており、そして、該ヘテロ環は、置換されていないか、又は、 (C_1-C_4) －アルキル、 (C_1-C_4) －アルコキシ若しくは置換されていてもよいフェニルからなる群から選択されるラジカルで置換されている）であり、好ましくは、式 OR_A^3 、式 NHR_A^4 又は式 $N(CH_3)_2$ で表されるラジカルであり、特に、式 OR_A^3 で表されるラジカルであり；

R_A^3 は、水素であるか、又は、置換されていないか若しくは置換されている（好ましくは、合計で 1～18 個の炭素原子を有する）脂肪族炭化水素ラジカルであり；

R_A^4 は、水素、 (C_1-C_6) －アルキル、 (C_1-C_6) －アルコキシであるか、又は、置換されているか若しくは置換されていないフェニルであり；

R_A^5 は、H、 (C_1-C_8) －アルキル、 (C_1-C_8) －ハロアルキル、 (C_1-C_4) －アルコキシ－ (C_1-C_8) －アルキル、シアノ又は $COOR_A^9$ （ここで、 R_A^9 は、水素、 (C_1-C_8) －アルキル、 (C_1-C_8) －ハロアルキル、 (C_1-C_4) －アルコキシ－ (C_1-C_4) －アルキル、 (C_1-C_6) －ヒドロキシアルキル、 (C_3-C_{12}) －シクロアルキル又はトリ－ (C_1-C_4) －アルキルシリルである）であり；

R_A^6 、 R_A^7 、 R_A^8 は、同一であるか又は異なっており、そして、水素、 (C_1-C_8) －アルキル、 (C_1-C_8) －ハロアルキル、 (C_3-C_{12}) －シクロアルキルであるか、又は、置換されているか若しくは置換されていないフェニルである）で表される化合物；

好ましくは：

(a) ジクロロフェニルピラゾリン－3－カルボン酸のタイプの化合物（S1^a）、好ましくは、以下のような化合物：1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－（エトキシカルボニル）－5－メチル－2－ピラゾリン－3－カルボン酸、1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－（エトキシカルボニル）－5－メチル－2－ピラゾリン－3－カルボン酸エチル（S1－1）（「メフェンビル－ジエチル」）及び関連化合物（これらは、WO－A－91／07874 に記載されている）；

(b) ジクロロフェニルピラゾールカルボン酸の誘導体（S1^b）、好ましくは、以下のような化合物：1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－メチルピラゾール－3－カルボン酸エチル（S1－2）、1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－イソプロピルピラゾール－3－カルボン酸エチル（S1－3）、1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－（1，1－ジメチルエチル）ピラゾール－3－カルボン酸エチル（S1－4）及び関連化合物（これらは、EP－A－333131 及び EP－A－269806 に記載されている）；

(c) 1，5－ジフェニルピラゾール－3－カルボン酸の誘導体（S1^c）、好ましくは、以下のような化合物：1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－フェニルピラゾール－3－カルボン酸エチル（S1－5）、1－（2－クロロフェニル）－5－フェニルピラゾール－3－カルボン酸メチル（S1－6）及び関連化合物（これらは、例えば、EP－

10

20

30

40

50

A-268554に記載されている) ;

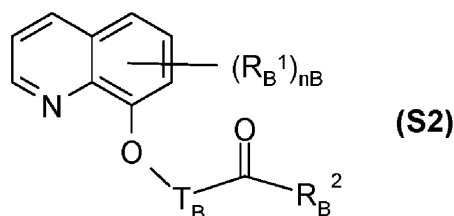
(d) トリアゾールカルボン酸のタイプの化合物 (S1^d)、好ましくは、以下のような化合物：フェンクロラゾール（－エチルエステル）、即ち、1－（2，4－ジクロロフェニル）－5－トリクロロメチル－（1H）－1，2，4－トリアゾール－3－カルボン酸エチル（S1－7）及び関連化合物（これらは、EP-A-174562及びEP-A-346620に記載されている）；

(e) 5－ベンジル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸若しくは5－フェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸のタイプ又は5，5－ジフェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸のタイプの化合物 (S1^e)、好ましくは、以下のような化合物：5－（2，4－ジクロロベンジル）－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸エチル（S1－8）若しくは5－フェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸エチル（S1－9）及び関連化合物（これらは、WO-A-91/08202に記載されている）、又は、5，5－ジフェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸（S1－10）若しくは5，5－ジフェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸エチル（S1－11）（「イソキサジフェン－エチル」）若しくは5，5－ジフェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸n－プロピル（S1－12）若しくは5－（4－フルオロフェニル）－5－フェニル－2－イソオキサゾリン－3－カルボン酸エチル（S1－13）（これらは、特許出願WO-A-95/07897に記載されている）。

【0096】

(S2) 式(S2)

【化17】



〔式中、記号及び添え字は、下記意味を有する：

R_A¹は、ハロゲン、(C₁－C₄)－アルキル、(C₁－C₄)－アルコキシ、ニトロ又は(C₁－C₄)－ハロアルキルであり；

n_Bは、0～5の自然数、好ましくは、0～3の自然数であり；

R_B²は、OR_B³、SR_B³若しくはNR_B³R_B⁴であるか、又は、少なくとも1個の窒素原子と最大で3個までのヘテロ原子（好ましくは、O及びSの群から選択されるヘテロ原子）を有する飽和又は不飽和の3～7員のヘテロ環（ここで、該ヘテロ環は、窒素原子を介して(S2)内のカルボニル基に結合しており、そして、該ヘテロ環は、置換されていないか、又は、(C₁－C₄)－アルキル、(C₁－C₄)－アルコキシ若しくは置換されていてもよいフェニルの群から選択されるラジカルで置換されている）であり、好ましくは、式OR_B³、式NHR_B⁴又は式N(CH₃)₂で表されるラジカルであり、特に、式OR_B³で表されるラジカルであり；

R_B³は、水素であるか、又は、置換されていないか若しくは置換されている（好ましくは、合計で1～18個の炭素原子を有する）脂肪族炭化水素ラジカルであり；

R_B⁴は、水素、(C₁－C₆)－アルキル、(C₁－C₆)－アルコキシであるか、又は、置換されているか若しくは置換されていないフェニルであり；

T_Bは、(C₁、又は、C₂)－アルカンジイル鎖（ここで、該アルカンジイル鎖は、置換されていないか、又は、1若しくは2の(C₁－C₄)－アルキルラジカルで置換されているか、又は、[(C₁－C₃)－アルコキシ]カルボニルで置換されている）である）で表されるキノリン誘導体；

好ましくは：

(a) 8－キノリンオキシ酢酸のタイプの化合物 (S2^a)、好ましくは、

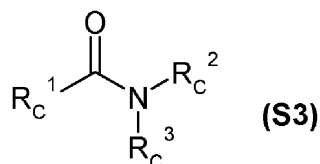
(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 1-メチルヘキシル (「クロキントセットーメキシル」) (S2-1)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 (1, 3-ジメチルブター-1-イル) (S2-2)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 4-アリルオキシブチル (S2-3)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 1-アリルオキシプロパー-2-イル (S2-4)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸エチル (S2-5)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸メチル (S2-6)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸アリル (S2-7)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 2-(2-プロピリデンイミノオキシ)-1-エチル (S2-8)、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 2-オキソプロパー-1-イル (S2-9) 及び関連化合物 (これらは、EP-A-86750、EP-A-94349 及び EP-A-191736 又は EP-A-0492366 に記載されている)、並びに、さらに、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) 酢酸 (S2-10)、その水和物及び塩、例えば、そのリチウム塩、ナトリウム塩、カリウム塩、カルシウム塩、マグネシウム塩、アルミニウム塩、鉄塩、アンモニウム塩、第 4 級アンモニウム塩、スルホニウム塩又はホスホニウム塩 (これらは、WO-A-2002/34048 に記載されている) ;

(b) (5-クロロ-8-キノリンオキシ) マロン酸のタイプの化合物 (S2^b)、好ましくは、以下のような化合物：(5-クロロ-8-キノリンオキシ) マロン酸ジエチル、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) マロン酸ジアリル、(5-クロロ-8-キノリンオキシ) マロン酸メチルエチル及び関連化合物 (これらは、EP-A-0582198 に記載されている)。

【0097】

(S3) 式 (S3)

【化18】



〔式中、記号及び添え字は、以下のように定義される：

R_C^1 は、(C₁-C₄)-アルキル、(C₁-C₄)-ハロアルキル、(C₂-C₄)-アルケニル、(C₂-C₄)-ハロアルケニル、(C₃-C₇)-シクロアルキルであり、好ましくは、ジクロロメチルであり；

R_C^2 、 R_C^3 は、同一であるか若しくは異なっており、そして、水素、(C₁-C₄) アルキル、(C₂-C₄) アルケニル、(C₂-C₄) アルキニル、(C₁-C₄) ハロアルキル、(C₂-C₄) ハロアルケニル、(C₁-C₄) アルキルカルバモイル- (C₁-C₄) アルキル、(C₂-C₄) アルケニルカルバモイル- (C₁-C₄) アルキル、(C₁-C₄) アルコキシ- (C₁-C₄) アルキル、ジオキサニル- (C₁-C₄) アルキル、チアゾリル、フリル、フリルアルキル、チエニル、ピペリジルであるか、又は、置換されているか若しくは置換されていないフェニルであるか、又は、 R_C^2 と R_C^3 は一緒に、置換されているか若しくは置換されていないヘテロ環式環 (好ましくは、オキサゾリジン環、チアゾリジン環、ピペリジン環、モルホリン環、ヘキサヒドロピリミジン環又はベンゾオキサジン環) を形成している〕

で表される化合物；

好ましくは：

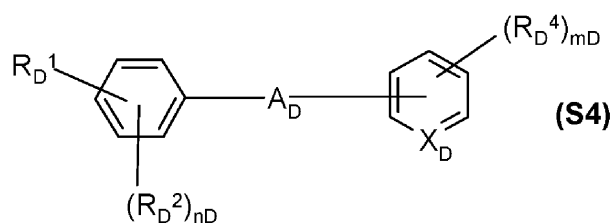
発生前薬害軽減剤 (土壌作用性薬害軽減剤) としてしばしば使用されるジクロロアセトアミドのタイプの活性化合物、例えば、「ジクロルミド」(N, N-ジアリル-2, 2-ジクロロアセトアミド) (S3-1)、「R-29148」(3-ジクロロアセチル-2, 2, 5-トリメチル-1, 3-オキサゾリジン) (供給元：Stauffer) (S3

-2)、「R-28725」(3-ジクロロアセチル-2,2-ジメチル-1,3-オキサゾリジン)〔供給元:Stauffer〕(S3-3)、「ベノキサコル」(4-ジクロロアセチル-3,4-ジヒドロ-3-メチル-2H-1,4-ベンゾオキサジン)(S3-4)、「PPG-1292」(N-アリル-N-[(1,3-ジオキサラン-2-イル)メチル]ジクロロアセトアミド)〔供給元:PPG Industries〕(S3-5)、「DKA-24」(N-アリル-N-[(アリルアミノカルボニル)メチル]ジクロロアセトアミド)〔供給元:Sagro-Chem〕(S3-6)、「AD-67」又は「MON 4660」(3-ジクロロアセチル-1-オキサ-3-アザスピロ[4.5]デカン)〔供給元:Nitrokemia、又は、Monsanto〕(S3-7)、「TI-35」(1-ジクロロアセチルアゼパン)〔供給元:TRI-Chemical RT〕(S3-8)、「ジクロノン(diclonon)」(ジシクロノン)又は「BAS 145138」又は「LAB 145138」(S3-9)、((RS)-1-ジクロロアセチル-3,3,8a-トリメチルペルヒドロピロロ[1,2-a]ピリミジン-6-オン)〔供給元:BASF〕、「フリラゾール」又は「MON 13900」((RS)-3-ジクロロアセチル-5-(2-フリル)-2,2-ジメチルオキサゾリジン)(S3-10)及びその(R)-異性体(S3-11)。

【0098】

(S4) 式(S4)

【化19】



〔式中、記号及び添え字は、以下のように定義される：

A_D は、 $SO_2-NR_D^3-CO$ 又は $CO-NR_D^3-SO_2$ であり；

X_D は、 CH 又は N であり；

R_D^1 は、 $CO-NR_D^5R_D^6$ 又は $NHCO-R_D^7$ であり；

R_D^2 は、ハロゲン、 (C_1-C_4) -ハロアルキル、 (C_1-C_4) -ハロアルコキシ、ニトロ、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシ、 (C_1-C_4) -アルキルスルホニル、 (C_1-C_4) -アルコキシカルボニル又は (C_1-C_4) -アルキルカルボニルであり；

R_D^3 は、水素、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_2-C_4) -アルケニル又は (C_2-C_4) -アルキニルであり；

R_D^4 は、ハロゲン、ニトロ、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -ハロアルキル、 (C_1-C_4) -ハロアルコキシ、 (C_3-C_6) -シクロアルキル、フェニル、 (C_1-C_4) -アルコキシ、シアノ、 (C_1-C_4) -アルキルチオ、 (C_1-C_4) -アルキルスルフィニル、 (C_1-C_4) -アルキルスルホニル、 (C_1-C_4) -アルコキシカルボニル又は (C_1-C_4) -アルキルカルボニルであり；

R_D^5 は、水素、 (C_1-C_6) -アルキル、 (C_3-C_6) -シクロアルキル、 (C_2-C_6) -アルケニル、 (C_2-C_6) -アルキニル、 (C_5-C_6) -シクロアルケニル、フェニル又は3~6員のヘテロシクリル(ここで、該ヘテロシクリルは、窒素、酸素及び硫黄からなる群から選択される v_D 個のヘテロ原子を含んでいる)であり(ここで、最後に挙げられている7つのラジカルは、ハロゲン、 (C_1-C_6) -アルコキシ、 (C_1-C_6) -ハロアルコキシ、 (C_1-C_2) -アルキルスルフィニル、 (C_1-C_2) -アルキルスルホニル、 (C_3-C_6) -シクロアルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシカルボニル、 (C_1-C_4) -アルキルカルボニル及びフェニルからなる群から選択される、また、環式ラジカルの場合には、さらに、 (C_1-C_4) -アルキル及び (C_1-C_4) -ハロ

アルキルからなる群からも選択される、 v_D の置換基で置換されている) ;

R_D^6 は、水素、 (C_1-C_6) -アルキル、 (C_2-C_6) -アルケニル又は (C_2-C_6) -アルキニルであり(ここで、最後に挙げられている3つのラジカルは、ハロゲン、ヒドロキシル、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシ及び (C_1-C_4) -アルキルチオからなる群から選択される v_D のラジカルで置換されている) ; 又は、

R_D^5 と R_D^6 は、それらを有している窒素原子と一緒に、ピロリジニルラジカル又はペリジニルラジカルを形成しており ;

R_D^7 は、水素、 (C_1-C_4) -アルキルアミノ、ジ- (C_1-C_4) -アルキルアミノ、 (C_1-C_6) -アルキル、 (C_3-C_6) -シクロアルキルであり(ここで、最後に挙げられている2つのラジカルは、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルコキシ、 (C_1-C_6) -ハロアルコキシ及び (C_1-C_4) -アルキルチオからなる群から選択される、また、環式ラジカルの場合には、さらに、 (C_1-C_4) -アルキル及び (C_1-C_4) -ハロアルキルからなる群からも選択される、 v_D の置換基で置換されている) ;

n_D は、0、1又は2であり ;

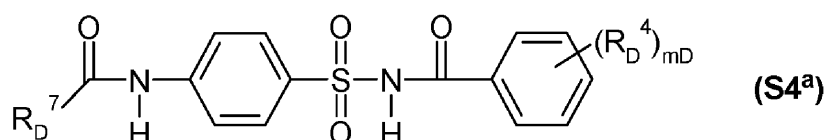
m_D は、1又は2であり ;

v_D は、0、1、2又は3である]

で表されるN-アシルスルホンアミド及びそれらの塩 ;

これらの中で、例えば、WO-A-97/45016から知られている、例えば、下記式(S4^a)

[化20]



[式中、

R_D^7 は、 (C_1-C_6) -アルキル又は (C_3-C_6) -シクロアルキルであり(ここで、最後に挙げられている2つのラジカルは、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルコキシ、 (C_1-C_6) -ハロアルコキシ及び (C_1-C_4) -アルキルチオからなる群から選択される、また、環式ラジカルの場合には、さらに、 (C_1-C_4) -アルキル及び (C_1-C_4) -ハロアルキルからなる群からも選択される、 v_D の置換基で置換されている) ;

R_D^4 は、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシ又は CF_3 であり ;

m_D は、1又は2であり ;

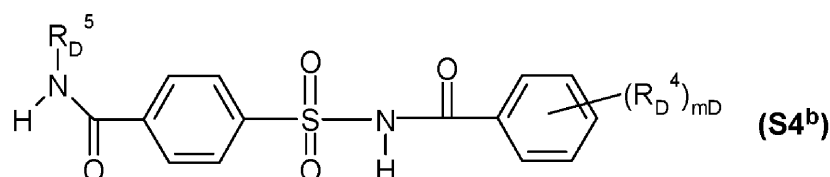
v_D は、0、1、2又は3である]

で表されるN-アシルスルホンアミドのタイプの化合物が好ましく、

及び、さらに、

例えば、WO-A-99/16744から知られている、例えば、下記式(S4^b)

[化21]



で表されるアシルスルファモイルベンズアミド、例えば、上記式において、

R_D^5 =シクロプロピル、且つ、 $(R_D^4)=2-OMe$ (「シプロスルファミド」、S4-1) ;

R_D^5 =シクロプロピル、且つ、 $(R_D^4)=5-Cl-2-OMe$ (S4-2) ;

R_D^5 = エチル、且つ、 $(R_D^4) = 2-OMe$ (S4-3) ;

R_D^5 = イソプロピル、且つ、 $(R_D^4) = 5-Cl-2-OMe$ (S4-4) ; 及び、

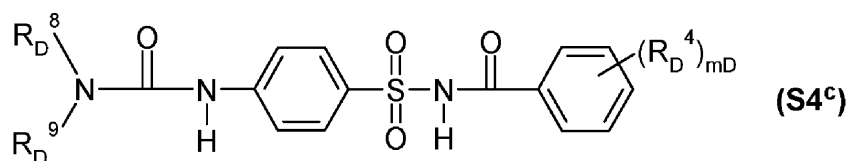
R_D^5 = イソプロピル、且つ、 $(R_D^4) = 2-OMe$ (S4-5) ;

であるものなども好ましく、

及び、さらに、

例えば、EP-A-365484から知られている、下記式 (S4^c)

【化22】



10

〔式中、

R_D^8 及び R_D^9 は、独立して、水素、 (C_1-C_8) -アルキル、 (C_3-C_8) -シクロアルキル、 (C_3-C_6) -アルケニル又は (C_3-C_6) -アルキニルを表し；

R_D^4 は、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシ、 CF_3 であり；

m_D は、1又は2である〕

で表されるN-アシルスルファモイルフェニル尿素のタイプの化合物、例えば、

1-[4-(N-2-メトキシベンゾイルスルファモイル)フェニル]-3-メチル尿素；

1-[4-(N-2-メトキシベンゾイルスルファモイル)フェニル]-3,3-ジメチル尿素；

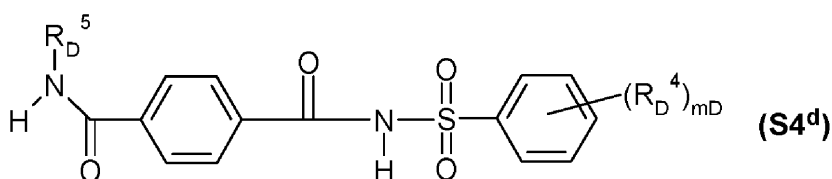
1-[4-(N-4,5-ジメチルベンゾイルスルファモイル)フェニル]-3-メチル尿素；

なども好ましく、

及び、さらに、

例えば、CN 101838227から知られている、式 (S4^d)

【化23】



30

で表されるN-フェニルスルホニルテレフタルアミド、例えば、上記式中、

R_D^4 が、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシ、 CF_3 であり；

m_D が、1又は2であり；

R_D^5 が、水素、 (C_1-C_6) -アルキル、 (C_3-C_6) -シクロアルキル、 (C_2-C_6) -アルケニル、 (C_2-C_6) -アルキニル、 (C_5-C_6) -シクロアルケニルである；

N-フェニルスルホニルテレフタルアミドなども好ましい。

【0099】

(S5) ヒドロキシ芳香族化合物及び芳香族-脂肪族カルボン酸誘導体の類から選択される活性成分 (S5)、例えば、3,4,5-トリアセトキシ安息香酸エチル、3,5-ジメトキシ-4-ヒドロキシ安息香酸、3,5-ジヒドロキシ安息香酸、4-ヒドロキシサリチル酸、4-フルオロサリチル酸、2-ヒドロキシケイ皮酸、2,4-ジクロロケイ皮酸 (これらは、WO-A-2004/084631、WO-A-2005/0159

40

50

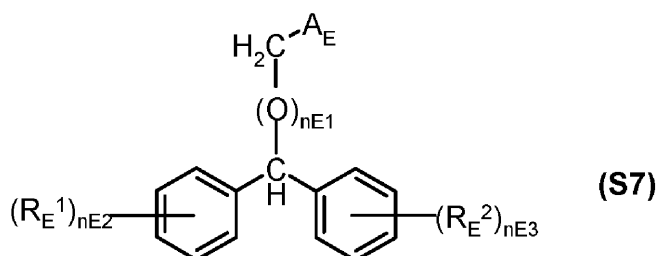
94、WO-A-2005/016001に記載されている)。

【0100】

(S6) 1, 2-ジヒドロキノキサリン-2-オン類の類から選択される活性成分 (S6)、例えば、1-メチル-3-(2-チエニル)-1, 2-ジヒドロキノキサリン-2-オン、1-メチル-3-(2-チエニル)-1, 2-ジヒドロキノキサリン-2-チオン、1-(2-アミノエチル)-3-(2-チエニル)-1, 2-ジヒドロキノキサリン-2-オン塩酸塩、1-(2-メチルスルホニルアミノエチル)-3-(2-チエニル)-1, 2-ジヒドロキノキサリン-2-オン (これらは、WO-A-2005/112630に記載されている)。

【0101】

(S7) 式 (S7) (これは、WO-A-1998/38856に記載されている)
【化24】



〔式中、記号及び添え字は、以下のように定義される：

R_E^1 、 R_E^2 は、独立して、ハロゲン、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_1-C_4) -アルコキシ、 (C_1-C_4) -ハロアルキル、 (C_1-C_4) -アルキルアミノ、ジ- (C_1-C_4) -アルキルアミノ、ニトロであり；

A_E は、 $COOR_E^3$ 又は $COSR_E^4$ であり；

R_E^3 、 R_E^4 は、独立して、水素、 (C_1-C_4) -アルキル、 (C_2-C_6) -アルケニル、 (C_2-C_4) -アルキニル、シアノアルキル、 (C_1-C_4) -ハロアルキル、フェニル、ニトロフェニル、ベンジル、ハロベンジル、ピリジニルアルキル及びアルキルアンモニウムであり；

n_E^1 は、0又は1であり；

n_E^2 、 n_E^3 は、独立して、0、1又は2である〕

で表される化合物；

好ましくは：

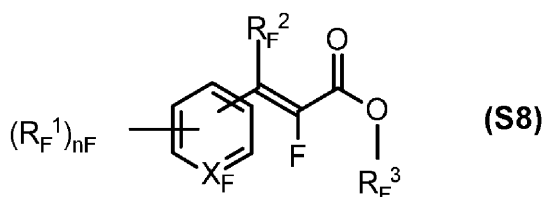
ジフェニルメトキシ酢酸、

ジフェニルメトキシ酢酸エチル、

ジフェニルメトキシ酢酸メチル (CAS Reg. No. 41858-19-9) (S7-1)。

【0102】

(S8) 式 (S8) (これは、WO-A-98/27049に記載されている)
【化25】



〔式中、

X_F は、CH又はNであり；

n_F は、 $X_F = N$ である場合、0～4の整数であり；及び、

n_F は、 $X_F = CH$ である場合、0～5の整数であり；

R_F^1 は、ハロゲン、 $(C_1 - C_4)$ - アルキル、 $(C_1 - C_4)$ - ハロアルキル、 $(C_1 - C_4)$ - アルコキシ、 $(C_1 - C_4)$ - ハロアルコキシ、ニトロ、 $(C_1 - C_4)$ - アルキルチオ、 $(C_1 - C_4)$ - アルキルスルホニル、 $(C_1 - C_4)$ - アルコキシカルボニル、置換されていてもよいフェニル、置換されていてもよいフェノキシであり；

R_F^2 は、水素又は $(C_1 - C_4)$ - アルキルであり；

R_F^3 は、水素、 $(C_1 - C_8)$ - アルキル、 $(C_2 - C_4)$ - アルケニル、 $(C_2 - C_4)$ - アルキニル又はアリール（ここで、上記炭素含有ラジカルは、それぞれ、置換されていないか、又は、ハロゲン及びアルコキシからなる群から選択される1以上の（好ましくは、最大で3までの）同一であるか若しくは異なっているラジカルで置換されている）である；

で表される化合物又はその塩；

好ましくは、上記式中、

X_F が、 CH であり；

n_F が、0～2の整数であり；

R_F^1 が、ハロゲン、 $(C_1 - C_4)$ - アルキル、 $(C_1 - C_4)$ - ハロアルキル、 $(C_1 - C_4)$ - アルコキシ、 $(C_1 - C_4)$ - ハロアルコキシであり；

R_F^2 が、水素又は $(C_1 - C_4)$ - アルキルであり；

R_F^3 が、水素、 $(C_1 - C_8)$ - アルキル、 $(C_2 - C_4)$ - アルケニル、 $(C_2 - C_4)$ - アルキニル又はアリール（ここで、上記炭素含有ラジカルは、それぞれ、置換されていないか、又は、ハロゲン及びアルコキシからなる群から選択される1以上の（好ましくは、最大で3までの）同一であるか若しくは異なっているラジカルで置換されている）である；

化合物又はその塩。

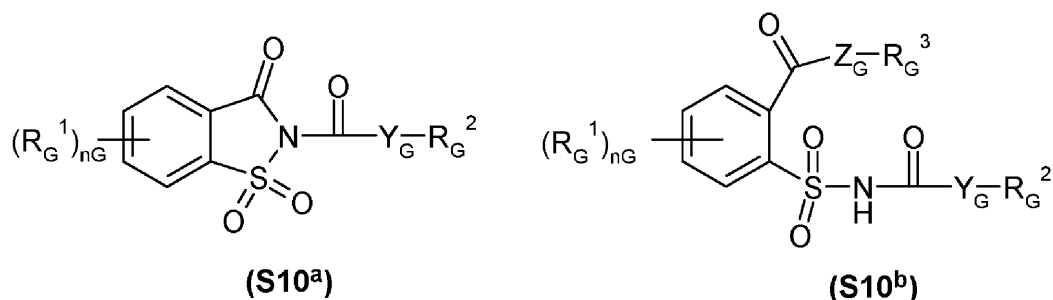
【0103】

(S9) 3-(5-テトラゾリルカルボニル)-2-キノロン類の類から選択される活性成分(S9)、例えば、1,2-ジヒドロ-4-ヒドロキシ-1-エチル-3-(5-テトラゾリルカルボニル)-2-キノロン(CAS Reg. No. 219479-18-2)、1,2-ジヒドロ-4-ヒドロキシ-1-メチル-3-(5-テトラゾリルカルボニル)-2-キノロン(CAS Reg. No. 95855-00-8)（これらは、WO-A-1999/000020に記載されている）。

【0104】

(S10) 式(S10^a)又は式(S10^b)（これらは、WO-A-2007/0237190及びWO-A-2007/023764に記載されている）

【化26】



〔式中、

R_G^1 は、ハロゲン、 $(C_1 - C_4)$ - アルキル、メトキシ、ニトロ、シアノ、 CF_3 、 OCF_3 であり；

Y_G 、 Z_G は、互いに独立して、O又はSを表し；

n_G は、0～4の整数であり；

R_G^2 は、 (C_1-C_{16}) -アルキル、 (C_2-C_6) -アルケニル、 (C_3-C_6) -シクロアルキル、アリール、ベンジル、ハロベンジルであり；

R_G^3 は、水素又は (C_1-C_6) -アルキルである〕
で表される化合物。

【0105】

(S11) オキシイミノ化合物のタイプの活性成分(S11)(これらは、種子粉衣剤として知られている)、例えば、

「オキサベトリニル」((Z) -1,3-ジオキサラン-2-イルメトキシイミノ(フェニル)アセトニトリル)(S11-1)(これは、メトラクロールによる損傷に対するアワ／モロコシ用の種子粉衣薬害軽減剤として知られている)；

「フルキソフェニム」(1-(4-クロロフェニル)-2,2,2-トリフルオロ-1-エタノン O-(1,3-ジオキサラン-2-イルメチル)オキシム)(S11-2)(これは、メトラクロールによる損傷に対するアワ／モロコシ用の種子粉衣薬害軽減剤として知られている)；及び、

「シオメトリニル」又は「CGA-43089」((Z) -シアノメトキシイミノ(フェニル)アセトニトリル)(S11-3)(これは、メトラクロールによる損傷に対するアワ／モロコシ用の種子粉衣薬害軽減剤として知られている)。

【0106】

(S12) イソチオクロマノン類の類から選択される活性成分(S12)、例えば、

[(3-オキソ-1H-2-ベンゾチオピラン-4(3H)-イリデン)メトキシ] 酢酸メチル(CAS Reg. No. 205121-04-6)(S12-1)及び関連化合物(WO-A-1998/13361)。

【0107】

(S13) 以下の群から選択される1種類以上の化合物(S13)：

「ナフタル酸無水物」(1,8-ナフタレンジカルボン酸無水物)(S13-1)(これは、チオカーバメート系除草剤による損傷に対するトウモロコシ用の種子粉衣薬害軽減剤として知られている)；

「フェンクロリム」(4,6-ジクロロ-2-フェニルピリミジン)(S13-2)(これは、播種されたイネにおいてプレチラクロールに対する薬害軽減剤として知られている)；

「フルラゾール」(2-クロロ-4-トリフルオロメチル-1,3-チアゾール-5-カルボン酸ベンジル)(S13-3)(これは、アラクロール及びメトラクロールによる損傷に対するアワ、ソルガム用の種子粉衣薬害軽減剤として知られている)；

「CL 304415」(CAS Reg. No. 31541-57-8)(4-カルボキシ-3,4-ジヒドロ-2H-1-ベンゾピラン-4-酢酸)(S13-4)[供給元：American Cyanamid](これは、イミダゾリノン類による損傷に対するトウモロコシ用の薬害軽減剤として知られている)；

「MG 191」(CAS Reg. No. 96420-72-3)(2-ジクロロメチル-2-メチル-1,3-ジオキサラン)(S13-5)[供給元：Nitrokemia](これは、トウモロコシ用の薬害軽減剤として知られている)；

「MG 838」(CAS Reg. No. 133993-74-5)(2-プロペニル 1-オキサ-4-アザスピロ[4.5]デカン-4-カルボジチオエート)(S13-6)[供給元：Nitrokemia]；

「ジスルホトン」(O,O-ジエチル S-2-エチルチオエチル ホスホロジチオエート)(S13-7)；

「ジエトレート(dietholate)」(O,O-ジエチル O-フェニルホスホロチオエート)(S13-8)；

「メフェネート(mephenate)」(メチルカルバミン酸4-クロロフェニル)(S13-9)。

【0108】

10

20

30

40

50

(S14) 有害な植物に対する除草効果に加えてイネなどの作物植物に対する薬害軽減効果も有している活性成分、例えば、

「ジメピレート」又は「MY 93」(S-1-メチル 1-フェニルエチルピペリジン-1-カルボチオエート)(これは、除草剤モリネートによる損傷に対するイネ用の薬害軽減剤として知られている)；

「ダイムロン」又は「SK 23」(1-(1-メチル-1-フェニルエチル)-3-p-トリル尿素)(これは、除草剤イマゾスルフロンによる損傷に対するイネ用の薬害軽減剤として知られている)；

「クミルロン」=「JC 940」(3-(2-クロロフェニルメチル)-1-(1-メチル-1-フェニルエチル)尿素；JP-A-60087254を参照されたい)(これは、一部の除草剤による損傷に対するイネ用の薬害軽減剤として知られている)；

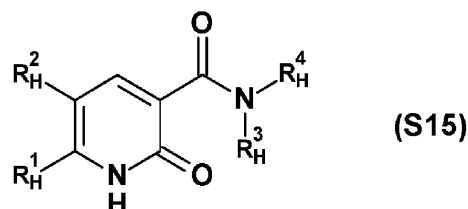
「メトキシフェノン」又は「NK 049」(3,3'-ジメチル-4-メトキシベンゾフェノン)(これは、一部の除草剤による損傷に対するイネ用の薬害軽減剤として知られている)；

「CSB」(1-ブromo-4-(クロロメチルスルホニル)ベンゼン)[供給元：Kumiai](CAS Reg. No. 54091-06-4)(これは、イネにおける一部の除草剤による損傷に対する薬害軽減剤として知られている)。

【0109】

(S15) 式(S15)(これは、WO-A-2008/131861及びWO-A-2008/131860に記載されている)

【化27】



〔式中、

R_H^1 は、(C₁-C₆)-ハロアルキルラジカルであり；及び、

R_H^2 は、水素又はハロゲンであり；及び

R_H^3 、 R_H^4 は、独立して、水素、(C₁-C₁₆)-アルキル、(C₂-C₁₆)-アルケニル若しくは(C₂-C₁₆)-アルキニルである(ここで、最後に挙げられている3つのラジカルは、それぞれ、置換されていないか、又は、ハロゲン、ヒドロキシル、シアノ、(C₁-C₄)-アルコキシ、(C₁-C₄)-ハロアルコキシ、(C₁-C₄)-アルキルチオ、(C₁-C₄)-アルキルアミノ、ジ[(C₁-C₄)-アルキル]アミノ、[(C₁-C₄)-アルコキシ]カルボニル、[(C₁-C₄)-ハロアルコキシ]カルボニル、置換されていないか若しくは置換されている(C₃-C₆)-シクロアルキル、置換されていないか若しくは置換されているフェニル及び置換されていないか若しくは置換されているヘテロシクリルの群から選択される1以上のラジカルで置換されている)か、又は、(C₃-C₆)-シクロアルキル、(C₄-C₆)-シクロアルケニル、(C₃-C₆)-シクロアルキル(ここで、該シクロアルキルは、当該環の1辺において4~6員の飽和又は不飽和の炭素環式環に縮合している)若しくは(C₄-C₆)-シクロアルケニル(ここで、該シクロアルケニルは、当該環の1辺において4~6員の飽和又は不飽和の炭素環式環に縮合している)を表し(ここで、最後に挙げられている4つのラジカルは、それぞれ、置換されていないか、又は、ハロゲン、ヒドロキシル、シアノ、(C₁-C₄)-アルキル、(C₁-C₄)-ハロアルキル、(C₁-C₄)-アルコキシ、(C₁-C₄)-ハロアルコキシ、(C₁-C₄)-アルキルチオ、(C₁-C₄)-アルキルアミノ、ジ[(C₁-C₄)-アルキル]アミノ、[(C₁-C₄)-アルコキシ]カルボニル、[(C₁-C₄)-ハロアルコキシ]カルボニル、置換されていないか若しくは置換され

ている (C_3-C_6) -シクロアルキル、置換されていないか若しくは置換されているフェニル及び置換されていないか若しくは置換されているヘテロシクリルからなる群から選択される1以上のラジカルで置換されている) ;

又は、

R_H^3 は、(C_1-C_4) -アルコキシ、(C_2-C_4) -アルケニルオキシ、(C_2-C_6) -アルキニルオキシ又は(C_2-C_4) -ハロアルコキシであり ; 及び、

R_H^4 は、水素又は(C_1-C_4) -アルキルであり ; 又は、

R_H^3 と R_H^4 は、直接結合している窒素原子と一緒に、4~8員のヘテロ環式環(ここで、該ヘテロ環式環は、当該窒素原子に加えて、さらなる環ヘテロ原子(好ましくは、N、O及びSの群から選択される最大で2個までのさらなる環ヘテロ原子)も含むことができ、また、該ヘテロ環式環は、置換されていないか、又は、ハロゲン、シアノ、ニトロ、(C_1-C_4) -アルキル、(C_1-C_4) -ハロアルキル、(C_1-C_4) -アルコキシ、(C_1-C_4) -ハロアルコキシ及び(C_1-C_4) -アルキルチオの群から選択される1以上のラジカルで置換されている)を表す)

で表される化合物又はその互変異性体。

【0110】

(S16) 主に除草剤として使用されるが作物植物に対する薬害軽減効果も有している活性化合物、例えば、

(2, 4-ジクロロフェノキシ) 酢酸 (2, 4-D) ;

(4-クロロフェノキシ) 酢酸 ;

(R, S) -2-(4-クロロ-オトリルオキシ) プロピオン酸 (メコプロップ) ;

4-(2, 4-ジクロロフェノキシ) 酪酸 (2, 4-DB) ;

(4-クロロ-オトリルオキシ) 酢酸 (MCPA) ;

4-(4-クロロ-オトリルオキシ) 酪酸 ;

4-(4-クロロフェノキシ) 酪酸 ;

3, 6-ジクロロ-2-メトキシ安息香酸 (ジカンバ) ;

3, 6-ジクロロ-2-メトキシ安息香酸 1-(エトキシカルボニル) エチル (ラクチジクロール-エチル (lactidichlor-ethyl)) 。

【0111】

特に好ましい薬害軽減剤は、メフェンピル-ジエチル、シプロスルファミド、イソキサジフェン-エチル、クロキントセト-メキシル、ジクロルミド及びメトカミフェン (metcamifen) である。

【0112】

水和剤は、活性成分に加えて、そして、希釈剤又は不活性物質とは別に、さらに、イオン性及び／又は非イオン性のタイプの界面活性剤 (湿潤剤、分散剤)、例えば、ポリエトキシ化アルキルフェノール、ポリエトキシ化脂肪族アルコール、ポリエトキシ化脂肪族アミン、脂肪族アルコールポリグリコールエーテルスルフェート、アルカンシルホネート、アルキルベンゼンスルホネート、リグノスルホン酸ナトリウム、2, 2'-ジナフチルメタン-6, 6'-ジスルホン酸ナトリウム、ジブチルナフタレンスルホン酸ナトリウム又はナトリウムオレオイルメチルタウレートなども含んでいる、水中で均質に分散することが可能な調製物である。水和剤を製造するためには、例えば、ハンマーミル、プロワミル及びエアージェットミルなどの慣習的な装置の中で、該除草活性成分を微粉碎し、そして、同時に又はその後で、製剤補助剤と混合させる。

【0113】

乳剤は、該活性成分を有機溶媒 (例えば、ブタノール、シクロヘキサノン、ジメチルホルムアミド、キシレン又は比較的沸点が高い芳香族物質若しくは炭化水素) 又はそのような有機溶媒の混合物の中に溶解させ、イオン性及び／又は非イオン性の1種類以上の界面活性剤 (乳化剤) を添加することによって製造する。使用し得る乳化剤の例は、以下のとおりである : アルキルアリールスルホン酸カルシウム塩、例えば、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム、又は、非イオン性乳化剤、例えば、脂肪酸ポリグリコールエステル、

アルキルアリールポリグリコールエーテル、脂肪族アルコールポリグリコールエーテル、プロピレンオキシド／エチレンオキシド縮合物、アルキルポリエーテル、ソルビタンエステル、例えば、ソルビタン脂肪酸エステル、又は、ポリオキシエチレンソルビタンエステル、例えば、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル。

【0114】

散粉性製品 (dusting products) は、該活性成分を微粉碎された (finely distributed) 固形物 (例えば、タルク、自然粘土、例えば、カオリン、ベントナイト及び葉ろう石、又は、珪藻土) と一緒に粉碎することによって得られる。

【0115】

懸濁剤は、水性又は油性であることができる。それらは、例えば、商業用ビーズミルを用いて、そして、場合により界面活性剤 (例えば、別の製剤型に関して、既に上記で挙げられている界面活性剤) を添加して、湿式粉碎することによって製造することができる。

【0116】

エマルジョン剤、例えば、水中油型エマルジョン剤 (EW) は、例えば、水性有機溶媒を使用し、そして、場合により界面活性剤 (例えば、別の製剤型に関して既に上記で挙げられている界面活性剤) を使用して、攪拌機、コロイドミル及び／又はスタティックミキサーを用いて製造することができる。

【0117】

顆粒剤は、吸着性の顆粒状不活性物質の表面上に該活性成分を噴霧することによって、又は、担体物質 (例えば、砂、カオリナイト又は顆粒状の不活性物質) の表面上に接着剤 (例えば、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸ナトリウム又は鉱油) を用いて活性成分濃厚物を塗布することによって、製造することができる。さらにまた、肥料顆粒を製造するための慣習的な方法で (必用に応じて、肥料との混合物として)、適切な活性成分を造粒することも可能である。

【0118】

顆粒水和剤は、一般に、噴霧乾燥、流動床造粒、パン造粒、高速ミキサーを用いた混合、及び、固形不活性物質を用いない押出などの、慣習的な方法によって製造する。

【0119】

パン粒剤、流動床粒剤、押出粒剤及び噴霧粒剤の製造に関しては、例えば、「“Spray-Drying Handbook” 3rd ed. 1979, G. Goodwin Ltd., London」、「J. E. Browning, “Agglomeration”, Chemical and Engineering 1967, pages 147 ff.」、「“Perry’s Chemical Engineer’s Handbook”, 5th Ed., McGraw-Hill, New York 1973, pp. 8-57」に記載されている方法を参照されたい。

【0120】

作物保護組成物の製剤に関するさらなる詳細については、例えば、「G. C. Klingman, “Weed Control as a Science”, John Wiley and Sons, Inc., New York, 1961, pages 81-96」及び「J. D. Freyer, S. A. Evans, “Weed Control Handbook”, 5th Ed., Blackwell Scientific Publications, Oxford, 1968, pages 101-103」を参照されたい。

【0121】

該農薬調製物は、一般に、0.1重量%～99重量%、特に、0.1重量%～95重量%の、本発明の化合物を含んでいる。水和剤では、該活性成分の濃度は、例えば、約10重量%～90重量%であり、100重量%までの残余は、慣習的な製剤成分からなる。乳剤の場合は、該活性成分の濃度は、約1重量%～90重量%、好ましくは、5重量%～80重量%であり得る。粉末の形態にある製剤は、1重量%～30重量%の活性成分、好ま

10

20

30

40

50

しくは、通常、5重量%～20重量%の活性成分を含み；散布可能溶液剤は、約0.05重量%～80重量%、好ましくは、2重量%～50重量%の活性成分を含む。顆粒水和剤の場合は、該活性成分の含有量は、その活性成分が液体形態で存在しているか又は固体形態で存在しているかに部分的に依存し、及び、どのような造粒助剤、増量剤などが使用されるかに部分的に左右される。顆粒水和剤では、活性成分の含有量は、例えば、1重量%～95重量%、好ましくは、10重量%～80重量%である。

【0122】

さらに、活性成分の上記製剤は、場合により、それぞれの慣習的な粘着剤、湿潤剤、分散剤、乳化剤、浸透剤、防腐剤、不凍剤、並びに、溶媒、増量剤、担体、並びに、色素、消泡剤、蒸発抑制剤、並びに、pH及び粘度に影響を及ぼす作用剤を含有する。

10

【0123】

これらの製剤に基づいて、別の殺有害生物活性物質（例えば、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、殺菌剤）との組合せ物や、さらにまた、薬害軽減剤、肥料及び／又は成長調節剤との組合せ物を、例えば、完成された製剤の形態で又はタンクミックスとして、製造することも可能である。

【0124】

施用するために、商業用の形態にある製剤は、適切な場合には、慣習的な方法で希釈し、例えば、水和剤、乳剤、分散液剤及び顆粒水和剤の場合には、水で希釈する。粉剤のタイプの調製物、土壌施用用顆粒剤又はばらまき用顆粒剤及び散布可能溶液剤は、通常、施用前に別の不活性物質でさらに希釈することはない。

20

【0125】

式(I)で表される化合物及びそれらの塩の必要とされる施用量は、外部条件（例えば、とりわけ、温度、湿度及び使用する除草剤の種類など）に応じて変わる。それは、広い範囲内で、例えば、0.001～10.0 kg / ha 又はそれ以上の活性物質の範囲内で、変わり得る。しかしながら、それは、好ましくは、0.005～5 kg / ha であり、さらに好ましくは、0.01～1.5 kg / ha の範囲内であり、さらに好ましくは、0.05～1 kg / ha の範囲内である。これは、発生前施用及び発生後施用の両方に当てはまる。

【0126】

担体は、特に植物又は植物の部分又は種子への施用に関して、適用性を良好にするために、当該活性成分と混合させるか又は合する天然又は合成の有機物質又は無機物質である。このような担体は、固体又は液体であり得るが、一般に、不活性であり、そして、農業において使用するのに適しているべきである。

30

【0127】

有用な固体又は液体の担体としては、以下のものなどがある：例えば、アンモニウム塩、並びに、天然岩粉、例えば、カオリン、クレイ、タルク、チョーク、石英、アタパルジャイト、モンモリロナイト又はケイ藻土、並びに、合成岩粉、例えば、微粉化シリカ、アルミナ及び天然又は合成のシリケート、樹脂、蠟、固形肥料、水、アルコール、特に、ブタノール、有機溶媒、鉱油及び植物油、並びに、それらの誘導体。そのような担体の混合物も使用し得る。粒剤に有用な固体担体としては、以下のものなどがある：例えば、粉碎して分別した天然岩石、例えば、方解石、大理石、軽石、海泡石、苦灰岩、並びに、無機及び有機の粗挽き粉からなる合成顆粒、並びに、さらに、有機材料、例えば、おがくず、ココナッツ殻、トウモロコシ穂軸及びタバコの葉柄などからなる顆粒。

40

【0128】

適切な液化ガス増量剤又は担体は、標準温度及び大気圧下では気体である液体、例えば、エアゾル噴射剤、例えば、ハロゲン化炭化水素類、又は、ブタン、プロパン、窒素及び二酸化炭素などである。

【0129】

上記製剤において、粘着付与剤、例えば、カルボキシメチルセルロース、粉末又は顆粒又はラテックスの形態にある天然ポリマー及び合成ポリマー、例えば、アラビアゴム、ポ

50

リビニルアルコール及びポリ酢酸ビニル、又は、天然のリン脂質、例えば、セファリン及びレシチン、及び、合成リン脂質などを使用することができる。さらなる添加剤は、鉱油及び植物油であり得る。

【0130】

使用する増量剤が水である場合、例えば、有機溶媒を補助溶媒として使用することもできる。有用な液体溶媒は、本質的に、以下のものである：芳香族化合物、例えば、キシレン、トルエン又はアルキルナフタレン類、塩素化芳香族化合物又は塩素化脂肪族炭化水素、例えば、クロロベンゼン類、クロロエチレン類又はジクロロメタン、脂肪族炭化水素、例えば、シクロヘキサン又はパラフィン類、例えば、鉱油留分、鉱油及び植物油、アルコール類、例えば、ブタノール又はグリコールとそれらのエーテル及びエステル、ケトン類、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン又はシクロヘキサノン、強極性溶媒、例えば、ジメチルホルムアミド及びジメチルスルホキシド、及び、さらに、水。

【0131】

本発明の組成物には、付加的に、さらなる成分（例えば、界面活性剤など）も含有させることができる。有用な界面活性剤は、イオン特性若しくは非イオン特性を有する乳化剤及び／若しくは泡形成剤、分散剤又は湿潤剤であるか、又は、そのような界面活性剤の混合物である。これらの例は、以下のものである：ポリアクリル酸の塩、リグノスルホン酸の塩、フェノールスルホン酸若しくはナフタレンスルホン酸の塩、エチレンオキシドと脂肪アルコールの重縮合物若しくはエチレンオキシドと脂肪酸の重縮合物若しくはエチレンオキシドと脂肪アミンの重縮合物、置換されているフェノール（好ましくは、アルキルフェノール又はアリールフェノール）、スルホコハク酸エステルの塩、タウリン誘導体（好ましくは、アルキルタウレート）、ポリエトキシ化アルコールのリン酸エステル若しくはポリエトキシ化フェノールのリン酸エステル、ポリオールの脂肪酸エステル、並びに、硫酸アニオン、スルホン酸アニオン及びリン酸アニオンを含んでいる該化合物の誘導体、例えば、アルキルアリールポリグリコールエーテル類、アルキルスルホネート類、アルキルスルフェート類、アリールスルホネート類、タンパク質加水分解物、リグノスルファイト廃液及びメチルセルロースなど。該活性成分のうちの1種類及び／又は該不活性担体のうちの1種類が水不溶性であり且つ施用が水で行われる場合は、界面活性剤を存在させることが必要である。界面活性剤の割合は、本発明組成物の5～40重量%である。着色剤、例えば、無機顔料、例えば、酸化鉄、酸化チタン及びプルシアンブルー（Prussian Blue）、並びに、有機染料、例えば、アリザリン染料、アゾ染料及び金属フタロシアニン染料、並びに、微量栄養素、例えば、鉄塩、マンガン塩、ホウ素塩、銅塩、コバルト塩、モリブデン塩及び亜鉛塩などを使用することができる。

【0132】

適切な場合には、付加的な別の成分、例えば、保護コロイド、結合剤、粘着剤、増粘剤、揺変性物質、浸透剤、安定化剤、金属イオン封鎖剤、錯化剤なども存在させることができる。一般に、該活性成分は、製剤目的で一般的に使用される固体又は液体の任意の添加剤と組み合わせることが可能である。一般に、本発明の組成物及び製剤は、0.05重量%～99重量%、0.01重量%～98重量%、好ましくは、0.1重量%～95重量%、さらに好ましくは、0.5重量%～90重量%の活性成分を含有し、最も好ましくは、10重量%～70重量%の活性成分を含有する。本発明の活性成分又は組成物は、そのまま使用することが可能であるか、又は、それらの個々の物理的及び／若しくは化学的特性に応じて、以下のようなそれらの製剤の形態若しくはその製剤から調製される使用形態で使用することが可能である：例えば、エアロゾル剤、カプセル懸濁液剤、冷煙霧濃厚剤（cold-fogging concentrate）、温煙霧濃厚剤（warm-fogging concentrate）、カプセル化粒剤、細粒剤、種子処理用フロアブル剤、即時使用可能な溶液剤（ready-to-use solution）、散粉性粉剤、乳剤、水中油型エマルジョン剤、油中水型エマルジョン剤、大型粒剤、微粒剤、油分散性粉剤、油混和性フロアブル剤、油混和性液剤、泡剤（foam）、ペースト剤

、農薬粉衣種子、懸濁製剤 (suspension concentrate)、サスポエマルジョン製剤、可溶性濃厚剤 (soluble concentrate)、懸濁液剤 (suspension)、散布可能粉末剤、可溶性粉剤 (soluble powder)、粉剤及び粒剤、水溶性顆粒剤又は錠剤、種子処理用水溶性粉剤、水和剤、活性成分が含浸されている天然生成物及び合成物質、並びに、さらに、ポリマー物質中にマイクロカプセル化されているもの及び種子用のコーティング物質中にマイクロカプセル化されているもの、並びに、さらに、ULV冷煙霧製剤 (ULV cold-fogging formulation) 及びULV温煙霧製剤 (ULV warm-fogging formulation)。

【0133】

上記製剤は、自体公知の方法で、例えば、当該活性成分を少なくとも1種類の慣習的な増量剤、溶媒又は希釈剤、乳化剤、分散剤及び／又は結合剤又は固着剤、湿潤剤、撥水剤、場合により、乾燥剤及び紫外線安定剤、並びに、場合により、染料及び顔料、消泡剤、防腐剤、第2の増粘剤、粘着性付与剤、ジベレリン類、並びに、さらに、別の加工助剤と混合させることによって、製造することができる。

【0134】

本発明の組成物には、既に使用し得る状態にあつて適切な装置を用いて植物又は種子に対して使用可能な製剤のみではなく、使用前に水で希釈することが必要な商業的な濃厚物も包含される。

【0135】

本発明の活性成分は、それだけで存在し得るか、又は、その（商業用の標準的な）製剤中に、若しくは、そのような製剤から調製された使用形態中に、殺虫剤、誘引剤、不妊剤、殺細菌剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、成長調節剤、除草剤、肥料、薬害軽減剤若しくは情報化学物質などの別の（既知）活性成分との混合物として、存在し得る。

【0136】

上記活性成分又は組成物を用いた植物及び植物の部分の本発明による処理は、慣習的な処理方法によって、例えば、浸漬、散布、噴霧、灌漑、気化、散粉、煙霧、ばらまき、泡状化、塗布、拡散 (spreading-on)、灌水（灌注 (drenching)）、点滴灌漑などによって、直接的に行うか、又は、該活性成分又は組成物を植物及び植物の部分の周囲、生息環境若しくは貯蔵空間に作用させることにより行い、また、繁殖器官 (propagation material) の場合、特に種子の場合には、さらに、乾式種子処理によって、湿式種子処理によって、スラリー処理によって、外被化 (incrustation) によって、1層以上の被膜をコーティングすることによって、行う。さらに、該活性成分を微量散布法 (ultra-low volume method) によって施用する (deploy) ことも可能であり、又は、該活性成分調製物若しくは該活性成分自体を土壤中に注入することも可能である。

【0137】

以下でも記載されているように、本発明の活性成分又は組成物によるトランスジェニック種子の処理は、特に重要である。このことは、殺虫特性を有するポリペプチド又はタンパク質の発現を可能にする少なくとも1種類の異種遺伝子を含んでいる植物の種子に関連する。トランスジェニック種子内の異種遺伝子は、例えば、バシルス (Bacillus) 種、リゾビウム (Rhizobium) 種、シュードモナス (Pseudomonas) 種、セラチア (Serratia) 種、トリコデルマ (Trichoderma) 種、クラビバクテル (Clavibacter) 種、グロムス (Glomus) 種又はグリオクラジウム (Gliocladium) 種の微生物に由来し得る。この異種遺伝子は、好ましくは、バシルス属種 (Bacillus sp.) に由来し、その場合、その遺伝子産物は、アワノメイガ (European corn borer) 及び／又はウェスタンコーンルートワーム (Western corn rootworm) に対して有効である。該異種遺伝子は、さらに好ましくは、バシルス・ツリングエンシス (Bacillus thuringiensis) に由来する。

10

20

30

40

50

【0138】

本発明に関連して、本発明による組成物は、種子に対して、単独で施用するか、又は、適切な製剤中に含ませて施用する。好ましくは、種子は、処理の過程で損傷が起こらないように、十分に安定な状態で処理する。一般に、種子は、収穫と播種の間の任意の時点で処理することができる。慣習的には、植物から分離されていて、穂軸、殻、葉柄、外皮、被毛又は果肉を伴っていない種子を使用する。例えば、収穫され、不純物が取り除かれ、含水量が15重量%未満となるまで乾燥された種子を使用することができる。あるいは、乾燥後に例えば水で処理され、その後再度乾燥された種子を使用することもできる。

【0139】

一般に、種子を処理する場合、種子の発芽が損なわれないように、及び、種子から生じる植物が損傷を受けないように、種子に施用する本発明組成物の量及び／又はさらなる添加剤の量を選択することに関して確実にしなければならない。このことは、特に、特定の施用量で薬害作用を示し得る活性成分の場合には、確実にしなくてはならない。

【0140】

本発明の組成物は、直接的に施用することが、即ち、別の成分を含ませることなく、また、希釈することなく、施用することが可能である。一般に、該組成物は、適切な製剤の形態で種子に施用するのが好ましい。種子を処理するための適切な製剤及び方法は、当業者には知られており、そして、例えば、以下の文献に記載されている：US 4, 272, 417A、US 4, 245, 432A、US 4, 808, 430、US 5, 876, 739、US 2003/0176428A1、WO 2002/080675A1、WO 2002/028186A2。

【0141】

本発明の活性成分は、慣習的な種子粉衣製剤、例えば、溶液剤、エマルジョン剤、懸濁液剤、粉末剤、泡剤、スラリー剤又は種子用の別のコーティング組成物などに、及び、さらに、ULV製剤などに、変換することができる。

【0142】

これらの製剤は、既知方法で、活性成分を、慣習的な添加剤、例えば、慣習的な増量剤、及び、溶媒又は希釈剤、着色剤、湿潤剤、分散剤、乳化剤、消泡剤、防腐剤、第2の増粘剤、粘着剤、ジベレリン類などと混合させ、及び、さらに、水と混合させることによって、製造する。

【0143】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる着色剤は、そのような目的に関して慣習的な全ての着色剤である。水中であまり溶解しない顔料と水中で溶解する染料のいずれも使用することができる。その例としては、「Rhodamin B」、「C. I. Pigment Red 112」及び「C. I. Solvent Red 1」の名称で知られている着色剤などを挙げることができる。

【0144】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる有用な湿潤剤は、農薬活性成分の製剤に関して慣習的な、湿潤を促進する全ての物質である。好ましくは、アルキルナフタレンスルホネート類、例えば、ジイソプロピルナフタレンスルホネート又はジイソブチルナフタレンスルホネートなどを使用することができる。

【0145】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる適切な分散剤及び／又は乳化剤は、農薬活性成分の製剤に関して慣習的な非イオン性、アニオン性及びカチオン性の全ての分散剤である。好ましいのは、非イオン性若しくはアニオン性の分散剤又は非イオン性若しくはアニオン性の分散剤の混合物を使用することであり得る。適している非イオン性分散剤としては、特に、エチレンオキシド／プロピレンオキシドブロックコポリマー類、アルキルフェノールポリグリコールエーテル類及びトリステリルフェノールポリグリコールエーテル類、並びに、それらのリン酸化誘導体又は硫酸化誘導体などを挙げるることができる。適しているアニオン性分散剤は、特に、リグノスルホネー

10

20

30

40

50

ト類、ポリアクリル酸塩類及びアリールスルホネート-ホルムアルデヒド縮合物である。

【0146】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる消泡剤は、農薬活性成分の製剤に関して慣習的な全ての泡抑制物質である。好ましくは、シリコン消泡剤及びステアリン酸マグネシウムを使用することができる。

【0147】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる防腐剤は、農薬組成物中で当該目的のために使用することが可能な全ての物質である。その例としては、ジクロロフェン及びベンジルアルコールヘミホルマールなどを挙げることができる。

【0148】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる第2の増粘剤は、農薬組成物中で当該目的のために使用することが可能な全ての物質である。好ましい例としては、セルロース誘導体、アクリル酸誘導体、キサンタン、変性クレイ及び微粉碎シリカなどを挙げることができる。

【0149】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる有用な粘着剤は、種子粉衣製品中で使用可能な全ての慣習的な結合剤である。好ましい例としては、ポリビニルピロリドン、ポリ酢酸ビニル、ポリビニルアルコール及びチロースなどを挙げることができる。

【0150】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤は、広い範囲の異なった種子（これは、トランスジェニック植物の種子を包含する）を処理するために、直接的に使用することができるか、又は、予め水で希釈したあとで使用することができる。この場合、発現により形成された物質との相互作用において、付加的な相乗効果が生じることもあり得る。

【0151】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤又は水を添加することによってその種子粉衣製剤から調製された調製物による種子の処理に関して、有用な装置は、種子粉衣に関して慣習的に使用可能な全ての混合装置である。具体的には、該種子粉衣手順は、種子を混合機の中に入れること、所望される特定量の種子粉衣製剤を、そのままに添加するか又は予め水で希釈したあとに添加すること、及び、該製剤が当該種子の表面に均質に分配されるまでそれらを混合させることである。適切な場合には、続いて乾燥工程を行う。

【0152】

本発明の活性成分は、植物が良好な適合性を示し、恒温動物に対する毒性が望ましい程度であり且つ環境との適合性が良好である場合、植物及び植物の器官を保護するのに適しており、収穫高を増大させるのに適しており、及び、収穫された作物の質を向上させるのに適している。それらは、好ましくは、作物保護剤として使用することができる。それらは、通常、感受性種及び抵抗性種に対して活性を示し、また、全ての発育段階又は特定の発育段階に対して活性を示す。

【0153】

本発明に従って処理することが可能な植物としては、以下の主要な作物植物などを挙げることができる：トウモロコシ、ダイズ、ワタ、アブラナ属油料種子 (*Brassica oil seeds*)、例えば、セイヨウアブラナ (*Brassica napus*) (例えば、カノラ)、カブ (*Brassica rapa*)、カラシナ (*B. juncea*) (例えば、(フィールド) マスタード) 及びアビシニアガラシ (*Brassica carinata*)、イネ、コムギ、テンサイ、サトウキビ、エンバク、ライムギ、オオムギ、アワ及びソルガム、ライコムギ、アマ、ブドウの木、並びに、種々の植物学的分類群に属するさまざまな果実及び野菜、例えば、バラ科各種 (*Rosaceae sp.*) (例えば、仁果類、例えば、リンゴ及びナシ、さらに、核果類、例えば、アンズ、サクラ、アーモンド及びモモ、並びに、液果類、例えば、イチゴ)、リベシオイダエ科各種 (*Rib*

10

20

30

40

50

esioideae sp.)、クルミ科各種 (Juglandaceae sp.)、カバノキ科各種 (Betulaceae sp.)、ウルシ科各種 (Anacardiaceae sp.)、ブナ科各種 (Fagaceae sp.)、クワ科各種 (Moraceae sp.)、モクセイ科各種 (Oleaceae sp.)、マタタビ科各種 (Actinidaceae sp.)、クスノキ科各種 (Lauraceae sp.)、バショウ科各種 (Musaceae sp.) (例えば、バナナの木及びプランテーション)、アカネ科各種 (Rubiaceae sp.) (例えば、コーヒー)、ツバキ科各種 (Theaceae sp.)、アオギリ科各種 (Sterculiaceae sp.)、ミカン科各種 (Rutaceae sp.) (例えば、レモン、オレンジ及びグレープフルーツ)；ナス科各種 (Solanaceae sp.) (例えば、トマト、ジャガイモ、トウガラシ、ナス)、ユリ科各種 (Liliaceae sp.)、キク科各種 (Compositae sp.) (例えば、レタス、チョウセンアザミ及びチコリー (これは、ルートチコリー (root chicory)、エンダイブ又はキクニガナ (common chicory) を包含する))、セリ科各種 (Umbelliferae sp.) (例えば、ニンジン、パセリ、セロリ及びセルリアック)、ウリ科各種 (Cucurbitaceae sp.) (例えば、キュウリ (これは、ガーキンを包含する)、カボチャ、スイカ、ヒョウタン及びメロン)、ネギ科各種 (Alliaceae sp.) (例えば、リーキ及びタマネギ)、アブラナ科各種 (Cruciferae sp.) (例えば、白キャベツ、赤キャベツ、ブロッコリー、カリフラワー、芽キャベツ、タイサイ、コールラビ、ラディッシュ、セイヨウワサビ、コショウソウ及びハクサイ)、マメ科各種 (Leguminosae sp.) (例えば、ラッカセイ、エンドウ及びインゲンマメ属 (例えば、インゲンマメ (common bean) 及びソラマメ))、アカザ科各種 (Chenopodiaceae sp.) (例えば、フダンソウ、飼料用ビート、ホウレンソウ、ビートルート)、アオイ科 (Malvaceae) (例えば、オクラ)、クサスギカズラ科 (Asparagaceae) (例えば、アスパラガス)；庭園及び森林における有用な植物及び観賞植物；及び、いずれの場合にも、これら植物の遺伝子組み換えが行われたタイプのもの。

【0154】

上記で述べたように、本発明に従って、全ての植物及びそれらの部分を処理することができる。好ましい実施形態では、野生の植物種及び植物品種、又は、交雑若しくはプロトプラスト融合のような慣習的な生物学的育種方法により得られた植物種及び植物品種、並びに、それらの部分を処理する。好ましいさらなる実施形態では、適切な場合には慣習的な方法と組み合わせた遺伝子工学的的方法により得られたトランスジェニック植物及び植物品種 (遺伝子組換え生物) 及びそれらの部分を処理する。用語「部分 (parts)」又は「植物の部分 (parts of plants)」又は「植物の部分 (plant parts)」については、上記で説明した。本発明に従って特に好ましいのは、商業上慣習的なそれぞれの植物品種の植物又は使用されているそれぞれの植物品種の植物を処理することである。植物品種は、慣習的な育種又は突然変異誘発又は組換えDNA技術によって栽培された、新しい特性 (「形質」) を有する植物を意味するものと理解される。それらは、品種、変種、生物型及び遺伝子型であることができる。

【0155】

本発明の処理方法は、遺伝子組換え生物 (GMO)、例えば、植物又は種子などを処理するのに使用することができる。遺伝子組換え植物 (又は、トランスジェニック植物) は、異種遺伝子がゲノムに安定的に組み込まれている植物である。用語「異種遺伝子」は、本質的に、供給されたか又は当該植物の外部で構築された遺伝子であって、核のゲノム、葉緑体のゲノム又はミトコンドリアのゲノムの中に導入されたときに、その遺伝子が興味深いタンパク質若しくはポリペプチドを発現することにより、又は、その植物体内に存在している別の1つ若しくは複数の遺伝子がダウンレギュレート若しくはスイッチオフされることにより (例えば、アンチセンス技術、コサプレッション技術又はRNAi技術 [RNA干渉] などを使用する)、当該形質転換された植物に新しい又は改善された作物学

的特性又は別の形質を付与する遺伝子を意味する。ゲノム内に存在している異種遺伝子は、導入遺伝子とも称される。植物ゲノム内におけるその特異的な存在によって定義される導入遺伝子は、形質転換又は遺伝子導入イベントと称される。

【0156】

植物種又は植物品種、それらの生育場所及び生育条件（土壌、気候、生育期、養分（diet））に応じて、本発明の処理により、相加効果を超える効果（「相乗効果」）も生じ得る。例えば、実際に予期される効果を超える以下の効果などが可能である：本発明に従って使用し得る活性成分及び組成物の施用量の低減及び／又は活性スペクトルの拡大及び／又は効力の増強、植物の生育の向上、高温又は低温に対する耐性の向上、渇水又は水中若しくは土壌中に含まれる塩分に対する耐性の向上、開花能力の向上、収穫の容易性の向上、促進された成熟、収穫量の増加、果実の大きさの増大、植物の高さの増大、葉の緑色の向上、より早い開花、収穫された生産物の品質の向上及び／又は栄養価の増加、果実内の糖度の上昇、収穫された生産物の貯蔵安定性の向上及び／又は加工性の向上。

10

【0157】

本発明に従って処理するのが好ましい植物及び植物品種には、特に有利で有用な形質を植物に付与する遺伝物質を有している全ての植物（育種によって得られたものであろうと、及び／又は、生物工学的手段によって得られたものであろうと）が包含される。

【0158】

線虫抵抗性植物の例は、例えば、以下の米国特許出願に記載されている：11/765,491、11/765,494、10/926,819、10/782,020、12/032,479、10/783,417、10/782,096、11/657,964、12/192,904、11/396,808、12/166,253、12/166,239、12/166,124、12/166,209、11/762,886、12/364,335、11/763,947、12/252,453、12/209,354、12/491,396、及び、12/497,221。

20

【0159】

本発明に従って処理し得る植物は、雑種強勢又は雑種効果（これは、結果として、一般に、増加した収量、向上した活力、向上した健康状態並びに生物的及び非生物的ストレス因子に対する向上した抵抗性をもたらす）の特性を既に呈しているハイブリッド植物である。そのような植物は、典型的には、雄性不稔交配母体近交系（inbred male-sterile parent line）（雌性交雑育種親）を別の雄性稔性交配母体近交系（inbred male-fertile parent line）（雄性交雑育種親）と交雑させることによって生成される。ハイブリッド種子は、典型的には、雄性不稔植物から収穫され、そして、栽培者に販売される。雄性不稔植物は、場合により（例えば、トウモロコシにおいて）、雄穂を除去すること（detasselling）によって（即ち、雄性繁殖器官又は雄花を機械的に除去することによって）、作ることができる。しかしながら、より典型的には、雄性不稔性は、植物ゲノム内の遺伝的決定基の結果である。その場合、及び、特に種子がハイブリッド植物から収穫される所望の生産物である場合、典型的には、雄性不稔性に関与する遺伝的決定基を含んでいる該ハイブリッド植物において雄性稔性を確実に完全に回復させることは有益である。これは、雄性不稔性に関与する遺伝的決定基を含んでいるハイブリッド植物において雄性稔性を回復させることが可能な適切な稔性回復遺伝子を雄性交雑育種親が有していることを確実なものとすることによって達成することができる。雄性不稔性に関する遺伝的決定基は、細胞質内に存在させ得る。細胞質雄性不稔（CMS）の例は、例えば、アブラナ属各種（Brassic species）に関して記述された。しかしながら、雄性不稔性に関する遺伝的決定基は、核ゲノム内にも存在させ得る。雄性不稔性植物は、遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によっても得ることができる。雄性不稔性植物を得る特に有用な方法は、WO 89/10396に記載されており、ここでは、例えば、バルナーゼなどのリボヌクレアーゼを雄ずい内のタペータム細胞において選択的に発現させる。次いで、タペータム細胞内においてバルスターなどのリボヌクレアーゼインヒビターを発現させることによ

30

40

50

って、稔性を回復させることができる。

【0160】

本発明に従って処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、除草剤耐性植物、即ち、1種類以上の所与の除草剤に対して耐性にされた植物である。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、当該除草剤耐性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。

【0161】

除草剤耐性植物は、例えば、グリホセート耐性植物、即ち、除草剤グリホセート又はその塩に対して耐性にされた植物である。植物は、種々の方法によって、グリホセートに対して耐性にすることができる。かくして、例えば、グリホセート耐性植物は、酵素5-エノールピルビルシキミ酸-3-リン酸シンターゼ（EPSPS）をコードする遺伝子で植物を形質転換させることによって得ることができる。そのようなEPSPS遺伝子の例は、以下のものである：細菌サルモネラ・チフィムリウム（*Salmonella typhimurium*）のAroA遺伝子（突然変異CT7）（Comai et al., 1983, Science 221, 370-371）、細菌アグロバクテリウム属各種（*Agrobacterium* sp.）のCP4遺伝子（Barry et al., 1992, Curr. Topics Plant Physiol. 7, 139-145）、ペチュニアのEPSPSをコードする遺伝子（Shah et al., 1986, Science 233, 478-481）、トマトのEPSPSをコードする遺伝子（Gasser et al., 1988, J. Biol. Chem. 263, 4280-4289）又はオヒシバ属（*Eleusine*）のEPSPSをコードする遺伝子（WO 01/66704）。それは、突然変異EPSPSであることも可能である。グリホセート耐性植物は、さらにまた、グリホセートオキシドレダクターゼ酵素をコードする遺伝子を発現させることによって得ることもできる。グリホセート耐性植物は、さらにまた、グリホセートアセチルトランスフェラーゼ酵素をコードする遺伝子を発現させることによって得ることもできる。グリホセート耐性植物は、さらにまた、上記遺伝子の自然発生突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることもできる。グリホセート耐性を付与するEPSPS遺伝子を発現する植物は、既に記述されている。グリホセート耐性を付与する別の遺伝子（例えば、デカルボキシラーゼ遺伝子）を発現する植物は、既に記述されている。

【0162】

別の除草剤抵抗性植物は、例えば、酵素グルタミンシンターゼを阻害する除草剤（例えば、ピアラホス、ホスフィノトリシン又はグルホシネート）に対して耐性にされている植物である。そのような植物は、当該除草剤を解毒する酵素を発現させるか、又は、阻害に対して抵抗性を示す突然変異グルタミンシンターゼ酵素を発現させることによって、得ることができる。そのような有効な解毒酵素の1つの例は、ホスフィノトリシンアセチルトランスフェラーゼをコードする酵素である（例えば、ストレプトミセス属各種（*Streptomyces* species）に由来するbarタンパク質又はpatタンパク質）。外因性のホスフィノトリシンアセチルトランスフェラーゼを発現する植物は、記述されている。

【0163】

さらなる除草剤耐性植物は、さらにまた、酵素ヒドロキシフェニルピルビン酸ジオキシゲナーゼ（HPPD）を阻害する除草剤に対して耐性にされている植物である。ヒドロキシフェニルピルビン酸ジオキシゲナーゼ類は、パラ-ヒドロキシフェニルピルベート（HPP）がホモゲンチセートに変換される反応を触媒する酵素である。HPPD阻害薬に対して耐性を示す植物は、WO 96/38567、WO 99/24585、WO 99/24586、WO 2009/144079、WO 2002/046387又はUS 6,768,044に記述されているように、自然発生抵抗性HPPD酵素をコードする遺伝子を用いて、又は、突然変異HPPD酵素若しくはキメラHPPD酵素をコードする遺

10

20

30

40

50

伝子を用いて、形質転換させることができる。HPPD阻害薬に対する耐性は、さらにまた、HPPD阻害薬による天然HPPD酵素の阻害にもかかわらずホモゲンチセートを形成させることが可能な特定の酵素をコードする遺伝子を用いて植物を形質転換させることによって得ることができる。そのような植物は、WO 99/34008及びWO 02/36787に記述されている。HPPD阻害薬に対する植物の耐性は、さらにまた、WO 2004/024928に記述されているように、HPPD耐性酵素をコードする遺伝子に加えてプレフェナートデヒドロゲナーゼ酵素をコードする遺伝子を用いて植物を形質転換させることによって改善することもできる。さらに、植物は、そのゲノムの中にHPPD阻害薬を代謝又は分解する酵素（例えば、CYP450酵素）をコードする遺伝子を挿入することによって、HPPD阻害薬に対してさらに耐性にするができる（WO 2007/103567及びWO 2008/150473を参照されたい）。

10

【0164】

別の除草剤抵抗性植物は、アセトラクテートシンターゼ（ALS）阻害薬に対して耐性にされている植物である。既知ALS阻害薬としては、例えば、スルホニル尿素系除草剤、イミダゾリノン系除草剤、トリアゾロピリミジン系除草剤、ピリミジニルオキシ（チオ）ベンゾエート系除草剤、及び／又は、スルホニルアミノカルボニルトリアゾリノン系除草剤などがある。ALS酵素（「アセトヒドロキシ酸シンターゼ（AHAS）」としても知られている）における種々の突然変異体は、例えば「Tranel and Wright（Weed Science 2002, 50:700-712）」などに記述されているように、種々の除草剤及び除草剤の群に対する耐性を付与することが知られている。スルホニル尿素耐性植物及びイミダゾリノン耐性植物の作製については、既に記述されている。さらなるスルホニル尿素耐性植物及びイミダゾリノン耐性植物についても、既に記述されている。

20

【0165】

イミダゾリノン類及び／又はスルホニル尿素類に対して耐性を示すさらなる植物は、誘導された突然変異誘発によって得ることができるか、当該除草剤の存在下での細胞培養における選抜によって得ることができるか、又は、突然変異育種によって得ることができる（cf. 例えば、ダイズに関しては、US 5,084,082、イネに関しては、WO 97/41218、テンサイに関しては、US 5,773,702及びWO 99/057965、レタスに関しては、US 5,198,599、又は、ヒマワリに関しては、WO 01/065922）。

30

【0166】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、非生物的ストレス因子に対して耐性を示す。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのようなストレス抵抗性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。特に有用なストレス耐性植物としては、以下のものなどがある：

（a） 植物細胞内又は植物体内におけるポリ（ADP-リボース）ポリメラーゼ（PARP）遺伝子の発現及び／又は活性を低減させることが可能な導入遺伝子を含んでいる植物；

40

（b） 植物又は植物細胞のPARGコード化遺伝子の発現及び／又は活性を低減させることが可能なストレス耐性を強化する導入遺伝子を含んでいる植物；

（c） ニコチンアミダーゼ、ニコチン酸ホスホリボシルトランスフェラーゼ、ニコチン酸モノヌクレオチドアデニルトランスフェラーゼ、ニコチンアミドアデニンジヌクレオチドシンターゼ又はニコチンアミドホスホリボシルトランスフェラーゼを包含するニコチンアミドアデニンジヌクレオチドサルベージ生合成経路の植物機能性酵素（plant-functional enzyme）をコードするストレス耐性を強化する導入遺伝子を含んでいる植物。

【0167】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテク

50

ノロジー法によって得られたもの)は、収穫された生産物の改変された量、品質及び／若しくは貯蔵安定性、並びに／又は、収穫された生産物の特定の成分の改変された特性を示す。例えば：

(1) 野生型の植物細胞又は植物において合成された澱粉と比較して、その物理化学的特性〔特に、アミロース含有量若しくはアミロース／アミロペクチン比、枝分かれ度、平均鎖長、側鎖分布、粘性挙動、ゲル化強度 (gelling strength)、澱粉粒子サイズ及び／又は澱粉粒子形態〕が改変されていて、特定の用途により適した変性澱粉を合成するトランスジェニック植物；

(2) 非澱粉炭水化物ポリマーを合成するか、又は、遺伝子組換えがなされていない野生型植物と比較して改変された特性を有する非澱粉炭水化物ポリマーを合成する、トランスジェニック植物〔その例は、ポリフルクトース（特に、イヌリン型及びレバン型のポリフルクトース）を産生する植物、 α -1, 4-グルカン類を産生する植物、 α -1, 6-分枝 α -1, 4-グルカン類を産生する植物、及び、アルテルナンを産生する植物である〕；

(3) ヒアルロナンを産生するトランスジェニック植物；

(4) 「可溶性固形物高含有量」、「低辛味」(LP) 及び／又は「長期保存」(LS) などの特性を有するトランスジェニック植物又はハイブリッド植物、例えば、タマネギ。

【0168】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、改変された繊維特性を有する植物（例えば、ワタ植物）である。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような改変された繊維特性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。そのような植物としては、以下のものなどがある：

(a) セルロースシンターゼ遺伝子の改変された形態を含んでいる植物（例えば、ワタ植物）；

(b) rsw2 相同核酸又は rsw3 相同核酸の改変された形態を含んでいる植物（例えば、ワタ植物）、例えば、スクロースリン酸シンターゼの発現が増大しているワタ植物；

(c) スクロースシンターゼの発現が増大している植物（例えば、ワタ植物）；

(d) 繊維細胞に基づいた原形質連絡のゲーティングのタイミングが（例えば、繊維選択的 β -1, 3-グルカナーゼのダウンレギュレーションを介して）改変されている植物（例えば、ワタ植物）；

(e) 反応性が（例えば、nodC を包含する N-アセチルグルコサミントランスフェラーゼ遺伝子の発現及びキチンシンターゼ遺伝子の発現を介して）改変されている繊維を有する植物（例えば、ワタ植物）。

【0169】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、改変されたオイルプロファイル特性を有する植物（例えば、ナタネ植物又は関連するアブラナ属植物）である。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような改変されたオイル特性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。そのような植物としては、以下のものなどがある：

(a) オレイン酸含有量が高いオイルを産生する植物（例えば、ナタネ植物）；

(b) リノレン酸含有量が低いオイルを産生する植物（例えば、ナタネ植物）；

(c) 飽和脂肪酸のレベルが低いオイルを産生する植物（例えば、ナタネ植物）。

【0170】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得ることが可能なもの）は、ウイルス抵抗性を示す（例えば、ジャガイモウイルス Y に対してウイルス抵抗性を示す (SY230 イベント及び SY233 イベ

10

20

30

40

50

ント、Tecnoplant, Argentina) } ジャガイモ又は病害 (例えば、ジャガイモ疫病) に対して抵抗性を示すジャガイモ (例えば、RB 遺伝子) 又は低減された低温誘発甘味を示すジャガイモ (これは、遺伝子 Nt-Enh、遺伝子 EE-INV を有している) 又は矮性表現型を示すジャガイモ (A-20 オキシダーゼ 遺伝子) などの植物である。

【0171】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種 (遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの) は、改変された種子脱粒特性を有する植物 (例えば、ナタネ植物又は関連するアブラナ属植物) である。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような改変された特性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。そのような植物としては、種子の脱粒が遅延されているか又は低減されている植物 (例えば、ナタネ植物) などがある。

【0172】

本発明に従って処理し得る特に有用なトランスジェニック植物は、アメリカ合衆国内における規制除外 (non-regulated status) についてのアメリカ合衆国農務省 (USDA) の動植物検疫局 (APHIS) に対する認可申請又は継続申請の対象である、形質転換イベント又は形質転換イベントの組合せを含んでいる植物である。これに関連する情報は、APHIS (4700 River Road Riverdale, MD 20737, USA) から、例えば、ウェブサイト「http://www.aphis.usda.gov/brs/not_reg.html」を介して、いつ何時でも入手することができる。本出願の出願日において、下記上方を有する申請は、APHIS によって許可されたか又は APHIS が審理中である：

ー 申請： 当該申請の識別番号。形質転換イベントについての技術的な記述は、APHIS からそのウェブサイトにおいて入手可能な特定の申請書類の中に、当該申請番号を介して見いだすことができる。それらの記述は、参照によって本明細書中に開示される。

【0173】

ー 申請の拡張： 範囲又は期間の拡張が請求されている、先の申請についての言及。

【0174】

ー 会社： 当該申請を提出している個人の名称。

【0175】

ー 規制物： 当該植物種。

【0176】

ー トランスジェニック表現型： 形質転換イベントによって植物に付与された形質。

【0177】

ー 形質転換イベント又はライン： 規制除外が請求されている 1 つ又は複数のイベント (場合により、ラインとも称される) の名称。

【0178】

ー APHIS 文書： 申請に関連して APHIS によって刊行されているか、又は、請求することで APHIS から入手することが可能な、種々の文書。

【0179】

本発明に従って処理し得る特に有用なトランスジェニック植物は、1 種類以上の毒素をコードする 1 種類以上の遺伝子を含んでいる植物、例えば、以下の商品名で販売されているトランスジェニック植物である：YIELD GARD (登録商標) (例えば、トウモロコシ、ワタ、ダイズ)、KnockOut (登録商標) (例えば、トウモロコシ)、BiteGard (登録商標) (例えば、トウモロコシ)、BT-Extra (登録商標) (例えば、トウモロコシ)、StarLink (登録商標) (例えば、トウモロコシ)、Bollgard (登録商標) (ワタ)、Nucotn (登録商標) (ワタ)、Nucotn 33B (登録商標) (ワタ)、NatureGard (登録商標) (例えば、トウモロコシ)、Protecta (登録商標) 及び NewLeaf (登録商標) (ジャガイモ)。挙げることができる除草剤耐性植物の例としては、以下の商品名で入手可能なトウモ

ロコシ品種、ワタ品種及びダイズ品種などがある：Roundup Ready（登録商標）（グリホセート類に対する耐性、例えば、トウモロコシ、ワタ、ダイズ）、Liberty Link（登録商標）（ホスフィノトリシンに対する耐性、例えば、ナタネ）、IMI（登録商標）（イミダゾリノン系に対する耐性）及びSCS（登録商標）（スルホニル尿素系に対する耐性、例えば、トウモロコシ）。挙げることができる除草剤抵抗性植物（除草剤耐性に関して慣習的な方法で品種改良された植物）としては、商品名Clearfield（登録商標）（例えば、トウモロコシ）で販売されている品種などがある。

【0180】

以下の実施例によって、本発明について例証する。

【実施例】

【0181】

実施例

本発明について下記実施例によって詳細に説明するが、これらの実施例は、決して本発明を限定するものではない。

【0182】

A. 合成実施例

(2R)-2-{[4-ブromo-1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}プロパン酸メチル(182): 0.40 g (1.01 mmol) の (2R)-2-{[1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}プロパン酸メチルを 14 mL の DMF に溶解させた溶液に 0.22 g (1.22 mmol) の N-ブロモスクシンイミドを添加し、その混合物を 65°C で 1 時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水の中に入れ、塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチル勾配（ヘプタン/酢酸エチル=95:5 で開始し、20 分以内でヘプタン/酢酸エチル=50:50 まで）を用いるシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z (%) = 473 (50) [M^+]、475 (50) [M^+] 及び比旋光度 $[\alpha] = +20^\circ$ を有する 0.36 g (71%) の生成物が得られた。

【0183】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): δ = 1.57 (d, 3H), 3.69 (s, 3H), 5.15 (q, 1H), 7.18 (m, 1H), 7.36 (m, 2H), 7.50 (m, 3H).

【0184】

出発化合物の合成:

(a) (2R)-2-{[1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}プロパン酸メチル: 0.50 g (1.54 mmol) の 1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-オールを 31 g のジメチルホルムアミドに溶解させた溶液に 0.75 g (2.31 mmol) の炭酸セシウムを添加し、その混合物を室温で 10 分間攪拌し、0.23 g (1.85 mmol) の (2S)-2-クロロプロパン酸メチルを添加し、その混合物を 80°C でさらに 1 時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水の中に入れ、塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチル（ヘプタン/酢酸エチル=95:5 で開始し、12 分以内でヘプタン/酢酸エチル=50:50 まで）を使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z = 395 [M^+] 及び比旋光度 $[\alpha] = +40^\circ$ を有する 0.46 g (72%) の生成物が得られた。

【0185】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): δ = 1.63 (d, 3H), 3.78 (s, 3H), 5.18 (q, 1H), 6.03 (s, 1H), 6.91 (m, 1H), 7.08 (m, 4H), 7.16 (m, 1H).

【0186】

(b) 1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-

10

20

30

40

50

1H-ピラゾール-3-オール: 4.95 g (9.64 mmol) の N'-(2,5-ジフルオロフェニル)-3-(3,4-ジフルオロフェニル)プロパー-2-インヒドラジドを 10 mL の DMF に溶解させた溶液に 0.15 g (0.77 mmol) のヨウ化銅 (I) を添加し、その混合物を 80 °C で 1 時間攪拌した。ヘプタン/酢酸エチル (ヘプタン/酢酸エチル = 95 : 5 で開始し、15 分以内でヘプタン/酢酸エチル = 20 : 80 まで) を使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 $m/z = 309 [M^+]$ を有する 1.06 g (28%) の生成物が得られた。

【0187】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, d_6 -DMSO): $\delta = 6.09$ (s, 1H), 7.02 (m, 1H), 7.40 (m, 4H), 7.50 (m, 1H), 10.41 (s, 1H).

【0188】

(c) N'-(2,5-ジフルオロフェニル)-3-(3,4-ジフルオロフェニル)プロパー-2-インヒドラジド: 2.14 g (11.75 mmol) の 3-(3,4-ジフルオロフェニル)プロパー-2-イン酸を 20 mL のテトラヒドロフランに溶解させた溶液に 1.86 g (12.92 mmol) の (2,5-ジフルオロフェニル)ヒドラジン及び 5.94 g (58.75 mmol) のトリエチルアミンを順次添加した。11.22 g (17.62 mmol) のプロパンホスホン酸無水物 (T3P、テトラヒドロフラン中の 50% 溶液) を滴下して加え、その混合物を室温で 1 時間攪拌した。その反応混合物を水に注ぎ入れ、酢酸メチルで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸マグネシウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去して、4.97 g (80%) の油性生成物 (HPLC/MS 純度 = 80%、 $m/z = 309 [M^+]$) が得られた。これは、精製することなくさらに変換させた。

【0189】

(d) 3-(3,4-ジフルオロフェニル)プロパー-2-イン酸: アルゴン雰囲気下、30 mL の乾燥テトラヒドロフランの中の 5.00 g (20.83 mmol) の 1,2-ジフルオロ-4-ヨードベンゼンに以下のものを順次添加した: 1.46 g (20.83 mmol) のプロピオール酸、0.29 g (0.42 mmol) のビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム (II) ジクロリド、0.16 g (0.83 mmol) のヨウ化銅 (I)、及び、7.38 g (72.92 mmol) のジイソプロピルアミン。その混合物を室温で 2 時間攪拌し、その反応混合物を水に添加し、15.00 mL の 2 N 塩酸を添加し、酢酸エチルで繰り返し抽出した。その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、減圧下で濃縮した。ヘプタン/酢酸エチル (ヘプタン/酢酸エチル = 95 : 5 で開始し、15 分以内でヘプタン/酢酸エチル = 40 : 60 まで) を使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 $m/z = 183 [M^+]$ を有する 2.89 g (76%) の生成物が得られた。

【0190】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, d_6 -DMSO): $\delta = 7.56$ (m, 2H), 7.86 (m, 1H), 13.95 (bs, 1H).

【0191】

(2R)-2-{[4-シアノ-1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}プロパン酸メチル (I-185): 5 mL のジメチルアセトアミドの中の 0.18 g (0.37 mmol) の (2R)-2-{[4-ブromo-1-(2,5-ジフルオロフェニル)-5-(3,4-ジフルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}プロパン酸メチル (I-182) と 0.04 g (0.35 mmol) のシアン化亜鉛と 0.04 g (0.04 mmol) のテトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウムからなる混合物を、アルゴン雰囲気下、マイクロ波オープン内で 40 分間 180 °C に加熱した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水/塩化メチレンの中に入れ、その水相を塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチル勾配 (ヘプタン/酢酸エチル = 95 : 5 で開始し、15 分以内でヘプタン/酢酸エチル = 60 : 40 まで) を使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した

後、 $m/z = 420 [M^+]$ 及び比旋光度 $[\alpha] = +17^\circ$ を有する 0.11 g (67%) の生成物が得られた。

【0192】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz , CDCl_3): $\delta = 1.68$ (d, 3H), 3.78 (s, 3H), 5.18 (q, 1H), 7.12 (m, 6H).

【0193】

2- { [4-クロロ-5-(3, 5-ジフルオロフェニル)-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパン酸メチル (I-165): 150.0 mg (0.35 mmol) の 2- [(4-クロロ-5-ヨード-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] プロパン酸メチルと 83.0 mg (0.53 mmol) の (3, 5-ジフルオロフェニル) ボロン酸と 12.3 mg (0.02 mmol) のビス(トリフェニルホスフィン) パラジウム (II) ジクロリドと 228.4 mg (0.70 mmol) の炭酸セシウム (2.5 モル水溶液) と 4.4 mL の 1, 2-ジメトキシエタンからなる反応混合物を 3 時間 80°C に加熱した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水/酢酸エチルの中に入れ、その水相を酢酸エチルで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z ($\%$) = 393 (76) [M^+]、 395 (24) [M^+] を有する 0.11 g (67%) の生成物が得られた。

【0194】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz , CDCl_3): $\delta = 1.69$ (d, 3H), 3.79 (s, 3H), 5.24 (q, 1H), 6.82 (m, 3H), 7.12 (m, 2H), 7.29 (m, 3H).

【0195】

出発化合物の合成:

(a) 2- [(4-クロロ-5-ヨード-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] プロパン酸メチル: 2.80 g (9.47 mmol) の 2- [(5-アミノ-4-クロロ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] プロパン酸メチルを 56 mL のアセトニトリルに溶解させた溶液に 10.14 g (37.87 mmol) のジヨードメタン及び 2.22 g (18.94 mmol) の亜硝酸イソペンチルを順次添加し、その混合物を 30 分間 50°C に加熱した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水/酢酸エチルの中に入れ、その水相を酢酸エチルで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z ($\%$) = 407 (76) [M^+]、 409 (24) [M^+] を有する 2.59 g (64%) の黄色がかった固体が得られた。

【0196】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz , CDCl_3): $\delta = 1.65$ (d, 3H), 3.75 (s, 3H), 5.17 (q, 1H), 7.41 (m, 2H), 7.45 (m, 3H).

【0197】

(b) 2- [(5-アミノ-4-クロロ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] プロパン酸メチル: 0.80 g (2.76 mmol) の 2- [(5-アミノ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル) オキシ] プロパン酸メチルを 5.0 mL のジメチルホルムアミドに溶解させた溶液に 0.44 g (3.31 mmol) の N-クロロスクシンイミドを添加し、その混合物を室温で 30 分間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水/塩化メチレンの中に入れ、その水相を塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z ($\%$) = 296 (76) [M^+]、 298 (24) [M^+] を有する 0.50 g (59%) の無色の固体が得られた。

【0198】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz , CDCl_3): $\delta = 1.64$ (d, 3H), 3.76 (s, 3H), 3.91 (bs, 2H), 5.20

(q, 1H), 7,30 (m, 1H), 7,45 (m, 4H).

【0199】

(c) 2-[(5-アミノ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル)オキシ]プロパン酸メチル: 0.20 g (1.09 mmol) の5-アミノ-1-フェニル-1H-ピラゾール-3-オールを5.0 mLのジメチルホルムアミドに溶解させた溶液に0.53 g (1.63 mmol) の炭酸セシウムを添加し、その混合物を室温で10分間攪拌し、0.22 g (1.30 mmol) の2-ブロモプロパン酸メチルを添加し、その混合物を室温で2時間攪拌した。その混合物を濾過し、その濾液を減圧下で濃縮し、その残渣をジメチルエーテルと一緒に攪拌した。これによって、 $m/z = 262 [M^+]$ を有する0.19 g (64%) の結晶質生成物が得られた。

10

【0200】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): $\delta = 1,59$ (d, 3H), 3,77 (s, 3H), 3,80 (bs, 2H), 5,16 (q, 1H), 5,20 (s, 1H), 7,26 (m, 1H), 7,45 (m, 2H), 7,49 (m, 2H).

【0201】

{[4-クロロ-1-(2-フルオロフェニル)-5-(5-フルオロ-2-チエニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}酢酸メチル (I-094): 85.0 mg (0.24 mmol) の{[1-(2-フルオロフェニル)-5-(5-フルオロ-2-チエニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}酢酸メチルを3.2 mLのジメチルホルムアミドに溶解させた溶液に42.0 mg (0.32 mmol) のN-クロロスクシンイミドを少量ずつ添加し、その混合物を室温で14時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水/塩化メチレンの中に入れ、その有機相を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液及び水で洗浄し、その水相を合して塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。これによって、 m/z (%) = 385 (76) $[M^+]$ 、387 (24) $[M^+]$ を有する78 g (67%) の生成物が得られた。

20

【0202】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): $\delta = 3,79$ (s, 3H), 4,90 (s, 2H), 6,38 (d, 2H), 6,72 (d, 2H), 7,16 (t, 1H), 7,24 (m, 1H), 7,41 (m, 2H).

【0203】

出発化合物の合成:

30

(a) {[1-(2-フルオロフェニル)-5-(5-フルオロ-2-チエニル)-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}酢酸メチル: アルゴン雰囲気下、0.40 g (1.06 mmol) の{[1-(2-フルオロフェニル)-5-ヨード-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}酢酸メチルを6.1 mLのジオキサンの溶液に以下のものを順次添加した: 37.0 mg (0.05 mmol) のビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド、0.24 g (1.06 mmol) の2-(5-フルオロ-2-チエニル)-4,4,5,5-テトラメチル-1,3,2-ジオキサボロラン、0.44 g (3.19 mmol) の炭酸カリウム、0.4 mLの水。その混合物を6時間環流しながら加熱した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水/塩化メチレンの中に入れ、その水相を塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z (%) = 351 $[M^+]$ を有する0.18 g (38%) の生成物が得られた。

40

【0204】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): $\delta = 3,80$ (s, 3H), 4,84 (s, 2H), 6,06 (s, 1H), 6,31 (d, 2H), 6,45 (d, 2H), 7,18 (t, 1H), 7,28 (m, 1H), 7,44 (m, 2H).

【0205】

(b) {[1-(2-フルオロフェニル)-5-ヨード-1H-ピラゾール-3-イル]オキシ}酢酸メチル: 2.69 g (8.85 mmol) の1-(2-フルオロフェニル)-5-ヨード-1H-ピラゾール-3-オールを197 mLのアセトニトリルに溶解

50

させた溶液に 3.67 g (26.54 mmol) の炭酸カリウムを添加し、その混合物を室温で 10 分間攪拌し、1.35 g (8.85 mmol) のブromo酢酸メチルを添加し、その混合物を 8 時間環流しながら攪拌した。その混合物を濾過し、その濾液を減圧下で濃縮し、その残渣を取って水／塩化メチレンの中に入れ、その水相を塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン／酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z (%) = 377 [M^+] を有する 1.81 g (54%) の生成物が得られた。

【0206】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): δ = 3,78 (s, 3H), 4,80 (s, 2H), 6,18 (s, 1H), 7,22 (m, 2H), 7,39 (m, 1H), 7,45 (m, 1H).

【0207】

(c) 1-(2-フルオロフェニル)-5-ヨード-1H-ピラゾール-3-オール: 4.70 g (11.24 mmol) の 3-{[tert-ブチル(ジメチル)シリル]オキシ}-1-(2-フルオロフェニル)-5-ヨード-1H-ピラゾールを 105 mL のテトラヒドロフランに溶解させた溶液に 3.82 g (14.61 mmol) のテトラ-*n*-ブチルアンモニウムフルオリドを添加し、その混合物を室温で 4 時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水／酢酸エチルの中に入れ、その水相を酢酸エチルで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン／酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z (%) = 305 [M^+] を有する 2.37 g (69%) の生成物が得られた。

【0208】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): δ = 6,01 (s, 1H), 7,30 (m, 2H), 7,42 (m, 1H), 7,48 (m, 1H), 10,56 (bs, 1H).

【0209】

(d) 3-{[tert-ブチル(ジメチル)シリル]オキシ}-1-(2-フルオロフェニル)-5-ヨード-1H-ピラゾール: アルゴン下、6.00 g (20.52 mmol) の 3-{[tert-ブチル(ジメチル)シリル]オキシ}-1-(2-フルオロフェニル)-1H-ピラゾールを 98 mL のテトラヒドロフランに溶解させた溶液を 98 mL のテトラヒドロフランの中の 1.71 g (26.67 mmol) の *n*-ブチルリチウムと 2.70 g (26.67 mmol) のジイソプロピルアミンの混合物に添加し、その混合物を -78°C で 1 時間攪拌した。6.77 g (26.67 mmol) のヨウ素を 98 mL のテトラヒドロフランに溶解させた溶液を滴下して加え、その混合物を -78°C でさらに 1 時間攪拌した。その混合物を室温まで昇温させ、水を添加し、酢酸エチルで繰り返し抽出した。その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン／酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、 m/z (%) = 419 [M^+] を有する 4.72 g (55%) の生成物が得られた。

【0210】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): δ = 0,26 (s, 6H), 0,98 (s, 9H), 6,02 (s, 1H), 7,23 (m, 2H), 7,40 (m, 2H).

【0211】

(e) 3-{[tert-ブチル(ジメチル)シリル]オキシ}-1-(2-フルオロフェニル)-1H-ピラゾール: 20.00 g (112.26 mmol) の 1-(2-フルオロフェニル)-1H-ピラゾール-3-オールを 900 mL のジクロロメタンに溶解させた溶液に 21.05 g (208.1 mmol) のトリエチルアミン及び 15.32 g (101.64 mmol) の tert-ブチル(クロロ)ジメチルシランを順次添加し、その混合物を室温で 4 時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去して、 m/z = 293 [M^+] を有する 29.60 g (定量) の生成物が得られた。これは、精製することなくさらに変換させた。

【0212】

$^1\text{H-NMR}$ (400 MHz, CDCl_3): δ = 0,31 (s, 6H), 1,00 (s, 9H), 5,85 (d, 1H), 7,17

10

20

30

40

50

(m, 3H), 7,84 (m, 2H).

【0213】

2- { [4-ブロモ-5- (4-フルオロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパン酸メチル (I-132) : 1.10 g (2.91 mmol) の2- { [5- (4-フルオロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパン酸メチルを16 mLのDMFに溶解させた溶液に0.57 g (3.20 mmol) のN-ブロモスクシンイミドを添加し、その混合物を70℃で3時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水の中に入れ、塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、m/z (%) = 419 (50) [M⁺]、421 (50) [M⁺] を有する1.04 g (81%) の生成物が得られた。

10

【0214】

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ = 1,69 (d, 3H), 3,79 (s, 3H), 5,26 (q, 1H), 7,07 (m, 4H), 7,22 (m, 5H).

【0215】

出発化合物の合成: 当該出発化合物は、実施例No. I-182に記載されている方法で合成した。

【0216】

2- { [4-ブロモ-5- (4-フルオロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパン酸 (I-138)

20

1.00 g (2.27 mmol) の2- { [4-ブロモ-5- (4-フルオロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパン酸メチル (I-132) と0.73 g (18.25 mmol) の2N水酸化ナトリウム溶液と5 mLのテトラヒドロフランの混合物を室温で3時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、残った有機相を2N HClでpH2に調節した。沈澱した固体を減圧下40℃で乾燥させて、m/z (%) = 405 (50) [M⁺]、407 (50) [M⁺] を有する0.90 g (93%) の無色の固体が得られた。

【0217】

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ = 1,71 (d, 3H), 5,27 (q, 1H), 7,08 (m, 4H), 7,25 (m, 5H).

30

【0218】

N- (2- { [4-ブロモ-5- (4-フルオロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパノイル) グリシン酸メチル (III-056)

アルゴン下、0.15 g (0.35 mmol) の2- { [4-ブロモ-5- (4-フルオロフェニル) -1-フェニル-1H-ピラゾール-3-イル] オキシ} プロパン酸 (I-138) を4 mLのテトラヒドロフランに溶解させた溶液に以下のものを順次添加した: 2.13 g (1.68 mmol) の2-メトキシ-2-オキソエタンアミニウムクロリド、1.71 g (1.68 mmol) のプロパンホスホン酸無水物 (T3P、テトラヒドロフラン中の50%溶液)、及び、0.34 g (3.36 mmol) のトリエチルアミン。その混合物を50℃で6時間攪拌した。溶媒を減圧下で除去し、その残渣を取って水の中に入れ、塩化メチレンで繰り返し抽出し、その有機相を合して硫酸ナトリウムで脱水し、溶媒を減圧下で除去した。ヘプタン/酢酸エチルを使用するシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製した後、m/z (%) = 478 (50) [M⁺]、476 (50) [M⁺] を有する0.14 g (79%) の無色の油状物が得られた。

40

【0219】

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ = 1,71 (d, 3H), 3,77 (s, 3H), 4,12 (m, 2H), 5,35 (q, 1H), 7,08 (m, 2H), 7,15 (m, 3H), 7,26 (m, 5H).

【0220】

選択された実施例のNMRデータ:

50

一般式 (I) で表される化合物の選択された例の ^1H NMR データは、2 種類の異なる方法で、即ち、(a) NMR の慣習的な評価及び解釈で、又は、(b) 以下においてさらに説明されている方法による ^1H NMR ピークリストの形態で、示されている。

【0221】

(a) NMR の慣習的な解釈

I-094: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 3,79$ (s, 3H), 4,90 (s, 2H), 6,38 (d, 2H), 6,72 (d, 2H), 7,16 (t, 1H), 7,24 (m, 1H), 7,41 (m, 2H).

I-125: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,70$ (d, 3H), 3,79 (s, 3H), 5,23 (q, 1H), 6,88 (m, 1H), 7,0 (m, 3H), 7,17 (m, 2H), 7,27 (m, 1H), 7,40 (m, 1H).

I-132: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,69$ (d, 3H), 3,79 (s, 3H), 5,26 (q, 1H), 7,07 (m, 4H), 7,22 (m, 5H).

I-138: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,71$ (d, 3H), 5,27 (q, 1H), 7,08 (m, 4H), 7,25 (m, 5H).

I-143: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,28$ (t, 3H), 4,27 (q, 2H), 4,98 (s, 2H), 7,11 (m, 5H), 7,33 (t, 1H), 7,40 (m, 1H).

I-145: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,69$ (d, 3H), 3,79 (s, 3H), 5,26 (q, 1H), 7,08 (m, 4H), 7,25 (m, 5H).

I-165: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,69$ (d, 3H), 3,79 (s, 3H), 5,24 (q, 1H), 6,82 (m, 3H), 7,12 (m, 2H), 7,29 (m, 3H).

I-181: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 3,81$ (s, 3H), 4,91 (s, 2H), 7,00 (m, 3H), 7,13 (m, 3H).

I-182: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,57$ (d, 3H), 3,69 (s, 3H), 5,15 (q, 1H), 7,18 (m, 1H), 7,36 (m, 2H), 7,50 (m, 3H).

I-183: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 3,81$ (s, 3H), 4,91 (s, 2H), 7,07 (m, 1H), 7,13 (m, 3H), 7,21 (m, 2H).

I-184: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,67$ (d, 3H), 3,77 (s, 3H), 5,22 (q, 1H), 6,98 (m, 1H), 7,02 (m, 1H), 7,12 (m, 2H), 7,17 (t, 1H), 7,32 (m, 2H).

I-185: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,68$ (d, 3H), 3,78 (s, 3H), 5,18 (q, 1H), 7,12 (m, 6H).

III-056: ^1H -NMR (400 MHz, CDCl_3):

$\delta = 1,71$ (d, 3H), 3,77 (s, 3H), 4,12 (m, 2H), 5,35 (q, 1H), 7,08 (m, 2H), 7,15 (m, 3H), 7,26 (m, 5H).

【0222】

(b) NMR ピークリスト法

選択された実施例の ^1H NMR データは、 ^1H -NMR ピークリストの形態でも示され得る。各シグナルピークに対して、最初に δ 値 (ppm) が記載され、次に、丸括弧内にシグナル強度が記載されている。種々のシグナルピークに関する δ 値-シグナル強度数の対が、セミコロンで互いに区切られて記載されている。

【0223】

従って、1つの例に対するピークリストは、以下の形態をとる：

δ_1 (強度₁) ; δ_2 (強度₂) ; . . . ; δ_i (強度_i) ; . . . ; δ_n (強度_n) 。

【0224】

先鋭なシグナルの強度は、NMR スペクトルの印刷された例におけるシグナルの高さ (cm) と相関し、シグナル強度の真の比率を示している。幅が広いシグナルの場合、数種類のピーク又は該シグナルの中央及びそれらの相対的強度が、当該スペクトルの中の最も

強いシグナルとの比較で示され得る。

【0225】

^1H -NMRスペクトルの化学シフトを校正するために、テトラメチルシランを使用するか、及び／又は、特にスペクトルがDMSO中で測定される場合には、その溶媒の化学シフトを使用する。従って、NMRピークリストの中には、テトラメチルシランのピークは存在し得るが、必ずしも存在する必要はない。

【0226】

^1H NMRピークのリストは、従来の ^1H NMRのプリントアウトと類似しており、従って、通常、NMRの慣習的な解釈で記載される全てのピークを含んでいる。

【0227】

さらに、それらは、従来の ^1H NMRのプリントアウトのように、溶媒のシグナル、目標化合物の立体異性体（これも、同様に、本発明によって提供される）のシグナル及び／又は不純物のピークのシグナルも示し得る。

【0228】

溶媒及び／又は水のデルタ範囲内における化合物シグナルの記録において、 ^1H NMRピークの本発明者らによるリストは、標準的な溶媒のピーク、例えば、DMSO- D_6 中のDMSOのピーク及び水のピーク（これらは、通常、平均して高い強度を有している）を示している。

【0229】

目標化合物の立体異性体のピーク及び／又は不純物のピークは、通常、平均して、目標化合物（例えば、90%を超える純度を有する目標化合物）のピークよりも低い強度を有している。

【0230】

そのような立体異性体及び／又は不純物は、特定の調製方法に対して特有であり得る。従って、それらのピークは、「副産物の指紋 (by-product fingerprints)」に関して、本発明者らの調製方法の再現性を確認するのに役立ち得る。

【0231】

目標化合物のピークを既知方法 (Mestrec、ACDシミュレーション、さらに、経験的に評価された期待値の使用) で計算する専門家は、必用に応じて、場合により付加的な強度フィルターを使用して、目標化合物のピークを分離することができる。この分離は、 ^1H NMRの慣習的な解釈における関連するピークのピッキングに類似しているであろう。

【0232】

^1H NMRピークリストに関するさらなる詳細については、「Research Disclosure Database Number 564025」の中に見いだすことができる。

【0233】

10

20

30

40

50

【表 4】

I-022: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.4060 (1.0); 7.4002 (1.6); 7.3929 (0.8); 7.3856 (1.8); 7.3822 (2.4); 7.3778 (1.4); 7.3706 (0.8); 7.3639 (2.0); 7.3608 (0.9); 7.3585 (0.8); 7.3502 (0.9); 7.3458 (3.0); 7.3283 (1.7); 7.3250 (1.2); 7.3188 (0.5); 7.3139 (2.6); 7.3116 (2.2); 7.3100 (2.3); 7.2988 (0.5); 7.2936 (1.4); 7.2889 (1.1); 7.2593 (32.9); 7.2236 (0.7); 7.2063 (0.9); 7.2039 (1.2); 7.0878 (0.7); 7.0850 (0.6); 7.0662 (0.7); 7.0628 (1.2); 7.0602 (0.8); 7.0415 (0.6); 7.0378 (0.6); 4.9164 (9.0); 3.8062 (16.0); 1.5424 (0.8); -0.0002 (12.9)	10
I-054: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3511 (0.6); 7.3467 (0.7); 7.3322 (1.4); 7.3244 (2.8); 7.3202 (2.8); 7.3139 (1.8); 7.3111 (1.5); 7.3064 (2.5); 7.3039 (2.4); 7.2988 (0.8); 7.2970 (1.0); 7.2940 (1.4); 7.2922 (1.0); 7.2845 (1.2); 7.2834 (1.2); 7.2793 (3.1); 7.2745 (2.3); 7.2702 (0.9); 7.2685 (1.0); 7.2637 (1.2); 7.2622 (1.3); 7.2582 (19.1); 7.2546 (1.2); 7.1584 (0.6); 7.1566 (0.6); 7.1550 (0.7); 7.1535 (0.6); 7.1356 (0.9); 7.0253 (0.7); 7.0220 (0.6); 7.0045 (0.6); 7.0006 (1.1); 6.9969 (0.7); 6.9795 (0.6); 6.9762 (0.5); 5.2961 (1.8); 4.9226 (8.9); 3.8029 (16.0); -0.0002 (7.2)	20
I-055: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3769 (0.6); 7.3623 (1.1); 7.3578 (1.4); 7.3433 (1.0); 7.3391 (1.2); 7.3310 (0.7); 7.3229 (0.5); 7.3107 (0.5); 7.2597 (20.0); 7.2089 (0.6); 7.2073 (0.7); 7.2056 (0.7); 7.1896 (0.9); 7.1879 (1.0); 7.1862 (1.0); 7.1487 (0.6); 7.1434 (0.6); 7.1390 (0.6); 7.1300 (0.6); 7.1246 (0.7); 7.1216 (0.7); 7.1172 (1.2); 7.1142 (0.7); 7.1029 (0.6); 7.0976 (1.3); 7.0929 (0.9); 7.0725 (0.7); 7.0558 (0.7); 7.0525 (0.6); 7.0351 (0.6); 7.0311 (1.0); 7.0274 (0.6); 7.0099 (1.0); 7.0064 (1.0); 6.9993 (0.6); 6.9956 (0.7); 5.2980 (4.1); 4.9117 (9.0); 3.8010 (16.0); 2.9549 (0.6); 2.8837 (0.5); 2.8825 (0.5); 1.5420 (2.6); -0.0002 (7.6)	30
I-056: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.2897 (0.6); 7.2878 (0.8); 7.2826 (3.3); 7.2785 (1.1); 7.2770 (1.3); 7.2737 (0.9); 7.2689 (3.9); 7.2680 (4.0); 7.2662 (4.6); 7.2593 (62.1); 7.2518 (2.2); 7.2474 (6.0); 7.2386 (1.2); 7.2345 (2.3); 7.2307 (1.4); 7.2237 (0.6); 7.2174 (1.5); 7.1987 (0.5); 7.1342 (1.6); 7.1324 (2.9); 7.1285 (4.0); 7.1228 (1.0); 7.1156 (1.6); 7.1131 (1.2); 7.1112 (2.8); 7.1080 (2.2); 7.0752 (3.1); 7.0696	

10

20

30

40

50

(0.9); 7.0609 (0.5); 7.0582 (1.0); 7.0536 (4.5); 7.0483 (0.9); 7.0369 (0.8); 7.0315 (2.4); 4.9188 (13.3); 4.3060 (1.7); 4.2881 (5.4); 4.2703 (5.5); 4.2525 (1.8); 4.2304 (0.5); 1.5403 (16.0); 1.3199 (7.1); 1.3021 (14.6); 1.2925 (0.8); 1.2842 (7.0); 0.0080 (0.6); -0.0002 (22.6); -0.0085 (0.6)	
I-057: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5182 (1.7); 7.3087 (1.0); 7.3026 (0.8); 7.2985 (1.0); 7.2970 (1.1); 7.2929 (0.8); 7.2882 (1.3); 7.2857 (3.0); 7.2808 (4.1); 7.2771 (2.0); 7.2724 (3.7); 7.2691 (3.1); 7.2660 (4.4); 7.2593 (288.4); 7.2536 (6.4); 7.2500 (4.5); 7.2456 (0.8); 7.2431 (1.4); 7.2370 (1.3); 7.2354 (1.3); 7.2265 (0.6); 7.1557 (0.6); 7.1515 (0.8); 7.1452 (2.8); 7.1410 (3.4); 7.1351 (1.3); 7.1311 (0.7); 7.1287 (1.4); 7.1241 (2.8); 7.1207 (2.3); 7.0826 (3.2); 7.0770 (1.0); 7.0683 (0.6); 7.0657 (1.0); 7.0612 (4.9); 7.0558 (1.0); 7.0443 (0.8); 7.0390 (2.5); 6.9953 (1.7); 4.9952 (16.0); 0.3308 (0.6); 0.2375 (0.6); 0.0079 (3.5); -0.0002 (130.0); -0.0085 (3.9)	10
I-058: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3327 (0.7); 7.3289 (1.8); 7.3248 (1.5); 7.3208 (5.1); 7.3166 (5.2); 7.3101 (3.8); 7.3056 (3.4); 7.3028 (4.2); 7.3006 (3.6); 7.2942 (1.7); 7.2903 (2.2); 7.2868 (2.1); 7.2838 (1.2); 7.2818 (1.3); 7.2796 (1.8); 7.2750 (1.5); 7.2734 (1.4); 7.2683 (5.0); 7.2638 (5.2); 7.2592 (30.7); 7.2518 (1.8); 7.2491 (1.8); 7.2471 (1.7); 7.2435 (2.1); 7.1409 (1.0); 7.1392 (1.1); 7.1375 (1.2); 7.1181 (1.7); 7.1023 (0.7); 7.1006 (0.8); 7.0990 (0.7); 7.0117 (1.2); 7.0084 (1.1); 6.9909 (1.1); 6.9871 (1.8); 6.9834 (1.1); 6.9659 (1.0); 6.9627 (0.9); 4.8954 (16.0); 4.2908 (2.0); 4.2729 (6.3); 4.2551 (6.4); 4.2373 (2.1); 2.1688 (1.5); 1.5705 (3.9); 1.3044 (7.6); 1.2866 (15.5); 1.2687 (7.5); 1.2565 (0.6); -0.0002 (10.8)	20
I-059: ¹H-NMR(601.6 MHz, CD₃CN): δ= 7.4173 (0.4); 7.4144 (0.6); 7.4090 (0.5); 7.4059 (0.8); 7.4049 (0.8); 7.4007 (1.9); 7.3968 (1.2); 7.3954 (0.9); 7.3935 (1.1); 7.3924 (1.1); 7.3874 (2.5); 7.3847 (1.6); 7.3800 (1.0); 7.3743 (1.3); 7.3717 (0.9); 7.3492 (0.8); 7.3468 (1.1); 7.3407 (2.5); 7.3385 (5.6); 7.3354 (2.9); 7.3292 (1.9); 7.3266 (3.6); 7.3256 (3.4); 7.3213 (0.7); 7.3201 (0.8); 7.3172 (1.1); 7.3143 (0.5); 7.3116 (0.7); 7.2409 (3.8); 7.2398 (4.1); 7.2387 (4.1); 7.2265 (4.1); 7.2142 (0.9); 7.2132 (0.9); 7.1210 (1.0); 7.1194 (1.0); 7.1071 (1.0); 7.1041 (1.4); 7.1019 (1.1); 7.0900 (1.0); 7.0882 (1.0); 4.8184 (16.0); 4.1925 (2.0); 4.1806 (6.0); 4.1688 (6.1); 4.1569 (2.0); 2.0980 (6.3); 1.9225 (0.4); 1.9182 (0.5); 1.9145 (3.5); 1.9104 (6.2); 1.9062 (9.3); 1.9022 (6.5); 1.8981 (3.3); 1.2109 (7.1); 1.1990 (14.5); 1.1872 (7.1)	30
I-060: ¹H-NMR(601.6 MHz, CD₃CN): δ= 7.4611 (0.5); 7.4582 (0.7); 7.4511 (1.3); 7.4483 (1.9); 7.4467 (1.5); 7.4372 (3.5); 7.4242 (3.7); 7.4191 (1.0); 7.4150 (1.6); 7.4124 (2.9); 7.4096 (2.0); 7.4065 (3.0); 7.4040 (1.8); 7.3968	40

(1.9); 7.3943 (4.6); 7.3862 (0.8); 7.3833 (1.6); 7.3797 (1.3); 7.3410 (3.9); 7.3388 (4.2); 7.3360 (2.1); 7.3312 (1.2); 7.3278 (3.0); 7.3250 (2.4); 7.2759 (1.2); 7.2635 (1.9); 7.2621 (1.8); 7.2511 (0.8); 7.1598 (1.2); 7.1579 (1.0); 7.1454 (1.2); 7.1428 (1.6); 7.1278 (0.9); 4.8860 (16.0); 4.4421 (0.6); 4.2520 (2.0); 4.2401 (5.9); 4.2283 (5.9); 4.2165 (2.0); 4.1374 (0.4); 4.1257 (0.4); 2.1602 (655.3); 2.1329 (0.4); 2.0871 (0.5); 2.0831 (0.8); 2.0790 (1.2); 2.0749 (0.8); 2.0707 (0.4); 1.9927 (4.6); 1.9846 (10.1); 1.9804 (13.4); 1.9766 (81.7); 1.9725 (144.5); 1.9684 (199.9); 1.9642 (135.7); 1.9601 (71.1); 1.8618 (0.4); 1.8577 (0.8); 1.8536 (1.2); 1.8496 (0.8); 1.8454 (0.4); 1.3017 (1.4); 1.2717 (7.1); 1.2599 (14.8); 1.2481 (7.0); 1.1792 (0.5); 1.1673 (1.0); 1.1555 (0.5); 0.0606 (0.4)	10
I-061: ¹H-NMR(300.1 MHz, CDCl₃): δ= 7.4164 (0.3); 7.4114 (0.3); 7.4078 (0.5); 7.4023 (0.5); 7.3941 (1.2); 7.3829 (1.1); 7.3748 (1.9); 7.3719 (2.1); 7.3652 (2.3); 7.3613 (2.1); 7.3576 (1.6); 7.3508 (2.0); 7.3467 (2.0); 7.3447 (2.0); 7.3380 (3.2); 7.3351 (2.7); 7.3242 (1.4); 7.3164 (2.0); 7.3078 (3.2); 7.2993 (1.9); 7.2967 (1.4); 7.2883 (0.6); 7.2808 (1.1); 7.2741 (0.8); 7.2602 (3.6); 7.2124 (0.8); 7.2103 (0.8); 7.1861 (1.1); 7.1609 (0.4); 7.1591 (0.4); 7.0860 (0.7); 7.0824 (0.6); 7.0580 (0.7); 7.0534 (1.1); 7.0491 (0.7); 7.0254 (0.6); 7.0219 (0.5); 5.2451 (0.5); 5.2218 (1.6); 5.1986 (1.7); 5.1754 (0.5); 3.7711 (16.0); 2.0412 (0.9); 1.6902 (6.7); 1.6670 (6.6); 1.5789 (1.0); 1.2570 (0.6); -0.0001 (2.8)	20
I-062: ¹H-NMR(300.1 MHz, CDCl₃): δ= 7.2640 (0.6); 7.2493 (1.7); 7.2200 (4.6); 7.1952 (7.9); 7.1898 (8.1); 7.1777 (7.5); 7.0497 (1.4); 7.0249 (1.9); 6.9986 (0.8); 6.9475 (1.1); 6.9158 (1.6); 6.8870 (0.9); 4.8826 (9.9); 3.7244 (16.0); 3.6578 (15.8); 1.5397 (0.4); 1.1862 (0.6); 0.0002 (5.8); -0.0709 (2.0)	
I-063: ¹H-NMR(300.1 MHz, CDCl₃): δ= 7.3913 (0.6); 7.3857 (0.7); 7.3649 (1.5); 7.3594 (1.9); 7.3263 (6.4); 7.3138 (6.3); 7.3073 (3.8); 7.2861 (1.8); 7.2600 (18.4); 7.2391 (0.4); 7.2246 (0.4); 7.1861 (1.0); 7.1607 (1.4); 7.1348 (0.6); 7.0591 (0.8); 7.0265 (1.3); 6.9982 (0.8); 4.9254 (9.2); 3.7975 (16.0); 3.1683 (5.1); 2.0437 (1.0); 1.5555 (6.5); 1.2822 (0.7); 1.2550 (4.4); 1.2349 (0.4); 0.8807 (0.3); 0.0696 (1.2); -0.0001 (14.4); -0.0108 (0.5)	30
I-064: ¹H-NMR(300.1 MHz, CDCl₃): δ= 7.6138 (0.3); 7.3225 (9.6); 7.2594 (49.0); 7.1697 (3.7); 7.0995 (2.9); 7.0707 (4.5); 7.0482 (1.9); 6.9081 (0.4); 5.2712 (0.7); 5.2470 (2.0); 5.2242 (1.9); 5.2028 (0.7); 3.7824 (16.0); 1.7600 (0.3); 1.6946 (8.0); 1.6712 (7.7); 1.6536 (0.7); 1.5499 (68.6); 1.3134 (0.4); 1.2583 (1.7); 0.8833 (0.3); 0.8586 (0.4); 0.0686 (4.2); -0.0006 (41.4)	
I-065: ¹H-NMR(300.1 MHz, CDCl₃):	40

δ= 7.2888 (0.4); 7.2713 (2.4); 7.2591 (19.5); 7.2537 (4.9); 7.2415 (6.3); 7.2347 (5.3); 7.2243 (2.9); 7.1085 (2.7); 7.0987 (1.8); 7.0942 (1.7); 7.0826 (2.0); 7.0758 (1.6); 7.0495 (2.2); 7.0207 (3.7); 6.9915 (1.7); 4.9778 (9.0); 3.8115 (16.0); 3.7362 (16.0); 2.0422 (0.6); 1.5567 (4.7); 1.2580 (0.7); 0.0106 (0.9); -0.0001 (14.4); -0.0110 (0.5)	
I-066: $^1\text{H-NMR}$(300.1 MHz, CDCl_3): δ= 7.3529 (1.6); 7.3352 (2.0); 7.3231 (2.6); 7.3129 (1.4); 7.3054 (2.8); 7.3002 (2.6); 7.2807 (2.6); 7.2740 (5.3); 7.2596 (44.7); 7.2331 (0.8); 7.2189 (0.4); 7.2069 (0.4); 7.1766 (2.5); 7.1697 (2.3); 7.1491 (1.9); 7.1440 (1.6); 7.0685 (0.4); 7.0591 (2.0); 7.0302 (3.4); 7.0009 (1.6); 5.5336 (0.3); 4.9415 (8.8); 3.8057 (16.0); 3.1592 (5.4); 1.5404 (12.3); 1.5124 (2.2); 1.2547 (2.6); 0.0106 (1.8); -0.0001 (35.9); -0.0110 (1.6)	10
I-067: $^1\text{H-NMR}$(300.1 MHz, CDCl_3): δ= 7.4439 (0.4); 7.4248 (0.5); 7.4170 (0.8); 7.3992 (0.7); 7.3969 (0.7); 7.3904 (0.7); 7.3714 (0.6); 7.3061 (0.5); 7.2854 (0.6); 7.2785 (1.1); 7.2600 (12.0); 7.2516 (1.0); 7.2310 (0.7); 7.1975 (0.4); 7.1942 (0.6); 7.1890 (0.5); 7.1858 (0.6); 7.1695 (0.8); 7.1664 (1.1); 7.1583 (2.0); 7.1554 (1.4); 7.1532 (1.5); 7.1499 (0.9); 7.1413 (0.5); 7.1380 (0.6); 7.1331 (1.2); 7.1296 (1.4); 7.1279 (1.3); 7.1245 (0.8); 7.0701 (0.5); 7.0670 (0.5); 7.0618 (0.6); 7.0587 (0.6); 7.0425 (0.8); 7.0395 (0.8); 7.0342 (1.0); 7.0311 (1.0); 7.0250 (0.8); 7.0191 (0.9); 7.0158 (1.0); 7.0117 (1.0); 7.0066 (0.6); 7.0034 (0.6); 6.9949 (1.4); 6.9881 (1.8); 6.9809 (1.1); 6.9640 (0.7); 6.9569 (1.0); 6.9494 (0.6); 6.9025 (1.0); 6.8987 (0.8); 6.8779 (0.8); 6.8757 (0.8); 6.8722 (0.8); 5.2616 (0.5); 5.2383 (1.6); 5.2151 (1.6); 5.1918 (0.5); 3.7919 (16.0); 1.7023 (6.5); 1.6790 (6.4); 1.5453 (6.2); 0.0107 (0.4); -0.0001 (9.8); -0.0037 (1.6); -0.0111 (0.3)	20
I-068: $^1\text{H-NMR}$(300.1 MHz, CDCl_3): δ= 7.3751 (0.4); 7.3550 (0.6); 7.3481 (0.9); 7.3287 (1.0); 7.3222 (0.8); 7.3024 (0.8); 7.2600 (16.6); 7.2204 (0.4); 7.1935 (1.0); 7.1726 (1.2); 7.1668 (0.8); 7.1439 (1.2); 7.1204 (1.0); 7.1149 (1.0); 7.0921 (0.5); 7.0868 (0.5); 7.0642 (1.5); 7.0354 (1.9); 7.0050 (0.9); 7.0004 (1.0); 6.9734 (0.6); 6.9678 (0.8); 6.9651 (0.7); 6.9399 (2.2); 6.9273 (0.6); 6.9100 (1.4); 6.9020 (1.2); 6.8951 (0.6); 6.8348 (1.2); 6.8313 (1.1); 6.8061 (1.1); 4.9754 (8.1); 3.8212 (16.0); 3.7329 (15.7); 1.5501 (4.4); 1.2572 (0.4); 0.0107 (0.6); -0.0001 (13.9); -0.0112 (0.5)	30
I-069: $^1\text{H-NMR}$(300.1 MHz, CDCl_3): δ= 7.3714 (0.3); 7.3491 (0.8); 7.3309 (0.8); 7.3210 (0.8); 7.3088 (0.4); 7.3010 (0.7); 7.2602 (29.7); 7.2400 (1.2); 7.2167 (1.0); 7.2109 (0.8); 7.1892 (0.7); 7.1210 (4.2); 7.0922 (2.7); 7.0652 (0.7); 6.9931 (2.2); 6.9679 (2.1); 6.9634 (2.3); 6.9441 (0.9); 6.9021 (1.5); 6.8773 (1.0); 4.9367 (8.9); 3.8143 (16.0); 3.1835 (5.5); 2.0440 (0.9); 1.5530 (16.2); 1.2826 (0.6); 1.2549 (3.6); 1.2353 (0.3); 0.0700 (0.4); -0.0001 (21.8)	40

10

20

30

40

50

I-070: ¹H-NMR(400.4 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4457 (6.7); 7.4389 (7.8); 7.4292 (7.0); 7.3610 (1.9); 7.3435 (5.3); 7.3245 (4.8); 7.3061 (5.1); 7.3034 (5.7); 7.3003 (7.0); 7.2914 (5.8); 7.2857 (5.4); 7.2677 (1.1); 7.1494 (4.0); 7.1457 (6.6); 7.1255 (4.8); 4.9533 (14.0); 4.7640 (0.4); 4.2791 (0.4); 4.2199 (2.2); 4.2022 (6.9); 4.1845 (7.0); 4.1667 (2.4); 3.3849 (0.5); 3.3349 (117.7); 2.6779 (1.5); 2.6036 (0.5); 2.5588 (1.5); 2.5135 (168.7); 2.5090 (244.4); 2.5046 (207.4); 2.3361 (1.4); 2.3319 (1.2); 1.9965 (0.9); 1.2472 (0.8); 1.2323 (7.8); 1.2145 (16.0); 1.1968 (7.7); 1.1817 (0.7); 0.9624 (0.4); 0.9459 (0.4); 0.8677 (1.0); 0.8594 (0.7); 0.8502 (0.6); 0.8406 (0.6); 0.8237 (0.3)	10
I-071: ¹H-NMR(400.4 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.5293 (6.5); 7.5080 (7.8); 7.3894 (2.0); 7.3849 (1.0); 7.3719 (5.6); 7.3526 (4.8); 7.3301 (9.7); 7.3088 (9.1); 7.2899 (0.8); 7.1626 (6.0); 7.1447 (4.9); 4.9501 (14.5); 4.7623 (0.7); 4.2779 (0.8); 4.2132 (2.2); 4.1955 (6.9); 4.1777 (7.0); 4.1601 (2.3); 3.3367 (64.9); 2.6755 (1.3); 2.5106 (154.6); 2.5068 (190.6); 2.5027 (133.8); 2.4574 (0.5); 2.3336 (1.3); 1.2368 (1.2); 1.2261 (7.9); 1.2083 (16.0); 1.1906 (7.6)	
I-072: ¹H-NMR(400.2 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4958 (0.6); 7.4424 (7.8); 7.4346 (9.7); 7.4264 (8.5); 7.3025 (4.8); 7.2961 (5.3); 7.2869 (4.7); 7.2005 (8.0); 7.1929 (8.8); 7.1790 (15.0); 4.9380 (16.0); 4.7548 (0.6); 4.2687 (0.8); 4.2080 (2.6); 4.1906 (7.1); 4.1729 (7.2); 4.1553 (2.5); 3.6598 (0.6); 3.5534 (0.7); 3.5120 (0.8); 3.4784 (0.9); 3.4603 (1.2); 3.4199 (1.4); 3.3880 (2.1); 3.3250 (971.4); 3.3223 (684.4); 3.2696 (1.7); 2.6694 (5.8); 2.6004 (1.0); 2.5710 (1.3); 2.5003 (885.0); 2.4967 (826.3); 2.4405 (3.2); 2.4169 (1.1); 2.3273 (5.9); 1.2313 (1.8); 1.2213 (7.7); 1.2036 (15.4); 1.1858 (7.5)	20
I-073: ¹H-NMR(400.3 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4684 (9.8); 7.4613 (9.5); 7.4572 (7.5); 7.4456 (2.8); 7.4417 (3.0); 7.4310 (7.7); 7.4256 (3.0); 7.4190 (3.3); 7.4134 (6.4); 7.4090 (7.4); 7.4011 (1.1); 7.3218 (5.8); 7.3157 (5.4); 7.3106 (5.0); 7.3070 (5.0); 7.3032 (3.5); 7.2982 (2.8); 7.1556 (8.6); 7.1502 (3.0); 7.1383 (5.5); 7.1335 (6.3); 4.9566 (13.8); 4.2163 (2.2); 4.1986 (6.8); 4.1808 (6.8); 4.1631 (2.3); 3.3452 (15.7); 3.3352 (56.3); 2.6800 (1.5); 2.6755 (1.5); 2.5109 (202.9); 2.5066 (202.5); 2.5023 (126.4); 2.3380 (1.5); 2.3337 (1.5); 1.2393 (1.9); 1.2290 (8.0); 1.2218 (3.4); 1.2113 (16.0); 1.2043 (2.2); 1.1936 (7.4)	30
I-074: ¹H-NMR(400.2 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.5517 (6.3); 7.5307 (7.9); 7.4582 (6.5); 7.4365 (7.6); 7.3490 (7.7); 7.3279 (6.5); 7.1765 (7.6); 7.1548 (6.8); 4.9517 (13.8); 4.7590 (2.1); 4.2731 (2.3); 4.2107 (2.2); 4.1930 (6.6); 4.1752 (6.7); 4.1576 (2.5); 4.1436 (0.9); 4.1259 (0.3); 3.4327 (0.4); 3.3843 (1.9); 3.3348 (292.4);	40

2.6735 (1.1); 2.5083 (131.3); 2.5046 (165.9); 2.5009 (127.3); 2.3314 (1.1); 1.2641 (0.6); 1.2345 (3.5); 1.2244 (8.6); 1.2066 (16.0); 1.1889 (7.9); 1.1718 (0.9); 0.8531 (0.6); 0.8357 (0.4)	
I-075: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4024 (0.7); 7.3917 (0.6); 7.3849 (2.0); 7.3778 (0.8); 7.3712 (1.4); 7.3668 (2.3); 7.3626 (1.4); 7.3539 (1.0); 7.3518 (0.9); 7.3495 (1.0); 7.3474 (1.0); 7.3417 (2.7); 7.3375 (2.1); 7.3266 (2.0); 7.3223 (5.4); 7.3092 (1.7); 7.3045 (4.1); 7.3019 (2.5); 7.2905 (5.6); 7.2875 (6.2); 7.2707 (3.7); 7.2662 (2.9); 7.2599 (27.3); 7.1604 (1.2); 7.1415 (1.9); 7.1227 (0.8); 7.0452 (1.2); 7.0421 (1.2); 7.0243 (1.1); 7.0209 (2.1); 7.0176 (1.3); 6.9997 (1.0); 6.9965 (1.1); 5.2970 (9.0); 4.9859 (16.0); 4.2998 (2.1); 4.2820 (6.4); 4.2641 (6.5); 4.2463 (2.1); 1.5482 (4.3); 1.3028 (7.5); 1.2955 (0.8); 1.2849 (15.2); 1.2781 (0.7); 1.2671 (7.3); -0.0002 (10.0)	10
I-076: ¹ H-NMR(400.3 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 10.8519 (0.6); 7.3806 (2.5); 7.3583 (5.7); 7.3446 (5.6); 7.3195 (5.3); 7.2973 (7.6); 7.2754 (3.7); 7.2469 (1.6); 7.2246 (6.6); 7.2113 (8.0); 7.2041 (10.0); 7.1984 (10.7); 4.9427 (14.5); 4.7619 (0.7); 4.2752 (0.8); 4.2120 (2.4); 4.1945 (7.1); 4.1766 (7.6); 4.1590 (3.7); 4.1083 (1.0); 4.0954 (1.2); 4.0842 (0.7); 3.4315 (0.6); 3.3318 (372.2); 3.2799 (1.5); 3.2247 (0.7); 3.1792 (3.4); 3.1661 (3.1); 3.1088 (0.6); 3.0815 (0.7); 3.0416 (0.8); 3.0255 (1.1); 2.9520 (1.1); 2.8550 (0.6); 2.6761 (6.7); 2.6068 (1.3); 2.5072 (1051.7); 2.3992 (1.1); 2.3746 (0.8); 2.3341 (6.7); 2.2686 (0.6); 2.2217 (0.6); 2.1319 (0.7); 1.5669 (0.7); 1.5031 (0.6); 1.4028 (0.7); 1.2668 (1.3); 1.2262 (7.8); 1.2085 (16.0); 1.1908 (9.0); 1.0907 (1.0); 0.8812 (0.6); 0.8563 (0.7); 0.8490 (0.7); -1.5794 (0.6); -3.1735 (0.6); -3.5033 (0.6); -3.6659 (0.6); -3.8138 (0.6)	20
I-077: ¹ H-NMR(400.2 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.5334 (6.0); 7.5121 (7.9); 7.3342 (7.8); 7.3128 (6.7); 7.2552 (1.3); 7.2493 (0.8); 7.2327 (6.1); 7.2205 (7.0); 7.2125 (8.8); 7.2073 (8.8); 7.1988 (2.0); 7.1849 (0.8); 7.1570 (0.3); 4.9418 (14.4); 4.7596 (0.4); 4.2746 (0.5); 4.2085 (2.2); 4.1908 (6.9); 4.1730 (7.0); 4.1553 (2.3); 3.3294 (39.3); 2.6732 (0.8); 2.5539 (1.4); 2.5088 (86.7); 2.5044 (111.2); 2.5001 (82.8); 2.4537 (0.8); 2.3357 (0.5); 2.3312 (0.6); 1.2690 (0.3); 1.2343 (3.4); 1.2221 (8.0); 1.2044 (16.0); 1.1866 (7.6); 0.8531 (0.6)	30
I-078: ¹ H-NMR(400.3 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.4489 (7.3); 7.4271 (8.8); 7.3949 (2.6); 7.3791 (4.3); 7.3733 (6.1); 7.3596 (5.4); 7.3378 (5.4); 7.3157 (7.5); 7.2940 (2.9); 7.1658 (8.3); 7.1443 (7.6); 4.9529 (16.0); 4.2139 (2.4); 4.1963 (7.2); 4.1785 (7.4); 4.1609 (2.7); 3.3662 (0.4); 3.3316 (94.9); 3.2939 (0.7); 3.1784 (0.9); 3.1658 (0.9); 2.6756 (1.6); 2.5859 (0.3); 2.5069 (264.9); 2.3340 (1.6); 1.2279 (7.7); 1.2101 (15.2); 1.1924 (8.0); 1.1509 (0.4)	
I-080: ¹ H-NMR(400.4 MHz, d ₆ -DMSO):	40

10

20

30

40

50

δ= 7.6418 (0.9); 7.6268 (1.1); 7.6198 (1.9); 7.6048 (1.9); 7.5979 (1.2); 7.5828 (1.0); 7.5179 (6.2); 7.5133 (2.8); 7.5014 (2.5); 7.4965 (8.2); 7.4267 (1.0); 7.4200 (1.0); 7.3977 (1.5); 7.3939 (1.4); 7.3780 (1.0); 7.3712 (1.0); 7.3249 (7.7); 7.3203 (3.0); 7.3083 (2.2); 7.3035 (6.5); 7.2411 (0.8); 7.2214 (1.5); 7.1989 (0.8); 4.9214 (13.7); 4.1954 (2.2); 4.1777 (6.9); 4.1599 (7.0); 4.1421 (2.2); 3.3332 (182.0); 2.6809 (0.8); 2.6765 (1.2); 2.6718 (0.9); 2.5565 (0.5); 2.5298 (3.9); 2.5160 (65.0); 2.5118 (140.8); 2.5074 (199.2); 2.5030 (154.0); 2.4987 (77.5); 2.3389 (0.8); 2.3344 (1.2); 2.3300 (1.0); 1.9948 (0.8); 1.4029 (1.9); 1.2669 (0.9); 1.2380 (1.1); 1.2067 (7.8); 1.1979 (0.9); 1.1890 (16.0); 1.1803 (1.1); 1.1712 (7.5); 1.0921 (0.5); 0.9606 (0.8); 0.9440 (0.8); 0.8776 (0.4); 0.8658 (1.0); 0.8573 (0.7); 0.8444 (0.6); 0.8387 (0.9); 0.8212 (0.5)	10
I-081: $^1\text{H-NMR}$(400.2 MHz, d_6-DMSO): δ= 7.6335 (0.9); 7.6185 (1.0); 7.6115 (1.8); 7.5966 (1.8); 7.5895 (1.0); 7.5745 (0.9); 7.4070 (1.0); 7.4000 (1.1); 7.3842 (1.3); 7.3805 (1.4); 7.3775 (1.4); 7.3738 (1.3); 7.3649 (2.4); 7.3587 (1.9); 7.3512 (3.6); 7.3426 (4.1); 7.3348 (1.5); 7.3290 (3.6); 7.3221 (0.4); 7.3001 (0.7); 7.2935 (4.2); 7.2877 (1.1); 7.2764 (1.4); 7.2712 (6.1); 7.2656 (1.1); 7.2544 (0.9); 7.2490 (2.2); 7.2323 (0.6); 7.2289 (0.7); 7.2252 (0.6); 7.2086 (1.2); 7.1897 (0.6); 7.1861 (0.6); 7.1826 (0.5); 4.9151 (12.8); 4.7822 (0.8); 4.7586 (0.3); 4.2701 (0.4); 4.1947 (2.1); 4.1769 (6.8); 4.1591 (6.8); 4.1414 (2.2); 3.4235 (0.6); 3.3745 (0.8); 3.3625 (0.4); 3.3236 (429.6); 3.2988 (0.6); 3.2936 (0.4); 3.2740 (0.8); 2.6787 (0.8); 2.6742 (1.0); 2.6697 (0.7); 2.5277 (3.2); 2.5229 (5.0); 2.5142 (62.8); 2.5097 (132.0); 2.5052 (180.0); 2.5006 (127.3); 2.4962 (58.8); 2.4611 (0.8); 2.3410 (0.4); 2.3367 (0.8); 2.3321 (1.2); 2.3275 (0.8); 1.4017 (0.7); 1.2656 (0.6); 1.2383 (0.7); 1.2325 (0.7); 1.2146 (1.0); 1.2061 (7.7); 1.1968 (0.9); 1.1884 (16.0); 1.1706 (7.6); 1.0910 (0.4)	20
I-082: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, d_6-DMSO): δ= 13.0004 (0.8); 7.5268 (1.1); 7.5227 (1.4); 7.5076 (2.3); 7.5032 (2.8); 7.4881 (1.4); 7.4838 (1.6); 7.4730 (0.7); 7.4686 (0.7); 7.4603 (0.8); 7.4540 (1.3); 7.4488 (1.2); 7.4412 (1.3); 7.4368 (1.2); 7.4337 (1.3); 7.4290 (1.0); 7.4208 (1.0); 7.4164 (0.9); 7.4047 (1.0); 7.3952 (7.5); 7.3881 (7.2); 7.3787 (6.5); 7.3721 (2.0); 7.2953 (1.7); 7.2926 (2.3); 7.2863 (1.0); 7.2798 (4.9); 7.2758 (5.2); 7.2736 (7.4); 7.2681 (3.6); 7.2649 (5.9); 7.2557 (3.9); 7.2452 (1.8); 7.2403 (2.1); 7.2369 (1.6); 7.2192 (1.3); 7.2161 (1.2); 4.8316 (0.9); 4.8209 (16.0); 4.0382 (0.6); 4.0205 (0.6); 3.3141 (10.9); 2.5231 (1.4); 2.5184 (2.0); 2.5097 (20.0); 2.5052 (40.9); 2.5006 (55.8); 2.4961 (38.8); 2.4916 (17.6); 1.9876 (2.5); 1.2360 (0.8); 1.1920 (0.7); 1.1742 (1.4); 1.1564 (0.7); 0.0080 (0.6); -0.0002 (19.0); -0.0085 (0.6)	30
I-083: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.6410 (2.5); 7.6207 (2.9); 7.4145 (2.8); 7.3943 (2.5); 7.2592 (32.4); 7.1139 (1.5); 7.1084 (0.8); 7.1020 (1.8); 7.0967 (1.3); 7.0912 (2.5); 7.0851 (1.0); 7.0793 (2.4); 7.0025 (2.3); 6.9967	40

(0.8); 6.9908 (0.5); 6.9821 (2.8); 6.9653 (0.7); 6.9596 (1.6); 4.9345 (9.3); 3.8483 (0.6); 3.8148 (16.0); 3.8015 (0.8); 1.5409 (0.7); 1.2546 (0.7); 1.0706 (0.9); -0.0002 (12.2); -0.0084 (0.7)
I-084: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDC13): δ= 7.4709 (1.1); 7.4545 (1.2); 7.4384 (0.8); 7.3819 (0.8); 7.3639 (1.8); 7.3463 (1.4); 7.2734 (1.9); 7.2595 (17.6); 7.2337 (3.1); 7.2098 (1.4); 5.2978 (0.6); 4.8440 (10.3); 3.7706 (16.0); 2.7713 (0.6); 1.5422 (1.7); 1.2429 (0.5); -0.0002 (6.2)
I-085: ¹H-NMR(400.3 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.5852 (1.9); 7.5689 (2.7); 7.5642 (2.6); 7.5481 (2.7); 7.5264 (1.0); 7.4298 (2.2); 7.4245 (2.2); 7.4054 (3.9); 7.4001 (3.4); 7.3865 (4.8); 7.3815 (4.5); 7.3688 (7.4); 7.3531 (4.1); 7.3492 (4.8); 7.3199 (3.5); 7.3073 (2.6); 7.3022 (3.6); 7.2814 (2.5); 7.2600 (2.9); 7.2373 (1.2); 7.1615 (7.2); 7.1579 (7.4); 7.1438 (4.7); 7.1401 (4.7); 5.0105 (0.9); 4.9852 (4.0); 4.9678 (11.3); 4.2777 (0.4); 4.2562 (0.4); 4.2192 (3.7); 4.2013 (7.9); 4.1836 (7.0); 4.1660 (2.1); 3.4369 (0.6); 3.3826 (10.3); 3.3562 (50.7); 3.3419 (98.1); 3.3364 (183.0); 3.2985 (0.8); 3.0350 (0.4); 2.9853 (0.4); 2.9509 (0.4); 2.9008 (0.3); 2.8834 (0.3); 2.7341 (0.5); 2.7272 (0.5); 2.7144 (0.6); 2.6801 (3.4); 2.6757 (3.4); 2.6055 (1.4); 2.5505 (52.5); 2.5113 (502.8); 2.5067 (493.7); 2.5027 (303.6); 2.4041 (0.6); 2.3779 (0.5); 2.3382 (3.3); 2.3337 (3.3); 1.2275 (10.4); 1.2156 (8.8); 1.2097 (16.0); 1.1980 (4.0); 1.1920 (7.2); 1.1541 (0.7); 0.8615 (0.3)
I-086: ¹H-NMR(400.2 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.5866 (0.9); 7.5702 (1.1); 7.5653 (1.7); 7.5493 (1.7); 7.5443 (1.1); 7.5281 (1.0); 7.4279 (1.0); 7.4217 (1.0); 7.4023 (1.3); 7.3983 (1.4); 7.3793 (0.9); 7.3727 (0.9); 7.2782 (1.0); 7.2736 (0.9); 7.2572 (1.7); 7.2512 (2.5); 7.2439 (0.8); 7.2348 (1.7); 7.2276 (5.5); 7.2222 (1.5); 7.2127 (5.4); 7.2071 (6.4); 7.2033 (2.9); 7.1995 (5.7); 7.1906 (1.2); 7.1836 (0.5); 7.1770 (0.6); 4.9798 (0.3); 4.9573 (10.3); 4.7572 (0.7); 4.2696 (0.9); 4.2138 (2.0); 4.1960 (6.4); 4.1783 (6.4); 4.1606 (2.3); 4.1430 (0.3); 3.3684 (0.6); 3.3623 (0.6); 3.3599 (0.6); 3.3425 (4.7); 3.3360 (1.9); 3.3181 (360.9); 3.3051 (1.6); 3.3038 (1.4); 3.3025 (1.3); 3.3012 (1.3); 3.3000 (1.3); 3.2937 (3.9); 2.6810 (1.0); 2.6765 (2.2); 2.6719 (3.0); 2.6673 (2.2); 2.6628 (1.1); 2.5662 (1.3); 2.5256 (18.4); 2.5209 (19.4); 2.5120 (161.2); 2.5075 (344.7); 2.5029 (469.2); 2.4984 (332.3); 2.4938 (151.3); 2.4799 (10.9); 2.3389 (1.0); 2.3344 (2.1); 2.3298 (2.9); 2.3253 (2.0); 1.2349 (0.7); 1.2227 (7.6); 1.2049 (16.0); 1.1872 (7.3)
I-087: ¹H-NMR(400.4 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6065 (0.8); 7.5903 (1.0); 7.5852 (1.7); 7.5691 (1.7); 7.5642 (1.1); 7.5480 (0.9); 7.4688 (0.6); 7.4610 (6.4); 7.4556 (2.9); 7.4485 (1.3); 7.4443 (2.4); 7.4389 (7.9); 7.4312 (2.2); 7.4251 (1.5); 7.4060 (1.0); 7.3996 (1.0); 7.3022 (0.8); 7.2970 (0.8); 7.2811 (1.5); 7.2756 (1.4); 7.2597 (0.8); 7.2547 (0.7); 7.1886 (0.8); 7.1810 (7.4); 7.1756 (2.2); 7.1641 (2.0); 7.1588 (6.4); 7.1511

(0.7); 4.9731 (9.8); 4.2754 (0.4); 4.2196 (2.0); 4.2019 (6.4); 4.1841 (6.5); 4.1664 (2.1); 3.3273 (115.4); 2.6809 (0.6); 2.6762 (0.9); 2.6717 (0.6); 2.5298 (2.9); 2.5250 (4.4); 2.5163 (49.8); 2.5119 (106.9); 2.5073 (147.4); 2.5028 (106.8); 2.4983 (50.9); 2.4621 (0.5); 2.4577 (0.5); 2.3433 (0.3); 2.3389 (0.7); 2.3343 (0.9); 2.3297 (0.7); 1.2430 (0.9); 1.2281 (7.7); 1.2104 (16.0); 1.1926 (7.3)	
I-088: ¹H-NMR(400.2 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.5608 (0.9); 7.5459 (1.0); 7.5388 (1.7); 7.5239 (1.8); 7.5168 (1.0); 7.5019 (0.9); 7.4849 (0.9); 7.4686 (1.1); 7.4637 (1.7); 7.4476 (1.8); 7.4426 (1.2); 7.4266 (2.3); 7.4224 (1.7); 7.4030 (2.7); 7.4009 (2.7); 7.3966 (2.5); 7.3804 (1.3); 7.3779 (1.4); 7.3734 (1.4); 7.2170 (1.1); 7.2108 (1.6); 7.2033 (1.0); 7.1957 (2.0); 7.1906 (2.8); 7.1745 (1.0); 7.1705 (1.3); 7.1680 (1.3); 4.9293 (12.7); 4.1977 (2.1); 4.1800 (6.7); 4.1622 (6.9); 4.1444 (2.2); 3.3772 (0.7); 3.3629 (0.3); 3.3264 (227.7); 3.2910 (0.4); 3.2883 (0.4); 3.2770 (0.6); 2.6831 (0.5); 2.6788 (0.9); 2.6742 (1.3); 2.6697 (0.9); 2.5606 (0.6); 2.5561 (0.8); 2.5515 (0.8); 2.5464 (0.7); 2.5276 (5.4); 2.5226 (8.4); 2.5142 (76.5); 2.5097 (155.6); 2.5052 (209.3); 2.5007 (149.9); 2.4962 (71.4); 2.4561 (0.7); 2.4514 (0.4); 2.3366 (0.9); 2.3321 (1.3); 2.3275 (0.9); 1.2400 (0.4); 1.2073 (7.7); 1.1896 (16.0); 1.1719 (7.5)	10
I-089: ¹H-NMR(400.2 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.3952 (1.5); 7.3912 (1.7); 7.3742 (6.8); 7.3591 (4.4); 7.3554 (6.0); 7.3149 (0.3); 7.2859 (2.6); 7.2717 (4.0); 7.2638 (5.4); 7.2550 (3.1); 7.2501 (4.7); 7.2266 (5.2); 7.2045 (7.0); 7.1871 (1.7); 7.1825 (2.4); 7.0328 (2.1); 7.0112 (4.8); 7.0069 (4.2); 6.9917 (2.6); 6.9854 (3.3); 4.8806 (15.7); 4.1879 (2.4); 4.1701 (7.4); 4.1524 (7.4); 4.1347 (2.4); 3.4614 (0.9); 3.4361 (27.6); 3.3768 (0.4); 3.3704 (0.4); 3.3271 (178.3); 2.6775 (0.8); 2.6732 (0.9); 2.5488 (0.6); 2.5085 (135.6); 2.5043 (155.1); 2.5003 (105.1); 2.3352 (0.8); 2.3313 (0.9); 1.2382 (1.0); 1.2062 (8.3); 1.1884 (16.0); 1.1708 (7.7)	20
I-090: ¹H-NMR(400.3 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4603 (3.2); 7.4537 (6.8); 7.4487 (2.4); 7.4370 (4.7); 7.4323 (7.5); 7.4261 (0.9); 7.4077 (1.4); 7.4034 (1.7); 7.3910 (4.7); 7.3870 (5.6); 7.3721 (3.9); 7.3679 (4.8); 7.2576 (3.9); 7.2511 (8.1); 7.2460 (2.2); 7.2345 (4.0); 7.2298 (5.8); 7.2231 (0.6); 7.0456 (2.0); 7.0428 (1.8); 7.0266 (4.4); 7.0237 (4.8); 7.0195 (3.7); 7.0110 (1.5); 7.0045 (2.6); 6.9978 (2.7); 4.8881 (13.5); 4.1923 (2.3); 4.1814 (2.9); 4.1744 (6.7); 4.1637 (2.9); 4.1567 (6.8); 4.1390 (2.2); 4.0273 (0.3); 3.6148 (0.6); 3.5402 (0.3); 3.4429 (10.8); 3.4362 (25.5); 3.3948 (0.6); 3.3878 (0.8); 3.3800 (1.0); 3.3729 (1.5); 3.3371 (214.4); 3.3300 (520.8); 3.3160 (3.0); 3.3083 (1.5); 3.3002 (0.7); 3.2962 (1.0); 3.2797 (0.4); 3.2308 (0.4); 3.0561 (0.4); 3.0106 (0.5); 2.9816 (0.6); 2.9511 (0.6); 2.9453 (0.5); 2.6819 (4.5); 2.6778 (4.8); 2.6733 (3.2); 2.6168 (0.5); 2.5857 (0.4); 2.5132 (713.7); 2.5088 (763.9); 2.5044 (482.6); 2.5001 (194.1); 2.4792 (3.2); 2.4634 (1.4); 2.4590 (1.5); 2.4544	30

(1.4); 2.4192 (1.0); 2.3767 (0.4); 2.3402 (4.4); 2.3358 (4.8); 2.3312 (3.0); 1.9964 (0.8); 1.7669 (0.5); 1.2690 (0.8); 1.2456 (1.7); 1.2172 (2.9); 1.2101 (7.8); 1.1996 (6.1); 1.1924 (16.0); 1.1818 (3.4); 1.1747 (7.2); 0.8686 (0.4); 0.8613 (0.5)	
I-091: ¹H-NMR(400.3 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.3739 (7.3); 7.3583 (8.7); 7.3408 (3.4); 7.3314 (2.0); 7.2935 (1.5); 7.2749 (2.5); 7.2569 (2.4); 7.2362 (1.0); 7.1114 (2.2); 7.0910 (3.2); 7.0698 (1.6); 7.0360 (3.1); 7.0173 (4.6); 6.9953 (3.8); 6.9894 (4.7); 6.9680 (3.4); 4.9007 (16.0); 4.1981 (3.9); 4.1805 (8.2); 4.1628 (7.4); 4.1451 (2.4); 3.4607 (25.7); 3.4256 (0.4); 3.3323 (60.6); 3.3017 (0.4); 2.6821 (1.1); 2.5128 (136.3); 2.5089 (136.9); 2.4748 (1.1); 2.4697 (1.0); 2.3359 (1.0); 1.2140 (10.2); 1.1962 (16.0); 1.1785 (7.2)	10
I-092: ¹H-NMR(400.2 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.3816 (1.2); 7.3774 (1.6); 7.3586 (8.0); 7.3520 (6.0); 7.3433 (8.0); 7.3397 (9.9); 7.3360 (7.4); 7.2377 (0.6); 7.2276 (3.5); 7.2239 (2.3); 7.2201 (3.1); 7.2176 (2.6); 7.2142 (2.4); 7.2108 (2.7); 7.2036 (2.4); 7.0217 (1.5); 7.0189 (1.7); 7.0027 (2.4); 7.0001 (3.1); 6.9953 (2.6); 6.9925 (2.5); 6.9836 (1.3); 6.9808 (1.7); 6.9731 (2.5); 5.7580 (1.8); 4.8805 (13.4); 4.1892 (2.1); 4.1715 (6.6); 4.1537 (6.7); 4.1360 (2.2); 3.4296 (0.4); 3.4030 (25.5); 3.3802 (2.7); 3.3701 (0.7); 3.3545 (1.7); 3.3298 (523.0); 3.2975 (0.7); 3.2934 (0.8); 3.2848 (1.2); 3.2792 (2.6); 3.2723 (0.5); 2.6769 (0.8); 2.6724 (1.1); 2.6679 (0.8); 2.5541 (1.4); 2.5258 (3.8); 2.5209 (5.9); 2.5124 (63.4); 2.5079 (131.9); 2.5034 (179.4); 2.4989 (128.1); 2.4944 (60.1); 2.4536 (1.6); 2.3349 (0.9); 2.3304 (1.2); 2.3258 (0.8); 1.2394 (1.1); 1.2075 (7.6); 1.1898 (16.0); 1.1721 (7.4)	20
I-093: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3830 (0.5); 7.3789 (0.9); 7.3771 (0.9); 7.3712 (5.9); 7.3668 (5.6); 7.3599 (2.3); 7.3577 (2.0); 7.3532 (3.3); 7.3518 (2.8); 7.3448 (0.9); 7.3410 (1.1); 7.2799 (0.9); 7.2710 (3.8); 7.2666 (4.2); 7.2595 (24.7); 7.2554 (3.0); 7.2466 (2.8); 7.2434 (1.2); 7.2387 (1.0); 7.2354 (1.1); 7.2185 (0.7); 6.9026 (0.7); 6.8852 (0.8); 6.8786 (1.3); 6.8612 (1.3); 6.8550 (0.8); 6.8377 (0.7); 5.2973 (3.1); 4.8815 (16.0); 4.8074 (3.9); 4.3030 (2.0); 4.2852 (6.3); 4.2674 (6.5); 4.2498 (2.5); 4.2332 (1.5); 1.5462 (0.9); 1.3149 (7.8); 1.2970 (16.0); 1.2869 (2.1); 1.2792 (7.6); 1.2690 (3.9); 1.2512 (1.9); -0.0002 (10.0)	30
I-094: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4347 (0.5); 7.4326 (0.5); 7.4283 (0.6); 7.4203 (0.5); 7.4136 (1.1); 7.4084 (0.9); 7.3949 (1.3); 7.3899 (1.0); 7.3751 (0.8); 7.3707 (0.7); 7.2598 (43.6); 7.2507 (0.9); 7.2476 (1.0); 7.2459 (1.0); 7.2291 (1.2); 7.2104 (0.7); 7.1648 (0.7); 7.1615 (0.6); 7.1440 (0.7); 7.1404 (1.2); 7.1369 (0.7); 7.1194 (0.6); 7.1162 (0.6); 6.7312 (1.4); 6.7218 (2.0); 6.7117 (1.5); 6.3895 (1.7); 6.3847 (1.7); 6.3791 (1.6); 6.3743 (1.6); 6.1771 (1.0); 4.9050 (0.5); 4.8896 (8.9); 4.8481 (1.2); 4.8039	40

(1.4); 3.7940 (1.5); 3.7896 (16.0); 3.7810 (2.7); 3.7746 (2.2); 2.9186 (14.2); -0.0002 (17.8); -0.0085 (0.6)	
I-095: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4131 (0.6); 7.4112 (0.5); 7.4004 (1.0); 7.3962 (0.7); 7.3926 (0.6); 7.3847 (0.6); 7.3804 (1.6); 7.3766 (0.8); 7.3617 (1.0); 7.3575 (0.6); 7.2594 (27.0); 7.2536 (1.1); 7.2386 (0.7); 7.2371 (0.7); 7.2338 (1.0); 7.2185 (0.9); 7.2171 (1.0); 7.2155 (1.0); 7.1518 (0.7); 7.1486 (0.6); 7.1310 (0.6); 7.1275 (1.1); 7.1240 (0.6); 7.1064 (0.6); 7.1033 (0.5); 6.7232 (1.4); 6.7140 (1.8); 6.7131 (1.8); 6.7038 (1.4); 6.3851 (1.7); 6.3803 (1.7); 6.3747 (1.6); 6.3699 (1.6); 5.2978 (0.6); 4.8889 (9.0); 4.8440 (2.8); 3.7872 (16.0); 3.7705 (5.0); -0.0002 (11.8)	10
I-096: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5179 (0.5); 7.3913 (0.6); 7.3860 (1.0); 7.3783 (4.6); 7.3746 (5.1); 7.3684 (2.0); 7.3642 (1.7); 7.3600 (3.2); 7.3584 (2.8); 7.3512 (1.0); 7.3470 (1.1); 7.3368 (0.6); 7.2912 (0.9); 7.2811 (0.6); 7.2739 (4.4); 7.2697 (4.7); 7.2646 (2.8); 7.2590 (92.5); 7.2497 (3.9); 7.2293 (0.9); 6.9950 (0.5); 6.9132 (0.7); 6.8958 (0.8); 6.8893 (1.2); 6.8720 (1.2); 6.8658 (0.8); 6.8484 (0.7); 5.2981 (0.5); 4.9621 (16.0); 4.8889 (2.0); 2.0451 (0.8); 1.3325 (1.8); 1.2842 (3.0); 1.2767 (1.2); 1.2552 (5.7); 1.2409 (0.7); 0.8799 (0.8); 0.0079 (0.9); -0.0002 (40.4); -0.0085 (1.6)	20
I-097: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3575 (0.9); 7.3418 (1.2); 7.3366 (1.9); 7.3225 (2.0); 7.3166 (1.4); 7.3016 (1.9); 7.2814 (1.5); 7.2755 (1.3); 7.2601 (27.9); 7.2592 (28.9); 7.2385 (1.3); 7.1043 (1.0); 7.0861 (1.7); 7.0799 (2.0); 7.0651 (0.9); 7.0589 (1.0); 7.0270 (4.7); 7.0061 (3.2); 6.9985 (2.1); 6.9276 (0.9); 6.9102 (1.0); 6.9041 (1.8); 6.8867 (1.8); 6.8803 (1.2); 6.8629 (0.9); 5.2977 (0.5); 4.8779 (16.0); 4.3029 (2.0); 4.2850 (6.0); 4.2672 (6.2); 4.2494 (2.2); 1.3148 (6.3); 1.2976 (12.6); 1.2969 (12.7); 1.2797 (6.5); 1.2791 (6.5); 0.0007 (10.2); -0.0002 (10.6)	
I-098: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3715 (1.0); 7.3571 (1.0); 7.3499 (1.6); 7.3354 (1.6); 7.3291 (1.7); 7.3141 (2.0); 7.3087 (1.7); 7.2941 (1.5); 7.2904 (0.8); 7.2881 (0.8); 7.2742 (1.2); 7.2591 (31.0); 7.0780 (0.6); 7.0755 (0.7); 7.0716 (0.8); 7.0692 (0.8); 7.0569 (1.1); 7.0539 (1.2); 7.0481 (1.6); 7.0357 (0.6); 7.0332 (0.7); 7.0297 (1.9); 7.0267 (2.7); 7.0237 (1.6); 7.0142 (1.2); 7.0101 (3.1); 7.0055 (3.0); 6.9901 (1.3); 6.9861 (1.2); 6.9800 (0.8); 6.9372 (0.6); 6.9335 (0.6); 6.9304 (0.7); 6.9267 (0.7); 6.9180 (0.7); 6.9146 (1.1); 6.9112 (1.2); 6.9078 (1.2); 6.9045 (0.7); 6.8958 (0.6); 6.8921 (0.6); 6.8889 (0.6); 6.8852 (0.6); 6.8178 (1.1); 6.8109 (0.9); 6.7967 (1.1); 6.7930 (1.2); 6.7900 (1.1); 6.7862 (1.0); 6.7721 (1.0); 6.7652 (0.9); 4.8831 (16.0); 4.2944 (2.0); 4.2765 (6.3); 4.2587 (6.4); 4.2409 (2.1); 1.3054 (7.5); 1.2876 (15.3); 1.2697 (7.4); -0.0002 (11.4)	30
I-099: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃):	40

δ= 8.2827 (0.5); 8.2799 (0.5); 8.2771 (0.5); 8.2623 (0.8); 8.2592 (0.8); 8.2565 (0.6); 8.2084 (3.4); 8.2034 (1.0); 8.1912 (1.1); 8.1861 (3.6); 8.1512 (0.8); 8.1466 (1.1); 8.1418 (0.6); 7.6937 (0.6); 7.6742 (0.8); 7.6707 (0.7); 7.6360 (0.6); 7.5872 (1.0); 7.5668 (1.4); 7.5472 (0.7); 7.5188 (0.8); 7.5133 (0.6); 7.5077 (3.0); 7.5031 (1.2); 7.4905 (1.1); 7.4856 (2.7); 7.4176 (0.9); 7.4129 (0.7); 7.4101 (0.8); 7.4078 (0.7); 7.3999 (1.4); 7.3973 (1.3); 7.3846 (1.1); 7.3810 (1.4); 7.3766 (0.9); 7.3690 (0.8); 7.3647 (1.3); 7.3469 (0.8); 7.3423 (0.8); 7.2890 (0.7); 7.2599 (100.1); 7.2425 (0.6); 7.2350 (0.7); 7.2213 (1.0); 7.2150 (1.0); 7.1979 (0.5); 7.0625 (0.7); 7.0594 (0.7); 7.0416 (0.7); 7.0381 (1.2); 7.0346 (0.8); 7.0316 (0.5); 7.0282 (0.8); 7.0169 (0.7); 7.0139 (0.7); 6.9958 (0.6); 5.2986 (12.4); 5.0260 (6.6); 5.0221 (9.1); 5.0070 (0.6); 4.9412 (3.2); 3.8380 (1.2); 3.8347 (0.5); 3.8264 (4.1); 3.8202 (12.1); 3.8183 (16.0); 3.8108 (0.8); 3.7898 (1.2); 3.7746 (5.5); 3.6222 (0.5); 0.0079 (1.1); -0.0002 (36.6); -0.0085 (1.1)	10
I-100: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3504 (1.4); 7.3481 (1.1); 7.3439 (5.5); 7.3392 (5.4); 7.3314 (3.4); 7.3298 (2.8); 7.3279 (3.5); 7.3264 (3.8); 7.3248 (3.2); 7.3226 (1.3); 7.3188 (1.1); 7.3149 (2.5); 7.3071 (1.4); 7.3025 (0.7); 7.2926 (1.1); 7.2728 (0.6); 7.2650 (3.6); 7.2587 (28.7); 7.2522 (2.4); 7.2502 (1.8); 7.2487 (1.8); 7.2475 (1.8); 7.2460 (1.6); 7.2429 (1.5); 7.2404 (2.4); 7.2353 (0.6); 6.9073 (0.6); 6.9035 (0.6); 6.9004 (0.6); 6.8967 (0.7); 6.8880 (0.7); 6.8846 (1.0); 6.8812 (1.2); 6.8778 (1.1); 6.8745 (0.7); 6.8658 (0.6); 6.8620 (0.6); 6.8589 (0.6); 6.8552 (0.6); 6.7965 (0.9); 6.7896 (0.8); 6.7753 (1.0); 6.7718 (1.1); 6.7686 (1.0); 6.7650 (0.9); 6.7507 (0.9); 6.7439 (0.8); 5.2966 (1.3); 4.8878 (14.8); 4.2952 (1.9); 4.2774 (5.9); 4.2595 (6.0); 4.2417 (2.0); 1.3060 (7.7); 1.2882 (16.0); 1.2703 (7.7); -0.0002 (10.6)	20
I-101: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.2865 (0.8); 7.2822 (2.0); 7.2768 (1.0); 7.2693 (4.0); 7.2656 (2.0); 7.2602 (19.7); 7.2547 (1.5); 7.2509 (3.0); 7.2489 (2.4); 7.2470 (2.5); 7.2420 (0.9); 7.2379 (1.7); 7.2341 (1.0); 7.2206 (1.2); 7.1328 (2.0); 7.1288 (2.9); 7.1232 (0.7); 7.1161 (1.0); 7.1115 (2.0); 7.1085 (1.7); 7.0752 (2.1); 7.0697 (0.7); 7.0583 (0.6); 7.0534 (3.3); 7.0485 (0.7); 7.0370 (0.6); 7.0317 (1.7); 4.9414 (9.1); 4.7549 (1.2); 3.8129 (16.0); 3.7951 (1.3); 2.9544 (3.4); 2.8824 (2.9); 2.7669 (2.8); 1.5676 (1.4); -0.0002 (6.1)	30
I-102: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.5185 (0.6); 7.3767 (0.7); 7.3624 (0.9); 7.3575 (1.3); 7.3506 (0.5); 7.3436 (0.9); 7.3424 (0.8); 7.3391 (1.1); 7.3379 (1.0); 7.3314 (0.8); 7.3300 (0.5); 7.3232 (0.6); 7.3110 (0.6); 7.2695 (0.5); 7.2687 (0.6); 7.2679 (0.7); 7.2671 (0.7); 7.2663 (0.8); 7.2655 (0.9); 7.2647 (1.1); 7.2638 (1.5); 7.2596 (105.1); 7.2093 (0.8); 7.2075 (0.6); 7.2058 (0.7); 7.2043 (0.6); 7.1899 (1.0); 7.1882 (1.0); 7.1863 (1.0); 7.1853 (0.9); 7.1689 (0.5); 7.1485 (0.6); 7.1431 (0.6); 7.1391 (0.6); 7.1296 (0.6); 7.1243 (0.7); 7.1212 (0.7); 7.1176 (1.0); 7.1141 (0.6); 7.1026 (0.6); 7.0975 (1.2);	40

10

20

30

40

50

7.0928 (0.8); 7.0726 (0.7); 7.0559 (0.6); 7.0529 (0.6); 7.0352 (0.6); 7.0315 (1.0); 7.0279 (0.6); 7.0098 (0.9); 7.0064 (0.9); 7.0008 (0.5); 6.9991 (0.6); 6.9956 (1.1); 6.9938 (0.5); 4.9228 (1.0); 4.9118 (8.1); 3.8066 (2.2); 3.8014 (16.0); 2.9618 (0.8); 2.9561 (2.2); 2.9552 (2.3); 2.8845 (2.0); 2.8830 (2.0); 2.7731 (6.2); 1.5415 (8.4); 0.0079 (1.4); 0.0046 (0.6); 0.0038 (0.7); 0.0021 (1.9); -0.0002 (44.3); -0.0028 (2.2); -0.0043 (1.0); -0.0052 (0.7); -0.0060 (0.6); -0.0085 (1.3)	I-104: ¹H-NMR(400.6 MHz, CDCl₃): δ= 7.4359 (0.5); 7.4215 (0.7); 7.4159 (0.9); 7.4016 (0.9); 7.3956 (0.8); 7.3813 (0.7); 7.2972 (0.7); 7.2819 (1.1); 7.2766 (1.7); 7.2604 (28.3); 7.2410 (1.0); 7.1907 (0.7); 7.1885 (0.7); 7.1844 (0.7); 7.1822 (0.7); 7.1697 (1.1); 7.1675 (1.2); 7.1633 (1.2); 7.1612 (1.2); 7.1551 (1.5); 7.1525 (1.5); 7.1512 (1.6); 7.1488 (1.4); 7.1423 (0.8); 7.1400 (0.8); 7.1359 (1.2); 7.1334 (1.2); 7.1320 (1.2); 7.1297 (0.8); 7.0635 (0.6); 7.0613 (0.6); 7.0572 (0.7); 7.0552 (0.6); 7.0428 (1.0); 7.0407 (1.0); 7.0365 (1.1); 7.0346 (1.0); 7.0197 (1.3); 7.0156 (1.4); 7.0093 (0.8); 6.9967 (1.2); 6.9906 (1.6); 6.9857 (1.6); 6.9793 (0.8); 6.9670 (0.9); 6.9616 (1.2); 6.9559 (0.7); 6.8979 (1.1); 6.8948 (1.0); 6.8790 (1.0); 6.8748 (0.9); 5.3002 (2.3); 5.2511 (0.5); 5.2336 (1.7); 5.2162 (1.7); 5.1988 (0.5); 3.7933 (16.0); 1.7003 (6.8); 1.6829 (6.7); 1.5400 (13.2); 0.0077 (2.4); -0.0002 (30.5); -0.0085 (1.6)	I-107: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 8.0573 (0.5); 7.3503 (0.5); 7.3445 (0.8); 7.3300 (0.8); 7.3256 (0.6); 7.3242 (0.6); 7.3102 (0.6); 7.2615 (26.6); 7.1267 (1.6); 7.1210 (0.6); 7.1148 (1.7); 7.1096 (1.4); 7.1037 (2.7); 7.0977 (0.7); 7.0955 (0.5); 7.0918 (2.6); 7.0884 (0.8); 7.0861 (0.6); 7.0822 (1.0); 7.0444 (0.8); 7.0418 (1.0); 7.0406 (1.2); 7.0381 (1.0); 7.0254 (0.9); 7.0230 (2.3); 7.0192 (1.5); 7.0015 (0.8); 6.9975 (0.9); 6.9953 (0.7); 6.9914 (2.6); 6.9855 (0.6); 6.9741 (0.7); 6.9710 (2.4); 6.9685 (1.8); 6.9653 (0.7); 6.9539 (0.5); 6.9482 (1.6); 4.9282 (8.3); 3.8127 (16.0); 2.9762 (4.3); 2.8980 (3.9); 2.7690 (10.4); -0.0002 (9.7)	I-108: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3837 (0.5); 7.3774 (0.7); 7.3758 (0.6); 7.3632 (0.8); 7.3583 (0.6); 7.3570 (0.6); 7.3435 (0.6); 7.2628 (28.0); 7.1837 (0.6); 7.1812 (0.5); 7.1747 (0.5); 7.1625 (0.9); 7.1598 (0.8); 7.1563 (0.7); 7.1536 (0.9); 7.1349 (0.6); 7.1266 (1.6); 7.1208 (0.6); 7.1148 (1.7); 7.1093 (1.1); 7.1035 (2.3); 7.0977 (0.8); 7.0954 (0.5); 7.0918 (2.2); 7.0739 (0.9); 7.0713 (1.0); 7.0700 (1.2); 7.0675 (1.0); 7.0517 (2.2); 7.0485 (1.4); 7.0460 (0.8); 7.0305 (0.7); 7.0264 (0.6); 7.0249 (0.7); 7.0202 (0.7); 7.0119 (2.4); 7.0059 (0.7); 6.9945 (0.7); 6.9920 (2.5); 6.9889 (1.7); 6.9861 (0.7); 6.9748 (0.6); 6.9690 (1.5); 5.2991 (1.3); 5.0251 (7.9); 4.9111 (0.8); 3.8219 (16.0); 3.8069 (1.7); 3.0134 (14.3); 2.9409 (8.9); 2.0822 (9.8); -0.0002 (10.3)	I-109: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):

10

20

30

40

50

δ= 8.0119 (1.2); 7.3489 (0.6); 7.3344 (0.6); 7.2610 (55.1); 7.1087 (1.4); 7.1055 (0.6); 7.1030 (0.6); 7.0969 (1.4); 7.0932 (0.8); 7.0910 (1.3); 7.0859 (2.2); 7.0798 (0.6); 7.0739 (1.8); 7.0656 (0.5); 7.0380 (0.7); 7.0354 (0.8); 7.0341 (1.0); 7.0316 (0.8); 7.0189 (0.6); 7.0162 (0.7); 7.0150 (1.0); 7.0125 (0.8); 7.0073 (0.6); 7.0018 (0.5); 6.9971 (0.6); 6.9850 (0.7); 6.9801 (0.6); 6.9769 (2.0); 6.9710 (0.6); 6.9597 (0.6); 6.9566 (1.9); 6.9539 (1.5); 6.9507 (0.6); 6.9336 (1.3); 4.9215 (6.5); 3.8097 (12.6); 3.0090 (16.0); 2.9580 (11.9); 2.9573 (12.6); 2.8825 (10.8); 2.8810 (11.0); 2.7716 (5.0); 1.5585 (7.2); 0.0080 (0.7); -0.0002 (22.0); -0.0085 (0.6)	10
I-110: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 8.0184 (0.8); 7.3499 (0.5); 7.3446 (0.8); 7.3301 (0.8); 7.3255 (0.6); 7.3243 (0.6); 7.3104 (0.7); 7.2607 (33.5); 7.1372 (1.6); 7.1314 (0.6); 7.1252 (1.7); 7.1199 (1.0); 7.1143 (2.3); 7.1083 (1.0); 7.1065 (0.9); 7.1024 (2.6); 7.0879 (0.7); 7.0851 (0.8); 7.0814 (0.6); 7.0789 (0.9); 7.0422 (0.9); 7.0395 (1.0); 7.0384 (1.3); 7.0358 (1.0); 7.0224 (1.0); 7.0202 (2.2); 7.0167 (1.4); 7.0148 (0.9); 7.0120 (0.5); 7.0003 (2.4); 6.9944 (1.3); 6.9884 (0.8); 6.9831 (0.8); 6.9800 (2.5); 6.9775 (1.9); 6.9742 (0.7); 6.9629 (0.6); 6.9571 (1.6); 4.9289 (8.6); 4.4776 (1.3); 3.8145 (16.0); 2.9550 (8.4); 2.8839 (7.1); 2.8825 (7.2); 2.7698 (1.2); 2.7048 (3.0); 1.5641 (1.0); -0.0002 (12.6)	20
I-111: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.2776 (3.1); 7.2708 (1.9); 7.2677 (1.6); 7.2643 (3.9); 7.2577 (38.2); 7.2527 (5.0); 7.2487 (3.0); 7.2420 (4.0); 7.2384 (2.8); 7.2343 (5.6); 7.2328 (4.8); 7.2315 (5.0); 7.2271 (2.3); 7.2230 (0.9); 7.2168 (2.5); 7.2143 (1.4); 7.1259 (1.7); 7.1245 (1.8); 7.1222 (1.3); 7.1091 (0.9); 7.1068 (1.3); 7.1054 (1.4); 7.0835 (0.7); 7.0762 (6.4); 7.0710 (4.2); 7.0656 (1.5); 7.0597 (3.1); 7.0549 (9.5); 7.0514 (4.6); 7.0431 (0.5); 7.0381 (1.6); 7.0328 (3.9); 7.0277 (1.0); 7.0126 (0.6); 7.0103 (0.7); 7.0062 (0.5); 6.9910 (1.1); 6.9897 (1.1); 6.9846 (0.9); 6.9833 (0.9); 6.9705 (0.5); 6.9681 (0.5); 5.2962 (9.2); 5.2420 (9.9); 4.9865 (16.0); 1.5364 (4.1); -0.0002 (15.1)	30
I-112: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3629 (1.4); 7.3566 (1.6); 7.3550 (1.0); 7.3478 (2.4); 7.3451 (1.5); 7.3384 (2.7); 7.3346 (0.9); 7.3139 (1.1); 7.3126 (1.0); 7.3095 (1.3); 7.3044 (8.2); 7.3006 (2.8); 7.2981 (5.7); 7.2928 (2.2); 7.2908 (1.7); 7.2896 (2.0); 7.2876 (3.2); 7.2824 (0.7); 7.2785 (0.8); 7.2712 (3.2); 7.2655 (2.4); 7.2567 (35.5); 7.2519 (4.1); 7.2503 (5.0); 7.2489 (5.5); 7.2468 (2.2); 7.2440 (1.1); 7.2417 (2.3); 7.2356 (5.8); 7.2320 (4.9); 7.2306 (5.6); 7.2258 (2.3); 7.2220 (1.0); 7.2159 (1.5); 7.2129 (1.2); 7.0817 (0.6); 7.0746 (4.4); 7.0724 (4.4); 7.0703 (2.2); 7.0686 (2.8); 7.0675 (3.4); 7.0620 (1.4); 7.0604 (1.1); 7.0572 (2.3); 7.0531 (7.1); 7.0521 (6.7); 7.0478 (4.4); 7.0363 (1.0); 7.0309 (2.9); 5.2951 (1.9); 5.2592 (11.4); 4.9721 (16.0); 1.5355 (5.4); -0.0002 (15.1)	40
I-113: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3):	

δ= 7.2884 (0.7); 7.2868 (1.0); 7.2813 (3.8); 7.2773 (1.2); 7.2757 (1.5); 7.2726 (0.9); 7.2675 (4.3); 7.2670 (4.5); 7.2651 (5.0); 7.2612 (3.4); 7.2586 (34.1); 7.2506 (2.7); 7.2465 (6.6); 7.2391 (2.0); 7.2350 (2.8); 7.2311 (1.8); 7.2244 (0.7); 7.2183 (1.5); 7.2174 (1.6); 7.1994 (0.6); 7.1317 (1.6); 7.1298 (3.4); 7.1258 (4.5); 7.1201 (1.1); 7.1132 (1.8); 7.1107 (1.3); 7.1087 (3.4); 7.1054 (2.7); 7.0753 (3.7); 7.0697 (1.1); 7.0610 (0.6); 7.0583 (1.1); 7.0538 (5.2); 7.0484 (1.1); 7.0370 (0.9); 7.0316 (2.9); 5.9782 (0.6); 5.9640 (1.2); 5.9520 (0.7); 5.9499 (0.7); 5.9379 (1.4); 5.9352 (0.8); 5.9237 (0.7); 5.9210 (1.5); 5.9090 (0.8); 5.9069 (0.8); 5.8948 (1.5); 5.8808 (0.8); 5.3723 (0.8); 5.3684 (2.1); 5.3648 (2.2); 5.3609 (0.8); 5.3292 (0.7); 5.3254 (1.9); 5.3217 (1.9); 5.3179 (0.7); 5.2966 (1.2); 5.2497 (0.9); 5.2465 (2.3); 5.2433 (2.2); 5.2401 (0.8); 5.2235 (0.8); 5.2203 (2.2); 5.2171 (2.2); 5.2139 (0.8); 4.9592 (16.0); 4.7282 (2.5); 4.7247 (4.0); 4.7211 (2.6); 4.7141 (2.5); 4.7106 (3.9); 4.7070 (2.4); 1.5465 (1.1); -0.0002 (12.0)	10
I-114: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 8.0183 (0.8); 7.4156 (0.6); 7.4140 (0.7); 7.4076 (4.0); 7.4034 (3.5); 7.3967 (1.5); 7.3941 (1.3); 7.3897 (2.0); 7.3881 (1.8); 7.3811 (0.6); 7.3773 (0.7); 7.3051 (2.3); 7.3007 (2.6); 7.2965 (0.7); 7.2946 (0.8); 7.2933 (0.9); 7.2916 (0.8); 7.2892 (1.0); 7.2869 (1.0); 7.2807 (1.7); 7.2603 (32.2); 7.1938 (0.5); 7.1781 (0.5); 7.1730 (1.1); 7.1574 (1.1); 7.1526 (0.7); 7.1371 (0.6); 6.9576 (0.5); 6.9520 (1.0); 6.9467 (0.7); 6.9327 (0.5); 6.9272 (1.0); 6.9211 (1.0); 6.9186 (0.6); 6.9001 (0.9); 6.8978 (1.0); 6.8937 (0.7); 6.8914 (0.7); 6.8564 (0.8); 6.8541 (0.8); 6.8513 (0.8); 6.8491 (0.7); 6.8361 (0.7); 6.8339 (0.7); 6.8310 (0.7); 6.8288 (0.6); 4.9429 (8.7); 4.7599 (0.7); 3.8242 (16.0); 3.7970 (1.3); 2.9554 (8.2); 2.8841 (7.3); 2.8826 (7.1); 2.7699 (1.3); 1.5731 (1.0); -0.0002 (13.4)	20
I-115: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.4102 (1.3); 7.4060 (1.2); 7.3923 (0.7); 7.3908 (0.6); 7.2901 (0.8); 7.2858 (0.9); 7.2658 (0.9); 7.2594 (33.9); 4.9363 (2.9); 3.8218 (5.6); 1.5379 (16.0); 0.0691 (1.0); -0.0002 (14.1)	30
I-116: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.5185 (1.2); 7.3437 (0.8); 7.3332 (8.5); 7.3299 (3.4); 7.3279 (4.9); 7.3251 (9.3); 7.3207 (7.1); 7.3167 (9.3); 7.3078 (5.7); 7.3036 (2.8); 7.2983 (5.7); 7.2909 (2.5); 7.2854 (5.5); 7.2781 (1.3); 7.2757 (1.0); 7.2751 (1.0); 7.2742 (0.9); 7.2734 (1.0); 7.2726 (1.0); 7.2718 (1.0); 7.2710 (1.2); 7.2702 (1.3); 7.2694 (1.4); 7.2686 (1.5); 7.2678 (1.7); 7.2670 (2.0); 7.2662 (2.3); 7.2653 (2.8); 7.2637 (4.3); 7.2596 (203.6); 7.2091 (1.0); 7.1916 (0.9); 7.1841 (1.3); 7.1801 (5.1); 7.1770 (2.8); 7.1725 (3.2); 7.1699 (3.0); 7.1658 (3.3); 7.1638 (2.8); 7.1614 (2.1); 7.1589 (2.0); 7.1557 (3.8); 7.1517 (0.7); 7.1040 (0.7); 7.0968 (5.4); 7.0913 (1.6); 7.0830 (0.8); 7.0798 (1.7); 7.0757 (7.5); 7.0704 (1.8); 7.0672 (0.7); 7.0589 (1.5); 7.0534 (4.3); 6.9956 (1.4); 5.9912 (0.5);	40

10

20

30

40

50

5.3318 (1.2); 5.3142 (4.6); 5.2967 (4.6); 5.2791 (1.2); 2.0049 (3.0); 1.7453 (16.0); 1.7277 (15.8); 1.6955 (0.7); 1.6782 (0.7); 0.0080 (3.0); -0.0002 (104.2); -0.0085 (3.0); -0.0506 (0.5)	
I-117: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 8.3124 (4.8); 7.5517 (3.9); 7.5369 (4.1); 7.5167 (2.9); 7.4667 (2.2); 7.4465 (5.1); 7.4300 (4.8); 7.4097 (3.9); 7.3783 (3.4); 7.2860 (4.9); 7.2666 (6.2); 7.2277 (4.8); 7.2073 (4.6); 7.1880 (4.0); 7.1688 (2.9); 7.1639 (3.9); 7.0516 (4.4); 7.0348 (3.8); 5.0096 (2.9); 4.9925 (3.1); 3.3146 (10.8); 2.6694 (2.9); 2.5094 (189.0); 2.5049 (389.4); 2.5003 (530.0); 2.4957 (370.7); 2.4912 (170.7); 2.3273 (3.4); 1.9874 (2.3); 1.5249 (16.0); 1.5076 (16.0); -0.0002 (28.3)	10
I-118: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5182 (1.0); 7.3750 (0.7); 7.3612 (0.8); 7.3553 (1.2); 7.3407 (1.3); 7.3358 (1.0); 7.3211 (1.0); 7.2763 (0.6); 7.2755 (0.6); 7.2747 (0.6); 7.2739 (0.6); 7.2731 (0.7); 7.2723 (0.7); 7.2715 (0.8); 7.2707 (0.8); 7.2699 (0.9); 7.2691 (1.0); 7.2683 (1.2); 7.2675 (1.3); 7.2667 (1.5); 7.2659 (1.7); 7.2651 (2.0); 7.2643 (2.4); 7.2635 (3.1); 7.2593 (181.8); 7.1213 (2.7); 7.1159 (1.5); 7.1095 (2.6); 7.1040 (1.7); 7.1016 (1.6); 7.0986 (4.2); 7.0952 (1.6); 7.0926 (2.2); 7.0865 (3.3); 7.0805 (0.7); 7.0781 (1.0); 7.0740 (0.7); 7.0715 (0.6); 7.0396 (1.3); 7.0370 (1.6); 7.0358 (1.8); 7.0332 (1.6); 7.0205 (1.1); 7.0167 (1.8); 7.0141 (1.6); 7.0089 (1.2); 7.0026 (1.1); 6.9993 (0.8); 6.9953 (1.2); 6.9927 (0.6); 6.9844 (3.7); 6.9789 (1.6); 6.9762 (1.0); 6.9725 (0.6); 6.9672 (1.0); 6.9641 (3.6); 6.9616 (2.8); 6.9584 (1.1); 6.9470 (0.8); 6.9413 (2.4); 4.9737 (16.0); 2.9626 (1.2); 2.8902 (1.1); 1.8551 (0.6); 0.0079 (2.3); 0.0064 (0.6); 0.0055 (0.7); 0.0047 (0.8); -0.0002 (76.6); -0.0059 (1.2); -0.0067 (1.0); -0.0085 (2.4)	20
I-119: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5182 (0.9); 7.3707 (0.7); 7.3558 (1.1); 7.3498 (1.7); 7.3354 (1.7); 7.3296 (1.3); 7.3154 (1.4); 7.2659 (1.8); 7.2592 (171.5); 7.1462 (0.7); 7.1374 (2.9); 7.1319 (1.1); 7.1256 (3.4); 7.1199 (2.7); 7.1145 (4.8); 7.1108 (1.8); 7.1028 (4.3); 7.0986 (1.8); 7.0957 (1.8); 7.0897 (2.0); 7.0775 (0.8); 7.0751 (0.8); 7.0710 (0.8); 7.0685 (0.9); 7.0460 (1.7); 7.0422 (2.6); 7.0397 (2.2); 7.0244 (4.7); 7.0207 (3.3); 7.0029 (1.8); 6.9971 (5.6); 6.9918 (1.9); 6.9854 (0.8); 6.9769 (4.8); 6.9711 (1.5); 6.9599 (1.0); 6.9541 (3.0); 4.9821 (16.0); 4.9283 (1.0); 3.8129 (1.9); 2.0446 (0.8); 1.2585 (0.6); 0.0079 (1.9); -0.0002 (69.8); -0.0085 (2.2)	30
I-120: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5184 (0.5); 7.3704 (0.6); 7.3555 (0.8); 7.3524 (0.6); 7.3496 (1.2); 7.3351 (1.3); 7.3305 (0.9); 7.3154 (1.0); 7.2709 (0.5); 7.2693 (0.6); 7.2685 (0.7); 7.2677 (0.8); 7.2669 (0.8); 7.2661 (1.0); 7.2652 (1.2); 7.2644 (1.4); 7.2636 (1.8); 7.2595 (92.6); 7.2530 (0.6); 7.1479 (2.5); 7.1421 (1.0); 7.1360 (2.8); 7.1306 (1.6); 7.1250 (3.6); 7.1190 (1.2); 7.1132 (4.1); 7.1095 (0.9); 7.1070 (0.9); 7.1048 (0.5); 7.0948 (1.2); 7.0920 (1.2); 7.0882 (0.9); 7.0858 (1.4); 7.0737 (0.6); 7.0712	40

(0.6); 7.0671 (0.6); 7.0647 (0.7); 7.0440 (1.4); 7.0414 (1.6); 7.0401 (2.0); 7.0376 (1.7); 7.0219 (3.5); 7.0185 (2.2); 7.0135 (1.1); 7.0050 (3.6); 6.9995 (2.0); 6.9956 (1.6); 6.9933 (1.5); 6.9880 (1.3); 6.9848 (3.9); 6.9822 (2.9); 6.9790 (1.2); 6.9677 (0.9); 6.9619 (2.5); 4.9819 (16.0); 3.7571 (0.5); 2.9661 (1.9); 2.8941 (1.7); 2.8926 (1.8); 1.8576 (0.6); 1.4319 (0.8); 0.0080 (1.2); 0.0048 (0.5); 0.0040 (0.6); -0.0002 (39.1); -0.0084 (1.1)	
I-121: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5185 (1.1); 7.4037 (0.6); 7.3890 (1.0); 7.3857 (0.7); 7.3829 (1.3); 7.3690 (1.4); 7.3639 (1.0); 7.3492 (1.2); 7.2597 (198.1); 7.1909 (0.8); 7.1884 (0.8); 7.1842 (0.8); 7.1819 (0.9); 7.1697 (1.4); 7.1670 (1.3); 7.1634 (1.2); 7.1608 (1.5); 7.1485 (0.9); 7.1393 (3.3); 7.1335 (1.1); 7.1275 (3.0); 7.1218 (2.0); 7.1162 (4.0); 7.1104 (1.2); 7.1045 (3.9); 7.0962 (0.6); 7.0783 (1.5); 7.0744 (2.2); 7.0719 (2.0); 7.0561 (3.7); 7.0529 (2.4); 7.0350 (1.3); 7.0292 (1.2); 7.0253 (1.3); 7.0171 (3.9); 7.0112 (1.2); 7.0055 (0.6); 6.9972 (4.2); 6.9942 (3.3); 6.9914 (1.4); 6.9800 (1.0); 6.9743 (2.7); 5.0798 (16.0); 4.9644 (1.4); 3.8227 (0.7); 3.0213 (0.8); 2.9521 (0.7); 2.1027 (3.4); 2.0449 (1.1); 1.2587 (0.8); 0.0080 (2.4); -0.0002 (84.0); -0.0085 (2.3)	10
I-122: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4991 (0.7); 7.4812 (0.6); 7.4744 (1.4); 7.4595 (0.8); 7.4560 (1.4); 7.4524 (0.7); 7.4304 (1.6); 7.4269 (0.8); 7.4154 (1.4); 7.4115 (2.9); 7.3980 (0.6); 7.3936 (1.4); 7.3903 (0.9); 7.3661 (0.6); 7.3634 (0.6); 7.3458 (0.6); 7.3229 (2.4); 7.3199 (2.8); 7.3161 (1.4); 7.3076 (0.7); 7.3025 (2.3); 7.2987 (1.6); 7.2602 (14.6); 7.2272 (0.6); 7.2119 (0.6); 7.2066 (1.3); 7.1913 (1.2); 7.1860 (0.8); 7.1708 (0.7); 7.0015 (0.5); 6.9993 (0.5); 6.9870 (0.8); 6.9850 (0.8); 6.9807 (0.9); 6.9787 (0.8); 6.9580 (0.6); 6.9356 (0.9); 6.9301 (1.3); 6.9246 (0.7); 6.9120 (0.7); 6.9066 (1.1); 6.9008 (0.6); 6.8438 (0.9); 6.8401 (0.8); 6.8235 (0.8); 6.8198 (0.7); 5.2972 (0.8); 5.0502 (2.0); 5.0368 (8.8); 3.8448 (3.7); 3.8317 (16.0); 3.8173 (0.8); -0.0002 (6.2)	20
I-123: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3660 (0.7); 7.3638 (0.5); 7.3507 (1.0); 7.3480 (0.8); 7.3451 (1.4); 7.3307 (1.6); 7.3259 (1.1); 7.3108 (1.2); 7.2917 (0.8); 7.2771 (0.9); 7.2719 (1.7); 7.2586 (40.0); 7.2524 (1.8); 7.2375 (1.2); 7.1246 (1.9); 7.1234 (1.9); 7.1137 (0.9); 7.1112 (1.0); 7.1047 (2.3); 7.0926 (1.3); 7.0898 (1.4); 7.0862 (1.2); 7.0837 (1.6); 7.0714 (0.7); 7.0690 (0.8); 7.0650 (0.9); 7.0625 (1.0); 7.0585 (3.1); 7.0528 (2.2); 7.0467 (3.3); 7.0412 (2.1); 7.0356 (6.7); 7.0322 (3.1); 7.0297 (2.8); 7.0238 (5.7); 7.0166 (4.8); 7.0131 (3.0); 7.0020 (1.5); 6.9950 (2.4); 6.9910 (1.6); 6.9846 (1.2); 6.9774 (1.4); 6.9694 (4.3); 6.9635 (1.2); 6.9574 (0.7); 6.9491 (4.5); 6.9434 (1.3); 6.9321 (0.9); 6.9264 (2.4); 5.2973 (1.9); 5.2422 (11.0); 4.9719 (16.0); 4.9277 (0.5); 3.8122 (0.9); 2.2706 (0.9); 1.5396 (2.0); 1.4318 (8.6); -0.0002 (16.0); -0.0085 (0.5)	30
I-124: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):	40

δ= 7.3669 (2.2); 7.3602 (2.0); 7.3517 (3.5); 7.3486 (3.3); 7.3419 (4.1); 7.3327 (2.3); 7.3272 (2.8); 7.3232 (2.0); 7.3178 (9.4); 7.3115 (7.0); 7.3060 (2.6); 7.3009 (3.1); 7.2960 (0.7); 7.2924 (0.7); 7.2576 (39.0); 7.1135 (0.8); 7.1111 (0.9); 7.1070 (0.9); 7.1047 (0.9); 7.0923 (1.3); 7.0899 (1.5); 7.0858 (1.4); 7.0835 (1.5); 7.0712 (0.6); 7.0688 (0.7); 7.0646 (0.7); 7.0624 (0.7); 7.0250 (3.1); 7.0206 (3.1); 7.0183 (2.2); 7.0138 (2.8); 7.0085 (2.0); 7.0029 (6.1); 6.9991 (2.4); 6.9971 (1.8); 6.9909 (5.5); 6.9840 (1.7); 6.9805 (1.2); 6.9673 (1.4); 6.9634 (1.4); 6.9612 (1.4); 6.9568 (1.4); 6.9484 (4.4); 6.9424 (1.2); 6.9362 (0.7); 6.9281 (4.7); 6.9224 (1.4); 6.9111 (0.9); 6.9053 (2.4); 5.2962 (1.1); 5.2548 (13.0); 4.9502 (16.0); 4.5006 (0.5); 1.5392 (2.0); 1.4317 (3.7); 0.0701 (2.0); -0.0002 (14.8)	10
I-127: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.5184 (2.0); 7.4222 (1.1); 7.4142 (5.0); 7.4107 (5.3); 7.4046 (2.1); 7.4004 (2.2); 7.3962 (3.4); 7.3873 (1.0); 7.3831 (1.2); 7.3774 (0.6); 7.3724 (0.6); 7.3072 (3.7); 7.3029 (4.1); 7.2960 (1.6); 7.2932 (1.8); 7.2906 (2.2); 7.2884 (2.3); 7.2829 (3.2); 7.2595 (362.7); 7.2239 (1.3); 7.2102 (0.6); 7.1940 (0.8); 7.1888 (1.6); 7.1734 (1.4); 7.1681 (1.0); 7.1531 (0.9); 6.9956 (2.1); 6.9611 (0.8); 6.9554 (1.4); 6.9497 (1.1); 6.9364 (1.5); 6.9305 (1.8); 6.9257 (1.2); 6.9157 (1.5); 6.9134 (1.6); 6.9094 (1.0); 6.8927 (0.9); 6.8886 (0.7); 6.8783 (1.3); 6.8582 (1.1); 6.8553 (1.0); 5.0006 (16.0); 2.0444 (0.5); 1.5663 (1.1); 1.2587 (0.7); 0.1579 (0.5); 0.0080 (4.5); -0.0002 (152.0); -0.0085 (5.7); -0.1495 (0.5)	20
I-128: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.5183 (0.7); 7.4275 (1.1); 7.4224 (1.7); 7.4145 (6.5); 7.4109 (7.2); 7.4048 (3.1); 7.4006 (2.8); 7.3964 (4.5); 7.3948 (4.0); 7.3876 (1.5); 7.3834 (1.7); 7.3775 (0.8); 7.3731 (1.0); 7.3094 (0.8); 7.2911 (5.0); 7.2869 (5.6); 7.2818 (2.8); 7.2798 (2.8); 7.2773 (2.7); 7.2744 (3.5); 7.2724 (3.8); 7.2669 (5.6); 7.2594 (119.9); 7.1937 (1.2); 7.1782 (1.3); 7.1733 (2.3); 7.1579 (2.1); 7.1532 (1.4); 7.1378 (1.2); 6.9954 (0.7); 6.9352 (1.0); 6.9299 (2.1); 6.9248 (1.7); 6.9163 (1.4); 6.9140 (1.6); 6.9104 (1.6); 6.9053 (2.2); 6.9002 (1.9); 6.8957 (2.3); 6.8933 (2.5); 6.8894 (1.5); 6.8870 (1.4); 6.8750 (1.1); 6.8728 (1.2); 6.8687 (1.0); 6.8641 (2.1); 6.8617 (2.1); 6.8594 (1.9); 6.8569 (1.6); 6.8436 (1.7); 6.8416 (1.7); 6.8389 (1.6); 4.9914 (16.0); 2.0450 (0.8); 1.2586 (0.6); 0.0080 (1.6); -0.0002 (49.6); -0.0085 (2.2)	30
I-129: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 10.5842 (0.5); 7.9716 (0.6); 7.9485 (0.7); 7.5190 (1.1); 7.5010 (1.3); 7.4975 (0.7); 7.4890 (0.7); 7.4822 (3.1); 7.4764 (0.9); 7.4675 (1.3); 7.4640 (2.5); 7.4605 (1.4); 7.4365 (2.6); 7.4332 (1.4); 7.4215 (2.3); 7.4177 (4.7); 7.4042 (0.8); 7.3998 (2.4); 7.3965 (1.5); 7.3672 (1.1); 7.3496 (1.2); 7.3325 (0.9); 7.3274 (3.8); 7.3245 (4.7); 7.3122 (1.1); 7.3070 (3.7); 7.3032 (2.6); 7.2600 (160.0); 7.2385 (0.9); 7.2235 (1.2); 7.2180 (1.9); 7.2103 (1.0); 7.2029 (1.9); 7.1974 (1.2); 7.1821 (1.2); 7.0335 (0.6); 7.0275 (0.7); 7.0177 (0.8); 7.0155 (0.8); 7.0092 (0.8); 6.9960 (2.0);	40

6.9906 (1.4); 6.9886 (1.4); 6.9761 (0.7); 6.9741 (0.7); 6.9701 (0.8); 6.9419 (1.2); 6.9366 (1.9); 6.9309 (1.1); 6.9184 (1.2); 6.9131 (1.8); 6.9073 (1.0); 6.8647 (1.5); 6.8612 (1.4); 6.8445 (1.2); 6.8410 (1.2); 6.0463 (0.5); 5.1063 (4.1); 5.0941 (16.0); 5.0017 (0.7); 4.9442 (1.0); 4.8496 (0.5); 3.7744 (0.7); 3.7639 (0.7); 3.7577 (1.8); 3.7411 (0.7); 3.6087 (0.6); 1.8751 (0.9); 1.8673 (0.8); 1.8586 (2.3); 1.8499 (0.8); 1.8420 (0.8); 0.0080 (2.2); -0.0002 (66.7); -0.0085 (2.1)	
I-130: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3316 (3.7); 7.3226 (5.0); 7.3158 (6.2); 7.3046 (2.9); 7.2955 (2.6); 7.2876 (1.4); 7.2825 (2.3); 7.2606 (8.2); 7.1666 (2.4); 7.1578 (2.5); 7.1536 (2.0); 7.1488 (2.0); 7.1426 (1.9); 7.0919 (2.2); 7.0705 (3.8); 7.0489 (1.8); 5.2969 (2.6); 5.2622 (0.6); 5.2448 (1.8); 5.2273 (1.8); 5.2099 (0.6); 3.7819 (16.0); 1.6914 (7.4); 1.6739 (7.3); 1.5622 (0.5); -0.0002 (3.0)	I-131: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5184 (1.1); 7.3920 (0.9); 7.3878 (1.1); 7.3730 (1.7); 7.3684 (2.4); 7.3550 (1.4); 7.3494 (2.1); 7.3440 (1.1); 7.3363 (1.2); 7.3283 (1.0); 7.3234 (0.8); 7.3159 (0.9); 7.3091 (1.0); 7.2595 (207.3); 7.2122 (1.6); 7.1945 (2.0); 7.1731 (0.9); 7.1416 (1.9); 7.1369 (1.2); 7.1202 (2.2); 7.1095 (1.3); 7.0999 (1.6); 7.0957 (2.6); 7.0908 (1.3); 7.0750 (1.2); 7.0605 (1.3); 7.0571 (1.1); 7.0357 (2.0); 7.0145 (1.2); 7.0062 (1.0); 7.0023 (1.1); 6.9956 (2.3); 6.9916 (1.2); 6.9796 (0.8); 6.9708 (0.8); 4.8919 (16.0); 4.2949 (2.0); 4.2771 (6.3); 4.2592 (6.5); 4.2414 (2.3); 4.2306 (0.9); 4.0988 (0.5); 1.5367 (14.5); 1.3058 (7.5); 1.2879 (14.9); 1.2701 (7.8); 1.2543 (1.8); 0.0080 (2.5); -0.0002 (74.4); -0.0083 (3.0)
I-132: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.2775 (1.0); 7.2722 (0.9); 7.2593 (47.0); 7.2421 (1.1); 7.2364 (1.2); 7.2223 (0.7); 7.1101 (0.9); 7.1062 (1.3); 7.0888 (0.9); 7.0858 (0.7); 7.0730 (0.9); 7.0513 (1.4); 7.0294 (0.7); 5.2640 (0.8); 5.2466 (0.8); 3.7878 (7.6); 1.6968 (3.2); 1.6793 (3.2); 1.5355 (16.0); 0.0079 (0.6); -0.0002 (17.6); -0.0084 (0.7)	I-133: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3813 (0.8); 7.3769 (1.0); 7.3621 (1.4); 7.3577 (2.0); 7.3480 (0.7); 7.3433 (1.4); 7.3392 (1.9); 7.3287 (1.2); 7.3242 (0.7); 7.3204 (1.0); 7.3160 (0.7); 7.3083 (0.8); 7.3039 (0.8); 7.2597 (38.3); 7.2558 (2.1); 7.2066 (0.9); 7.2031 (1.2); 7.1873 (1.5); 7.1856 (1.4); 7.1837 (1.4); 7.1681 (0.7); 7.1645 (0.6); 7.1485 (0.9); 7.1432 (1.1); 7.1377 (0.9); 7.1298 (1.0); 7.1244 (1.1); 7.1214 (1.1); 7.1164 (2.3); 7.1127 (1.0); 7.1027 (0.9); 7.0968 (1.7); 7.0917 (1.4); 7.0712 (1.1); 7.0532 (1.1); 7.0498 (1.0); 7.0325 (1.0); 7.0285 (1.7); 7.0247 (1.1); 7.0096 (1.0); 7.0066 (1.5); 7.0043 (1.6); 6.9991 (1.0); 6.9955 (1.2); 6.9902 (0.8); 6.9847 (0.7); 6.9793 (0.6); 6.9740 (0.6); 6.9688 (0.5); 4.8903 (14.9); 4.8862 (1.6); 4.2919 (1.9); 4.2741 (6.0); 4.2703 (0.7); 4.2563 (6.0); 4.2525 (0.6); 4.2385 (2.0); 1.5438 (13.1); 1.5400 (0.7); 1.3038 (8.0); 1.3005 (1.0); 1.2860 (16.0);

10

20

30

40

50

1.2826 (1.8); 1.2682 (9.1); 1.2647 (2.6); 0.8987 (1.1); 0.8817 (4.0); 0.8640 (1.5); -0.0002 (13.9); -0.0040 (0.8)	
I-134: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3790 (0.5); 7.3637 (1.0); 7.3572 (1.0); 7.3484 (0.6); 7.3423 (2.0); 7.3361 (0.7); 7.3268 (1.0); 7.3209 (1.2); 7.3057 (0.6); 7.2600 (30.0); 7.1873 (0.9); 7.1820 (1.0); 7.1686 (1.0); 7.1608 (1.2); 7.1553 (1.1); 7.1505 (1.0); 7.1418 (1.0); 7.1367 (1.1); 7.1293 (1.7); 7.1257 (1.0); 7.1091 (1.3); 7.1044 (1.6); 7.0843 (1.2); 7.0504 (0.8); 7.0459 (1.1); 7.0400 (1.2); 7.0352 (1.2); 7.0311 (0.9); 7.0251 (0.8); 7.0191 (0.7); 7.0145 (0.7); 6.9554 (3.0); 6.9370 (4.0); 6.9340 (4.0); 6.9156 (2.6); 4.8743 (16.0); 4.2811 (2.0); 4.2632 (6.3); 4.2454 (6.4); 4.2275 (2.1); 1.5445 (11.0); 1.3037 (0.7); 1.2900 (7.9); 1.2722 (16.0); 1.2543 (7.9); 0.8982 (1.2); 0.8815 (3.8); 0.8638 (1.6); 0.0079 (0.5); -0.0002 (15.1); -0.0084 (0.7)	10
I-135: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.2791 (1.0); 7.2736 (0.6); 7.2654 (1.6); 7.2594 (33.1); 7.2495 (1.1); 7.2437 (1.4); 7.2367 (1.5); 7.2317 (0.7); 7.2215 (0.6); 7.2176 (1.4); 7.2007 (0.8); 7.1971 (0.5); 7.1832 (0.7); 7.0837 (1.3); 7.0797 (2.0); 7.0778 (1.7); 7.0665 (0.7); 7.0595 (1.4); 7.0556 (2.1); 7.0508 (0.5); 7.0338 (1.0); 3.7461 (10.0); 2.9553 (0.6); 2.8833 (0.5); 2.7723 (1.4); 1.7553 (16.0); 1.5440 (1.2); 0.0080 (0.6); -0.0002 (16.8); -0.0084 (0.7)	20
I-136: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3977 (0.9); 7.3935 (1.1); 7.3785 (1.7); 7.3744 (2.1); 7.3663 (0.7); 7.3591 (1.5); 7.3552 (1.8); 7.3518 (1.3); 7.3472 (0.9); 7.3392 (1.1); 7.3336 (1.0); 7.3311 (1.0); 7.3267 (0.8); 7.3188 (0.9); 7.3144 (0.7); 7.2597 (43.0); 7.2129 (1.3); 7.1935 (1.9); 7.1759 (0.8); 7.1506 (1.0); 7.1450 (1.7); 7.1319 (1.1); 7.1237 (2.8); 7.1190 (1.8); 7.1033 (1.8); 7.0993 (2.4); 7.0782 (1.1); 7.0597 (1.3); 7.0565 (1.2); 7.0388 (1.3); 7.0351 (2.0); 7.0314 (1.3); 7.0139 (1.9); 7.0105 (2.0); 7.0037 (1.2); 6.9996 (1.2); 6.9950 (1.0); 6.9886 (0.8); 6.9824 (0.8); 6.9780 (0.7); 6.9733 (0.5); 4.9654 (16.0); 4.1318 (1.2); 4.1140 (1.2); 2.0453 (5.5); 1.4318 (0.7); 1.2764 (1.5); 1.2585 (2.9); 1.2407 (1.4); 0.0079 (0.8); -0.0002 (22.6); -0.0083 (1.0)	30
I-137: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3871 (0.5); 7.3718 (1.0); 7.3656 (0.9); 7.3565 (0.6); 7.3504 (1.9); 7.3442 (0.6); 7.3351 (0.9); 7.3290 (1.1); 7.3137 (0.6); 7.2607 (30.4); 7.1884 (0.9); 7.1831 (0.9); 7.1696 (0.9); 7.1643 (1.1); 7.1618 (1.1); 7.1562 (1.6); 7.1430 (0.9); 7.1349 (1.6); 7.1311 (0.9); 7.1147 (1.3); 7.1099 (1.4); 7.0900 (1.1); 7.0533 (0.8); 7.0497 (0.9); 7.0428 (1.0); 7.0393 (1.0); 7.0341 (0.8); 7.0284 (0.6); 7.0232 (0.6); 7.0179 (0.6); 6.9709 (0.5); 6.9655 (1.2); 6.9626 (2.8); 6.9442 (3.7); 6.9411 (3.5); 6.9360 (0.6); 6.9229 (2.4); 6.9198 (1.0); 5.2985 (4.2); 4.9432 (16.0); 3.7819 (0.8); 3.7783 (3.0); 3.7763 (2.0); 3.7720 (1.9); 3.7699 (1.6); 3.7679 (2.5); 3.7617 (7.5); 3.7556 (2.6); 3.7513	40

10

20

30

40

50

(1.9); 3.7470 (2.0); 3.7450 (3.1); 3.7415 (0.7); 1.8763 (3.0); 1.8685 (2.8); 1.8643 (2.0); 1.8597 (9.0); 1.8549 (2.1); 1.8508 (2.8); 1.8430 (3.0); 1.8391 (0.7); 1.4319 (0.8); -0.0002 (17.0); -0.0085 (0.7)	
I-138: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5182 (1.6); 7.3446 (0.8); 7.2593 (301.4); 7.2485 (9.6); 7.2465 (9.6); 7.2399 (4.8); 7.2360 (6.9); 7.2315 (7.1); 7.2273 (14.9); 7.2187 (8.3); 7.2140 (8.9); 7.2085 (2.4); 7.2024 (3.5); 7.1831 (1.1); 7.1687 (0.6); 7.1120 (6.8); 7.1079 (8.6); 7.1022 (2.5); 7.0955 (3.6); 7.0910 (6.9); 7.0877 (5.7); 7.0612 (6.7); 7.0558 (2.4); 7.0394 (10.5); 7.0231 (2.0); 7.0177 (5.3); 6.9952 (1.6); 5.2993 (1.2); 5.2821 (4.4); 5.2646 (4.5); 5.2472 (1.2); 3.8179 (1.1); 1.7194 (16.0); 1.7020 (16.0); 1.4318 (0.7); 1.2557 (1.0); 0.1462 (0.5); 0.0080 (5.0); -0.0002 (159.4); -0.0084 (5.4); -0.1498 (0.6)	10
I-139: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 19.9731 (0.8); 7.5183 (2.5); 7.3101 (0.9); 7.2930 (1.7); 7.2879 (2.5); 7.2711 (13.4); 7.2594 (475.1); 7.2526 (17.5); 7.2436 (7.6); 7.2360 (6.9); 7.2274 (3.8); 7.2094 (2.5); 7.1355 (6.0); 7.1314 (7.6); 7.1145 (6.1); 7.1113 (5.1); 7.0781 (6.1); 7.0564 (9.6); 7.0345 (4.8); 6.9954 (2.5); 5.3315 (1.2); 5.3139 (4.4); 5.2965 (4.5); 5.2788 (1.3); 1.7459 (15.8); 1.7284 (16.0); 1.2562 (0.8); 0.1458 (0.9); 0.0079 (8.1); -0.0002 (246.6); -0.0084 (8.8); -0.0499 (0.9); -0.1499 (0.9)	20
I-140: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5189 (0.8); 7.2600 (132.6); 7.2336 (4.5); 7.2164 (2.5); 7.1101 (2.3); 7.0932 (2.1); 7.0732 (1.7); 7.0520 (2.8); 7.0304 (1.4); 6.9960 (0.8); 2.0043 (0.9); 1.7788 (16.0); 1.2553 (0.7); 0.0079 (3.3); -0.0002 (78.0); -0.0084 (4.2)	
I-141: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3390 (0.7); 7.3319 (2.8); 7.3229 (3.6); 7.3156 (4.9); 7.3046 (2.2); 7.2997 (1.2); 7.2952 (2.2); 7.2877 (1.0); 7.2823 (2.0); 7.2602 (10.9); 7.1667 (1.9); 7.1576 (1.9); 7.1533 (1.4); 7.1487 (1.5); 7.1459 (1.1); 7.1423 (1.6); 7.0922 (2.0); 7.0869 (0.7); 7.0707 (3.2); 7.0661 (0.9); 7.0542 (0.6); 7.0490 (1.6); 5.2973 (1.3); 5.2446 (1.7); 5.2271 (1.7); 5.2097 (0.5); 3.7821 (16.0); 1.6915 (6.8); 1.6740 (6.8); 1.5553 (0.5); -0.0002 (4.2)	30
I-146: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3732 (1.0); 7.3668 (0.8); 7.3580 (0.6); 7.3518 (2.0); 7.3455 (0.7); 7.3363 (0.9); 7.3304 (1.2); 7.3151 (0.6); 7.2650 (0.5); 7.2592 (51.0); 7.1808 (0.8); 7.1756 (0.9); 7.1622 (0.9); 7.1545 (1.7); 7.1488 (1.1); 7.1347 (1.8); 7.1300 (1.8); 7.1135 (1.2); 7.1087 (1.4); 7.0887 (1.1); 7.0460 (0.7); 7.0410 (0.8); 7.0354 (1.0); 7.0318 (1.0); 7.0266 (0.8); 7.0209 (0.7); 7.0157 (0.6); 7.0104 (0.6); 6.9772 (0.9); 6.9730 (0.6); 6.9673 (1.1); 6.9644 (2.9); 6.9513 (0.6); 6.9460 (3.7); 6.9429 (3.7); 6.9247 (2.6); 6.9216 (1.1); 6.9164 (0.5); 5.9521 (0.6); 5.9380 (1.2); 5.9260 (0.7); 5.9239	40

10

20

30

40

50

(0.7); 5.9118 (1.3); 5.9092 (0.8); 5.8976 (0.7); 5.8950 (1.4); 5.8829 (0.8); 5.8809 (0.8); 5.8688 (1.4); 5.8547 (0.7); 5.3471 (0.7); 5.3433 (2.0); 5.3396 (2.1); 5.3358 (0.9); 5.3042 (0.6); 5.3003 (1.7); 5.2966 (1.9); 5.2928 (0.8); 5.2365 (0.8); 5.2334 (2.1); 5.2301 (2.2); 5.2269 (0.9); 5.2104 (0.8); 5.2072 (2.0); 5.2039 (2.1); 5.2007 (0.9); 5.0015 (0.7); 4.9177 (15.3); 4.7050 (2.4); 4.7015 (4.0); 4.6981 (2.7); 4.6909 (2.6); 4.6874 (4.0); 4.6839 (2.7); 2.2705 (1.7); 1.5390 (4.2); 1.4319 (16.0); 1.2559 (0.9); 0.0080 (0.5); -0.0002 (19.1); -0.0085 (0.9)	
I-149: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4454 (0.5); 7.4300 (1.1); 7.4238 (1.0); 7.4146 (0.6); 7.4085 (2.0); 7.4024 (0.7); 7.3931 (1.0); 7.3869 (1.2); 7.3716 (0.6); 7.2596 (76.5); 7.2239 (1.0); 7.2190 (0.9); 7.2057 (0.9); 7.1994 (1.3); 7.1931 (0.9); 7.1770 (1.3); 7.1559 (1.5); 7.1525 (1.0); 7.1362 (1.4); 7.1312 (1.4); 7.1119 (1.2); 7.0784 (1.0); 7.0726 (1.0); 7.0678 (1.0); 7.0569 (0.7); 7.0513 (0.6); 7.0467 (0.6); 6.9957 (0.5); 6.9870 (1.5); 6.9835 (2.6); 6.9654 (3.8); 6.9619 (3.8); 6.9438 (2.3); 6.9401 (1.3); 5.9436 (0.5); 5.9293 (1.1); 5.9174 (0.7); 5.9151 (0.6); 5.9032 (1.3); 5.9009 (0.8); 5.8887 (0.8); 5.8863 (1.4); 5.8744 (0.8); 5.8721 (0.8); 5.8602 (1.4); 5.8459 (0.7); 5.3474 (0.8); 5.3437 (2.2); 5.3400 (2.2); 5.3363 (0.9); 5.3044 (0.7); 5.3007 (1.9); 5.2971 (2.0); 5.2933 (0.8); 5.2412 (0.9); 5.2382 (2.3); 5.2351 (2.2); 5.2320 (0.9); 5.2151 (0.9); 5.2121 (2.1); 5.2090 (2.1); 5.2059 (0.8); 5.0047 (16.0); 4.7072 (2.9); 4.7038 (4.7); 4.7004 (2.9); 4.6929 (3.0); 4.6895 (4.6); 4.6861 (2.8); 1.5355 (14.9); 1.4319 (1.3); 0.0078 (0.8); -0.0002 (27.7); -0.0086 (1.2)	10 20
I-150: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6062 (2.4); 7.5988 (2.4); 7.5721 (2.3); 7.5649 (2.4); 7.5109 (1.6); 7.4967 (1.1); 7.4828 (3.8); 7.4756 (1.7); 7.4686 (2.2); 7.4555 (3.2); 7.4465 (3.0); 7.4401 (2.1); 7.4183 (1.8); 7.4054 (4.2); 7.4027 (4.1); 7.3983 (2.8); 7.3769 (1.9); 7.3732 (2.3); 7.2294 (1.0); 7.2230 (1.0); 7.2016 (1.8); 7.1950 (1.7); 7.1753 (0.8); 7.1669 (0.8); 4.9336 (12.6); 4.2054 (2.2); 4.1817 (6.8); 4.1580 (6.9); 4.1344 (2.2); 3.3214 (19.8); 2.5141 (10.6); 2.5085 (19.2); 2.5026 (24.1); 2.4968 (16.6); 1.9894 (0.8); 1.2348 (0.5); 1.2119 (7.8); 1.1883 (16.0); 1.1750 (1.2); 1.1646 (7.3); 1.1514 (0.4); 0.0107 (0.8); 0.0000 (15.2); -0.0110 (0.6)	30
I-151: ¹H-NMR(300.3 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6216 (4.0); 7.5923 (3.8); 7.5816 (3.3); 7.5246 (2.0); 7.4965 (4.6); 7.4691 (3.5); 7.4334 (4.1); 7.4117 (13.2); 7.3817 (3.0); 4.9452 (15.7); 4.2088 (2.5); 4.1852 (7.7); 4.1615 (7.8); 4.1379 (2.6); 3.3717 (41.8); 3.3661 (39.4); 2.5111 (5.1); 2.0832 (0.4); 1.2304 (1.2); 1.2138 (8.0); 1.1902 (16.0); 1.1666 (7.7); -0.0001 (0.4)	
I-152: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.7620 (4.8); 7.7572 (4.5); 7.6027 (2.6); 7.5973 (2.6); 7.5672 (4.0); 7.5385 (8.3); 7.5283 (5.2); 7.5061 (0.7); 7.4997 (0.8); 7.4262 (0.9); 7.3983 (3.7); 7.3806 (8.3); 7.3586 (0.7); 7.3524	40

(0.6); 4.9164 (13.0); 4.1929 (2.3); 4.1692 (7.0); 4.1455 (7.1); 4.1219 (2.4); 3.3282 (74.2); 2.5100 (10.8); 2.5043 (13.2); 2.4986 (9.3); 1.2333 (1.1); 1.2086 (7.8); 1.1849 (16.0); 1.1612 (7.4); 0.0001 (5.4)	
I-153: ¹ H-NMR(300.1 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.7512 (6.5); 7.7478 (6.6); 7.5704 (1.7); 7.5419 (8.8); 7.5332 (7.4); 7.5040 (1.5); 7.4986 (1.5); 7.4798 (1.4); 7.4518 (2.9); 7.4287 (3.3); 7.4230 (3.4); 7.4018 (2.1); 7.3823 (3.1); 7.3547 (1.7); 7.3481 (1.7); 7.2075 (1.7); 7.2021 (1.7); 7.1796 (3.0); 7.1520 (1.6); 4.9238 (15.8); 4.1992 (2.6); 4.1757 (7.6); 4.1521 (7.8); 4.1286 (2.8); 3.3512 (38.7); 2.5127 (4.4); 2.0834 (0.4); 1.2335 (1.7); 1.2137 (8.4); 1.1901 (16.0); 1.1665 (8.0); 0.0003 (0.6)	10
I-154: ¹ H-NMR(300.1 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.7772 (5.7); 7.7711 (5.5); 7.6052 (2.7); 7.5981 (2.7); 7.5709 (2.7); 7.5643 (2.8); 7.5520 (1.9); 7.5455 (1.6); 7.5242 (4.8); 7.5177 (4.6); 7.4951 (6.6); 7.4671 (2.8); 7.4343 (3.7); 7.4081 (3.4); 7.3831 (3.7); 7.3772 (3.2); 7.3539 (1.5); 7.3481 (1.4); 4.9380 (13.6); 4.2073 (2.3); 4.1836 (6.9); 4.1599 (7.0); 4.1363 (2.3); 3.3233 (22.0); 2.5089 (14.2); 2.5034 (17.3); 2.4980 (12.4); 1.2328 (0.8); 1.2144 (7.9); 1.1907 (16.0); 1.1671 (7.5); 0.0001 (7.2)	20
I-155: ¹ H-NMR(300.1 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.6142 (2.7); 7.6058 (2.8); 7.5957 (2.9); 7.5878 (3.5); 7.5855 (3.4); 7.5763 (2.8); 7.5614 (2.9); 7.5549 (4.2); 7.5346 (2.2); 7.5262 (2.5); 7.5060 (2.3); 7.4557 (1.6); 7.4274 (3.5); 7.4013 (3.4); 7.3766 (3.4); 7.3695 (3.1); 7.3604 (1.9); 7.3514 (2.0); 7.3395 (1.7); 7.3322 (2.7); 7.3236 (2.3); 7.3038 (1.2); 7.2952 (1.0); 4.9360 (13.0); 4.2077 (2.2); 4.1840 (6.8); 4.1604 (6.9); 4.1367 (2.3); 3.3199 (10.7); 2.5089 (10.6); 2.5031 (13.2); 2.4973 (9.0); 2.0757 (2.8); 1.2151 (7.8); 1.1915 (16.0); 1.1678 (7.4); -0.0001 (7.8); -0.0111 (0.3)	
I-156: ¹ H-NMR(300.1 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.5759 (3.7); 7.5497 (6.4); 7.5414 (3.2); 7.5227 (2.9); 7.4206 (2.8); 7.4169 (2.6); 7.3919 (2.2); 7.3874 (2.2); 7.3776 (2.5); 7.3699 (1.5); 7.3586 (3.3); 7.3478 (5.6); 7.3370 (2.5); 7.3295 (5.0); 7.3073 (5.2); 7.2778 (6.9); 7.2482 (2.4); 4.9203 (14.1); 4.2024 (2.3); 4.1788 (7.1); 4.1551 (7.2); 4.1315 (2.4); 3.3288 (66.3); 2.5094 (9.8); 2.5039 (12.1); 2.4984 (8.8); 1.2341 (1.6); 1.2108 (8.0); 1.1872 (16.0); 1.1635 (7.6); 0.0001 (2.4)	30
I-157: ¹ H-NMR(300.1 MHz, d ₆ -DMSO): δ= 7.5937 (2.5); 7.5859 (3.2); 7.5593 (3.6); 7.5544 (5.7); 7.5258 (8.1); 7.5191 (2.6); 7.5030 (3.0); 7.4968 (8.3); 7.4889 (1.3); 7.4313 (2.3); 7.4278 (2.4); 7.4238 (2.2); 7.4026 (1.6); 7.3991 (1.7); 7.3952 (1.5); 7.3320 (8.2); 7.3256 (2.7); 7.3096 (2.6); 7.3034 (6.1); 4.9243 (12.8); 4.2026	40

10

20

30

40

50

(2.2); 4.1790 (6.9); 4.1553 (7.0); 4.1316 (2.3); 3.3336 (64.1); 2.5107 (6.4); 2.5049 (8.0); 2.4992 (5.6); 2.0768 (1.4); 1.2340 (0.7); 1.2105 (7.7); 1.1868 (16.0); 1.1631 (7.4); 0.0000 (1.3)	
I-158: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.7502 (5.8); 7.7429 (5.9); 7.6476 (3.9); 7.6192 (6.5); 7.5476 (4.1); 7.5401 (3.7); 7.5191 (2.5); 7.5117 (2.3); 7.3687 (2.8); 7.3618 (1.9); 7.3499 (4.0); 7.3394 (6.0); 7.3212 (5.2); 7.2903 (5.3); 7.2609 (7.3); 7.2315 (2.7); 5.0201 (0.4); 4.9040 (14.6); 4.1908 (2.5); 4.1672 (7.3); 4.1435 (7.5); 4.1199 (2.7); 4.0964 (0.3); 3.3330 (31.8); 2.5116 (6.2); 2.5066 (7.2); 1.2335 (1.6); 1.2083 (8.2); 1.1847 (16.0); 1.1611 (7.8); 1.1294 (0.4); 0.0003 (1.3)	10
I-159: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.7576 (5.5); 7.7502 (5.6); 7.6480 (3.6); 7.6196 (6.3); 7.5537 (4.0); 7.5461 (3.6); 7.5253 (2.5); 7.5175 (2.9); 7.5070 (6.5); 7.5008 (2.6); 7.4845 (3.4); 7.4785 (8.5); 7.3172 (8.5); 7.3108 (2.8); 7.2947 (2.8); 7.2887 (6.2); 4.9041 (12.8); 4.1888 (2.2); 4.1652 (6.9); 4.1415 (7.0); 4.1178 (2.3); 3.6856 (0.3); 3.3222 (13.8); 2.5099 (7.6); 2.5041 (9.3); 2.4984 (6.5); 2.0767 (0.4); 1.2357 (0.6); 1.2062 (7.8); 1.1826 (16.0); 1.1589 (7.4); 0.0001 (4.6)	
I-160: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6095 (2.5); 7.6034 (2.4); 7.5767 (2.5); 7.5709 (2.5); 7.5538 (1.6); 7.5265 (3.3); 7.5010 (3.0); 7.4685 (3.8); 7.4623 (3.2); 7.4406 (1.8); 7.4344 (1.6); 7.2690 (0.8); 7.2384 (8.9); 7.2330 (8.4); 7.2134 (16.0); 7.1843 (0.5); 7.1651 (0.4); 7.1563 (0.3); 7.1257 (0.3); 4.9655 (11.9); 4.2257 (2.2); 4.2020 (6.4); 4.1784 (6.5); 4.1547 (2.2); 3.3449 (33.4); 2.5140 (3.1); 2.5086 (3.7); 1.2300 (7.6); 1.2064 (14.3); 1.1827 (6.8); 0.0000 (0.5)	20
I-161: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6310 (2.4); 7.6246 (2.5); 7.5980 (2.4); 7.5920 (2.5); 7.5638 (1.5); 7.5363 (3.4); 7.5112 (3.2); 7.4849 (4.2); 7.4785 (4.2); 7.4679 (6.9); 7.4607 (2.9); 7.4576 (2.6); 7.4504 (2.5); 7.4455 (3.0); 7.4384 (8.2); 7.4284 (1.1); 7.2008 (1.2); 7.1908 (8.0); 7.1837 (2.5); 7.1680 (2.6); 7.1613 (6.5); 7.1509 (0.7); 4.9686 (11.8); 4.2225 (2.1); 4.1988 (6.9); 4.1751 (7.0); 4.1514 (2.3); 3.5005 (0.3); 3.3950 (0.6); 3.3352 (356.2); 2.5090 (22.0); 2.5032 (28.0); 2.4974 (19.7); 1.2275 (8.2); 1.2038 (16.0); 1.1802 (7.4); 0.8535 (0.4); 0.0000 (9.7); -0.0111 (0.5)	30
I-162: ¹H-NMR(300.1 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6365 (1.6); 7.6176 (1.8); 7.6062 (2.6); 7.6009 (3.5); 7.5906 (5.4); 7.5724 (2.8); 7.5630 (4.3); 7.4204 (0.9); 7.3928 (3.3); 7.3732 (7.0); 7.3553 (1.8); 7.3457 (1.8); 7.3280 (2.0); 7.3185 (1.8); 7.2989 (1.2); 7.2894 (1.0); 4.9134 (12.5); 4.8877 (0.4); 4.1929 (2.2); 4.1693 (6.8); 4.1456 (6.8); 4.1220 (2.2); 3.3288 (67.9); 2.5101 (8.3); 2.5042 (10.5); 2.4984 (7.3); 1.2342 (1.5); 1.2086 (7.8); 1.1850 (16.0); 1.1613 (7.4); -0.0001 (2.0)	40

10

20

30

40

50

I-163: $^1\text{H-NMR}$(300.1 MHz, $\text{d}_6\text{-DMSO}$): δ= 7.6120 (2.4); 7.6063 (2.4); 7.5765 (2.8); 7.5730 (2.8); 7.5522 (1.2); 7.5428 (2.0); 7.5230 (2.0); 7.5134 (1.2); 7.4936 (1.1); 7.4446 (1.5); 7.4349 (1.5); 7.4209 (3.7); 7.4143 (2.3); 7.4005 (8.4); 7.3788 (1.5); 7.3695 (1.8); 7.2229 (0.9); 7.2181 (1.0); 7.2137 (0.9); 7.1912 (1.6); 7.1658 (0.8); 7.1613 (0.8); 7.1570 (0.7); 7.1525 (0.6); 4.9291 (12.8); 4.2037 (2.3); 4.1800 (6.9); 4.1564 (7.0); 4.1327 (2.2); 3.5477 (0.5); 3.3191 (18.5); 2.5137 (8.6); 2.5082 (15.6); 2.5024 (19.4); 2.4965 (13.3); 1.2098 (7.8); 1.1861 (16.0); 1.1625 (7.3); -0.0001 (11.6); -0.0112 (0.5)	10
I-164: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.7645 (0.6); 7.3332 (0.5); 7.3277 (0.8); 7.3131 (0.8); 7.3079 (0.7); 7.2928 (0.9); 7.2872 (0.8); 7.2701 (2.3); 7.2663 (1.2); 7.2638 (1.5); 7.2586 (26.8); 7.2515 (3.0); 7.2441 (1.1); 7.2400 (1.5); 7.2361 (1.0); 7.2231 (1.0); 7.1329 (1.8); 7.1289 (2.6); 7.1233 (0.7); 7.1162 (1.0); 7.1117 (1.9); 7.1088 (1.6); 7.0716 (0.6); 7.0692 (0.8); 7.0653 (0.8); 7.0628 (0.9); 7.0557 (0.9); 7.0518 (1.3); 7.0495 (1.0); 7.0417 (0.5); 7.0365 (0.7); 7.0330 (1.2); 7.0302 (0.9); 7.0269 (0.8); 7.0209 (0.7); 7.0034 (0.7); 6.9994 (0.7); 6.9936 (0.5); 5.2688 (1.6); 5.2513 (1.7); 3.7889 (16.0); 3.7719 (1.7); 1.6994 (6.7); 1.6868 (1.2); 1.6819 (6.7); 1.6695 (0.8); 1.5352 (2.4); -0.0002 (9.7)	20
I-165: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.7643 (0.9); 7.3183 (0.6); 7.3018 (2.1); 7.2981 (0.9); 7.2955 (0.9); 7.2871 (1.1); 7.2833 (2.5); 7.2784 (1.0); 7.2742 (1.7); 7.2703 (1.1); 7.2587 (17.6); 7.1355 (1.8); 7.1314 (2.4); 7.1258 (0.7); 7.1189 (1.0); 7.1144 (2.0); 7.1113 (1.6); 6.8371 (0.6); 6.8219 (2.1); 6.8165 (2.5); 6.8065 (1.3); 6.7991 (3.6); 5.2968 (1.1); 5.2595 (1.6); 5.2421 (1.7); 5.2247 (0.5); 3.7853 (16.0); 3.7721 (2.7); 1.6969 (6.7); 1.6869 (1.5); 1.6794 (6.6); 1.6695 (1.3); 1.5430 (2.1); -0.0002 (6.3)	30
I-166: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.4230 (0.7); 7.4202 (0.5); 7.4180 (0.6); 7.4094 (0.5); 7.4071 (0.5); 7.4049 (0.6); 7.4023 (0.7); 7.3169 (0.9); 7.3131 (0.9); 7.2991 (0.7); 7.2948 (0.6); 7.2586 (17.3); 7.2401 (2.3); 7.2361 (1.1); 7.2345 (1.1); 7.2250 (1.2); 7.2212 (2.8); 7.2116 (1.6); 7.2091 (1.6); 7.2071 (1.8); 7.2032 (1.1); 7.1929 (1.8); 7.1903 (2.6); 7.1743 (0.9); 7.1714 (0.9); 7.1467 (2.2); 7.1427 (3.1); 7.1370 (0.7); 7.1298 (1.1); 7.1254 (1.9); 7.1224 (1.5); 7.0927 (0.7); 7.0904 (0.7); 7.0690 (1.2); 7.0475 (0.6); 7.0454 (0.6); 5.2967 (2.0); 5.2928 (0.6); 5.2753 (1.8); 5.2579 (1.8); 5.2405 (0.5); 3.7949 (16.0); 1.7042 (7.4); 1.6868 (7.3); 1.5386 (1.0); -0.0002 (9.6)	40
I-169: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3538 (0.6); 7.3476 (0.6); 7.3323 (1.0); 7.3171 (0.6); 7.3109 (0.6); 7.2602 (28.6); 7.2514 (0.8); 7.2481 (0.6); 7.1750 (0.6); 7.1536 (0.6); 7.1481 (0.6); 7.1445 (0.5); 7.1348 (0.5); 7.1296 (0.6); 7.1233 (0.9); 7.1195 (0.5); 7.1033 (0.7); 7.0983 (0.8); 7.0783 (0.6); 7.0355 (0.5); 7.0289	

(0.6); 7.0248 (0.5); 6.9246 (0.7); 5.1950 (1.6); 5.1777 (1.6); 3.7529 (16.0); 1.6837 (6.5); 1.6663 (6.4); 1.5409 (1.9); 0.0079 (0.7); -0.0002 (18.0); -0.0086 (0.9)	
I-176: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4057 (3.0); 7.4014 (2.7); 7.3945 (1.1); 7.3923 (1.0); 7.3878 (1.6); 7.3864 (1.4); 7.3757 (0.6); 7.3010 (1.8); 7.2966 (2.0); 7.2903 (0.6); 7.2891 (0.7); 7.2877 (0.6); 7.2851 (0.8); 7.2829 (0.8); 7.2766 (1.4); 7.2601 (32.2); 7.1584 (0.9); 7.1428 (0.8); 7.1381 (0.5); 6.9279 (0.8); 6.9226 (0.6); 6.9029 (1.3); 6.8970 (0.8); 6.8845 (0.8); 6.8822 (0.9); 6.8781 (0.6); 6.8758 (0.5); 6.8323 (0.7); 6.8301 (0.7); 6.8274 (0.6); 6.8252 (0.6); 6.8120 (0.6); 6.8099 (0.6); 6.8070 (0.6); 5.2991 (5.6); 5.2536 (1.5); 5.2362 (1.5); 3.8008 (16.0); 2.7744 (3.0); 1.7044 (6.2); 1.6870 (6.1); 1.5997 (0.9); 0.0080 (0.6); -0.0002 (18.5)	10
I-177: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4213 (1.2); 7.4167 (1.6); 7.4078 (7.3); 7.4045 (7.9); 7.3986 (2.9); 7.3937 (2.6); 7.3897 (4.8); 7.3806 (1.2); 7.3763 (1.6); 7.3707 (0.5); 7.3666 (0.8); 7.3456 (0.7); 7.3004 (1.1); 7.2951 (5.7); 7.2909 (5.8); 7.2862 (2.2); 7.2842 (1.9); 7.2812 (1.8); 7.2782 (2.6); 7.2761 (3.1); 7.2709 (3.8); 7.2600 (22.9); 7.1810 (1.3); 7.1655 (1.2); 7.1605 (2.6); 7.1449 (2.4); 7.1401 (1.4); 7.1247 (1.3); 6.9274 (1.3); 6.9219 (2.7); 6.9167 (2.0); 6.9061 (1.5); 6.9037 (2.3); 6.8973 (3.0); 6.8922 (2.2); 6.8855 (2.2); 6.8832 (2.6); 6.8792 (1.3); 6.8769 (1.3); 6.8622 (3.2); 6.8592 (2.6); 6.8570 (2.3); 6.8416 (1.9); 6.8395 (1.8); 6.8367 (1.6); 6.8346 (1.3); 6.0115 (1.1); 5.3340 (1.2); 5.3165 (4.5); 5.3024 (0.9); 5.2990 (4.5); 5.2815 (1.2); 1.7566 (16.0); 1.7391 (15.8); 1.7038 (1.2); 1.6864 (1.2); 0.0080 (0.8); -0.0002 (29.9); -0.0085 (0.9)	20
I-178: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4466 (0.6); 7.4404 (0.6); 7.4251 (1.1); 7.4099 (0.6); 7.4036 (0.6); 7.2615 (16.5); 7.1948 (0.7); 7.1755 (0.6); 7.1708 (1.1); 7.1660 (0.6); 7.1527 (0.8); 7.1508 (0.6); 7.1477 (0.7); 7.1405 (0.6); 7.1327 (0.6); 7.1298 (0.6); 7.1269 (0.6); 7.1233 (0.9); 7.1214 (1.1); 7.0013 (0.6); 6.9976 (0.6); 6.9826 (0.6); 5.1792 (1.6); 5.1618 (1.6); 3.7555 (16.0); 1.6871 (6.6); 1.6697 (6.5); 1.5496 (1.0); -0.0002 (10.7)	30
I-179: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4467 (0.6); 7.4406 (0.7); 7.4253 (1.2); 7.4100 (0.7); 7.4038 (0.7); 7.2617 (13.1); 7.2161 (0.5); 7.1948 (1.0); 7.1752 (0.9); 7.1708 (1.5); 7.1663 (0.9); 7.1526 (1.1); 7.1478 (1.0); 7.1406 (0.9); 7.1325 (0.8); 7.1270 (0.9); 7.1215 (1.5); 7.1139 (0.7); 7.1083 (0.5); 6.9976 (1.0); 6.9820 (1.0); 5.1967 (0.5); 5.1793 (1.7); 5.1619 (1.7); 5.1445 (0.5); 3.7555 (16.0); 1.6871 (7.0); 1.6697 (7.0); -0.0002 (8.0)	40

【 0 2 3 4 】

【表 5】

II-01: ¹ H-NMR(400.0 MHz, d ₆ -DMSO):

δ= 7.4677 (1.3); 7.4591 (5.0); 7.4564 (4.7); 7.4541 (3.9); 7.4485 (8.2); 7.4424 (10.4); 7.4331 (1.3); 7.3315 (1.2); 7.3148 (1.5); 7.3108 (2.8); 7.2965 (4.9); 7.2944 (5.1); 7.2905 (4.1); 7.2876 (5.2); 7.2785 (4.2); 7.2728 (4.3); 7.0697 (1.1); 7.0654 (1.1); 7.0482 (1.8); 7.0442 (1.9); 7.0272 (0.9); 7.0230 (1.0); 6.9311 (1.3); 6.9257 (2.1); 6.9200 (1.5); 6.9052 (1.3); 6.9000 (2.2); 6.8940 (1.6); 6.8856 (2.4); 6.8835 (2.7); 6.8808 (2.0); 6.8785 (1.7); 6.8653 (2.1); 6.8633 (2.2); 6.8605 (2.0); 4.2659 (16.0); 3.2925 (0.7); 2.6742 (1.3); 2.6695 (1.8); 2.6650 (1.3); 2.5996 (0.6); 2.5955 (0.5); 2.5587 (0.9); 2.5541 (1.8); 2.5495 (2.6); 2.5448 (2.4); 2.5401 (2.1); 2.5230 (8.0); 2.5183 (11.4); 2.5095 (107.9); 2.5051 (223.3); 2.5005 (302.9); 2.4959 (216.2); 2.4914 (102.7); 2.4636 (1.0); 2.4585 (0.5); 2.3318 (1.4); 2.3273 (1.9); 2.3227 (1.4); 0.0080 (1.2); -0.0002 (38.8); -0.0085 (1.5)	10
II-02: ^1H-NMR(400.0 MHz, d_6-DMSO): δ= 7.4592 (6.1); 7.4490 (9.5); 7.4426 (11.3); 7.3322 (1.4); 7.3117 (3.2); 7.2961 (6.6); 7.2910 (5.1); 7.2874 (6.1); 7.2785 (4.9); 7.2727 (4.4); 7.0728 (1.2); 7.0663 (1.4); 7.0511 (2.1); 7.0467 (2.3); 7.0320 (1.1); 7.0255 (1.2); 6.9360 (1.6); 6.9306 (2.5); 6.9249 (1.8); 6.9102 (1.6); 6.9049 (2.6); 6.8991 (1.9); 6.8843 (3.1); 6.8641 (2.5); 6.8613 (2.4); 4.2979 (16.0); 3.5676 (1.2); 3.2987 (5.8); 2.6747 (3.1); 2.6701 (4.3); 2.6655 (3.1); 2.6136 (0.8); 2.5879 (0.8); 2.5492 (2.1); 2.5447 (3.9); 2.5234 (27.4); 2.5188 (38.3); 2.5100 (276.3); 2.5055 (561.0); 2.5010 (754.3); 2.4964 (546.2); 2.4919 (268.5); 2.4351 (1.1); 2.4003 (0.8); 2.3956 (0.7); 2.3905 (0.5); 2.3323 (3.6); 2.3277 (4.8); 2.3232 (3.7); 0.0080 (2.2); -0.0002 (62.8); -0.0085 (3.1)	20
II-04: ^1H-NMR(400.0 MHz, d_6-DMSO): δ= 7.4612 (9.0); 7.4559 (6.4); 7.4531 (10.2); 7.4452 (10.4); 7.4411 (3.6); 7.4352 (1.3); 7.4201 (0.6); 7.4097 (0.8); 7.4034 (0.9); 7.3498 (1.5); 7.3333 (1.9); 7.3292 (3.3); 7.3128 (3.9); 7.3082 (3.5); 7.3047 (5.6); 7.3010 (3.6); 7.2973 (5.1); 7.2943 (4.6); 7.2914 (5.1); 7.2882 (4.6); 7.2845 (3.1); 7.2807 (4.2); 7.1042 (1.4); 7.0997 (1.4); 7.0828 (2.4); 7.0784 (2.4); 7.0636 (1.1); 7.0616 (1.2); 7.0571 (1.2); 6.9641 (1.8); 6.9587 (2.8); 6.9529 (1.9); 6.9384 (1.8); 6.9332 (2.9); 6.9272 (2.0); 6.9054 (2.9); 6.9033 (3.2); 6.9006 (2.6); 6.8984 (2.4); 6.8852 (2.6); 6.8831 (2.7); 6.8802 (2.6); 6.8782 (2.2); 6.5483 (0.7); 6.5083 (0.6); 4.6410 (16.0); 3.7305 (1.2); 3.5917 (10.8); 3.5799 (12.4); 3.5679 (11.6); 3.3549 (2.2); 2.8119 (10.1); 2.7998 (11.2); 2.7880 (9.8); 2.6740 (1.0); 2.6694 (1.5); 2.6647 (1.1); 2.5228 (4.6); 2.5182 (6.6); 2.5094 (79.9); 2.5049 (168.4); 2.5003 (230.8); 2.4958 (164.0); 2.4912 (76.9); 2.4589 (0.5); 2.4546 (0.8); 2.4497 (1.2); 2.4453 (1.1); 2.3806 (0.5); 2.3316 (1.1); 2.3271 (1.4); 2.3226 (1.1); 0.0080 (1.5); -0.0002 (47.9); -0.0085 (1.8)	30
II-05: ^1H-NMR(400.0 MHz, d_6-DMSO): δ= 7.4597 (5.9); 7.4516 (6.9); 7.4437 (7.2); 7.4341 (1.0); 7.3407 (1.0); 7.3241 (1.3); 7.3201 (2.2); 7.3117 (0.8); 7.3013 (4.7); 7.2939 (3.6); 7.2911 (3.1); 7.2877 (2.9); 7.2843 (3.8); 7.2774	40

(3.0); 7.0944 (1.0); 7.0897 (1.0); 7.0730 (1.7); 7.0683 (1.7); 7.0536 (0.8); 7.0517 (0.8); 7.0471 (0.8); 6.9550 (1.2); 6.9496 (2.0); 6.9439 (1.3); 6.9293 (1.2); 6.9241 (2.0); 6.9183 (1.4); 6.9003 (2.2); 6.8975 (1.8); 6.8819 (1.8); 6.8801 (1.9); 6.8772 (1.8); 5.9152 (0.6); 5.8889 (0.8); 5.8720 (0.9); 5.8458 (0.8); 5.7527 (16.0); 5.3459 (1.4); 5.3422 (1.5); 5.3026 (1.2); 5.2990 (1.2); 5.2357 (1.5); 5.2324 (1.5); 5.2095 (1.4); 5.2063 (1.4); 4.5838 (9.4); 3.4125 (2.8); 3.4092 (2.0); 3.3976 (2.9); 2.5101 (12.4); 2.5057 (28.0); 2.5011 (39.9); 2.4966 (30.1); 2.4922 (15.6); -0.0002 (7.0)	II-06: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4659 (1.8); 7.4600 (8.1); 7.4515 (9.7); 7.4477 (6.6); 7.4439 (11.4); 7.4409 (5.1); 7.4343 (2.1); 7.4096 (0.8); 7.4050 (0.8); 7.3970 (0.9); 7.3921 (0.9); 7.3381 (1.5); 7.3216 (1.8); 7.3175 (3.3); 7.3091 (1.1); 7.2992 (6.8); 7.2912 (5.2); 7.2893 (4.9); 7.2859 (4.2); 7.2817 (5.7); 7.2751 (5.0); 7.2689 (1.4); 7.0922 (1.2); 7.0903 (1.4); 7.0839 (1.4); 7.0689 (2.4); 7.0627 (2.5); 7.0496 (1.2); 7.0477 (1.3); 7.0432 (1.3); 7.0413 (1.3); 6.9524 (1.8); 6.9469 (2.8); 6.9412 (2.0); 6.9266 (1.8); 6.9213 (3.0); 6.9155 (2.1); 6.8948 (2.8); 6.8928 (3.2); 6.8900 (2.7); 6.8880 (2.6); 6.8746 (2.6); 6.8726 (2.8); 6.8697 (2.7); 6.8677 (2.4); 5.7531 (16.0); 4.5178 (12.9); 2.7229 (3.9); 2.7043 (4.8); 2.6853 (4.3); 2.6749 (0.6); 2.6702 (0.6); 2.5236 (1.0); 2.5189 (1.5); 2.5102 (22.4); 2.5057 (48.9); 2.5011 (69.0); 2.4965 (50.9); 2.4920 (26.2); 1.5622 (2.0); 1.5434 (3.6); 1.5246 (3.8); 1.5060 (2.3); 1.4874 (0.7); 0.8847 (7.7); 0.8661 (16.0); 0.8474 (7.2); -0.0002 (12.8); -0.0085 (0.6)	II-07: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6913 (1.0); 7.6823 (1.3); 7.6792 (1.0); 7.6728 (1.3); 7.6672 (1.2); 7.6036 (1.4); 7.5635 (1.6); 7.4630 (3.1); 7.4581 (2.1); 7.4551 (3.3); 7.4524 (2.0); 7.4469 (3.2); 7.4419 (1.1); 7.4296 (0.7); 7.4233 (2.1); 7.4137 (2.7); 7.4068 (2.9); 7.3572 (0.6); 7.3407 (0.7); 7.3366 (1.2); 7.3202 (1.3); 7.3159 (1.0); 7.3088 (1.9); 7.3018 (1.9); 7.2983 (1.6); 7.2947 (1.4); 7.2928 (1.6); 7.2885 (1.0); 7.2848 (1.4); 7.0949 (0.8); 7.0904 (0.8); 6.9767 (0.6); 6.9713 (0.9); 6.9654 (0.6); 6.9511 (0.6); 6.9458 (1.0); 6.9399 (0.6); 6.9103 (0.9); 6.9083 (1.0); 6.9055 (0.9); 6.9034 (0.8); 6.8902 (0.8); 6.8881 (0.9); 6.8852 (0.8); 6.8831 (0.7); 6.5494 (2.3); 6.5093 (2.1); 4.7574 (4.4); 3.5677 (3.8); 3.3165 (0.8); 3.2439 (0.6); 2.5232 (1.4); 2.5185 (2.0); 2.5098 (25.7); 2.5053 (54.0); 2.5007 (74.1); 2.4961 (53.5); 2.4916 (25.8); 2.4766 (2.5); 2.4565 (1.8); 1.4641 (1.6); 1.4454 (2.7); 1.4266 (2.8); 1.4080 (1.7); 1.2353 (0.9); 0.8610 (7.7); 0.8427 (16.0); 0.8242 (6.9); -0.0002 (8.7)	II-08: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.6397 (1.8); 7.6343 (1.6); 7.6203 (2.3); 7.6159 (2.0); 7.4867 (2.0); 7.4678 (1.0); 7.4610 (4.1); 7.4519 (5.4); 7.4448 (7.4); 7.4351 (1.0); 7.4203 (0.6); 7.4112 (0.7); 7.4066 (0.6); 7.3979 (2.4); 7.3879 (1.8); 7.3823 (3.8); 7.3797 (3.7); 7.3697 (0.9); 7.3657 (0.7); 7.3378 (0.9); 7.3214 (1.2); 7.3171 (1.9); 7.3082 (0.6); 7.3008 (2.9); 7.2985 (3.6); 7.2927 (2.0); 7.2895 (3.0); 7.2856

10

20

30

40

50

(2.1); 7.2807 (3.4); 7.2744 (2.6); 7.0896 (0.7); 7.0876 (0.8); 7.0832 (0.8); 7.0812 (0.8); 7.0682 (1.2); 7.0662 (1.3); 7.0618 (1.3); 7.0599 (1.3); 7.0471 (0.6); 7.0450 (0.7); 7.0406 (0.6); 7.0386 (0.6); 6.9515 (1.0); 6.9460 (1.5); 6.9403 (1.0); 6.9257 (1.0); 6.9204 (1.6); 6.9145 (1.1); 6.8868 (1.5); 6.8847 (1.7); 6.8818 (1.4); 6.8798 (1.3); 6.8665 (1.4); 6.8644 (1.4); 6.8615 (1.4); 6.8594 (1.2); 6.5233 (3.3); 6.4833 (3.1); 4.4480 (8.9); 2.8181 (1.9); 2.8000 (5.9); 2.7819 (6.0); 2.7638 (2.0); 2.6701 (0.5); 2.5235 (1.3); 2.5189 (2.0); 2.5101 (30.5); 2.5056 (65.0); 2.5010 (89.4); 2.4964 (63.7); 2.4919 (30.1); 2.4388 (32.4); 2.3279 (0.6); 1.2344 (1.0); 1.1270 (7.5); 1.1089 (16.0); 1.0908 (7.2); -0.0002 (11.7)	10
II-09: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4605 (1.5); 7.4514 (1.8); 7.4443 (2.2); 7.3167 (0.7); 7.3005 (1.0); 7.2975 (1.3); 7.2886 (1.1); 7.2848 (0.7); 7.2800 (1.2); 7.2736 (0.8); 6.9426 (0.5); 6.9170 (0.5); 6.8864 (0.6); 6.8843 (0.6); 6.8815 (0.5); 6.8662 (0.5); 4.4522 (1.4); 3.3124 (3.9); 2.5228 (1.5); 2.5181 (2.1); 2.5093 (26.2); 2.5048 (54.8); 2.5002 (74.9); 2.4957 (53.0); 2.4911 (24.7); 1.2204 (16.0); -0.0002 (11.8)	
II-10: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4582 (1.7); 7.4495 (2.0); 7.4421 (2.4); 7.4003 (0.6); 7.3293 (0.6); 7.3110 (1.7); 7.2918 (2.4); 7.2820 (0.9); 7.2751 (1.1); 7.2711 (1.0); 7.2387 (1.7); 7.2264 (1.0); 7.2196 (1.0); 7.0634 (0.5); 7.0589 (0.5); 6.9355 (0.6); 6.9103 (0.6); 6.8877 (0.7); 6.8672 (0.6); 4.4795 (1.5); 3.3118 (16.0); 2.9714 (0.6); 2.9534 (1.2); 2.9470 (0.7); 2.9322 (1.1); 2.8076 (1.0); 2.7866 (1.1); 2.7687 (0.6); 2.6740 (0.8); 2.6694 (1.1); 2.6648 (0.9); 2.5229 (3.4); 2.5181 (4.9); 2.5094 (65.6); 2.5049 (138.2); 2.5003 (189.2); 2.4958 (135.0); 2.4913 (63.8); 2.4507 (1.1); 2.4457 (0.7); 2.3317 (0.8); 2.3271 (1.1); 2.3225 (0.8); 0.0079 (0.6); -0.0002 (20.9); -0.0085 (0.8)	20
II-11: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO): δ= 7.4678 (1.1); 7.4612 (4.0); 7.4522 (5.1); 7.4450 (6.2); 7.4353 (1.1); 7.3381 (0.8); 7.3217 (0.9); 7.3175 (1.7); 7.3076 (0.6); 7.3010 (2.6); 7.2977 (3.6); 7.2920 (1.9); 7.2892 (2.9); 7.2850 (2.2); 7.2805 (3.5); 7.2739 (2.6); 7.0904 (0.6); 7.0884 (0.7); 7.0838 (0.7); 7.0820 (0.8); 7.0688 (1.1); 7.0670 (1.2); 7.0624 (1.3); 7.0608 (1.3); 7.0478 (0.6); 7.0458 (0.7); 7.0413 (0.7); 7.0394 (0.6); 6.9539 (0.9); 6.9484 (1.5); 6.9427 (1.0); 6.9281 (1.0); 6.9227 (1.5); 6.9169 (1.1); 6.8870 (1.4); 6.8849 (1.6); 6.8821 (1.4); 6.8800 (1.4); 6.8667 (1.3); 6.8647 (1.4); 6.8618 (1.4); 6.8597 (1.3); 5.7530 (16.0); 4.4682 (8.4); 2.9324 (2.6); 2.9191 (3.8); 2.9050 (3.1); 2.5188 (0.7); 2.5101 (11.8); 2.5055 (26.3); 2.5009 (37.8); 2.4964 (28.5); 2.4918 (15.1); 1.6250 (0.6); 1.5973 (3.0); 1.5847 (2.5); 1.5700 (1.3); 1.5030 (1.4); 1.4914 (1.5); -0.0002 (8.6)	30
II-12: ¹H-NMR(400.0 MHz, d₆-DMSO):	40

δ= 7.4608 (6.4); 7.4524 (7.3); 7.4485 (4.8); 7.4447 (8.3); 7.3453 (1.1); 7.3289 (1.3); 7.3246 (2.4); 7.3082 (2.8); 7.3024 (4.6); 7.2986 (2.7); 7.2945 (3.7); 7.2923 (3.4); 7.2885 (3.7); 7.2855 (3.7); 7.2783 (3.3); 7.0970 (1.0); 7.0907 (1.0); 7.0758 (1.8); 7.0698 (1.8); 7.0544 (0.9); 7.0501 (0.8); 6.9567 (1.3); 6.9512 (2.1); 6.9455 (1.4); 6.9309 (1.3); 6.9258 (2.1); 6.9198 (1.4); 6.8999 (2.1); 6.8979 (2.3); 6.8950 (1.9); 6.8796 (1.9); 6.8776 (2.0); 6.8748 (1.9); 6.8726 (1.7); 4.5654 (4.1); 3.5675 (4.6); 3.3120 (16.0); 3.1682 (0.6); 2.7559 (1.9); 2.7373 (2.2); 2.7180 (2.0); 2.6740 (1.4); 2.6694 (2.0); 2.6647 (1.4); 2.5988 (0.8); 2.5228 (5.9); 2.5181 (8.6); 2.5094 (116.8); 2.5049 (246.0); 2.5003 (336.5); 2.4957 (238.9); 2.4912 (112.9); 2.4397 (0.6); 2.4123 (0.5); 2.3317 (1.4); 2.3270 (2.0); 2.3225 (1.5); 1.5031 (1.1); 1.4842 (0.8); 1.2483 (9.4); 0.8748 (1.9); 0.8580 (6.5); 0.8404 (2.3); 0.0080 (1.9); -0.0002 (58.5); -0.0085 (2.3)	10
II-13: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, $\text{d}_6\text{-DMSO}$): δ= 7.4584 (8.7); 7.4500 (10.1); 7.4461 (6.9); 7.4423 (11.6); 7.4389 (4.9); 7.4341 (4.5); 7.4302 (5.0); 7.4133 (7.0); 7.3981 (1.0); 7.3930 (0.9); 7.3769 (2.5); 7.3729 (3.4); 7.3682 (1.5); 7.3558 (8.0); 7.3517 (3.4); 7.3407 (2.5); 7.3373 (4.7); 7.3260 (2.4); 7.3221 (4.0); 7.3184 (4.0); 7.3141 (4.1); 7.3047 (4.2); 7.2969 (8.7); 7.2933 (6.1); 7.2891 (6.0); 7.2868 (5.7); 7.2834 (4.8); 7.2798 (5.4); 7.2769 (5.3); 7.2728 (4.9); 7.0902 (1.3); 7.0882 (1.5); 7.0838 (1.5); 7.0819 (1.5); 7.0687 (2.3); 7.0668 (2.5); 7.0624 (2.5); 7.0476 (1.2); 7.0455 (1.3); 7.0411 (1.3); 7.0392 (1.2); 6.9493 (1.8); 6.9438 (2.9); 6.9381 (2.0); 6.9235 (1.9); 6.9183 (3.1); 6.9124 (2.1); 6.8967 (3.0); 6.8947 (3.4); 6.8918 (2.7); 6.8897 (2.5); 6.8764 (2.7); 6.8744 (2.9); 6.8716 (2.7); 6.8695 (2.4); 5.7530 (16.0); 4.5278 (14.7); 3.9323 (14.6); 2.5231 (0.9); 2.5184 (1.4); 2.5096 (30.8); 2.5051 (67.2); 2.5005 (93.6); 2.4960 (68.4); 2.4914 (33.5); 2.4359 (0.5); 2.3319 (0.6); 2.3274 (0.7); 2.3227 (0.6); -0.0002 (12.0); -0.0085 (0.5)	20
II-14: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.4021 (0.6); 7.3954 (3.7); 7.3906 (3.8); 7.3829 (2.3); 7.3779 (2.3); 7.3706 (0.6); 7.3669 (0.8); 7.2821 (2.2); 7.2775 (2.5); 7.2692 (1.7); 7.2618 (22.2); 7.2581 (2.4); 7.1197 (0.5); 7.1039 (0.6); 7.0991 (1.2); 7.0833 (1.2); 7.0786 (0.8); 7.0628 (0.7); 6.9710 (0.6); 6.9654 (1.0); 6.9598 (0.7); 6.9454 (0.6); 6.9399 (1.0); 6.9342 (0.7); 6.8362 (0.6); 6.8298 (0.6); 6.8209 (1.3); 6.8170 (1.9); 6.8110 (1.1); 6.8091 (0.8); 6.7998 (1.0); 6.7966 (1.3); 6.7904 (0.5); 5.2979 (11.6); 4.8230 (7.5); 3.0865 (2.1); 3.0682 (7.0); 3.0499 (7.2); 3.0316 (2.2); 1.2574 (7.5); 1.2392 (16.0); 1.2208 (7.2); -0.0002 (8.9)	30

40

【 0 2 3 5 】

【表 6】

III-001: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3870 (1.0); 7.3827 (1.2); 7.3678 (2.0); 7.3637 (2.3); 7.3531 (1.1); 7.3493 (2.3); 7.3393 (5.0); 7.3364 (5.7); 7.3310 (2.8); 7.3211 (5.4); 7.3074 (2.5); 7.3004 (1.8); 7.2887 (1.7); 7.2830 (5.2); 7.2787 (4.7); 7.2741 (2.2); 7.2686 (1.5); 7.2592 (20.6); 7.1839 (1.4); 7.1649 (2.1); 7.1462

50

(0.9); 7.0343 (1.3); 7.0312 (1.2); 7.0135 (1.3); 7.0098 (2.1); 7.0061 (1.3); 6.9885 (1.1); 6.9854 (1.0); 6.7256 (0.7); 5.2952 (11.6); 4.8957 (3.1); 4.8718 (16.0); 4.8652 (3.6); 4.8618 (2.6); 3.9428 (3.6); 3.9276 (3.5); 1.7660 (11.9); 1.5854 (0.8); 1.2557 (0.8); -0.0002 (6.8)	
III-002: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3748 (0.7); 7.3705 (0.9); 7.3555 (1.5); 7.3517 (2.1); 7.3375 (4.2); 7.3356 (4.7); 7.3327 (3.0); 7.3301 (2.3); 7.3236 (1.9); 7.3197 (3.8); 7.3176 (3.4); 7.3089 (1.2); 7.3057 (1.7); 7.3005 (1.2); 7.2967 (1.1); 7.2881 (0.8); 7.2838 (1.1); 7.2774 (3.6); 7.2732 (3.6); 7.2688 (1.7); 7.2604 (15.8); 7.2530 (1.7); 7.1828 (0.9); 7.1812 (1.0); 7.1620 (1.4); 7.1442 (0.6); 7.1427 (0.6); 7.0377 (0.9); 7.0345 (0.9); 7.0169 (0.9); 7.0130 (1.5); 7.0094 (1.0); 6.9918 (0.8); 6.9886 (0.8); 6.6878 (0.6); 5.2956 (16.0); 4.8041 (11.3); 2.8234 (0.7); 2.8141 (1.0); 2.8055 (1.0); 2.7962 (0.8); 2.0419 (0.6); 1.6016 (0.5); 1.2572 (0.9); 0.8631 (0.8); 0.8491 (1.8); 0.8454 (2.8); 0.8426 (1.3); 0.8317 (2.6); 0.8276 (2.1); 0.8247 (1.2); 0.8143 (0.9); 0.6284 (0.9); 0.6184 (1.8); 0.6153 (2.0); 0.6113 (2.0); 0.6099 (2.0); 0.6057 (2.0); 0.6020 (1.8); 0.5883 (0.7); -0.0002 (5.3)	10 20 30 40
III-003: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3866 (1.2); 7.3823 (1.4); 7.3742 (0.6); 7.3672 (2.2); 7.3630 (2.5); 7.3541 (1.4); 7.3504 (1.8); 7.3486 (1.9); 7.3423 (4.0); 7.3400 (5.4); 7.3372 (6.3); 7.3317 (3.3); 7.3296 (1.8); 7.3259 (2.7); 7.3219 (5.7); 7.3196 (5.1); 7.3141 (1.4); 7.3121 (1.5); 7.3103 (1.8); 7.3082 (2.8); 7.3064 (2.0); 7.3021 (1.8); 7.2989 (1.5); 7.2898 (2.0); 7.2836 (5.7); 7.2793 (5.3); 7.2747 (2.4); 7.2694 (1.6); 7.2663 (2.4); 7.2592 (37.8); 7.1877 (1.2); 7.1860 (1.4); 7.1844 (1.4); 7.1650 (2.0); 7.1491 (0.8); 7.1474 (0.9); 7.1458 (0.9); 7.1444 (0.8); 7.0377 (1.4); 7.0345 (1.3); 7.0169 (1.4); 7.0131 (2.2); 7.0094 (1.4); 6.9919 (1.2); 6.9887 (1.1); 6.7103 (0.6); 5.9472 (0.6); 5.9336 (1.3); 5.9213 (0.8); 5.9078 (1.4); 5.9043 (0.8); 5.8941 (0.8); 5.8906 (1.5); 5.8783 (0.9); 5.8772 (0.9); 5.8649 (1.5); 5.8512 (0.7); 5.2963 (9.6); 5.2791 (0.9); 5.2749 (2.1); 5.2717 (2.2); 5.2674 (1.1); 5.2362 (0.8); 5.2320 (1.8); 5.2287 (1.9); 5.2245 (1.0); 5.1885 (1.1); 5.1849 (2.5); 5.1816 (2.4); 5.1780 (1.0); 5.1628 (1.0); 5.1592 (2.3); 5.1558 (2.2); 5.1522 (0.9); 4.8601 (16.0); 4.0348 (1.4); 4.0309 (2.4); 4.0269 (1.6); 4.0202 (2.5); 4.0167 (4.0); 4.0131 (2.4); 4.0065 (1.4); 4.0025 (2.2); 3.9986 (1.2); 1.5654 (5.0); 0.0079 (0.6); -0.0002 (18.2); -0.0085 (0.7)	
III-004: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3122 (0.9); 7.3081 (1.2); 7.3068 (1.4); 7.3024 (0.9); 7.2981 (0.7); 7.2956 (0.8); 7.2920 (3.2); 7.2905 (4.9); 7.2866 (5.4); 7.2843 (3.0); 7.2810 (1.9); 7.2758 (2.8); 7.2719 (7.8); 7.2700 (5.6); 7.2667 (3.3); 7.2641 (6.6); 7.2625 (5.7); 7.2596 (38.6); 7.2510 (4.7); 7.2464 (2.1); 7.2449 (2.1); 7.2270 (0.6); 7.1570 (4.2); 7.1529 (5.2); 7.1472 (1.4); 7.1406 (2.2); 7.1379 (1.7); 7.1360 (4.2); 7.1326 (3.4); 7.0974 (0.5); 7.0902 (4.5); 7.0847 (1.3); 7.0761 (0.7); 7.0733 (1.4); 7.0688 (6.3); 7.0635 (1.4); 7.0608 (0.6); 7.0521 (1.2); 7.0466 (3.5); 6.6980 (0.6); 5.9491 (0.6); 5.9354 (1.3); 5.9232 (0.8); 5.9219 (0.8); 5.9096 (1.5); 5.9062 (0.8); 5.8960 (0.8); 5.8925 (1.6); 5.8803	

10

20

30

40

50

(0.9); 5.8789 (0.9); 5.8667 (1.6); 5.8531 (0.8); 5.2970 (7.6); 5.2791 (0.9); 5.2748 (2.1); 5.2716 (2.2); 5.2673 (1.0); 5.2361 (0.8); 5.2318 (1.9); 5.2286 (1.9); 5.2243 (0.9); 5.1882 (1.0); 5.1846 (2.5); 5.1812 (2.4); 5.1776 (0.9); 5.1625 (0.9); 5.1589 (2.3); 5.1555 (2.2); 5.1519 (0.9); 4.8824 (16.0); 4.0374 (1.2); 4.0334 (2.1); 4.0295 (1.4); 4.0228 (2.2); 4.0192 (3.7); 4.0155 (2.2); 4.0089 (1.3); 4.0049 (2.1); 4.0009 (1.2); -0.0002 (16.4)	
III-005: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3116 (0.6); 7.3075 (0.8); 7.3062 (1.0); 7.3018 (0.6); 7.2977 (0.6); 7.2950 (0.6); 7.2909 (4.3); 7.2899 (4.4); 7.2859 (2.1); 7.2837 (1.8); 7.2778 (3.0); 7.2750 (2.3); 7.2713 (4.7); 7.2690 (4.8); 7.2654 (1.8); 7.2635 (1.6); 7.2603 (20.1); 7.2570 (3.0); 7.2555 (3.4); 7.2508 (0.8); 7.2483 (0.5); 7.2449 (1.3); 7.2436 (1.3); 7.1614 (2.9); 7.1574 (3.6); 7.1516 (1.0); 7.1449 (1.5); 7.1422 (1.1); 7.1403 (2.9); 7.1370 (2.2); 7.0926 (3.1); 7.0871 (0.9); 7.0783 (0.5); 7.0757 (1.0); 7.0711 (4.3); 7.0658 (0.9); 7.0544 (0.9); 7.0490 (2.4); 5.2965 (16.0); 4.8572 (10.2); 3.2647 (2.2); 3.2505 (2.5); 3.2471 (2.5); 3.2328 (2.2); 1.0479 (0.5); 1.0280 (0.9); 1.0080 (0.6); 0.5572 (0.8); 0.5454 (1.9); 0.5423 (2.4); 0.5400 (1.3); 0.5372 (1.0); 0.5309 (1.1); 0.5252 (2.3); 0.5222 (1.9); 0.5109 (0.9); 0.2743 (0.9); 0.2628 (2.6); 0.2604 (2.2); 0.2508 (1.9); 0.2480 (2.6); 0.2363 (0.6); -0.0002 (8.0)	10 20
III-006: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3125 (0.6); 7.3084 (0.8); 7.3069 (0.9); 7.3025 (0.6); 7.2958 (0.7); 7.2907 (3.2); 7.2885 (3.0); 7.2842 (1.8); 7.2754 (3.4); 7.2722 (4.7); 7.2704 (3.6); 7.2661 (3.8); 7.2636 (3.3); 7.2596 (29.3); 7.2530 (3.3); 7.2476 (1.3); 7.2459 (1.4); 7.1591 (2.8); 7.1549 (3.2); 7.1492 (0.9); 7.1427 (1.4); 7.1399 (1.1); 7.1381 (2.7); 7.1347 (2.2); 7.0918 (2.9); 7.0863 (0.9); 7.0749 (0.9); 7.0704 (4.0); 7.0651 (1.0); 7.0537 (0.8); 7.0483 (2.3); 5.2972 (16.0); 4.8798 (10.2); 4.1930 (2.8); 4.1866 (2.9); 4.1793 (2.8); 4.1729 (2.8); 2.2746 (2.3); 2.2682 (4.9); 2.2618 (2.2); -0.0002 (11.6)	30
III-007: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3056 (0.5); 7.3041 (0.6); 7.2895 (1.4); 7.2879 (2.2); 7.2848 (2.2); 7.2816 (1.2); 7.2794 (0.9); 7.2717 (2.2); 7.2694 (3.2); 7.2676 (2.5); 7.2625 (3.1); 7.2599 (19.0); 7.2559 (1.7); 7.2495 (2.3); 7.2440 (0.9); 7.2424 (1.0); 7.1546 (1.9); 7.1505 (2.3); 7.1449 (0.6); 7.1382 (1.0); 7.1355 (0.7); 7.1336 (1.9); 7.1302 (1.5); 7.0905 (2.0); 7.0849 (0.6); 7.0735 (0.6); 7.0690 (2.8); 7.0637 (0.6); 7.0523 (0.6); 7.0469 (1.6); 5.2970 (3.7); 4.8574 (7.0); 3.2283 (1.7); 3.2118 (2.5); 3.1960 (1.7); 1.8661 (0.7); 1.8493 (0.9); 1.8325 (0.8); 1.5713 (2.6); 0.9560 (16.0); 0.9513 (1.2); 0.9392 (15.4); 0.9343 (0.8); -0.0002 (7.5)	40
III-008: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):	40

δ= 7.5185 (0.7); 7.3843 (0.9); 7.3692 (1.1); 7.3636 (1.6); 7.3490 (1.9); 7.3444 (1.3); 7.3293 (1.4); 7.2596 (116.5); 7.1371 (3.4); 7.1314 (1.9); 7.1252 (4.3); 7.1198 (2.5); 7.1142 (5.1); 7.1114 (2.3); 7.1084 (3.2); 7.1023 (6.2); 7.0939 (0.7); 7.0901 (1.0); 7.0877 (1.0); 7.0837 (1.0); 7.0812 (0.9); 7.0364 (1.9); 7.0326 (2.7); 7.0301 (2.2); 7.0139 (4.1); 7.0111 (3.2); 7.0077 (2.2); 6.9994 (4.9); 6.9955 (1.5); 6.9935 (1.8); 6.9905 (2.0); 6.9872 (2.1); 6.9792 (6.0); 6.9766 (4.1); 6.9734 (1.7); 6.9620 (1.3); 6.9563 (3.4); 6.6799 (0.7); 5.9590 (0.6); 5.9454 (1.4); 5.9330 (1.0); 5.9196 (1.5); 5.9161 (0.8); 5.9060 (0.8); 5.9024 (1.6); 5.8891 (1.0); 5.8767 (1.6); 5.8630 (0.8); 5.2906 (1.0); 5.2863 (2.2); 5.2831 (2.2); 5.2788 (1.0); 5.2476 (0.9); 5.2433 (2.0); 5.2402 (2.0); 5.2358 (0.9); 5.1969 (1.1); 5.1933 (2.5); 5.1899 (2.3); 5.1864 (1.0); 5.1711 (1.0); 5.1675 (2.3); 5.1642 (2.2); 5.1605 (0.9); 4.8613 (16.0); 4.0433 (1.3); 4.0393 (2.2); 4.0352 (1.4); 4.0251 (4.0); 4.0150 (1.5); 4.0109 (2.2); 1.5454 (4.1); 0.0080 (1.5); -0.0002 (43.8); -0.0085 (1.6)	10
III-009: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.5187 (0.5); 7.3846 (0.8); 7.3698 (1.2); 7.3640 (1.6); 7.3496 (1.8); 7.3447 (1.3); 7.3297 (1.3); 7.2599 (86.0); 7.1351 (3.4); 7.1299 (1.9); 7.1234 (4.3); 7.1179 (2.4); 7.1122 (5.8); 7.1091 (2.3); 7.1060 (2.8); 7.1005 (4.9); 7.0907 (0.9); 7.0881 (0.8); 7.0841 (0.8); 7.0817 (0.8); 7.0356 (1.7); 7.0318 (2.6); 7.0293 (2.1); 7.0131 (4.3); 7.0103 (3.1); 6.9975 (4.8); 6.9914 (2.7); 6.9856 (2.0); 6.9804 (2.5); 6.9773 (5.3); 6.9716 (1.6); 6.9602 (1.1); 6.9546 (3.2); 6.5958 (0.7); 5.2982 (0.6); 4.8225 (15.7); 3.4107 (1.8); 3.3931 (3.7); 3.3781 (3.6); 3.3605 (1.8); 1.6093 (0.8); 1.5909 (2.0); 1.5849 (0.9); 1.5727 (3.1); 1.5669 (1.8); 1.5505 (5.6); 1.5363 (1.3); 1.4439 (0.7); 1.4257 (2.0); 1.4066 (2.6); 1.3872 (2.6); 1.3692 (1.6); 1.3509 (0.6); 0.9602 (7.7); 0.9419 (16.0); 0.9236 (6.5); 0.0080 (1.0); -0.0002 (31.8); -0.0085 (1.0)	20
III-010: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3737 (1.0); 7.3586 (1.5); 7.3533 (1.9); 7.3383 (2.7); 7.3337 (2.2); 7.3271 (4.7); 7.3239 (7.9); 7.3224 (6.9); 7.3176 (7.5); 7.3134 (5.0); 7.3114 (7.1); 7.3094 (6.9); 7.3030 (2.0); 7.2969 (1.9); 7.2930 (3.3); 7.2902 (2.5); 7.2865 (2.4); 7.2828 (1.6); 7.2781 (1.1); 7.2747 (1.4); 7.2713 (1.7); 7.2583 (44.3); 7.1235 (1.1); 7.1213 (1.3); 7.1169 (1.4); 7.1137 (3.9); 7.1078 (1.6); 7.1018 (4.8); 7.0962 (4.0); 7.0934 (3.0); 7.0907 (5.2); 7.0847 (1.9); 7.0788 (5.5); 7.0749 (1.4); 7.0724 (1.2); 7.0168 (2.0); 7.0130 (2.7); 7.0105 (2.3); 7.0035 (1.0); 6.9951 (7.2); 6.9913 (4.3); 6.9846 (2.2); 6.9816 (1.7); 6.9778 (2.1); 6.9749 (5.7); 6.9724 (4.3); 6.9690 (3.0); 6.9640 (2.1); 6.9624 (1.9); 6.9580 (2.4); 6.9521 (3.5); 6.9438 (0.6); 6.9008 (0.9); 5.2962 (6.9); 4.8965 (16.0); 4.5951 (6.8); 4.5802 (6.7); 1.5591 (3.8); 0.0079 (0.7); -0.0002 (17.1); -0.0085 (0.6)	30
III-011: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.3826 (0.7); 7.3676 (1.1); 7.3620 (1.6); 7.3474 (1.7); 7.3420 (1.2); 7.3275 (1.3); 7.2605 (46.3); 7.1299 (3.6); 7.1245 (2.0); 7.1181 (3.3); 7.1127 (2.4); 7.1102 (2.2); 7.1073 (5.9); 7.1043 (2.1); 7.1013 (3.0); 7.0953 (4.4); 7.0891 (0.9); 7.0868 (1.2); 7.0827 (0.9); 7.0803 (0.8); 7.0312	40

(1.7); 7.0275 (2.5); 7.0249 (2.0); 7.0085 (4.0); 7.0059 (3.4); 7.0022 (1.9); 6.9979 (5.1); 6.9920 (1.5); 6.9859 (2.1); 6.9775 (5.5); 6.9720 (1.6); 6.9606 (1.1); 6.9548 (3.2); 6.6633 (0.8); 5.2982 (4.4); 4.8063 (16.0); 2.8459 (0.6); 2.8373 (1.0); 2.8280 (1.4); 2.8194 (1.4); 2.8101 (1.1); 2.8014 (0.6); 1.5620 (3.0); 1.4319 (0.5); 0.8758 (1.0); 0.8616 (2.6); 0.8583 (4.0); 0.8554 (1.9); 0.8445 (3.6); 0.8405 (3.0); 0.8375 (1.7); 0.8270 (1.3); 0.6308 (1.3); 0.6208 (2.6); 0.6176 (2.9); 0.6139 (2.8); 0.6119 (2.8); 0.6080 (2.9); 0.6044 (2.6); 0.5906 (0.9); 0.0079 (0.5); -0.0002 (18.7); -0.0085 (0.6)	10
III-012: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3866 (0.9); 7.3850 (0.8); 7.3719 (1.3); 7.3681 (1.2); 7.3660 (1.7); 7.3515 (1.9); 7.3467 (1.4); 7.3317 (1.4); 7.2603 (53.4); 7.1415 (3.5); 7.1356 (1.8); 7.1344 (1.7); 7.1296 (4.2); 7.1245 (3.1); 7.1186 (5.0); 7.1128 (3.3); 7.1103 (3.1); 7.1068 (6.2); 7.0984 (0.9); 7.0919 (1.0); 7.0895 (1.0); 7.0854 (1.0); 7.0830 (1.0); 7.0406 (2.0); 7.0380 (2.5); 7.0369 (2.8); 7.0343 (2.3); 7.0180 (4.3); 7.0154 (3.4); 7.0129 (2.0); 7.0080 (1.5); 6.9994 (5.2); 6.9960 (2.5); 6.9935 (2.4); 6.9895 (2.0); 6.9856 (1.7); 6.9821 (2.1); 6.9792 (5.6); 6.9767 (4.3); 6.9734 (1.8); 6.9681 (0.7); 6.9621 (1.4); 6.9563 (3.5); 6.7201 (0.8); 5.2981 (2.3); 4.8349 (16.0); 4.8229 (0.6); 3.2716 (3.6); 3.2573 (4.2); 3.2540 (4.2); 3.2398 (3.7); 1.5602 (3.2); 1.0563 (0.8); 1.0542 (0.8); 1.0484 (0.8); 1.0443 (0.6); 1.0364 (1.5); 1.0284 (0.6); 1.0242 (0.8); 1.0184 (0.8); 1.0164 (1.0); 1.0043 (0.5); 0.5677 (1.3); 0.5559 (3.2); 0.5529 (3.8); 0.5506 (2.2); 0.5478 (1.7); 0.5414 (1.8); 0.5357 (3.7); 0.5328 (3.1); 0.5214 (1.6); 0.2840 (1.5); 0.2724 (4.2); 0.2701 (3.6); 0.2604 (3.4); 0.2577 (4.3); 0.2460 (1.1); 0.0080 (0.8); -0.0002 (21.5); -0.0085 (0.8)	20
III-013: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3687 (0.6); 7.3631 (0.8); 7.3487 (0.9); 7.3433 (0.7); 7.3286 (0.7); 7.2601 (18.6); 7.1347 (1.6); 7.1293 (1.1); 7.1229 (2.1); 7.1176 (1.2); 7.1120 (2.6); 7.1080 (1.1); 7.1042 (1.3); 7.1004 (2.6); 7.0344 (0.8); 7.0309 (1.3); 7.0282 (1.0); 7.0117 (2.0); 7.0094 (1.6); 7.0051 (1.1); 7.0018 (0.6); 6.9966 (2.4); 6.9885 (1.0); 6.9845 (1.0); 6.9820 (0.9); 6.9764 (2.8); 6.9711 (0.8); 6.9595 (0.5); 6.9538 (1.6); 5.2975 (1.5); 4.8347 (8.3); 3.2365 (2.0); 3.2203 (3.3); 3.2044 (2.0); 1.8734 (0.8); 1.8566 (1.1); 1.8398 (0.9); 1.5647 (1.4); 0.9700 (16.0); 0.9532 (15.4); -0.0002 (7.2)	30
III-014: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5184 (1.4); 7.3726 (0.6); 7.3626 (0.6); 7.3480 (0.7); 7.3418 (0.9); 7.3281 (1.1); 7.3226 (1.0); 7.3076 (1.0); 7.2868 (1.1); 7.2595 (250.5); 7.2092 (0.9); 7.1048 (1.2); 7.0983 (1.3); 7.0942 (1.2); 7.0832 (1.6); 7.0795 (1.4); 7.0770 (1.6); 7.0320 (1.0); 7.0127 (1.0); 6.9955 (2.0); 6.9731 (2.0); 6.9525 (2.0); 6.9303 (1.1); 5.2653 (0.6); 5.1635 (0.6); 5.0152 (2.3); 4.9941 (2.0); 4.0569 (0.8); 4.0424 (0.8); 3.9668 (0.7); 3.9543 (0.7); 3.0239 (3.7); 2.9833 (3.3); 1.5331 (16.0); 0.0080 (4.1); -0.0002 (102.1); -0.0085 (3.9)	40

III-015: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3800 (1.3); 7.3652 (1.2); 7.3594 (2.4); 7.3447 (2.0); 7.3388 (1.7); 7.3250 (1.4); 7.2599 (47.4); 7.1604 (0.5); 7.1521 (3.4); 7.1463 (1.5); 7.1402 (3.7); 7.1347 (2.5); 7.1292 (5.3); 7.1233 (2.5); 7.1212 (2.3); 7.1173 (4.7); 7.1091 (2.2); 7.1066 (2.1); 7.1028 (1.9); 7.1002 (2.0); 7.0880 (1.0); 7.0855 (1.0); 7.0816 (1.1); 7.0791 (1.0); 7.0431 (1.8); 7.0393 (3.0); 7.0367 (2.6); 7.0325 (2.1); 7.0284 (2.3); 7.0262 (2.1); 7.0221 (3.5); 7.0203 (3.8); 7.0175 (1.9); 7.0118 (5.2); 7.0058 (2.8); 7.0029 (2.1); 6.9992 (1.8); 6.9946 (2.1); 6.9916 (5.5); 6.9890 (4.2); 6.9859 (1.8); 6.9805 (0.8); 6.9745 (1.4); 6.9687 (3.4); 6.6717 (0.7); 5.9486 (0.6); 5.9349 (1.3); 5.9227 (0.8); 5.9213 (0.8); 5.9091 (1.5); 5.9057 (0.8); 5.8954 (0.8); 5.8920 (1.6); 5.8798 (1.0); 5.8784 (0.9); 5.8662 (1.6); 5.8525 (0.8); 5.2975 (1.8); 5.2763 (1.0); 5.2720 (2.2); 5.2688 (2.3); 5.2645 (1.0); 5.2333 (0.9); 5.2291 (1.9); 5.2259 (2.0); 5.2216 (1.0); 5.1912 (1.1); 5.1876 (2.5); 5.1842 (2.4); 5.1807 (1.0); 5.1655 (1.0); 5.1618 (2.3); 5.1585 (2.3); 5.1549 (0.9); 4.8668 (16.0); 4.0373 (1.4); 4.0334 (2.4); 4.0294 (1.6); 4.0226 (2.6); 4.0191 (4.1); 4.0155 (2.5); 4.0088 (1.6); 4.0048 (2.3); 4.0009 (1.4); 1.5587 (2.9); 0.0079 (0.7); -0.0002 (19.0); -0.0085 (0.8)	10
III-016: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3818 (1.1); 7.3668 (1.0); 7.3613 (2.2); 7.3464 (1.9); 7.3406 (1.5); 7.3267 (1.3); 7.2600 (35.0); 7.1544 (3.1); 7.1487 (1.2); 7.1425 (3.3); 7.1372 (2.1); 7.1317 (5.0); 7.1256 (2.3); 7.1233 (2.0); 7.1198 (4.4); 7.1111 (1.8); 7.1085 (1.7); 7.1046 (1.6); 7.1023 (1.8); 7.0900 (0.8); 7.0875 (0.8); 7.0835 (0.9); 7.0811 (0.8); 7.0453 (1.5); 7.0417 (2.7); 7.0391 (2.2); 7.0341 (1.6); 7.0300 (1.9); 7.0233 (3.6); 7.0201 (1.9); 7.0115 (5.3); 7.0058 (2.5); 7.0001 (1.6); 6.9944 (1.6); 6.9913 (5.0); 6.9858 (1.5); 6.9743 (1.1); 6.9687 (3.2); 6.7735 (0.7); 5.2975 (6.7); 4.9274 (0.8); 4.8645 (16.0); 4.1932 (4.3); 4.1868 (4.4); 4.1795 (4.3); 4.1731 (4.2); 3.8121 (1.4); 2.2781 (2.6); 2.2717 (5.4); 2.2652 (2.6); 1.5585 (2.7); -0.0002 (13.7)	20
III-017: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3821 (0.8); 7.3672 (0.7); 7.3615 (1.5); 7.3470 (1.3); 7.3409 (1.1); 7.3272 (0.9); 7.2606 (19.7); 7.1540 (2.2); 7.1482 (0.9); 7.1421 (2.4); 7.1366 (1.6); 7.1311 (3.5); 7.1252 (1.7); 7.1230 (1.5); 7.1192 (3.1); 7.1108 (1.4); 7.1083 (1.3); 7.1044 (1.3); 7.1020 (1.3); 7.0898 (0.6); 7.0873 (0.6); 7.0833 (0.7); 7.0808 (0.6); 7.0460 (1.1); 7.0423 (2.0); 7.0397 (1.7); 7.0361 (1.4); 7.0321 (1.4); 7.0299 (1.2); 7.0260 (2.3); 7.0233 (2.0); 7.0204 (1.2); 7.0100 (3.6); 7.0067 (1.4); 7.0056 (1.5); 7.0044 (1.5); 6.9983 (0.8); 6.9927 (1.2); 6.9899 (3.6); 6.9874 (2.7); 6.9842 (1.2); 6.9728 (0.9); 6.9671 (2.3); 6.7110 (0.5); 5.2974 (16.0); 4.8486 (10.5); 4.1364 (0.8); 4.1303 (2.2); 4.1240 (2.6); 4.1171 (2.6); 4.1108 (2.2); 4.1047 (0.8); 3.8119 (0.8); 1.8344 (0.7); 1.8294 (6.1); 1.8233 (12.3); 1.8171 (6.0); 1.5722 (0.7); -0.0002 (7.9)	30
III-018: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):	40

δ= 7.3783 (1.1); 7.3632 (1.0); 7.3578 (2.2); 7.3432 (1.8); 7.3372 (1.4); 7.3232 (1.2); 7.2604 (37.6); 7.1450 (3.0); 7.1394 (1.2); 7.1332 (3.2); 7.1277 (2.6); 7.1224 (5.1); 7.1162 (1.5); 7.1104 (4.4); 7.1057 (1.8); 7.1018 (1.9); 7.0994 (1.7); 7.0870 (0.7); 7.0846 (0.7); 7.0806 (0.8); 7.0782 (0.8); 7.0378 (1.4); 7.0342 (2.6); 7.0315 (2.2); 7.0277 (1.7); 7.0236 (1.8); 7.0215 (1.6); 7.0177 (3.3); 7.0152 (2.9); 7.0104 (4.8); 7.0043 (2.6); 6.9983 (2.0); 6.9933 (2.2); 6.9900 (4.9); 6.9879 (3.9); 6.9846 (1.5); 6.9731 (1.0); 6.9674 (3.0); 6.6448 (0.8); 5.2977 (5.6); 4.8113 (16.0); 2.8352 (0.6); 2.8265 (1.0); 2.8173 (1.4); 2.8086 (1.4); 2.7994 (1.1); 2.7907 (0.6); 1.5653 (4.7); 1.2577 (0.5); 0.8712 (1.0); 0.8570 (2.6); 0.8536 (3.8); 0.8508 (1.9); 0.8398 (3.6); 0.8358 (2.9); 0.8329 (1.7); 0.8224 (1.2); 0.6268 (1.3); 0.6167 (2.6); 0.6136 (2.9); 0.6098 (2.8); 0.6080 (2.8); 0.6040 (2.8); 0.6004 (2.6); 0.5865 (0.9); -0.0002 (14.7)	10
III-019: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3766 (1.0); 7.3613 (1.0); 7.3559 (2.0); 7.3413 (1.8); 7.3354 (1.3); 7.3212 (1.2); 7.2607 (31.4); 7.1496 (2.8); 7.1442 (1.1); 7.1378 (3.0); 7.1325 (2.0); 7.1269 (4.7); 7.1203 (2.1); 7.1152 (4.5); 7.1054 (1.9); 7.1028 (2.0); 7.0987 (2.0); 7.0964 (2.2); 7.0842 (1.1); 7.0818 (1.2); 7.0777 (1.1); 7.0754 (1.1); 7.0426 (1.3); 7.0391 (2.5); 7.0366 (2.0); 7.0322 (1.5); 7.0280 (1.7); 7.0260 (1.5); 7.0204 (2.9); 7.0170 (1.6); 7.0080 (5.2); 7.0023 (2.4); 6.9978 (1.2); 6.9875 (4.4); 6.9856 (3.8); 6.9823 (1.4); 6.9707 (1.0); 6.9651 (2.9); 5.2977 (6.5); 4.8244 (15.2); 4.1832 (2.2); 4.1654 (6.8); 4.1475 (6.9); 4.1296 (2.3); 3.6791 (1.6); 3.6637 (4.0); 3.6484 (4.2); 3.6329 (1.6); 2.6151 (3.6); 2.6097 (0.7); 2.5997 (5.7); 2.5904 (0.6); 2.5846 (3.4); 1.5715 (2.5); 1.2793 (7.7); 1.2615 (16.0); 1.2436 (7.6); -0.0002 (12.3)	20
III-020: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3711 (0.7); 7.3606 (7.3); 7.3572 (3.1); 7.3552 (4.0); 7.3524 (7.7); 7.3496 (4.2); 7.3469 (3.4); 7.3442 (7.9); 7.3401 (2.6); 7.3327 (4.3); 7.3273 (1.8); 7.3197 (4.2); 7.3153 (2.3); 7.3104 (4.8); 7.3030 (1.9); 7.2975 (4.5); 7.2900 (0.7); 7.2635 (33.4); 7.2140 (1.0); 7.2023 (4.3); 7.1993 (2.4); 7.1950 (3.0); 7.1921 (2.9); 7.1879 (3.0); 7.1859 (2.7); 7.1810 (1.9); 7.1779 (3.3); 7.1229 (0.5); 7.1156 (4.6); 7.1101 (1.4); 7.1018 (0.7); 7.0985 (1.5); 7.0943 (6.9); 7.0894 (1.6); 7.0778 (1.2); 7.0724 (3.7); 6.5837 (1.0); 5.9140 (0.6); 5.9003 (1.4); 5.8880 (0.9); 5.8746 (1.6); 5.8712 (0.9); 5.8608 (0.8); 5.8574 (1.7); 5.8450 (1.0); 5.8317 (1.7); 5.8180 (0.8); 5.3784 (1.1); 5.3615 (3.6); 5.3445 (3.6); 5.3275 (1.2); 5.2342 (1.0); 5.2301 (2.3); 5.2267 (2.6); 5.2226 (1.1); 5.1913 (0.9); 5.1872 (2.1); 5.1838 (2.2); 5.1797 (0.9); 5.1691 (1.0); 5.1656 (2.7); 5.1622 (2.6); 5.1588 (1.0); 5.1435 (1.0); 5.1399 (2.5); 5.1365 (2.5); 5.1331 (1.0); 3.9879 (1.5); 3.9840 (2.7); 3.9801 (1.7); 3.9734 (2.8); 3.9697 (4.8); 3.9660 (2.9); 3.9593 (1.7); 3.9554 (2.7); 3.9515 (1.6); 1.7097 (15.9); 1.6927 (16.0); 1.6645 (0.8); 1.6476 (0.8); 1.4323 (2.7); 0.9952 (0.5); 0.9913 (0.6); -0.0002 (14.3)	30
III-021: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):	40

δ= 7.3629 (0.7); 7.3570 (3.0); 7.3543 (1.5); 7.3485 (3.3); 7.3439 (1.9); 7.3406 (3.8); 7.3363 (2.7); 7.3305 (1.2); 7.3231 (1.9); 7.3187 (1.2); 7.3137 (2.2); 7.3063 (1.0); 7.3009 (2.1); 7.2639 (20.6); 7.2003 (2.0); 7.1976 (1.1); 7.1917 (1.6); 7.1863 (1.3); 7.1832 (1.3); 7.1791 (0.9); 7.1759 (1.5); 7.1121 (2.0); 7.1067 (0.7); 7.0950 (0.8); 7.0908 (3.0); 7.0858 (0.9); 7.0742 (0.6); 7.0689 (1.7); 5.3017 (4.2); 5.2988 (1.8); 5.2816 (1.6); 3.6867 (16.0); 3.6294 (0.8); 3.6247 (1.2); 3.6099 (1.7); 3.5953 (1.3); 2.5996 (1.8); 2.5843 (3.2); 2.5689 (1.6); 1.6809 (6.5); 1.6730 (0.8); 1.6639 (6.4); 1.6561 (0.6); 1.4323 (1.4); -0.0002 (8.3)	10
III-022: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3810 (1.2); 7.3662 (1.0); 7.3604 (2.3); 7.3457 (1.9); 7.3398 (1.6); 7.3261 (1.3); 7.2605 (37.7); 7.1610 (3.3); 7.1552 (1.2); 7.1491 (3.5); 7.1437 (2.2); 7.1381 (4.7); 7.1320 (1.5); 7.1262 (5.1); 7.1218 (1.1); 7.1191 (1.2); 7.1069 (1.5); 7.1044 (1.6); 7.1006 (1.6); 7.0981 (1.7); 7.0858 (0.7); 7.0834 (0.8); 7.0794 (0.8); 7.0769 (0.8); 7.0411 (1.6); 7.0374 (2.8); 7.0347 (2.4); 7.0306 (2.0); 7.0266 (2.2); 7.0243 (1.8); 7.0204 (7.5); 7.0148 (2.3); 7.0068 (1.8); 7.0031 (2.7); 7.0001 (6.3); 6.9974 (4.8); 6.9945 (1.7); 6.9830 (1.2); 6.9773 (3.3); 6.6686 (0.6); 5.9450 (0.6); 5.9312 (1.3); 5.9191 (0.8); 5.9176 (0.8); 5.9055 (1.5); 5.9021 (0.8); 5.8917 (0.8); 5.8883 (1.6); 5.8762 (0.9); 5.8746 (0.9); 5.8626 (1.6); 5.8488 (0.8); 5.2978 (10.2); 5.2728 (0.9); 5.2686 (2.1); 5.2653 (2.3); 5.2611 (1.0); 5.2299 (0.8); 5.2257 (1.9); 5.2224 (2.0); 5.2181 (0.9); 5.1903 (0.9); 5.1867 (2.5); 5.1833 (2.4); 5.1797 (0.9); 5.1645 (0.9); 5.1610 (2.3); 5.1576 (2.2); 5.1540 (0.8); 4.8669 (16.0); 4.0364 (1.2); 4.0324 (2.2); 4.0285 (1.4); 4.0218 (2.2); 4.0181 (3.8); 4.0144 (2.2); 4.0077 (1.3); 4.0038 (2.1); 3.9999 (1.2); 1.5879 (1.1); 1.4318 (0.9); -0.0002 (15.2)	20
III-023: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3623 (0.7); 7.3475 (0.6); 7.2605 (10.0); 7.1634 (1.0); 7.1516 (1.0); 7.1462 (0.7); 7.1407 (1.4); 7.1289 (1.5); 7.1000 (0.5); 7.0396 (0.8); 7.0370 (0.7); 7.0320 (0.6); 7.0280 (0.7); 7.0204 (2.3); 7.0083 (0.7); 7.0000 (1.8); 6.9773 (1.0); 5.2980 (16.0); 4.8645 (5.0); 4.1933 (1.4); 4.1869 (1.4); 4.1796 (1.4); 4.1732 (1.3); 2.2780 (0.9); 2.2716 (1.9); 2.2652 (0.9); 1.5728 (0.5); -0.0002 (4.1)	30
III-024: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3795 (0.5); 7.3589 (1.0); 7.3443 (0.8); 7.3383 (0.7); 7.3243 (0.6); 7.2610 (17.9); 7.1541 (1.4); 7.1485 (0.5); 7.1423 (1.5); 7.1369 (1.0); 7.1313 (2.1); 7.1250 (1.0); 7.1194 (2.2); 7.1060 (0.7); 7.1035 (0.7); 7.0996 (0.7); 7.0972 (0.7); 7.0358 (0.7); 7.0320 (1.2); 7.0294 (1.1); 7.0259 (0.9); 7.0215 (1.1); 7.0191 (2.6); 7.0157 (1.6); 7.0131 (1.8); 7.0018 (1.3); 6.9986 (2.7); 6.9963 (2.3); 6.9928 (1.0); 6.9760 (1.4); 5.2982 (16.0); 4.8113 (7.1); 2.8143 (0.6); 2.8058 (0.6); 1.5740 (1.3); 0.8564 (1.1); 0.8532 (1.7); 0.8502 (0.8); 0.8393 (1.6); 0.8353 (1.3); 0.8323 (0.7); 0.8218	40

(0.6); 0.6289 (0.6); 0.6189 (1.2); 0.6158 (1.3); 0.6120 (1.2); 0.6100 (1.2); 0.6061 (1.3); 0.6026 (1.1); -0.0002 (7.2)	
III-025: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ = 7.3833 (1.2); 7.3685 (1.0); 7.3628 (2.3); 7.3482 (1.9); 7.3422 (1.6); 7.3283 (1.3); 7.2608 (36.5); 7.1653 (3.3); 7.1596 (1.2); 7.1534 (3.5); 7.1480 (2.2); 7.1425 (4.7); 7.1364 (1.5); 7.1306 (5.0); 7.1275 (1.3); 7.1234 (1.2); 7.1212 (1.2); 7.1087 (1.5); 7.1062 (1.7); 7.1023 (1.6); 7.0998 (1.8); 7.0876 (0.8); 7.0851 (0.8); 7.0811 (0.8); 7.0787 (0.8); 7.0451 (1.5); 7.0413 (2.8); 7.0387 (2.4); 7.0357 (2.0); 7.0317 (2.0); 7.0293 (2.0); 7.0254 (3.5); 7.0202 (5.9); 7.0141 (1.8); 7.0120 (2.0); 7.0083 (1.9); 7.0057 (1.8); 6.9999 (5.5); 6.9975 (4.2); 6.9943 (1.6); 6.9829 (1.2); 6.9772 (3.3); 6.6928 (0.7); 5.2979 (16.0); 4.8422 (15.8); 3.2639 (3.5); 3.2495 (4.0); 3.2463 (4.0); 3.2320 (3.5); 1.5787 (2.7); 1.0458 (0.8); 1.0438 (0.8); 1.0380 (0.7); 1.0339 (0.5); 1.0259 (1.4); 1.0180 (0.6); 1.0137 (0.7); 1.0080 (0.8); 1.0060 (0.9); 0.5591 (1.2); 0.5473 (3.0); 0.5442 (3.6); 0.5420 (2.0); 0.5392 (1.6); 0.5328 (1.6); 0.5272 (3.4); 0.5242 (2.9); 0.5128 (1.4); 0.2732 (1.4); 0.2616 (4.0); 0.2496 (3.1); 0.2468 (4.1); 0.2349 (1.0); 0.0701 (0.8); -0.0002 (14.8)	10
III-026: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ = 7.3791 (0.6); 7.3642 (0.5); 7.3586 (1.1); 7.3438 (1.0); 7.3379 (0.8); 7.3241 (0.6); 7.2614 (16.9); 7.1596 (1.6); 7.1539 (0.7); 7.1477 (1.8); 7.1423 (1.2); 7.1367 (2.3); 7.1306 (0.9); 7.1250 (2.6); 7.1191 (0.8); 7.1166 (1.0); 7.1043 (1.1); 7.1018 (1.2); 7.0979 (1.2); 7.0955 (1.3); 7.0832 (0.7); 7.0808 (0.7); 7.0768 (0.7); 7.0744 (0.6); 7.0429 (0.8); 7.0392 (1.4); 7.0366 (1.2); 7.0323 (1.0); 7.0282 (1.1); 7.0261 (1.2); 7.0179 (2.9); 7.0120 (0.9); 7.0083 (1.0); 7.0053 (1.0); 7.0010 (1.3); 6.9977 (3.1); 6.9920 (0.9); 6.9806 (0.7); 6.9749 (1.6); 5.2983 (4.1); 4.8241 (8.1); 3.6958 (16.0); 3.6787 (1.0); 3.6633 (2.3); 3.6480 (2.3); 3.6325 (1.0); 2.6318 (1.9); 2.6164 (2.9); 2.6012 (1.8); 1.5819 (2.0); -0.0002 (6.8)	20
III-027: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ = 7.3797 (0.6); 7.3649 (0.6); 7.3592 (1.1); 7.3444 (0.9); 7.3383 (0.6); 7.3246 (0.6); 7.2609 (19.2); 7.1705 (1.7); 7.1649 (0.6); 7.1587 (1.8); 7.1533 (1.1); 7.1477 (2.3); 7.1416 (0.8); 7.1359 (2.2); 7.1256 (0.6); 7.1230 (0.6); 7.1191 (0.6); 7.1166 (0.7); 7.1044 (1.1); 7.1017 (1.2); 7.0983 (1.0); 7.0955 (1.2); 7.0833 (0.6); 7.0808 (0.5); 7.0768 (0.5); 7.0469 (0.8); 7.0431 (1.3); 7.0405 (1.1); 7.0333 (0.8); 7.0291 (1.3); 7.0270 (1.6); 7.0235 (2.4); 7.0200 (2.6); 7.0141 (0.8); 7.0091 (1.0); 7.0028 (1.4); 6.9996 (3.0); 6.9940 (0.8); 6.9826 (0.6); 6.9769 (1.6); 5.2981 (4.6); 4.8950 (7.8); 4.1775 (3.6); 4.1639 (3.6); 3.7892 (16.0); 1.5695 (2.2); -0.0002 (7.7)	30
III-028: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ = 7.5194 (0.7); 7.5156 (0.9); 7.5127 (1.1); 7.5093 (0.7); 7.5007 (0.8); 7.4942 (2.9); 7.4881 (1.0); 7.4791 (1.5); 7.4756 (2.8); 7.4721 (1.5); 7.4514 (0.7); 7.4461 (3.2); 7.4427 (1.7); 7.4310	40

10

20

30

40

50

(2.9); 7.4272 (5.7); 7.4227 (1.6); 7.4137 (1.1); 7.4093 (3.0); 7.4061 (1.8); 7.3639 (0.7); 7.3593 (0.7); 7.3463 (0.7); 7.3412 (0.6); 7.3308 (0.9); 7.3257 (4.6); 7.3226 (5.6); 7.3189 (2.7); 7.3104 (1.4); 7.3053 (5.0); 7.3015 (3.4); 7.2606 (65.6); 7.2496 (1.7); 7.2484 (1.7); 7.2438 (3.0); 7.2287 (2.4); 7.2234 (1.9); 7.2092 (1.2); 7.2077 (1.2); 7.0346 (1.1); 7.0324 (1.3); 7.0283 (1.5); 7.0261 (1.5); 7.0138 (2.4); 7.0115 (2.7); 7.0074 (2.6); 7.0056 (2.7); 6.9966 (1.1); 6.9932 (1.2); 6.9910 (1.2); 6.9870 (1.2); 6.9847 (1.1); 6.9403 (1.4); 6.9350 (2.2); 6.9293 (1.5); 6.9168 (1.2); 6.9117 (2.0); 6.9072 (3.6); 6.9052 (3.7); 6.9023 (1.6); 6.8998 (1.4); 6.8869 (1.7); 6.8855 (1.8); 6.8821 (1.4); 5.9884 (0.9); 5.2981 (10.6); 4.9142 (1.7); 4.9026 (16.0); 4.7268 (1.1); 2.8681 (0.7); 2.8592 (1.2); 2.8501 (1.6); 2.8411 (1.6); 2.8320 (1.2); 2.8231 (0.8); 2.0433 (0.6); 1.5631 (4.3); 1.2584 (0.6); 0.8814 (1.2); 0.8757 (0.6); 0.8669 (2.6); 0.8640 (4.2); 0.8610 (2.3); 0.8501 (3.8); 0.8461 (3.1); 0.8430 (2.0); 0.8370 (0.7); 0.8326 (1.6); 0.6537 (1.4); 0.6438 (3.0); 0.6405 (3.3); 0.6349 (3.2); 0.6309 (3.3); 0.6272 (2.9); 0.6134 (1.3); 0.0079 (0.8); -0.0002 (26.2); -0.0085 (1.0)	10
III-029: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.5124 (0.5); 7.5090 (0.5); 7.4907 (1.4); 7.4845 (0.5); 7.4757 (0.8); 7.4722 (1.4); 7.4686 (0.8); 7.4446 (1.6); 7.4411 (0.9); 7.4296 (1.5); 7.4258 (2.9); 7.4212 (0.8); 7.4123 (0.8); 7.4078 (1.8); 7.4045 (1.2); 7.3558 (0.6); 7.3402 (0.6); 7.3349 (2.3); 7.3318 (2.8); 7.3281 (1.3); 7.3196 (0.8); 7.3145 (2.4); 7.3107 (1.7); 7.2610 (20.9); 7.2555 (0.7); 7.2513 (0.6); 7.2485 (0.8); 7.2428 (1.3); 7.2276 (1.2); 7.2222 (0.9); 7.2072 (0.7); 7.0340 (0.6); 7.0319 (0.6); 7.0278 (0.6); 7.0257 (0.6); 7.0135 (0.8); 7.0112 (0.9); 7.0072 (1.0); 7.0050 (0.9); 6.9865 (0.5); 6.9610 (0.7); 6.9556 (1.1); 6.9500 (0.6); 6.9375 (0.7); 6.9323 (1.0); 6.9267 (0.7); 6.9137 (0.9); 6.9120 (1.0); 6.9088 (0.8); 6.9068 (0.7); 6.8933 (0.8); 6.8920 (0.8); 6.8884 (0.7); 6.8869 (0.6); 5.2979 (9.4); 4.9951 (0.9); 4.9831 (7.6); 4.8328 (0.6); 4.1905 (3.8); 4.1766 (3.8); 4.1669 (0.5); 3.7927 (16.0); 3.7800 (1.5); -0.0002 (8.5)	20
III-030: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.5037 (1.4); 7.5004 (0.8); 7.4916 (0.8); 7.4852 (3.0); 7.4792 (1.1); 7.4701 (1.6); 7.4666 (2.9); 7.4631 (1.6); 7.4415 (0.8); 7.4363 (3.3); 7.4328 (1.8); 7.4212 (3.1); 7.4174 (5.8); 7.4129 (1.6); 7.4038 (1.2); 7.3994 (3.2); 7.3962 (1.9); 7.3448 (10.8); 7.3442 (10.8); 7.3378 (5.2); 7.3331 (13.0); 7.3248 (2.0); 7.3177 (2.1); 7.3139 (2.4); 7.3089 (6.3); 7.3058 (6.6); 7.3006 (5.1); 7.2933 (3.0); 7.2884 (6.5); 7.2847 (4.7); 7.2792 (2.8); 7.2737 (1.6); 7.2684 (1.9); 7.2587 (55.0); 7.2478 (2.6); 7.2420 (3.7); 7.2326 (1.7); 7.2269 (3.1); 7.2216 (2.2); 7.2134 (1.0); 7.2070 (1.7); 7.1927 (0.5); 7.0357 (0.9); 7.0334 (1.0); 7.0294 (1.0); 7.0272 (1.0); 7.0150 (1.7); 7.0127 (1.9); 7.0088 (1.7); 7.0066 (1.8); 6.9943 (1.3); 6.9921 (1.1); 6.9880 (1.1); 6.9858 (1.0); 6.9451 (0.6); 6.9345 (1.3); 6.9290 (2.2); 6.9235 (1.5); 6.9109 (1.2); 6.9059 (2.1); 6.8988 (2.8); 6.8961 (2.6); 6.8932 (1.6); 6.8908 (1.4); 6.8778 (1.8); 6.8764 (1.8); 6.8730 (1.5); 6.8712 (1.3); 5.9808 (1.3);	30
	40

5.2961 (16.0); 4.9904 (2.1); 4.9819 (15.6); 4.8250 (1.6); 4.7655 (0.6); 4.6005 (7.1); 4.5854 (7.0); 4.5689 (0.9); 4.5540 (0.8); 1.5619 (3.4); 0.0080 (0.8); -0.0002 (22.3); -0.0085 (0.8)	
III-031: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5362 (0.6); 7.5167 (1.4); 7.5132 (1.2); 7.5098 (0.7); 7.5013 (0.8); 7.4988 (0.7); 7.4948 (3.0); 7.4887 (1.1); 7.4797 (1.6); 7.4762 (2.9); 7.4727 (1.6); 7.4529 (0.7); 7.4490 (2.8); 7.4476 (3.2); 7.4441 (1.8); 7.4325 (3.0); 7.4287 (5.9); 7.4240 (1.6); 7.4152 (1.2); 7.4108 (3.2); 7.4076 (1.9); 7.3713 (0.9); 7.3681 (1.0); 7.3647 (0.6); 7.3603 (0.8); 7.3553 (0.7); 7.3508 (1.1); 7.3469 (0.9); 7.3421 (0.8); 7.3353 (0.9); 7.3302 (4.8); 7.3271 (5.9); 7.3248 (2.6); 7.3233 (2.9); 7.3148 (1.5); 7.3097 (5.1); 7.3060 (3.6); 7.2665 (2.1); 7.2600 (90.9); 7.2520 (2.8); 7.2462 (3.2); 7.2350 (1.1); 7.2310 (2.6); 7.2256 (1.8); 7.2201 (0.6); 7.2153 (0.8); 7.2110 (1.6); 7.2012 (0.7); 7.0368 (1.4); 7.0346 (1.6); 7.0305 (1.6); 7.0283 (1.7); 7.0159 (2.4); 7.0138 (2.7); 7.0098 (2.6); 7.0077 (2.5); 6.9957 (1.8); 6.9932 (1.3); 6.9892 (1.4); 6.9869 (1.4); 6.9497 (1.4); 6.9444 (2.4); 6.9390 (1.6); 6.9263 (1.3); 6.9213 (2.2); 6.9141 (2.8); 6.9115 (2.6); 6.9085 (1.6); 6.9062 (1.4); 6.8932 (1.6); 6.8918 (1.7); 6.8884 (1.4); 6.0755 (0.5); 6.0122 (1.0); 5.9580 (0.7); 5.9441 (1.5); 5.9321 (0.9); 5.9304 (0.9); 5.9184 (1.7); 5.9151 (1.0); 5.9045 (1.0); 5.9012 (1.9); 5.8892 (1.1); 5.8875 (1.2); 5.8754 (1.9); 5.8616 (0.9); 5.3045 (1.0); 5.3003 (2.5); 5.2978 (3.5); 5.2931 (1.2); 5.2615 (1.0); 5.2573 (2.2); 5.2543 (2.3); 5.2501 (1.2); 5.2208 (0.5); 5.2154 (1.2); 5.2119 (2.6); 5.2087 (2.6); 5.2052 (1.2); 5.1950 (0.5); 5.1897 (1.1); 5.1862 (2.4); 5.1830 (2.3); 5.1795 (1.0); 5.1735 (0.5); 4.9628 (2.6); 4.9512 (16.0); 4.7881 (1.8); 4.7298 (0.6); 4.0499 (1.6); 4.0459 (2.4); 4.0418 (1.8); 4.0357 (3.0); 4.0317 (4.5); 4.0278 (2.7); 4.0214 (1.9); 4.0174 (2.6); 4.0136 (1.6); 4.0008 (0.7); 1.5559 (5.7); 0.0080 (1.2); -0.0002 (38.0); -0.0085 (1.4)	10
III-035: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4378 (0.8); 7.4325 (1.4); 7.4250 (6.7); 7.4212 (7.1); 7.4150 (2.8); 7.4111 (2.5); 7.4069 (4.4); 7.4053 (3.9); 7.3981 (1.3); 7.3939 (1.5); 7.3879 (0.6); 7.3836 (0.7); 7.3186 (0.6); 7.3113 (4.7); 7.3071 (5.2); 7.3020 (2.0); 7.3002 (1.9); 7.2976 (1.8); 7.2948 (2.4); 7.2925 (2.6); 7.2871 (3.5); 7.2601 (36.3); 7.2271 (1.0); 7.2109 (1.0); 7.2067 (2.1); 7.1919 (1.7); 7.1905 (1.8); 7.1874 (1.3); 7.1724 (1.0); 7.1705 (1.0); 6.9607 (0.8); 6.9554 (2.0); 6.9506 (1.8); 6.9473 (1.5); 6.9447 (1.7); 6.9409 (0.8); 6.9380 (0.9); 6.9362 (0.9); 6.9309 (2.0); 6.9268 (3.7); 6.9241 (3.9); 6.9202 (1.7); 6.9175 (3.5); 6.9145 (2.3); 6.9101 (1.5); 6.9060 (1.1); 6.9037 (1.4); 6.8974 (2.5); 6.8951 (1.8); 6.8924 (1.7); 6.8901 (1.3); 6.7097 (0.7); 5.2973 (7.6); 4.8608 (16.0); 3.2684 (3.6); 3.2541 (4.2); 3.2509 (4.2); 3.2366 (3.6); 1.5736 (3.6); 1.0504 (0.8); 1.0484 (0.8); 1.0425 (0.7); 1.0385 (0.6); 1.0361 (0.5); 1.0305 (1.4); 1.0225 (0.6); 1.0183 (0.8); 1.0125 (0.8); 1.0105 (0.9); 0.5610 (1.2); 0.5491 (3.2); 0.5462 (3.7); 0.5440 (2.3); 0.5411 (1.7); 0.5347 (1.8); 0.5291 (3.6); 0.5261 (3.1); 0.5147 (1.4); 0.2767 (1.4); 0.2651 (4.2); 0.2531 (3.4); 0.2503 (4.3); 0.2384 (1.0); -0.0002 (14.4); -0.0084 (0.6)	30

10

20

30

40

50

III-038: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 8.9430 (1.5); 7.4486 (0.7); 7.4444 (0.8); 7.4322 (3.8); 7.4281 (4.7); 7.4193 (7.5); 7.4170 (12.4); 7.4148 (14.1); 7.4095 (9.7); 7.4031 (4.9); 7.3991 (6.9); 7.3974 (6.3); 7.3891 (2.5); 7.3852 (3.2); 7.3742 (4.3); 7.3655 (7.3); 7.3573 (3.9); 7.3514 (7.5); 7.3478 (6.9); 7.3404 (1.8); 7.2726 (1.2); 7.2655 (6.8); 7.2609 (10.1); 7.2581 (49.7); 7.2517 (3.4); 7.2484 (4.1); 7.2466 (4.4); 7.2415 (5.0); 7.2110 (1.1); 7.1904 (2.2); 7.1746 (2.2); 7.1702 (1.6); 7.1541 (1.2); 6.9328 (1.1); 6.9286 (1.4); 6.9267 (1.5); 6.9060 (3.6); 6.9000 (2.0); 6.8939 (1.7); 6.8875 (1.8); 6.8854 (1.8); 6.8754 (1.9); 6.8655 (3.0); 6.8639 (2.9); 6.8450 (2.1); 6.8412 (2.1); 5.2951 (16.0); 4.9969 (13.2); 4.9029 (5.9); 4.7024 (2.2); 1.5851 (0.9); 0.0079 (0.6); -0.0002 (20.3); -0.0085 (0.8)	10
III-039: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4141 (1.2); 7.3996 (1.1); 7.3936 (2.4); 7.3790 (1.9); 7.3728 (1.7); 7.3593 (1.4); 7.2611 (47.7); 7.2040 (1.0); 7.2015 (1.1); 7.1977 (1.1); 7.1952 (1.1); 7.1829 (1.8); 7.1803 (2.0); 7.1767 (1.9); 7.1740 (2.0); 7.1624 (4.1); 7.1594 (1.8); 7.1567 (1.8); 7.1509 (3.9); 7.1453 (2.6); 7.1397 (5.2); 7.1338 (1.7); 7.1280 (5.0); 7.1197 (0.6); 7.0759 (1.8); 7.0721 (3.0); 7.0695 (2.6); 7.0641 (1.9); 7.0600 (2.3); 7.0560 (2.6); 7.0535 (4.3); 7.0412 (2.0); 7.0357 (6.6); 7.0302 (2.3); 7.0242 (0.9); 7.0158 (5.6); 7.0129 (4.2); 7.0102 (1.9); 7.0045 (0.6); 6.9987 (1.3); 6.9930 (3.6); 6.9289 (0.9); 5.2984 (1.2); 5.0248 (0.5); 4.8993 (16.0); 3.8220 (1.0); 3.4083 (1.8); 3.3907 (3.3); 3.3756 (3.3); 3.3577 (1.8); 1.6204 (1.7); 1.6028 (2.6); 1.5955 (1.5); 1.5844 (2.4); 1.5740 (2.6); 1.3826 (1.5); 1.3733 (3.8); 1.3644 (5.3); 1.3549 (6.6); 1.3460 (3.1); 1.3372 (1.7); 0.9288 (3.6); 0.9244 (2.1); 0.9113 (11.0); 0.9052 (2.4); 0.8971 (2.0); 0.8934 (3.0); 0.0080 (0.6); -0.0002 (19.1); -0.0085 (0.7)	20
III-040: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.4161 (1.3); 7.4017 (1.1); 7.3956 (2.4); 7.3908 (0.5); 7.3811 (1.9); 7.3747 (1.7); 7.3615 (1.4); 7.2611 (46.2); 7.2054 (1.0); 7.2029 (1.1); 7.1990 (1.1); 7.1965 (1.2); 7.1843 (1.8); 7.1816 (1.9); 7.1781 (1.8); 7.1754 (2.2); 7.1666 (3.7); 7.1632 (1.8); 7.1608 (2.3); 7.1549 (4.4); 7.1494 (2.8); 7.1437 (5.2); 7.1378 (1.8); 7.1320 (4.9); 7.1237 (0.8); 7.0801 (2.0); 7.0762 (3.2); 7.0737 (2.9); 7.0678 (2.4); 7.0638 (3.0); 7.0602 (3.3); 7.0574 (5.3); 7.0455 (2.9); 7.0375 (6.6); 7.0316 (2.3); 7.0259 (1.2); 7.0200 (2.2); 7.0176 (5.8); 7.0145 (4.3); 7.0118 (2.1); 7.0061 (0.8); 7.0004 (1.5); 6.9947 (3.6); 6.9863 (0.5); 5.2985 (3.1); 4.9118 (16.0); 3.2784 (3.6); 3.2642 (4.2); 3.2607 (4.4); 3.2466 (3.8); 1.5731 (2.4); 1.0671 (0.8); 1.0651 (0.8); 1.0592 (0.8); 1.0551 (0.6); 1.0528 (0.6); 1.0472 (1.6); 1.0392 (0.7); 1.0350 (0.8); 1.0292 (0.9); 1.0272 (1.0); 1.0151 (0.6); 0.5872 (1.2); 0.5753 (3.2); 0.5724 (4.0); 0.5700 (2.4); 0.5673 (1.8); 0.5608 (2.0); 0.5552 (3.8); 0.5523 (3.3); 0.5408 (1.7); 0.2972 (1.4); 0.2855 (4.3); 0.2832 (3.7); 0.2735 (3.5); 0.2708 (4.5); 0.2590 (1.3); 0.0080 (0.6); -0.0002 (19.7); -0.0084 (0.9)	30
III-041: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):	40

δ= 7.4129 (1.2); 7.3984 (1.1); 7.3923 (2.3); 7.3778 (1.8); 7.3715 (1.6); 7.3582 (1.3); 7.2610 (53.3); 7.2035 (0.9); 7.2009 (1.1); 7.1972 (1.0); 7.1946 (1.1); 7.1824 (1.7); 7.1798 (1.8); 7.1762 (1.7); 7.1735 (1.8); 7.1611 (1.1); 7.1569 (3.5); 7.1513 (1.7); 7.1452 (3.5); 7.1397 (2.4); 7.1339 (4.8); 7.1281 (1.6); 7.1256 (1.4); 7.1223 (4.7); 7.1140 (0.6); 7.0721 (1.8); 7.0683 (2.9); 7.0657 (2.5); 7.0601 (1.9); 7.0561 (2.3); 7.0522 (2.6); 7.0496 (4.2); 7.0439 (1.1); 7.0355 (5.6); 7.0301 (2.4); 7.0278 (1.6); 7.0240 (1.0); 7.0181 (2.1); 7.0156 (5.5); 7.0126 (4.1); 7.0099 (2.1); 7.0041 (1.1); 6.9985 (2.1); 6.9927 (4.2); 6.9845 (1.0); 5.2986 (5.9); 4.8865 (16.0); 2.8649 (0.7); 2.8561 (1.1); 2.8469 (1.5); 2.8380 (1.6); 2.8288 (1.1); 2.8200 (0.7); 1.5641 (3.4); 1.2585 (0.5); 0.8827 (1.1); 0.8683 (2.8); 0.8654 (4.2); 0.8623 (2.0); 0.8514 (3.8); 0.8475 (3.1); 0.8444 (1.8); 0.8338 (1.3); 0.6509 (1.3); 0.6409 (2.9); 0.6377 (3.2); 0.6341 (2.9); 0.6319 (3.0); 0.6281 (3.2); 0.6246 (2.7); 0.6107 (1.0); 0.0080 (0.7); -0.0002 (22.6); -0.0085 (0.8)	10
III-042: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.4159 (1.1); 7.4010 (1.1); 7.3953 (2.2); 7.3911 (0.6); 7.3808 (1.8); 7.3744 (1.4); 7.3608 (1.4); 7.2612 (28.4); 7.2056 (1.0); 7.2032 (1.1); 7.1992 (1.1); 7.1969 (1.1); 7.1845 (1.7); 7.1819 (1.8); 7.1783 (1.8); 7.1757 (1.9); 7.1636 (3.8); 7.1577 (2.0); 7.1521 (3.6); 7.1467 (2.5); 7.1410 (4.8); 7.1351 (1.8); 7.1293 (4.8); 7.1210 (1.0); 7.0948 (1.1); 7.0788 (2.1); 7.0752 (3.2); 7.0726 (2.6); 7.0660 (2.0); 7.0619 (2.4); 7.0592 (3.1); 7.0559 (4.6); 7.0432 (2.1); 7.0377 (6.1); 7.0323 (2.3); 7.0263 (1.0); 7.0178 (5.1); 7.0151 (3.9); 7.0124 (1.9); 7.0066 (0.7); 7.0008 (1.3); 6.9952 (3.3); 5.2984 (5.3); 4.9386 (16.0); 4.2016 (4.4); 4.1953 (4.7); 4.1880 (4.6); 4.1816 (4.5); 3.8217 (0.7); 2.2867 (2.5); 2.2803 (5.2); 2.2739 (2.7); 2.0433 (0.6); 1.5721 (1.6); -0.0002 (12.3); -0.0085 (0.6)	20
III-043: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): δ= 7.4140 (1.2); 7.3995 (1.1); 7.3935 (2.3); 7.3890 (0.5); 7.3790 (1.8); 7.3726 (1.5); 7.3592 (1.3); 7.2613 (35.5); 7.2037 (1.0); 7.2011 (1.1); 7.1973 (1.0); 7.1948 (1.1); 7.1826 (1.7); 7.1799 (1.8); 7.1764 (1.8); 7.1736 (2.0); 7.1647 (3.5); 7.1615 (1.7); 7.1590 (2.1); 7.1529 (4.2); 7.1475 (2.5); 7.1418 (5.0); 7.1359 (1.6); 7.1301 (4.7); 7.1219 (0.6); 7.0767 (1.8); 7.0728 (2.8); 7.0703 (2.4); 7.0641 (1.8); 7.0600 (2.4); 7.0571 (2.8); 7.0538 (4.8); 7.0462 (1.0); 7.0409 (2.3); 7.0379 (6.2); 7.0319 (2.5); 7.0264 (1.1); 7.0181 (5.7); 7.0151 (4.3); 7.0124 (2.2); 7.0066 (1.1); 7.0009 (1.9); 6.9952 (4.0); 6.9869 (0.9); 5.9558 (0.6); 5.9419 (1.4); 5.9300 (0.8); 5.9282 (0.8); 5.9162 (1.6); 5.9128 (0.9); 5.9023 (0.9); 5.8990 (1.6); 5.8870 (0.9); 5.8853 (0.9); 5.8732 (1.7); 5.8594 (0.8); 5.3015 (1.3); 5.2981 (7.6); 5.2945 (2.6); 5.2903 (1.1); 5.2588 (0.9); 5.2546 (2.0); 5.2515 (2.0); 5.2473 (0.9); 5.2154 (1.1); 5.2119 (2.6); 5.2087 (2.4); 5.2052 (1.0); 5.1897 (1.0); 5.1861 (2.4); 5.1829 (2.3); 5.1794 (0.9); 4.9349 (16.0); 4.0468 (1.4); 4.0431 (2.3); 4.0391 (1.5); 4.0325 (2.7); 4.0288 (4.4); 4.0251 (2.6); 4.0185 (1.6); 4.0145 (2.3); 4.0107 (1.3); 1.5850 (1.2); -0.0002 (14.3); -0.0085 (0.6)	30

III-045: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5181 (1.5); 7.3032 (1.2); 7.2976 (1.7); 7.2931 (1.2); 7.2831 (7.3); 7.2816 (6.9); 7.2777 (4.5); 7.2750 (3.8); 7.2699 (6.4); 7.2592 (256.6); 7.2500 (5.6); 7.2477 (5.8); 7.2440 (1.8); 7.2381 (2.3); 7.2365 (2.1); 7.2223 (0.5); 7.2187 (0.7); 7.2092 (0.6); 7.1748 (0.6); 7.1471 (4.5); 7.1430 (5.4); 7.1373 (1.6); 7.1307 (2.4); 7.1261 (4.4); 7.1227 (3.6); 7.0952 (0.6); 7.0881 (4.6); 7.0826 (1.4); 7.0711 (1.7); 7.0666 (6.7); 7.0614 (1.6); 7.0499 (1.3); 7.0445 (3.6); 6.9952 (1.4); 6.7413 (0.8); 5.9268 (0.6); 5.9133 (1.3); 5.9007 (0.9); 5.8875 (1.5); 5.8839 (0.8); 5.8740 (0.8); 5.8703 (1.6); 5.8577 (1.1); 5.8446 (1.6); 5.8311 (0.8); 5.3280 (1.0); 5.3109 (3.2); 5.2938 (3.3); 5.2768 (1.0); 5.2406 (1.0); 5.2363 (2.3); 5.2330 (2.4); 5.2287 (1.0); 5.1977 (0.9); 5.1933 (2.0); 5.1900 (2.1); 5.1858 (0.9); 5.1558 (1.1); 5.1522 (2.7); 5.1487 (2.6); 5.1451 (1.0); 5.1300 (1.0); 5.1264 (2.5); 5.1230 (2.4); 5.1193 (1.0); 3.9914 (0.8); 3.9872 (1.5); 3.9813 (1.7); 3.9772 (2.0); 3.9727 (2.6); 3.9674 (2.8); 3.9633 (2.0); 3.9592 (1.6); 3.9533 (1.5); 3.9490 (0.8); 1.7140 (16.0); 1.6970 (15.9); 1.5575 (6.2); 0.0080 (3.4); -0.0002 (99.9); -0.0085 (3.4)	10
III-046: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.5182 (0.7); 7.3013 (0.6); 7.2961 (0.8); 7.2877 (0.8); 7.2814 (3.6); 7.2798 (3.4); 7.2759 (2.3); 7.2733 (2.1); 7.2684 (3.4); 7.2593 (131.7); 7.2519 (4.6); 7.2475 (2.7); 7.2464 (2.7); 7.2415 (0.7); 7.2355 (1.1); 7.1457 (2.2); 7.1415 (2.7); 7.1359 (0.8); 7.1291 (1.2); 7.1246 (2.2); 7.1213 (1.8); 7.0879 (2.2); 7.0824 (0.7); 7.0709 (0.8); 7.0662 (3.3); 7.0612 (0.8); 7.0497 (0.6); 7.0443 (1.7); 6.9953 (0.7); 5.2764 (1.6); 5.2594 (1.6); 3.3302 (0.6); 3.3124 (1.2); 3.3002 (1.3); 3.2974 (1.2); 3.2857 (1.2); 3.2802 (0.6); 3.2680 (0.6); 1.6990 (7.7); 1.6820 (7.6); 1.6004 (1.2); 1.5823 (2.5); 1.5641 (2.8); 1.5389 (16.0); 0.9486 (4.0); 0.9302 (8.2); 0.9116 (3.5); 0.0080 (1.7); -0.0002 (49.5); -0.0084 (1.7)	20
III-047: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3029 (0.7); 7.2988 (1.0); 7.2975 (1.0); 7.2932 (0.9); 7.2873 (3.0); 7.2813 (4.2); 7.2774 (2.2); 7.2744 (4.1); 7.2650 (6.0); 7.2594 (82.3); 7.2528 (5.6); 7.2491 (2.2); 7.2448 (0.7); 7.2427 (0.7); 7.2368 (1.4); 7.2354 (1.3); 7.1528 (3.0); 7.1487 (3.7); 7.1431 (1.0); 7.1363 (1.6); 7.1318 (2.9); 7.1285 (2.4); 7.0901 (3.0); 7.0846 (0.9); 7.0759 (0.6); 7.0731 (1.1); 7.0686 (4.4); 7.0633 (1.1); 7.0519 (0.8); 7.0465 (2.3); 6.7700 (0.6); 5.2980 (0.6); 5.2809 (2.1); 5.2639 (2.1); 5.2469 (0.6); 3.2195 (1.6); 3.2173 (1.6); 3.2027 (2.8); 3.1875 (1.6); 1.7060 (10.3); 1.6890 (10.1); 1.5458 (16.0); 1.0121 (0.6); 1.0098 (0.5); 0.9921 (1.0); 0.9799 (0.5); 0.9744 (0.6); 0.9721 (0.6); 0.5169 (0.8); 0.5116 (2.0); 0.5087 (2.6); 0.5060 (1.5); 0.4961 (1.0); 0.4915 (2.3); 0.4886 (2.1); 0.4837 (0.8); 0.2395 (0.9); 0.2331 (1.2); 0.2307 (1.3); 0.2275 (1.8); 0.2238 (2.0); 0.2184 (1.7); 0.2121 (1.2); 0.2060 (0.8); 0.0079 (1.1); -0.0002 (31.3); -0.0085 (1.0)	30
III-048: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃):	40

10

20

30

40

50

$\delta = 7.2782$ (1.2); 7.2741 (0.8); 7.2715 (0.8); 7.2595 (48.7); 7.2465 (0.7); 7.2441 (0.8); 7.1435 (0.7); 7.1393 (0.8); 7.1224 (0.7); 7.1192 (0.6); 7.0878 (0.7); 7.0661 (1.0); 7.0443 (0.5); 1.7046 (2.3); 1.6876 (2.2); 1.5377 (16.0); 0.9226 (3.6); 0.9059 (3.5); 0.0079 (0.7); -0.0002 (19.6); -0.0085 (0.8)	
III-049: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): $\delta = 7.5182$ (0.7); 7.3099 (1.3); 7.3044 (1.9); 7.3000 (1.2); 7.2882 (5.9); 7.2819 (6.1); 7.2763 (3.0); 7.2733 (4.0); 7.2690 (10.6); 7.2593 (120.4); 7.2527 (4.8); 7.2465 (5.8); 7.2337 (0.6); 7.2288 (0.6); 7.2250 (0.7); 7.1562 (4.7); 7.1520 (5.9); 7.1464 (1.7); 7.1398 (2.4); 7.1352 (4.5); 7.1318 (3.8); 7.0970 (0.6); 7.0899 (4.5); 7.0844 (1.5); 7.0677 (7.5); 7.0632 (1.8); 7.0517 (1.3); 7.0463 (3.7); 6.9952 (0.7); 6.7242 (1.0); 5.9218 (0.6); 5.9082 (1.3); 5.8948 (1.1); 5.8824 (1.5); 5.8788 (0.9); 5.8687 (0.8); 5.8652 (1.6); 5.8519 (1.2); 5.8395 (1.6); 5.8259 (0.8); 5.3246 (1.1); 5.3076 (3.5); 5.2906 (3.5); 5.2736 (1.1); 5.2346 (1.0); 5.2303 (2.5); 5.2270 (2.4); 5.2227 (1.1); 5.1917 (0.9); 5.1874 (2.2); 5.1840 (2.1); 5.1832 (2.0); 5.1798 (1.0); 5.1490 (2.7); 5.1456 (2.6); 5.1420 (1.1); 5.1232 (2.5); 5.1198 (2.4); 5.1163 (1.0); 3.9846 (1.9); 3.9801 (2.1); 3.9753 (2.2); 3.9703 (3.5); 3.9659 (3.5); 3.9615 (2.2); 3.9562 (2.0); 3.9519 (1.9); 3.9477 (0.8); 1.7111 (16.0); 1.6941 (15.8); 1.5438 (11.2); 0.0080 (1.6); -0.0002 (45.9); -0.0085 (1.8)	10
III-050: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): $\delta = 7.5182$ (0.7); 7.3083 (1.7); 7.3027 (1.6); 7.2982 (1.1); 7.2940 (1.0); 7.2863 (5.1); 7.2804 (5.4); 7.2751 (2.6); 7.2715 (3.5); 7.2676 (10.4); 7.2594 (124.2); 7.2545 (6.3); 7.2510 (3.3); 7.2452 (4.7); 7.2421 (2.4); 7.2227 (0.7); 7.1547 (4.2); 7.1506 (5.4); 7.1449 (1.5); 7.1382 (2.3); 7.1336 (4.2); 7.1303 (3.5); 7.0968 (0.6); 7.0897 (4.3); 7.0842 (1.4); 7.0755 (0.8); 7.0727 (1.5); 7.0682 (6.4); 7.0630 (1.6); 7.0515 (1.2); 7.0461 (3.4); 6.9954 (0.7); 6.6541 (0.8); 5.2893 (0.9); 5.2723 (3.1); 5.2553 (3.1); 5.2383 (0.9); 3.3270 (1.2); 3.3174 (1.2); 3.3093 (2.3); 3.3026 (1.5); 3.2997 (2.3); 3.2942 (2.2); 3.2849 (2.4); 3.2765 (1.1); 3.2673 (1.2); 1.6956 (15.0); 1.6786 (14.9); 1.6152 (0.6); 1.5968 (2.5); 1.5787 (5.1); 1.5604 (6.1); 1.5466 (5.9); 1.5426 (6.2); 1.5243 (0.9); 0.9427 (7.9); 0.9243 (16.0); 0.9057 (6.9); 0.0080 (1.6); -0.0002 (45.1); -0.0085 (1.5)	20
III-051: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3): $\delta = 7.2870$ (1.5); 7.2817 (1.0); 7.2733 (1.8); 7.2695 (2.4); 7.2678 (2.2); 7.2594 (66.9); 7.2437 (0.7); 7.1620 (1.0); 7.1580 (1.3); 7.1455 (0.6); 7.1410 (1.0); 7.1377 (0.8); 7.0922 (1.0); 7.0706 (1.6); 7.0486 (0.8); 5.2774 (0.7); 5.2604 (0.8); 3.2163 (0.8); 3.2020 (1.0); 3.1990 (1.0); 3.1847 (0.9); 1.7023 (3.6); 1.6853 (3.6); 1.5378 (16.0); 0.5081 (0.7); 0.5053 (0.9); 0.5027 (0.6); 0.4881 (0.8); 0.4852 (0.7); 0.2234 (0.7); 0.2196 (0.7); 0.2141 (0.6); 0.0080 (0.9); -0.0002 (25.2); -0.0084 (1.0)	30
III-052: $^1\text{H-NMR}$(400.0 MHz, CDCl_3):	40

10

20

30

40

50

δ= 7.3059 (0.9); 7.3017 (1.2); 7.3004 (1.3); 7.2960 (0.9); 7.2918 (0.8); 7.2842 (4.3); 7.2784 (4.4); 7.2730 (2.2); 7.2694 (3.1); 7.2655 (9.4); 7.2637 (7.7); 7.2595 (64.8); 7.2529 (3.9); 7.2488 (2.2); 7.2465 (1.7); 7.2431 (4.1); 7.2410 (2.3); 7.2213 (0.6); 7.1523 (3.7); 7.1481 (4.5); 7.1425 (1.3); 7.1358 (2.0); 7.1312 (3.7); 7.1279 (3.0); 7.0892 (3.8); 7.0837 (1.2); 7.0749 (0.8); 7.0722 (1.3); 7.0677 (5.5); 7.0625 (1.4); 7.0510 (1.1); 7.0456 (2.9); 6.6798 (0.7); 5.2943 (0.8); 5.2773 (2.6); 5.2603 (2.6); 5.2433 (0.8); 3.2352 (0.6); 3.2189 (1.0); 3.2022 (1.8); 3.1857 (2.2); 3.1694 (1.2); 3.1499 (1.4); 3.1351 (1.8); 3.1330 (1.7); 3.1180 (1.7); 3.1019 (0.8); 3.0998 (0.8); 3.0850 (0.7); 1.8452 (0.7); 1.8283 (1.4); 1.8115 (1.8); 1.7947 (1.5); 1.7780 (0.8); 1.7011 (12.6); 1.6840 (12.6); 1.5563 (2.4); 0.9167 (16.0); 0.9149 (15.6); 0.9000 (15.5); 0.8982 (15.0); 0.0079 (0.8); -0.0002 (23.7); -0.0085 (0.9)	10
III-058: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3094 (0.6); 7.3045 (0.7); 7.2874 (3.7); 7.2817 (1.9); 7.2735 (2.9); 7.2690 (4.1); 7.2595 (62.6); 7.2542 (3.4); 7.2517 (3.4); 7.2478 (1.1); 7.2445 (0.7); 7.2413 (1.2); 7.1648 (2.2); 7.1608 (2.9); 7.1552 (1.1); 7.1482 (1.5); 7.1437 (2.5); 7.1405 (2.1); 7.0883 (2.1); 7.0828 (0.7); 7.0712 (0.8); 7.0667 (3.2); 7.0616 (0.8); 7.0501 (0.8); 7.0447 (1.7); 5.3521 (1.5); 5.3351 (1.5); 5.2981 (1.5); 4.1430 (1.7); 4.1293 (2.0); 4.1190 (1.9); 4.1057 (1.8); 3.7752 (2.5); 3.7680 (16.0); 1.7188 (7.2); 1.7017 (7.3); 1.6799 (0.8); 1.5424 (9.5); 0.0080 (0.7); -0.0002 (23.2); -0.0085 (0.9)	20
III-059: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.2989 (1.0); 7.2938 (1.0); 7.2909 (1.6); 7.2807 (3.2); 7.2776 (4.2); 7.2673 (3.8); 7.2600 (66.7); 7.2516 (3.5); 7.2476 (3.4); 7.2450 (3.0); 7.2348 (1.4); 7.2313 (1.6); 7.2158 (0.6); 7.1569 (1.7); 7.1529 (2.1); 7.1456 (1.9); 7.1414 (2.7); 7.1358 (2.1); 7.1326 (1.4); 7.1289 (1.1); 7.1244 (1.9); 7.1212 (1.5); 7.0870 (2.7); 7.0825 (1.1); 7.0656 (4.6); 7.0444 (2.3); 7.0361 (0.6); 7.0253 (0.7); 5.2978 (3.2); 5.2467 (1.2); 5.2298 (1.4); 5.2142 (1.6); 5.1973 (1.4); 4.3949 (0.7); 4.3779 (0.8); 3.6839 (1.7); 3.6745 (1.5); 3.6659 (16.0); 3.6614 (13.9); 2.8912 (0.7); 2.8847 (0.7); 2.8696 (0.8); 2.2657 (0.6); 2.2543 (0.5); 2.2486 (0.8); 2.2317 (0.7); 2.2260 (0.5); 2.0075 (0.5); 1.9977 (1.2); 1.9860 (0.9); 1.9815 (1.6); 1.9656 (1.3); 1.9558 (0.8); 1.9448 (1.1); 1.9309 (0.7); 1.9146 (0.6); 1.8564 (0.8); 1.8371 (0.7); 1.8301 (0.5); 1.8236 (0.6); 1.7699 (0.6); 1.7530 (0.5); 1.7360 (0.7); 1.7204 (0.7); 1.7051 (0.6); 1.6867 (6.4); 1.6791 (5.4); 1.6696 (6.3); 1.6621 (5.4); 1.6484 (0.8); 1.6414 (0.6); 1.5600 (14.0); 0.0080 (0.8); -0.0002 (23.2); -0.0085 (0.8)	30
III-063: ¹H-NMR(400.0 MHz, CDCl₃): δ= 7.3021 (0.5); 7.2857 (2.3); 7.2795 (1.3); 7.2719 (2.2); 7.2675 (2.9); 7.2660 (2.8); 7.2593 (23.0); 7.2501 (1.7); 7.2453 (0.9); 7.2434 (0.9); 7.1572 (1.4); 7.1528 (1.5); 7.1472 (0.6); 7.1409 (0.9); 7.1363 (1.4); 7.1329 (1.2); 7.0883 (1.2); 7.0712 (0.5); 7.0665 (1.9); 7.0448 (1.0); 5.2854 (0.6); 5.2819 (0.6); 5.2424 (0.6); 5.2388 (0.5); 5.1413 (0.7); 5.1378 (0.7); 5.1155 (0.7); 5.1120	40

(0.6); 3.9979 (0.5); 3.9938 (0.8); 3.9897 (0.6); 3.9835 (0.8); 3.9798 (1.3); 3.9761 (0.8); 3.9700 (0.6); 3.9658 (0.8); 1.7663 (16.0); 1.5476 (6.4); -0.0002 (8.0)	
III-066: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4567 (0.6); 7.4530 (0.7); 7.4443 (0.7); 7.4390 (1.2); 7.4345 (1.3); 7.4220 (1.2); 7.4205 (1.2); 7.4182 (1.2); 7.4132 (1.0); 7.4044 (0.9); 7.3998 (1.8); 7.3953 (1.2); 7.3798 (2.2); 7.3764 (1.9); 7.3616 (1.7); 7.3573 (1.3); 7.2609 (29.4); 7.2601 (28.7); 7.2400 (2.5); 7.2386 (2.5); 7.2199 (1.2); 7.2064 (1.1); 7.2011 (1.1); 7.1879 (1.1); 7.1815 (1.6); 7.1751 (1.3); 7.1710 (1.2); 7.1621 (1.1); 7.1568 (1.2); 7.1501 (1.9); 7.1296 (1.6); 7.1255 (1.8); 7.1051 (2.7); 7.0837 (1.7); 7.0805 (2.6); 7.0593 (1.4); 7.0563 (1.3); 7.0460 (1.0); 7.0419 (1.4); 7.0366 (1.5); 7.0315 (1.4); 7.0265 (1.1); 7.0206 (1.1); 7.0154 (1.2); 7.0104 (1.1); 6.9968 (0.9); 6.9810 (0.8); 5.9546 (0.5); 5.9409 (1.0); 5.9278 (0.9); 5.9151 (1.2); 5.9120 (0.8); 5.9010 (0.8); 5.8980 (1.3); 5.8848 (1.0); 5.8722 (1.3); 5.8583 (0.6); 5.2979 (4.2); 5.2554 (1.9); 5.2515 (1.9); 5.2483 (0.9); 5.2124 (2.3); 5.2089 (2.1); 5.1866 (2.1); 5.1832 (2.0); 4.9068 (16.0); 4.7635 (0.8); 4.0409 (2.5); 4.0373 (1.7); 4.0267 (4.6); 4.0161 (1.7); 4.0125 (2.4); 1.5684 (7.0); 1.2557 (0.5); -0.0002 (10.8); -0.0009 (10.1); -0.0083 (0.5)	10
III-068: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.3990 (0.8); 7.3930 (0.8); 7.3776 (1.4); 7.3616 (1.0); 7.3561 (1.0); 7.3405 (0.7); 7.3108 (0.8); 7.2595 (56.5); 7.2116 (0.6); 7.1876 (0.9); 7.1825 (0.9); 7.1695 (1.3); 7.1627 (1.2); 7.1558 (1.0); 7.1495 (1.4); 7.1373 (0.9); 7.1251 (1.2); 7.1043 (0.8); 7.0424 (0.9); 7.0365 (1.0); 7.0314 (0.9); 7.0152 (0.8); 6.9953 (0.9); 6.9866 (1.8); 6.9677 (2.6); 6.9466 (1.6); 6.6319 (0.5); 5.9223 (0.5); 5.8968 (0.6); 5.8798 (0.7); 5.8670 (0.6); 5.8539 (0.6); 5.2631 (1.2); 5.2202 (1.1); 5.1851 (1.2); 5.1821 (1.3); 5.1565 (1.2); 4.8347 (8.3); 4.0253 (1.5); 4.0110 (2.6); 3.9969 (1.5); 1.5380 (16.0); -0.0002 (21.3)	20
III-069: ¹ H-NMR(400.0 MHz, CDCl ₃): δ= 7.4723 (0.6); 7.4569 (1.2); 7.4507 (1.1); 7.4414 (0.7); 7.4354 (2.3); 7.4293 (0.8); 7.4199 (1.1); 7.4138 (1.3); 7.3984 (0.6); 7.2612 (32.0); 7.2350 (1.0); 7.2298 (1.0); 7.2168 (1.0); 7.2105 (1.6); 7.2043 (1.2); 7.1937 (1.2); 7.1914 (1.2); 7.1860 (1.1); 7.1727 (1.7); 7.1695 (1.1); 7.1531 (1.6); 7.1482 (1.7); 7.1287 (1.4); 7.0892 (0.8); 7.0852 (1.1); 7.0796 (1.2); 7.0751 (1.2); 7.0701 (0.9); 7.0637 (0.8); 7.0584 (0.8); 7.0536 (0.8); 7.0101 (3.0); 6.9918 (4.4); 6.9885 (4.4); 6.9703 (3.0); 5.9519 (0.6); 5.9381 (1.3); 5.9259 (0.8); 5.9123 (1.5); 5.9090 (0.8); 5.8985 (0.8); 5.8952 (1.6); 5.8817 (1.0); 5.8694 (1.6); 5.8556 (0.7); 5.3019 (1.0); 5.2979 (3.3); 5.2949 (2.3); 5.2907 (1.0); 5.2590 (0.8); 5.2549 (1.9); 5.2519 (1.9); 5.2477 (0.9); 5.2151 (1.1); 5.2117 (2.5); 5.2085 (2.3); 5.2051 (1.0); 5.1894 (1.0); 5.1859 (2.3); 5.1827 (2.2); 5.1793 (0.9); 4.8934 (16.0); 4.0443	30

10

20

30

40

(1.4); 4.0405 (2.3); 4.0367 (1.6); 4.0300 (2.7); 4.0263 (4.3); 4.0226 (2.6); 4.0160 (1.6); 4.0121 (2.3); 4.0083 (1.3); 1.5740 (7.8); -0.0002 (11.3)

【 0 2 3 6 】

B. 製剤実施例

(a) 散粉性製品 (dusting product) は、10重量部の式(I)で表される化合物及び／又はその塩と90重量部の不活性物質としてのタルクを混合させ、並

50

びに、その混合物をインパクトミルの中で粉砕することによって得られる。

【0237】

(b) 水に容易に分散する水和剤は、25重量部の式(I)で表される化合物及び／又はその塩と64重量部の不活性物質としてのカオリン含有石英と10重量部のリグノスルホン酸カリウムと1重量部の湿潤剤及び分散剤としてのオレオイルメチルタウリンナトリウム(sodium oleoylmethyltaurate)を混合させ、並びに、ピンディスクミル(pinned-disc mill)の中で摩砕することによって得られる。

【0238】

(c) 水に容易に分散する分散製剤(dispersion concentrate)は、20重量部の式(I)で表される化合物及び／又はその塩を6重量部のアルキルフェノールポリグリコールエーテル((登録商標)Triton X 207)と3重量部のイソトリデカノールポリグリコールエーテル(8EO)と71重量部のパラフィン系鉱油(沸点範囲:例えば、約255℃~約277℃を超える)と混合させ、並びに、アトリションボールミルの中で5ミクロン未満の粉末度になるまで摩砕することによって得られる。

【0239】

(d) 乳剤は、15重量部の式(I)で表される化合物及び／又はその塩と75重量部の溶媒としてのシクロヘキサノンと10重量部の乳化剤としてのオキシエチル化(oxyethylated)ノニルフェノールから得られる。

【0240】

(e) 顆粒水和剤は、75重量部の式(I)で表される化合物及び／又はその塩、10重量部のリグノスルホン酸カルシウム、5重量部のラウリル硫酸ナトリウム、3重量部のポリビニルアルコール、及び、7重量部のカオリンを混合させ、その混合物をピンディスクミルの中で摩砕し、並びに、得られた粉末を流動床の中で造粒液(granulating liquid)としての水を噴霧することにより造粒することによって得られる。

【0241】

(f) 顆粒水和剤は、さらにまた、コロイドミルの中で、25重量部の式(I)で表される化合物及び／又はその塩、5重量部の2,2'-ジナフチルメタン-6,6'-ジスルホン酸ナトリウム、2重量部のオレオイルメチルタウリンナトリウム(sodium oleoylmethyltaurate)、1重量部のポリビニルアルコール、17重量部の炭酸カルシウム、及び、50重量部の水を均質化及び前粉砕し、次いで、その混合物をビーズミルの中で摩砕し、並びに、得られた懸濁液を噴霧塔の中で単一相ノズル(one-phase nozzle)を用いて噴霧及び乾燥させることによっても得られる。

【0242】

C. 生物学的実施例

1. 発生前除草作用及び作物植物適合性

プラスチック製ポット内の砂壤土に単子葉及び双子葉の雑草植物の種子を配置し(1ポット当たり、単子葉又は双子葉の雑草植物のそれぞれの1種類を二重に播種)、土壌で被覆する。次いで、その被覆土壌の表面に、水和剤(WP)の形態に又は乳剤(EC)として製剤された本発明の化合物を、0.5%の添加剤が添加された水性懸濁液又は水性エマルジョンとして、600L/haに相当する散布水量で散布する。処理後、ポットを温室内に置き、その被験植物にとって良好な成育条件下に維持する。約3週間経過した後、当

10

20

30

40

50

該調製物の効果について、処理されていない対照と比較して、百分率として視覚的に評価する。例えば、100%の活性＝植物の枯死、0%の活性＝対照植物と同様。

【0243】

以下の表4.1～表4.15及び表5.1～表5.16において、下記略語が使用されている：

【表7】

ALOMY:	ノスズメノテッポウ (<i>Alopecurus myosuroides</i>)	AMARE:	アオゲイトウ (<i>Amaranthus retroflexus</i>)
AVEFA:	カラスムギ (<i>Avena fatua</i>)	CYPES:	シヨクヨウガヤツリ (<i>Cyperus esculentus</i>)
ECHCG:	イヌビエ (<i>Echinochloa crus-galli</i>)	HORMU:	ムギクサ (<i>Hordeum murinum</i>)
LOLRI:	ボウムギ (<i>Lolium rigidum</i>)	MATIN:	イヌカミツレ (<i>Matricaria inodora</i>)
PHBPU:	マルバアサガオ (<i>Pharbitis purpurea</i>)	POLCO:	ソバカズラ (<i>Polygonum convolvulus</i>)
SETVI:	エノコログサ (<i>Setaria viridis</i>)	STEME:	コハコベ (<i>Stellaria media</i>)
VERPE:	オオイヌノフグリ (<i>Veronica persica</i>)	VIOTR:	サンシキスミレ (<i>Viola tricolor</i>)

10

20

【0244】

以下の表4.1～表4.15は、上記実験方法によって得られた、1280 g／ha又は320 g／haに相当する施用量でのさまざまな有害植物に対する表1～表3に記載されている一般式（I）で表される選択された化合物の効果を示している。

【0245】

【表8】

表4.1： ALOMYに対する1280 g/haでの発生前作用（%）

実施例 番号	薬量 [g/ha]	ALOMY
I-002	1280	80
I-007	1280	80
I-008	1280	100
I-056	1280	90
I-057	1280	90
I-061	1280	90
I-067	1280	90
I-070	1280	90
I-072	1280	80

30

40

【0246】

50

【表 9】

表 4.2 : CYPES に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	CYPES
I-003	1280	100
I-006	1280	100
I-012	1280	100
I-021	1280	100
I-022	1280	100
I-056	1280	90
I-061	1280	90
I-067	1280	90
I-070	1280	80

10

20

【 0 2 4 7 】

30

40

50

【表 10】

表 4.3 : ECHCG に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	ECHCG
I-011	1280	80
I-022	1280	80
I-054	1280	90
I-055	1280	100
I-057	1280	80
I-061	1280	90
I-067	1280	80
I-069	1280	80
I-070	1280	90
I-076	1280	90
I-079	1280	90
I-081	1280	90
I-085	1280	100
I-093	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	100
I-100	1280	100
I-101	1280	100
I-102	1280	100
I-107	1280	100
I-111	1280	100
I-114	1280	90
I-120	1280	90
I-121	1280	100
I-122	1280	100
I-125	1280	100
I-130	1280	100
I-131	1280	100
I-133	1280	90
I-134	1280	100
I-136	1280	100
I-137	1280	100

10

20

30

40

50

I-138	1280	100
I-139	1280	100
I-140	1280	90
I-141	1280	100
I-142	1280	100
I-145	1280	100
I-164	1280	100
I-167	1280	100
I-168	1280	90
I-169	1280	100
I-171	1280	90
II-04	1280	100
III-001	1280	90
III-003	1280	100
III-004	1280	100
III-005	1280	100
III-006	1280	100
III-015	1280	100
III-016	1280	100
III-022	1280	100
III-023	1280	90
III-024	1280	90
III-027	1280	100
III-033	1280	90
III-053	1280	100
III-058	1280	90
III-067	1280	100
III-068	1280	100
III-069	1280	100

10

20

30

40

【 0 2 4 8 】

50

【表 1 1】

表 4.4 : SETVI に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	葉量 [g/ha]	SETVI
I-008	1280	90
I-015	1280	90
I-022	1280	100
I-025	1280	80
I-036	1280	80
I-054	1280	90
I-055	1280	100
I-056	1280	100
I-057	1280	90
I-061	1280	100
I-063	1280	100
I-067	1280	100
I-069	1280	90
I-070	1280	90
I-072	1280	80
I-076	1280	100
I-078	1280	100
I-079	1280	100
I-081	1280	100
I-085	1280	100
I-086	1280	90
I-088	1280	90
I-091	1280	90
I-092	1280	100
I-093	1280	100
I-094	1280	100
I-095	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	90
I-100	1280	100
I-101	1280	100
I-102	1280	100

10

20

30

40

50

I-107	1280	90
I-108	1280	100
I-111	1280	90
I-114	1280	100
I-118	1280	90
I-119	1280	100
I-120	1280	100
I-121	1280	100
I-123	1280	90
I-124	1280	100
I-125	1280	100
I-126	1280	100
I-127	1280	100
I-129	1280	100
I-130	1280	100
I-131	1280	100
I-132	1280	100
I-133	1280	100
I-134	1280	100
I-136	1280	100
I-137	1280	100
I-138	1280	100
I-139	1280	100
I-140	1280	100
I-141	1280	100
I-142	1280	100
I-143	1280	100
I-144	1280	100
I-145	1280	100
I-156	1280	90
I-164	1280	100
I-165	1280	100
I-166	1280	90
I-167	1280	100
I-169	1280	100
I-170	1280	100

10

20

30

40

50

I-171	1280	100
III-001	1280	100
III-003	1280	100
III-004	1280	100
III-005	1280	100
III-006	1280	100
III-015	1280	100
III-016	1280	100
III-017	1280	100
III-018	1280	90
III-019	1280	100
III-022	1280	100
III-023	1280	100
III-024	1280	100
III-026	1280	90
III-027	1280	90
III-033	1280	100
III-053	1280	100
III-054	1280	90
III-056	1280	90
III-058	1280	90
III-066	1280	90
III-067	1280	100
III-068	1280	100
III-069	1280	100

10

20

30

【 0 2 4 9 】

40

50

【表 1 2】

表 4.5 : AMARE に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	AMARE
I-002	1280	100
I-003	1280	100
I-004	1280	90
I-006	1280	100
I-007	1280	100
I-008	1280	100
I-011	1280	90
I-012	1280	100
I-015	1280	90
I-016	1280	100
I-021	1280	100
I-022	1280	100
I-023	1280	90
I-025	1280	90
I-026	1280	80
I-036	1280	80
I-046	1280	90
I-051	1280	90
I-054	1280	100
I-055	1280	100
I-056	1280	100
I-057	1280	100
I-061	1280	100
I-063	1280	80
I-066	1280	100
I-067	1280	100
I-069	1280	90
I-070	1280	100
I-072	1280	90
I-076	1280	100
I-078	1280	90
I-079	1280	100

10

20

30

40

50

I-081	1280	100
I-085	1280	100
I-086	1280	100
I-088	1280	90
I-091	1280	100
I-092	1280	100
I-093	1280	100
I-094	1280	100
I-095	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	100
I-099	1280	90
I-100	1280	100
I-101	1280	90
I-102	1280	100
I-107	1280	90
I-108	1280	90
I-112	1280	100
I-114	1280	100
I-118	1280	100
I-119	1280	100
I-120	1280	100
I-121	1280	90
I-122	1280	100
I-123	1280	100
I-125	1280	100
I-126	1280	100
I-127	1280	100
I-128	1280	100
I-129	1280	100
I-130	1280	100
I-131	1280	100
I-132	1280	100
I-133	1280	100
I-134	1280	100
I-136	1280	100

10

20

30

40

50

I-137	1280	100
I-138	1280	100
I-139	1280	100
I-140	1280	90
I-141	1280	100
I-142	1280	100
I-143	1280	100
I-144	1280	100
I-145	1280	90
I-155	1280	90
I-156	1280	100
I-164	1280	100
I-165	1280	100
I-166	1280	90
I-167	1280	100
I-168	1280	100
I-169	1280	100
I-170	1280	100
I-171	1280	100
II-04	1280	100
II-06	1280	90
II-07	1280	90
II-09	1280	90
II-13	1280	100
II-14	1280	100
III-003	1280	100
III-004	1280	100
III-005	1280	90
III-006	1280	90
III-015	1280	100
III-016	1280	100
III-017	1280	100
III-018	1280	90
III-019	1280	90
III-022	1280	90
III-023	1280	90

10

20

30

40

50

III-024	1280	100
III-026	1280	90
III-027	1280	100
III-029	1280	90
III-033	1280	90
III-053	1280	90
III-054	1280	90
III-056	1280	100
III-058	1280	100
III-066	1280	90
III-067	1280	100
III-068	1280	90
III-069	1280	90

【 0 2 5 0 】

10

20

30

40

50

【表 1 3】

表 4.6 : AMARE に対する 320 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	AMARE
I-002	320	100
I-003	320	100
I-006	320	80
I-007	320	80
I-008	320	100
I-012	320	100
I-014	320	100
I-015	320	90
I-021	320	100
I-022	320	100
I-023	320	90
I-025	320	90
I-046	320	90
I-047	320	90
I-054	320	100
I-054	320	100
I-055	320	100
I-056	320	80
I-057	320	100
I-057	320	90
I-061	320	90
I-064	320	100
I-067	320	90
I-069	320	90
I-070	320	100
I-072	320	80
I-079	320	80
I-081	320	80
I-082	320	90
I-100	320	100
I-101	320	90
I-102	320	90

10

20

30

40

50

I-125	320	100
I-130	320	100
I-137	320	90
I-139	320	100
I-141	320	90
I-165	320	90
III-003	320	100
III-004	320	80
III-006	320	90
III-069	320	100

【 0 2 5 1 】

10

20

30

40

50

【表 1 4】

表 4.7 : MATIN に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	MATIN
I-002	1280	100
I-003	1280	100
I-008	1280	90
I-012	1280	100
I-015	1280	90
I-016	1280	90
I-021	1280	90
I-022	1280	90
I-023	1280	100
I-026	1280	90
I-046	1280	90
I-048	1280	80
I-056	1280	90
I-057	1280	100
I-061	1280	90
I-067	1280	90
I-069	1280	90
I-070	1280	90
I-072	1280	80

10

20

30

【 0 2 5 2】

【表 1 5】

表 4.8 : AVEFA に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	AVEFA
I-056	1280	80
I-057	1280	80
I-067	1280	80

40

【 0 2 5 3】

50

【表 1 6】

表 4.9： PHBPU に対する 1280 g/ha での発生前作用（%）

実施例 番号	薬量 [g/ha]	PHBPU
I-003	1280	80
I-015	1280	100
I-057	1280	90
I-061	1280	90
I-069	1280	80
I-070	1280	90
I-072	1280	90

【 0 2 5 4】

10

20

30

40

50

【表 1 7】

表 4.10 : POLCO に対する 320 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	POLCO
I-001	320	90
I-008	320	80
I-054	320	100
I-055	320	90
I-056	320	80
I-057	320	90
I-064	320	100
I-070	320	80
I-072	320	90
I-075	320	80
I-079	320	80
I-081	320	100
I-082	320	80
I-101	320	100
I-102	320	100
I-125	320	100
I-130	320	90
I-137	320	100
I-139	320	90
III-003	320	100
III-006	320	90
III-015	320	90
III-069	320	90
	320	90

【 0 2 5 5 】

10

20

30

40

50

【表 18】

表 4.11 : STEME に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	STEME
I-002	1280	100
I-003	1280	100
I-006	1280	100
I-007	1280	90
I-008	1280	100
I-015	1280	90
I-016	1280	80
I-020	1280	80
I-021	1280	90
I-022	1280	90
I-054	1280	100
I-055	1280	100
I-056	1280	100
I-057	1280	100
I-061	1280	100
I-063	1280	80
I-067	1280	90
I-069	1280	90
I-070	1280	90
I-072	1280	90
I-076	1280	100
I-079	1280	100
I-081	1280	100
I-086	1280	90
I-088	1280	100
I-092	1280	100
I-093	1280	100
I-094	1280	100
I-095	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	100
I-100	1280	100

10

20

30

40

50

I-101	1280	100
I-102	1280	90
I-107	1280	100
I-109	1280	100
I-111	1280	100
I-112	1280	100
I-114	1280	100
I-119	1280	100
I-120	1280	100
I-121	1280	100
I-123	1280	100
I-124	1280	100
I-125	1280	100
I-126	1280	100
I-127	1280	100
I-128	1280	90
I-129	1280	100
I-130	1280	100
I-132	1280	100
I-133	1280	100
I-134	1280	100
I-135	1280	100
I-136	1280	100
I-137	1280	100
I-138	1280	100
I-139	1280	100
I-140	1280	100
I-141	1280	90
I-142	1280	100
I-143	1280	90
I-145	1280	100
I-150	1280	100
I-155	1280	100
I-156	1280	100
I-164	1280	100
I-165	1280	100

10

20

30

40

50

I-166	1280	90
I-167	1280	100
I-168	1280	100
I-169	1280	100
I-170	1280	100
I-171	1280	100
II-04	1280	100
II-06	1280	90
II-07	1280	90
II-09	1280	100
II-13	1280	90
III-001	1280	100
III-003	1280	100
III-004	1280	100
III-005	1280	100
III-006	1280	100
III-008	1280	100
III-015	1280	100
III-016	1280	100
III-017	1280	100
III-018	1280	100
III-019	1280	100
III-022	1280	100
III-023	1280	100
III-024	1280	100
III-025	1280	100
III-027	1280	100
III-033	1280	100
III-053	1280	100
III-056	1280	100
III-058	1280	100
III-066	1280	90
III-067	1280	90
III-068	1280	90
III-069	1280	90

10

20

30

40

【 0 2 5 6 】

50

【表 19】

表 4.12 : STEME に対する 320 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	STEME
I-002	320	80
I-054	320	100
I-055	320	100
I-057	320	80
I-061	320	90
I-064	320	90
I-070	320	80
I-075	320	80
I-081	320	80
I-100	320	90
I-102	320	90
I-125	320	90
I-130	320	90
I-137	320	90
I-139	320	100
I-141	320	80
III-003	320	100
III-069	320	100

10

20

30

【 0 2 5 7 】

40

50

【表 2 0】

表 4.13 : VIOTR に対する 1280 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	VIOTR
I-021	1280	90
I-022	1280	90
I-046	1280	90
I-051	1280	90
I-056	1280	80
I-057	1280	100
I-061	1280	90
I-063	1280	100
I-066	1280	90
I-067	1280	100
I-069	1280	100
I-070	1280	90
I-072	1280	80

【 0 2 5 8】

10

20

30

40

50

【表 2 1】

表 4.14： VERPE に対する 320 g/ha での発生前作用（%）

実施例 番号	薬量 [g/ha]	VERPE
I-002	320	100
I-003	320	100
I-008	320	90
I-014	320	100
I-015	320	90
I-021	320	90
I-022	320	100
I-023	320	90
I-025	320	80
I-047	320	90
I-054	320	100
I-055	320	90
I-057	320	90
I-081	320	80
I-082	320	80
I-100	320	100
I-102	320	80
I-125	320	90
I-130	320	100
I-137	320	90
I-139	320	100
I-165	320	100
III-003	320	100
III-004	320	100
III-006	320	90
III-015	320	90
III-069	320	100

10

20

30

40

【 0 2 5 9 】

50

【表 2 2】

表 4.15： HORMU に対する 320 g/ha での発生前作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	HORMU
I-056	320	80
I-064	320	90
I-125	320	90
I-130	320	100
I-139	320	90
III-069	320	90

10

【0 2 6 0】

上記結果によって示されているように、本発明化合物、例えば、化合物 No. I-002、I-003、I-008、I-021、I-022、I-056、I-057、I-061、I-067、I-069、I-070、I-072、I-121、I-125、I-138、I-139、III-013、III-003、III-022、III-027、III-053、III-069 及び表 4.1-表 4.15 の他の化合物は、発生前処理の場合、有害な植物に対して良好な除草効力を示す。例えば、発生前方法で施用された化合物 No. I-008、I-056、I-057、I-061、I-067、I-070 及び I-072 は、1 ヘクタール当たり 1.28 kg 以下の活性物質の施用量で、ノスズメノテッポウ (*Alopecurus myosuroides*)、アオゲイトウ (*Amaranthus retroflexus*)、イヌカミツレ (*Matricaria inodora*)、ソバカズラ (*Polygonum convolvulus*)、エノコログサ (*Setaria viridis*) 及びコハコベ (*Stellaria media*) などの有害植物に対して極めて良好な効果 (80%~100% の除草効果) を示す。

20

30

【0 2 6 1】

2. 発生前除草作用及び作物植物適合性

プラスチック製ポット内の砂壤土に単子葉及び双子葉の雑草植物の種子を配置し (1 ポット当たり、単子葉又は双子葉の雑草植物のそれぞれの 1 種類を 1 対で播種)、土壌で被覆し、温室内で制御された成育条件下で栽培する。播種後 2~3 週間経過した後、被験植物を 1 葉期で処理する。当該植物の緑色の部分に、水和剤 (WP) の形態に又は乳剤 (EC) として製剤された本発明の化合物を、0.5% の添加剤が添加された水性懸濁液又は水性エマルジョンとして、600 L/ha に相当する散布水量で散布する。被験植物を温室内で最適な成育条件下に約 3 週間維持した後、当該調製物の活性について、処理されていない対照と比較して、視覚的に評価する。例えば、100% の活性 = 植物の枯死、0% の活性 = 対照植物と同様。

40

【0 2 6 2】

以下の表 5.1-表 5.16 は、上記実験方法によって得られた、1280 g/ha 又は 320 g/ha に相当する施用量でのさまざまな有害植物に対する表 1~表 3 に記載されている一般式 (I) で表される選択された化合物の効果を示している。

【0 2 6 3】

50

【表 2 3】

表 5.1 : ALOMY に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	ALOMY
I-002	1280	80
I-006	1280	80
I-021	1280	80
I-022	1280	80
I-046	1280	80
I-051	1280	80
I-056	1280	90
I-057	1280	90
I-061	1280	90
I-067	1280	100
I-070	1280	80
I-072	1280	80

10

20

【 0 2 6 4】

【表 2 4】

表 5.2 : AVEFA に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	AVEFA
I-009	1280	80
I-012	1280	80
I-022	1280	80
I-025	1280	80
I-036	1280	80
I-051	1280	80
I-056	1280	90
I-057	1280	90

30

40

【 0 2 6 5】

50

【表 2 5】

表 5.3 : ECHCG に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	ECHCG
I-002	1280	80
I-003	1280	80
I-016	1280	80
I-021	1280	80
I-022	1280	80
I-054	1280	90
I-055	1280	100
I-061	1280	80
I-067	1280	90
I-070	1280	80
I-072	1280	80
I-079	1280	100
I-081	1280	90
I-093	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	100
I-100	1280	90
I-107	1280	90
I-120	1280	90
I-123	1280	90
I-125	1280	90
I-126	1280	90
I-130	1280	100
I-136	1280	100
I-137	1280	100
I-141	1280	100
I-143	1280	100
I-164	1280	90
I-167	1280	90
I-169	1280	90
I-171	1280	100
III-003	1280	100

III-019	1280	90
III-022	1280	90
III-027	1280	90
III-053	1280	100

【表 2 6】

表 5.4 : LOLRI に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	LOLRI
I-057	1280	80
I-067	1280	90
I-130	1280	90
I-171	1280	100

10

【 0 2 6 7】

20

30

40

50

【表 2 7】

表 5.5 : SETVI に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	SETVI
I-002	1280	80
I-006	1280	90
I-009	1280	80
I-016	1280	80
I-022	1280	80
I-054	1280	100
I-056	1280	80
I-061	1280	80
I-063	1280	80
I-072	1280	80
I-079	1280	100
I-081	1280	90
I-089	1280	100
I-097	1280	90
I-098	1280	90
I-125	1280	90
I-126	1280	90
I-137	1280	90
I-145	1280	90
I-164	1280	100
I-165	1280	90
I-169	1280	90
I-171	1280	100
III-001	1280	100
III-003	1280	100
III-019	1280	90
III-022	1280	100
III-023	1280	100
III-026	1280	100
III-027	1280	100
III-033	1280	100
III-053	1280	100

III-054	1280	100
III-058	1280	100
III-066	1280	100
III-067	1280	100
III-068	1280	90

10

20

30

40

50

【 0 2 6 8 】

【表 2 8】

表 5.6 : AMARE に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	AMARE
I-002	1280	90
I-003	1280	80
I-004	1280	80
I-005	1280	80
I-006	1280	100
I-007	1280	80
I-008	1280	80
I-009	1280	80
I-012	1280	80
I-015	1280	80
I-016	1280	80
I-021	1280	80
I-022	1280	80
I-023	1280	80
I-025	1280	80
I-026	1280	80
I-027	1280	80
I-038	1280	90
I-046	1280	80
I-054	1280	100
I-055	1280	90
I-056	1280	80
I-057	1280	80
I-061	1280	80
I-069	1280	90
I-070	1280	80
I-072	1280	80
I-076	1280	100
I-078	1280	100
I-079	1280	100
I-081	1280	100
I-085	1280	100

10

20

30

40

50

I-086	1280	100
I-088	1280	100
I-089	1280	100
I-091	1280	100
I-092	1280	100
I-093	1280	100
I-094	1280	100
I-095	1280	100
I-098	1280	100
I-099	1280	90
I-100	1280	90
I-101	1280	100
I-102	1280	90
I-107	1280	100
I-109	1280	100
I-111	1280	100
I-114	1280	100
I-119	1280	100
I-123	1280	90
I-125	1280	90
I-126	1280	100
I-127	1280	90
I-128	1280	90
I-129	1280	100
I-130	1280	90
I-133	1280	90
I-134	1280	90
I-136	1280	90
I-137	1280	90
I-141	1280	90
I-143	1280	100
I-156	1280	100
I-164	1280	100
I-165	1280	100
I-166	1280	100
I-169	1280	100

10

20

30

40

50

I-170	1280	90
I-171	1280	90
III-001	1280	100
III-003	1280	100
III-004	1280	100
III-006	1280	100
III-016	1280	90
III-017	1280	100
III-018	1280	100
III-019	1280	100
III-022	1280	90
III-025	1280	90
III-026	1280	90
III-027	1280	90
III-033	1280	90
III-058	1280	90

【 0 2 6 9 】

10

20

30

40

50

【表 2 9】

表 5.7 : AMARE に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	葉量 [g/ha]	AMARE
I-002	320	80
I-005	320	80
I-008	320	80
I-012	320	80
I-014	320	80
I-015	320	80
I-021	320	80
I-022	320	80
I-025	320	80
I-047	320	80
I-054	320	90
I-055	320	90
I-056	320	80
I-057	320	80
I-061	320	80
I-079	320	80
I-081	320	90
I-082	320	80
I-100	320	80
I-101	320	80
I-102	320	80
I-125	320	90
I-130	320	90
I-137	320	80
I-139	320	90
I-141	320	90
III-003	320	80
III-004	320	80
III-006	320	80
III-015	320	80
III-069	320	90

10

20

30

40

【 0 2 7 0 】

50

【表 3 0】

表 5.8 : MATIN に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	葉量 [g/ha]	MATIN
I-002	1280	80
I-003	1280	80
I-006	1280	80
I-008	1280	90
I-011	1280	90
I-015	1280	90
I-021	1280	80
I-022	1280	80
I-023	1280	80
I-025	1280	80
I-036	1280	80
I-038	1280	80
I-046	1280	80
I-051	1280	90
I-054	1280	100
I-055	1280	100
I-056	1280	80
I-057	1280	90
I-063	1280	80
I-066	1280	80
I-067	1280	80
I-070	1280	80
I-072	1280	80
I-076	1280	90
I-079	1280	100
I-081	1280	100
I-085	1280	90
I-088	1280	90
I-093	1280	100
I-095	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	90

10

20

30

40

50

I-100	1280	90
I-101	1280	90
I-102	1280	100
I-107	1280	100
I-111	1280	90
I-114	1280	90
I-119	1280	90
I-120	1280	90
I-121	1280	90
I-123	1280	90
I-124	1280	90
I-125	1280	90
I-127	1280	90
I-129	1280	100
I-130	1280	90
I-131	1280	90
I-132	1280	90
I-133	1280	90
I-136	1280	90
I-137	1280	90
I-139	1280	90
I-141	1280	90
I-142	1280	90
I-143	1280	100
I-145	1280	90
I-156	1280	90
I-164	1280	100
I-165	1280	100
I-166	1280	100
I-168	1280	90
I-169	1280	90
I-171	1280	90
II-13	1280	100
III-019	1280	90
III-026	1280	90
III-027	1280	100

10

20

30

40

III-053	1280	90
III-056	1280	90
III-058	1280	100
III-067	1280	90
III-068	1280	90

50

【 0 2 7 1 】

【表 3 1】

表 5.9 : MATIN に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	MATIN
I-003	320	80
I-008	320	90
I-011	320	90
I-015	320	90
I-022	320	80
I-036	320	80
I-047	320	80
I-051	320	90
I-054	320	90
I-056	320	80
I-057	320	80
I-064	320	80
I-066	320	80
I-075	320	80
I-079	320	80
I-081	320	80
I-082	320	80
I-100	320	80
I-101	320	90
I-102	320	80
I-125	320	80
I-130	320	90
I-137	320	80
I-139	320	80
I-141	320	80
III-069	320	80

10

20

30

40

【 0 2 7 2 】

50

【表 3 2】

表 5.10 : PHBPU に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	PHBPU
I-002	320	80
I-003	320	80
I-004	320	80
I-005	320	80
I-006	320	80
I-012	320	80
I-014	320	80
I-015	320	80
I-016	320	80
I-021	320	80
I-023	320	80
I-026	320	90
I-029	320	80
I-036	320	80
I-038	320	80
I-046	320	80
I-047	320	80
I-051	320	80
I-054	320	100
I-055	320	80
I-056	320	80
I-057	320	90
I-061	320	80
I-064	320	80
I-066	320	90
I-069	320	80
I-070	320	90
I-075	320	90
I-079	320	90
I-081	320	90
I-082	320	90
I-100	320	90

10

20

30

40

50

I-101	320	90
I-102	320	90
I-125	320	80
I-137	320	90
I-165	320	80
III-003	320	80
III-004	320	80
III-006	320	80
III-015	320	80

【 0 2 7 3 】

10

20

30

40

50

【表 3 3】

表 5.11 : POLCO に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	葉量 [g/ha]	POLCO
I-004	320	80
I-008	320	80
I-011	320	80
I-014	320	80
I-022	320	80
I-051	320	80
I-054	320	80
I-055	320	80
I-056	320	80
I-057	320	80
I-061	320	80
I-064	320	80
I-075	320	80
I-079	320	80
I-081	320	80
I-100	320	90
I-125	320	80
I-130	320	90
I-137	320	90
I-139	320	90
I-165	320	80
III-004	320	80
III-015	320	80
III-069	320	80

10

20

30

40

【 0 2 7 4】

50

【表 3 4】

表 5.12 : STEME に対する 1280 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	STEME
I-002	1280	90
I-003	1280	80
I-006	1280	80
I-008	1280	90
I-011	1280	80
I-012	1280	80
I-016	1280	80
I-021	1280	80
I-022	1280	80
I-023	1280	80
I-036	1280	80
I-046	1280	80
I-051	1280	80
I-054	1280	100
I-055	1280	100
I-056	1280	90
I-057	1280	90
I-061	1280	80
I-067	1280	90
I-069	1280	80
I-070	1280	90
I-072	1280	80
I-079	1280	100
I-081	1280	100
I-085	1280	100
I-088	1280	100
I-093	1280	100
I-097	1280	100
I-098	1280	90
I-100	1280	90
I-102	1280	100
I-107	1280	90

10

20

30

40

50

I-109	1280	90
I-111	1280	90
I-119	1280	90
I-121	1280	100
I-125	1280	90
I-126	1280	100
I-130	1280	100
I-131	1280	90
I-132	1280	100
I-133	1280	100
I-134	1280	100
I-136	1280	100
I-137	1280	100
I-138	1280	100
I-139	1280	90
I-140	1280	100
I-141	1280	90
I-142	1280	100
I-143	1280	100
I-145	1280	100
I-150	1280	100
I-164	1280	100
I-165	1280	100
I-167	1280	100
I-168	1280	100
I-169	1280	100
I-170	1280	100
I-171	1280	100
II-04	1280	100
II-06	1280	100
II-08	1280	90
II-09	1280	100
III-008	1280	100
III-022	1280	100
III-025	1280	100
III-027	1280	90

10

20

30

40

III-053	1280	100
III-058	1280	100
III-067	1280	100

【 0 2 7 5 】

50

【表 3 5】

表 5.13 : STEME に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	STEME
I-002	320	80
I-003	320	80
I-008	320	90
I-012	320	80
I-014	320	80
I-021	320	80
I-022	320	80
I-023	320	80
I-036	320	80
I-046	320	80
I-047	320	80
I-054	320	90
I-055	320	80
I-057	320	80
I-064	320	90
I-067	320	80
I-081	320	80
I-100	320	80
I-130	320	90
I-137	320	90
I-139	320	80
I-141	320	90
III-069	320	90

【 0 2 7 6 】

10

20

30

40

50

【表 3 6】

表 5.14 : VIOTR に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	VIOTR
I-005	320	80
I-012	320	80
I-023	320	80
I-025	320	80
I-026	320	80
I-036	320	80
I-046	320	80
I-047	320	90
I-051	320	90
I-054	320	90
I-055	320	100
I-061	320	80
I-063	320	90
I-064	320	100
I-066	320	80
I-067	320	80
I-075	320	100
I-079	320	100
I-081	320	100
I-082	320	100
I-100	320	100
I-101	320	100
I-102	320	90
I-125	320	90
I-130	320	90
I-137	320	80
I-139	320	80
I-141	320	90
I-165	320	80
III-006	320	80
III-015	320	80

10

20

30

40

【 0 2 7 7 】

50

【表 3 7】

表 5.15 : VERPE に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	VERPE
I-002	320	80
I-007	320	90
I-008	320	90
I-011	320	80
I-015	320	90
I-022	320	80
I-025	320	80
I-029	320	80
I-036	320	80
I-038	320	80
I-046	320	80
I-047	320	80
I-048	320	80
I-051	320	80
I-054	320	80
I-055	320	80
I-056	320	90
I-057	320	80
I-075	320	80
I-079	320	80
I-081	320	80
I-082	320	80
I-100	320	90
I-101	320	80
I-102	320	80
I-125	320	80
I-130	320	90
I-137	320	90
I-165	320	80
III-003	320	80
III-006	320	80
III-015	320	90

III-069	320	90
---------	-----	----

【 0 2 7 8 】

10

20

30

40

50

【表 3 8】

表 5.16： HORMU に対する 320 g/ha での発生後作用 (%)

実施例 番号	薬量 [g/ha]	HORMU
I-055	320	80
I-057	320	80
I-064	320	90
I-067	320	80
I-075	320	80
I-125	320	90
I-130	320	80
I-137	320	80
I-139	320	80
I-141	320	80
III-069	320	80

10

20

【0 2 7 9】

表 5. 1 – 表 5. 1 6 の結果によって示されているように、本発明の化合物は、広範囲のイネ科雑草及び雑草に対して良好な発生後除草効力を示す。

【0 2 8 0】

上記結果によって示されているように、本発明化合物、例えば、化合物 No. I – 0 0 2、I – 0 0 3、I – 0 0 6、I – 0 1 4、I – 0 2 1、I – 0 5 4、I – 0 7 2、I I – 0 4、I I I – 0 5 8 及び表 5. 1 – 表 5. 1 6 の他の化合物は、発生後に施用された場合、有害な植物に対して極めて良好な除草効力を示す。例えば、発生後方法で施用された化合物 No. I – 0 0 2、I – 0 0 6、I – 0 2 2、I – 0 5 6 及び I – 0 7 2 は、1 ヘクタール当たり 1. 2 8 k g 以下の活性物質の施用量で、ノスズメノテッポウ (*Alopecurus myosuroides*)、アオゲイトウ (*Amaranthus retroflexus*)、イヌカミツレ (*Matricaria inodora*)、エノコログサ (*Setaria viridis*)、マルバアサガオ (*Pharbitis purpurea*) 及びコハコベ (*Stellaria media*) などの有害植物に対して極めて良好な効果 (8 0 % ~ 1 0 0 % の除草効果) を示す。

30

40

50

フロントページの続き

(54)【発明の名称】 らの使用

(74)代理人 100143823

弁理士 市川 英彦

(74)代理人 100183519

弁理士 櫻田 芳恵

(74)代理人 100196483

弁理士 川崎 洋祐

(74)代理人 100160749

弁理士 飯野 陽一

(74)代理人 100160255

弁理士 市川 祐輔

(74)代理人 100182132

弁理士 河野 隆

(74)代理人 100172683

弁理士 綾 聡平

(74)代理人 100219265

弁理士 鈴木 崇大

(74)代理人 100146318

弁理士 岩瀬 吉和

(74)代理人 100127812

弁理士 城山 康文

(72)発明者 ヤコビ, ハラルト

ドイツ国、6 0 5 9 8・フランクフルト、グローセル・ハーゼンブフアド・8 0

(72)発明者 ホフマン, ミヒャエル・ゲルハルト

ドイツ国、7 8 4 6 7・コンスタンツ、フォイアーシュタインシュトラッセ・7

(72)発明者 レイングルーバー, アンナ・マリア

ドイツ国、6 4 6 4 6・ヘッペンハイム、ペスタロッツィシュトラッセ・2

(72)発明者 ブスカート・アルセケル, エステラ

スペイン国、0 8 1 7 4・サン・クガ・デル・バリェス、マーレ・ド・デュ・デル・ローザー・4
5・エスカレラ・2・4-1

(72)発明者 ミュラー, トマス

ドイツ国、6 0 3 2 3・フランクフルト、ヴィーゼナウ・3 0-3 2

(72)発明者 ベソング, ギルバート・エバイ

ドイツ国、6 7 0 9 8・バート・デュルクハイム、アウフ・デム・ケッペル・スリー・1

(72)発明者 スミス, エリン・ニコル

オーストラリア連邦国、6 0 2 3・ダンクレイグ・ウエスタンオーストラリア、ニコリー・ストリ
ート・4 8

(72)発明者 アスムス, エリザベス

ドイツ国、6 3 7 6 8・ヘースバッハ、キルヒェンシュトラッセ・2 5

(72)発明者 ディートリヒ, ハンスユルグ

ドイツ国、6 5 8 3 5・リーダーバッハ・アム・タウヌス、ボニファツィウスシュトラッセ・1
ベ

(72)発明者 ガツヴァイラー, エルマー

ドイツ国、6 1 2 3 1・バート・ナウハイム、アム・ナウハイマー・バッハ・2 2

(72)発明者 マチェッティラ, アヌ・ピームアイア

ドイツ国、6 0 3 2 6・フランクフルト・アム・マイン、ニーダーハウゼナー・シュトラッセ・4
7

(72)発明者 ロージンガー, クリストファー・ヒュー

ドイツ国、6 5 7 1 9・ホーフハイム、アム・ホーホフェルト・3 3

(72)発明者 シュミュッツラー, ディルク

ドイツ国、6 5 7 9 5・ハッターズハイム、ハウプトマンヴェーク・2

審査官 岡部 佐知子

(56)参考文献

特表2010-526535 (JP, A)

特表2010-514449 (JP, A)

国際公開第2014/152115 (WO, A1)

中国特許出願公開第105037342 (CN, A)

米国特許出願公開第2011/0257014 (US, A1)

Yuanyuan Liu, Guangke He, Kai Chen, Yin Jin, Yufeng Li and Hongjun Zhu, DMF-Catalyzed Direct and Regioselective C-H Functionalization: Electrophilic/Nucleophilic 4-Halogenation of 3-Oxypyrazoles, European Journal of Organic Chemistry, ドイツ, Wiley, 2011年08月03日, 2011(27), 5323-5330

KOYANAGI, T. et al, Bioisosterism in agrochemicals, ACS Symposium Series, 1995年, Vol. 584, Chapter 2, pp. 15-24, Synthesis and Chemistry of Agrochemicals IV

Yuanyuan Liu, Hong Shi, Yufeng Li and Hongjun Zhu, Synthesis, Crystal Structure, and Fungicidal Activity of Novel 1,5-Diaryl-1H-pyrazol-3-oxyacetate Derivatives, Journal of Heterocyclic Chemistry, Wiley, 2010年06月17日, 47(4), 897-902

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C07D

A01N

A01P

C A p l u s / R E G I S T R Y / M A R P A T (S T N)