

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年9月14日(14.09.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/155103 A1

(51) 国際特許分類:

C07D 471/04 (2006.01) A61P 33/04 (2006.01)
A01N 25/00 (2006.01) A61P 33/06 (2006.01)
A01N 43/90 (2006.01) A61P 33/10 (2006.01)
A01P 7/02 (2006.01) A61P 33/12 (2006.01)
A01P 7/04 (2006.01) A61P 33/14 (2006.01)
A61K 31/437 (2006.01) C07D 519/00 (2006.01)
A61P 33/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/009763

(22) 国際出願日: 2017年3月10日(10.03.2017)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2016-047064 2016年3月10日(10.03.2016) JP
特願 2016-054191 2016年3月17日(17.03.2016) JP
特願 2016-199515 2016年10月7日(07.10.2016) JP
特願 2016-255131 2016年12月28日(28.12.2016) JP

(71) 出願人: 日産化学工業株式会社(NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒1010054 東京都千代田区神田錦町3丁目7番地1 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 工藤 隆生(KUDO Takao); 〒2748507 千葉県船橋市坪井西2丁目10番1号 日産化学工業株式会社 物質科学研究所内 Chiba (JP). 辻 敬介(TSUJI Keisuke); 〒2748507 千葉県船橋市坪井

西2丁目10番1号 日産化学工業株式会社 物質科学研究所内 Chiba (JP). 能登 健吉(OTO Kenkichi); 〒2748507 千葉県船橋市坪井西2丁目10番1号 日産化学工業株式会社 物質科学研究所内 Chiba (JP). 舞鶴 幸裕(MAIZURU Yukihiro); 〒2748507 千葉県船橋市坪井西2丁目10番1号 日産化学工業株式会社 物質科学研究所内 Chiba (JP). 松井 洋人(MATSUI Hiroto); 〒3490294 埼玉県白岡市白岡1470 日産化学工業株式会社 生物科学研究所内 Saitama (JP). 小林 正樹(KOBAYASHI Masaki); 〒3490294 埼玉県白岡市白岡1470 日産化学工業株式会社 生物科学研究所内 Saitama (JP). 今仲 穂高(IMANAKA Hotaka); 〒3490294 埼玉県白岡市白岡1470 日産化学工業株式会社 生物科学研究所内 Saitama (JP).

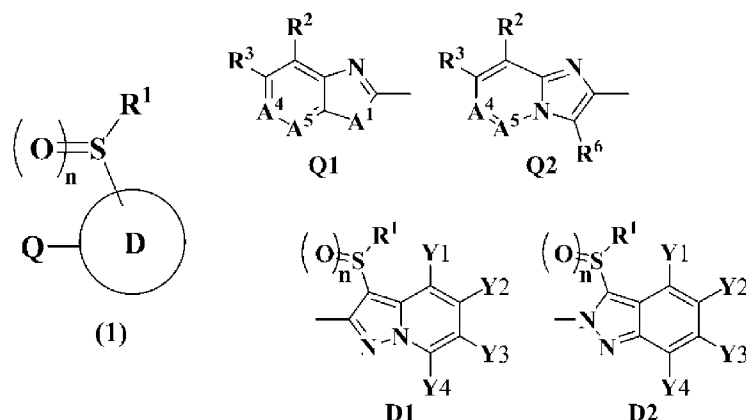
(74) 代理人: 泉名 謙治, 外(SENMYO Kenji et al.); 〒1010035 東京都千代田区神田紺屋町17番地 S I A 神田スクエア4階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE,

[続葉有]

(54) Title: CONDENSED HETEROCYCLIC COMPOUND AND PEST CONTROL AGENT

(54) 発明の名称: 縮合複素環化合物及び有害生物防除剤



(57) Abstract: Provided is a novel pest control agent, particularly a pesticide or a miticide. A condensed heterocyclic compound represented by formula (1), a salt of the compound, or an N-oxide of the compound or the salt. [Q represents a structure represented by Q1, Q2 or the like; D substituted by -S(O)_nR¹ represents a structure represented by D1 or D2; A¹ represents N(A^{1a}) or the like; A^{1a} represents a C₁-C₆ alkyl group or the like; A⁴ represents a nitrogen atom or C(R⁴); A⁵ represents a nitrogen atom or C(R⁵); R¹ represents a C₁-C₆ alkyl group or the like; R², R⁵ and R⁶ independently represent a hydrogen atom or a C₁-C₆ alkyl group; R³, R⁴, Y¹, Y², Y³ and Y⁴ independently represent a halogen atom, a halo(C₁-C₆)-alkyl group or the like; and n represents an integer of 0, 1 or 2.]

(57) 要約:

[続葉有]



PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,

ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

新規な有害生物防除剤、特に殺虫剤又は殺ダニ剤を提供する。式 (1) で表される縮合複素環化合物、その塩又はそれらの N-オキシド。[Q は Q₁、Q₂ 等で表される構造を表し、-S(O)_nR¹ で置換された D は D₁ 又は D₂ で表される構造を表し、A¹ は N(A^{1*}) 等を表し、A^{1*} は、C₁~C₆ アルキル等を表し、A⁴ は窒素原子又は C(R⁴) を表し、A⁵ は窒素原子又は C(R⁵) を表し、R¹ は C₁~C₆ アルキル等を表し、R²、R⁵、及び R⁶ は、各々独立して水素原子又は C₁~C₆ アルキルを表し、R³、R⁴、Y₁、Y₂、Y₃ 及び Y₄ は、各々独立してハロゲン原子、ハロ(C₁~C₆) アルキル等を表し、n は 0、1 又は 2 の整数を表す。]

明 細 書

発明の名称：縮合複素環化合物及び有害生物防除剤

技術分野

[0001] 本発明は、新規な縮合複素環化合物及びそれらの塩、並びに該化合物を有効成分として含有する有害生物防除剤に関する。

背景技術

[0002] 特許文献1～31には、種々の縮合複素環化合物が開示されているが、本発明に係る縮合複素環化合物は何ら開示されていない。さらに、本発明に係る縮合複素環化合物の有する有害生物防除剤としての有用性、特に、殺虫・殺ダニ剤、及び哺乳動物、魚類又は鳥類の内部若しくは外部寄生虫防除剤としての有用性は、全く開示されていない。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第2016/005263号
特許文献2：国際公開第2015/198859号
特許文献3：国際公開第2015/133603号
特許文献4：国際公開第2015/121136号
特許文献5：国際公開第2015/091945号
特許文献6：国際公開第2015/087458号
特許文献7：国際公開第2015/071180号
特許文献8：国際公開第2015/059088号
特許文献9：国際公開第2015/002211号
特許文献10：国際公開第2015/000715号
特許文献11：国際公開第2014/157600号
特許文献12：国際公開第2014/148451号
特許文献13：国際公開第2014/142292号
特許文献14：国際公開第2014/132972号

特許文献15：国際公開第2014／132971号
特許文献16：国際公開第2014／123206号
特許文献17：国際公開第2014／123205号
特許文献18：国際公開第2014／104407号
特許文献19：国際公開第2013／180194号
特許文献20：国際公開第2013／180193号
特許文献21：国際公開第2013／191113号
特許文献22：国際公開第2013／191189号
特許文献23：国際公開第2013／191112号
特許文献24：国際公開第2013／191188号
特許文献25：国際公開第2013／018928号
特許文献26：国際公開第2012／086848号
特許文献27：国際公開第2012／074135号
特許文献28：国際公開第2011／162364号
特許文献29：国際公開第2011／043404号
特許文献30：国際公開第2010／125985号
特許文献31：国際公開第2009／131237号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 農園芸病害虫、森林病害虫、或いは衛生病害虫等、各種病害虫の防除を目的とする有害生物防除剤の開発が進み、多種多様な薬剤が今日まで実用に供されてきた。

しかし、こうした薬剤の長年にわたる使用により、近年、病害虫が薬剤抵抗性を獲得し、従来用いられてきた既存の殺虫剤や殺菌剤による防除が困難となる場面が増えてきている。また、既存の有害生物防除剤の一部のものは毒性が高く、或いはあるものは環境中に長期間残留することにより、生態系を攪乱するという問題も顕在化しつつある。このような状況下、高度な有害生物防除活性を有するのみならず、低毒性且つ低残留性の新規な有害生物防

除剤の開発が常に期待されている。

[0005] 本発明の目的は、優れた有害生物防除活性を示し、ホ乳動物、魚類、益虫等の非標的生物に対してほとんど悪影響が無いなどの低毒性で、且つ低残留性の新規な有害生物防除剤の提供することである。

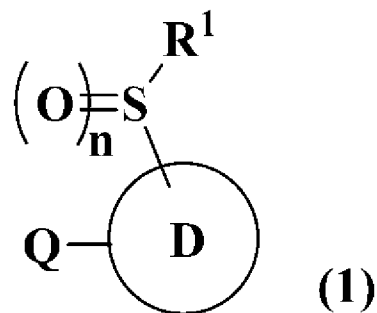
課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、上記の課題解決を目標に鋭意研究を重ねた結果、本発明に係る下記式（１）で表される新規な縮合複素環化合物が優れた有害生物防除活性、特に殺虫・殺ダニ活性を示し、且つ、ホ乳動物、魚類、益虫等の非標的生物に対しては、ほとんど悪影響の無い、極めて有用な化合物であることを見出し、本発明を完成した。

[0007] 本発明は下記〔１〕～〔９５〕を要旨とする。

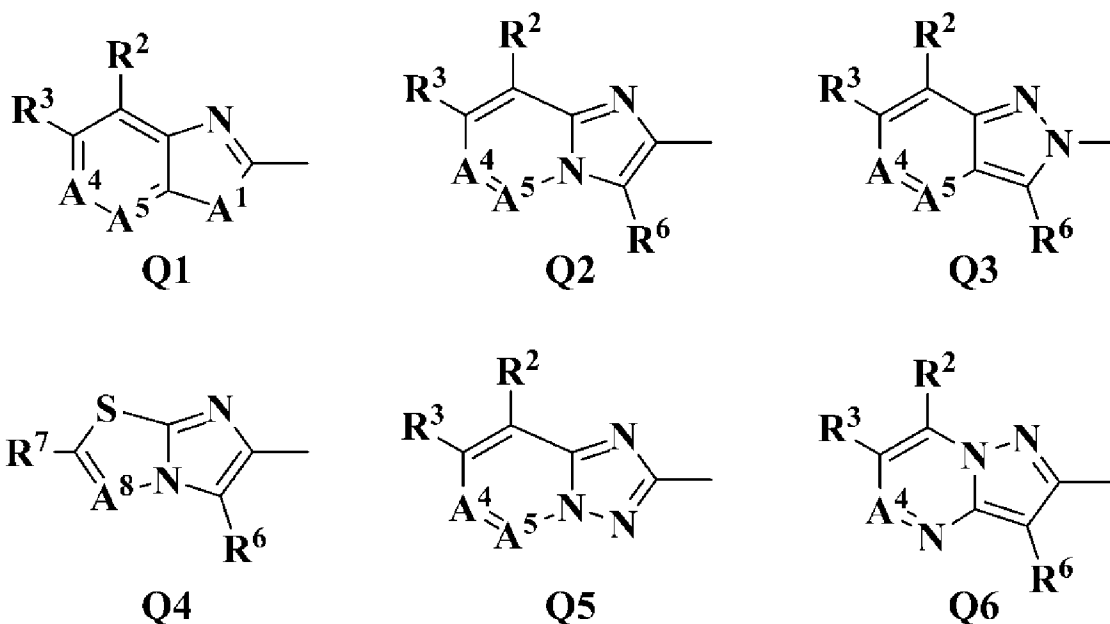
〔１〕式（１）：

[化1]



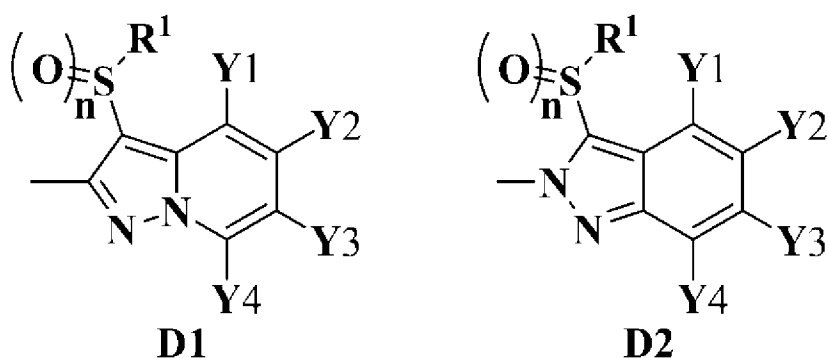
[式中、Qは、Q 1、Q 2、Q 3、Q 4、Q 5又はQ 6で表される構造を表し、

[化2]



—S(O)_nR¹で置換されたDは、D1又はD2で表される構造を表し、

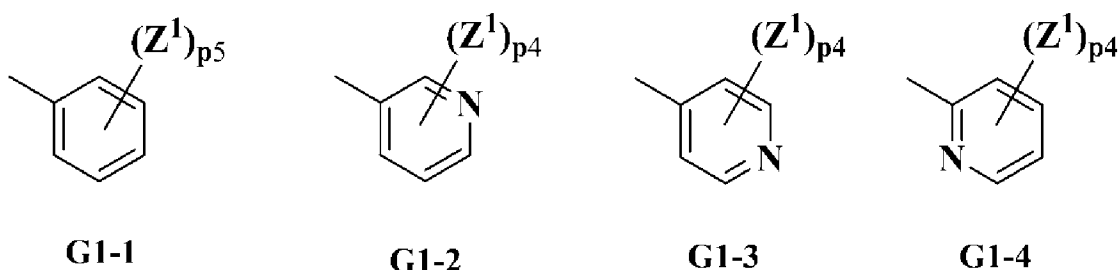
[化3]



A¹は、N(A^{1a})、酸素原子又は硫黄原子を表し、A⁴は、窒素原子又はC(R⁴)を表し、A⁵は、窒素原子又はC(R⁵)を表し、A⁸は、窒素原子又はC(R⁸)を表し、R¹は、C₁～C₆アルキル又はハロ(C₁～C₆)アルキルを表し、R²、R⁵、R⁶及びR⁸は、各々独立して水素原子又はC₁～C₆アルキルを表し、R³、R⁴及びR⁷は、各々独立して、水素原子、ハロゲン原子、ハロ(C₁～C₆)アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルフィニル又はハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニルを表し、

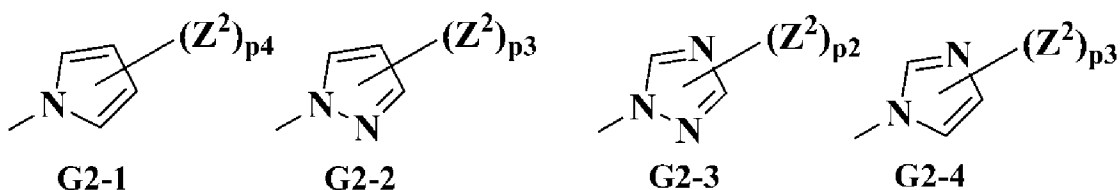
Y 1、Y 2、Y 3 及び Y 4 は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、C₃～C₆シクロアルキル、Y^aによって任意に置換された(C₃～C₆)シクロアルキル、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ(C₁～C₆)アルコキシ、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニル、-NH₂、-NHR⁹⁰⁹、シアノ、ニトロ、G 1 又は G 2 を表し、R⁹⁰⁹は、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルキルカルボニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルカルボニル、C₁～C₆アルコキシカルボニル、ハロ(C₁～C₆)アルコキシカルボニル、C₁～C₆アルキルスルホニル又はハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニルを表し、G 1 は、G 1-1、G 1-2、G 1-3 又は G 1-4 で表される構造を表し、

[化4]



G 2 は、G 2-1、G 2-2、G 2-3 又は G 2-4 で表される構造を表し、

[化5]



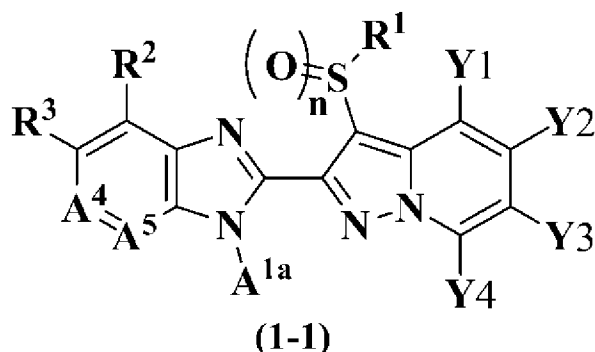
A^{1a}は、水素原子又はC₁～C₆アルキルを表し、Z¹及びZ²は、各々独立してハロゲン原子、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ(C₁～C₆)アルコキシ、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ(C₁～C₆)

) アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルホニル、シアノ又はニトロを表し、 p_2 、 p_3 、 p_4 又は p_5 が2以上の整数を表す場合には、各々の Z^1 、及び各々の Z^2 は互いに同一であっても又は互いに相異なっても良く、

Y^a は、シアノ、 $-C(O)OH$ 又は $-C(O)NH_2$ を表し、 p_2 は、0、1又は2の整数を表し、 p_3 は、0、1、2又は3の整数を表し、 p_4 は、0、1、2、3又は4の整数を表し、 p_5 は、0、1、2、3、4又は5の整数を表し、 n は、0、1又は2の整数を表す。] で表される縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0008] [2] 前記式(1)が、式(1-1)：

[化6]



で表される化合物であり、 R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、 A^{1a} は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

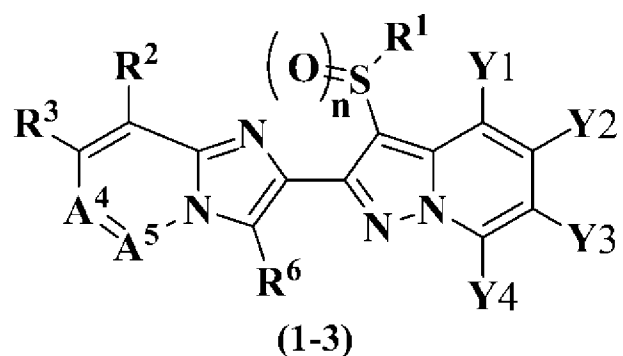
[0009] [3] R^2 、 R^4 及び R^5 は、水素原子を表し、 R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルチオ、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルフィニル又はハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルホニルを表し、 Y^1 は、水素原子又はハロゲン原子を表し、 Y^2 、 Y^3 及び Y^4 は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、 G^1 又は G^2 を表す上記〔2〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔４〕 A^4 は、 $C(R^4)$ を表し、 A^5 は、窒素原子を表し、 R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルチオ又はハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルフィニルを表し、 Y_2 は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル又は G_1 を表し、 Y_3 は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル又は G_2 を表し、 Y_4 は、水素原子を表し、 G_1 は、 G_1-1 を表し、 G_2 は、 G_2-2 を表し、 Z^2 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、 p_3 は、1の整数を表し、 p_5 は、0の整数を表し、 n は、0又は2の整数を表す上記〔３〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらの N -オキシド。

〔５〕 A^4 は、窒素原子を表し、 A^5 は、 $C(R^5)$ を表し、 R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、 Y_3 は、水素原子又はハロゲン原子を表し、 Y_2 及び Y_4 は、水素原子を表し、 n は、0又は2の整数を表す上記〔３〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらの N -オキシド。

[0010] 〔６〕 前記式（１）が、式（１－３）：

[化7]



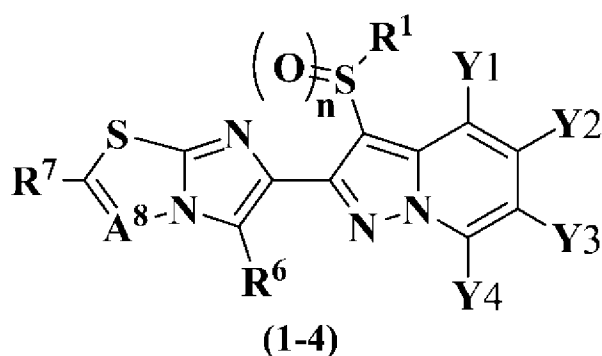
で表される化合物であり、 A^4 は、窒素原子を表し、 A^5 は、 $C(R^5)$ を表し、 R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、 R^2 及び R^5 は、水素原子を表し、 R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、 Y_1 は、水素原子又はハロゲン原子を表し、 Y_2 、 Y_3 及び Y_4 は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、 G_1 又は G_2 を表す上記〔１〕に記載

の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔7〕 R^6 は、水素原子を表し、 Y_1 、 Y_3 及び Y_4 は、水素原子を表し、 Y_2 は、ハロ（ $C_1 \sim C_6$ ）アルキルを表し、 n は、2の整数を表す上記〔6〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔8〕 前記式（1）が、式（1-4）：

[化8]

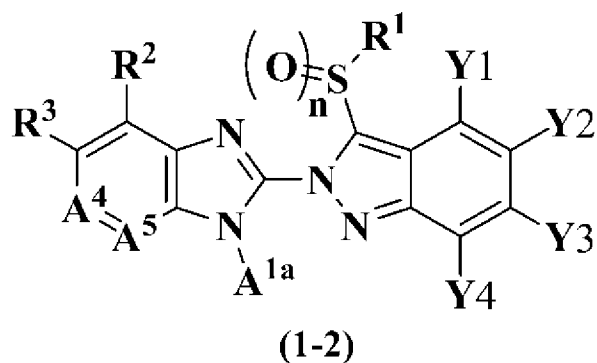


で表される化合物であり、 A^8 は、窒素原子を表し、 R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、 R^7 は、ハロ（ $C_1 \sim C_6$ ）アルキルを表し、 Y_1 は、水素原子又はハロゲン原子を表し、 Y_2 、 Y_3 及び Y_4 は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ（ $C_1 \sim C_6$ ）アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、 G_1 又は G_2 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔9〕 R^6 は、水素原子を表し、 Y_1 、 Y_3 及び Y_4 は、水素原子を表し、 Y_2 は、ハロ（ $C_1 \sim C_6$ ）アルキルを表し、 n は、2の整数を表す上記〔8〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔10〕 前記式（1）が、式（1-2）：

[化9]



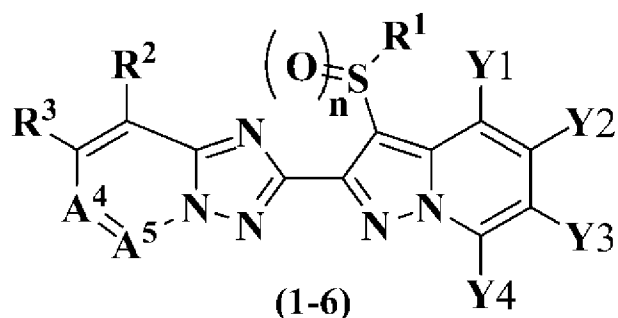
で表される化合物であり、 R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、 A^{1a} は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0011] 〔1 1〕 A^4 は、 $C(R^4)$ を表し、 A^5 は、窒素原子を表し、 R^3 は、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルを表し、 Y_3 は、ハロゲン原子、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルキル、 $-NH_2$ 又はニトロを表し、 R^2 、 R^4 、 Y_1 、 Y_2 及び Y_4 は、水素原子を表し、 n は、0又は2の整数を表す上記〔1 0〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔1 2〕 A^4 は、窒素原子を表し、 A^5 は、 $C(R^5)$ を表し、 R^3 及び Y_3 は、各々独立してハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルを表し、 R^2 、 R^5 、 Y_1 、 Y_2 及び Y_4 は、水素原子を表し、 n は、0又は2の整数を表す上記〔1 0〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔1 3〕前記式(1)が、式(1-6)：

[化10]



で表される化合物であり、 A^4 は、 $C(R^4)$ を表し、 A^5 は、 $C(R^5)$ を表

し、 R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、 R^2 、 R^4 及び R^5 は、水素原子を表し、 R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、 Y^1 は、水素原子又はハロゲン原子を表し、 Y^2 、 Y^3 及び Y^4 は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、 G^1 又は G^2 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔14〕 Y^1 、 Y^3 及び Y^4 は、水素原子を表し、 Y^2 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、 n は、0又は2の整数を表す上記〔13〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔15〕 Q は、 Q^1 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換された D は、 D^1 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔16〕 Q は、 Q^2 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換された D は、 D^1 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔17〕 Q は、 Q^3 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換された D は、 D^1 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0012] 〔18〕 Q は、 Q^4 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換された D は、 D^1 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔19〕 Q は、 Q^5 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換された D は、 D^1 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔20〕 Q は、 Q^6 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換された D は、 D^1 を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0013] 〔21〕 Q は、 Q^1 で表される構造を表し、 $-S(O)_n R^1$ で置換され

たDは、D²を表す上記〔1〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔22〕A¹は、N(A^{1a})を表す上記〔1〕、〔15〕又は〔21〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔23〕A¹は、酸素原子又は硫黄原子を表す上記〔1〕、〔15〕又は〔21〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔24〕A⁴は、窒素原子を表し、A⁵は、窒素原子を表す上記〔1〕～〔3〕、〔10〕、〔15〕～〔17〕、〔19〕又は〔21〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0014] 〔25〕A⁴は、C(R⁴)を表し、A⁵は、C(R⁵)を表す上記〔1〕～〔3〕、〔10〕、〔15〕～〔17〕、〔19〕又は〔21〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔26〕A⁴は、窒素原子を表し、A⁵は、C(R⁵)を表す上記〔1〕～〔3〕、〔10〕、〔15〕～〔17〕、〔19〕又は〔21〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔27〕A⁴は、C(R⁴)を表し、A⁵は、窒素原子を表す上記〔1〕～〔3〕、〔10〕、〔15〕～〔17〕、〔19〕又は〔21〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔28〕A⁴は、C(R⁴)を表す上記〔1〕又は〔20〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0015] 〔29〕A⁴は、窒素原子を表す上記〔1〕又は〔20〕に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔30〕A⁸は、窒素原子を表す上記〔1〕又は〔18〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔31〕A⁸は、C(R⁸)を表す上記〔1〕又は〔18〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔32〕R¹は、C₁～C₆アルキルを表す上記〔1〕～〔31〕のいずれ

かに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0016] [33] R¹は、ハロ(C₁~C₆)アルキルを表す上記[1]~[31]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[34] R²、R⁵、R⁶及びR⁸は、各々独立して水素原子又はC₁~C₆アルキルを表す上記[1]~[33]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[35] R³、R⁴及びR⁷は、各々独立して、水素原子、ハロゲン原子、ハロ(C₁~C₆)アルキル、ハロ(C₁~C₆)アルキルチオ、ハロ(C₁~C₆)アルキルスルフィニル又はハロ(C₁~C₆)アルキルスルホニルを表す上記[1]~[34]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[36] R³は、水素原子、ハロゲン原子又はハロ(C₁~C₆)アルキルを表す上記[1]~[35]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0017] [37] R³は、ハロ(C₁~C₆)アルキルを表す上記[1]~[35]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[38] R³は、ハロ(C₁~C₆)アルキルチオ、ハロ(C₁~C₆)アルキルスルフィニル又はハロ(C₁~C₆)アルキルスルホニルを表す上記[1]~[35]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[39] R⁴は、水素原子、ハロゲン原子又はハロ(C₁~C₆)アルキルを表す上記[1]~[38]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[40] R⁴は、水素原子、ハロ(C₁~C₆)アルキルを表す上記[1]~[38]のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0018] [4 1] R⁴は、水素原子、ハロ (C₁~C₆) アルキルチオ、ハロ (C₁~C₆) アルキルスルフィニル又はハロ (C₁~C₆) アルキルスルホニルを表す上記 [1] ~ [3 8] のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[4 2] R⁷は、水素原子、ハロゲン原子又はハロ (C₁~C₆) アルキルを表す上記 [1] ~ [4 1] のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[4 3] R⁷は、ハロ (C₁~C₆) アルキルを表す上記 [1] ~ [4 1] のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[4 4] R⁷は、ハロ (C₁~C₆) アルキルチオ、ハロ (C₁~C₆) アルキルスルフィニル又はハロ (C₁~C₆) アルキルスルホニルを表す上記 [1] ~ [4 1] のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0019] [4 5] Y₁、Y₂、Y₃及びY₄は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、C₃~C₆シクロアルキル、Y^aによって任意に置換された (C₃~C₆) シクロアルキル、C₁~C₆アルキル、ハロ (C₁~C₆) アルキル、C₁~C₆アルコキシ、ハロ (C₁~C₆) アルコキシ、C₁~C₆アルキルチオ、ハロ (C₁~C₆) アルキルチオ、C₁~C₆アルキルスルフィニル、ハロ (C₁~C₆) アルキルスルフィニル、C₁~C₆アルキルスルホニル、ハロ (C₁~C₆) アルキルスルホニル、-NH₂、-NHR⁹⁰⁹、シアノ、ニトロ、G₁又はG₂を表す上記 [1] ~ [4 4] のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[4 6] Y₁、Y₂、Y₃及びY₄は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ (C₁~C₆) アルキル、G₁又はG₂を表す上記 [1] ~ [4 4] のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[4 7] Y₁、Y₂、Y₃及びY₄は、各々独立して水素原子、ハロゲ

ン原子又はハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表す上記〔1〕～〔44〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0020] 〔48〕Y1、Y2、Y3及びY4は、各々独立して水素原子、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔44〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔49〕Y1、Y2、Y3及びY4は、各々独立して水素原子、 $-NH_2$ 又はニトロを表す上記〔1〕～〔44〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔50〕Y1、Y2、Y3及びY4は、各々独立して水素原子、 $C_3 \sim C_6$ シクロアルキル、 Y^a によって任意に置換された($C_3 \sim C_6$)シクロアルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルコキシ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルスルホニル、 $-NHR^{909}$ 又はシアノを表す上記〔1〕～〔44〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0021] 〔51〕Y1、Y2、Y3及びY4は、各々独立して水素原子、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルコキシ、ハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルチオ又はハロ($C_1 \sim C_6$)アルキルスルホニルを表す上記〔1〕～〔44〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔52〕Y1、Y2、Y3及びY4は、各々独立して水素原子、 $C_3 \sim C_6$ シクロアルキル、 Y^a によって任意に置換された($C_3 \sim C_6$)シクロアルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル又は $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニルを表す上記〔1〕～〔44〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔53〕Y1は、水素原子又はハロゲン原子を表す上記〔1〕～〔52〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オ

キシド。

[0022] [54] Y1は、水素原子を表す上記〔1〕～〔52〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[55] Y1は、ハロゲン原子を表す上記〔1〕～〔52〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[56] Y2は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ(C₁～C₆)アルキル、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔55〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[57] Y2は、水素原子、ハロゲン原子又はハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔55〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[58] Y2は、水素原子、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔55〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0023] [59] Y2は、ハロゲン原子を表す上記〔1〕～〔55〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[60] Y2は、ハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔55〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[61] Y3は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ(C₁～C₆)アルキル、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔60〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[62] Y3は、水素原子、ハロゲン原子又はハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔60〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0024] [63] Y3は、水素原子、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔60〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔64〕 Y3は、ハロゲン原子を表す上記〔1〕～〔60〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔65〕 Y3は、ハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔60〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔66〕 Y4は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ(C₁～C₆)アルキル、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔65〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔67〕 Y4は、水素原子、ハロゲン原子又はハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔65〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0025] 〔68〕 Y4は、水素原子、G1又はG2を表す上記〔1〕～〔65〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔69〕 Y4は、水素原子を表す上記〔1〕～〔65〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔70〕 Y4は、ハロゲン原子又はハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔65〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔71〕 G1は、G1-1で表される構造を表す上記〔1〕～〔70〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0026] 〔72〕 G1は、G1-2、G1-3又はG1-4で表される構造を表す上記〔1〕～〔70〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔73〕 G2は、G2-1で表される構造を表す上記〔1〕～〔72〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔74〕G²は、G²-2、G²-3又はG²-4で表される構造を表す上記〔1〕～〔72〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔75〕A^{1a}は、水素原子を表す上記〔1〕～〔74〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0027] 〔76〕A^{1a}は、C₁～C₆アルキルを表す上記〔1〕～〔74〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔77〕Z¹は、ハロゲン原子、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ(C₁～C₆)アルコキシ、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニル、シアノ又はニトロを表す上記〔1〕～〔76〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔78〕Z¹は、ハロゲン原子、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ(C₁～C₆)アルコキシ、シアノ又はニトロを表す上記〔1〕～〔76〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0028] 〔79〕Z¹は、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル又はハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニルを表す上記〔1〕～〔76〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔80〕Z²は、ハロゲン原子、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ(C₁～C₆)アルコキシ、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニル、シアノ又はニトロを表す上記〔1〕

～〔79〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔81〕Z²は、ハロゲン原子、C₁～C₆アルキル、ハロ(C₁～C₆)アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ(C₁～C₆)アルコキシ、シアノ又はニトロを表す上記〔1〕～〔79〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0029] 〔82〕Z²は、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ(C₁～C₆)アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ(C₁～C₆)アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル又はハロ(C₁～C₆)アルキルスルホニルを表す上記〔1〕～〔79〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔83〕Z²は、ハロ(C₁～C₆)アルキルを表す上記〔1〕～〔79〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔84〕Y^aは、シアノ、-C(O)OH又は-C(O)NH₂を表す上記〔1〕～〔83〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[0030] 〔85〕Y^aは、シアノを表す上記〔1〕～〔83〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔86〕Y^aは、-C(O)OH又は-C(O)NH₂を表す上記〔1〕～〔83〕のいずれかに記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

〔87〕上記〔1〕～〔86〕のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する有害生物防除剤。

〔88〕上記〔1〕～〔86〕のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する農薬。

[0031] [89] 上記〔1〕～〔86〕のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する哺乳動物又は鳥類の内部若しくは外部寄生虫の防除剤。

[90] 外部寄生虫がノミ目類又はマダニ類である上記〔89〕に記載の防除剤。

[91] 上記〔1〕～〔86〕のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する殺虫剤又は殺ダニ剤。

[92] 上記〔1〕～〔86〕のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する土壌処理剤。

[93] 土壌処理が土壌灌注処理によって行われる〔92〕に記載の土壌処理剤。

[94] 上記〔1〕～〔86〕のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する種子処理剤。

[95] 種子処理が浸漬処理によって行われる〔94〕に記載の種子処理剤。

発明の効果

[0032] 本発明化合物は多くの農業害虫、ハダニ類、哺乳動物、魚類又は鳥類の内部もしくは外部寄生虫に対して優れた殺虫・殺ダニ活性を有し、既存の殺虫剤に対して抵抗性を獲得した害虫に対しても十分な防除効果を発揮する。さらに、ホ乳類、魚類及び益虫に対してほとんど悪影響を及ぼさず、低残留性で環境に対する負荷も軽い。従って、本発明は有用な新規有害生物防除剤を提供できる。

発明を実施するための形態

[0033] 本明細書において、以下の用語の定義や意味は、それぞれ次のとおりである。

本発明に包含される化合物には、置換基の種類によってはE-体及びZ-

体の幾何異性体が存在する場合があるが、本発明はこれら E ー 体、 Z ー 体又は E ー 体及び Z ー 体を任意の割合で含む混合物を包含するものである。

また、本発明に包含される化合物は、 1 個又は 2 個以上の不斉炭素原子又は不斉硫黄原子の存在に起因する光学活性体が存在するが、本発明は全ての光学活性体又はラセミ体を包含する。

また、本発明に包含される化合物には、置換基の種類によって互変異性体が存在する場合があるが、本発明は全ての互変異性体又は任意の割合で含む互変異性体の混合物を包含するものである。

[0034] 本発明に包含される化合物のうちで、常法に従って塩にすることができるものは、例えば、フッ化水素酸、塩酸、臭化水素酸、ヨウ化水素酸等のハロゲン化水素酸の塩、硝酸、硫酸、燐酸、塩素酸、過塩素酸等の無機酸の塩、メタンスルホン酸、エタンスルホン酸、トリフルオロメタンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸、p-トルエンスルホン酸等のスルホン酸の塩、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、トリフルオロ酢酸、フマル酸、酒石酸、蔞酸、マレイン酸、リンゴ酸、コハク酸、安息香酸、マンデル酸、アスコルビン酸、乳酸、グルコン酸、クエン酸等のカルボン酸の塩、グルタミン酸、アスパラギン酸等のアミノ酸の塩、リチウム、ナトリウム、カリウムといったアルカリ金属の塩、カルシウム、バリウム、マグネシウムといったアルカリ土類金属の塩、アルミニウムの塩、テトラメチルアンモニウム塩、テトラブチルアンモニウム塩、ベンジルトリメチルアンモニウム塩等の四級アンモニウム塩とすることができる。

本発明化合物において、N-オキシドとは、複素環上の環を構成する窒素原子が酸化された化合物である。N-オキシドを形成しうる複素環としては、例えばピリジン環を含む縮合環が挙げられる。

「式 (1) で表される本発明化合物」は、「本発明化合物 (1)」とも記載され、また、「式 (1-a) で表される化合物」は、「化合物 (1-a)」とも記載される。他の化合物についてもこれに準じて同様に記載される。

[0035] 次に、各置換基の具体例を以下に示す。ここで、n-はノルマル、i-は

イソ、*s* はセカンダリー及び *t e r t* はターシャリーを各々意味する。

「ハロゲン原子」としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子が挙げられる。尚、「ハロ」の表記もこれらのハロゲン原子を表す。

「 $C_a \sim C_b$ アルキル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる直鎖状又は分岐鎖状の炭化水素基を表し、例えばメチル基、エチル基、*n* - プロピル基、*i* - プロピル基、*n* - ブチル基、*i* - ブチル基、*s* - ブチル基、*t e r t* - ブチル基、*n* - ペンチル基、1, 1 - ジメチルプロピル基、*n* - ヘキシル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0036] 「ハロ ($C_a \sim C_b$) アルキル」の表記は、炭素原子に結合した水素原子がハロゲン原子によって任意に置換された、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる直鎖状又は分岐鎖状の炭化水素基を表し、このとき、2 個以上のハロゲン原子によって置換されている場合、それらのハロゲン原子は互いに同一でも、または互いに相異なってもよい。例えばフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、ヨードメチル基、ジフルオロメチル基、ジクロロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロジフルオロメチル基、トリクロロメチル基、ブロモジフルオロメチル基、1 - フルオロエチル基、2 - フルオロエチル基、2 - クロロエチル基、2 - ブロモエチル基、2, 2 - ジフルオロエチル基、2, 2, 2 - トリフルオロエチル基、2 - クロロ - 2, 2 - ジフルオロエチル基、2, 2, 2 - トリクロロエチル基、2 - ブロモ - 2, 2 - ジフルオロエチル基、1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエチル基、2 - クロロ - 1, 1, 2 - トリフルオロエチル基、2 - クロロ - 1, 1, 2, 2 - テトラフルオロエチル基、ペンタフルオロエチル基、2, 2 - ジフルオロプロピル基、3, 3, 3 - トリフルオロプロピル基、3 - ブロモ - 3, 3 - ジフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3 - テトラフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3 - ペンタフルオロプロピル基、1, 1, 2, 3, 3, 3 - ヘキサフルオロプロピル基、ヘプタフルオロプロピル基、2, 2, 2 - トリフルオロ - 1 - (メチル) エチル基、2, 2, 2 - トリフルオロ - 1 - (トリフルオ

ロメチル)エチル基、1, 2, 2, 2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル基、2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル基、ノナフルオロブチル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0037] 「 $C_a \sim C_b$ シクロアルキル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる環状の炭化水素基を表し、3員環から6員環までの単環又は複合環構造を形成することが出来る。また、各々の環は指定の炭素原子数の範囲でアルキル基によって任意に置換されていてもよい。例えばシクロプロピル基、1-メチルシクロプロピル基、2-メチルシクロプロピル基、2, 2-ジメチルシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

「 $C_a \sim C_b$ アルコキシ」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるアルキル- O -基を表わす。例えばメトキシ基、エトキシ基、 n -プロピルオキシ基、 i -プロピルオキシ基、 n -ブチルオキシ基、 i -ブチルオキシ基、 s -ブチルオキシ基、 $tert$ -ブチルオキシ基、2-エチルヘキシルオキシ基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0038] 「ハロ($C_a \sim C_b$)アルコキシ」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるハロアルキル- O -基を表わす。例えばジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、クロロジフルオロメトキシ基、ブロモジフルオロメトキシ基、2-フルオロエトキシ基、2-クロロエトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエトキシ基、2-クロロ-1, 1, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロピルオキシ基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

「 $C_a \sim C_b$ アルキルチオ」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記

の意味であるアルキル-S-基を表わす。例えばメチルチオ基、エチルチオ基、*n*-プロピルチオ基、*i*-プロピルチオ基、*n*-ブチルチオ基、*i*-ブチルチオ基、*s*-ブチルチオ基、*tert*-ブチルチオ基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0039] 「ハロ ($C_a \sim C_b$) アルキルチオ」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるハロアルキル-S-基を表わす。例えばジフルオロメチルチオ基、トリフルオロメチルチオ基、クロロジフルオロメチルチオ基、ブロモジフルオロメチルチオ基、2, 2, 2-トリフルオロエチルチオ基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチルチオ基、2-クロロ-1, 1, 2-トリフルオロエチルチオ基、ペンタフルオロエチルチオ基、1, 1, 2, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロピルチオ基、ヘプタフルオロプロピルチオ基、1, 2, 2, 2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチルチオ基、ノナフルオロブチルチオ基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

「 $C_a \sim C_b$ アルキルスルフィニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるアルキル-S(O)-基を表わす。例えばメチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、*n*-プロピルスルフィニル基、*i*-プロピルスルフィニル基、*n*-ブチルスルフィニル基、*i*-ブチルスルフィニル基、*s*-ブチルスルフィニル基、*tert*-ブチルスルフィニル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0040] 「ハロ ($C_a \sim C_b$) アルキルスルフィニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるハロアルキル-S(O)-基を表わす。例えばジフルオロメチルスルフィニル基、トリフルオロメチルスルフィニル基、クロロジフルオロメチルスルフィニル基、ブロモジフルオロメチルスルフィニル基、2, 2, 2-トリフルオロエチルスルフィニル基、1, 2, 2, 2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチルスルフィニル基、ノナフルオロブチルスルフィニル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

「 $C_a \sim C_b$ アルキルスルホニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるアルキル- SO_2 -基を表わす。例えばメチルスルホニル基、エチルスルホニル基、 n -プロピルスルホニル基、 i -プロピルスルホニル基、 n -ブチルスルホニル基、 i -ブチルスルホニル基、 s -ブチルスルホニル基、 $tert$ -ブチルスルホニル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0041] 「ハロ ($C_a \sim C_b$) アルキルスルホニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるハロアルキル- SO_2 -基を表わす。例えばジフルオロメチルスルホニル基、トリフルオロメチルスルホニル基、クロロジフルオロメチルスルホニル基、ブロモジフルオロメチルスルホニル基、2, 2, 2-トリフルオロエチルスルホニル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチルスルホニル基、2-クロロ-1, 1, 2-トリフルオロエチルスルホニル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

「 $C_a \sim C_b$ アルキルカルボニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるアルキル-C(=O)-基を表わす。例えば、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基、バレリル基、イソバレリル基、2-メチルブタノイル基、ピバロイル基、ヘキサノイル基、ヘプタノイル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0042] 「ハロ ($C_a \sim C_b$) アルキルカルボニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるハロアルキル-C(=O)-基を表わす。例えば、フルオロアセチル基、クロロアセチル基、ジフルオロアセチル基、ジクロロアセチル基、トリフルオロアセチル基、クロロジフルオロアセチル基、ブロモジフルオロアセチル基、トリクロロアセチル基、ペンタフルオロプロピオニル基、ヘプタフルオロブタノイル基、3-クロロ-2, 2-ジメチルプロパノイル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

「 $C_a \sim C_b$ アルコキシカルボニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるアルキル- $O-C(O)-$ 基を表わす。例えばメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、 n -プロピルオキシカルボニル基、 i -プロピルオキシカルボニル基、 n -ブトキシカルボニル基、 i -ブトキシカルボニル基、 s -ブトキシカルボニル基、 $tert$ -ブトキシカルボニル基、2-エチルヘキシルオキシカルボニル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

[0043] 「ハロ ($C_a \sim C_b$) アルコキシカルボニル」の表記は、炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるハロアルキル- $O-C(O)-$ 基を表わす。例えば、クロロメトキシカルボニル基、2-クロロエトキシカルボニル基、2, 2-ジフルオロエトキシカルボニル基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシカルボニル基、2, 2, 2-トリクロロエトキシカルボニル基等が具体例として挙げられ、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。

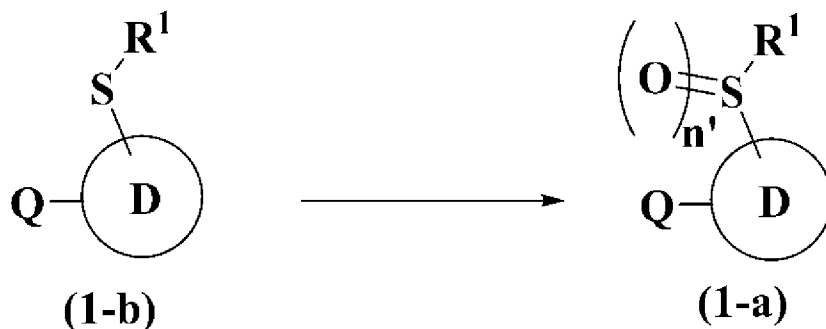
「 Y^a によって任意に置換された ($C_a \sim C_b$) シクロアルキル」の表記は、任意の Y^a によって、炭素原子に結合した水素原子が任意に置換された炭素原子数が $a \sim b$ 個よりなる前記の意味であるシクロアルキル基を表し、各々の指定の炭素原子数の範囲で選択される。このとき、それぞれの ($C_a \sim C_b$) シクロアルキル基上の置換基 Y^a が2個以上存在するとき、それぞれの Y^a は互いに同一でも異なってもよい。

[0044] 次に、前記式(1)で表される本発明化合物の製造法を以下に説明する。本発明化合物は、例えば、以下の製造法1～9により製造できる。

[製造法1]

前記式(1)で表される本発明化合物のうち、 n が1又は2の整数である化合物(1-a)は、例えば、本発明化合物のうち、 n が0の整数である化合物(1-b)と、酸化剤とを反応させることにより製造できる。

[化11]



(式中、 $-\text{S}(\text{O})_{n'}\text{R}^1$ で置換されたD、Q及び R^1 は前記と同じ意味を表し、 n' は1又は2の整数を表す。)

[0045] 化合物(1-a)は、化合物(1-b)と酸化剤とを、溶媒中又は無溶媒で、場合によっては触媒存在下反応させることにより、製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよい。例えば、水、メタノール、エタノール等の低級アルコール類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、ベンゼン、クロロベンゼン、ブロモベンゼン、キシレン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、アセトニトリル、プロピオニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、N,N'-ジメチルイミダゾリジノン等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、酢酸等の低級脂肪酸類又はこれらの混合溶媒等が挙げられる。以下、ここで例示した溶媒、それらの混合溶媒を総称して「溶媒A」という。

[0046] 酸化剤としては、例えばメタクロロ過安息香酸、過酢酸等の過酸、過酸化水素、オキシソ(OXONE、イー・アイ・デュポン社商品名；ペルオキソ硫酸水素カリウム含有物)が挙げられる。酸化剤の使用量は、化合物(1-b)1当量に対して0.1～100当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

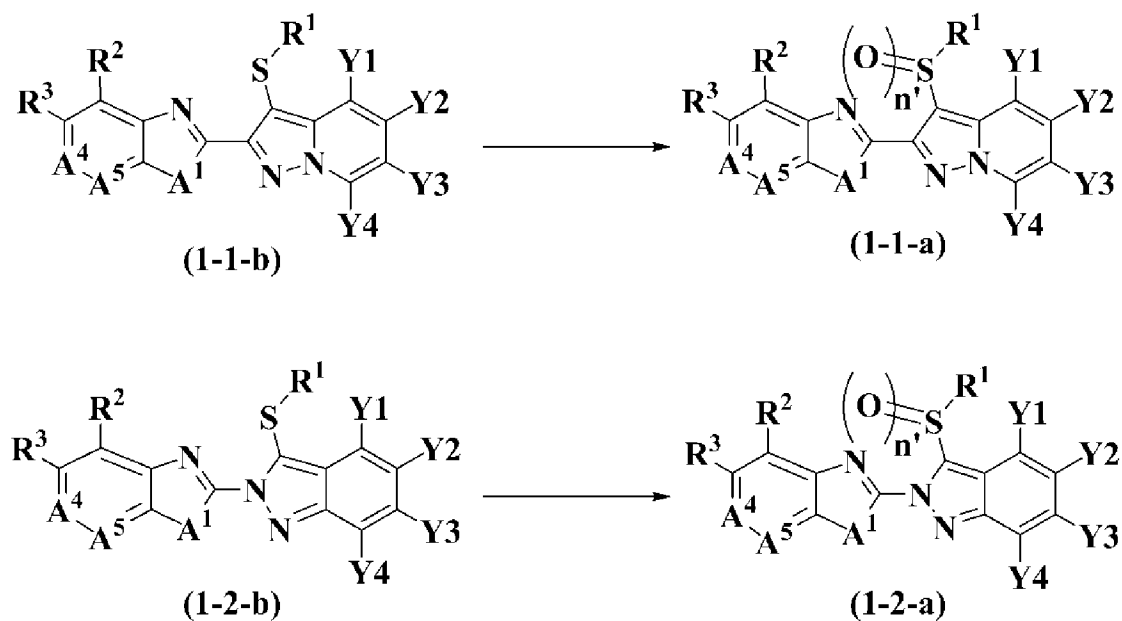
該反応は触媒の存在下に行うことができる。触媒としては、例えばタングステン酸ナトリウム等が挙げられる。触媒の使用量は、化合物（１－ｂ）１当量に対して０．００５～２０当量で用いることができ、０．１～５当量が好ましい。

反応温度は、－８０℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、０℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常５分～１００時間で任意に設定でき、１～４８時間が好ましい。

[0047] 本製造法を用いることにより、例えば、化合物（１－１－ｂ）から化合物（１－１－ａ）を、化合物（１－２－ｂ）から化合物（１－２－ａ）を製造できる。

[化12]

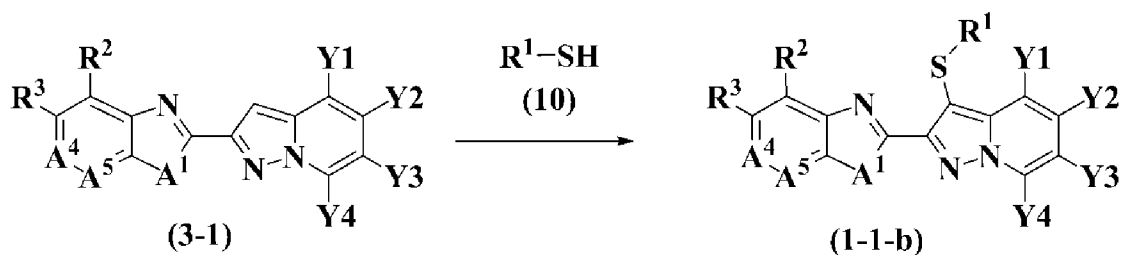


（式中、R¹、R²、R³、A¹、A⁴、A⁵、Y¹、Y²、Y³、Y⁴及びn'は前記と同じ意味を表す。）

[0048] [製造法２]

化合物（１－１－ｂ）は、例えば、化合物（３－１）と、化合物（１０）とを反応させることにより製造できる。

[化13]



(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 A^1 、 A^4 、 A^5 、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 及び Y^4 は前記と同じ意味を表す。)

[0049] 化合物(1-1-b)は、化合物(3-1)と化合物(10)とを、ハロゲン化剤の存在下、溶媒中又は無溶媒で、反応させることにより製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒A」が挙げられる。

[0050] ハロゲン化剤としては、塩素、臭素、ヨウ素、N-クロロスクシンイミド、N-ブロモスクシンイミド、N-ヨードスクシンイミド、1,3-ジクロロ-5,5-ジメチルヒダントイン、1,3-ジブromo-5,5-ジメチルヒダントイン、1,3-ジヨード-5,5-ジメチルヒダントイン等が挙げられる。ハロゲン化剤の使用量は、化合物(3-1)1当量に対して0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

反応温度は、 -80°C から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、 0°C から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分～100時間で任意に設定でき、1～48時間が好ましい。

基質の使用量は、化合物(10)は化合物(3-1)1当量に対して、0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

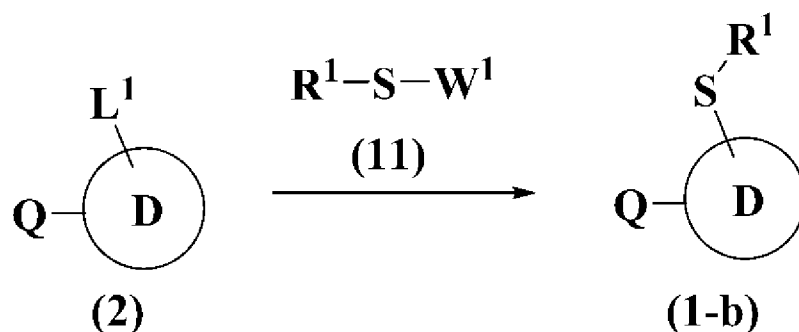
化合物(10)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

[0051] [製造法3]

本発明化合物(1)のうち、化合物(1-b)は、例えば、化合物(2)

と、化合物（１１）とを反応させることにより製造できる。

[化14]



[式中、 $-S(O)_nR^1$ で置換されたD、Q及び R^1 は前記と同じ意味を表し、 L^1 は塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を表し、 W^1 は水素原子、ナトリウム原子又はカリウム原子を表す。]

[0052] 化合物（１－b）は、化合物（２）と化合物（１１）とを、溶媒中又は無溶媒で、場合によっては塩基、パラジウム触媒、配位子存在下、反応させることにより製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒A」が挙げられる。

[0053] 該反応は塩基の存在下に行うことができる。塩基としては、例えばピリジン、２，６－ルチジン、トリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、トリブチルアミン、４－(ジメチルアミノ)ピリジン、１，４－ジアザビシクロ[２．２．２]オクタン（DABCO）、１，８－ジアザビシクロ[５．４．０]－７－ウンデセン（DBU）又は１，５－ジアザビシクロ[４．３．０]－５－ノネン（DBN）等の有機塩基類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水素化ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等の無機塩基類が挙げられる。塩基の使用量は、化合物（２）の１当量に対して０．１～１００当量で用いることができ、１～２０当量が好ましい。

該反応はパラジウム触媒の存在下に行うことができる。パラジウム触媒としては、例えばパラジウム－炭素、塩化パラジウム（II）、酢酸パラジウム

(II)、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)等が挙げられる。パラジウム触媒の使用量は、化合物(2) 1当量に対して0.005~20当量で用いることができ、0.01~5当量が好ましい。

[0054] 該反応は配位子の存在下に行うことができる。配位子としては、例えば4, 5'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9, 9'-ジメチルキサントレン、1, 10-フェナントロリン等が挙げられる。配位子の使用量は、化合物(2) 1当量に対して、0.005~20当量で用いることができ、0.01~5当量が好ましい。

反応温度は、-80℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、0℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

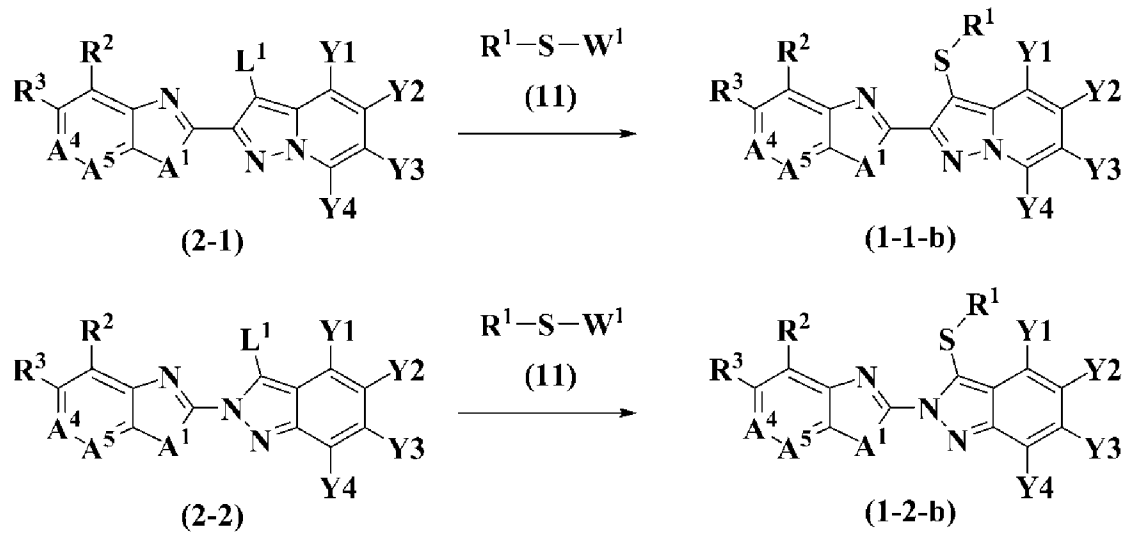
反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分~100時間で任意に設定でき、1~48時間が好ましい。

基質の使用量は、化合物(11)は化合物(2) 1当量に対して、0.5~50当量で用いることができ、1~20当量が好ましい。

化合物(11)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

[0055] 本製造法を用いることにより、例えば、化合物(2-1)から化合物(1-1-b)を、化合物(2-2)から化合物(1-2-b)を製造できる。

[化15]

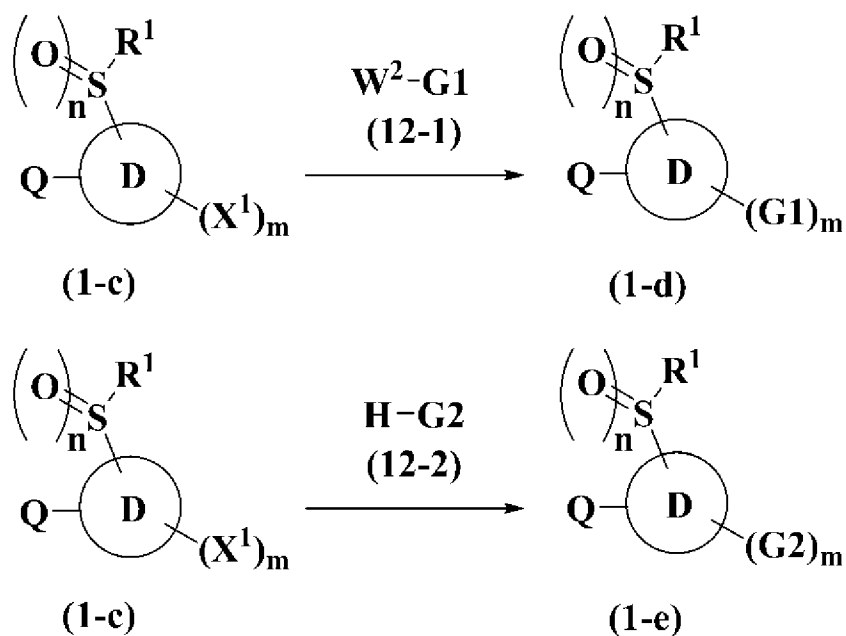


(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 A^1 、 A^4 、 A^5 、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 、 Y^4 、 L^1 及び W^1 は前記と同じ意味を表す。)

[0056] [製造法4]

本発明化合物(1)のうち、化合物(1-d)及び化合物(1-e)は、例えば、前記本発明化合物(1)において、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 及び Y^4 のうち、1つ又は2つ以上がハロゲン原子である化合物(1-c)と、化合物(12-1)又は化合物(12-2)とを反応させることにより製造できる。

[0057] [化16]



[式中、 $-S(O)_nR^1$ で置換されたD、Q、 R^1 、 G^1 、 G^2 及びnは前記と同じ意味を表し、 X^1 はハロゲン原子を表し、mは1、2、3又は4の整数を表し、 W^2 は $S_n(R^a)_3$ 、 $B(OR^b)_2$ 等を表し、 R^a は $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、 R^b は水素原子又は $C_1 \sim C_6$ アルキルを表す。]

[0058] 化合物(1-d)は化合物(1-c)と化合物(12-1)とを、化合物(1-e)は化合物(1-c)と化合物(12-2)とを、溶媒中又は無溶媒で、触媒、配位子及び塩基存在下、反応させることにより製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒A」が挙げられる。

[0059] 触媒としては、例えばパラジウム-炭素、塩化パラジウム(II)、酢酸パラジウム(II)、ビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)ジクロリド、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)、ビス(ジベンジリデンアセトン)パラジウム(0)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)、ヨウ化銅(I)等が挙げられる。触媒の使用量は、化合物(1-c)1当量に対して、0.005~20当量で用いることができ、0.01~5当量が好ましい。

配位子としては、例えば4,5'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9'-ジメチルキサンテン、1,10-フェナントロリン、1,2-ジアミノエタン、N,N'-ジメチルエチレンジアミン、N,N'-ジメチルシクロヘキサン-1,2-ジアミン等が挙げられる。配位子の使用量は、化合物(1-c)1当量に対して、0.005~20当量で用いることができ、0.01~5当量が好ましい。

[0060] 塩基としては、例えばピリジン、2,6-ルチジン、トリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、トリブチルアミン、4-(ジメチルアミノ)ピリジン、1,4-ジアザビシクロ[2.2.2]オクタン(DABCO)、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセン(DBU)又は1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]-5-ノネン(DBN)等の有機塩基類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水素化ナトリウム、炭酸水素ナトリ

ウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等の無機塩基類が挙げられる。塩基の使用量は、化合物（１－ｃ）１当量に対して０．１～１００当量で用いることができ、１～２０当量が好ましい。

反応温度は、－８０℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、０℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

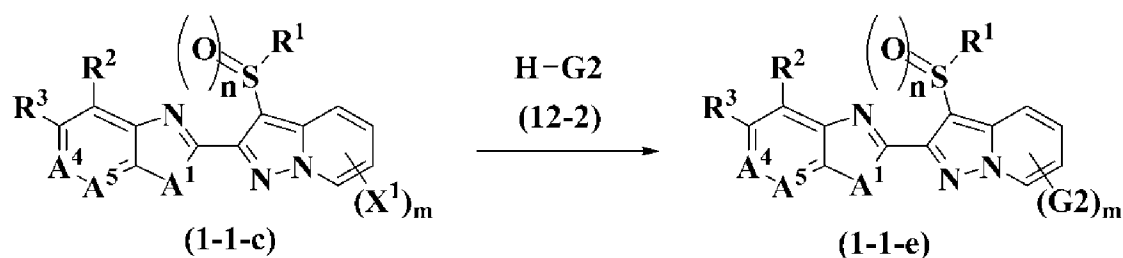
反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常５分～１００時間で任意に設定でき、１～４８時間が好ましい。

基質の使用量は、化合物（１２－１）及び化合物（１２－２）は化合物（１－ｃ）１当量に対して、０．５～５０当量で用いることができ、１～２０当量が好ましい。

化合物（１２－１）及び化合物（１２－２）の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

[0061] 本製造法を用いることにより、例えば、化合物（１－１－ｃ）から化合物（１－１－ｅ）を製造できる。

[化17]

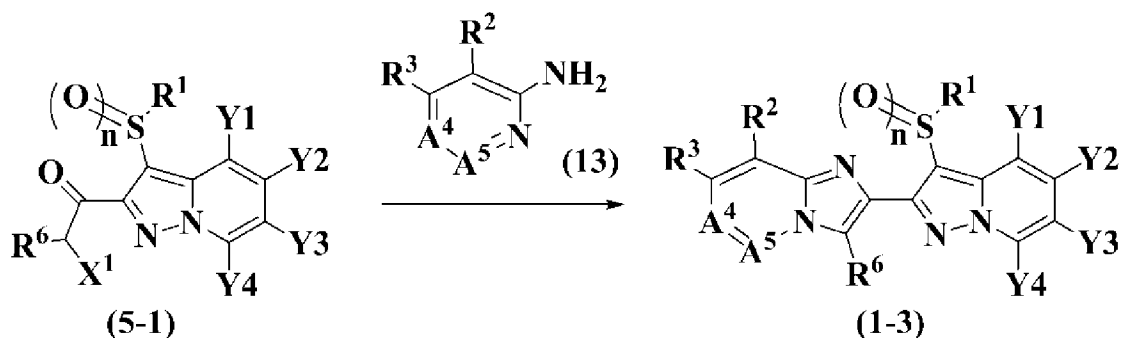


（式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 A^1 、 A^4 、 A^5 、 G^2 、 X^1 、 n 及び m は前記と同じ意味を表す。）

[0062] [製造法５]

本発明化合物（１）のうち、化合物（１－３）は、例えば、化合物（１３）と、化合物（５－１）とを、国際公開第２０１６／１２９６８４号に記載の合成例１１に準じて反応させることにより製造できる。

[化18]



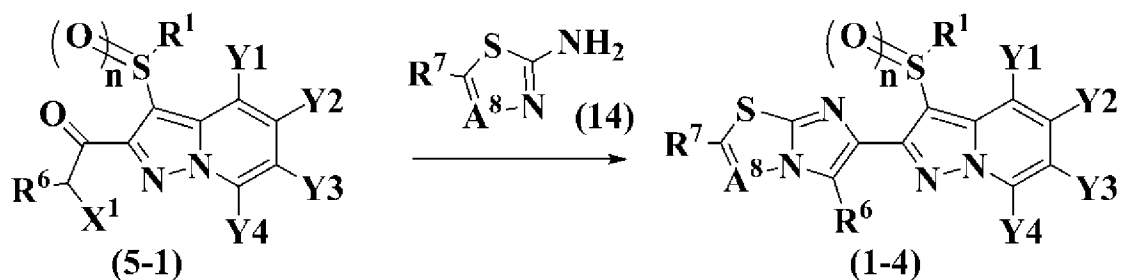
(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^6 、 A^4 、 A^5 、 $Y1$ 、 $Y2$ 、 $Y3$ 、 $Y4$ 、 X^1 及び n は前記と同じ意味を表す。)

化合物(13)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。また、それ以外のものも公知の方法、例えば国際公開第2016/129684号等に記載の反応条件に準じて合成できる。

[0063] [製造法6]

本発明化合物(1)のうち、化合物(1-4)は、例えば、化合物(14)と、化合物(5-1)とを、国際公開第2016/129684号に記載の合成例14に準じて反応させることにより製造できる。

[化19]



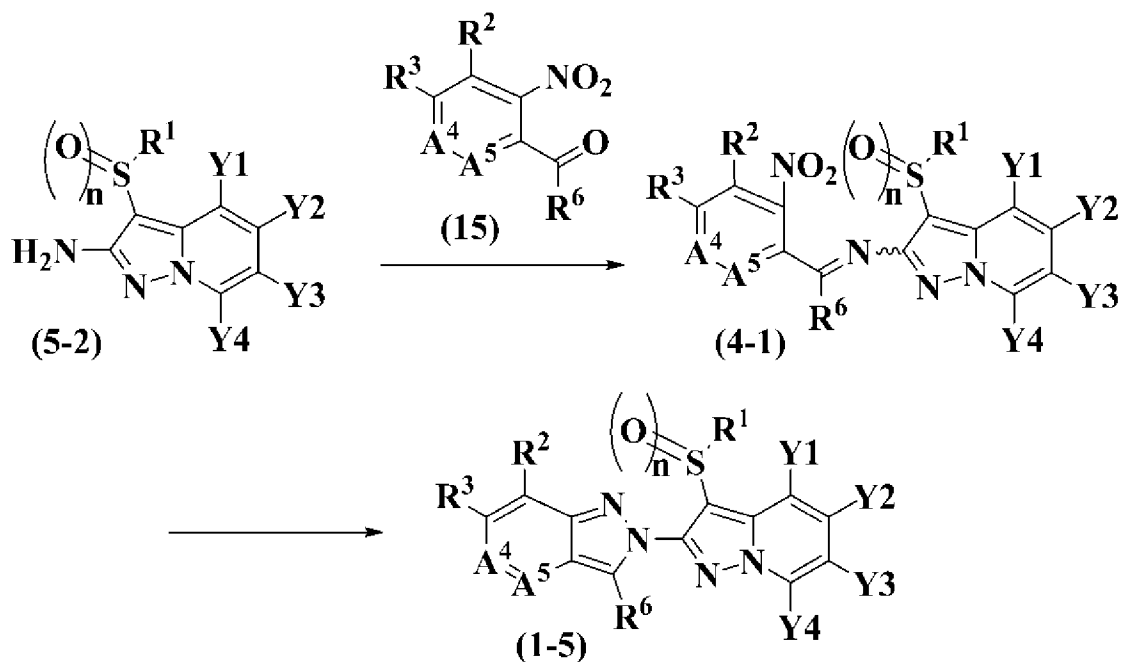
(式中、 R^1 、 R^6 、 R^7 、 A^8 、 $Y1$ 、 $Y2$ 、 $Y3$ 、 $Y4$ 、 X^1 及び n は前記と同じ意味を表す。)

化合物(14)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。また、それ以外のものも公知の方法、例えばジャーナル・オブ・フルオリン・ケミストリー (Journal of Fluorine Chemistry), 2012年, 第133巻, p. 115等に記載の反応条件に準じて合成できる。

[0064] [製造法 7]

本発明化合物（１）のうち、化合物（１－５）は、例えば、化合物（５－２）より、国際公開第２０１６／１２９６８４号に記載の合成例１７に準じて反応させることにより、製造できる。

[化20]



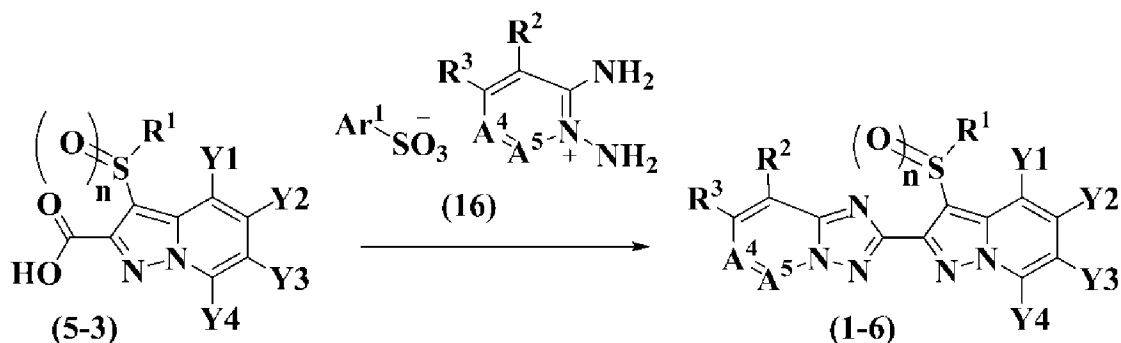
（式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^6 、 A^4 、 A^5 、 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 、 Y_4 及び n は前記と同じ意味を表す。）

化合物（１５）の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。また、それ以外のものも公知の方法、例えば国際公開第２０１６／１２９６８４号等に記載の製造法に準じて合成できる。

[0065] [製造法 8]

本発明化合物（１）のうち、化合物（１－６）は、例えば、化合物（５－３）と、化合物（１６）とを反応させることにより製造できる。

[化21]



(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 A^4 、 A^5 、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 、 Y^4 及び n は前記と同じ意味を表し、 Ar^1 はフェニル基、 p -トリル基、2, 4, 6-トリメチルフェニル基等の無置換又は置換ベンゼンを表す。)

化合物 (1-6) は、化合物 (5-3) と化合物 (16) とを、溶媒中又は無溶媒で、脱水縮合剤存在下、場合によっては塩基存在下、反応させることにより製造できる。

[0066] 溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒 A」が挙げられる。

脱水縮合剤としては、例えば 1H-ベンゾトリアゾール-1-イルオキシトリス (ジメチルアミノ) ホスホニウムヘキサフルオロホスファート、N, N'-ジシクロヘキシルカルボジイミド、1-エチル-3-(3-ジメチルアミノプロピル) カルボジイミド塩酸塩等が挙げられる。脱水縮合剤の使用量は、化合物 (16) 1 当量に対して、0.1~100 当量で用いることができ、1~20 当量が好ましい。

[0067] 該反応は、塩基の存在下にて行うことができる。塩基としては、例えば、ピリジン、トリエチルアミン、4-(ジメチルアミノ) ピリジン等の有機塩基類、水酸化ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等の無機塩基類が挙げられる。塩基の使用量は、化合物 (16) 1 当量に対して、0.1~100 当量で用いることができ、1~20 当量が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常 5 分~100 時間で任意に設定でき、1~48 時間が好ましい。

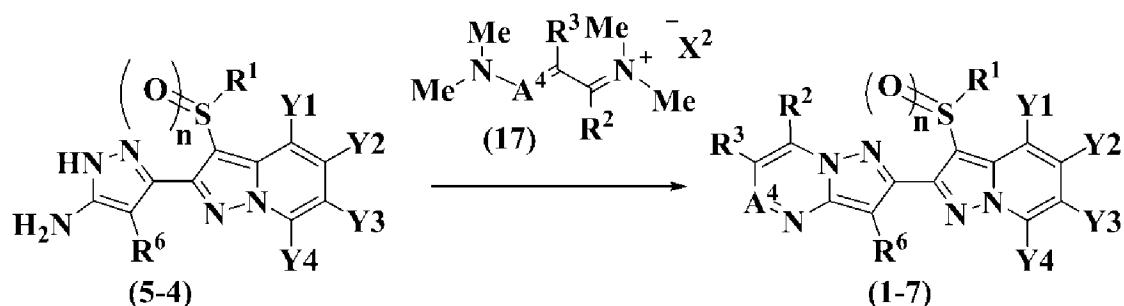
基質の使用量は、化合物（５－３）は、化合物（１６）１当量に対して、０．５～５０当量で用いることができ、１～２０当量が好ましい。

化合物（１６）の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。また、それ以外のものも、例えば、国際公開第２００９／１５７４２３号、国際公開第２０１４／１３３０４６号、国際公開第２０１５／０００７１５号等に記載の方法に準じて合成できる。

[0068] [製造法９]

本発明化合物（１）のうち、化合物（１－７）は、例えば、化合物（１７）と、化合物（５－４）とを反応させることにより製造できる。

[化22]



（式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^6 、 A^4 、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 、 Y^4 及び n は前記と同じ意味を表し、 X^2 は塩素原子、 PF_6 又は ClO_4 を表す。）

化合物（１－７）は、化合物（１７）と化合物（５－４）とを、溶媒中又は無溶媒で、場合によっては塩基存在下、反応させることにより製造できる。

[0069] 溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒Ａ」が挙げられる。

該反応は塩基の存在下に行うことができる。塩基としては、例えば、ピリジン、トリエチルアミン、４－（ジメチルアミノ）ピリジン等の有機塩基類、水酸化ナトリウム、水素化ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等の無機塩基類、ナトリウムメトキシド、カリウム t ert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類が挙げられる。塩基の使用量は、化合物（１７）１当量に対して０．１～１００当量で用いることができ、１～２０当量が好

ましい。

[0070] 反応温度は、 -80°C から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、 0°C から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分～100時間で任意に設定でき、1～48時間が好ましい。

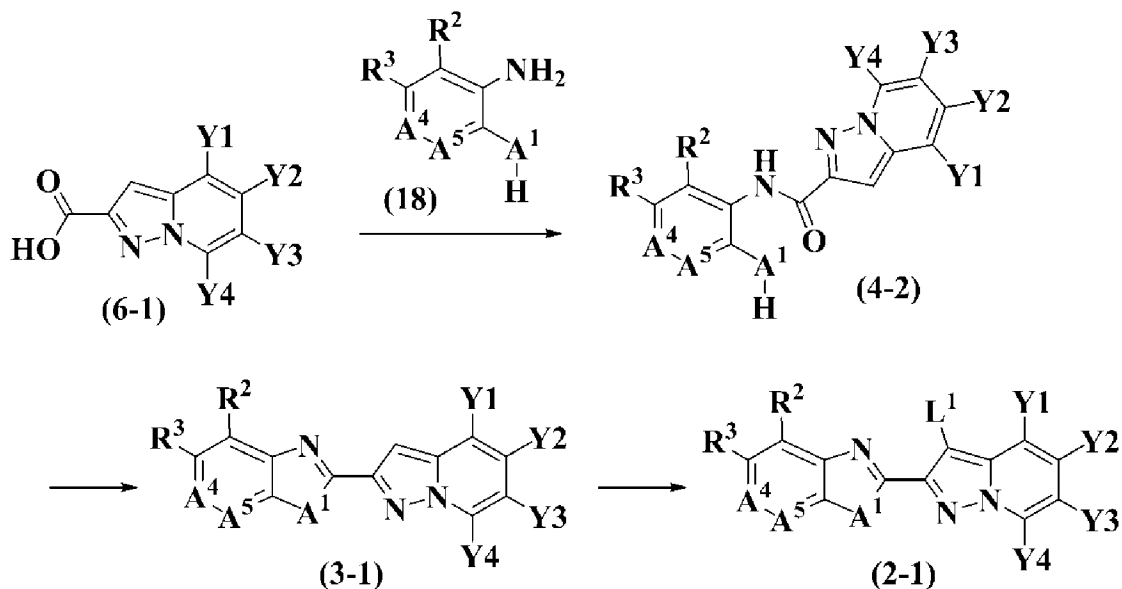
基質の使用量は、化合物(5-4)は化合物(17)1当量に対して、0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

化合物(17)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

[0071] 製造法2に用いられる化合物(3-1)及び製造法3に用いられる化合物(2-1)は、例えば、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造できる。

[反応式1]

[化23]



(式中、 R^2 、 R^3 、 A^1 、 A^4 、 A^5 、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 、 Y^4 及び L^1 は前記と同じ意味を表す。)

[0072] 工程1：化合物(4-2)は、例えば、化合物(18)と、化合物(6-1)とを、溶媒中又は無溶媒で、脱水縮合剤存在下、場合によっては塩基存

在下、場合によっては触媒存在下、反応させることにより製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒A」が挙げられる。

[0073] 脱水縮合剤としては、例えば1H-ベンゾトリアゾール-1-イルオキシトリス(ジメチルアミノ)ホスホニウムヘキサフルオロホスファート、N,N'-ジシクロヘキシルカルボジイミド、1-エチル-3-(3-ジメチルアミノプロピル)カルボジイミド塩酸塩、2-クロロ-1-メチルピリジニウムヨード、O-(7-アザベンゾトリアゾール-1-イル)-N,N,N',N'-テトラメチルウロニウムヘキサフルオロリン酸塩が挙げられる。脱水縮合剤の使用量は、化合物(18)1当量に対して0.1~100当量で用いることができ、1~20当量が好ましい。

該反応は塩基の存在下に行うことができる。塩基としては、例えばピリジン、2,6-ルチジン、トリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、トリブチルアミン、4-(ジメチルアミノ)ピリジン、1,4-ジアザビシクロ[2.2.2]オクタン(DABCO)、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセン(DBU)又は1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]-5-ノネン(DBN)等の有機塩基類、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水素化ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム等の無機塩基類が挙げられる。塩基の使用量は、化合物(18)1当量に対して0.1~100当量で用いることができ、1~20当量が好ましい。

[0074] 該反応は触媒の存在下に行うことができる。触媒としては、例えば1-ヒドロキシベンゾトリアゾール、4-(ジメチルアミノ)ピリジンが挙げられる。触媒の使用量は、化合物(18)1当量に対して0.005~20当量で用いることができ、0.1~5当量が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分~100時間で任意に設定でき、1~48時間が好ましい。

基質の使用量は、化合物(6-1)は化合物(18)1当量に対して、0

、5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

化合物(18)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

[0075] 化合物(6-1)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。また、それ以外のものも公知の方法、例えば国際公開第2009/095253号、国際公開第2011/015343号等に記載の反応条件に準じて合成できる。

工程2：化合物(3-1)は、例えば、化合物(4-2)を、溶媒中又は無溶媒で、場合によっては酸又は脱水縮合剤存在下、反応させることにより製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、メタノール、エタノール等の低級アルコール類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン等のエーテル類、ベンゼン、クロロベンゼン、ブromoベンゼン、キシレン、トルエン等の芳香族炭化水素類、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素類、ジクロロメタン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、アセトニトリル、プロピオニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、N,N'-ジメチルイミダゾリジノン等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、ピリジン等の含窒素芳香族化合物類又はこれらの混合溶媒等が挙げられる。以下、ここで例示した溶媒、それらの混合溶媒を総称して「溶媒B」という。

該反応は酸の存在下に行うことができる。酸としては、例えばパラトルエンスルホン酸、ポリリン酸、酢酸、プロピオン酸が挙げられる。酸の使用量は、化合物(4-2)1当量に対して0.1～1000当量で用いることができ、1～500当量が好ましい。

[0076] 該反応は脱水縮合剤の存在下に行うことができる。脱水縮合剤としては、オキシ塩化リン、無水酢酸が挙げられる。脱水縮合剤の使用量は、化合物(

4-2) 1当量に対して0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

反応温度は、-80℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、0℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分～100時間で任意に設定でき、1～48時間の範囲が好ましい。

工程3：化合物(2-1)は、例えば、化合物(3-1)とハロゲン化剤とを、溶媒中又は無溶媒で反応させることにより製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒A」が挙げられる。

[0077] ハロゲン化剤としては、塩素、臭素、ヨウ素、N-クロロスクシンイミド、N-ブロモスクシンイミド、N-ヨードスクシンイミド、1,3-ジクロロ-5,5-ジメチルヒダントイン、1,3-ジブromo-5,5-ジメチルヒダントイン、1,3-ジヨード-5,5-ジメチルヒダントイン等が挙げられる。ハロゲン化剤の使用量は、化合物(3-1)1当量に対して0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

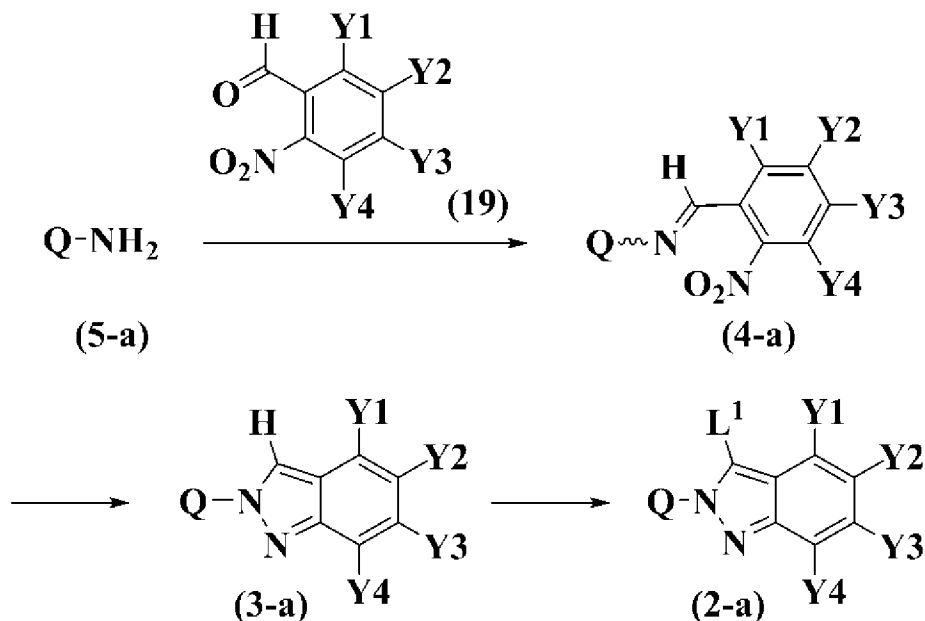
反応温度は、-80℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、0℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分～100時間で任意に設定でき、1～48時間が好ましい。

[0078] 製造法3に用いられる化合物(2-2)を含む化合物(2-a)は、例えば、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造できる。

[反応式2]

[化24]



(式中、Q、Y₁、Y₂、Y₃、Y₄ 及び L¹ は前記と同じ意味を表す。)

工程 1：化合物 (4-a) は、例えば、化合物 (5-a) と化合物 (19) とを、溶媒中又は無溶媒で、場合によっては酸存在下、反応させることにより、製造できる。

[0079] 溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒 B」が挙げられる。

該反応は酸の存在下に行うことができる。酸としては、例えばパラトルエンスルホン酸、酢酸、ギ酸等が挙げられる。酸の使用量は、化合物 (5-a) 1 当量に対して 0.1～1000 当量で用いることができ、1～20 当量が好ましい。

[0080] 反応温度は、-80℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、0℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常 5 分～100 時間で任意に設定でき、1～48 時間が好ましい。

基質の使用量は、化合物 (19) は化合物 (5-a) 1 当量に対して、0.5～50 当量で用いることができ、1～20 当量が好ましい。

化合物 (5-a) の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入

手できる。また、それ以外のものも、例えば、国際公開第2002/081478号、国際公開第2004/098494号、国際公開第2009/136663号、ヨーロピアン・ジャーナル・オブ・メディシナル・ケミストリー (European Journal of Medicinal Chemistry) , 2014年, 第87巻, p. 386、国際公開第2011/075615号、国際公開第2011/090127号、国際公開第2015/114452号等に記載の方法に準じて合成できる。

化合物(19)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

[0081] 工程2: 化合物(3-a)は、例えば、化合物(4-a)と還元剤とを、溶媒中又は無溶媒で反応させることにより、製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒B」が挙げられる。

還元剤としては、トリメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリエチルホスファイト等が挙げられる。還元剤の使用量は、化合物(4-a) 1当量に対して0.5~50当量で用いることができ、1~20当量が好ましい。

[0082] 反応温度は、-80℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定ことができ、0℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分~100時間で任意に設定でき、1~48時間が好ましい。

工程3: 化合物(2-a)は、例えば、化合物(3-a)とハロゲン化剤とを、溶媒中又は無溶媒で反応させることにより、製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒A」が挙げられる。

[0083] ハロゲン化剤としては、塩素、臭素、ヨウ素、N-クロロスクシンイミド、N-ブロモスクシンイミド、N-ヨードスクシンイミド、1,3-ジクロロ-5,5-ジメチルヒダントイン、1,3-ジブロモ-5,5-ジメチル

ヒダントイン、1, 3-ジヨード-5, 5-ジメチルヒダントイン等が挙げられる。ハロゲン化剤の使用量は、化合物(3-a) 1当量に対して0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

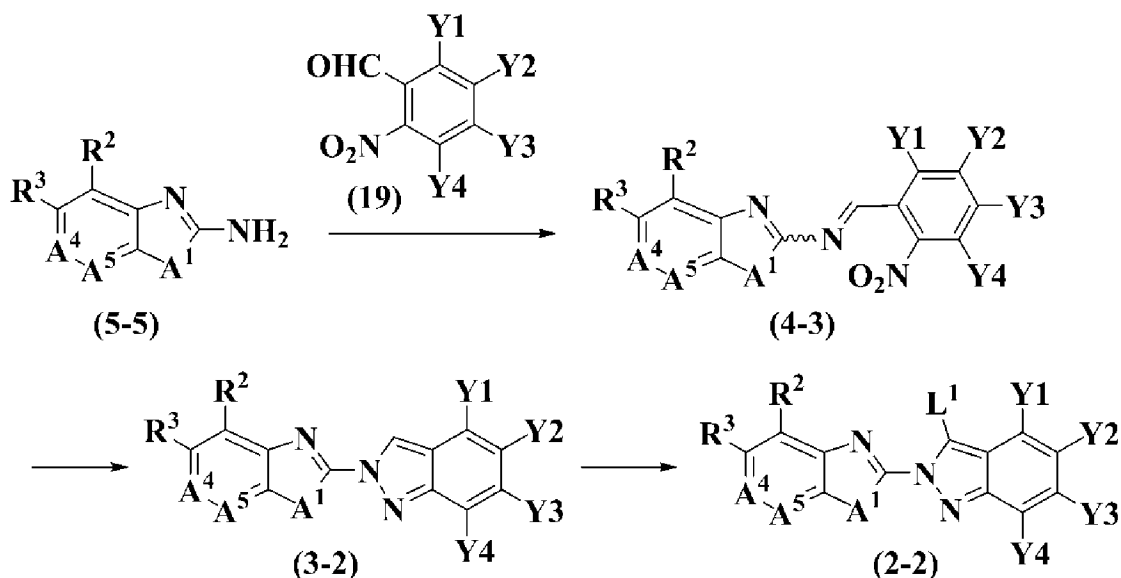
反応温度は、-80℃から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、0℃から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分～100時間で任意に設定でき、1～48時間が好ましい。

反応式2で表される製造法を用いることにより、例えば、製造法3に用いられる化合物(2-2)を製造できる。

[0084] [反応式3]

[化25]

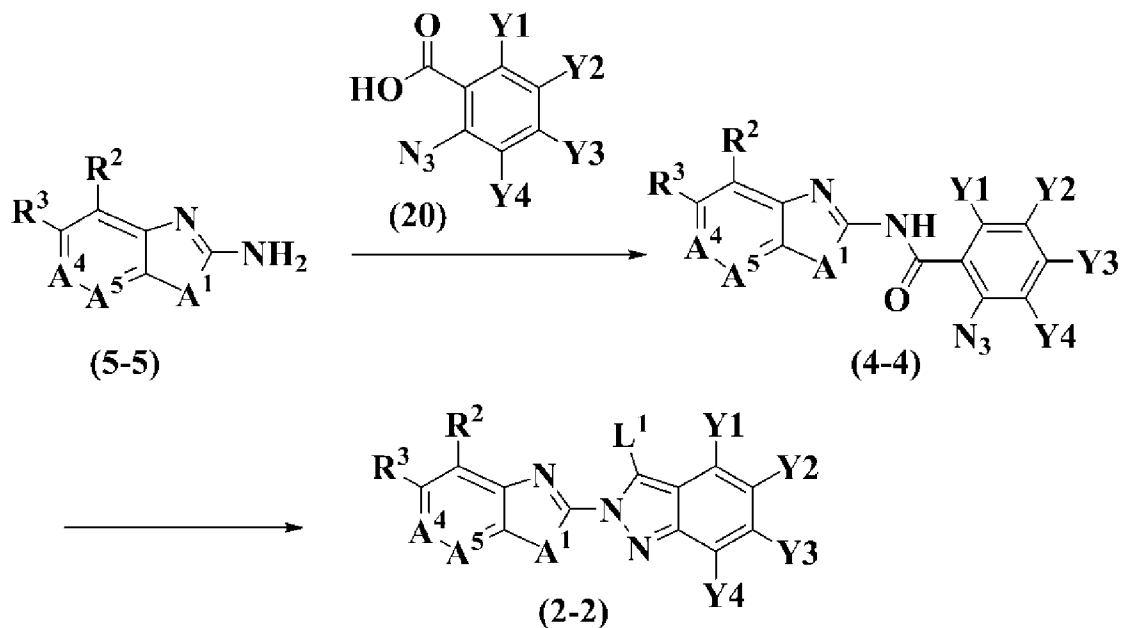


(式中、R²、R³、A¹、A⁴、A⁵、Y¹、Y²、Y³、Y⁴及びL¹は前記と同じ意味を表す。)

[0085] 製造法3に用いられる化合物(2-2)は、例えば、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造できる。

[反応式4]

[化26]



(式中、 R^2 、 R^3 、 A^1 、 A^4 、 A^5 、 $Y1$ 、 $Y2$ 、 $Y3$ 、 $Y4$ 及び L^1 は前記と同じ意味を表す。)

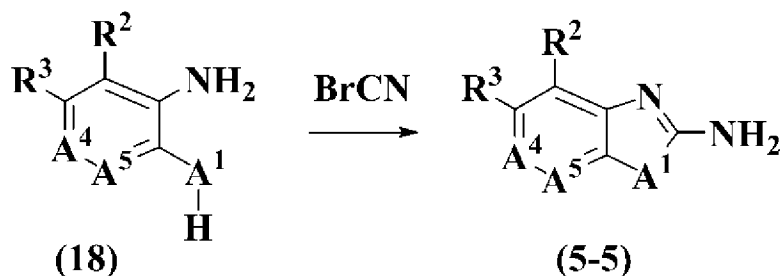
工程1：化合物(5-5)を、反応式1の工程1に記載の方法に準じて、化合物(20)と脱水縮合反応させることにより、化合物(4-4)を製造できる。化合物(20)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

工程2：化合物(4-4)を、公知の方法、例えば、国際公開第2011/153588号等に記載の方法に準じて、ハロゲン化剤と反応させることにより、化合物(2-2)を製造できる。

反応式3及び反応式4に用いられる化合物(5-5)は、例えば、下記の反応式で示される製造法にしたがって製造できる。

[0086] [反応式5]

[化27]



(式中、 R^2 、 R^3 、 A^1 、 A^4 及び A^5 は前記と同じ意味を表す。)

化合物(5-5)は、例えば、化合物(18)と臭化シアンとを、溶媒中又は無溶媒で反応させることにより、製造できる。

溶媒を用いる場合、溶媒としては反応に不活性であればよく、例えば、上記した「溶媒B」が挙げられる。

[0087] 反応温度は、 -80°C から反応混合物の還流温度まで任意の温度で設定することができ、 0°C から反応混合物の還流温度の範囲が好ましい。

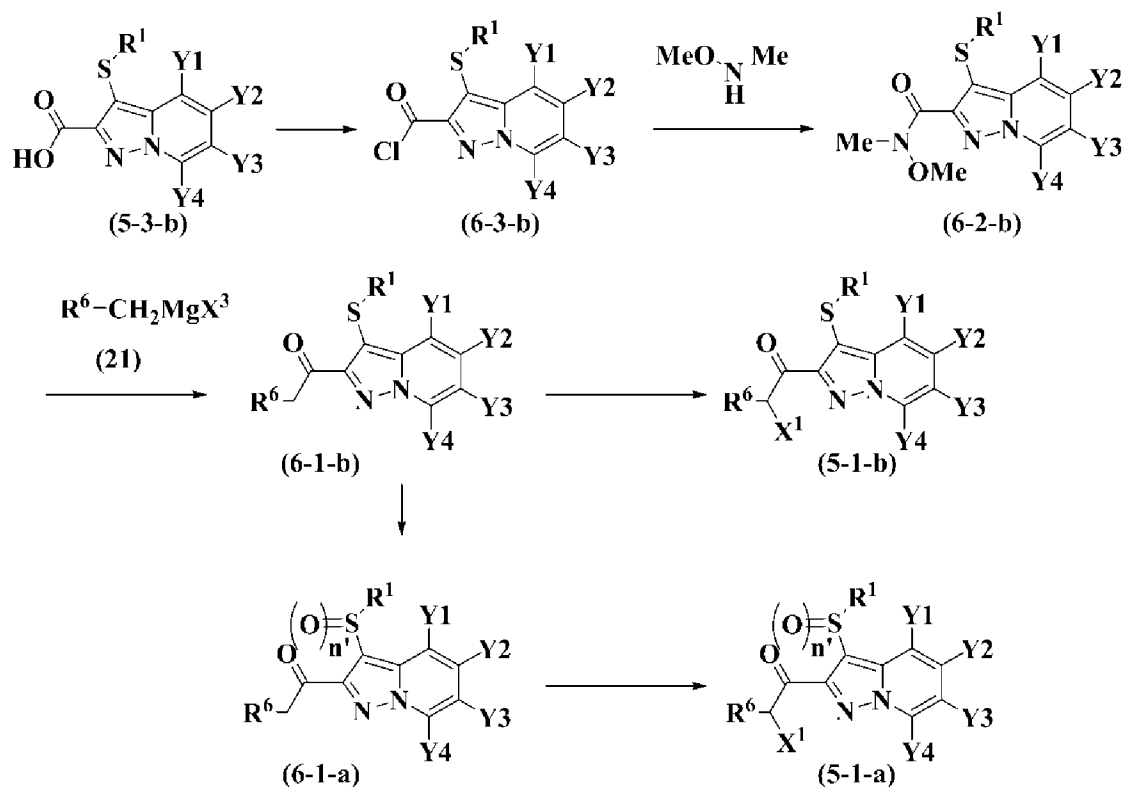
反応時間は、反応基質の濃度、反応温度によって変化するが、通常5分～100時間で任意に設定でき、1～48時間が好ましい。

基質の使用量は、臭化シアンは化合物(18)1当量に対して、0.5～50当量で用いることができ、1～20当量が好ましい。

製造法5及び製造法6に用いられる化合物(5-1)は、例えば、化合物(5-3-b)を出発原料として用い、国際公開第2016/129684号に記載の反応式1に準じて、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造できる。尚、化合物(5-1-a)は化合物(5-1)のうちnが1又は2の整数を表す化合物であり、化合物(5-1-b)は化合物(5-1)のうちnが0の整数を表す化合物である。

[0088] [反応式6]

[化28]

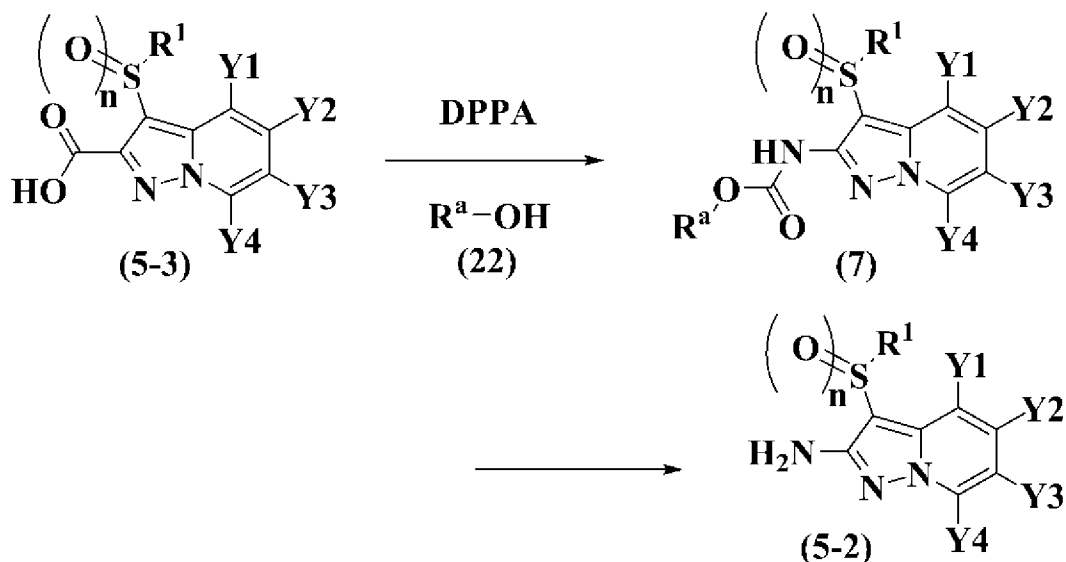


(式中、 R^1 、 R^6 、 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 、 Y_4 、 X^1 及び n' は前記と同じ意味を表し、 X^3 は塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を表し、 n' は1又は2の整数を表す。)

[0089] 製造法7に用いられる化合物(5-2)は、例えば、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造ができる。

[反応式7]

[化29]



(式中、 R^1 、 $Y1$ 、 $Y2$ 、 $Y3$ 、 $Y4$ 、 n 及び R^a は前記と同じ意味を表す。)

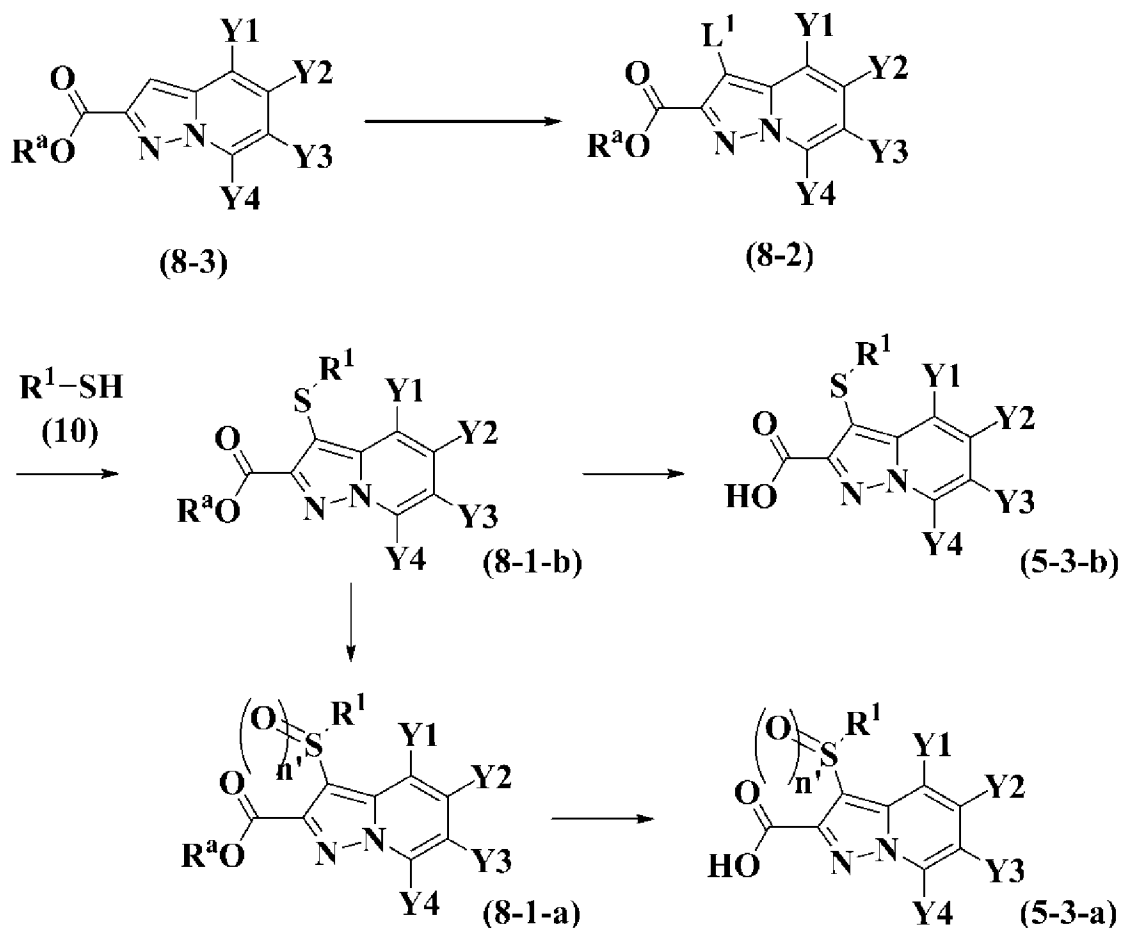
[0090] 工程1：化合物(5-3)を、文献既知の公知の方法、例えば、国際公開第2012/174312号、国際公開第2003/018021号等に記載の方法に準じて、ジフェニルホスホリルアジド(DPPA)及び化合物(22)と反応させることにより、化合物(7)を製造できる。化合物(22)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。

工程2：化合物(7)を、公知の方法、例えば、国際公開第2012/174312号、国際公開第2003/018021号等に記載の方法に準じて、酸と反応させることにより、化合物(5-2)を製造できる。

製造法8及び反応式7に用いられる化合物(5-3)は、例えば、化合物(8-3)を出発原料として用い、国際公開第2016/129684号に記載の反応式1に準じて、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造できる。尚、化合物(5-3-a)は化合物(5-3)のうち n が1又は2の整数を表す化合物であり、化合物(5-3-b)は化合物(5-3)のうち n が0の整数を表す化合物である。

[0091] [反応式8]

[化30]



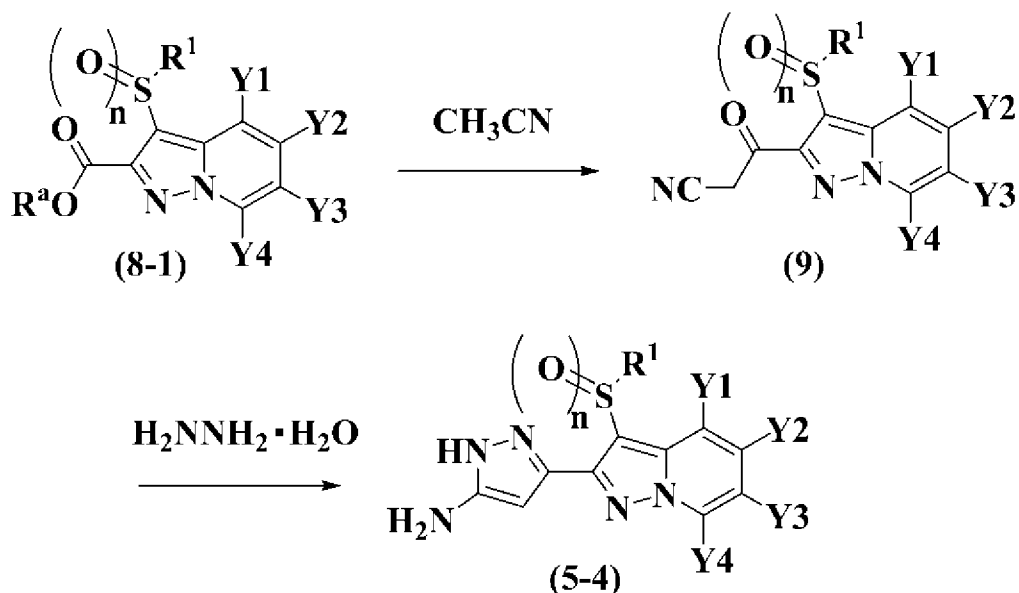
(式中、R¹、Y1、Y2、Y3、Y4、L¹、R^a及びn' は前記と同じ意味を表す。)

化合物(8-3)の或るものは公知化合物であり、一部は市販品として入手できる。また、それ以外のものも公知の方法、例えば、国際公開第2011/050284号等に記載の反応条件に準じて合成できる。

[0092] 製造法9に用いられる化合物(5-4)は、例えば、下記の反応式で示される製造ルートにしたがって製造できる。

[反応式9]

[化31]



(式中、 R^1 、 $Y1$ 、 $Y2$ 、 $Y3$ 、 $Y4$ 、 R^a 及び n は前記と同じ意味を表す。)

[0093] 工程1：化合物(8-1)を、公知の方法、例えば、オーガニック・レターズ (Organic Letters), 2009年, 第11巻, p. 2417に記載の方法に準じて、アセトニトリルと反応させることにより、化合物(9)を製造できる。化合物(8-1)は、反応式8に記載の製造法に準じて製造できる。

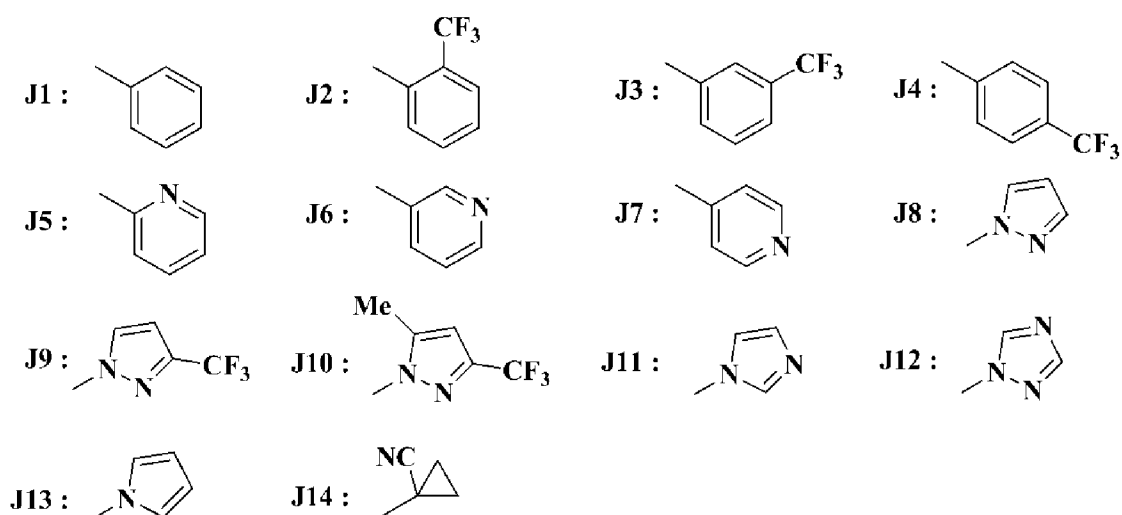
工程2：化合物(9)を公知の方法、例えば、国際公開第2011/105628号、バイオオーガニック・アンド・メディシナル・ケミストリー・レターズ (Bioorganic & Medicinal Chemistry Letters), 2010年, 第20巻, p. 922等に記載の方法に準じて、ヒドラジーン水和物と反応させることにより、化合物(5-4)を製造できる。

[0094] 製造法1～9及び反応式1～9の反応において、反応終了後の反応混合物は、直接濃縮又は有機溶媒に溶解し、水洗後濃縮又は氷水に投入、有機溶媒抽出後濃縮といった通常の後処理を行ない、目的の本発明化合物を得ることができる。また、精製の必要が生じたときには、再結晶、カラムクロマトグラフ、薄層クロマトグラフ、液体クロマトグラフ分取等の任意の精製方法に

よって分離、精製できる。

上記の方法を用いて製造できる本発明に包含される式（１）で表される縮合複素環化合物としては、下記第１表に示す化合物が挙げられる。但し、下記第１表に示す化合物は例示のためのものであって、本発明に包含される化合物はこれらのみに限定されるものではない。表中Ｊ１、Ｊ２、Ｊ３、Ｊ４、Ｊ５、Ｊ６、Ｊ７、Ｊ８、Ｊ９、Ｊ１０、Ｊ１１、Ｊ１２、Ｊ１３及びＪ１４は、以下の環構造を表す。

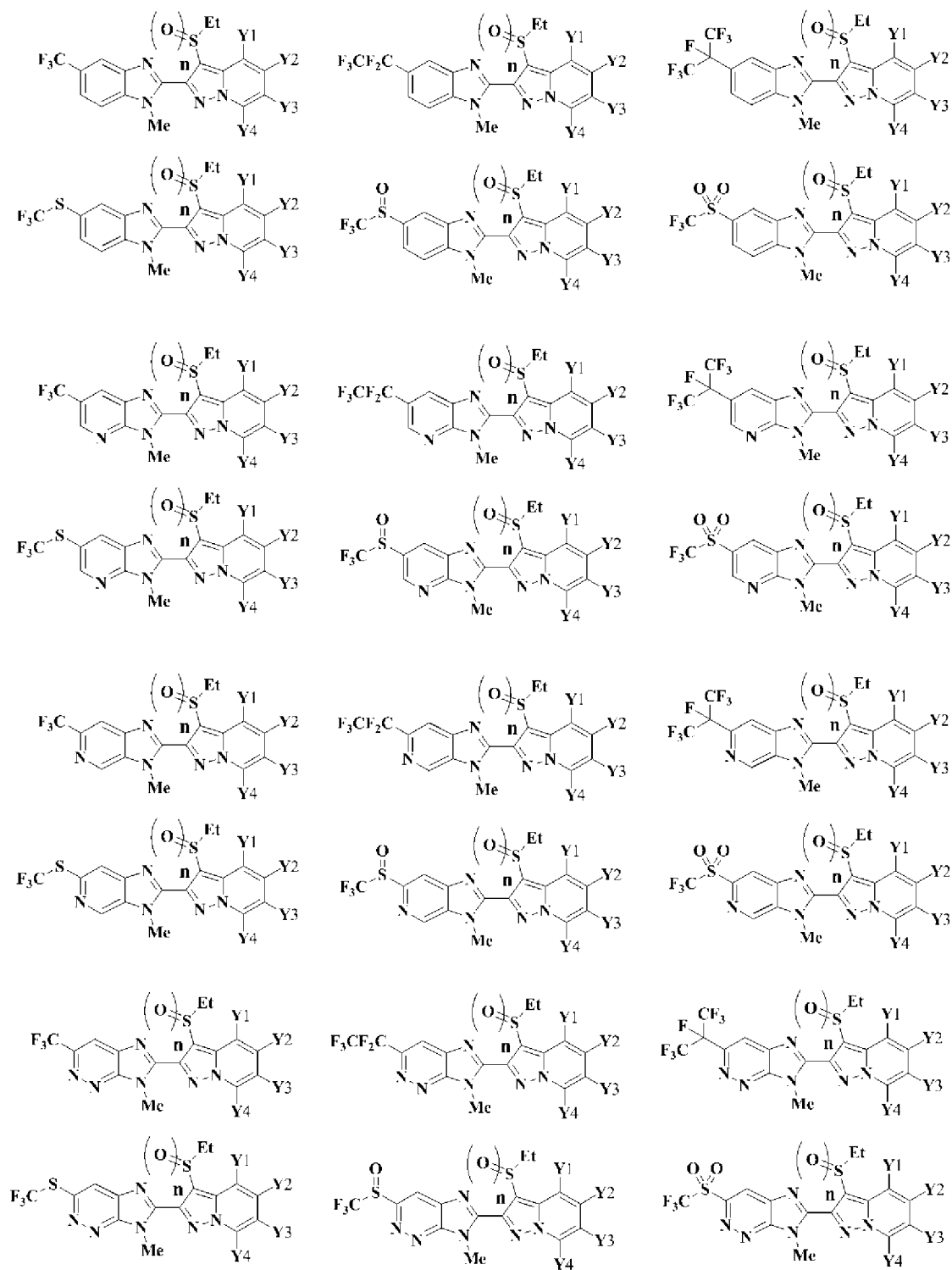
[0095] [化32]



また、表中、Meはメチル基を表し、Etはエチル基を表す。

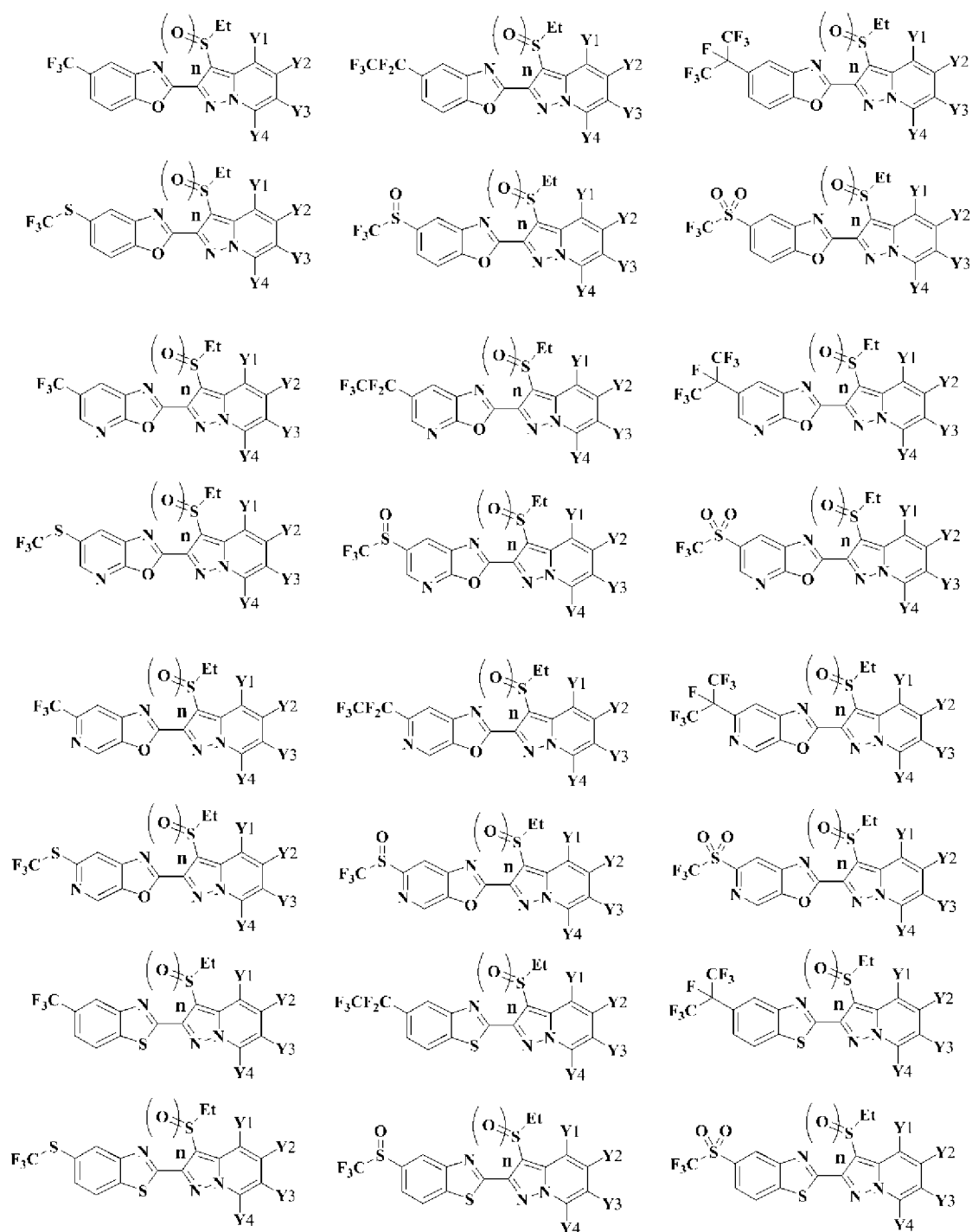
[0096] [第１表]

[化33]



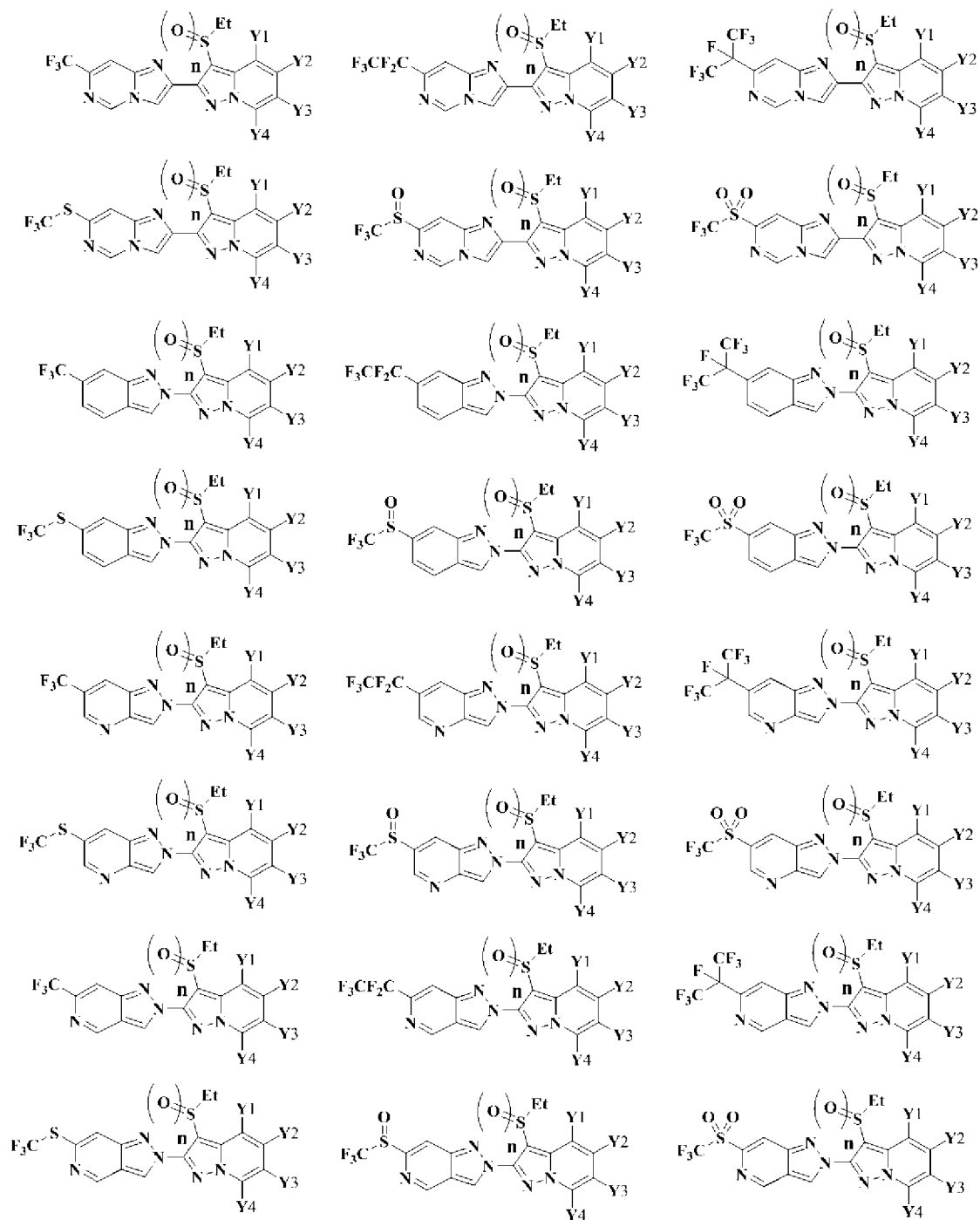
[0097]

[化34]



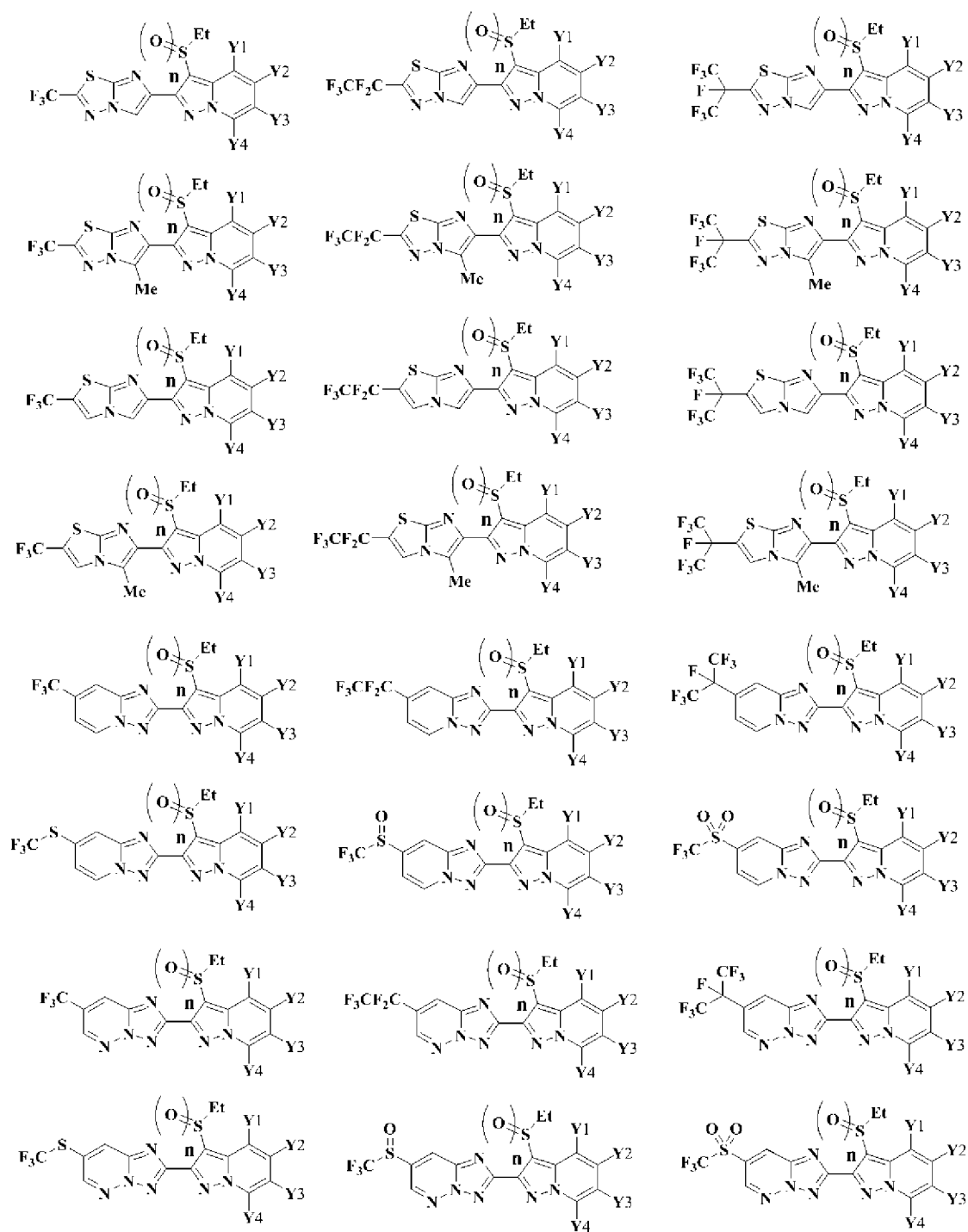
[0098]

[化36]



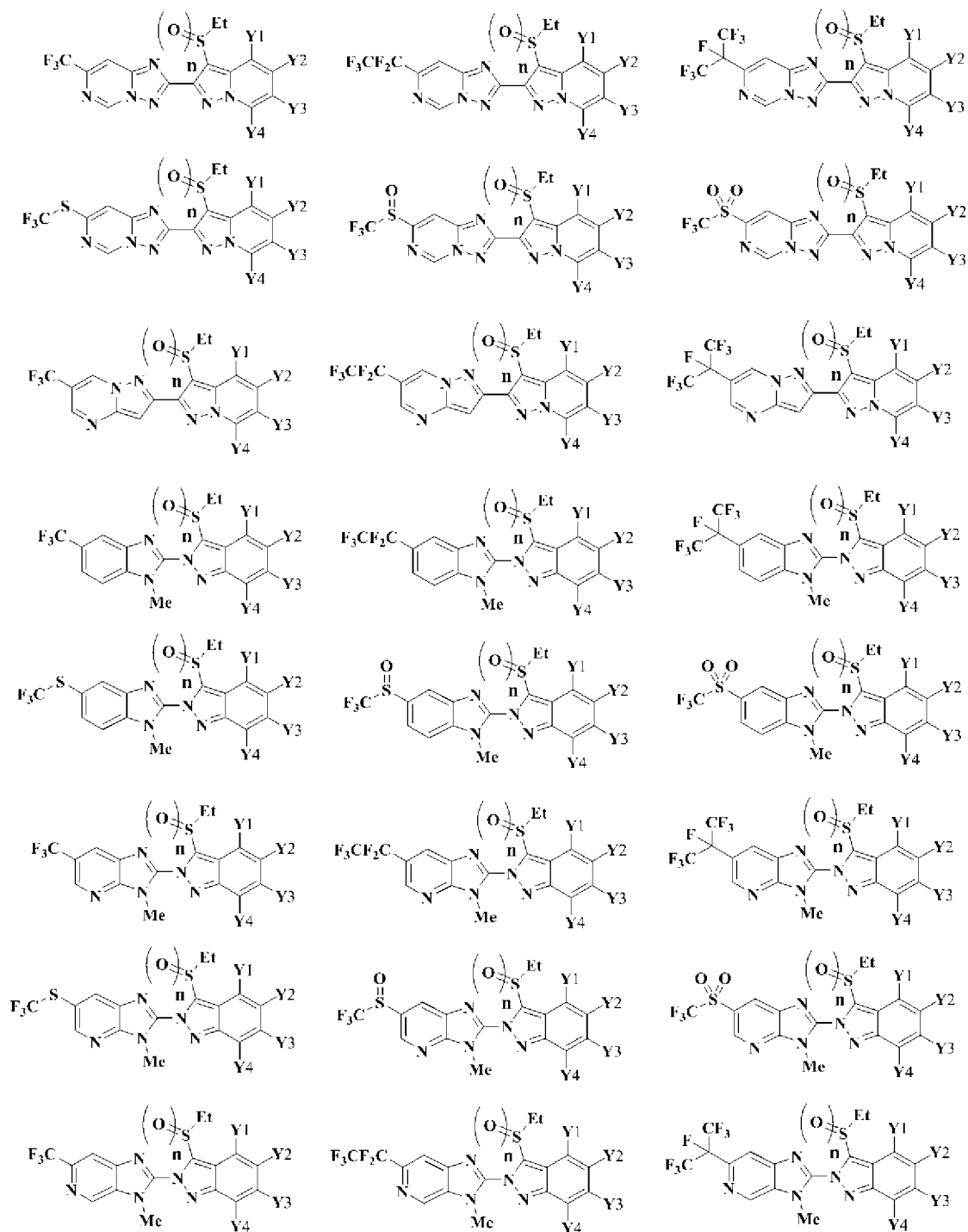
[0100]

[化37]



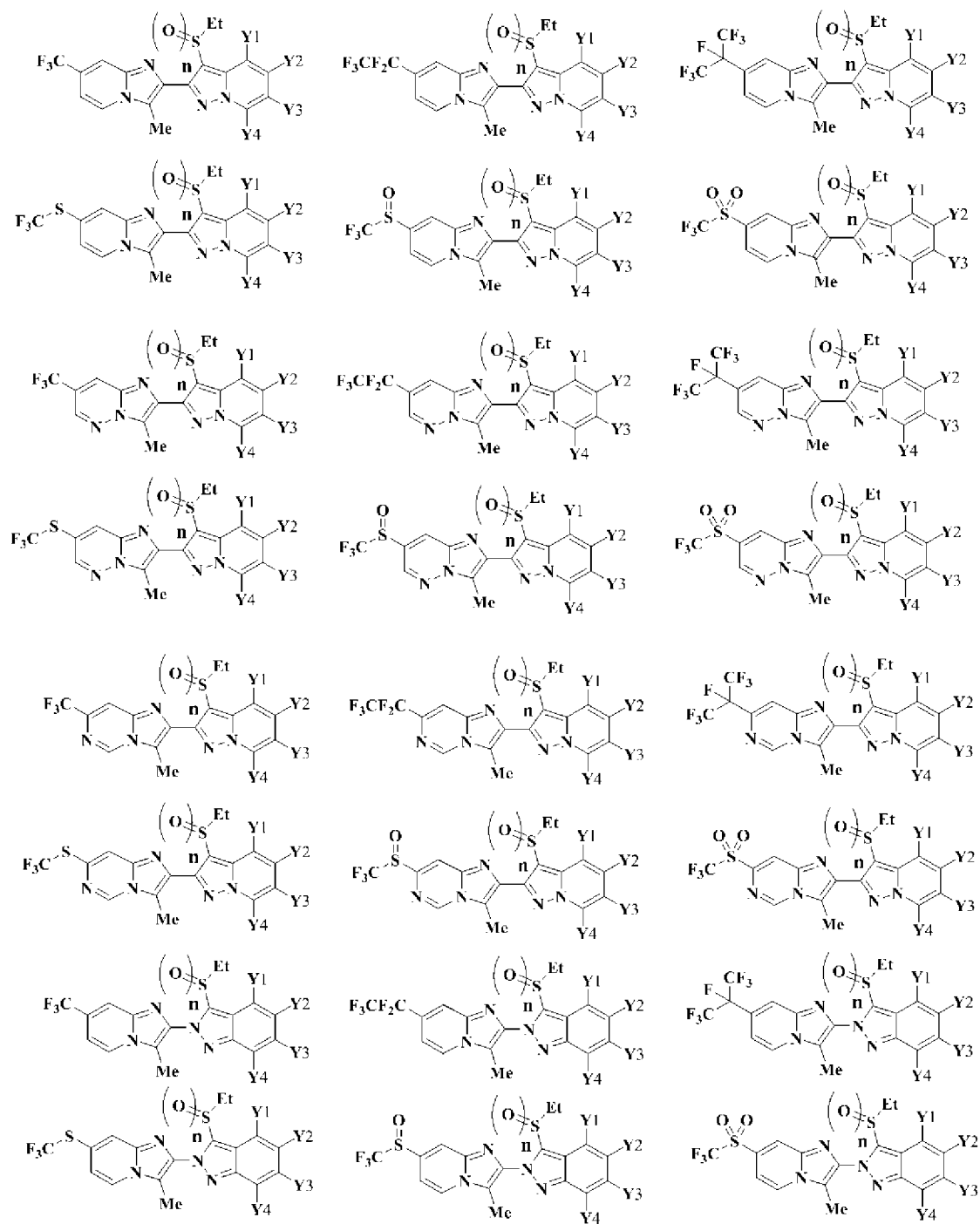
[0101]

[化38]



[0102]

[化40]



[0104]

[表1]

[第1表] の続き

Y1	Y2	Y3	Y4	n	Y1	Y2	Y3	Y4	n
H	H	H	H	0	H	CF ₃	H	H	0
H	H	H	H	1	H	CF ₃	H	H	1
H	H	H	H	2	H	CF ₃	H	H	2
F	H	H	H	0	H	CF ₂ CF ₃	H	H	0
F	H	H	H	1	H	CF ₂ CF ₃	H	H	1
F	H	H	H	2	H	CF ₂ CF ₃	H	H	2
Cl	H	H	H	0	H	CF(CF ₃) ₂	H	H	0
Cl	H	H	H	1	H	CF(CF ₃) ₂	H	H	1
Cl	H	H	H	2	H	CF(CF ₃) ₂	H	H	2
Br	H	H	H	0	H	SMe	H	H	0
Br	H	H	H	1	H	SMe	H	H	1
Br	H	H	H	2	H	SMe	H	H	2
I	H	H	H	0	H	SOMe	H	H	0
I	H	H	H	1	H	SOMe	H	H	1
I	H	H	H	2	H	SOMe	H	H	2
Me	H	H	H	0	H	SO ₂ Me	H	H	0
Me	H	H	H	1	H	SO ₂ Me	H	H	1
Me	H	H	H	2	H	SO ₂ Me	H	H	2
CF ₃	H	H	H	0	H	OMe	H	H	0
CF ₃	H	H	H	1	H	OMe	H	H	1
CF ₃	H	H	H	2	H	OMe	H	H	2
H	F	H	H	0	H	OCF ₃	H	H	0
H	F	H	H	1	H	OCF ₃	H	H	1
H	F	H	H	2	H	OCF ₃	H	H	2
H	Cl	H	H	0	H	NO ₂	H	H	0
H	Cl	H	H	1	H	NO ₂	H	H	1
H	Cl	H	H	2	H	NO ₂	H	H	2
H	Br	H	H	0	H	NH ₂	H	H	0
H	Br	H	H	1	H	NH ₂	H	H	1
H	Br	H	H	2	H	NH ₂	H	H	2
H	I	H	H	0	H	CN	H	H	0
H	I	H	H	1	H	CN	H	H	1
H	I	H	H	2	H	CN	H	H	2
H	Me	H	H	0	H	SCF ₃	H	H	0
H	Me	H	H	1	H	SCF ₃	H	H	1
H	Me	H	H	2	H	SCF ₃	H	H	2
H	SOCF ₃	H	H	0	H	H	SO ₂ Me	H	0
H	SOCF ₃	H	H	1	H	H	SO ₂ Me	H	1
H	SOCF ₃	H	H	2	H	H	SO ₂ Me	H	2
H	SO ₂ CF ₃	H	H	0	H	H	OMe	H	0

[0106]

[表2]

[第1表]の続き

Y1	Y2	Y3	Y4	n
H	SO ₂ CF ₃	H	H	1
H	SO ₂ CF ₃	H	H	2
H	H	F	H	0
H	H	F	H	1
H	H	F	H	2
H	H	Cl	H	0
H	H	Cl	H	1
H	H	Cl	H	2
H	H	Br	H	0
H	H	Br	H	1
H	H	Br	H	2
H	H	I	H	0
H	H	I	H	1
H	H	I	H	2
H	H	Me	H	0
H	H	Me	H	1
H	H	Me	H	2
H	H	CF ₃	H	0
H	H	CF ₃	H	1
H	H	CF ₃	H	2
H	H	CF ₂ CF ₃	H	0
H	H	CF ₂ CF ₃	H	1
H	H	CF ₂ CF ₃	H	2
H	H	CF(CF ₃) ₂	H	0
H	H	CF(CF ₃) ₂	H	1
H	H	CF(CF ₃) ₂	H	2
H	H	SMe	H	0
H	H	SMe	H	1
H	H	SMe	H	2
H	H	SOMe	H	0
H	H	SOMe	H	1
H	H	SOMe	H	2
H	H	H	I	0
H	H	H	I	1
H	H	H	I	2
H	H	H	Me	0
H	H	H	Me	1
H	H	H	Me	2
H	H	H	CF ₃	0
H	H	H	CF ₃	1

[第1表]の続き

Y1	Y2	Y3	Y4	n
H	H	OMe	H	1
H	H	OMe	H	2
H	H	OCF ₃	H	0
H	H	OCF ₃	H	1
H	H	OCF ₃	H	2
H	H	NO ₂	H	0
H	H	NO ₂	H	1
H	H	NO ₂	H	2
H	H	NH ₂	H	0
H	H	NH ₂	H	1
H	H	NH ₂	H	2
H	H	CN	H	0
H	H	CN	H	1
H	H	CN	H	2
H	H	SCF ₃	H	0
H	H	SCF ₃	H	1
H	H	SCF ₃	H	2
H	H	SOCF ₃	H	0
H	H	SOCF ₃	H	1
H	H	SOCF ₃	H	2
H	H	SO ₂ CF ₃	H	0
H	H	SO ₂ CF ₃	H	1
H	H	SO ₂ CF ₃	H	2
H	H	H	F	0
H	H	H	F	1
H	H	H	F	2
H	H	H	Cl	0
H	H	H	Cl	1
H	H	H	Cl	2
H	H	H	Br	0
H	H	H	Br	1
H	H	H	Br	2
H	J10	H	H	0
H	J10	H	H	1
H	J10	H	H	2
H	J11	H	H	0
H	J11	H	H	1
H	J11	H	H	2
H	J12	H	H	0
H	J12	H	H	1

[0107]

[表3]

[第1表]の続き

Y1	Y2	Y3	Y4	n
H	H	H	CF ₃	2
H	J1	H	H	0
H	J1	H	H	1
H	J1	H	H	2
H	J2	H	H	0
H	J2	H	H	1
H	J2	H	H	2
H	J3	H	H	0
H	J3	H	H	1
H	J3	H	H	2
H	J4	H	H	0
H	J4	H	H	1
H	J4	H	H	2
H	J5	H	H	0
H	J5	H	H	1
H	J5	H	H	2
H	J6	H	H	0
H	J6	H	H	1
H	J6	H	H	2
H	J7	H	H	0
H	J7	H	H	1
H	J7	H	H	2
H	J8	H	H	0
H	J8	H	H	1
H	J8	H	H	2
H	J9	H	H	0
H	J9	H	H	1
H	J9	H	H	2
H	H	J8	H	0
H	H	J8	H	1
H	H	J8	H	2
H	H	J9	H	0
H	H	J9	H	1
H	H	J9	H	2
H	H	J10	H	0
H	H	J10	H	1
H	H	J10	H	2
H	H	J11	H	0
H	H	J11	H	1
H	H	J11	H	2

[第1表]の続き

Y1	Y2	Y3	Y4	n
H	J12	H	H	2
H	J13	H	H	0
H	J13	H	H	1
H	J13	H	H	2
H	J14	H	H	0
H	J14	H	H	1
H	J14	H	H	2
H	H	J1	H	0
H	H	J1	H	1
H	H	J1	H	2
H	H	J2	H	0
H	H	J2	H	1
H	H	J2	H	2
H	H	J3	H	0
H	H	J3	H	1
H	H	J3	H	2
H	H	J4	H	0
H	H	J4	H	1
H	H	J4	H	2
H	H	J5	H	0
H	H	J5	H	1
H	H	J5	H	2
H	H	J6	H	0
H	H	J6	H	1
H	H	J6	H	2
H	H	J7	H	0
H	H	J7	H	1
H	H	J7	H	2
H	H	J8	H	0
H	H	J8	H	1
H	H	J8	H	2
H	H	J9	H	0
H	H	J9	H	1
H	H	J9	H	2
H	H	H	J6	0
H	H	H	J6	1
H	H	H	J6	2
H	H	H	J7	0
H	H	H	J7	1
H	H	H	J7	2
H	H	H	J8	0
H	H	H	J8	1
H	H	H	J8	2
H	H	H	J9	0
H	H	H	J9	1
H	H	H	J9	2

[0108]

[表4]

[第1表] の続き					[第1表] の続き				
Y1	Y2	Y3	Y4	n	Y1	Y2	Y3	Y4	n
H	H	J12	H	0	H	H	H	J10	0
H	H	J12	H	1	H	H	H	J10	1
H	H	J12	H	2	H	H	H	J10	2
H	H	J13	H	0	H	H	H	J11	0
H	H	J13	H	1	H	H	H	J11	1
H	H	J13	H	2	H	H	H	J11	2
H	H	J14	H	0	H	H	H	J12	0
H	H	J14	H	1	H	H	H	J12	1
H	H	J14	H	2	H	H	H	J12	2
H	H	H	J1	0	H	H	H	J13	0
H	H	H	J1	1	H	H	H	J13	1
H	H	H	J1	2	H	H	H	J13	2
H	H	H	J2	0	H	H	H	J14	0
H	H	H	J2	1	H	H	H	J14	1
H	H	H	J2	2	H	H	H	J14	2
H	H	H	J3	0	H	Br	H	CN	0
H	H	H	J3	1	H	Br	H	CN	1
H	H	H	J3	2	H	Br	H	CN	2
H	H	H	J4	0	H	I	H	CN	0
H	H	H	J4	1	H	I	H	CN	1
H	H	H	J4	2	H	I	H	CN	2
H	H	H	J5	0	H	Br	H	F	0
H	H	H	J5	1	H	Br	H	F	1
H	H	H	J5	2	H	Br	H	F	2

[0109] 本発明における有害生物防除剤とは、農園芸分野又は畜産・衛生分野（家畜や愛玩動物としての哺乳動物又は鳥類に対する内部寄生虫・外部寄生虫や家庭用及び業務用の衛生害虫・不快害虫）等における有害な節足動物を対象とした害虫防除剤を意味する。

また、本発明における農薬とは、農園芸分野における殺虫・殺ダニ剤、殺線虫剤、除草剤及び殺菌剤等を意味する。

本明細書における衛生害虫とは、対象となる動物を刺咬することにより激痛、腫れや痒み等のアレルギー症状を惹起し、場合により致死的なアナフィラキシーショックを引き起こしたり、吸血に伴い、時に重篤な疾病を伝播し、場合によっては死に至らしめたりする有害な無脊椎動物、食品と接触することにより、時にウイルス、細菌、寄生虫などの病原体で汚染する無脊椎動物、その生体、死骸、脱皮殻、糞などがアレルギーとなり、気管支喘息、鼻

炎、結膜炎やアトピー性皮膚炎などのアレルギー性疾患を引き起こす無脊椎動物、食品や衣類・住宅等を食害することにより経済的な被害をもたらす無脊椎動物及び直接の加害はないが人の住環境に発生・侵入することで不快感を与える無脊椎動物等を意味する。より具体的には大顎で噛みつくアリ、毒針で刺すスズメバチ、皮膚から吸血するカ及びサシガメ、雑食性で家屋等の建築物を加害するシロアリを意味する。

[0110] 本明細書における不快害虫とは、ヒトの生活環境においてヒトに対して直接危害を与えることはないが、その姿や形から不快感を与え、心理的な害をもたらす害虫を表す。

本発明化合物を用いて防除しうる昆虫類、ダニ類、甲殻類、軟体動物及び線虫類としては、具体的には、例えば、以下の生物等が挙げられ、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

チャノコカクモンハマキ (*Adoxophyes honmai*)、リンゴコカクモンハマキ (*Adoxophyes orana faciata*)、リンゴモンハマキ (*Archips breviplicanus*)、ミダレカクモンハマキ (*Archips fuscocupreanus*)、ナシヒメシンクイ (*Grapholita molesta*)、チャハマキ (*Homona magnanima*)、マメシンクイガ (*Leguminivora glycinivorella*)、マメヒメサヤムシガ (*Matsumuraeses phaseoli*)、トビハマキ (*Pandemis heparana*)、ナシチビガ (*Bucculatrix pyrivorella*)、コットン・リーフ・パーフォレーター cotton leaf perforator (*Bucculatrix thurberiella*)、モモハモグリガ (*Lyonetia clerkella*)、ギンモンハモグリガ (*Lyonetia prunifoliella malinella*)、チャノホソガ (*Caloptilia theivora*)、キンモンホソガ (*Phyllonorycter ringoniella*)、ミカンハモグリガ (*Phyllocnistis citrella*)、ネギコガ (*Acrolepiopsis sapporensis*)、ヤマノイモコガ (*Acrolepiopsis suzukiella*)、コナガ (*Plutella xylostella*)、カキノヘタムシガ (*Stathmopoda masinissa*)、イモキバガ (*Helcystogramma triannulella*)、ワタアカミムシ (*Pectinophora gossypiella*)、ヒラタキクイムシ (*Lyctus brunneus*)、モモシンクイガ (*Carposina sasakii*)、フタトゲナガシンクイ (*Sinoxylon japonicum*)、

コナナガシנקイ (*Rhizopertha dominica*)、コドリング (*Cydla pomonella*)、ニカメイガ (*Chilo suppressalis*)、コブノメイガ (*Cnaphalocrocis medinalis*)、モモノゴマダラノメイガ (*Conogethes punctiferalis*)、ワタヘリクロノメイガ (*Diaphania indica*)、シロイチモジマダラメイガ (*Etiella zinckenella*)、クワノメイガ (*Glyphodes pyloalis*)、ハイマダラノメイガ (*Hellula undalis*)、アワノメイガ (*Ostrinia furnacalis*)、アズキノメイガ (*Ostrinia scapulalis*)、ヨーロピアンコーンボーラー (*Ostrinia nubilalis*)、シバツトガ (*Parapediasia teterrella*)、イチモンジセセリ (*Parnara guttata*)、オオモンシロチョウ (*Pieris brassicae*)、モンシロチョウ (*Pieris rapae crucivora*)、ヨモギエダシャク (*Ascotis selenaria*)、ソイビーンルーパー (*Pseudoplusia includens*)、チャドクガ (*Euproctis pseudoconspersa*)、ドクガ (*Artaxa subflava*)、モンシロドクガ (*Sphrag eidus similis*)、キドクガ (*Euproctis piperita*)、マイマイガ (*Lymantria dispar*)、ヒメシロモンドクガ (*Orgyia thyellina*)、カレハガ (*Gastropacha orientalis*)、マツカレハ (*Dendrolimus spectabilis*)、ツガカレハ (*Dendrolimus superans*)、クヌギカレハ (*Kunugia undans*)、ヒトリガ (*Arctia caja phaeosoma*)、シロヒトリ (*Chionarctia nivea*)、アメリカシロヒトリ (*Hyphantria cunea*)、クワゴマダラヒトリ (*Lemyra imparilis*)、イラガ (*Monema flavescens*)、アオイラガ (*Phrixolepia sericea*)、クロシタアオイラガ (*Parsa sinica*)、ヒラヘリアオイラガ (*Parsa lepida*)、アケビコノハ (*Adris tyrannus*)、ナカジロシタバ (*Aedia leucomelas*)、タマナヤガ (*Agrotis ipsilon*)、カブラヤガ (*Agrotis segetum*)、タマナギンウワバ (*Autographa nigrisigna*)、ミツモンキンウワバ (*Ctenoplusia agnata*)、オオタバコガ (*Helicoverpa armigera*)、タバコガ (*Helicoverpa assulta*)、コットンボールワーム (*Helicoverpa zea*)、タバコバッドワーム (*Heliothis virescens*)、ヨトウガ (*Mamestra brassicae*)、アワヨトウ (*Mythimna separata*)、フタオビコヤガ (*Naranga aenescens*)、サザンアーミーワーム (*Spodoptera eridania*)、シロイチモジヨトウ (*Spodoptera exi*

gua)、フォールアーミーワーム (*Spodoptera frugiperda*)、コットンリーフワーム (*Spodoptera littoralis*)、ハスモンヨトウ (*Spodoptera litura*)、スジキリヨトウ (*Spodoptera depravata*)、イラクサギンウワバ (*Trichoplusia ni*)、グレープベリーモス (*Endopiza viteana*)、トマトホーンワーム (*Manduca quinquemaculata*)、タバコホーンワーム (*Manduca sexta*)、ブドウホソハマキ (vine moths, *Clysia ambiguella*)、ブドウホソハマキ (european grape berry moth, *Eupoecilia ambiguella*)、オオケンモン (*Acrionicta major*)、ナベル・オレンジワーム (navel orangeworm, *Amyelois transitella*)、ユウレイセセリ (formosan swift, *Borbo cinnara*)、ブルーデッド・ホワイト (bordered white, *Bupalus piniarius*)、カプア・レティクラナ (*Capua reticulana*)、ウインター・モス (winter moth, *Cheimatobia brumata*)、シュガーケーン・ボラー (sugarcane borer, *Diatraea saccharalis*)、シトラス・ボラー・モス (citrus borer moth, *Ecdytolopha aurantiana*)、モロコシマダラメイガ (lesser corn stalk borer, *Elasmopalpus lignosellus*)、シュガーケーン・ボラー (sugarcane borer, *Eldana saccharina*)、リンゴウスチャイロハマキ (light brown apple moth, *Epiphyas postvittana*)、ハチノスツヅリガ (greater wax moth, *Galleria mellonella*)、ブラウン・ハウス・モス (brown house moth, *Hofmannophila pseudospretella*)、ヨーロツパリנגスガ (orchard ermine, *Yponomeuta padella*)、ナスノメイガ (brinjal shoot and fruit borer, *Leucinodes orbonalis*)、アセン・ピニオン (ashen pinion, *Lithophane antennata*)、ウエスタン・ビーン・カットワーム (western bean cutworm, *Loxagrotis albicosta*)、オビカレハ (lackey moth, *Malacosoma neustria*)、マメノメイガ (legume pod borer, *Maruca testulalis*)、オムニヴァス・リーフローラー (omnivorous leafroller, *Platynota stultana*)、サンフラワー・ルーパー (sunflower looper, *Rachiplusia nu*)、ターニップ・モス (turnip moth, *Scotia segetum*)、グランドナッツ・リーフ・マイナー (groundnut leaf miner, *Stomopteryx subsecivella*)、アンデーン・ポテト・チューバー (andean potato)

to tuber, *Tecia solanivora*)、ウッディ・パトロール・モス (woolly pyroll moth, *Thermesia gemmatilis*)、イガ (casemaking clothes moth, *Tinea pellionella*)、コイガ (webbing moth, *Tineola bisselliella*)、トマトキバガ (tomato leaf miner, *Tuta absoluta*) 等の鱗翅目 (Lepidoptera) 昆虫。

[0111] ヒラズハナアザミウマ (*Frankliniella intonsa*)、ミカンキイロアザミウマ (*Frankliniella occidentalis*)、クロトンアザミウマ (*Heliothrips haemorrhoidalis*)、チャノキイロアザミウマ (*Scirtothrips dorsalis*)、ミナミキイロアザミウマ (*Thrips palmi*)、ネギアザミウマ (*Thrips tabaci*)、カキクダアザミウマ (*Ponticulothrips diospyrosi*) 等の総翅目 (Thysanoptera) 昆虫。

ブチヒゲカメムシ (*Dolycoris baccarum*)、ナガメ (*Eurydema rugosum*)、トゲシラホシカメムシ (*Eysarcoris aeneus*)、オオトゲシラホシカメムシ (*Eysarcoris lewisi*)、シラホシカメムシ (*Eysarcoris ventralis*)、ツヤアオカメムシ (*Glaucias subpunctatus*)、クサギカメムシ (*Halyomorpha halys*)、アオクサカメムシ (*Nezara antennata*)、ミナミアオカメムシ (*Nezara viridula*)、イチモンジカメムシ (*Piezodorus hybneri*)、チャバネアオカメムシ (*Plautia crossota*)、イネクロカメムシ (*Scotinophora lurida*)、ホソハリカメムシ (*Cletus punctiger*)、クモヘリカメムシ (*Leptocoris chinensis*)、ホソヘリカメムシ (*Riptortus clavatus*)、アカヒメヘリカメムシ (*Rhopalus msculatus*)、カンシャコバネナガカメムシ (*Cavelerius saccharivorus*)、コバネヒョウタンナガカメムシ (*Togo hemipterus*)、アカホシカメムシ (*Dysdercus cingulatus*)、ツツジグンバイ (*Stephanitis pyrioides*)、クロトビカスミカメ (*Halticus insularis*)、ターニッシュドプラントバグ (*Lygus lineolaris*)、ナガムギカスミカメ (*Stenodema sibiricum*)、アカスジカスミカメ (*Stenotus rubrovittatus*)、イネホソミドリカスミカメ (*Trigonotylus caelestialium*)、スクイッド・バッグ (squash bug, *Anasa tristis*)、ネッタイチビトビカスミカメ (dimpling bug, *Campy*

lomma livida)、メクラカメムシ (green mirid, *Creontiades dilutus*)、ペッパー・ベリー・バグ (pepper berry bug, *Dasynus piperis*)、グリーン・ベリー・スティンク・バグ (green belly stink bug, *Dichelops furcatus*)、ペッパー・レイス・バグ (pepper lace bug, *Diconocoris hewett*)、コットン・バグ (cotton bug, *Horcias nobilellus*)、リーフフットボール・バグ (leaffooted bug, *Leptoglossus phyllopus*)、ブラック・ロング・バック (black long bug, *Macropes excavatus*)、モナロニオン・アトラトゥム (*Monalonion atratum*)、ピエスマ・クワドラタ (*Piesma quadrata*)、カカオカスミカメムシ (cocoa mirids, *Sahlbergella singularis*)、ブラウン・ロート・スティンク・バグ (brown root stink bug, *Scaptocoris castanea*)、アボガド・レイス・バグ (avocado lace bug, *Pseudacysta persea*)、ナシグンバイ (Japanese pear lace bug, *Stephanitis nashi*) 等の異翅目 (Heteroptera) 昆虫。

フタテンヒメヨコバイ (*Arboridia apicalis*)、ミドリナガヨコバイ (*Balclutha saltuella*)、フタテンオオヨコバイ (*Epiacanthus stramineus*)、ポテトリーフホッパー (*Empoasca fabae*)、カキノヒメヨコバイ (*Empoasca nipponica*)、チャノミドリヒメヨコバイ (*Empoasca onukii*)、マメノミドリヒメヨコバイ (*Empoasca sakaii*)、ヒメフタテンヨコバイ (*Macrosteles striifrons*)、ツマグロヨコバイ (*Nephotettix cincticeps*)、ツマグロオオヨコバイ (*Bothrogonia ferruginea*)、コットンフリーホッパー (*Psuedatomoscelis seriatus*)、ヒメトビウンカ (*Laodelphax striatella*)、トビイロウンカ (*Nilaparvata lugens*)、セジロウンカ (*Sogatella furcifera*)、ミカンキジラミ (*Diaphorina citri*)、ナシキジラミ (*Psylla pyrisuga*)、ミカントゲコナジラミ (*Aleurocanthus spiniferus*)、シルバーリーフコナジラミ (*Bemisia argentifolii*)、タバココナジラミ (*Bemisia tabaci*)、ミカンコナジラミ (*Dialeurodes citri*)、オンシツコナジラミ (*Trialeurodes vaporariorum*)、ブドウネアブラムシ (*Viteus vitifolii*)、ワタアブラムシ (*Aphis gossypii*)、ユキヤナギアブラムシ (*Aphis spiraeicola*)、モモア

カアブラムシ (*Myzus persicae*)、コミカンアブラムシ (*Toxoptera auranti*
i)、オオワラジカイガラムシ (*Drosicha corpulenta*)、イセリアカイガラ
ムシ (*Icerya purchasi*)、ナスコナカイガラムシ (*Phenacoccus solani*)、
ミカンコナカイガラムシ (*Planococcus citri*)、フジコナカイガラムシ (*Pl*
anococcus kuraunhia)、クワコナカイガラムシ (*Pseudococcus comstocki*
)、ツノロウムシ (*Ceroplastes ceriferus*)、ルビーロウムシ (*Ceroplaste*
s rubens)、アカマルカイガラムシ (*Aonidiella aurantii*)、ナシマルカイ
ガラムシ (*Comstockaspis pernicios*)、ティースケール (*Fiorinia theae*
)、チャノマルカイガラムシ (*Pseudaonidia paeoniae*)、クワシロカイガラ
ムシ (*Pseudaulacaspis pentagona*)、ウメシロカイガラムシ (*Pseudaulacas*
pis prunicola)、マサキナガカイガラムシ (*Unaspis euonymi*)、ヤノネカ
イガラムシ (*Unaspis yanonensis*)、トコジラミ (*Cimex lectularius*) 等の
半翅目 (Hemiptera) 昆虫。

- [0112] ドウガネブイブイ (*Anomala cuprea*)、ヒメコガネ (*Anomala rufocuprea*
)、コアオハナムグリ (*Gametis jucunda*)、ナガチャコガネ (*Heptophylla*
picea)、マメコガネ (*Popillia japonica*)、コロラドポテトビートル (*Lep*
inotarsa decemlineata)、マルクビクシコメツキ (*Melanotus fortnumi*)、
カンシャクシコメツキ (*Melanotus tamsuyensis*)、ジンサンシバンムシ (*St*
egobium paniceum)、タバコシバンムシ (*Lasioderma serricorne*)、ヒメヒ
ラタケシキスイ (*Epuraea domina*)、インゲンテントウ (*Epilachna varives*
tis)、ニジュウヤホシテントウ (*Epilachna vigintioctopunctata*)、チャ
イロコメノゴミムシダマシ (*Tenebrio molitor*)、コクヌストモドキ (*Tribo*
lium castaneum)、ゴマダラカミキリ (*Anoplophora malasiaca*)、マツノマ
ダラカミキリ (*Monochamus alternatus*)、キボシカミキリ (*Psacoth*
ea hilaris)、ブドウトラカミキリ (*Xylotrechus pyrrhoderus*)、アズキゾウムシ
(*Callosobruchus chinensis*)、ウリハムシ (*Aulacophora femoralis*)、テ
ンサイトビハムシ (*Chaetocnema concinna*)、サザンコーンルートワーム (*D*
iabrotica undecimpunctata)、ウエスタンコーンルートワーム (*Diabrotica*

virgifera)、ノーザンコーンルートワーム (*Diabrotica barberi*)、イネ
ドロオイムシ (*Oulema oryzae*)、キスジノミハムシ (*Phyllotreta striolat*
a)、ナスナガスネトビハムシ (*Psylliodes angusticollis*)、モモチヨッキ
リゾウムシ (*Rhynchites heros*)、アリモドキゾウムシ (*Cylas formicarius*
)、ワタミゾウムシ (*Anthonomus grandis*)、イネゾウムシ (*Echinocnemus*
squameus)、イモゾウムシ (*Euscepes postfasciatus*)、アルファルフアタ
コゾウムシ (*Hypera postica*)、イネミズゾウムシ (*Lissohoptrus oryzophi*
lus)、キンケクチブトゾウムシ (*Otiorhynchus sulcatus*)、グラナリーウ
イービル (*Sitophilus granarius*)、コクゾウムシ (*Sitophilus zeamais*)
、シバオサゾウムシ (*Sphenophorus venatus vestitus*)、アオバアリガタハ
ネカクシ (*Paederus fuscipes*) 等の鞘翅目 (Coleoptera) 昆虫。

- [0113] ダイズサヤタマバエ (*Asphondylia yushimai*)、ムギアカタマバエ (*Sitod*
iplosis mosellana)、ウリミバエ (*Bactrocera cucurbitae*)、ミカンコミ
バエ (*Bactrocera dorsalis*)、チチュウカイミバエ (*Ceratitis capitata*)
、イネヒメハモグリバエ (*Hydrellia griseola*)、オウトウショウジョウバ
エ (*Drosophila suzukii*)、イネハモグリバエ (*Agromyza oryzae*)、ナモグ
リバエ (*Chromatomyia horticola*)、ナスハモグリバエ (*Liriomyza bryonia*
e)、ネギハモグリバエ (*Liriomyza chinensis*)、トマトハモグリバエ (*Lir*
io myza sativae)、マメハモグリバエ (*Liriomyza trifolii*)、タネバエ (*D*
elia platura)、テンサイモグリハナバエ (*Pegomya cunicularia*)、アップ
ルマゴット (*Rhagoletis pomonella*)、ヘシアンフライ (*Mayetiola destruc*
tor)、イエバエ (*Musca domestica*)、サシバエ (*Stomoxys calcitrans*)、
ヒツジシラミバエ (*Melophagus ovinus*)、ウシバエ (*Hypoderma bovis*)、
キスジウシバエ (*Hypoderma lineatum*)、ヒツジバエ (*Oestrus ovis*)、ツ
エツエバエ (*Glossina palpalis*, *Glossina morsitans*)、キアシオオブユ (*P*
rosimulium yezoensis)、ウシアブ (*Tabanus trigonus*)、オオチョウバエ
(*Telmatoscopus albipunctatus*)、トクナガヌカカ (*Leptoconops nipponen*
sis)、アカイエカ (*Culex pipiens pallens*)、ネッタイシマカ (*Aedes aeg*

ypti)、ヒトスジシマカ (*Aedes albopictus*)、シナハマダラカ (*Anopheles hyaracanus sinesis*)、アッケシヤブカ (*Aedes akkeshiensis*)、ムネシロヤブカ (*Aedes albocinctus*)、オオムラヤブカ (*Aedes alboscuteclatus*)、アカフトオヤブカ (*Aedes atriisimilis*)、カニアナヤブカ (*Aedes baisasi*)、コガタキンイロヤブカ (*Aedes bekkui*)、トカチヤブカ (*Aedes communis*)、ダイトウシマカ (*Aedes daitensis*)、ヒサゴヌマヤブカ (*Aedes dianaetus*)、セスジヤブカ (*Aedes dorsalis*)、エゾヤブカ (*Aedes ezoensis*)、アカンヤブカ (*Aedes excrucians*)、ヤマダシマカ (*Aedes flavopictus*)、ミスジシマカ (*Aedes galloisi*)、ハクサンヤブカ (*Aedes hakusanensis*)、ハトリヤブカ (*Aedes hatorii*)、キタヤブカ (*Aedes hokkaidensis*)、ダイセツヤブカ (*Aedes impiger daisetsuzanus*)、サッポロヤブカ (*Aedes intrudens*)、クロフトオヤブカ (*Aedes iriomotensis*)、ヤマトヤブカ (*Aedes japonicus*)、コバヤシヤブカ (*Aedes kobayashii*)、エセチヨウセンヤブカ (*Aedes koreicoides*)、ナンヨウヤブカ (*Aedes lineatopennis*)、シロカタヤブカ (*Aedes nipponicus*)、ニシカワヤブカ (*Aedes nishikawai*)、コガタフトオヤブカ (*Aedes nobukonis*)、オキナワヤブカ (*Aedes okinawanus*)、ブナノキヤブカ (*Aedes oreophilus*)、チシマヤブカ (*Aedes punctor*)、リヴァースシマカ (*Aedes reversi*)、ホッコクヤブカ (*Aedes sasaki*)、セボリヤブカ (*Aedes savoryi*)、ケイジョウヤブカ (*Aedes seoulensis*)、カラフトヤブカ (*Aedes sticticus*)、トウゴウヤブカ (*Aedes togoi*)、キンイロヤブカ (*Aedes vexans nipponii*)、ハマベヤブカ (*Aedes vigilax*)、タカハシシマカ (*Aedes wadai*)、ワタセヤブカ (*Aedes watasei*)、アカエゾヤブカ (*Aedes yamadai*)、モンナシハマダラカ (*Anopheles bengalensis*)、エンガルハマダラカ (*Anopheles engarensis*)、チヨウセンハマダラカ (*Anopheles koreicus*)、オオツルハマダラカ (*Anopheles lesteri*)、ヤマトハマダラカ (*Anopheles lindesayi japonicus*)、コガタハマダラカ (*Anopheles minimus*)、オオモリハマダラカ (*Anopheles omorii*)、オオハマハマダラカ (*Anopheles sapersoi*)、エセシナハマダラカ (*Anopheles sineroid*

es)、タテンハマダラカ (*Anopheles tessellatus*)、ヤツシロハマダラカ (*Anopheles yatsushiroensis*)、オオクロヤブカ (*Armigeres subalbatus*)、クロツノフサカ (*Culex bicornutus*)、カラツイエカ (*Culex bitaeniorhynchus*)、オガサワライエカ (*Culex boninensis*)、カギヒゲクロウスカ (*Culex brevipalpis*)、ハラオビツノフサカ (*Culex cinctellus*)、オビナシエカ (*Culex fuscocephala*)、コガタクロウスカ (*Culex hayashii*)、フトシマツノフサカ (*Culex infantulus*)、ジャクソンイエカ (*Culex jacksoni*)、キョウトクシヒゲカ (*Culex kyotoensis*)、ミナミハマダライエカ (*Culex mimeticus*)、イナトミシオカ (*Culex modestus inatomii*)、クロフクシヒゲカ (*Culex nigropunctatus*)、オキナワクロウスカ (*Culex okinawae*)、ハマダライエカ (*Culex orientalis*)、アカクシヒゲカ (*Culex pallidothorax*)、チカイエカ (アカイエカの変異体) (*Culex pipiens molestus*)、ネッタイエカ (アカイエカの亜種) (*Culex pipiens quinquefasciatus*)、シロハシイエカ (*Culex pseudovishnui*)、エゾウスカ (*Culex rubensis*)、アカツノフサカ (*Culex rubithoracis*)、リュウキュウクシヒゲカ (*Culex ryukyensis*)、ヤマトクシヒゲカ (*Culex sasai*)、ミツホシイエカ (*Culex sinensis*)、ヨツボシイエカ (*Culex sitiens*)、コガタイエカ (*Culex tritaeniorhynchus*)、カニアナツノフサカ (*Culex tuberis*)、スジアシイエカ (*Culex vagans*)、ニセシロハシイエカ (*Culex vishnui*)、セシロイエカ (*Culex whitmorei*)、オオユスリカ (*Chironomus plumosus*)、ドブユスリカ (*Chironomus riparius*) 等の双翅目 (Diptera) 昆虫。

- [0114] クリハバチ (*Apethymus kuri*)、カブラハバチ (*Athalia rosae*)、チュウレンジハバチ (*Arge pagana*)、マツノキハバチ (*Neodiprion sertifer*)、クリタマバチ (*Dryocosmus kuriphilus*)、グンタイアリ (*Eciton burchelli*, *Eciton schmitti*)、クロオオアリ (*Camponotus japonicus*)、オオスズメバチ (*Vespa mandarina*)、ブルドックアント (*Myrmecia* spp.)、ファイヤーアント類 (*Solenopsis* spp.)、ファラオアント (*Monomorium pharaonis*)、トビイロシワアリ (*Tetramorium tsushimae*)、トビイロケアリ (*Lasius j*

aponicus)、オオハリアリ (*Pachycondyla chinensis*)、クロクサアリ (*Lasius fuliginosus*)、クロヤマアリ (*Formica fusca japonica*)、ルリアリ (*Ochetellus glaber*)、アミメアリ (*Pristomyrmex pungens*)、オオズアリ (*Pheidole noda*)、アズマオオズアリ (*Pheidole fervida*)、アルゼンチンアリ (*Linepithema humile*)、シバンムシアリガタバチ (*Cephalonomia gallicola*) 等の膜翅目 (Hymenoptera) 昆虫。

エンマコオロギ (*Teleogryllus emma*)、ハラオカメコオロギ (*Loxoblemmus campestris*)、ケラ (*Gryllotalpa orientalis*)、トノサマバッタ (*Locusta migratoria*)、コバネイナゴ (*Oxya yezoensis*)、サバクワタリバッタ (*Schistocerca gregaria*)、カマドウマ (*Diestrammena apicalis*) 等の直翅目 (Orthoptera) 昆虫。

トゲナシシロトビムシ (*Onychiurus folsomi*)、シベリアシロトビムシ (*Onychiurus sibiricus*)、キボシマルトビムシ (*Bourletiella hortensis*) 等の粘管目 (Collembola) 昆虫。

クロゴキブリ (*Periplaneta fuliginosa*)、ヤマトゴキブリ (*Periplaneta japonica*)、チャバネゴキブリ (*Blattella germanica*)、ワモンゴキブリ *australian cockroach* (*Periplaneta australasiae*) 等の網翅目 (Dictyoptera) 昆虫。

[0115] イエシロアリ (*Coptotermes formosanus*)、ヤマトシロアリ (*Reticulitermes speratus*)、タイワンシロアリ (*Odontotermes formosanus*)、ネオトロピカル・ターマイト (neotropical termite, *Cornitermes cumulans*)、ミクロテルメス・オベシ (*Microtermes obesi*) 等のシロアリ目 (Isoptera) 昆虫。

ネコノミ (*Ctenocephalidae felis*)、イヌノミ (*Ctenocephalides canis*)、ニワトリノミ (*Echidnophaga gallinacea*)、ヒトノミ (*Pulex irritans*)、ケオプスネズミノミ (*Xenopsylla cheopis*) 等のノミ目 (Siphonaptera) 類。

ニワトリオオハジラミ (*Menacanthus stramineus*)、ウシハジラミ (*Bovic*

ola bovis) 等のハジラミ目 (Mallophage) 昆虫。

ウシジラミ (Haematopinus eurysternus)、ブタジラミ (Haematopinus suis)、ウシホソジラミ (Linognathus vituli)、ケブカウシジラミ (Solenopotes capillatus) 等のシラミ目 (Anoplura) 昆虫。

レピスマ・サッカリナ (Lepisma saccharina) 等のシミ目 (Thysanura)。

スジチャタテ (Psococerastis tokyoensis)、オオチャタテ (Longivalvus nubilus) 等のチャタテムシ目 (Psocoptera) 昆虫。

ヒゲジロハサミムシ (Gonolabis marginalis) 等のハサミムシ科 (Anisolabidae) 昆虫。

ウヅキコモリグモ (Pardosa astrigera)、カバキコマチグモ (Chiracanthium japonicum)、セアカゴケグモ (Latrodectus hasseltii) 等のクモ目 (Araneae)。

[0116] シクラメンホコリダニ (Phytonemus pallidus)、チャノホコリダニ (Polyphagotarsonemus latus)、スジブトホコリダニ (Tarsonemus bilobatus) 等のホコリダニ類。

ハクサイダニ (Penthaleus erythrocephalus)、ムギダニ (Penthaleus major) 等のハシリダニ類。

イネハダニ (Oligonychus shinkajii)、ミカンハダニ (Panonychus citri)、クワオオハダニ (Panonychus mori)、リンゴハダニ (Panonychus ulmi)、カンザワハダニ (Tetranychus kanzawai)、ナミハダニ (Tetranychus urticae) 等のハダニ類。

チャノナガサビダニ (Acaphylla theavagrans)、チューリップサビダニ (Aceria tulipae)、トマトサビダニ (Aculops lycopersici)、ミカンサビダニ (Aculops pelekassi)、リンゴサビダニ (Aculus schlechtendali)、ニセナシサビダニ (Eriophyes chibaensis)、シトラスラストマイト (Phyllocoptruta oleivora) 等のフシダニ類。

ロビンネダニ (Rhizoglyphus robini)、ケナガコナダニ (Tyrophagus putrescentiae)、ハウレンソウケナガコナダニ (Tyrophagus similis) 等のコ

ナダニ類。

ミツバチヘギイタダニ (*Varroa jacobsoni*) 等のハチダニ類。

[0117] オウシマダニ (*Boophilus microplus*)、クリイロコイタマダニ (*Rhipicephalus sanguineus*)、フタトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*)、キチマダニ (*Haemaphysalis flava*)、ツリガネチマダニ (*Haemaphysalis campulata*)、ヤマトマダニ (*Ixodes ovatus*)、シュルツエマダニ (*Ixodes persulcatus*)、オオマダニ (*Amblyomma* spp.)、アミメマダニ (*Dermacentor* spp.) 等のマダニ類。

ワクモRed mite (*Dermanyssus gallinae*)、イエダニTropical rat mite (*Ornithonyssus bacoti*)、トリサシダニNorthern fowl mite (*Ornithonyssus sylviarum*) 等のトゲダニ亜目 (*Mesostigmata*) ダニ類。

イヌツメダニ (*Cheyletiella yasguri*)、ネコツメダニ (*Cheyletiella blakei*) 等のツメダニ類。

イヌニキビダニ (*Demodex canis*)、ネコニキビダニ (*Demodex cati*) 等のニキビダニ類。

ヒツジキュウセンダニ (*Psoroptes ovis*) 等のキュウセンダニ類。

センコウヒゼンダニ (*Sarcoptes scabiei*)、ネコシヨウセンコウヒゼンダニ (*Notoedres cati*)、ニワトリヒゼンダニ (*Knemidocoptes* spp.) 等のヒゼンダニ類。

オカダンゴムシ (*Armadillidium vulgare*)、ホンワラジムシcommon woodlouse (*Oniscus asellus*)、ワラジムシ (*Porcellio scaber*) 等の甲殻類(ワラジムシ目、Isopoda)。

チョウ (*Argulus japonicus*) 及びチョウモドキ (*Argulus coregoni*) 等の甲殻類 (チョウ目、Arguloida) 。

サケジラミ (*Lepeophtheirus salmonis*) およびヤマメナガクビムシ類 (*Salmicola* spp.) 等の甲殻類 (ウオジラミ目、Shphonostomatoida) 。

イカリムシ (*Lernaea cyprinacea*) 等の甲殻類 (キクロプス目、Cyclopoida) 。

トビズムカデ (*Scolopendra subspinipes*)、アオズムカデ (*Scolopendra japonica*)、アカズムカデ (*Scolopendra multidentata*) 等のオオムカデ目 (*Scolopendromorpha*)、イッスンムカデ (*Bothriomyia asperatus*) 等のイシムカデ目 (*Lithobiomorpha*)、ゲジ (*Thereuonema hilgendorfi*) 等のゲジ目 (*Scutigleromorpha*) 等のムカデ綱 (*Chilopoda*)。

[0118] ヤケヤスデ (*Oxidus gracilis*)、キシヤヤスデ (*Prafontaria laminata armigera*)、アカヤスデ (*Nedyopus tambanus*) 等のヤスデ綱 (*Diplopoda*)。

ミゾコムカデ (*Scutiglerella immaculata*) 等のコムカデ綱 (*Symphyla*)。

スクミリンゴガイ (*Pomacea canaliculata*)、アフリカマイマイ (*Achatina fulica*)、ナメクジ (*Meghimatium bilineatum*)、チャコウラナメクジ (*Limax Valentiana*)、キイロコウラナメクジ (*Limax flavus*)、ウスカワマイマイ (*Acusta despecta sieboldiana*)、ミスジマイマイ (*Euhadra peliomphala*) 等の腹足類。

ミナミネグサレセンチュウ (*Prathylenchus coffeae*)、キタネグサレセンチュウ (*Prathylenchus penetrans*)、クルミネグサレセンチュウ (*Prathylenchus vulnus*)、ジャガイモシストセンチュウ (*Globodera rostochiensis*)、ダイズシストセンチュウ (*Heterodera glycines*)、キタネコブセンチュウ (*Meloidogyne hapla*)、サツマイモネコブセンチュウ (*Meloidogyne incognita*)、イネシンガレセンチュウ (*Aphelenchoides besseyi*)、マツノザイセンチュウ (*Bursaphelenchus xylophilus*) 等の線虫類。

ノサシバエ又は *Haematobia irritans*、アブ又は *Tabanus* spp.、サシバエ又は *Stomoxys calcitrans*、ブユ又は *Simulium* spp.、メクラアブ又は *Chrysops* spp.、シラミバエ又は *Melophagus ovinus*、及びツエツエバエ又は *Glossina* spp. 等の成虫のハエ。

ヒツジバエ (*Oestrus ovis* および *Cuterebra* spp.)、クロバエ又は *Phaenicia* spp.、ラセンウジバエ又は *Cochliomyia hominivorax*、ウシバエ又は *Hypoderma* spp.、ウマのフリースワーム (fleeceworm) 及び *Gastrophilus* 等の寄生性のハエウジ。

Culex spp.、*Anopheles* spp. 及び *Aedes* spp. 等の蚊。

[0119] また、本発明化合物を用いて防除しうる家畜、家禽、愛玩動物等の内部寄生虫としては具体的には、例えば、下記の内部寄生虫等が挙げられるが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

ヘモンクス属 (*Haemonchus*)、トリコストロンギルス属 (*Trichostrongylus*)、オステルターギヤ属 (*Ostertagia*)、ネマトディルス属 (*Nematodirus*)、クーペリア属 (*Cooperia*)、アスカリス属 (*Ascaris*)、ブノストムム属 (*Bunostomum*)、エスファゴストムム属 (*Oesophagostomum*)、チャベルチア属 (*Chabertia*)、トリキュリス属 (*Trichuris*)、ストロンギルス属 (*Strongylus*)、トリコネマ属 (*Trichonema*)、ディクチオカウルス属 (*Dictyocaulus*)、キャピラリア属 (*Capillaria*)、ヘテラキス属 (*Heterakis*)、トキシカラ属 (*Toxocara*)、アスカリディア属 (*Ascaridia*)、オキシウリス属 (*Oxyuris*)、アンキロストーマ属 (*Ancylostoma*)、ウンシナリア属 (*Uncinaria*)、トキサスカリス属 (*Toxascaris*)、パラスカリス属 (*Parascaris*) などの線虫類。

ブツヘレリア属 (*Wuchereria*)、ブルージア属 (*Brugia*)、オンコセルカ属 (*Onchoceca*)、ディロフィラリア属 (*Dirofilaria*)、ロア糸状虫属 (*Loa*) などのフィラリア科 (*Filariidae*) 線虫類。

ドラクンクルス属 (*Dracunculus*) などの蛇状線虫科 (*Dracunculidae*) 線虫類。

[0120] 犬条虫 (*Dipylidium caninum*)、猫条虫 (*Taenia taeniaeformis*)、有鉤条虫 (*Taenia solium*)、無鉤条虫 (*Taenia saginata*)、縮小条虫 (*Hymenolepis diminuta*)、ベネデン条虫 (*Moniezia benedeni*)、広節裂頭条虫 (*Diphyllobothrium latum*)、マンソン裂頭条虫 (*Diphyllobothrium erinacei*)、単包条虫 (*Echinococcus granulosus*)、多包条虫 (*Echinococcus multilocularis*) などの条虫類。

肝蛭 (*Fasciola hepatica*, *F. gigantica*)、ウエステルマン肺吸虫 (*Paragonimus westermanii*)、肥大吸虫 (*Fasciolopsis buski*)、棼吸虫 (*Eurytre*

ma pancreaticum, E. coelomaticum)、肝吸虫 (*Clonorchis sinensis*)、日本住血吸虫 (*Schistosoma japonicum*)、ビルハルツ住血吸虫 (*Schistosoma haematobium*)、マンソン住血吸虫 (*Schistosoma mansoni*) などの吸虫類。

エイメリア・テネラ (*Eimeria tenella*)、エイメリア・アセルブリナ (*Eimeria acervulina*)、エイメリア・ブルネッチ (*Eimeria brunetti*)、エイメリア・マクシマ (*Eimeria maxima*)、エイメリア・ネカトリクス (*Eimeria necatrix*)、エイメリア・ボビス (*Eimeria bovis*)、エイメリア・オビノイダリス (*Eimeria ovinoidealalis*) のようなエイメリア類 (*Eimeria* spp.)。

クルーズトリパノソーマ (*Trypanosoma cruzi*)、リーシュマニア類 (*Leishmania* spp.)、マラリア原虫 (*Plasmodium* spp.)、バベシア類 (*Babesia* spp.)、トリコモナス類 (*Trichomonadidae* spp.)、ヒストモナス類 (*Histomonas* spp.)、ジアルディア類 (*Giardia* spp.)、トキソプラズマ類 (*Toxoplasma* spp.)、赤痢アメーバ (*Entamoeba histolytica*)、タイレリア類 (*Theileria* spp.)。

[0121] さらに、本発明化合物は、有機燐系化合物、カーバメート系化合物、ピレスロイド系化合物等の既存の殺虫剤に対して抵抗性の発達した有害生物に対しても有効である。

すなわち、本発明化合物は、粘管目 (トビムシ目)、網翅目 (ゴキブリ目)、直翅目 (バッタ目)、シロアリ目、総翅目 (アザミウマ目)、半翅目 (カメムシ目及びヨコバイ目)、鱗翅目 (チョウ目)、鞘翅目 (コウチュウ目)、膜翅目 (ハチ目)、双翅目 (ハエ目)、等翅目 (ノミ目)、シラミ目等の昆虫類、チョウ目、ウオジラミ目、キクロプス目等の甲殻類、ダニ類、腹足類、線虫類等に属する有害生物を低濃度で有効に防除することが出来る。

一方、本発明化合物はホ乳類、魚類、甲殻類及び益虫 (ミツバチ、マルハナバチ等の有用昆虫やツヤコバチ、アブラバチ、ヤドリバエ、ヒメハナカメムシ、カブリダニ等の天敵) に対してほとんど悪影響の無い、極めて有用な特長を有している。

[0122] 本発明化合物を使用するにあたっては、通常、適当な固体担体又は液体担

体と混合し、更に所望により界面活性剤、浸透剤、展着剤、増粘剤、凍結防止剤、結合剤、固結防止剤、崩壊剤、消泡剤、防腐剤、分解防止剤等を添加して、液剤 (soluble concentrate)、乳剤 (emulsifiable concentrate)、水和剤 (wetttable powder)、水溶剤 (water soluble powder)、顆粒水和剤 (water dispersible granule)、顆粒水溶剤 (water soluble granule)、懸濁剤 (suspension concentrate)、乳濁剤 (concentrated emulsion)、サスポエマルジョン (suspoemulsion)、マイクロエマルジョン (microemulsion)、粉剤 (dustable powder)、粒剤 (granule) 錠剤 (tablet)、乳化性ゲル剤 (emulsifiable gel) 等の任意の剤型の製剤として実用に供することができる。また、省力化及び安全性向上の観点から、上記任意の剤型の製剤を、水溶性カプセル、水溶性フィルムの袋等の水溶性包装体に封入して供することもできる。

固体担体としては、例えば、石英、方解石、海泡石、ドロマイト、チョーク、カオリナイト、パイロフィライト、セリサイト、ハロサイト、メタハロサイト、木節粘土、蛙目粘土、陶石、ジークライト、アロフェン、シラス、きら、タルク、ベントナイト、活性白土、酸性白土、軽石、アタパルジャイト、ゼオライト、珪藻土等の天然鉱物質；焼成クレー、パーライト、シラスバルーン、バーミキュライト、アタパルガスクレー、焼成珪藻土等の天然鉱物質の焼成品；炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、硫酸アンモニウム、硫酸ナトリウム、硫酸マグネシウム、リン酸水素二アンモニウム、リン酸二水素アンモニウム、塩化カリウム等の無機塩類；ブドウ糖、果糖、しょ糖、乳糖等の糖類；澱粉、粉末セルロース、デキストリン等の多糖類；尿素、尿素誘導体、安息香酸、安息香酸の塩等の有機物；木粉、コルク粉、トウモロコシ穂軸、クルミ殻、タバコ茎等の植物類；フライアッシュ、ホワイトカーボン（例えば、含水合成シリカ、無水合成シリカ、含水合成シリケート等）、肥料；等が挙げられる。

[0123] 液体担体としては、例えば、キシレン、アルキル (C_9 又は C_{10} 等) ベンゼン、フェニルキシリルエタン、アルキル (C_1 又は C_3 等) ナフタレン等の芳香族

炭化水素類；マシン油、ノルマルパラフィン、イソパラフィン、ナフテン等の脂肪族炭化水素類；ケロシン等の芳香族炭化水素と脂肪族炭化水素の混合物；エタノール、イソプロパノール、シクロヘキサノール、フェノキシエタノール、ベンジルアルコール等のアルコール；エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、ヘキシレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等の多価アルコール；プロピルセロソルブ、ブチルセロソルブ、フェニルセロソルブ、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノフェニルエーテル等のエーテル；アセトフェノン、シクロヘキサノン、 γ -ブチロラクトン等のケトン；脂肪酸メチルエステル、コハク酸ジアルキルエステル、グルタミン酸ジアルキルエステル、アジピン酸ジアルキルエステル、フタル酸ジアルキルエステル等のエステル；N-アルキル（C1、C8又はC12等）ピロリドン等の酸アミド；大豆油、アマニ油、ナタネ油、ヤシ油、綿実油、ヒマシ油等の油脂；ジメチルスルホキシド、水；等が挙げられる。

[0124] これら固体担体及び液体担体は単独で用いても2種以上を併用してもよい。

界面活性剤としては、例えば、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキル（モノ又はジ）フェニルエーテル、ポリオキシエチレン（モノ、ジ又はトリ）スチリルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロックコポリマー、ポリオキシエチレン脂肪酸（モノ又はジ）エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ヒマシ油エチレンオキサイド付加物、アセチレングリコール、アセチレンアルコール、アセチレングリコールのエチレンオキサイド付加物、アセチレンアルコールのエチレンオキサイド付加物、アルキルグリコシド等のノニオン性界面活性剤；アルキル硫酸エステル塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルスルホコハク酸

塩、ナフタレンスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸のホルマリン縮合物の塩、アルキルナフタレンスルホン酸のホルマリン縮合物の塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸又は燐酸エステル塩、ポリオキシエチレン（モノ又はジ）アルキルフェニルエーテル硫酸又は燐酸エステル塩、ポリオキシエチレン（モノ、ジ又はトリ）スチリルフェニルエーテル硫酸又は燐酸エステル塩、ポリカルボン酸塩（例えば、ポリアクリル酸塩、ポリマレイン酸塩、マレイン酸とオレフィンとの共重合物等）、ポリスチレンスルホン酸塩等のアニオン性界面活性剤；アルキルアミン塩、アルキル4級アンモニウム塩等のカチオン性界面活性剤；アミノ酸型、ベタイン型等の両性界面活性剤；シリコーン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤；等が挙げられる。

[0125] これら界面活性剤の含有量は、特に限定されるものではないが、本発明の製剤100質量部に対し、通常0.05～20質量部の範囲が望ましい。また、これら界面活性剤は、単独で用いても2種以上を併用してもよい。

本発明化合物の施用薬量は、適用場面、施用時期、施用方法、栽培作物等により差異は有るが、通常は、有効成分量として、ヘクタール（ha）当たり0.005～50kg程度が適当である。

一方、家畜及び愛玩動物としての哺乳動物及び鳥類の外部又は内部寄生虫の防除に、本発明化合物を使用するにあたっては、本発明化合物の有効量を製剤用添加物とともに、経口投与；注射（筋肉内、皮下、静脈内、腹腔内等）などの非経口投与；浸漬、スプレー、入浴、洗浄、滴下（pouring-on）及びスポッティング（spotting-on）、ダスティング（dusting）などの経皮投与；経鼻投与；等により投与することができる。本発明化合物はまた、細片、プレート、バンド、カラー、イヤーマーク（ear mark）、リム（limb）・バンド、標識装置などを用いた成形製品により投与できる。

投与にあたっては、本発明化合物を投与経路に適した任意の剤型とすることができる。

[0126] 本発明化合物を用いて外部又は内部寄生虫を駆除する場合、有効成分であ

る本発明化合物（１）の好ましい投与量は、防除すべき対象寄生虫の種類、投与される対象動物の種又は投与方法などにより左右されるが、通常は、投与する対象動物の体重当たり、 $0.01 \sim 100 \text{ mg/kg}$ 、好ましくは $0.01 \sim 50 \text{ mg/kg}$ である。特にイヌへの投与量は、対象となるイヌの種類又は年齢、あるいは防除する外部寄生虫によっても変わり得るが、対象となるイヌの生体重 1 kg 当たり、通常 $1 \sim 5000 \text{ mg/kg}$ であり、好ましくは $1 \sim 100 \text{ mg/kg}$ である。

本発明化合物の投与により外部又は内部寄生虫を駆除する場合、その投与間隔は、防除すべき対象寄生虫の種類、投与される対象動物の種又は投与方法などにより左右されるが、通常は、毎日～年１回の範囲で任意に設定することができる。好ましくは週１回～６ヶ月に１回であり、より好ましくは毎日（２４時間）、毎月、月１回、２か月に１回、３ヶ月に１回又は６ヶ月に１回である。

また、本発明化合物をイヌの外部寄生虫の防除に使用する場合、本発明化合物をイヌに投与するタイミングとして、例えば食餌開始３０分直前や食餌終了１２０分後のタイミングにてイヌに経口投与することが挙げられる。ここでいう食餌開始３０分前および食餌終了１２０分後とは、栄養摂取を目的にイヌに与えられた餌を摂食する行為を基準とする。例えばイヌの食餌時間が２０分である場合は、規定される時間は食事行為を基準として、食餌開始３０分前から食餌終了１２０分後の合計１７０分間となる。食餌中に一旦食餌を中断し、本発明化合物を経口投与した後に食餌を再開する場合も含む。尚、本明細書において食餌とは動物が餌を食する行為を意味する。

[0127] 一般にイヌの一日の食餌回数は犬種や年齢や習慣によって異なるが、通常は生後半年未満のイヌで１日３～４回、生後半年から１年未満のイヌで１日２～３回、１歳～５歳程度の成犬で１日２回、６歳以上の老犬で１日２～３回程度とされている。本発明において、食餌とは栄養を摂取することを目的とした摂食行為を意味し、所謂イヌの躰や訓練を目的に与える餌等を与える行為は含まない。

調製される任意の剤型としては、粉剤、粒剤、水和剤、ペレット、錠剤、大丸薬、カプセル剤、活性化合物を含む成形製品等の固体調製物；注射用液剤、経口用液剤、皮膚上又は体腔中に用いる液剤等の液剤調製物；滴下（Pour-on）剤、点下（Spot-on）剤、フロアブル剤、乳剤等の溶液調製物；軟膏剤、ゲル等の半固体調製物；などが挙げられる。

本発明化合物を経口投与する場合の剤型としては、例えば、錠剤（Tablets）、固型剤（Chewables）、カプセル剤（Capsules）、丸剤（Pills）、大丸剤（Boluses）、顆粒剤（Granules）、散剤（Powders）等の固体調製物；ペースト剤（Pastes）、ゲル剤（Gels）等の半固体調製物；ドリンク剤（Drinks）等の液体調製物；などが挙げられる。

[0128] また、経皮投与する場合の剤型としては、例えば、粉剤（Powders）等の固体調製物；クリーム剤（Cream）、軟膏剤（Salve and Ointment）、ペースト剤（Pastes）、ゲル剤（Gels）等の半固体調製物；スプレー剤（Spray）、エアゾール剤（Aerosols）、液剤（Solutions and Emulsions）、懸濁剤（Suspensions）、ローション剤（Lotions）等の液体調製物；などが挙げられる。

さらに、注射により投与する場合の剤型としては、例えば、液剤（Solutions and Emulsions）、懸濁剤（Suspensions）等の液体調製物などが挙げられ、経鼻投与する場合の剤型としては、例えば、エアゾール剤（Aerosols）等の液体調製物などが挙げられる。

また、畜舎等の動物の飼育環境に散布処理する場合の剤型としては、例えば、水和剤（Wettable powders）、粉剤（Dusts）、粒剤（Granules）などの固体調製物；乳剤（Emulsions）、フロアブル剤（Suspension concentrates）などの液体調製物；などが挙げられる。

尚、本発明の寄生虫防除剤に用いられる製剤は、これらの剤型のみに限定されるものではない。

[0129] 固体調製物は、そのまま経口投与するか、或いは水で希釈して、経皮投与、畜舎等の動物の飼育環境に散布処理するなどして用いることができる。

経口投与で用いられる固体調製物は、式（１）で表される化合物又はその

塩と、1種又は2種以上の経口投与に適した賦形剤及び結合剤、さらに、必要ならば滑沢剤、崩壊剤、染料、顔料などの生理学的に許容しうる添加剤とを混合し、所望の形状に成形することにより調製できる。

賦形剤及び結合剤としては、例えば、ラクトース、シュクロース、マンニトール、ソルビトール等の糖又は糖誘導体；トウモロコシ澱粉、コムギ澱粉、コメ澱粉、ジャガイモ澱粉等の澱粉；メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース等のセルロース又はセルロース誘導体；ゼイン、ゼラチン等のタンパク質又はタンパク質誘導体；ハチミツ、アラビアゴム糊、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン等の合成高分子化合物；等が挙げられる。

[0130] 滑沢剤としては、例えば、ステアリン酸マグネシウムなどが挙げられ、崩壊剤としては、例えば、セルロース、寒天、アルギン酸、架橋ポリビニルピロリジノン、炭酸塩などが挙げられる。

さらに、経口投与で用いられる固体調製物のうち、特にチュアブル剤などの固型剤の場合、投与する動物の好む味、食感、風味を付与する添加物も用いられるが、本発明の寄生虫防除剤組成物の固体調製物に用いられる担体及び添加剤は、これらのみに限定されるものではない。

液体調製物は、そのまま経皮又は注射によって投与するか、或いは飼料に混和して、経口投与、水で希釈して経口投与又は経皮投与、畜舎等の動物の飼育環境に散布処理する等して用いることができる。

注射用液剤は、静脈内、筋肉内及び皮下に投与できる。注射用液剤は、活性化合物を適当な溶媒に溶解させ、必要ならば可溶化剤、酸、塩基、緩衝用塩、酸化防止剤、保護剤等の添加剤を加えることにより調製できる。

[0131] 適当な溶媒としては、水、エタノール、ブタノール、ベンジルアルコール、グリセリン、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール、N-メチルピロリドン及びこれらの混合物、生理学的に許容しうる植物油、注射に適する合成油等が挙げられる。

可溶化剤としては、ポリビニルピロリドン、ポリオキシエチル化されたヒマシ油、ポリオキシエチル化されたソルビタンエステル等が挙げられる。

保護剤としては、ベンジルアルコール、トリクロロブタノール、p-ヒドロキシ安息香酸エステル、n-ブタノール等が挙げられる。

経口液剤は、直接又は希釈して投与することができる。注射用液剤と同様に調製することができる。

フロアブル剤、乳剤等は、直接又は希釈して、経皮的に、又は環境処理にて投与できる。

皮膚上で用いる液剤は、滴下し、広げ、すり込み、噴霧し、散布するか、又は浸漬（浸漬、入浴又は洗浄）により塗布することにより投与できる。これらの液剤は、注射用液剤と同様に調製できる。

[0132] 滴下(Pour-on)剤及び点下(Spot-on)剤は、皮膚の限定された場所に滴下するか、又は噴霧し、これにより活性化合物を皮膚に浸漬させ、全身的に作用させることができる。

滴下剤及び点下剤は、有効成分を適当な皮膚適合性溶媒又は溶媒混合物に溶解するか、懸濁させるか、又は乳化することにより調製できる。必要ならば、界面活性剤、着色剤、吸収促進物質、酸化防止剤、光安定剤、接着剤等の補助剤を加えてもよい。

適当な溶媒としては、水、アルカノール、グリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、グリセリン、ベンジルアルコール、フェニルエタノール、フェノキシエタノール、酢酸エチル、酢酸ブチル、安息香酸ベンジル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、アセトン、メチルエチルケトン、芳香族及び／又は脂肪族炭化水素、植物又は合成油、DMF（N，N-ジメチルホルムアミド）、流動パラフィン、軽質流動パラフィン、シリコーン、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン又は2，2-ジメチル-4-オキシメチレン-1，3-ジオキサランが挙げられる。

[0133] 吸収促進物質としては、DMSO（ジメチルスルホキシド）、ミリスチン

酸イソプロピル、ペラルゴン酸ジプロピレングリコール、シリコーン油、脂肪族エステル、トリグリセリド又は脂肪アルコールが挙げられる。

酸化防止剤には、亜硫酸塩、メタ重亜硫酸塩、アスコルビン酸、ブチルヒドロキシトルエン、ブチルヒドロキシアニソール又はトコフェロールが挙げられる。

乳剤は、経口投与、経皮投与又は注射として投与できる。乳剤は、有効成分を疎水性相又は親水性相に溶解させ、このものを適当な乳化剤により、必要ならば、さらに着色剤、吸収促進物質、保護剤、酸化防止剤、遮光剤、増粘物質等の補助剤と共に、他の相の溶媒と均質化することにより調製できる。

疎水性相（油）としては、パラフィン油、シリコーン油、ゴマ油、アーモンド油、ヒマシ油、合成トリグリセリド、ステアリン酸エチル、アジピン酸ジ-n-ブチル、ラウリル酸ヘキシル、ペラルゴン酸ジプロピレングリコール、分枝鎖状の短鎖長脂肪酸と鎖長C16～C18の飽和脂肪酸とのエステル、ミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、鎖長C12～C18の飽和脂肪アルコールのカプリル／カプリン酸エステル、ステアリン酸イソプロピル、オレイン酸オレイル、オレイン酸デシル、オレイン酸エチル、乳酸エチル、ワックス状脂肪酸エステル、フタル酸ジブチル、アジピン酸ジイソプロピル、イソトリデシルアルコール、2-オクチルドデカノール、セチルステアリルアルコール、オレイルアルコール等が挙げられる。

親水性相としては、水、プロピレングリコール、グリセリン、ソルビトール等が挙げられる。

[0134] 乳化剤としては、ポリオキシエチル化されたヒマシ油、ポリオキシエチル化されたモノオレフィン酸ソルビタン、モノステアリン酸ソルビタン、モノステアリン酸グリセリン、ステアリン酸ポリオキシエチル、アルキルフェノールポリグリコールエーテルなどの非イオン性界面活性剤；N-ラウリル-β-イミノジプロピオン酸二ナトリウム、レシチンなどの両性界面活性剤；ラウリル硫酸ナトリウム、脂肪アルコール硫酸エーテル、モノ／ジアルキル

ポリグリコールオルトリン酸エステルモノエタノールアミン塩などの陰イオン性界面活性剤；塩化セチルトリメチルアンモニウム等の陽イオン性界面活性剤；などが挙げられる。

他の補助剤としては、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ポリアクリレート、アルギネート、ゼラチン、アラビアゴム、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、メチルビニルエーテル、無水マレイン酸の共重合体、ポリエチレングリコール、ワックス、コロイド状シリカ等が挙げられる。

半固体調製物は、皮膚上に塗布するか、若しくは広げるか、又は体腔中に導入することにより投与できる。ゲルは、注射用液剤について上記したように調製した溶液に、軟膏状の粘稠性を有する透明な物質を生じさせるに十分なシクナーを加えることにより調製できる。

[0135] 次に、本発明化合物を用いる場合の製剤の配合例を示す。但し、本発明の配合例は、これらに限定されるものではない。尚、以下の配合例において、「部」は質量部を意味する。

〔水和剤〕

本発明化合物	0.1～80部
固体担体	5～98.9部
界面活性剤	1～10部
その他	0～5部

その他として、例えば、固結防止剤、分解防止剤等が挙げられる。

〔乳剤〕

本発明化合物	0.1～30部
液体担体	45～95部
界面活性剤	4.9～15部
その他	0～10部

その他として、例えば、展着剤、分解防止剤等が挙げられる。

[0136] 〔懸濁剤〕

本発明化合物	0. 1 ~ 7 0 部
液体担体	1 5 ~ 9 8. 8 9 部
界面活性剤	1 ~ 1 2 部
その他	0. 0 1 ~ 3 0 部

その他として、例えば、凍結防止剤、増粘剤等が挙げられる。

〔顆粒水和剤〕

本発明化合物	0. 1 ~ 9 0 部
固体担体	0 ~ 9 8. 9 部
界面活性剤	1 ~ 2 0 部
その他	0 ~ 1 0 部

その他として、例えば、結合剤、分解防止剤等が挙げられる。

[0137] 〔液剤〕

本発明化合物	0. 0 1 ~ 7 0 部
液体担体	2 0 ~ 9 9. 9 9 部
その他	0 ~ 1 0 部

その他として、例えば、凍結防止剤、展着剤等が挙げられる。

〔粒剤〕

本発明化合物	0. 0 1 ~ 8 0 部
固体担体	1 0 ~ 9 9. 9 9 部
その他	0 ~ 1 0 部

その他として、例えば、結合剤、分解防止剤等が挙げられる。

〔粉剤〕

本発明化合物	0. 0 1 ~ 3 0 部
固体担体	6 5 ~ 9 9. 9 9 部
その他	0 ~ 5 部

その他として、例えば、ドリフト防止剤、分解防止剤等が挙げられる。

[0138] 次に、本発明化合物を有効成分とする製剤例をより具体的に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

〔配合例１〕水和剤

本発明化合物 N o. １－１－００１ a	２０部
パイロフィライト	７４部
ソルポール ５０３ ９	４部

（東邦化学工業社商品名、非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤との混合物）

カープレックス # ８０ D	２部
----------------	----

（塩野義製薬社商品名、合成含水珪酸）

以上を均一に混合粉砕して水和剤とする。

[0139] 〔配合例２〕乳剤

本発明化合物 N o. １－１－００１ a	５部
キシレン	７５部
N－メチルピロリドン	１５部
ソルポール ２６８ ０	５部

（東邦化学工業社商品名、非イオン性界面活性剤とアニオン性界面活性剤との混合物）

以上を均一に混合して乳剤とする。

[0140] 〔配合例３〕懸濁剤

本発明化合物 N o. １－１－００１ a	２５部
アグリゾール S－７１ ０	１０部

（商品名、非イオン性界面活性剤：花王社製）

ルノックス １０００ C	０．５部
--------------	------

（東邦化学工業社商品名、アニオン性界面活性剤）

キサンタンガム	０．２部
---------	------

水	６４．３部
---	-------

以上を均一に混合した後、湿式粉砕して懸濁剤とする。

[0141] 〔配合例４〕顆粒水和剤

本発明化合物 N o. １－１－００１ a	７５部
-----------------------	-----

ハイテノールNE-15 5部

(第一工業製薬社商品名、アニオン性界面活性剤)

バニレックスN 10部

(日本製紙社商品名、アニオン性界面活性剤：)

カープレックス#80D 10部

(塩野義製薬社商品名、合成含水珪酸：)

以上を均一に混合粉碎した後、少量の水を加えて攪拌混合し、押出式造粒機で造粒し、乾燥して、顆粒水和剤とする。

[0142] 〔配合例5〕粒剤

本発明化合物No. 1-1-001a 5部

ベントナイト 50部

タルク 45部

以上を均一に混合粉碎した後、少量の水を加えて攪拌混合し、押出式造粒機で造粒し、乾燥して粒剤とする。

[0143] 〔配合例6〕粉剤

本発明化合物No. 1-1-001a 3部

カープレックス#80D 0.5部

(塩野義製薬社商品名、合成含水珪酸：)

カオリナイト 95部

リン酸ジイソプロピル 1.5部

以上を均一に混合粉碎して粉剤とする。

使用に際しては、上記製剤を、水で1～10000倍に希釈、又は希釈せずに直接散布する。

[0144] 〔配合例7〕水和剤調製物

本発明化合物No. 1-1-001a 25部

ジイソブチルナフタレンスルホン酸ナトリウム 1部

n-ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム 10部

アルキルアリール ポリグリコールエーテル 12部

ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物のナトリウム塩	3 部
エマルジョン型シリコーン	1 部
二酸化ケイ素	3 部
カオリン	4 5 部
[0145] 〔配合例 8〕 水溶性濃厚剤調製物	
本発明化合物 N o. 1-1-001 a	2 0 部
ポリオキシエチレンラウリルエーテル	3 部
ジオクチルスルホコハク酸ナトリウム	3. 5 部
ジメチルスルホキシド	3 7 部
2-プロパノール	3 6. 5 部
〔配合例 9〕 噴霧用液剤	
本発明化合物 N o. 1-1-001 a	2 部
ジメチルスルホキシド	1 0 部
2-プロパノール	3 5 部
アセトン	5 3 部
[0146] 〔配合例 1 0〕 経皮投与用液剤	
本発明化合物 N o. 1-1-001 a	5 部
ヘキシレングリコール	5 0 部
イソプロパノール	4 5 部
〔配合例 1 1〕 経皮投与用液剤	
本発明化合物 N o. 1-1-001 a	5 部
プロピレングリコールモノメチルエーテル	5 0 部
ジプロピレングリコール	4 5 部
〔配合例 1 2〕 経皮投与（滴下）用液剤	
本発明化合物 N o. 1-1-001 a	2 部
軽質流動パラフィン	9 8 部
〔配合例 1 3〕 経皮投与（滴下）用液剤	
本発明化合物 N o. 1-1-001 a	2 部

軽質流動パラフィン	58部
オリーブ油	30部
ODO-H	9部
信越シリコーン	1部

[0147] また、本発明化合物を農薬として使用する場合には、必要に応じて製剤時又は散布時に、他種の除草剤、各種殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、植物生長調節剤、共力剤、肥料、土壌改良剤等と混合施用しても良い。

特に、他の農薬或いは植物ホルモンと混合施用することにより、施用薬量の低減による低コスト化、混合薬剤の相乗作用による殺虫スペクトラムの拡大やより高い有害生物防除効果が期待できる。この際、同時に複数の公知農薬との組み合わせも可能である。

本発明化合物と混合使用する農薬の種類としては、例えば、ザ・ペスティサイド・マニュアル (The Pesticide Manual) 15版、2009年に記載されている化合物等が挙げられる。具体的にその一般名を例示すれば、次の通りであるが、必ずしもこれらのみに限定されるものではない。

[0148] 殺菌剤：アシベンゾラルーS-メチル (acibenzolar-S-methyl)、アシルアミノベンザミド (acylaminobenzamide)、アシペタックス (acypetacs)、アルジモルフ (aldimorph)、アメトクトラジン (ametoctradin)、アミスルブロム (amisulbrom)、アンバム (amobam)、アムプロピルホス (ampropyfos)、アニラジン (anilazine)、アザコナゾール (azaconazole)、アジチラム (azithiram)、アゾキシストロビン (azoxystrobin)、バリウムポリサルファイド (barium polysulfide)、ベナラキシル (benalaxyl)、ベナラキシルーM (benalaxyl-M)、ベノダニル (benodanil)、ベノミル (benomyl)、ベンキノックス (benquinox)、ベントルロン (bentaluron)、ベンチアバリカルブーイソプロピル (benthiavalicarb-isopropyl)、ベンチアゾール (benthiazole)、ベンザマクリル (benzamacril)、ベンズアモルフ (benzamorf)、ベンゾビンジフルピル (benzovindiflupyr)、ベトキサジン (bethoxazine)、ピナパクリル (binapacryl)、ビフェニル (biphenyl)、ビテルタノ

ール (bitertanol)、ブラストサイジン S (blasticidin-S)、ビキサフェン (bixafen)、ボルドー液 (bordeaux mixture)、ボスカリド (boscalid)、ブロムコナゾール (bromuconazole)、ブピリメート (bupirimate)、ブチオベート (buthiobate)、石灰硫黄合剤 (calcium polysulfide)、カルシウムポリスルフィド (calcium polysulfide)、キャプタフォル (captafol)、キャプタン (captan)、カルプロパミド (carpropamid)、カルバモルフ (carbamorph)、カルベンダジム (carbendazim)、カルボキシシン (carboxin)、カルボン (carvone)、チェシュントミクスチャ (cheshunt mixture)、キノメチオネート (chinomethionat)、クロベンチアゾン (chlobenthiazole)、クロラニフォルメタン (chloraniformethane)、クロラニル (chloranil)、クロルフェナゾール (chlorfenazol)、クロロネブ (chloroneb)、クロロピクリン (chloropicrin)、クロロタロニル (chlorothalonil)、クロロキノックス (chlorquinox)、クロゾリネート (chlozolate)、クリムバゾール (climbazole)、クロトリマゾール (clotrimazole)、銅酢酸塩 (copper acetate)、塩基性炭酸銅 (copper carbonate, basic)、水酸化第二銅 (copper hydroxide)、ナフテン酸銅 (copper naphthenate)、オレイン酸銅 (copper oleate)、塩基性塩化銅 (copper oxychloride)、硫酸銅 (copper sulfate)、塩基性硫酸銅 (copper sulfate, basic)、銅亜鉛クロム酸塩 (copper zinc chromate)、クフラネブ (cufraneb)、クモキシストロビン (coumoxystrobin)、クプロバム (cuprobam)、シアゾファミド (cyazofamid)、シクラフルアミド (cyclafuramid)、シクロヘキシミド (cycloheximide)、シフルフェナミド (cyflufenamid)、シモキサニル (cymoxanil)、サイペンダゾール (cypendazole)、シプロコナゾール (cyproconazol)、シプロジニル (cyprodinil)、シプロフラム (cyprofuram)、ダゾメット (dazomet)、デバカルブ (debacarb)、デカフェンチン (decafent in)、デハイドロアセテイト (dehydroacetic acid)、ジクロフルアニド (dichlofluanid)、ジクロン (dichlone)、ジクロロフェン (dichlorophen)、ジクロゾリン (dichlozoline)、ジクロブトラゾール (diclobutrazol)、

ジクロシメット (diclocymet)、ジクロメジン (diclomedine)、ジクロラン (dicloran) など。

[0149] 殺菌剤 (続き) : ジエトフェンカルブ (diethofencarb)、ジフェノコナゾール (difenoconazole)、ジフルメトリム (diflumetorim)、ジメチリモール (dimethirimol)、ジメトモルフ (dimethomorph)、ジモキシストロビン (dimoxystrobin)、ジニコナゾール (diniconazole)、ジニコナゾール-M (diniconazole-M)、ジノブトン (dinobuton)、ジノカップ (dinocap)、ジノカップ-4 (dinocap-4)、ジノカップ-6 (dinocap-6)、ジノクトン (dinocton)、ジノスルフォン (dinosulfon)、ジノテルボン (dinoterbon)、ジフェニルアミン (diphenylamine)、ジピメチトロネ (dipymetitrone)、ジピリチオン (dipyrithione)、ジタリムホス (ditalimfos)、ジチアノン (dithianon)、ドデモルフ酢酸塩 (dodemorph-acetate)、ドジン (dodine)、ドラゾクソロン (drazoxolon)、エジフェンホス (edifenphos)、エネストロビン (enestrobin)、エノキサストロビン (enoxastrobin)、エポキシコナゾール (epoxiconazole)、エタコナゾール (etaconazole)、エタボキサム (ethaboxam)、エテム (etem)、エチリモール (ethirimol)、エトキシキン (ethoxyquin)、エトリジアゾール (etridiazole)、ファミキサドン (famoxadone)、フェナリモール (fenarimol)、フェンブコナゾール (fenbuconazole)、フェナミドン (fenamidone)、フェナミノスルフ (fenaminosulf)、フェナミンストロビン (fenaminstrobin)、フェナパニル (fenapanil)、フェンダゾスラム (fendazosulam)、フェンフラム (fenfuram)、フェンヘキサミド (fenhexamid)、フェニトロパン (fenitropan)、フェノキサニル (fenoxanil)、フェンピクロニル (fenpiclonil)、フェンプロピジン (fenpropidin)、フェンピラザミン (fenpyrazamine)、フェンプロピモルフ (fenpropimorph)、フェンチン (fentin)、ファーバム (ferbam)、フェリムゾン (ferimzone)、フルアジナム (fluazinam)、フルジオキシソニル (fludioxonil)、フルフェノキシストロビン (flufenoxystrobin)、フルメトベル (flumetover)、フルモルフ (flumorph)、フルオピコリド (fluopicol

ide)、フルオピラム (fluopyram)、フルオルイミド (fluoroimide)、フル
オトリマゾール (fluotrimazole)、フルオキサストロビン (fluoxastrobin
)、フルキンコナゾール (fluquinconazole)、フルシラゾール (flusilazol
e)、フルスルファミド (flusulfamide)、フルチアニル (flutianil)、フ
ルトラニル (flutolanil)、フルトリアフォール (flutriafol)、フルキサ
ピロキサド (fluxapyroxad)、フォルペット (folpet)、ホセチルーアルミ
ニウム (fosetyl-aluminium)、フサライド (fthalide)、フベリダゾール (
fuberidazole)、フララキシル (furalaxyl)、フラメトピル (furametpyr)
、フルカルバニル (furcarbanil)、フルコナゾール (furconazole)、フル
コナゾールーシス (furconazole-cis)、フルメシクロックス (furmecyclo
x)、フルファネート (furphanate)、グリオジン (glyodin)、グリセオフル
ビン (griseofulvin)、グアザチン (guazatine)、ハラクリネイト (halacr
inate)、ヘキサクロロベンゼン (hexachlorobenzene)、ヘキサコナゾール
(hexaconazole)、ヘキシルチオフォス (hexylthiofos)、ハイドロキシキ
ノリン サルフェイト (8-hydroxyquinoline sulfite)、ヒメキサゾール (h
ymexazol)、イマザリル (imazalil)、イミベンコナゾール (imibenconazol
e)、イミノクタジンーアルベシル酸塩 (iminooctadine-albesilate)、イミ
ノクタジン酢酸塩 (iminooctadine-triacetate)、イプコナゾール (ipconazo
le)、イプロベンホス (iprobenfos)、イプロジオン (iprodione)、イプロ
バリカルブ (iprovalicarb)、イソフェタミド (isofetamid)、イソプロチ
オラン (isoprothiolane)、イソピラザム (isopyrazam)、イソチアニル (i
sotianil)、イソバレジオン (isovalledione) など。

[0150] 殺菌剤(続き): カスガマイシン (kasugamycin)、クレソキシムーメチル
(kresoxim-methyl)、ラミナリン (laminarin)、マンカップー (mancopper
)、マンコゼブ (mancozeb)、マンデストロビン (mandestrobin)、マンジ
プロパミド (mandipropamid)、マンネブ (maneb)、メベニル (mebenil)、
メカルビンジド (mecarbinzid)、メパニピリム (mepanipyrim)、メプチル
ジノカップ (meptyldinocap)、メプロニル (mepronil)、メタラキシル (me

talaxyl)、メタラキシルーM (metalaxyl-M)、メタム (metam)、メタゾキシ
ソロン (metazoxolon)、メトコナゾール (metconazole)、メタスルホカル
ブ (methasulfocarb)、メトフロキサム (methfuroxam)、メチルイソチオシ
アネイト (methyl isothiocyanate)、メチラム (metiram)、メトミノスト
ロビン (metominostrobin)、メトラフェノン (metrafenone)、メトスルフ
オバックス (metsulfovax)、ミルネブ (milneb)、ミクロブタニル (myclob
utanil)、ミクロゾリン (myclozolin)、ナバム (nabam)、ナタマイシン (n
atamycin)、ニッケルビス (ジメチルジチオカーバメート) (nickel bis (d
imethyldithiocarbamate))、ニトロスチレン (nitrostyrene)、ニトロタ
ールーイソプロピル (nitrothal-isopropyl)、ヌアリモル (nuarimol)、オ
ーシーエイチ (OCH)、オクチリノン (octhilinone)、オフレース (ofurace
)、オリサストロビン (orysastrobin)、オキサチアピプロリン (oxathiapi
prolin)、オキサジキシル (oxadixyl)、8-ヒドロキシキノリン銅 (oxine
copper)、オキシカルボキシ (oxycarboxin)、オキスポコナゾールフマル
酸塩 (oxpoconazole fumarate)、ペフラゾエート (pefurzoate)、ペンコナ
ゾール (penconazole)、ペンフルフェン (penflufen)、ペンシクロン (pen
cycuron)、ペンチオピラド (penthiopyrad)、オルソフェニルフェノール (o-phenylphenol)、フォスジフェン (phosdiphen)、ピカルブトラゾクス (p
icarbutrazox)、ピコキシストロビン (picoxystrobin)、ピペラリン (pipe
ralin)、ポリカーバメート (polycarbamate)、ポリオキシ (polyoxins)
、ポリオキシノーD (polyoxorim)、ポタシウムアザイド (potassium azide
)、炭酸水素カリウム (potassium hydrogen carbonate)、プロキナジド (p
roquinazid)、プロベナゾール (probenazole)、プロクロラズ (prochloraz
)、プロシミドン (procymidone)、プロパモカルブ塩酸塩 (propamocarb hy
drochloride)、プロピコナゾール (propiconazole)、プロピネブ (propine
b)、プロチオカルブ (prothiocarb)、プロチオコナゾール (prothioconazo
le)、ピジフルメトフェン (pydiflumetofen)、ピラカルボリド (pyracarbo
lid)、ピラクロストロビン (pyraclostrobin)、ピラメトストロビン (pyra

metostrobin)、ピラオキシストロビン (pyraoxystrobin)、ピラジフルミド (pyraziflumid)、ピラゾホス (pyrazophos)、ピリベンカルブメチル (pyribencarb-methyl)、ピリジニトリル (pyridinitril)、ピリフェノックス (pyrifenox)、ピリメタニル (pyrimethanil)、ピリミノストロビン (pyriminostrobin)、ピリモルフ (pyrimorph)、ピリオフェノン (pyrioifenone)、ピリソキサゾール (pyrisoxazole)、ピロキロン (pyroquilon)、ピロキシクロル (pyroxychlor)、ピロキシフル (pyroxyfur)、キノメチオネート (quinomethionate)、キノキシフェン (quinoxifen)、キントゼン (quintozen e)、キナセトール・スルフェート (quinacetol-sulfate)、キナザミド (quinazamid)、キンコナゾール (quinconazole)、ラベンザゾール (rabenzazole) 及びバチルス ズブチリス (*Bacillus subtilis*, Strain:D747, FZB24, GB03, HAI0404, MBI600, QST713, Y1336等) など。

[0151] 殺菌剤(続き): セダキサン (sedaxane)、アジ化ナトリウム (sodium azide)、炭酸水素ナトリウム (sodium hydrogen carbonate)、次亜塩素酸ナトリウム (sodium hypochlorite)、硫黄 (sulfur)、スピロキサミン (spiroxamine)、サリチルアニリド (salicylanilide)、シルチオフアム (silthiofam)、シメコナゾール (simeconazole)、テブコナゾール (tebuconazole)、テブフロキン (tebufloquin)、テクナゼン (tecnazene)、テコラム (tecoram)、テトラコナゾール (tetraconazole)、チアベンダゾール (thiabendazole)、チアジフルオール (thiadifluor)、チシオフエン (thicyofen)、チフルザミド (thifluzamide)、チオクロルフエンフィム (thiochlorfenp him)、チオフアネート (thiophanate)、チオフアネートーメチル (thiophanate-methyl)、チオキノックス (thioquinox)、チウラム (thiram)、チアジニル (tiadinil)、チオキシミド (tioxyimid)、トルクロホスーメチル (tolclofos-methyl)、トルプロカルブ (tolprocarb)、トリルフルアニド (tolylfluanid)、トリアジメホン (triadimefon)、トリアジメノール (toriadimenol)、トリアミフォス (triamiphos)、トリアリモル (triarimol)、トリアゾキシド (triazoxide)、トリアズブチル (triazbutyl)、トリブチル

チンオキサイド (tributyltin oxide)、トリクラミド (trichlamide)、トリシクラゾール (tricyclazole)、トリデモルフ (tridemorph)、トリフロキシストロビン (trifloxystrobin)、トリフルミゾール (triflumizole)、トリホリン (triforine)、トリクロピリカルブ (triclopyricarb)、トリチコナゾール (triticonazole)、バリダマイシン (validamycin)、バリフェナレート (valifenalate)、ビンクロゾリン (vinclozolin)、ザリルアミド (zarilamide)、硫酸亜鉛 (zinc sulfate)、ジネブ (zineb)、ジラム (ziram)、ゾキサミド (zoxamide)、シイタケ菌糸体抽出物、シイタケ子実体抽出物、NF-180 (試験名)、MIF-1002 (試験名)、S-2399 (試験名) 及び AKD-5195 (試験名) など。

[0152] 殺バクテリア剤：ベンザルコニウムクロライド (benzalkonium chloride)、ビチオノール (bithionol)、ブロナポール (bronopol)、クレゾール (cresol)、ホルムアルデヒド (formaldehyde)、ニトラピリン (nitrapyrin)、オキシリニックアシド (oxolinic acid)、オキシテトラサイクリン (oxytetracycline)、ストレプトマイシン (streptomycin) 及び テクロフタラム (tecloftalam) など。

殺線虫剤：アルドキシカルブ (aldoxycarb)、ベンクロチアズ (benclothiaz)、カズサホス (cadusafos)、デービーシーピー (DBCP)、ジクロフェンチオン (dichlofenthion)、デーエスピー (DSP)、エトプロホス (ethoprophos)、フェナミホス (fenamiphos)、フェンスルホチオン (fensulfothion)、フルアザインドリジン (fluazaindolizine)、フルエンスルホン (fluen sulfone)、ホスチアゼート (fosthiazate)、フォスチエタン (fosthietan)、イミシアホス (imicyafos)、イサミドホス (isamidofos)、イサゾホス (isazofos)、オキサミル (oxamyl)、チオキサザフェン (thiaxazafen)、チオナジン (thionazin)、チオキサザフェン (tioxazafen)、BYI-1921 (試験名) 及び MAI-08015 (試験名) など。

[0153] 殺ダニ剤：アセキノシル (acequinocyl)、アクリナトリン (acrinathrin)、アミドフルメット (amidoflumet)、アミトラズ (amitraz)、アゾシク

ロチン (azocyclotin)、BCI-033 (試験名)、ベンゾキシメート (benzoximate)、ビフェナゼート (bifenazate)、ブロモプロピレート (bromopropylate)、チノメチオネート (chinomethionat)、クロロベンジラート (chlorobezilate)、クロフェンテジン (clofentezine)、シエノピラフェン (cyenopyrafen)、シフルメトフェン (cyflumetofen)、サイヘキサチン (cyhexatine)、ジコホール (dicofol)、ジエノクロル (dienochlor)、ジフロビダジン (diflovidazin)、デーエヌオーシー (DNOC)、エトキサゾール (etoxazole)、フェナザキン (fenazaquin)、フェンブタチンオキシド (fenbutatin oxide)、フェノチオカルブ (fenothiocarb)、フェンプロパトリン (fenpropathrin)、フェンピロキシメート (fenpyroximate)、フルアクリピリム (fluacrypyrim)、ハルフェンプロックス (halfenprox)、ヘキシチアゾクス (hexythiazox)、ミルベメクチン (milbemectin)、プロパルギット (propargite)、ピフルブミド (pyflubumide)、ピリダベン (pyridaben)、ピリミジフェン (pyrimidifen)、S-1870 (試験名)、スピロジクロフェン (spirodiclofen)、スピロメシフェン (spyromesifen)、CL900167 (試験名)、テブフェンピラド (tebufenpyrad) 及びNA-89 (試験名) など。

[0154] 殺虫剤：アバメクチン (abamectin)、アセフェート (acephate)、アセタミピリド (acetamipirid)、アフィドピロペン (afidopyropen)、アフォクソラネル (afoxolaner)、アラニカルブ (alanycarb)、アルジカルブ (aldicarb)、アレスリン (allethrin)、アザメチホス (azamethiphos)、アジンホスーエチル (azinphos-ethyl)、アジンホスーメチル (azinphos-methyl)、バチルスチューリンゲンシス (bacillus thuringiensis)、ベンダイオカルブ (bendiocarb)、ベンフルトリン (benfluthrin)、ベンフラカルブ (benfuracarb)、ベンスルタップ (bensultap)、ビフェントリン (bifenthrin)、バイオアレスリン (bioallethrin)、ビオレスメトリン (bioresmethrin)、ビストリフルロン (bistrifluron)、ブロフラニリド (broflanilide)、ブプロフェジン (buprofezin)、ブトカルボキシム (butocarboxim)、カル

バリル (carbaryl)、カルボフラン (carbofuran)、カルボスルファン (carbosulfan)、カルタップ (cartap)、クロルアントラニリプロール (chlorantraniliprole)、クロルエトキシホス (chlorethoxyfos)、クロルフェナピル (chlorfenapyr)、クロルフェンビンホス (chlorfenvinphos)、クロルフルアズロン (chlorfluazuron)、クロルメホス (chlormephos)、クロロプラレスリン (chloroprallethrin)、クロルピリホス (chlorpyrifos)、クロピリホス—メチル (chlorpyrifos-methyl)、クロマフェノジド (chromafenozide)、クロチアニジン (clothianidin)、シアノホス (cyanophos)、シアントラニリプロール (cyantraniliprole)、シクラニリプロール (cyclaniliprole)、シクロプロトリン (cycloprothrin)、シフルメトフェン (cyflumetofen)、シフルトリン (cyfluthrin)、ベーターシフルトリン (beta-cyfluthrin)、シハロジアミド (cyhalodiamide)、シハロトリン (cyhalothrin)、ガンマーシハロトリン (gamma-cyhalothrin)、ラムダーシハロトリン (lambda-cyhalothrin)、シペルメトリン (cypermethrin)、アルファ—シペルメトリン (alpha-cypermethrin)、ベーターシペルメトリン (beta-cypermethrin)、ゼターシペルメトリン (zeta-cypermethrin)、シフェノトリン (cyphenothrin)、シロマジン (cyromazine)、デルタメトリン (deltamethrin)、ジアクロデン (diaclofen)、ジアフェンチウロン (diafenthiuron)、ダイアジノン (diazinon)、ジクロロメゾチアズ (dicloromezotiaz)、ジクロルボス (dichlorvos)、ジフルベンズロン (diflubenzuron)、ジメフルトリン (dimefluthrin)、ジメチルビンホス (dimethylvinphos)、ジノテフラン (dinotefuran)、ジオフェノラン (diofenolan)、ジスルフォトン (disulfoton)、ジメトエート (dimethoate)、エマメクチンベンゾエート (emamectin-benzoate)、エンペントリン (empenthrin)、エンドスルファン (endosulfan)、アルファ—エンドスルファン (alpha-endosulfan)、イーピーエヌ (EPN)、エスフェンバレレート (esfenvalerate)、エチオフエンカルブ (ethiofencarb)、エチプロール (ethiprole)、エトフェンプロックス (etofenprox)、エトリムホス (etrimfos)、フェニトロチオン (fenitrothion)、フ

エノブカルブ (fenobucarb)、フェノキシカルブ (fenoxycarb)、フェンプロパトリン (fenpropathrin)、フェンチオン (fenthion)、フェンバレレート (fenvalerate)、フィプロニル (fipronil)、フロニカミド (flonicamid)、フルアズロン (fluazuron)、フルベンジアミド (flubendiamide)、フルシクロクスロン (flucycloxuron)、フルシトリネート (flucythrinate)、フルフェネリム (flufenerim)、フルフェノクスロン (flufenoxuron)、フルフェンプロックス (flufenprox)、フルメトリン (flumethrin)、フルラネル (fluralaner)、フルバリネート (fluvalinate)、タウフルバリネート (tau-fluvalinate)、ホノホス (fonophos)、ホルメタネート (formetanate)、フォルモチオン (formothion)、フラチオカルブ (furathiocarb)、フルフィプロール (flufiprole)、フルヘキサホン (fluhexafon)、フルピラジフロン (flupyradifurone)、フロメトキン (flometoquin) など。

[0155] 殺虫剤 (続き) : ハロフェノジド (halofenozide)、ヘプタフルトリン (heptafluthrin)、ヘキサフルムロン (hexaflumuron)、ヒドラメチルノン (hydramethylnon)、イミダクロプリド (imidacloprid)、イミプロトリン (imiprothrin)、イソフェンホス (isofenphos)、インドキサカルブ (indoxacarb)、インドキサカルブーMP (indoxacarb-MP)、イソプロカルブ (isoprocarb)、イソキサチオン (isoxathion)、カップービフェントリン (kappa-bifenthrin)、カップーテフルトリン (kappa-tefluthrin)、レピメクチン (lepimectin)、ルフエヌロン (lufenuron)、マラチオン (malathion)、メペルフルスリン (meperfluthrin)、メタフルミゾン (metaflumizone)、メタルデヒド (metaldehyde)、メタミドホス (methamidophos)、メチダチオン (methidathion)、メタクリホス (methacrifos)、メタルカルブ (metalcarb)、メソミル (methomyl)、メソプレン (methoprene)、メトキシクロル (methoxychlor)、メトキシフェノジド (methoxyfenozide)、臭化メチル (methyl bromide)、メトフルトリン (metofluthrin)、イプシロンーメトフルトリン (epsilon-metofluthrin)、モムフルオロトリン (momfluorothrin)、イプシロンーモムフルオロトリン (epsilon-momfluorothrin)、モノク

ロトホス (monocrotophos)、ムスカリア (muscalure)、ニテンピラム (nit enpyram)、ノバルロン (novaluron)、ノビフルムロン (noviflumuron)、オメトエート (omethoate)、オキシデメトン–メチル (oxydemeton-methyl)、オキシデプロホス (oxydeprofos)、パラチオン (parathion)、パラチオン–メチル (parathion-methyl)、ペンタクロロフェノール (pentachloro phenol)、ペルメトリン (permethrin)、フェノトリン (phenothrin)、フェントエート (phenthoate)、ホキシム (phoxim)、ホレート (phorate)、ホサロン (phosalone)、ホスメット (phosmet)、ホスファミドン (phosphamidon)、ピリミカーブ (pirimicarb)、ピリミホス–メチル (pirimiphos-methyl)、プロフェノホス (profenofos)、プロフルトリン (profluthrin)、プロチオホス (prothiofos)、プロパホス (propaphos)、プロトリフェンブト (protrifenbute)、ピメトロジン (pymetrozine)、ピラクロホス (pyraclofos)、ピレトリン (pyrethrins)、ピリダリル (pyridalyl)、ピリフルキナゾン (pyrifluquinazon)、ピリプロール (pyriprole)、ピラフルプロール (pyrafluprole)、ピリプロキシフェン (pyriproxifen)、レスメトリン (resmethrin)、ロテノン (rotenone)、S I – O 4 O 5 (試験名)、スルプロホス (sulprofos)、シラフルオフエン (silafluofen)、スピネトラム (spinetoram)、スピノサド (spinosad)、スピロメシフェン (spiromesifen)、スピロテトラマート (spirotetramat)、スルホキサフロル (sulfoxaflor)、スルホテップ (sulfotep)、S Y J – 1 5 9 (試験名)、テブフェノジド (tebfenozide)、テフルベンズロン (teflubenzuron)、テフルトリン (tefluthorin)、テルブホス (terbufos)、テトラクロロビンホス (tetrachlorvinphos)、テトラメトリン (tetramethrin)、d – T – 8 0 – フタルスリン (d-tetramethrin)、テトラメチルフルスリン (tetramethylfluthrin)、テトラニリプロール (tetraniliprole)、チアクロプリド (thiacloprid)、チオシクラム (thiocyclam)、チオジカルブ (thiodicarb)、チアメトキサム (thiamethoxam)、チオフアノックス (thiofanox)、チオメトン (thiometon)、トルフェンピラド (tolfenpyrad)、トラロメトリン (tralome

thrin)、トランスフルトリン(transfluthrin)、トリアザメート(triazamate)、トリクロルホン(trichlorfon)、トリアズロン(triazuron)、トリフルメゾピリム(triflumezopyrim)、トリフルムロン(triflumuron)、バミドチオン(vamidothion)、フルキサメタミド(fluxametamide)、M I E-1209(試験名)及びME5382(試験名)、プラジクアンテル(Praziquantel)、フェバンテル(Febantel)など。

実施例

[0156] 以下に、本発明化合物の合成例及び試験例について実施例を挙げ、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらによって限定して解釈されるものではない。

以下で使用された中圧分取液体クロマトグラフィーは、中圧分取装置(Y F L C-W p r e p、山善社製、流速18ml/min、シリカゲル40μmのカラム)である。

また、以下に記載のプロトン核磁気共鳴スペクトル(以下、¹H-NMRと記載する。)のケミカルシフト値は、基準物質としてMe₄Si(テトラメチルシラン)を用い、重クロロホルム溶媒中で、300MHz(機種;JNM-E C X 300又はJNM-E C P 300、J E O L 社製)にて測定した。

¹H-NMRのケミカルシフト値における記号は、下記の意味を表す。

s:シングレット、d:ダブレット、dd:ダブルダブレット、t:トリプレット、q:カルテット、m:マルチプレット

[0157] 合成例1:2-[6-クロロ-3-(エチルチオ)ピラゾロ[1,5-a]ピリジン-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン(本発明化合物No.1-1-001b)の合成

工程1:6-クロロ-N-[2-(メチルアミノ)-5-(トリフルオロメチル)ピリジン-3-イル]ピラゾロ[1,5-a]ピリジン-2-カルボキシアミドの合成

N²-メチル-5-(トリフルオロメチル)ピリジン-2,3-ジアミン5

84 mg 及びピリジン 5 ml の混合溶液に、室温にて、6-クロロピラゾロ [1, 5-a] ピリジン-2-カルボン酸 500 mg、1-エチル-3-(3-ジメチルアミノプロピル) カルボジイミド塩酸塩 975 mg 及び4-ジメチルアミノピリジン 31 mg を順次添加した。添加終了後、該混合物を室温にて18時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水 10 ml を添加し、析出した固体を、濾過によりろ別することで、目的物 500 mg を得た。このものは、さらなる精製を行うことなく、このまま次の工程2に用いた。

[0158] 工程2：2-(6-クロロピラゾロ [1, 5-a] ピリジン-2-イル)-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジンの合成

工程1で得られたその目的物 500 mg 及び酢酸 5 ml の混合溶液を、加熱還流下にて3時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に、室温にて水 10 ml を添加した。析出した固体を、ろ過することで、目的物 306 mg を茶色固体として得た。

融点：238～240℃

¹H-NMR(CDCl₃) : δ 8.75-8.65(m, 1H), 8.65-8.55(m, 1H), 8.35-8.25(m, 1H), 7.65-7.55(m, 1H), 7.40-7.35(m, 1H), 7.20(dd, J=9.6, 1.8Hz, 1H), 4.38(s, 3H).

[0159] 工程3：2-[6-クロロ-3-(エチルチオ)ピラゾロ [1, 5-a] ピリジン-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジン (本発明化合物 No. 1-1-001b) の合成

N-クロロスクシンイミド 929 mg 及び1, 2-ジクロロエタン 6 ml の混合溶液に、-30℃にて、エタンチオール 540 mg を添加した。添加終了後、該混合物を室温にて1時間攪拌した。攪拌終了後、該反応混合物をセライトを用いてろ過し、セライトを1, 2-ジクロロエタン 2 ml で洗浄した。得られたろ液及び洗浄液に、室温にて、工程2で得られたその目的物 306 mg を添加した。添加終了後、該混合物を加熱還流下にて6時間攪拌

した。反応終了後、該反応混合物に水 10 ml を添加し、クロロホルム (10 ml × 2) にて抽出した。得られた有機層を、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液 10 ml で洗浄し、飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムの順で脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去することで、目的物 200 mg を茶色固体として得た。

[0160] 合成例 2 : 2 - [6 - クロロ - 3 - (エチルスルホニル) ピラゾロ [1, 5 - a] ピリジン - 2 - イル] - 3 - メチル - 6 - (トリフルオロメチル) - 3 H - イミダゾ [4, 5 - b] ピリジン (本発明化合物 No. 1 - 1 - 001 a) の合成

合成例 1 で得られた本発明化合物 No. 1 - 1 - 001 b の 200 mg 及びクロロホルム 5 ml の混合溶液に、氷冷下にて 65 質量% メタクロロ過安息香酸 (約 30 質量% の水を含む) 184 mg を添加した。添加終了後、該混合物を室温にて 18 時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に、飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液を添加し、クロロホルム 10 ml にて抽出した。得られた有機層を、1 mol/L (リットル) の水酸化ナトリウム水溶液 10 ml で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー [n - ヘキサン : 酢酸エチル = 100 : 0 ~ 0 : 100 (体積比、以下同様である。)] のグラジエント] にて精製し、目的物 163 mg を白色固体として得た。

融点 : 132 ~ 136 °C

¹H-NMR (CDCl₃) : δ 8.76 (d, J=1.8 Hz, 1H), 8.70-8.65 (m, 1H), 8.40-8.30 (m, 2H), 7.60-7.50 (m, 1H), 4.12 (s, 3H), 3.93 (q, J=7.5 Hz, 2H), 1.39 (t, J=7.5 Hz, 3H).

[0161] 合成例 3 : 2 - [3 - (エチルスルホニル) - 6 - (3 - (トリフルオロメチル) - 1 H - ピラゾール - 1 - イル) ピラゾロ [1, 5 - a] ピリジン - 2 - イル] - 3 - メチル - 6 - (トリフルオロメチル) - 3 H - イミダゾ [4, 5 - b] ピリジン (本発明化合物 No. 1 - 1 - 003 a) の合成
2 - [3 - (エチルスルホニル) - 6 - ヨードピラゾロ [1, 5 - a] ピ

リジン-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン70mg及びN,N-ジメチルホルムアミド3mlの混合溶液に、室温にて炭酸セシウム213mg、N,N'-ジメチルシクロヘキサノ-1,2-ジアミン17mg、3-(トリフルオロメチル)-1H-ピラゾール89mg及びヨウ化銅(I)25mgを順次添加した。添加終了後、反応容器内を窒素ガスで置換した後、90℃にて4時間撹拌した。

反応終了後、該反応混合物に水10mlを添加し、クロロホルム(10ml×2)にて抽出した。得られた有機層を、1mol/L水酸化ナトリウム水溶液10mlで洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を中間圧分取液体クロマトグラフィー(n-ヘキサン：酢酸エチル=100：0～80：20のグラジエント)にて精製し、目的物32mgを黄色固体として得た。

融点：226～229℃

¹H-NMR(CDCl₃) : δ 9.17 (dd, J=2.0, 0.8Hz, 1H), 8.80-8.76 (m, 1H), 8.52 (dd, J=9.8, 0.8Hz, 1H), 8.41-8.36 (m, 1H), 8.09-8.04 (m, 1H), 7.93 (dd, J=9.8, 2.0Hz, 1H), 6.86 (d, J=2.7Hz, 1H), 4.17 (s, 3H), 4.01 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.42 (t, J=7.5Hz, 3H) .

[0162] 合成例4：2-[3-(エチルチオ)-6-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1,5-a]ピリジン-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン(本発明化合物No. 1-1-004b)の合成

工程1：2-[3-ヨード-6-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1,5-a]ピリジン-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジンの合成

3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-2-[6-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1,5-a]ピリジン-2-イル]-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン210mgと、N,N-ジメチルホルムアミド5mlの

混合溶液に、室温にて 1, 3-ジオード-5, 5-ジメチルヒダントイン 209 mg を添加した。添加終了後、該混合物を 80℃にて 3 時間撹拌した。反応終了後、該反応混合物に飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液 10 ml を添加した。析出した固体をろ過することで、目的物 205 mg を白色固体として得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : δ 8.79-8.75 (m, 1H), 8.75-8.70 (m, 1H), 8.37-8.34 (m, 1H), 7.90 (d, $J=9.6\text{Hz}$, 1H), 7.53 (dd, $J=9.6, 1.5\text{Hz}$, 1H), 4.43 (s, 3H).

[0163] 工程 2 : 2-[3-(エチルチオ)-6-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4, 5-b]ピリジン (本発明化合物 No. 1-1-004b) の合成

工程 1 で得られた白色固体 210 mg、1, 4-ジオキサソ 5 ml の混合溶液に、室温にてジイソプロピルエチルアミン 158 mg、4, 5-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9, 9-ジメチルキサンテン 14 mg、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0) 11 mg 及びエタンチオール 30 mg を順次添加した。添加終了後、該混合物を、窒素雰囲気下、加熱還流下にて 2 時間撹拌した。反応終了後、該反応混合物に水 10 ml を添加し、クロロホルム (10 ml $\times$ 2) にて抽出した。得られた有機層を、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー (n-ヘキサン : 酢酸エチル = 100 : 0 ~ 50 : 50 のグラジエント) にて精製し、目的物 120 mg を薄黄色固体として得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.88(d, $J=1.5\text{Hz}$, 1H), 8.75(d, $J=1.2\text{Hz}$, 1H), 8.43(d, $J=1.8\text{Hz}$, 1H), 7.99(d, $J=9.0\text{Hz}$, 1H), 7.46(d, $J=9.0\text{Hz}$, 1H), 4.22(s, 3H), 2.97(q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.16(t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

[0164] 合成例 5 : 2-[3-(エチルチオ)-6-(トリフルオロメチル)-2H-インダゾール-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)

－3H－イミダゾ[4, 5－b]ピリジン（本発明化合物No. 1－10－001b）の合成

工程1：3－メチル－6－（トリフルオロメチル）－3H－イミダゾ[4, 5－b]ピリジン－2－アミンの合成

臭化シアン8.31g、水174ml及びメタノール174mlの混合溶液に、室温にてN²－メチル－5－（トリフルオロメチル）ピリジン－2, 3－ジアミン5.0gを添加した。添加終了後、該混合物を50℃にて1時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に室温にて1mol/Lの水酸化ナトリウム水溶液を加えてpHを8とした後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物に水100mlを添加し、酢酸エチル100mlにて抽出した。得られた有機層を飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムの順で脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去することで、目的物3.48gを紫色固体として得た。

¹H-NMR (CDCl₃) : δ 8.40–8.30(m, 1H), 7.85–7.75(m, 1H), 5.20–4.90(brs, 2H), 3.69(s, 3H).

[0165] 工程2：3－メチル－6－（トリフルオロメチル）－2－[6－（トリフルオロメチル）－2H－インダゾール－2－イル]－3H－イミダゾ[4, 5－b]ピリジンの合成

工程1で得られた紫色固体900mg、2－ニトロ－4－（トリフルオロメチル）ベンズアルデヒド829mg及び2－プロパノール10mlの混合溶液を、加熱還流下にて4時間攪拌した。攪拌終了後、該混合物に、室温にてトリブチルホスフィン2.30gを添加した。添加終了後、該反応混合物を、加熱還流下にて18時間攪拌した。反応終了後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物に水10mlを添加し、クロロホルム10mlにて抽出した。得られた有機層を、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー（クロロホルム：メタノール＝100：0～85：15のグラジエント）にて精製し、目的物447mgを淡黄色固体として得た。

融点：168～175℃

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : δ 9.10(s, 1H), 8.74(s, 1H), 8.29(s, 1H), 8.15(s, 1H), 7.90(d, J=9.0Hz, 1H), 7.35(d, J=9.0Hz, 1H), 4.42(s, 3H).

[0166] 工程3：2-[3-クロロ-6-(トリフルオロメチル)-2H-インダゾール-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジンの合成

工程2で得られた淡黄色固体397mg及び1,2-ジクロロエタン10mlの混合溶液に、室温にてN-クロロスクシンイミド274mgを添加した。添加終了後、該混合物を加熱還流下にて1.5時間攪拌した。攪拌終了後、該反応混合物に、室温にてN-クロロスクシンイミド1096mgを添加した。添加終了後、該反応混合物を加熱還流下にて1.5時間攪拌した。反応終了後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー（クロロホルム：メタノール=100：0～85：15のグラジエント）にて精製し、目的物284mgを淡黄色固体として得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : δ 8.85-8.80(m, 1H), 8.45-8.40(m, 1H), 8.09(s, 1H), 7.82(d, J=9.3Hz, 1H), 7.39(d, J=9.3Hz, 1H), 4.04(s, 3H).

[0167] 工程4：2-[3-(エチルチオ)-6-(トリフルオロメチル)-2H-インダゾール-2-イル]-3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン（本発明化合物No. 1-10-001b）の合成

工程3で得られた淡黄色固体284mg及びN,N-ジメチルホルムアミド1.3mlの混合溶液に、室温にてナトリウムエタンチオラート85mgを添加した。添加終了後、該混合物を70℃にて4時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水5mlを添加し、クロロホルムにて抽出（5ml×2）した。得られた有機層を、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー（クロロホルム：メタノール=95：5～90：10のグラジエント）にて精製し、目的物86mgを淡黄色固体として得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : δ 8.84(s, 1H), 8.39(s, 1H), 8.31(d, $J=9.3\text{Hz}$, 1H), 8.25(s, 1H), 7.61(d, $J=9.3\text{Hz}$, 1H), 3.91(s, 3H), 3.85(q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.46(t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

[0168] 合成例 6 : 2 - [3 - (エチルスルホニル) - 6 - (トリフルオロメチル) - 2 H - インダゾール - 2 - イル] - 3 - メチル - 6 - (トリフルオロメチル) - 3 H - イミダゾ [4 , 5 - b] ピリジン (本発明化合物 No. 1 - 10 - 001 a) の合成

合成例 5 で得られた本発明化合物 No. 1 - 10 - 001 b の 86 mg 及びクロロホルム 1.3 ml の混合溶液に、室温にて 65 質量%メタクロロ過安息香酸 (約 30 質量%の水を含む) 76 mg を添加した。添加終了後、該混合物を室温にて 18 時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液 3 ml を添加し、クロロホルムにて抽出 (5 ml $\times$ 2) した。得られた有機層を、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー (クロロホルム : メタノール = 100 : 0 ~ 90 : 10 のグラジエント) にて精製し、目的物 70 mg を淡黄色固体として得た。

融点 : 133 ~ 135 $^{\circ}\text{C}$

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) : δ 8.83(d, $J=1.8\text{Hz}$, 1H), 8.38(d, $J=1.5\text{Hz}$, 1H), 8.30(d, $J=9.0\text{Hz}$, 1H), 8.25(d, $J=0.9\text{Hz}$, 1H), 7.60(dd, $J=9.0$, 1.2Hz, 1H), 3.91(s, 3H), 3.85(q, $J=7.2\text{Hz}$, 2H), 1.46(t, $J=7.2\text{Hz}$, 3H).

[0169] 合成例 7 : 2 - [3 - (エチルチオ) - 6 - ニトロ - 2 H - インダゾール - 2 - イル] - 3 - メチル - 6 - (トリフルオロメチル) - 3 H - イミダゾ [4 , 5 - b] ピリジン (本発明化合物 No. 1 - 10 - 002 b) の合成
工程 1 : 2 - アジド - N - [3 - メチル - 6 - (トリフルオロメチル) - 3 H - イミダゾ [4 , 5 - b] ピリジン - 2 - イル] - 4 - ニトロベンズアミドの合成

3 - メチル - 6 - (トリフルオロメチル) - 3 H - イミダゾ [4 , 5 - b] ピリジン - 2 - アミン 248 mg、2 - アジド - 4 - ニトロ安息香酸 15

9 mg、ジイソプロピルエチルアミン 445 mg 及び N, N-ジメチルホルムアミド 5 ml の混合溶液に、室温にて O- (7-アザベンゾトリアゾール-1-イル)-N, N, N', N'-テトラメチルウロニウムヘキサフルオロリン酸塩 (HATU) 437 mg を添加した。添加終了後、該混合物を室温にて 48 時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水 10 ml を添加し、酢酸エチルにて抽出 (10 ml × 2) した。得られた有機層を、飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー (n-ヘキサン：酢酸エチル = 100 : 0 ~ 0 : 100 のグラジエント) にて精製し、目的物 175 mg をオレンジ色固体として得た。

¹H-NMR (CDCl₃) : δ 8.65-8.55(m, 1H), 8.22(d, J=8.4Hz, 1H), 8.08(d, J=2.0Hz, 1H), 8.03(dd, J=8.4, 2.0Hz, 1H), 7.85-7.75(m, 1H), 3.83(s, 3H) (NHのプロトンのシグナルは観測できなかった)。

[0170] 工程 2 : 2- [3-クロロ-6-ニトロ-2H-インダゾール-2-イル] -3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジンの合成

工程 1 で得られたオレンジ色固体 175 mg に、室温にてオキシ塩化リン 3 g を添加した。添加終了後、該混合物を 100 °C にて 2 時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物を室温まで冷却した。該反応混合物を氷水に滴下し、クロロホルム (20 ml × 2) にて抽出した。得られた有機層を、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー (n-ヘキサン：酢酸エチル = 100 : 0 ~ 0 : 100 のグラジエント) にて精製し、目的物 102 mg を黄色固体として得た。

¹H-NMR (CDCl₃) : δ 8.83(d, J=1.5Hz, 1H), 8.75(d, J=1.8Hz, 1H), 8.45(d, J=1.5Hz, 1H), 8.03(dd, J=9.6, 1.8Hz, 1H), 7.86(d, J=9.6Hz, 1H), 4.07(s, 3H)。

[0171] 工程 3 : 2- [3-(エチルチオ)-6-ニトロ-2H-インダゾール-

2-イル] - 3-メチル-6-(トリフルオロメチル)-3H-イミダゾ[4, 5-b]ピリジン (本発明化合物No. 1-10-002b) の合成

工程2で得られた黄色固体102mg、1,4-ジオキササン2mlの混合溶液に、室温にてジイソプロピルエチルアミン80mg、4,5-ビス(ジフェニルホスフィノ)-9,9-ジメチルキサンテン30mg、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム(0)24mg及びエタンチオール19mgを順次添加した。添加終了後、該混合物を、窒素雰囲気下、加熱還流下にて2時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水10mlを添加し、クロロホルム(10ml×2)にて抽出した。得られた有機層を無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=100:0~70:30のグラジエント)にて精製し、目的物108mgを黄色油状物として得た。

¹H-NMR (CDCl₃): δ 8.85-8.75(m, 2H), 8.44(d, J=1.8Hz, 1H), 8.06(dd, J=9.2, 1.8Hz, 1H), 7.98(dd, J=9.2, 0.7Hz, 1H), 3.91(s, 3H), 3.10(q, J=7.4Hz, 2H), 1.24(t, J=7.4Hz, 3H).

[0172] 合成例8: 2-[3-(エチルスルホニル)-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-イル]-7-(パーフルオロエチル)イミダゾ[1, 2-c]ピリミジン (本発明化合物No. 1-3-001a) の合成

工程1: 3-ヨード-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-カルボン酸エチルの合成

5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-カルボン酸エチル4.49g及びN,N-ジメチルホルムアミド60mlの混合溶液に、室温にて1,3-ジヨード-5,5-ジメチルヒダントイン5.95gを添加した。添加終了後、該混合物を80℃にて7時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水を添加し、析出した固体を、ろ過によりろ別した。得られた固体を、クロロホルム40mlに溶解させ、飽和チオ硫酸ナトリ

ウム水溶液、次いで飽和炭酸水素ナトリウムにて洗浄した。得られた有機層を無水硫酸ナトリウムにて脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去し、目的物 6. 11 g を薄褐色固体として得た。

融点：147～150℃

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$: δ 8.62 (d, $J=7.2\text{Hz}$, 1H), 7.93 (s, 1H), 7.11 (dd, $J=7.2, 2.0\text{Hz}$, 1H), 4.54 (q, $J=7.2\text{Hz}$, 2H), 1.49 (t, $J=7.2\text{Hz}$, 3H).

[0173] 工程 2 : 3 - (エチルチオ) - 5 - (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5 - a] ピリジン - 2 - カルボン酸の合成

工程 1 で得られた薄褐色固体 6. 11 g 及び 1, 4 - ジオキサン 50 ml の混合溶液に、室温にてジイソプロピルエチルアミン 6. 17 g、4, 5 - ビス (ジフェニルホスフィノ) - 9, 9 - ジメチルキサンテン 920 mg、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム (0 価) 728 mg 及びエタノール 1. 48 g を順次添加した。添加終了後、反応容器内を窒素ガスで置換した後、加熱還流下にて 2 時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物をセライトでろ過し、セライトを 1, 4 - ジオキサン 50 ml で洗浄した。得られたろ液と洗浄液を合わせ、減圧下にて溶媒を留去することで、3 - (エチルチオ) - 5 - (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5 - a] ピリジン - 2 - カルボン酸エチルの粗生成物を得た。得られた 3 - (エチルチオ) - 5 - (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5 - a] ピリジン - 2 - カルボン酸エチルの粗生成物及びエタノール 50 ml の混合溶液に、室温にて 1. 5 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液 20 ml を添加した。添加終了後、該反応混合物を室温にて 3 時間攪拌した。反応終了後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物に、1 mol/L 塩酸水溶液を添加することにより水層の pH を 2 とした後、クロロホルム (20 ml $\times$ 2) にて抽出した。得られた有機層を、無水硫酸ナトリウムにて脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去し、目的物 4. 73 g を茶色固体として得た。

融点：195～205℃

$^1\text{H-NMR}(\text{DMSO}-d_6)$: δ 9.02 (d, $J=7.2\text{Hz}$, 1H), 8.11 (s, 1H), 7.39 (d, $J=$

7.2Hz, 1H), 2.85 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.06 (t, J=7.2Hz, 3H) (CO₂Hのプロトンのシグナルは観測できなかった).

[0174] 工程3: 3-(エチルチオ)-N-メトキシ-N-メチル-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-カルボキシアミドの合成

工程2で得られた茶色固体2.70g及びジクロロメタン60mlの混合溶液に、氷冷下にて二塩化オキサリル2.95g及びN,N-ジメチルホルムアミド30mgを順次添加した。添加終了後、該混合物を室温にて5時間攪拌した。攪拌終了後、減圧下にて、該反応混合物から溶媒を留去することで、3-(エチルチオ)-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-カルボン酸クロリドの組成生物を得た。得られた3-(エチルチオ)-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-カルボン酸クロリドの粗生成物及びジクロロメタン20mlの混合溶液を、別容器で調製したN,O-ジメチルヒドロキシルアミン塩酸塩692mg、トリエチルアミン1.63g及びジクロロメタン20mlの混合溶液に、氷冷下にて添加した。添加終了後、該混合物を室温にて16時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水10mlを添加し、クロロホルム(10ml×2)にて抽出した。得られた有機層を、1mol/L塩酸水溶液、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液の順で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去し、目的物1.98gを茶色油状物として得た。

¹H-NMR(CDCl₃): δ 8.53 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.06 (s, 1H), 7.04 (dd, J=7.2, 1.9Hz, 1H), 3.71 (brs, 3H), 3.42 (s, 3H), 2.81 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.19 (t, J=7.2Hz, 3H).

[0175] 工程4: 1-[3-(エチルチオ)-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-イル]エタン-1-オンの合成

窒素雰囲気下にて工程3で得られた茶色油状物1.98g及びテトラヒドロフラン25mlの混合溶液に、氷冷下にて約3mol/Lメチルマグネシ

ウムブロミドのジエチルエーテル溶液（東京化成社製）4. 2 ml を添加した。添加終了後、該混合物を氷冷下にて1時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物を、氷冷下にて4 ml / L 塩酸水溶液10 ml に滴下し、クロロホルム（20 ml × 2）にて抽出した。得られた有機層を、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄し、飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムの順で脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去し、目的物1. 81 g を褐色固体として得た。

融点：88～90℃

¹H-NMR(CDCl₃) : δ 8.53 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.12 (s, 1H), 7.09 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 2.93 (q, J=7.5Hz, 2H), 2.76 (s, 3H), 1.16 (t, J=7.5Hz, 3H).

[0176] 工程5：1－[3－（エチルスルホニル）－5－（トリフルオロメチル）ピラゾロ[1, 5－a]ピリジン－2－イル]エタン－1－オンの合成

工程4で得られた褐色固体1. 75 g 及びクロロホルム20 ml の混合溶液に、氷冷下にて65質量%メタクロロ過安息香酸（約30質量%の水を含む）3. 48 g を添加した。添加終了後、該混合物を室温にて2時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液10 ml を添加し、クロロホルムにて抽出（20 ml × 2）した。得られた有機層を、1 ml / L の水酸化ナトリウム水溶液20 ml で洗浄した。該有機層を無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー（n－ヘキサン：酢酸エチル＝100：0～50：50のグラジエント）にて精製し、目的物1. 18 g を白色固体として得た。

融点：123～125℃

¹H-NMR(CDCl₃) : δ 8.72-8.68 (m, 1H), 8.64 (d, J=7.2Hz, 1H), 7.28 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 3.71 (q, J=7.3Hz, 2H), 2.77 (s, 3H), 1.33 (t, J=7.3Hz, 3H).

[0177] 工程6：2－ブロモ－1－[3－（エチルスルホニル）－5－（トリフル

オロメチル) ピラゾロ [1, 5-a] ピリジン-2-イル] エタン-1-オンの合成

工程5で得られた白色固体1.15g及びトルエン15mLの混合溶液に、室温にて約5.1mole/L臭化水素の酢酸溶液(東京化成社製)6.0g及び臭素631mgを順次添加した。添加終了後、該混合物を室温にて16時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に水10mLを添加し、酢酸エチル(20mL×2)にて抽出した。得られた有機層を、5質量%亜硫酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。該有機層を無水硫酸ナトリウムで脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去し、目的物890mgを白色固体として得た。

融点: 204~206℃

¹H-NMR(CDCl₃): δ 8.72 (s, 1H), 8.65 (d, J=6.8Hz, 1H), 7.33 (dd, J=6.8, 2.0Hz, 1H), 4.72 (s, 2H), 3.69 (q, J=7.3Hz, 2H), 1.35 (t, J=7.3Hz, 3H).

[0178] 工程7: 2-[3-(エチルスルホニル)-5-(トリフルオロメチル)ピラゾロ[1, 5-a]ピリジン-2-イル]-7-(パーフルオロエチル)イミダゾ[1, 2-c]ピリミジン(本発明化合物No. 1-3-001a)の合成

6-(パーフルオロエチル)ピリミジン-4-アミン117mg及びクロロベンゼン5mLの混合溶液に、室温にて工程6で得られた白色固体200mgを添加した。添加終了後、該混合物を加熱還流下にて6時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に1mole/L水酸化ナトリウム水溶液10mLを添加し、酢酸エチル(10mL×2)にて抽出した。得られた有機層を飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムの順で脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー(n-ヘキサン: 酢酸エチル=100:0~50:50のグラジエント)にて精製し、目的物44mgを白色固体として得た。

融点: 290~296℃

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$: δ 9.21 (s, 1H), 8.81 (s, 1H), 8.76 (d, $J=7.2\text{Hz}$, 1H), 8.65 (s, 1H), 8.05 (s, 1H), 7.30–7.28 (m, 1H), 3.48 (q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.31 (t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

[0179] 合成例 9 : 6 – [3 – (エチルスルホニル) – 5 – (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5 – a] ピリジン – 2 – イル] – 2 – (パーフルオロエチル) イミダゾ [2, 1 – b] [1, 3, 4] チアジアゾール (本発明化合物 No. 1 – 5 – 001 a) の合成

5 – (パーフルオロエチル) – 1, 3, 4 – チアジアゾール – 2 – アミン 120 mg 及びクロロベンゼン 5 ml の混合溶液に、室温にて合成例 8 の工程 6 で得られた白色固体 200 mg を添加した。添加終了後、該混合物を加熱還流下にて 6 時間攪拌した。反応終了後、該反応混合物に 1 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液 10 ml を添加し、酢酸エチル (10 ml $\times$ 2) にて抽出した。得られた有機層を飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムの順で脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー (n – ヘキサン : 酢酸エチル = 100 : 0 ~ 50 : 50 のグラジエント) にて精製し、目的物 134 mg を白色固体として得た。

融点 : 249 ~ 250 °C

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$: δ 8.93 (s, 1H), 8.71 (d, $J=7.2\text{Hz}$, 1H), 8.62 (s, 1H), 7.24 (dd, $J=7.2, 2.0\text{Hz}$, 1H), 3.46 (q, $J=7.3\text{Hz}$, 2H), 1.31 (t, $J=7.3\text{Hz}$, 3H).

[0180] 合成例 10 : 2 – [3 – (エチルチオ) – 5 – (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5 – a] ピリジン – 2 – イル] – 7 – (トリフルオロメチル) – [1, 2, 4] トリアゾロ [1, 5 – a] ピリジン (本発明化合物 No. 1 – 4 – 001 b) の合成

工程 1 : 1, 2 – ジアミノ – 4 – (トリフルオロメチル) ピリジン – 1 – イウム 2, 4, 6 – トリメチルベンゼンスルホナートの合成

トリフルオロ酢酸 8.8 g に、氷冷下にて、tert – ブチル [(メシ

チルスルホニル) オキシ] カーバメート 2. 0 g を添加した。添加終了後、該混合物を氷冷下にて 2 時間攪拌した。攪拌終了後、該反応混合物に氷水を添加した。添加終了後、析出した固体をろ過によりろ別した。得られた固体を、ジクロロメタン 20 ml に溶解させ、無水硫酸ナトリウムにて脱水・乾燥した後、ろ過により無水硫酸ナトリウムをろ別した。得られたろ液に、氷冷下にて、4- (トリフルオロメチル) ピリジン-2-アミン 740 mg を添加した。添加終了後、該混合物を室温にて 16 時間攪拌した。攪拌終了後、該反応混合物中に析出した固体をろ過によりろ別した。得られた固体を、ジエチルエーテルで洗浄し、目的物 1. 1 g を白色固体として得た。

融点: 202~205 °C

[0181] 工程 2: 2- [3- (エチルチオ) -5- (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5-a] ピリジン-2-イル] -7- (トリフルオロメチル) - [1, 2, 4] トリアゾロ [1, 5-a] ピリジン (本発明化合物 No. 1-4-001b) の合成

工程 1 で得られた白色固体 90 mg 及びピリジン 2 ml の混合溶液に、室温にて、3- (エチルチオ) -5- (トリフルオロメチル) ピラゾロ [1, 5-a] ピリジン-2-カルボン酸 87 mg 及び 1-エチル-3- (3-ジメチルアミノプロピル) カルボジイミド塩酸塩 73 mg を順次添加した。添加終了後、該混合物を加熱還流下にて 5 時間攪拌した。反応終了後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物に水 20 ml を添加し、酢酸エチルにて抽出 (20 ml × 2) した。得られた有機層を、飽和食塩水、次いで無水硫酸ナトリウムにて脱水・乾燥した後、減圧下にて溶媒を留去した。得られた残留物を、中圧分取液体クロマトグラフィー (n-ヘキサン: 酢酸エチル = 100: 0~50: 50 のグラジエント) にて精製し、目的物 40 mg を薄黄色固体として得た。

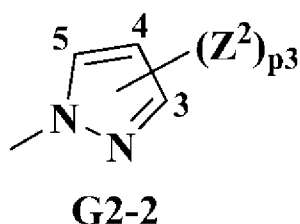
¹H-NMR (CDCl₃): δ 8.85 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.67 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.21-8.13 (m, 2H), 7.29 (dd, J=7.2, 1.5Hz, 1H), 7.08 (dd, J=7.2, 1.5Hz, 1H), 3.01 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.20 (t, J=7.5Hz, 3H).

[0182] 本発明化合物は、前記製造法及び合成例に準じて。合成例 1 ～ 10 と同様に製造した縮合複素環化合物の例を、第 2 表～第 8 表に示すが、本発明に包含される縮合複素環化合物はこれらのみに限定されるものではない。

尚、表中「Me」はメチル基を表し、「Et」はエチル基を表し、「Ph」はフェニル基を表す。また、表中の「*1」は化合物が固体であることを表し、「*2」は化合物が油状物又は樹脂状であることを表し、「m. p.」は融点（単位は℃）を表す。

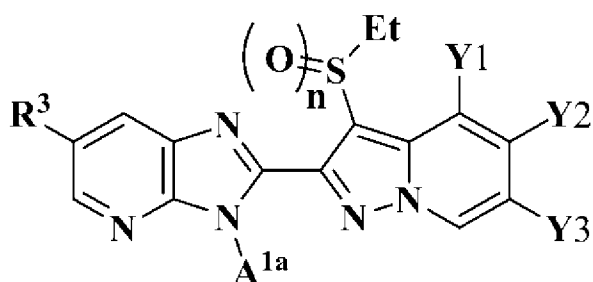
表中、G2-2 は以下の環構造を表し、括弧内は置換する置換基（Z²）の数と種類及び置換位置を表す。

[化42]



[0183] [第 2 表]

[化43]

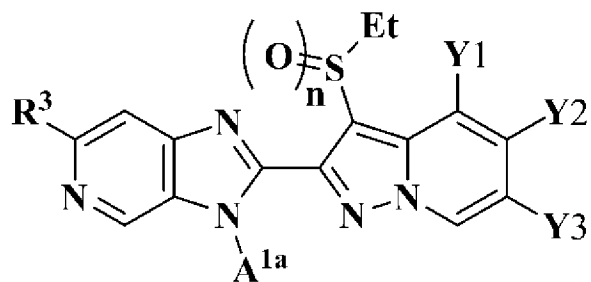


No.	R ³	A ^{1a}	Y1	Y2	Y3	n	m. p.
1-1-001a	CF ₃	Me	H	H	Cl	2	132-136
1-1-001b	CF ₃	Me	H	H	Cl	0	*1
1-1-002a	CF ₃	Me	H	H	I	2	203-205
1-1-002b	CF ₃	Me	H	H	I	0	144-146

1-1-003a	CF ₃	Me	H	H	G2-2[3-CF ₃]	2	226-229
1-1-004a	CF ₃	Me	H	H	CF ₃	2	*2
1-1-004b	CF ₃	Me	H	H	CF ₃	0	*1
1-1-005a	CF ₃	Me	H	H	Br	2	190-192
1-1-005b	CF ₃	Me	H	H	Br	0	*1
1-1-006a	CF ₃	Me	H	Cl	H	2	216-217
1-1-006b	CF ₃	Me	H	Cl	H	0	*1
1-1-007a	CF ₃	Me	H	Br	H	2	226-229
1-1-007b	CF ₃	Me	H	Br	H	0	*1
1-1-008a	CF ₃	Me	H	I	H	2	236-238
1-1-009a	CF ₃	Me	H	Ph	H	2	235-237
1-1-010a	CF ₃	Me	H	H	H	2	*2
1-1-011a	CF ₃	Me	I	H	H	2	240-249
1-1-011b	CF ₃	Me	I	H	H	0	*1
1-1-012a	CF ₃	Me	H	CF ₃	H	2	227-229
1-1-012b	CF ₃	Me	H	CF ₃	H	0	131-132
1-1-013a	CF ₃	Me	H	SMe	H	2	164-166
1-1-014a	CF ₃	Me	H	SOMe	H	2	206-208
1-1-015a	CF ₃	Me	H	SO ₂ Me	H	2	231-233
1-1-016a	SCF ₃	Me	H	CF ₃	H	2	210-212
1-1-016b	SCF ₃	Me	H	CF ₃	H	0	127-129
1-1-017a	SOCF ₃	Me	H	CF ₃	H	2	215-216

[0184] [第3表]

[化44]



No.	R³	A¹ᵃ	Y¹	Y²	Y³	n	m, p.
-----	----	-----	----	----	----	---	-------

1-2-001a	CF ₃	Me	H	H	I	2	*1
----------	-----------------	----	---	---	---	---	----

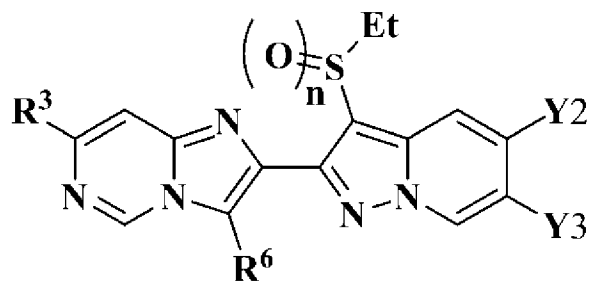
1-2-001b	CF ₃	Me	H	H	I	0	*1
----------	-----------------	----	---	---	---	---	----

1-2-002a	CF ₃	Me	I	H	H	2	*2
----------	-----------------	----	---	---	---	---	----

1-2-002b	CF ₃	Me	I	H	H	0	*1
----------	-----------------	----	---	---	---	---	----

[0185] [第4表]

[化45]

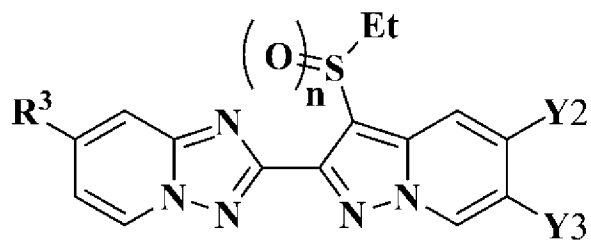


No.	R³	R⁶	Y²	Y³	n	m, p.
-----	----	----	----	----	---	-------

1-3-001a	CF ₂ CF ₃	H	CF ₃	H	2	290-296
----------	---------------------------------	---	-----------------	---	---	---------

[第5表]

[化46]



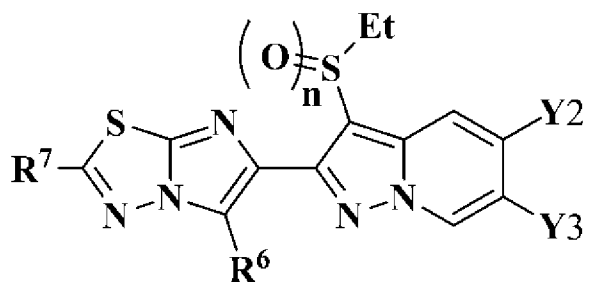
No.	R³	Y²	Y³	n	m, p.
-----	----	----	----	---	-------

1-4-001a	CF₃	CF₃	H	2	*1
----------	-----	-----	---	---	----

1-4-001b	CF₃	CF₃	H	0	*1
----------	-----	-----	---	---	----

[第6表]

[化47]

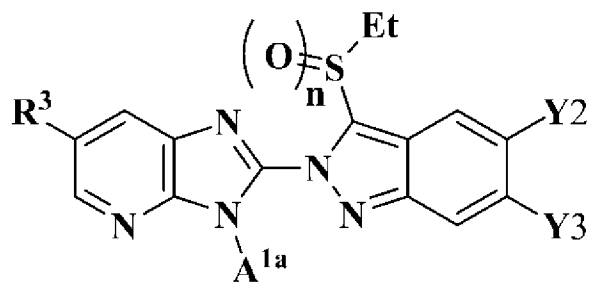


No.	R⁷	R⁶	Y²	Y³	n	m, p.
-----	----	----	----	----	---	-------

1-5-001a	CF₂CF₃	H	CF₃	H	2	249-250
----------	--------	---	-----	---	---	---------

[第7表]

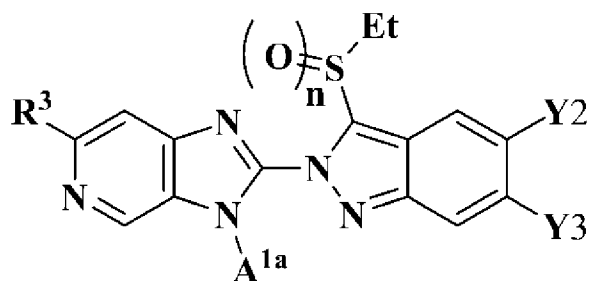
[化48]



No.	R³	A¹ᵃ	Y²	Y³	n	m. p.
1-10-001a	CF₃	Me	H	CF₃	2	133-135
1-10-001b	CF₃	Me	H	CF₃	0	*1
1-10-002a	CF₃	Me	H	NO₂	2	*2
1-10-002b	CF₃	Me	H	NO₂	0	*2
1-10-003a	CF₃	Me	H	I	2	*1
1-10-004a	CF₃	Me	H	NH₂	2	*2

[第8表]

[化49]



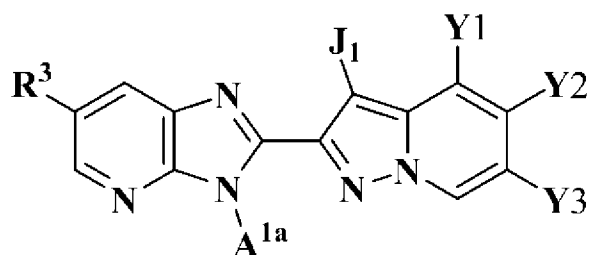
No.	R³	A¹ᵃ	Y²	Y³	n	m. p.
1-11-001a	CF₃	Me	H	CF₃	2	238-240
1-11-001b	CF₃	Me	H	CF₃	0	144-146

[0186] 第1表～第8表に示す本発明化合物の例を製造するための、製造中間体の例を第9表～第11表に示すが、製造中間体はこれらのみに限定されるものではない。

尚、表中「Me」はメチル基を表す。

[第9表]

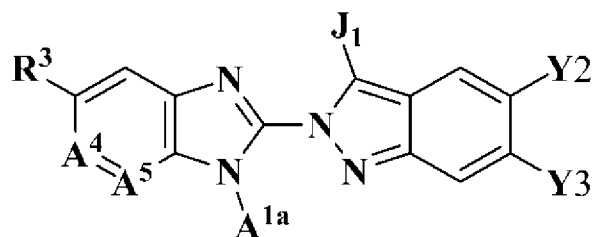
[化50]



No.	R³	A¹ᵃ	Y¹	Y²	Y³	J₁	m. p.
i-1-001	CF₃	Me	H	H	Cl	H	238-240
i-1-002	CF₃	Me	H	H	I	H	*1
i-1-003	CF₃	Me	H	H	Br	H	*1
i-1-004	CF₃	Me	H	H	CF₃	H	*1
i-1-005	CF₃	Me	H	H	CF₃	I	*1
i-1-006	CF₃	Me	H	Cl	H	H	207-210
i-1-007	CF₃	Me	H	Br	H	H	221-223
i-1-008	CF₃	Me	H	Cl	H	Cl	252-253

[0187] [第10表]

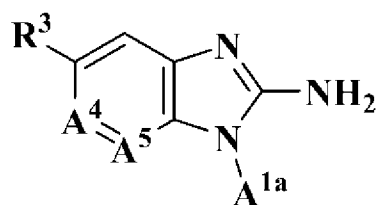
[化51]



No.	R ³	A ^{1a}	A ⁴	A ⁵	Y2	Y3	J ₁	m. p.
i-10-001	CF ₃	Me	CH	N	H	CF ₃	H	168-175
i-10-002	CF ₃	Me	CH	N	H	CF ₃	Cl	*1
i-10-003	CF ₃	Me	CH	N	H	NO ₂	Cl	*1
i-10-004	CF ₃	Me	N	CH	H	CF ₃	H	*1
i-10-005	CF ₃	Me	N	CH	H	CF ₃	Cl	131-134

[第 11 表]

[化52]



No.	R ³	A ^{1a}	A ⁴	A ⁵	m. p.
i-11-001	CF ₃	Me	CH	N	*1
i-11-002	CF ₃	Me	N	CH	152-154

[0188] 本発明化合物及び融点の記載のない製造中間体の¹H-NMRデータを第12表に示す。尚、プロトン核磁気共鳴ケミカルシフト値は、基準物質として

Me_4Si (テトラメチルシラン) を用い、重クロロホルム溶媒中で、300 MHz (機種 ; ECX300又はECP300、JEOL社製) にて測定した。

。

プロトン核磁気共鳴ケミカルシフト値における記号は、下記の意味を表す。

。

s : シングレット、b r s : ブロードシングレット、d : ダブルレット、d d : ダブルダブルレット、t : トリプレット、q : カルテット、m : マルチプレット

[0189] [第12表]

No.	^1H NMR (CDCl_3 , Me_4Si , 300MHz).
-----	--

1-1-002a δ 8.92-8.88(m, 1H), 8.77-8.73(m, 1H), 8.36(d, $J=1.8\text{Hz}$, 1H), 8.15(dd, $J=9.6$, 0.6Hz , 1H), 7.71(dd, $J=9.6$, 1.5Hz , 1H), 4.11(s, 3H), 3.93(q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.39(t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

1-1-002b δ 8.83-8.80(m, 1H), 8.75-8.71(m, 1H), 8.42-8.39(m, 1H), 7.66(dd, $J=9.3$, 1.2Hz , 1H), 7.50(dd, $J=9.3$, 1.2Hz , 1H), 4.18(s, 3H), 2.92(q, $J=7.2\text{Hz}$, 2H), 1.13(t, $J=7.2\text{Hz}$, 3H).

1-1-004a δ 8.98(s, 1H), 8.80-8.76(m, 1H), 8.52(d, $J=9.6\text{Hz}$, 1H), 8.39(d, $J=1.8\text{Hz}$, 1H), 7.70(d, $J=9.6\text{Hz}$, 1H), 4.16(s, 3H), 3.99(q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.42(t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

1-1-005a δ 8.79-8.73 (m, 2H), 8.38-8.34(m, 1H), 8.28(dd, $J=10.5$, 0.9Hz , 1H), 7.62(dd, $J=9.3$, 1.5Hz , 1H), 4.12(s, 3H), 3.94(q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.39(t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

1-1-005b δ 8.74-8.71(m, 1H), 8.69-8.67(m, 1H), 8.40(d, $J=2.1\text{Hz}$, 1H), 7.76(dd, $J=9.0$, 0.6Hz , 1H), 7.39(dd, $J=9.6$, 1.8Hz , 1H), 4.18(s, 3H), 2.92(q, $J=7.5\text{Hz}$, 2H), 1.13(t, $J=7.5\text{Hz}$, 3H).

1-1-006a δ 8.79-8.70 (m, 1H), 8.53 (dd, $J=7.4$, 0.6Hz , 1H), 8.40-8.27

(m, 2H), 7.13 (dd, J=7.4, 2.1Hz, 1H), 4.12 (s, 3H), 3.93 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.41 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-006b δ 8.74 (s, 1H), 8.49-8.36 (m, 2H), 7.85 (d, J=2.0Hz, 1H), 6.94 (dd, J=7.5, 2.0Hz, 1H), 4.18 (s, 3H), 2.91 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.15 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-007a δ 8.79-8.74 (m, 1H), 8.57 (dd, J=2.2, 0.9Hz, 1H), 8.48-8.43 (m, 1H), 8.40-8.34 (m, 1H), 7.27-7.24 (m, 1H), 4.12 (s, 3H), 3.92 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.41 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-1-007b δ 8.74 (s, 1H), 8.50-8.35 (m, 2H), 8.10-8.00 (m, 1H), 7.13-7.00 (m, 1H), 4.18 (s, 3H), 2.92 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.14 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-008a δ 8.81-8.73 (m, 2H), 8.40-8.27 (m, 2H), 7.44-7.37 (m, 1H), 4.11 (s, 3H), 3.91 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.41 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-009a δ 8.76 (d, J=1.7Hz, 1H), 8.65 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.54-8.48 (m, 1H), 8.37 (d, J=1.7Hz, 1H), 8.28-8.23 (m, 1H), 7.77-7.73 (m, 1H), 7.63-7.40 (m, 4H), 4.13 (s, 3H), 3.89 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.42 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-010a δ 8.80-8.75 (m, 1H), 8.67-8.59 (m, 1H), 8.42-8.33 (m, 2H), 7.62-7.53 (m, 1H), 7.22-7.14 (m, 1H), 4.12 (s, 3H), 3.88 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.39 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-011a δ 8.77-8.73 (m, 1H), 8.70 (dd, J=7.2, 1.2Hz, 1H), 8.35-8.32 (m, 1H), 8.26 (dd, J=7.8, 1.5Hz, 1H), 6.93 (dd, J=6.9, 6.9Hz, 1H), 3.90 (s, 3H), 3.72 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.44 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-011b δ 8.76-8.72 (m, 1H), 8.57 (d, J=6.3Hz, 1H), 8.40 (d, J=2.1Hz, 1H), 7.91 (d, J=6.9Hz, 1H), 6.71 (dd, J=7.2, 7.2Hz, 1H), 4.05 (s, 3H), 2.84 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.13 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-2-001a δ 8.99 (s, 1H), 8.91 (d, J=0.9Hz, 1H), 8.16 (s, 1H), 8.14 (d, J=9.6Hz, 1H), 7.75 (dd, J=9.6, 1.2Hz, 1H), 4.13 (s, 3H), 3.86 (q, J=7.5Hz

, 2H), 1.38(t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-012a δ 8.81-8.67 (m, 3H), 8.39 (d, J=2.0Hz, 1H), 7.33 (dd, J=7.5, 2.0Hz, 1H), 4.15 (s, 3H), 4.00 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.43 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-1-012b δ 8.77-8.73 (m, 1H), 8.63 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.45-8.40 (m, 1H), 8.25-8.16 (m, 1H), 7.13 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 4.21 (s, 3H), 2.98 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.16 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-1-013a δ 8.77-8.73 (m, 1H), 8.41-8.35 (m, 2H), 7.93 (d, J=2.0Hz, 1H), 6.97 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 4.10 (s, 3H), 3.87 (q, J=7.5Hz, 2H), 2.63 (s, 3H), 1.40 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-014a δ 8.85-8.75 (m, 2H), 8.65-8.55 (m, 1H), 8.38 (d, J=2.0Hz, 1H), 7.54 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 4.16 (s, 3H), 4.09-3.86 (m, 2H), 2.88 (s, 3H), 1.42 (t, J=7.5 Hz, 3H).

1-1-015a δ 9.05-8.95 (m, 1H), 8.84-8.73 (m, 2H), 8.39 (d, J=2.0Hz, 1H), 7.62 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 4.16 (s, 3H), 4.02 (q, J=7.5Hz, 2H), 3.21 (s, 3H), 1.44 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-1-016a δ 8.80-8.67 (m, 3H), 8.45 (d, J=2.0Hz, 1H), 7.33 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 4.14 (s, 3H), 4.01 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.43 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-1-016b δ 8.69 (d, J=2.0Hz, 1H), 8.62 (d, J=7.2Hz, 1H), 8.49 (d, J=2.0Hz, 1H), 8.22-8.16 (m, 1H), 7.13 (dd, J=7.2, 2.0Hz, 1H), 4.20 (s, 3H), 2.99 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.17 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-1-017a δ 8.80 (d, J=2.0Hz, 1H), 8.77-8.66 (m, 2H), 8.62 (d, J=1.4Hz, 1H), 7.35 (dd, J=7.5, 2.0Hz, 1H), 4.18 (s, 3H), 4.00 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.44 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-2-001b δ 8.96(s, 1H), 8.83-8.77(m, 1H), 8.24-8.19(m, 1H), 7.66(d, J=9.3Hz, 1H), 7.54-7.48(m, 1H), 4.20(s, 3H), 2.91(q, J=7.5Hz, 2H), 1.13(t, J=7.5Hz, 3H).

1-2-002a δ 8.97(s, 1H), 8.70(dd, J=6.9, 0.9Hz, 1H), 8.27(dd, J=7.8, 1.2Hz, 1H), 8.13(d, J=0.9Hz, 1H), 6.94 (dd, J=6.9, 6.9Hz, 1H), 3.92(s, 3H), 3.70(q, J=7.5Hz, 2H), 1.42(t, J=7.5Hz, 3H).

1-2-002b δ 8.97(s, 1H), 8.60-8.55(m, 1H), 8.20(s, 1H), 7.94-7.88(m, 1H), 7.62(dd, J=7.5, 7.5Hz, 1H), 4.06(s, 3H), 2.81(q, J=7.5Hz, 2H), 1.11(t, J=7.5Hz, 3H).

1-4-001a δ 8.88-8.72 (m, 3H), 8.20 (s, 1H), 7.37-7.26 (m, 2H), 4.01 (q, J=7.5Hz, 2H), 1.43 (t, J=7.5Hz, 3H).

1-10-001b δ 8.84(s, 1H), 8.39(s, 1H), 8.31(d, J=9.3Hz, 1H), 8.25(s, 1H), 7.61(d, J=9.3Hz, 1H), 3.91(s, 3H), 3.85(q, J=7.5Hz, 2H), 1.46(t, J=7.5Hz, 3H).

1-10-002a δ 9.00-8.80(m, 2H), 8.40(d, J=2.0Hz, 1H), 8.34(d, J=9.6Hz, 1H), 8.23(dd, J=9.6, 1.8Hz, 1H), 3.93(s, 3H), 3.89(q, J=7.5Hz, 2H), 1.47(t, J=7.5Hz, 3H).

1-10-003a δ 8.85-8.80(m, 1H), 8.40-8.30(m, 2H), 7.90(d, J=9.0Hz, 1H), 7.67(dd, J=9.0, 1.2Hz, 1H), 3.88(s, 3H), 3.82(q, J=7.4Hz, 2H), 1.43 (t, J=7.4Hz, 3H).

1-10-004a δ 8.80-8.75(m, 1H), 8.35-8.30(m, 1H), 7.94(d, J=9.6Hz, 1H), 6.92(dd, J=9.6, 1.8Hz, 1H), 6.85-6.80(m, 1H), 4.20-4.00(brs, 2H), 3.89(s, 3H), 3.80(q, J=7.4Hz, 2H), 1.43(t, J=7.4Hz, 3H).

1-11-001a δ 9.06 (s, 1H), 8.34-8.28 (m, 1H), 8.25 (s, 1H), 8.18 (s, 1H), 7.62 (dd, J=9.0, 1.5Hz, 1H), 3.93 (s, 3H), 3.83 (q, J=7.2Hz, 2H), 1.46 (t, J=7.2Hz, 3H).

1-11-001b δ 9.03 (s, 1H), 8.22 (s, 1H), 8.15 (s, 1H), 7.97 (d, J=9.0 Hz, 1H), 7.43 (dd, J=9.0, 1.2Hz, 1H), 3.93 (s, 3H), 3.09 (q, J=7.3Hz, 2H), 1.24 (t, J=7.3Hz, 3H).

i-1-002 δ 8.85-8.82(m, 1H), 8.72-8.68(m, 1H), 8.30(d, J=1.2Hz, 1H), 7.44(d, J=0.9Hz, 1H), 7.47-7.34(m, 2H), 4.38(s, 3H).

i-1-003 δ 8.73-8.69(m, 2H), 8.32(s, 1H), 7.56(d, J=9.0Hz, 1H), 7.38(s, 1H), 7.33-7.26(m, 1H), 4.40(s, 3H).

i-1-004 δ 8.89(s, 1H), 8.71(d, J=2.1Hz, 1H), 8.32(d, J=2.1Hz, 1H), 7.77(d, J=9.3Hz, 1H), 7.46(s, 1H), 7.36(d, J=9.3Hz, 1H), 4.41(s, 3H).

i-10-002 δ 8.85-8.80(m, 1H), 8.45-8.40(m, 1H), 8.09(s, 1H), 7.82(d, J=9.3Hz, 1H), 7.39(d, J=9.3Hz, 1H), 4.04(s, 3H).

i-10-004 δ 9.12(s, 1H), 8.96 (s, 1H), 8.14 (s, 1H), 8.09 (s, 1H), 7.90 (d, J=9.2Hz, 1H), 7.35 (d, J=9.2Hz, 1H), 4.47 (s, 3H).

[0190] 次に、本発明化合物の有害生物防除剤としての有用性について、以下の試験例において具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

試験例 1 : トビイロウンカに対する殺虫試験

本発明化合物の 10%乳剤（化合物によっては 10%水和剤を供試）を、展着剤の入った水で希釈して、500ppm濃度の薬液を調製した。該薬液中にイネの葉鞘を約 10 秒間浸漬した。浸漬操作が終了した後、薬液処理された稲の葉鞘を風乾した後、試験管に入れた。この中にトビイロウンカ (*Nilaparvata lugens*) の 3 齢幼虫を、試験管当たり 5 頭放虫し、スポンジで蓋をして、25℃恒温室に収容した。収容してから 6 日後に、試験管中のトビイロウンカの死虫数を調査し、下記の計算式より死虫率を算出した。尚、試験は 2 連制で行なった。

$$\text{死虫率 (\%)} = (\text{死虫数} / \text{供試虫数}) \times 100$$

その結果、下記の化合物が 90%以上の死虫率を示した。

本発明化合物 : 1-1-004a、1-1-005a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-2-001a、1-2-002a、1-10-001a、1-11-001a。

[0191] 試験例 2 : コナガに対する殺虫試験

本発明化合物の 10%乳剤（化合物によっては 10%水和剤を供試）を、展着剤の入った水で希釈して、500ppm濃度の薬液を調製した。該薬液

中に、カンランの葉を約 10 秒間浸漬した。浸漬操作が終了した後、薬液処理されたカンランの葉を風乾した後、シャーレに入れた。この中にコナガ (*Plutella xylostella*) の 3 齢幼虫を、シャーレ当たり 5 頭放虫し、蓋をして 25℃ の恒温室に収容した。収容してから 6 日後に、シャーレ中のコナガの死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は 2 連制で行なった。

その結果、下記の化合物が 90% 以上の死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-002b、1-1-003a、1-1-004a、1-1-005a、1-1-006a、1-1-006b、1-1-007a、1-1-008a、1-1-009a、1-1-010a、1-1-011a、1-1-012a、1-1-012b、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-1-016a、1-1-016b、1-1-017a、1-2-001a、1-3-001a、1-4-001a、1-5-001a、1-10-001a、1-10-003a、1-11-001a、1-11-001b。

[0192] 試験例 3：ハスモンヨトウに対する殺虫試験

本発明化合物の 10% 乳剤（化合物によっては 10% 水和剤を供試）を、展着剤の入った水で希釈して、500 ppm 濃度の薬液を調製した。該薬液中に、カンランの葉を約 10 秒間浸漬した。浸漬操作が終了した後、薬液処理されたカンランの葉を風乾した後、シャーレに入れた。この中にハスモンヨトウ (*Spodoptera litura*) の 3 齢幼虫を、シャーレ当たり 5 頭放虫し、蓋をして 25℃ の恒温室に収容した。収容してから 6 日後に、シャーレ中のハスモンヨトウの死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は 2 連制で行なった。

その結果、下記の化合物が 90% 以上の死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-002b、1-1-003a、1-1-004a、1-1-005a、1-1-006a、1-1-006b、1-1-007a、1-1-008a、1-1-009a、1-1-010a、1-1-011a、1-1-012a、1-1-012b、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-1-016a、1-1-016b、1-1-017a、1-2-001a、1-3-001a、1-4-001a、1-5-001a、1-10-001a、1-10-003a、1-11-001a、1-11-001b。

[0193] 試験例 4：ミカンキイロアザミウマに対する殺虫活性

内径 7 c m のスチロールカップに湿った濾紙を敷き、その上に 3 c m 角に切り取ったインゲンの葉を置き、ミカンキイロアザミウマ (*Frankliniella occidentalis*) の幼虫を 1 葉あたり 20 頭接種した。本発明化合物の 10 % 乳剤 (化合物によっては 10 % 水和剤を供試) を、展着剤の入った水で希釈して、500 p p m 濃度の薬液を調製した。調製後の薬液を、回転式散布塔を用いてスチロールカップ当たり 2.5 m l ずつ散布した ($2.5 \text{ mg} / \text{cm}^2$)。2 日後に摂取したミカンキイロアザミウマの死虫数と、インゲンの食害度を調査した。死虫率は試験例 1 と同様の計算式より算出した。食害度は、上記の葉に対する食害を受けた面積の割合で次のように判定した。1 : 0 ~ 20 % の食害、2 : 20 ~ 50 % の食害、3 : 50 ~ 70 % の食害、4 : 70 % 以上の食害。尚、試験は 2 連制で行なった。

その結果、下記の化合物が 50 % 以上の死虫率及び 2 又は 1 の食害度を示した。

本発明化合物 : 1-1-002a、1-1-004a、1-1-006a、1-1-006b、1-1-007a、1-1-008a、1-1-012a、1-1-012b、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-1-016b、1-2-001a、1-3-001a。

[0194] 試験例 5 : モモアカアブラムシに対する殺虫試験

内径 3 c m のガラスシャーレに湿った脱脂綿を敷き、その上に直径 3 c m の円形に切り取ったカンランの葉を置き、モモアカアブラムシ (*Myzus persicae*) 無翅成虫を 4 頭放虫した。1 日後、本発明化合物の 10 % 乳剤 (化合物によっては 10 % 水和剤を供試) を、展着剤の入った水で希釈して、500 p p m 濃度の薬液を調製した。調製後の薬液を、回転式散布塔にて散布 ($2.5 \text{ mg} / \text{cm}^2$) し、蓋をして 25 °C の恒温室に収容した。収容してから 6 日後に、シャーレ中のモモアカアブラムシの死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は 2 連制で行なった。

その結果、下記の化合物が 90 % 以上の死虫率を示した。

本発明化合物 : 1-1-001a、1-1-002a、1-1-002b、1-1-004a、1-1-005a、1-1-006a、1-1-006b、1-1-007a、1-1-008a、1-1-010a、1-1-011a、1-1-012a、1-1-

012b、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-1-016a、1-1-016b、1-1-017a、1-2-001a、1-2-002a、1-10-001a、1-11-001b。

[0195] 試験例 6：モモアカアブラムシに対する土壌灌注処理試験

本発明化合物の 10%乳剤を水道水で希釈して、濃度が 500 ppm の薬液を調製した。

プラスチックカップ植えキャベツ苗（2.5 本葉期）の株元土壌部分に、10 ml の上記薬液を灌注処理した。灌注処理した後、キャベツ苗を温室内に放置した。灌注処理してから 1 日後に、モモアカアブラムシ（*Myzus persicae*）の成虫を 20 頭／株で放虫した。放虫処理した後、キャベツ苗を温室内に放置した。放虫してから 6 日後に、生モモアカアブラムシの存虫数を調査し、下記の計算式から対照値を算出した。

$$\text{対照値 (\%)} = \{1 - (C_b \times T_{ai}) / (C_{ai} \times T_b)\} \times 100$$

式中の文字は下記を表す。

C_b：無処理区における処理前の虫の数、C_{ai}：無処理区における最終調査時の生存虫数、T_b：処理区における処理前の虫の数、T_{ai}：処理区における最終調査時の生存虫数

その結果、下記の化合物が 90%以上の対照値を示した。

本発明化合物：1-1-004a、1-1-006a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-2-001a。

[0196] 試験例 7：トビイロウンカに対する浸透移行試験

本発明化合物の 10%乳剤を水道水で希釈して、濃度が 20 ppm の薬液を調製し、イネセル苗（2 本葉期）の根を浸した。7 日後にイネを切り出して、試験管に入れ、この中にトビイロウンカ（*Nilaparvata lugens*）の 3 齢幼虫を、試験管当たり 5 頭放虫し、スポンジで蓋をして 25℃の恒温室に収容した。放虫してから 6 日後に、トビイロウンカの死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は 2 連制で行なった。

その結果、下記の化合物が 90%以上の死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-004a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-2-0

01a、1-4-001a、1-10-001a。

[0197] 試験例 8：コナガに対する土壌灌注処理試験

本発明化合物の 10% 乳剤を水道水で希釈して、濃度が 500 ppm の薬液を調製した。プラスチックカップ植えキャベツ苗（2.5 本葉期）の株元土壌部分に、10 ml の上記薬液を灌注処理した。灌注処理した後、キャベツ苗を温室内に放置した。灌注処理してから 5 日後にカンランの葉を切り取り、シャーレに入れた。この中にコナガ (*Plutella xylostella*) の 3 齢幼虫を、シャーレ当たり 5 頭放虫し、蓋をして 25℃ の恒温室に収容した。収容してから 6 日後に、シャーレ中のコナガの死虫数を調査し、試験例 6 と同様の計算式から対照値を算出した。尚、試験は 2 連制で行なった。

その結果、下記の化合物が 90% 以上の対照値を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-004a、1-1-005a、1-1-006a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-2-001a、1-4-001a、1-10-001a。

[0198] 試験例 9：種子処理におけるダイズアブラムシに対する効果試験

本発明化合物 2.4 mg を 97.6 μ l のアセトンで希釈した。全量 50 ml のプラスチックチューブ内に 4 粒のダイズ種子を入れ、その上から上記希釈液を注ぎ入れ、種子に化合物が満遍なく付着するように攪拌しながら、アセトンを完全に蒸発させた。処理した種子を 4 粒/ポットで植え、温室内に放置した。初生葉展開後、ダイズアブラムシ (*Aphis glycines*) の成虫を各株 2 頭ずつ放虫した。放虫 7 日後の生存虫数を調査し、試験例 6 と同様の計算式から対照値を算出した。

その結果、下記の化合物が 90% 以上の対照値を示した。

本発明化合物：1-1-004a、1-1-006a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-2-001a。

[0199] 試験例 10：クリイロコイタマダニに対する効果試験

本発明化合物 3.5 mg を 3.5 ml のアセトンに溶解し、1000 ppm 濃度の薬液を調製した。該薬液 350 μ l を、内壁表面積 35 cm² のガラス製容器の底面と側面とに塗布した後、アセトンを揮発させて、化合物の薄膜

をガラス製容器内壁に作製した。用いたガラス製容器の内壁は 35 cm^2 であり、処理薬量は $10 \mu\text{g} / \text{cm}^2$ となる。

上記処理したガラス製容器内に、クリイロコイタマダニ (*Rhipicephalus sanguineus*) の第1若虫 (雌雄混合) を5頭放虫し、蓋をして 25°C の恒温室に収容した。放虫してから4日後に、マダニの死虫数を調査し、試験例1と同様の計算式から死虫率を算出した。

その結果、下記の化合物が50%以上の死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-002b、1-1-004a、1-1-005a、1-1-007a、1-1-009a、1-1-010a、1-1-012a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-1-016a、1-1-016b、1-1-017a、1-3-001a、1-4-001a、1-5-001a、1-11-001a。

[0200] 試験例11：ネコノミに対する効果試験

本発明化合物 3.5 mg を 3.5 ml のアセトンに溶解し、 1000 ppm 濃度の薬液を調製した。該薬液 $350 \mu\text{l}$ を、内壁表面積 35 cm^2 のガラス製容器の底面と側面とに塗布した後、アセトンを揮発させて、化合物の薄膜をガラス製容器内壁に作製した。用いたガラス製容器の内壁は 35 cm^2 であり、処理薬量は $10 \mu\text{g} / \text{cm}^2$ となる。

上記処理したガラス容器内に、ネコノミ (*Ctenocephalides felis*) の成虫 (雌雄混合) を5頭放虫し、蓋をして 25°C の恒温室に収容した。放虫してから4日後に、ノミの死虫数を調査し、試験例1と同様の計算式から死虫率を算出した。

その結果、下記の化合物が50%以上の死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-002b、1-1-003a、1-1-004a、1-1-005a、1-1-006a、1-1-006b、1-1-007a、1-1-009a、1-1-010a、1-1-012a、1-1-013a、1-1-014a、1-1-015a、1-1-016a、1-1-016b、1-1-017a、1-2-001a、1-3-001a、1-4-001a、1-5-001a、1-10-001a、1-11-001a。

[0201] 試験例12：ラット経口投与によるクリイロコイタマダニ寄生防除試験

本発明化合物 5 mg を 5 ml のオリーブオイルに溶解させ、投与薬液を調製した。該薬液をラット体重 $k \text{ g}$ あたり 10 ml の量で、胃ゾンデを用いて

経口投与した。経口投与は、1群あたり2反復にて実施した。薬液投与1時間後に、ラット1匹につきクリイロコイタマダニ (*Rhipicephalus sanguineus*) の第1若虫(雌雄混合)を50頭放虫した。放虫3日後に供試ダニの寄生数を調査し、以下の計算式で防除率を算出した。

防除率(%) = $100 \times (1 - \text{投与群寄生マダニ数} / \text{非投与群寄生マダニ数})$

その結果、下記の化合物が70%以上の防除率を示した。

本発明化合物：1-1-002a、1-1-004a、1-1-005a、1-1-007a。

[0202] 試験例13：イエバエに対する殺虫試験

本発明化合物2mgを、1mlのアセトンに溶解し、 $2\mu\text{g}/\mu\text{l}$ 濃度の薬液を調製した。イエバエ (*Musca domestica*) 雌成虫を炭酸ガスで眠らせた後、前記調製した薬液を、局所施用装置(Burkard Scientific社製)を用いて、該害虫の胸部背側に1頭あたり $1\mu\text{l}$ 塗布した。薬液処理後、処理した害虫を内径7.5cm、高さ4cmの蓋付きプラスチックカップに移し、25℃恒温室にて保管した。処理3日後に死虫数を調査し、試験例1と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は5頭2反復で行なった。

その結果、下記の化合物が70%以上の防除率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-006a、1-1-007a、1-10-001a、1-2-001a。

[0203] 試験例14：チャバネゴキブリに対する殺虫試験

本発明化合物2mgを0.2mlのアセトンに溶解し、 $10\mu\text{g}/\mu\text{l}$ 濃度の薬液を調製した。チャバネゴキブリ (*Blattella germanica*) 雄成虫を炭酸ガスで眠らせた後、前記調製した薬液を、局所施用装置(Burkard Scientific社製)を用いて、該害虫の腹部に1頭あたり $1\mu\text{l}$ 塗布した。薬液処理後、内径6cm、高さ6cmの腰高シャーレに移し、25℃恒温室に保管した。処理3日後に苦悶虫数及び死虫数を調査し、下記の計算式から苦悶死虫率を算出した。尚、試験は5頭4反復で行なった。

苦悶死虫率(%) = $(\text{苦悶虫数} + \text{死虫数}) / \text{供試虫数} \times 100$

その結果、下記の化合物が70%以上の苦悶死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-10-001a、1-2-001a。

[0204] 試験例 15：ヤマトシロアリに対する殺虫試験

本発明化合物の 10% 乳剤を調製した。該乳剤を水で希釈し 100 ppm 濃度の薬液を調製した。10 g の川砂に該薬液 0.5 ml を滴下し、川砂と薬液を混和した。内径 4 cm のシャーレに、1% 寒天（2 cm 角）を敷き、前記の薬剤処理した川砂と、餌としてろ紙片を入れた。ここにヤマトシロアリ（*Reticulitermes speratus*）を放虫した後、25℃の恒温室に保管した。処理 10 日後に死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は 2 反復で行なった。

その結果、下記の化合物が 70% 以上の防除率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-006a、1-1-007a、1-10-001a、1-2-001a。

[0205] 試験例 16：チカイエカに対する殺虫試験

本発明化合物 2 mg を 0.2 ml のジメチルスルホキシドに溶解し、1%（w/v）ジメチルスルホキシド溶液を調製した。該溶液を蒸留水で 100 倍に希釈し、化合物濃度が 100 ppm の薬液を調製した。試験容器には 1.9 ml のプラスチック容器（Cellstar 24 well plate、GREINER 社製）を用いた。ここに孵化 1 日後のチカイエカ（*Culex pipiens molestus*）の幼虫 10～30 頭含む水を 0.7 ml と、餌として鑑賞魚用飼料（テトラミン、テトラジャパン 社製）を懸濁した水溶液を 0.2 ml 加えた。前記調製した薬液 0.1 ml をここに加え、25℃の恒温室に保管した。処理 1 日後に死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。尚、試験は 2 反復で行った。

その結果、以下の化合物が 100% の死虫率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-006a、1-1-007a。

[0206] 試験例 17：ヒトスジシマカ幼虫に対する殺虫試験

本発明化合物 2 mg を 0.2 ml のジメチルスルホキシドに溶解し、1%（w/v）ジメチルスルホキシド溶液を調製した。該溶液 0.01 ml を純

水 0.99 ml に加えて 0.01% (w/v) の薬液を調製した。試験容器には 0.3 ml のプラスチック容器 (Cellstar 96 well cell culture plate、GREINER 社製) を用いた。該試験容器に孵化 1 日後のヒトスジシマカ (*Aedes albopictus*) の幼虫 30 頭を含む蒸留水 0.09 ml を入れた後、0.01 ml の薬液を滴下し、終濃度 10 ppm とした。該試験容器に蓋をして 25℃ の恒温室に保管した。処理 3 日後に死虫数を調査し、試験例 1 と同様の計算式から死虫率を算出した。

その結果、下記の化合物が 70% 以上の防除率を示した。

本発明化合物：1-1-001a、1-1-002a、1-1-003a、1-1-004a、1-1-005a、1-1-006a、1-1-006b、1-1-007a、1-1-010a、1-1-011a、1-1-013a、1-1-016b、1-2-001a、1-2-002a、1-2-002b、1-3-001a、1-4-001a、1-5-001a、1-11-001a、1-11-001b。

産業上の利用可能性

[0207] 本発明の化合物は、優れた有害生物防除活性を示し、且つ、ホ乳動物、魚類、益虫等の非標的生物に対してほとんど悪影響の無く、低毒性で、且つ低残留性の新規な有害生物防除剤として極めて有用である。

なお、下記の日本特許出願の明細書、特許請求の範囲、図面、及び要約書の全内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として取り入れるものである。

特願 2016-047064 号 (2016 年 3 月 10 日)

特願 2016-054191 号 (2016 年 3 月 17 日)

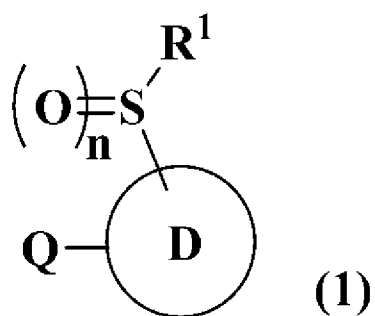
特願 2016-199515 号 (2016 年 10 月 7 日)

特願 2016-255131 号 (2016 年 12 月 28 日)

請求の範囲

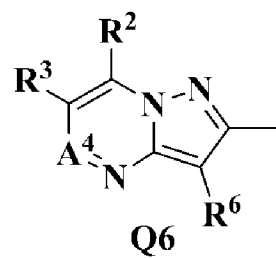
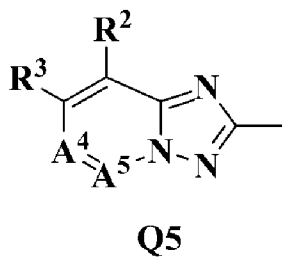
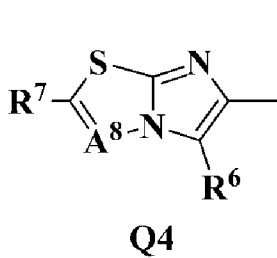
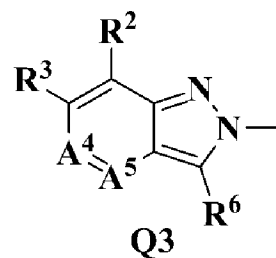
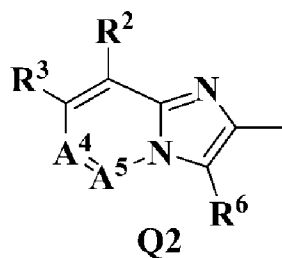
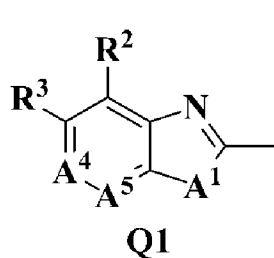
[請求項1] 式(1) :

[化1]



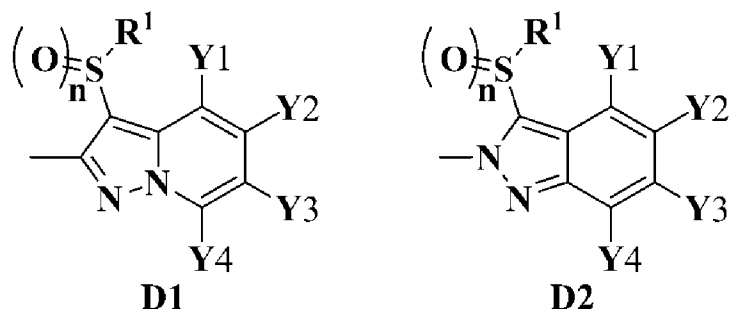
[式中、Qは、Q1、Q2、Q3、Q4、Q5又はQ6で表される構造を表し、

[化2]



—S(O)_nR¹で置換されたDは、D1又はD2で表される構造を表し、

[化3]



A¹は、N (A^{1a})、酸素原子又は硫黄原子を表し、

A⁴は、窒素原子又はC (R⁴)を表し、

A⁵は、窒素原子又はC (R⁵)を表し、

A⁸は、窒素原子又はC (R⁸)を表し、

R¹は、C₁～C₆アルキル又はハロ (C₁～C₆) アルキルを表し、

R²、R⁵、R⁶及びR⁸は、各々独立して水素原子又はC₁～C₆アルキルを表し、

R³、R⁴及びR⁷は、各々独立して、水素原子、ハロゲン原子、ハロ (C₁～C₆) アルキル、ハロ (C₁～C₆) アルキルチオ、ハロ (C₁～C₆) アルキルスルフィニル又はハロ (C₁～C₆) アルキルスルホニルを表し、

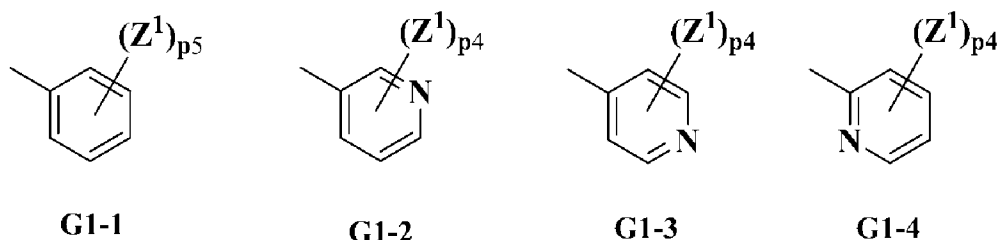
Y¹、Y²、Y³及びY⁴は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、C₃～C₆シクロアルキル、Y^aによって任意に置換された (C₃～C₆) シクロアルキル、C₁～C₆アルキル、ハロ (C₁～C₆) アルキル、C₁～C₆アルコキシ、ハロ (C₁～C₆) アルコキシ、C₁～C₆アルキルチオ、ハロ (C₁～C₆) アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、ハロ (C₁～C₆) アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、ハロ (C₁～C₆) アルキルスルホニル、—NH₂、—NHR^{90g}、シアノ、ニトロ、G¹又はG²を表し、

R^{90g}は、C₁～C₆アルキル、ハロ (C₁～C₆) アルキル、C₁～C₆アルキルカルボニル、ハロ (C₁～C₆) アルキルカルボニル、C₁～C₆アルコキシカルボニル、ハロ (C₁～C₆) アルコキシカルボ

ニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル又はハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルホニルを表し、

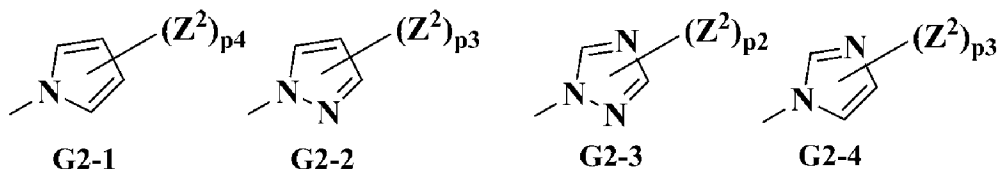
G 1 は、G 1 - 1、G 1 - 2、G 1 - 3 又は G 1 - 4 で表される構造を表し、

[化4]



G 2 は、G 2 - 1、G 2 - 2、G 2 - 3 又は G 2 - 4 で表される構造を表し、

[化5]



A^{1a} は、水素原子又は $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、

Z^1 及び Z^2 は、各々独立して、ハロゲン原子、 $C_1 \sim C_6$ アルキル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシ、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルコキシ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスフィニル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルホニル、シアノ又はニトロを表し、 p_2 、 p_3 、 p_4 又は p_5 が 2 以上の整数を表す場合には、各々の Z^1 、及び各々の Z^2 は互いに同一であっても又は互いに相異なっても良く、

Y^a は、シアノ、 $-C(O)OH$ 又は $-C(O)NH_2$ を表し、

p_2 は、0、1 又は 2 の整数を表し、

p_3 は、0、1、2 又は 3 の整数を表し、

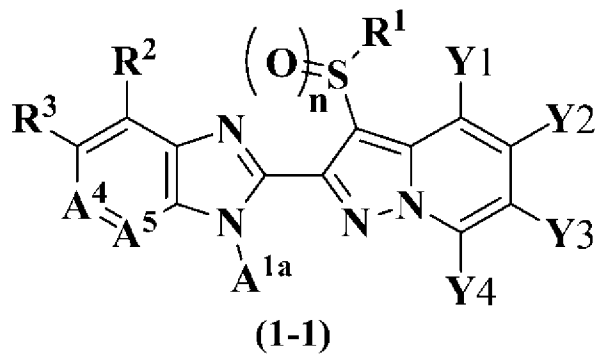
p 4 は、0、1、2、3 又は 4 の整数を表し、

p 5 は、0、1、2、3、4 又は 5 の整数を表し、

n は、0、1 又は 2 の整数を表す。] で表される縮合複素環化合物
若しくはその塩又はそれらの N-オキシド。

[請求項2] 前記式 (1) が、式 (1-1) :

[化6]



で表される化合物であり、

R¹ は、C₁～C₆アルキルを表し、

A^{1a} は、C₁～C₆アルキルを表す請求項 1 に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらの N-オキシド。

[請求項3] R²、R⁴ 及び R⁵ は、水素原子を表し、

R³ は、ハロ (C₁～C₆) アルキル、ハロ (C₁～C₆) アルキルチオ、ハロ (C₁～C₆) アルキルスルフィニル又はハロ (C₁～C₆) アルキルスルホニルを表し、

Y¹ は、水素原子又はハロゲン原子を表し、

Y²、Y³ 及び Y⁴ は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ (C₁～C₆) アルキル、C₁～C₆アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、G¹ 又は G² を表す請求項 2 に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらの N-オキシド。

[請求項4] A⁴ は、C (R⁴) を表し、

A⁵ は、窒素原子を表し、

R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルチオ又はハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルスルフィニルを表し、

Y_2 は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルスルホニル又は G_1 を表し、

Y_3 は、水素原子、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル又は G_2 を表し、

Y_4 は、水素原子を表し、

G_1 は、 $G_1 - 1$ を表し、

G_2 は、 $G_2 - 2$ を表し、

Z^2 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、

p_3 は、1の整数を表し、

p_5 は、0の整数を表し、

n は、0又は2の整数を表す請求項3に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項5]

A^4 は、窒素原子を表し、

A^5 は、 $C(R^5)$ を表し、

R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、

Y_3 は、水素原子又はハロゲン原子を表し、

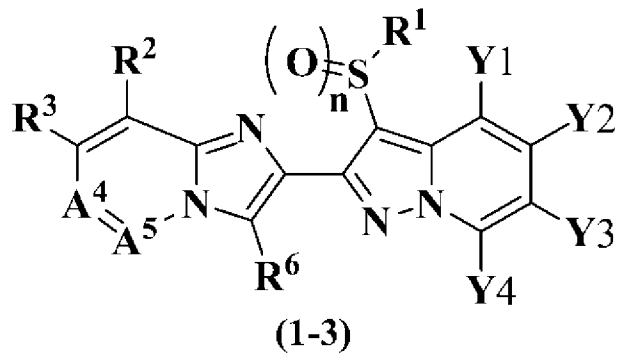
Y_2 及び Y_4 は、水素原子を表し、

n は、0又は2の整数を表す請求項3に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項6]

前記式(1)が、式(1-3)：

[化7]



で表される化合物であり、

A⁴は、窒素原子を表し、

A⁵は、C (R⁵) を表し、

R¹は、C₁～C₆アルキルを表し、

R²及びR⁵は、水素原子を表し、

R³は、ハロ (C₁～C₆) アルキルを表し、

Y¹は、水素原子又はハロゲン原子を表し、

Y²、Y³及びY⁴は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ (C₁～C₆) アルキル、C₁～C₆アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、G¹又はG²を表す請求項1に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項7]

R⁶は、水素原子を表し、

Y¹、Y³及びY⁴は、水素原子を表し、

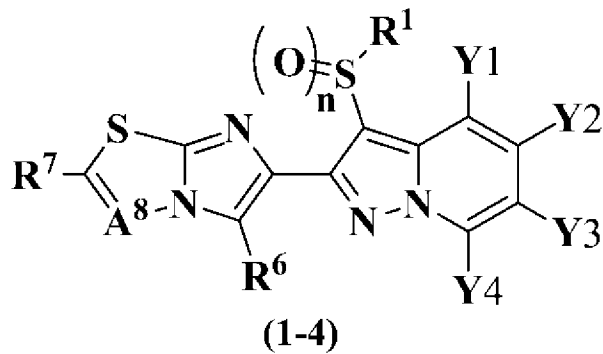
Y²は、ハロ (C₁～C₆) アルキルを表し、

nは、2の整数を表す請求項6に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項8]

前記式(1)が、式(1-4)：

[化8]



で表される化合物であり、

A⁸は、窒素原子を表し、

R¹は、C₁～C₆アルキルを表し、

R⁷は、ハロ（C₁～C₆）アルキルを表し、

Y¹は、水素原子又はハロゲン原子を表し、

Y²、Y³及びY⁴は、各々独立して水素原子、ハロゲン原子、ハロ（C₁～C₆）アルキル、C₁～C₆アルキルチオ、C₁～C₆アルキルスルフィニル、C₁～C₆アルキルスルホニル、G¹又はG²を表す請求項1に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項9]

R⁶は、水素原子を表し、

Y¹、Y³及びY⁴は、水素原子を表し、

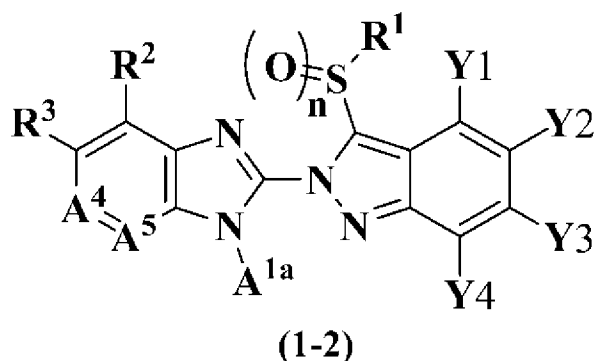
Y²は、ハロ（C₁～C₆）アルキルを表し、

nは、2の整数を表す請求項8に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項10]

前記式（1）が、式（1-2）：

[化9]



で表される化合物であり、

R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表し、

A^{1a} は、 $C_1 \sim C_6$ アルキルを表す請求項1に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項11]

A^4 は、 $C(R^4)$ を表し、

A^5 は、窒素原子を表し、

R^3 は、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキルを表し、

Y_3 は、ハロゲン原子、ハロ ($C_1 \sim C_6$) アルキル、 $-NH_2$ 又はニトロを表し、

R^2 、 R^4 、 Y_1 、 Y_2 及び Y_4 は、水素原子を表し、

n は、0又は2の整数を表す請求項10に記載の縮合複素環化合物若しくはその塩又はそれらのN-オキシド。

[請求項12]

請求項1～11のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する有害生物防除剤。

[請求項13]

請求項1～11のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する農薬。

[請求項14]

請求項1～11のいずれか1項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる1種又は2種以上を有効成分として含有する哺乳動物又は鳥類の内部若しくは外部寄生虫の防除剤。

[請求項15]

外部寄生虫がノミ目類又はマダニ類である請求項14に記載の防除

剤。

- [請求項16] 請求項 1 ～ 1 1 のいずれか 1 項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる 1 種又は 2 種以上を有効成分として含有する殺虫剤又は殺ダニ剤。
- [請求項17] 請求項 1 ～ 1 1 のいずれか 1 項に記載の縮合複素環化合物から選ばれる 1 種又は 2 種以上を有効成分として含有する土壌処理剤。
- [請求項18] 土壌処理が土壌灌注処理によって行われる請求項 1 7 に記載の土壌処理剤。
- [請求項19] 請求項 1 ～ 1 1 のいずれか 1 項に記載の縮合複素環化合物及びその塩から選ばれる 1 種又は 2 種以上を有効成分として含有する種子処理剤。
- [請求項20] 種子処理が浸漬処理によって行われる請求項 1 9 に記載の種子処理剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/009763

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

See extra sheet.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D471/04, A01N25/00, A01N43/90, A01P7/02, A01P7/04, A61K31/437, A61P33/02, A61P33/04, A61P33/06, A61P33/10, A61P33/12, A61P33/14, C07D519/00

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

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII), CApus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, A	WO 2017/061497 A1 (Nihon Nohyaku Co., Ltd.), 13 April 2017 (13.04.2017), a whole article (Family: none)	1-20
P, A	WO 2017/026384 A1 (Nihon Nohyaku Co., Ltd.), 16 February 2017 (16.02.2017), a whole article (Family: none)	1-20
P, A	WO 2016/129684 A1 (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 18 August 2016 (18.08.2016), a whole article (Family: none)	1-20

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 May 2017 (09.05.17)

Date of mailing of the international search report
23 May 2017 (23.05.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/009763

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/000715 A1 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG), 08 January 2015 (08.01.2015), a whole article & JP 2016-528189 A & US 2016/0255837 A1 & EP 3016949 A1 & CA 2917262 A & CN 105431433 A & KR 10-2016-0029078 A & MX 2015017821 A & TW 201536781 A & AR 96783 A	1-20
A	WO 2013/180193 A1 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 05 December 2013 (05.12.2013), a whole article & US 2015/0094329 A1 & EP 2857396 A1 & CN 104334552 A	1-20
A	WO 2013/180194 A1 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 05 December 2013 (05.12.2013), a whole article & US 2015/0166573 A1 & US 2015/0373982 A1 & EP 2857397 A1 & CN 104334551 A	1-20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/009763

Continuation of A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

(International Patent Classification (IPC))

*C07D471/04(2006.01)i, A01N25/00(2006.01)i, A01N43/90(2006.01)i,
A01P7/02(2006.01)i, A01P7/04(2006.01)i, A61K31/437(2006.01)i,
A61P33/02(2006.01)i, A61P33/04(2006.01)i, A61P33/06(2006.01)i,
A61P33/10(2006.01)i, A61P33/12(2006.01)i, A61P33/14(2006.01)i,
C07D519/00(2006.01)i*

(According to International Patent Classification (IPC) or to both national
classification and IPC)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. 特別ページ参照

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C07D471/04, A01N25/00, A01N43/90, A01P7/02, A01P7/04, A61K31/437, A61P33/02, A61P33/04, A61P33/06, A61P33/10, A61P33/12, A61P33/14, C07D519/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)
CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
E, A	WO 2017/061497 A1（日本農薬株式会社）2017.04.13, 全体（ファミリーなし）	1-20
P, A	WO 2017/026384 A1（日本農薬株式会社）2017.02.16, 全体（ファミリーなし）	1-20
P, A	WO 2016/129684 A1（日産化学工業株式会社）2016.08.18, 全体（ファミリーなし）	1-20

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09.05.2017

国際調査報告の発送日

23.05.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

伊藤 幸司

4 P

9450

電話番号 03-3581-1101 内線 3492

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2015/000715 A1 (SYNGENTA PARTICIPATIONS AG) 2015.01.08, 全体 & JP 2016-528189 A & US 2016/0255837 A1 & EP 3016949 A1 & CA 2917262 A & CN 105431433 A & KR 10-2016-0029078 A & MX 2015017821 A & TW 201536781 A & AR 96783 A	1-20
A	WO 2013/180193 A1 (住友化学株式会社) 2013.12.05, 全体 & US 2015/0094329 A1 & EP 2857396 A1 & CN 104334552 A	1-20
A	WO 2013/180194 A1 (住友化学株式会社) 2013.12.05, 全体 & US 2015/0166573 A1 & US 2015/0373982 A1 & EP 2857397 A1 & CN 104334551 A	1-20

発明の属する分野の分類

C07D471/04(2006.01)i, A01N25/00(2006.01)i, A01N43/90(2006.01)i, A01P7/02(2006.01)i, A01P7/04(2006.01)i, A61K31/437(2006.01)i, A61P33/02(2006.01)i, A61P33/04(2006.01)i, A61P33/06(2006.01)i, A61P33/10(2006.01)i, A61P33/12(2006.01)i, A61P33/14(2006.01)i, C07D519/00(2006.01)i