

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4965441号
(P4965441)

(45) 発行日 平成24年7月4日 (2012.7.4)

(24) 登録日 平成24年4月6日 (2012.4.6)

(51) Int. Cl.

F I

A O 1 N 25/04 (2006.01)

A O 1 N 25/04 1 O 2

A O 1 N 41/10 (2006.01)

A O 1 N 41/10 A

A O 1 N 43/80 (2006.01)

A O 1 N 43/80 1 O 1

A O 1 N 57/20 (2006.01)

A O 1 N 57/20 G

A O 1 N 43/40 (2006.01)

A O 1 N 43/40 1 O 2

請求項の数 8 (全 21 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-518675 (P2007-518675)
 (86) (22) 出願日 平成17年6月21日 (2005.6.21)
 (65) 公表番号 特表2008-504354 (P2008-504354A)
 (43) 公表日 平成20年2月14日 (2008.2.14)
 (86) 国際出願番号 PCT/GB2005/002443
 (87) 国際公開番号 W02006/003371
 (87) 国際公開日 平成18年1月12日 (2006.1.12)
 審査請求日 平成20年6月10日 (2008.6.10)
 (31) 優先権主張番号 0414895.3
 (32) 優先日 平成16年7月2日 (2004.7.2)
 (33) 優先権主張国 英国 (GB)

(73) 特許権者 500371307
 シンジェンタ リミテッド
 イギリス国 サリー ジーユー2 7ワイ
 エイチ, ギルドフォード, サリー リサー
 チ パーク, プリーストリー ロード, ユ
 アロピーアン リージョナル センター
 (74) 代理人 100099759
 弁理士 青木 篤
 (74) 代理人 100077517
 弁理士 石田 敬
 (74) 代理人 100087871
 弁理士 福本 積
 (74) 代理人 100087413
 弁理士 古賀 哲次

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 除草用組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(i) 水と、

(ii) その水に懸濁させたメソトリオン及びイソキサフルトールから選択される、10～600g/lのHPPD阻害剤と、

(iii) その水に溶けた溶液の形態のグリホサート又はその塩、パラコート及びジクワットから選択される、10～700g/lの電解質と、

を含む2年にわたり20%未満の分解率を示す化学的に安定な水性プレミックス懸濁濃縮組成物。

【請求項 2】

上記HPPD阻害剤が、メソトリオンである、請求項1に記載の組成物。

【請求項 3】

上記電解質が、グリホサート又はその塩である、請求項1または2に記載の組成物。

【請求項 4】

上記電解質が、グリホサートのカリウム塩又はアンモニウム塩である、請求項3に記載の組成物。

【請求項 5】

上記HPPD阻害剤と上記電解質の比が70:1～1:5である、請求項1～4のいずれか1項に記載の組成物。

【請求項 6】

10

20

請求項1～5のいずれか1項に記載の組成物を調製する方法であって、

(i) HPPD阻害剤ミルベースと電解質溶液を別々に用意するステップと、

(ii) そのHPPD阻害剤ミルベースと電解質溶液を水に添加するステップを含む方法。

【請求項7】

望まない植物を制御する方法であって、請求項1～5のいずれか1項に記載の組成物を希釈してすぐに使用できる水性組成物を形成した後、除草に有効な量のそのすぐに使用できる水性組成物を望まない植物が存在している場所に散布する操作を含む方法。

【請求項8】

水性濃縮組成物中でのメソトリオン及びイソキサフルトールから選択されるHPPD阻害剤の安定性を向上させる方法であって、そのHPPD阻害剤を安定させる量のグリホサート又はその塩、パラコート及びジクワットから選択される10～700g/lの電解質をその水性濃縮組成物に添加する操作を含む方法。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、HPPD阻害剤と電解質を含む新規な除草用組成物と、その調製方法と、その利用法に関する。本発明はさらに、水中でのHPPD阻害剤の安定性を向上させる方法にも関する。

【背景技術】

【0002】

20

作物の生長を妨げる雑草その他の植物から作物を保護することは、農業に常につきまとう問題である。この問題に対処するため、合成化学の分野での研究により、そのような望ましくない生長を制御するのに有効な多彩な化合物と化学組成物が生み出されてきた。多くのタイプの化学除草剤が文献に開示されており、多くのものが市販されている。市販されている除草剤と、まだ開発中のいくつかの除草剤が、イギリス作物保護協会によって2000年に発売された『殺虫剤マニュアル』、第12版に記載されている。

【0003】

多数の除草剤は作物用植物に損害も与える。したがって生長中の作物に混ざった雑草を制御するには、雑草を殺す一方で、作物には損害を与えないように選択されたいわゆる“選択的”除草剤を使用する必要がある。実際には、特定の散布量で雑草をすべて殺す一方で作物は損害を受けないという点で十分に選択的な除草剤はほとんど存在していない。たいいていの選択的除草剤を使用するとき、実際には、雑草の大半を許容できる程度に制御するのに十分な除草剤を散布することと、作物に最小限の損害しか与えないことの間のバランスが問題になる。

30

【0004】

知られている1つの選択的除草剤はメソトリオン(2-(4-メチルスルホニル-2-ニトロベンゾイル)シクロヘキサン-1,3-ジオン)というHPPD阻害剤である。メソトリオンは水に実質的に溶けず、20℃における溶解度は、2.2g/l (pH4.8)、15g/l (pH6.9)、22g/l (pH9)である(データは『殺虫剤マニュアル』、第12版からのもの)。メソトリオンは、通常は販売用に、固体メソトリオンを水に懸濁させた懸濁濃縮液にされる。この濃縮液は、一般に、メソトリオンを100～500g/l含んでいる。その後、エンド・ユーザーが散布するしばらく前にこの濃縮液を希釈し、メソトリオンが一般に1～10g/l含まれた最終的に使用できる組成物にする。

40

【0005】

メソトリオンと他のHPPD阻害剤に関する1つの問題点は、不安定であるため水の存在下で分解することである。この分解はゆっくりと起こるが、濃縮液を特に暖かい条件下である程度の期間にわたって保管するとメソトリオンの含有量が顕著に減少する。例えばメソトリオンの10%SC組成物をpH5で54℃にて2週間にわたって保管すると、約45%が分解する。

【発明の開示】

50

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

したがって本発明の1つの目的は、特に3よりも大きなpHで長期間にわたって安定なHPPD阻害剤を含む、改善された水性プレミックス濃縮組成物を提供することである。ある組成物が安定であるかどうかの目安は、穏やかな気候において周囲温度で2年間経過したときの分解率が20%未満、好ましくは10%未満に留まることである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

驚くべきことに、われわれは、濃縮液に電解質を添加することにより、水性環境におけるHPPD阻害剤の長期安定性を改善できることを見いだした。これはまったく予想外の効果であり、HPPD阻害剤を水性懸濁濃縮液の形態でより長期間にわたって、および/またはより厳しい条件下で保管することが可能になる。

10

【0008】

したがって本発明により、

(i) 水と、

(ii) その水に懸濁させたHPPD阻害剤と、

(iii) その水に溶けた溶液の形態の電解質とを含む水性プレミックス懸濁濃縮組成物が提供される。

【0009】

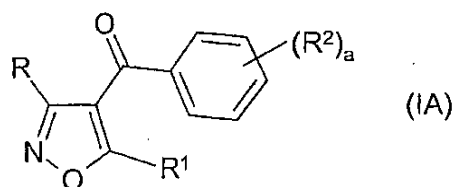
HPPD阻害剤は、イソオキサゾール、トリケトン、ピラゾール、ベンゾビシクロン、ケトスピラドックスからなるグループの中から選択されることが好ましい。

20

【0010】

イソオキサゾールは、一般式(IA)の化合物

【化1】



30

であることが好ましい(ただしRは、水素または $-CO_2R^3$ であり；

R^1 は、 $C_1 \sim 4$ アルキルであるか、場合によっては $C_1 \sim 6$ アルキルで置換された $C_3 \sim 6$ シクロアルキルであり；

R^2 は、ハロゲン、ニトロ、シアノ、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ ハロアルコキシ、 $-(CR^4R^5)_cS(O)_bR^6$ 、 $-S(O)_bR^6$ 、 $-OSO_2R^6$ 、 $-N(R^7)SO_2R^6$ の中から独立に選択されるか；フェニル環の隣り合った炭素原子上の2つの R^2 が、これら R^2 基が結合している炭素原子と合わさって、5員または6員の飽和または不飽和の複素環を形成し、この環には、窒素、酸素、イオウの中から選択した3個までのヘテロ原子が含まれており、この環は、場合によっては1個以上の基で置換されていてもよく、その置換基の選択は、ハロゲン、ニトロ、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 4$ ハロアルコキシ、 $-S(O)_bR^6$ の中からもなされ、環内にイオウ原子が存在している場合には、そのイオウ原子が $-SO-$ または $-SO_2-$ の形で存在していてもよいものとし；

40

R^3 は $C_1 \sim 4$ アルキルであり；

R^4 と R^5 は、独立に、水素または $C_1 \sim 4$ アルキルであり；

R^6 は、 $C_1 \sim 4$ アルキル、フェニル、ベンジルのいずれかであり、フェニルとベンジルそれぞれは、場合によっては1又は5個の置換基を備えており、その置換基は同じでも異なっている場合、ハロゲン、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 4$

50

ハロアルコキシ、ニトロ、 $-S(O)_bCH_3$ からなるグループの中から選択され；

R^7 は、水素または $C_1 \sim 6$ アルキルであり；

a は1～5の整数であり；

b は、0、1、2のいずれかであり；

c は、1または2である（ c が2である場合には、基 (CR^4R^5) は互いに同じでも異なっているもよい）。

【0011】

R が水素であり； R^1 がシクロプロピルであり； R^2 が、ハロゲン（クロロが好ましい）、 $-S(O)_bCH_3$ 、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル（トリフルオロメチルが好ましい）のいずれかであり； a が2であることが好ましい。

10

【0012】

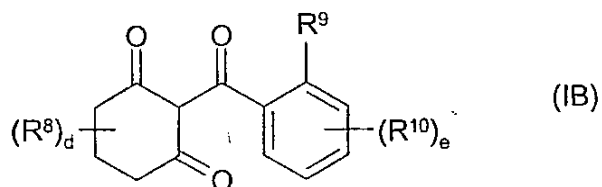
特に好ましい一般式（IA）の化合物としては、5-シクロプロピル-4-(2-メチルスルホニル-4-トリフルオロメチル)ベンゾイルイソオキサゾール（イソオキサフルトール）や4-(2-クロロ-4-メチルスルホニル)ベンゾイル-5-シクロプロピルイソオキサゾール（イソオキサフルトール）などがあり、中でもイソオキサフルトールが好ましい。

【0013】

トリケトンは、2-(2'-クロロ-4'-メチルスルホニルベンゾイル)-1,3-シクロヘキサジオンを除く一般式（IB）の化合物：

【化2】

20



であることが好ましい（ただしそれぞれの R^8 は、独立に、 $C_1 \sim 4$ アルキルまたは $-CO_2R^{11}$ であり；

30

R^9 は、ハロゲン原子；6個までの炭素原子を含んでいて、場合によっては1個以上の基- OR^{12} または1個以上のハロゲン原子で置換された直鎖または分岐鎖のアルキル基またはアルコキシ基；ニトロ、シアノ、 $-CO_2R^{13}$ 、 $-S(O)_fR^{12}$ 、 $-O(CH_2)_gOR^{12}$ 、 $-COR^{13}$ 、 $-NR^{13}R^{14}$ 、 $-SO_2NR^{13}R^{14}$ 、 $-CONR^{13}R^{14}$ 、 $-CSNR^{13}R^{14}$ 、 $-OSO_2R^{15}$ の中から選択された基のいずれかであり；

それぞれの R^{10} は、独立に、ハロ、ニトロ、シアノ、 $S(O)_fR^{16}$ 、 $OS(O)_fR^{16}$ 、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、カルボキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルカルボニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルカルボニル、アミノ、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノ、それぞれのアルキル基に指定された数の炭素原子を独立に含む $C_1 \sim 6$ ジアルキルアミノ、 $C_1 \sim 6$ アルキルカルボニルアミノ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシカルボニルアミノ、 $C_1 \sim 6$ アルキルカルボニルアミノ、それぞれのアルキル基に指定された数の炭素原子を独立に含む $C_1 \sim 6$ ジアルキルアミノカルボニルアミノ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシカルボニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノカルボニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ ジアルキルカルボニルオキシ、フェニルカルボニル、置換されたフェニルカルボニル、フェニルカルボニルオキシ、置換されたフェニルカルボニルオキシ、フェニルカルボニルアミノ、置換されたフェニルカルボニルアミノ、フェノキシ、置換されたフェノキシのいずれかを表わし；

40

R^{11} は $C_1 \sim 4$ アルキルであり；

R^{12} は、6個までの炭素原子を含んでいて、場合によっては1個以上のハロゲン原子で置換された直鎖または分岐鎖のアルキル基を表わし；

R^{13} と R^{14} は、それぞれ独立に、水素原子；6個までの炭素原子を含んでいて、場合によ

50

っては1個以上のハロゲン原子で置換された直鎖または分岐鎖のアルキル基を表わし；

R^{15} は、6個までの炭素原子を含んでいて、場合によっては1個以上のハロゲン原子で置換された直鎖または分岐鎖のアルキル基、アルケニル基、アルキニル基のいずれかであるか；3～6個の炭素原子を含むシクロアルキル基を表わし；

R^{16} は、6個までの炭素原子を含む直鎖または分岐鎖のアルキル基を表わし；

dは、0または1～6の整数であり；

eは、0または1～4の整数であり；

fは、0、1、2のいずれかであり；

gは、1、2、3のいずれかである）。

【0014】

R^9 が、クロロ、ブromo、ニトロ、シアノ、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $-CF_3$ 、 $-S(O)_f R^{12}$ 、 $-OR^{12}$ のいずれかであり；それぞれの R^{10} が、独立に、クロロ、ブromo、ニトロ、シアノ、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $-CF_3$ 、 $-OR^{12}$ 、 $-OS(O)_f R^{16}$ 、 $-S(O)_f R^{16}$ のいずれかであり；dが0であり；eが1または2であることが好ましい。

【0015】

好ましい一般式(1B)の化合物は、2-(2'-ニトロ-4'-メチルスルホニルベンゾイル)-1,3-シクロヘキサジオン(メソトリオン)、2-(2'-ニトロ-4'-メチルスルホニルオキシベンゾイル)-1,3-シクロヘキサジオン、4,4-ジメチル-2-(4-メタンスルホニル-2-ニトロベンゾイル)-1,3-シクロヘキサジオン、2-(2-クロロ-3-エトキシ-4-メタンスルホニルベンゾイル)-5-メチル-1,3-シクロヘキサジオン、2-(2-クロロ-3-エトキシ-4-エタ

ン

メチル-1,3-シクロヘキサジオンであり；最も好ましいのは、2-(2'-ニトロ-4'-メチルスルホニルベンゾイル)-1,3-シクロヘキサジオンである。

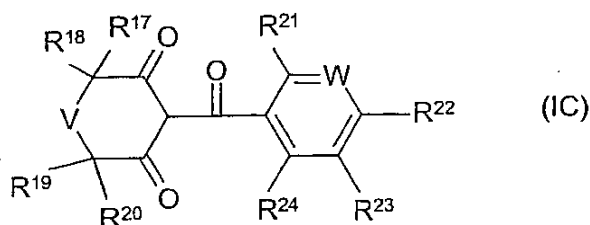
【0016】

一般式(1B)の化合物はエノール化互変異性体の形態で存在することができ、その形態から幾何異性体が生じる可能性がある。さらに、いくつかの場合には、さまざまな置換基が光学異性および/または立体異性に寄与する可能性がある。このような互変異性体、ラセミ混合物、異性体はすべて、本発明の範囲に含まれる。

【0017】

あるいはトリケトンは、一般式(1C)の化合物：

【化3】



と、その化合物の農業で許容可能な塩/N-酸化物/異性体/鏡像異性体である(ただしVは、1個または複数個の R^{26} で置換されていてもよい $C_1 \sim 2$ アルキレンであるか； R^{18} と R^{19} が $C_2 \sim 3$ アルキレンではない場合には、Vはさらに、カルボニル、酸素、 $-NR^{27}$ -のいずれかであってもよく；

Wは、 CR^{28} または $N(O)_g$ であり；

R^{17} 、 R^{18} 、 R^{19} 、 R^{20} は、独立に、水素、 $C_1 \sim 4$ アルキル、フェニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ、ハロゲン、ヒドロキシ、シアノ、ヒドロキシカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニルのいずれかであるか； R^{18} と R^{19} が合わさって、1個または複数個の R^{25} で置換されていてもよい $C_2 \sim 3$ アルキレンになっており；

R^{21} は、水素、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_1 \sim 2$ アルコキシカルボニルで置換されたビニル、フェニルで置換されたビニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、トリメチルシリルで置換されたエチニル、ヒドロキシで置換されたエチニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシで置換されたエチニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシカルボニルで置換されたエチニル、フェニルで置換されたエチニル、 $C_3 \sim 6$ アレニル、 $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、ハロで置換された $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシメチルで置換された $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルオキシ、シアノ- $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルチオ- $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル- $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル- $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 4$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ- $C_1 \sim 3$ アルキルアミノ、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ- $C_1 \sim 3$ アルキル-N($C_1 \sim 3$ アルキル)、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノスルホニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキルスルホニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニルアミノ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル-N($C_1 \sim 4$ アルキル)、シアノ、カルバモイル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル、ホルミル、ハロゲン、ロダノ、アミノ、ヒドロキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルチオ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、シアノ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ アルキルカルボニルオキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニルオキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、ロダノ- $C_1 \sim 4$ アルキル、フェニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、フェノキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、ベンジルオキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、ベンゾイルオキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、(2-オキシラニル)- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノ- $C_1 \sim 4$ アルキル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)-アミノ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 12$ アルキルチオカルボニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、ホルミル- $C_1 \sim 4$ アルキル、ベンジルチオ、ベンジルスルフィニル、ベンジルスルホニル、ベンジルオキシ、ベンジル、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、フェニルスルフィニル、フェニルスルホニルのいずれかであり、この中でフェニルを含む基は、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかで置換されていてもよく；あるいは

R^{21} は、3員～10員の単環系または縮合二環系であり、この環系は、飽和しているか一部が飽和した芳香族が可能であり、窒素、酸素、イオウの中から選択した1～4個のヘテロ原子を含んでいてもよく、この環系は、 $C_1 \sim 4$ アルキレン・ブリッジ、 $C_2 \sim 4$ アルケニレン・ブリッジ、 $C_2 \sim 4$ アルキニレン・ブリッジのいずれかを通じてW含有芳香族環に結合しており、ブリッジは、酸素、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、イオウ、スルフィニル、スルホニル、カルボニルのいずれかで中断されていてもよく、それぞれの環系は、2個までの酸素原子と2個までのイオウ原子を含んでいてもよく、その環系自体は1～3個の置換基で置換されていてもよく、その置換基は、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、ヒドロキシ、メルカプト、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 3$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル- $C_1 \sim 3$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 3$ アルキルチオ、シアノ- $C_1 \sim 3$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、アミノスルホニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノ、ハロゲン、シアノ、ニトロ、フェニル及び/又はベンジルチオであり、この中のフェニルとベンジルチオは、フェニル環上において、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim$

10

20

30

40

50

₃アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかによって置換されていてもよく、複素環の窒素上の置換基はハロゲン以外であり；あるいは

R^{21} は、基- D_1 - D_3 または基- D_2 - D_1 - D_3 であり；

R^{22} は、水素、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニルオキシ、ヒドロキシ、メルカプト、アミノ、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニルアミノ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノスルホニル、シアノ、ハロゲン、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルチオ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、トリアゾリル、フェニル、フェニルチオ、フェニルスルフィニル、フェニルスルホニル、フェノキシのいずれかであり、この中でフェニルを含む基は、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかで置換されていてもよく；

R^{23} は、水素、 $C_1 \sim 6$ アルキル、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニルオキシ、フェニルスルホニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル、ホルミル、シアノ、ハロゲン、フェニル、フェノキシのいずれかであり、この中でフェニルを含む基は、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかで置換されていてもよく；あるいは

R^{23} は、3員～10員の単環系であるか、 R^{25} または R^{27} と合わさって縮合二環系になっており、その環系は、窒素、酸素、イオウの中から選択した1～4個のヘテロ原子を含んでいてもよく、その環系が縮合していない場合には、直接に、またはブリッジを介してW含有芳香族環と結合しており、そのブリッジは、 $C_1 \sim 4$ アルキレン、 $C_2 \sim 4$ アルケニレン、 $C_2 \sim 4$ アルキニレンのいずれかであり、酸素、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、イオウ、スルフィニル、スルホニル、カルボニルのいずれかによって中断されていてもよく、その環系は、2個までの酸素原子と2個までのイオウ原子を含んでいてもよく、その環系自体は、1～3個の置換基で置換されていてもよく、その置換基は、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、シアノ- $C_1 \sim 4$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、アミノスルホニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノスルホニル、アミノ、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノ、ハロゲン、シアノ、ニトロ、フェニル及びノ又はベンジルチオであり、この中のフェニルとベンジルチオは、フェニル環上において、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかによって置換されていてもよく、複素環の窒素上の置換基はハロゲン以外であり；

R^{24} は、水素、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、アミノ、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 4$

10

20

30

40

50

アルキルスルホニル- $N(C_1 \sim 4$ アルキル)-、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノスルホニル、シアノ、ハロゲン、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルチオ- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル- $C_1 \sim 4$ アルキル、フェニル、フェニルチオ、フェニルスルフィニル、フェニルスルホニル、フェノキシのいずれかであり、この中でフェニル基は、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかで置換されていてもよく；

R^{25} と R^{26} は、それぞれ独立に、水素、 $C_1 \sim 4$ アルキル、フェニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ、ハロゲン、ヒドロキシ、シアノ、ヒドロキシカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニルのいずれかであり；

R^{27} は、 $C_1 \sim 4$ アルキル、アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニルのいずれかであり；

R^{28} は、水素、 $C_1 \sim 6$ アルキル、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニルオキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニルオキシ、フェニルスルホニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ- $C_1 \sim 3$ アルキルアミノ、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ- $C_1 \sim 3$ アルキル- $N(C_1 \sim 3$ アルキル)-、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、ホルミル、シアノ、ハロゲン、フェニル、フェノキシのいずれかであり、この中でフェニルを含む基は、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかで置換されていてもよく；あるいは

R^{28} は、3員～10員の単環系であるか、 R^{21} または R^{22} と合わさって縮合二環系になっており、その環系は、酸素、イオウ、 $S(O)$ 、 SO_2 、 $N(R^{29})$ 、カルボニル、 $C(=NOR^{30})$ の中から選択した1～3個の複素環置換基で中断されていてもよく、その環系が縮合していない場合には、直接に、またはブリッジを介して置換基Wの炭素原子と結合しており、そのブリッジは、 $C_1 \sim 4$ アルキレン、 $C_2 \sim 4$ アルケニレン、 $C_2 \sim 4$ アルキニレンのいずれかであり、酸素、- $N(C_1 \sim 4$ アルキル)-、イオウ、スルフィニル、スルホニルのいずれかによって中断されていてもよく、その環系は、2個までの酸素原子と2個までのイオウ原子を含んでいてもよく、その環系自体は、1～3個の置換基で置換されていてもよく、その置換基は、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、シアノ- $C_1 \sim 4$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、アミノスルホニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノ、ハロゲン、シアノ、ニトロ、フェニル、ベンジルオキシ、ベンジルチオであり、この中のフェニル含有基は、フェニル環上において、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかによって置換されていてもよく、複素環の窒素上の置換基はハロゲン以外であり；あるいは

R^{28} は、基- D_4 - D_6 または基- D_5 - D_4 - D_6 であり；

R^{29} は、水素、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ アルキルチオ- $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル- $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルホニル- $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル、フェニルカルボニル、フェニルのいずれかであり、この中でフェニル基は、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシ、 $C_1 \sim 4$ ハロアルコキシ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 4$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 4$ アルキルチ

10

20

30

40

50

オ、 $C_1 \sim 4$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 4$ アルキル-SO₂、 $C_1 \sim 4$ アルキル-S(O)₂O、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル-SO₂、 $C_1 \sim 4$ ハロアルキル-S(O)₂O、 $C_1 \sim 4$ アルキル-S(O)₂NH、 $C_1 \sim 4$ アルキル-S(O)₂N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、ハロゲン、ニトロ、シアノのいずれかで置換されていてもよく；

R³⁰は、水素、 $C_1 \sim 4$ アルキル、 $C_3 \sim 4$ アルケニル、 $C_3 \sim 4$ アルキニル、ベンジルのいずれかであり；

hは0または1であり；

D₁は、酸素、-O(CO)-、-(CO)O-、-O(CO)O-、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-O-、-O-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、チオ、スルフィニル、スルホニル、-SO₂N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)SO₂-、-N($C_1 \sim 2$ アルコキシ- $C_1 \sim 2$ アルキル)SO₂-、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-のいずれかであり；

D₂は、 $C_1 \sim 6$ アルキレン鎖、 $C_3 \sim 6$ アルケニレン鎖、 $C_3 \sim 6$ アルキニレン鎖のいずれかであり、その鎖は、1個または複数個のハロゲンまたはD₇で置換されていてもよく、その鎖の不飽和結合は、置換基D₁に直接結合してはならず；

D₃とD₆は、それぞれ独立に、 $C_1 \sim 8$ アルキル基、 $C_3 \sim 6$ アルケニル基、 $C_3 \sim 6$ アルキニル基のいずれかであり、その基は、1個または複数個の置換基で置換されていてもよく、その置換基は、ハロゲン、ヒドロキシ、アミノ、ホルミル、ニトロ、シアノ、メルカプト、カルバモイル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシカルボニル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、ハロ置換された $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルケニルオキシ、シアノ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ-カルボニル- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシカルボニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルカルボニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、オキシラニル($C_1 \sim 6$ アルキルで置換されていてもよい)、(3-オキセタニル)-オキシ($C_1 \sim 6$ アルキルで置換されていてもよい)、ベンジルオキシ、ベンジルチオ、ベンジルスルフィニル、ベンジルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルアミノ、ジ($C_1 \sim 6$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 4$ アルキル-S(O)₂O、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノスルホニル、ロダノ、フェニル、フェノキシ、フェニルチオ、フェニルスルフィニル、フェニルスルホニルのいずれかであり、この中でフェニル含有基またはベンジル含有基は、1個以上の $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ヒドロキシ、ニトロのいずれかで置換されていてもよく；あるいは

D₃とD₆は、それぞれ独立に、1個または複数個の置換基で置換されていてもよいフェニルであり、その置換基は、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ヒドロキシ、ニトロのいずれかであり；あるいは

D₃とD₆は、それぞれ独立に、 $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルで置換された $C_3 \sim 6$ シクロアルキル、3-オキセタニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルで置換された3-オキセタニルのいずれかであり；あるいは

D₃とD₆は、それぞれ独立に、3員～10員の単環系または縮合二環系であり、この環系は、飽和しているか一部が飽和した芳香族が可能であり、窒素、酸素、イオウの中から選択した1～4個のヘテロ原子を含んでいてもよく、この環系は、直接に、または $C_1 \sim 4$ アルキレン、 $C_2 \sim 4$ アルケニレン、 $C_2 \sim 4$ アルキニレン、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)- $C_1 \sim 4$ アルキレン、-S(O)- $C_1 \sim 4$ アルキレン、-SO₂- $C_1 \sim 4$ アルキレンいずれかの基を通じて置換基D₁またはD₄に結合しており、それぞれの環系は、2個までの酸素原子と2個までのイオウ原子を含んでいてもよく、その環系自体は1～3個の置換基で置換されていてもよく、その置換基は、 $C_1 \sim 6$ アルキル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキル、 $C_2 \sim 6$ アルケニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルケニル、 $C_2 \sim 6$ アルキニル、 $C_2 \sim 6$ ハロアルキニル、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ ハロアルコキシ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルオキシ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルオキシ、メルカプト、 $C_1 \sim 6$ アルキルチオ、 $C_1 \sim$

10

20

30

40

50

₆ハロアルキルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ ハロアルケニルチオ、 $C_3 \sim 6$ アルキニルチオ、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ- $C_1 \sim 3$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルキルカルボニル- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 4$ アルコキシカルボニル- $C_1 \sim 2$ アルキルチオ、シアノ- $C_1 \sim 3$ アルキルチオ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルフィニル、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニル、 $C_1 \sim 6$ ハロアルキルスルホニル、アミノスルホニル、 $C_1 \sim 2$ アルキルアミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 2$ アルキル)アミノスルホニル、ジ($C_1 \sim 4$ アルキル)アミノ、 $C_1 \sim 6$ カルボニルアミノ、ハロゲン、シアノ、ニトロ、フェニル、ベンジルオキシ、ベンジルチオであり、この中のフェニル基は、フェニル環上において、 $C_1 \sim 3$ アルキル、 $C_1 \sim 3$ ハロアルキル、 $C_1 \sim 3$ アルコキシ、 $C_1 \sim 3$ ハロアルコキシ、ハロゲン、シアノ、ニトロのいずれかによって置換されていてもよく、複素環の窒素上の置換基はハロゲン以外であり；

10

D_4 は、酸素、-O(CO)-、-(CO)O-、-O(CO)O-、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-O-、-O-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、イオウ、スルフィニル、スルホニル、-SO₂N($C_1 \sim 4$ アルキル)-、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)SO₂-、-N($C_1 \sim 2$ アルコキシ- $C_1 \sim 2$ アルキル)SO₂-、-N($C_1 \sim 4$ アルキル)-のいずれかであり；

D_5 は、 $C_1 \sim 6$ アルキレン鎖、 $C_3 \sim 6$ アルケニレン鎖、 $C_3 \sim 6$ アルキニレン鎖のいずれかであり、その鎖は、1個または複数個のハロゲンまたは D_8 で置換されていてもよく、その鎖の不飽和結合は、置換基 D_4 に直接結合してはならず；

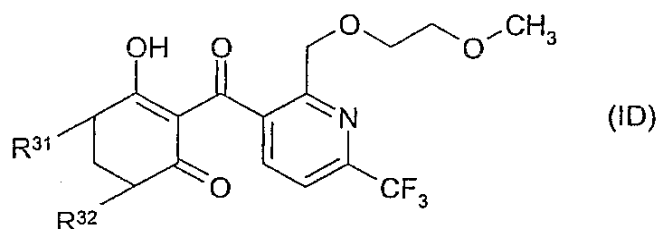
D_7 と D_8 は、それぞれ独立に、ヒドロキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ、($C_3 \sim 6$ シクロアルキル)オキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルコキシ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ- $C_1 \sim 6$ アルコキシ、 $C_1 \sim 6$ アルキルスルホニルオキシのいずれかである)。

20

【0018】

あるいはトリケトンは、一般式(ID)の化合物：

【化4】



30

である(ただし R^{31} と R^{32} は、両方とも水素であるか、合わさってエチレン・ブリッジを形成している)。

【0019】

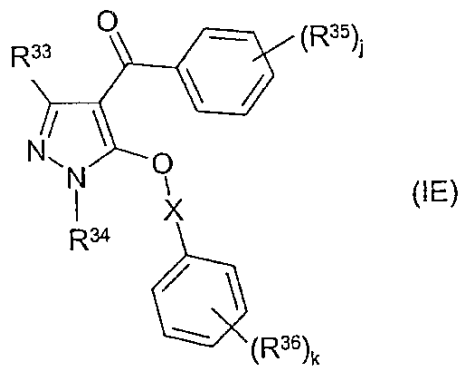
一般式(ID)において R^{31} と R^{32} の両方が水素である化合物のことを今後は化合物(IDa)と呼び、一般式(ID)において R^{31} と R^{32} が合わさってエチレン・ブリッジを形成している化合物のことを今後は化合物(IDb)と呼ぶ。

【0020】

ピラゾールは、一般式(IE)の化合物：

40

【化 5】



10

であることが好ましい（ただし R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} は、それぞれ独立に、水素、ハロ、 C_1 - C_4 アルキルの中から選択され；

Xは、 $-SO_2-$ または $-CH_2CO-$ であり；

jは2または3であり；

kは0または1である）。

20

【 0 0 2 1】

R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} は、それぞれ独立に、水素、クロロ、メチルのいずれかであることが好ましい。

【 0 0 2 2】

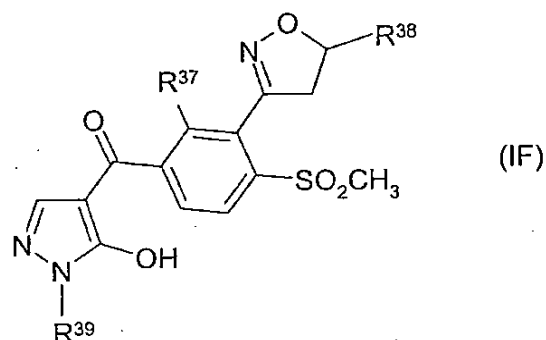
好ましい一般式 (IE) の化合物としては、2-[[4-(2,4-ジクロロ-3-メチルベンゾイル)-1,3-ジメチル-1H-ピラゾル-5-イル]オキシ]-1-(4-メチルフェニル)エタノン（ベンゾフェナップ）、(2,4-ジクロロフェニル) [1,3-ジメチル-5-[[4-(4-メチルフェニル)スルホニル]オキシ]-1H-ピラゾル-4-イル]メタノン（ピラゾリネート）、2-[[4-(2,4-ジクロロベンゾイル)-1,3-ジメチル-1H-ピラゾル-5-イル]オキシ]-1-フェニルエタノン（ピラゾキシフェン）などがある。

30

【 0 0 2 3】

あるいはピラゾールは、一般式 (IF) の化合物：

【化 6】



40

である（ただし R^{37} は C_1 - C_2 アルキルまたはクロロであり； R^{38} は水素または C_1 - C_4 アルキルであり； R^{39} は C_1 - C_4 アルキルである）。

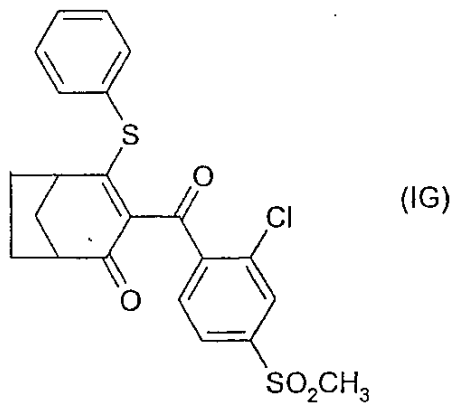
【 0 0 2 4】

ベンゾピシクロンは一般式 (IG) の化合物である。

50

【 0 0 2 5 】

【 化 7 】



10

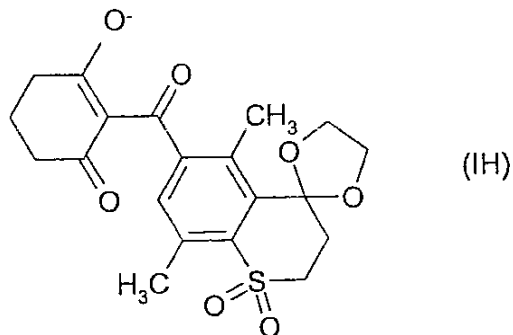
【 0 0 2 6 】

ケトスピラドックスは一般式 (IH) の化合物である。

【 0 0 2 7 】

【 化 8 】

20



30

【 0 0 2 8 】

本発明の一実施態様では、HPPD阻害剤を、ベンゾビスクロン、ベンゾフェナップ、イソオキサフルトール、メソトリオン、ピラゾリネート、ピラゾキシフェンからなるグループの中から選択する。

【 0 0 2 9 】

さらに別の実施態様では、HPPD阻害剤はメソトリオンである。

【 0 0 3 0 】

別の実施態様では、HPPD阻害剤はイソオキサフルトールである。

40

【 0 0 3 1 】

“ 電解質 ” という用語は、水に溶かしたときにイオン性化学種に解離する物質を意味する。電解質の選択は、例えば、

(a) 単純なイオン性化合物 (硫酸アンモニウム、塩化ナトリウムなど) ;

(b) 追加の活性成分 (グリホサート、パラコート、ジクワットなど)

からなるグループの中からはなう。グリホサートは、塩の形態であることが好ましい。多彩なグリホサート塩が知られており、その中には、ナトリウム塩、カリウム塩、アンモニウム塩、さまざまなアミン塩 (イソプロピルアミン塩、エタノールアミン塩、ジエタノールアミン塩、トリエチルアミン塩) が含まれる。カリウム塩、アンモニウム塩、エタノール

50

ルアミン塩が好ましく、特にカリウム塩とアンモニウム塩が好ましい。

【0032】

濃縮組成物中のHPPD阻害剤：電解質の比は、70：1～1：5であることが好ましく、35：1～1：1であることがより好ましい。

【0033】

濃縮組成物は、HPPD阻害剤を10～600g/l含んでいることが好ましい。この量は、10～100g/lであることがより好ましい。

【0034】

濃縮組成物は、電解質を10～700g/l含んでいることが好ましい。この量は、50～400g/lであることがより好ましい。

10

【0035】

水性プレミックス濃縮組成物には、HPPD阻害剤と電解質に加え、多数のアジュバントを含めることができる。アジュバントとしては、懸濁剤、界面活性剤、緩衝液、安定剤、殺生物剤などが可能である。アジュバントは、メソトリオンおよび/または電解質の効果を増大させるために本発明の濃縮液に含めることができる。好ましいことに、多彩な界面活性剤が液体組成物（特に散布前に基剤で希釈するように設計されている液体組成物）で用いられる。界面活性剤としては、アニオン界面活性剤、カチオン界面活性剤、非イオン界面活性剤、ポリマーの性質を持った界面活性剤が可能であり、それらを乳化剤、湿潤剤、懸濁剤として、あるいは他の目的で使用する事ができる。典型的な界面活性剤としては、硫酸アルキルの塩（例えばラウリル硫酸ジエタノールアンモニウム）；アルキルアールスルホン酸塩（例えばドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム）；アルキルフェノール-アルキレン酸化物添加製品（例えばノニルフェノール-C₁₈エトキシレート；アルコール-アルキレン酸化物添加製品（例えばトリデシルアルコール-C₁₆エトキシレート）；石鹼（例えばステアリン酸ナトリウム）；アルキルナフタレンスルホン酸塩（例えばジブチルナフタレンスルホン酸ナトリウム）；スルホコハク酸塩のジアルキルエステル（例えばジ(2-エチルヘキシル)スルホコハク酸ナトリウム）；ソルビトールエステル（例えばオレイン酸ソルビトール）；アルキルポリグリコシド；第四級アミン（例えばラウリルトリメチルアンモニウムクロリド）；脂肪酸のポリエチレングリコールエステル（例えばステアリン酸ポリエチレングリコール）；エチレンオキシドとプロピレンオキシドのブロック・コポリマー；リン酸モノアルキルエステルやリン酸ジアルキルエステルの塩などがある。

20

30

【0036】

農業用組成物で一般に使用される他のアジュバントとしては、結晶化阻害剤、粘性調節剤、懸濁剤、スプレー液滴調節剤、顔料、酸化防止剤、発泡剤、光阻止剤、混和剤、消泡剤、金属イオン封鎖剤、中和剤、緩衝液、腐食阻害剤、染料、着香剤、展着剤、浸透助剤、微量栄養素、軟化剤、潤滑剤、固着剤、分散剤、増粘剤、凝固点降下剤、抗微生物剤などがある。組成物は、適合性のある他の成分（例えば、他の除草剤、除草剤安全剤、植物生長調節剤、殺真菌剤、殺虫剤など）も含むことができる。液体肥料や固体粒子状肥料基剤（例えば窒化アンモニウム、尿素など）が含まれた組成物を製造することができる。

【0037】

本発明の水性プレミックス濃縮組成物は、HPPD阻害剤ミルベースを用意した後、そのミルベースと電解質を、必要なあらゆる追加アジュバントとともに水に添加することによって製造できる。したがって本発明のさらに別の特徴として、本発明の水性プレミックス濃縮組成物を調製する方法であって、

40

(i) HPPD阻害剤ミルベースと電解質溶液を別々に用意するステップと、

(ii) そのHPPD阻害剤ミルベースと電解質溶液を水に添加するステップを含む方法が提供される。

【0038】

本発明の水性プレミックス濃縮組成物は、望ましくない植物、その中でも特に、有用な作物（トウモロコシ、ダイズ、穀物、セイヨウアブラナ、テンサイ、サトウキビ、プランテーション作物、イネ、ワタなど）の田畑にある望ましくない植物を制御するのに用い

50

ることができる。作物は、トウモロコシまたはダイズであることが好ましく、トウモロコシであることがより好ましい。

【0039】

作物には、従来の栽培技術または遺伝子技術によって1種類以上の除草剤、または1つ以上のクラスの除草剤に対して寛容にされた作物が含まれるものと理解する。

【0040】

本発明の水性プレミックス濃縮組成物は、使用前に、好ましくは水を用いてまず2～500倍に希釈することが好ましい。したがって本発明のさらに別の特徴として、

(i) 水と、

(ii) その水に懸濁させたHPPD阻害剤と、

(iii) その水に溶けた溶液の形態の電解質とを含んでいて、

HPPD阻害剤が0.2～12g/l、電解質が0.01～50g/lの量存在している、すぐに使用できる水性組成物が提供される。

【0041】

本発明のさらに別の特徴として、望まない植物、特に、有用な作物の田畑にある望ましくない植物を制御する方法であって、本発明の水性プレミックス濃縮組成物を希釈してすぐに使用できる水性組成物を形成した後、除草に有効な量のそのすぐに使用できる水性組成物を望まない植物が存在している場所に散布する操作を含む方法が提供される。

【0042】

“除草に有効な量”は、すぐに使用できる水性組成物の量に関し、植物の生長を制御する効果または変化させる効果を生じさせることのできる量である。典型的な散布量は、1ヘクタールにつきHPPD阻害剤+電解質を50～1500g、好ましくは1ヘクタールにつきHPPD阻害剤+電解質を100～1250gである。

【0043】

制御する効果または変化させる効果には、自然な生長から外れたあらゆる状態（例えば種子が発芽しないこと、植物が枯れること、生長が遅れること、葉が枯れること、白化現象、矮小化など）が含まれる。

【0044】

“場所”は、植物自身のあらゆる部分、植物の種子、植物が発芽または生長する可能性のある土地または他の媒体を意味する。

【0045】

すぐに使用できる水性組成物は、農業において知られている通常の散布法で散布することができる。最も好ましい方法はスプレーである。

【0046】

上記のように、われわれは、HPPD阻害剤の安定性向上をもたらすのが、HPPD阻害剤を含む水性濃縮組成物への電解質の添加であることを見いだした。すなわちHPPD阻害剤は従来ほど早くは分解しなくなるため、HPPD阻害剤の水性濃縮組成物をより長期間にわたって、および/またはより厳しい条件下で保管することができる。したがって本発明のさらに別の特徴として、水性濃縮組成物中でのHPPD阻害剤の安定性を向上させる方法であって、そのHPPD阻害剤を安定させる量の電解質をその水性濃縮組成物に添加する操作を含む方法が提供される。“HPPD阻害剤を安定させる量”とは、安定化効果を生じさせるであろう電解質の量、例えば10～700g/lを意味する。

【0047】

本発明を以下の実施例によってこれから説明する。しかし実施例が以下のものに限定されることはない。

【0048】

比較例

【0049】

35%w/wのメソトリオン酸ミルベースを用意した。その中には、トゥイーン20(2.1%w/w)、リン酸(1.9%w/w)、アトロックス4913(1.1%w/w)、水道水(100%w/wになるま

10

20

30

40

50

で)も含まれていた。このミルベースは、メソトリオン・テクニカル(湿潤なペーストが約80%)を用いて調製した。典型的な高剪断力ミキサーを使用し、次いで“ビーズ・ミル”を使用してミルベースを混合し、粉碎すると、平均D (4,3)粒子サイズがほぼ2~3ミクロンになった。

【0050】

次に、ミルベースと、水と、あらかじめ調製したノあらかじめ膨潤させたケルザン・ゲル(2%)(プロキセルGXLを含む)(0.375g/l)を混合することによって最終懸濁液を調製した。

【0051】

【表1】

10

成分名	g/l
メソトリオン(酸として)	12
トウイーン20	0.5
アトロックS4913	0.2
リン酸	0.05
キサンタン・ゴム	5.0
プロキセルGXL	0.375
水	1リットルになるまで

20

【実施例1】

【0052】

35%w/wのメソトリオン酸ミルベースを用意した。その中には、トウイーン20(2.1%w/w)、リン酸(1.9%w/w)、アトロックS4913(1.1%w/w)、水道水(100%w/wになるまで)も含まれていた。このミルベースは、メソトリオン・テクニカル(湿潤なペーストが約80%)を用いて調製した。高剪断力ミキサーを使用し、次いで“ビーズ・ミル”を使用してミルベースを混合し、粉碎すると、平均D (4,3)粒子サイズがほぼ2~3ミクロンになった。

【0053】

30

次に、ミルベースと、グリホサート(46%w/wのグリホサート酸当量をカリウム塩として使用)と、あらかじめ調製したノあらかじめ膨潤させたケルザン・ゲル(プロキセルGXLを含む)を混合し、最後に水を混合することによって最終懸濁液(360g/lのグリホサート、12g/lのメソトリオン)を調製した。単に混合するだけで均一な組成物が得られた。この組成物は以下のようにまとめられる。

【0054】

【表 2】

成分名	g/l
グリホサート（カリウム塩として）	360
水酸化カリウム100%	134
メソトリオン（酸として）	12
トウイーン20	0.5
アトロックス4913	0.2
リン酸	0.05
キサンタン・ゴム	5.0
プロキセルGXL	0.375
水	1リットルになるまで

10

【実施例 2】

【0055】

これは実施例1のようにして調製したが、最終生成物を調製するとき、グリホサートの直後にAL2575（171.43g/l）も添加した。まとめると、この最終生成物は以下のようになる。

20

【0056】

【表 3】

成分名	g/l
グリホサート（酸当量）	360
水酸化カリウム100%	134
メソトリオン（酸として）	12
トウイーン20	0.5
アトロックス4913	0.2
リン酸	0.05
AL2575	171.43
キサンタン・ゴム	5.0
プロキセルGXL	0.375
水	1リットルになるまで

30

【0057】

結果

【0058】

両方の生成物を、組成物中のメソトリオンの化学的安定性に関してテストした。生成物を40℃にて保管し、加速保管データを取得した（周囲温度で2年間保管した場合と関連させるのに、一般に8週間にわたって40℃にする）。結果を表1に示してある。

40

【0059】

【表 4】

表1

実施例	開始時の割合	2週間後の割合	8週間後の割合	減少率
比較例	0.9651	<0.1	<0.1	>90%
実施例1	0.9676	0.9436	0.9105	5.90%
実施例2	0.9425	0.9319	0.7700	18.3%

【実施例 3】

10

【0060】

メソトリオン・ミルベース（約12g/lまたは10,000）と、さまざまな量のグリホサート-カリウム、硫酸アンモニウム、塩化ナトリウムのいずれかとを含む水性ミルベース組成物を作った。すべてのサンプルのpHを約5に保持した。そのとき、調節のためにリン酸を用いた。溶液中のメソトリオンの量は、UV-可視分光測光法を利用して測定した。なぜならメソトリオンの水への溶解度は、このような系におけるこの活性成分の予想分解速度と関係しているからである。結果を表2に示してある。

【0061】

【表 5】

20

表2

水性電解質	組成物1リットル当たりの電解質の重量 (g)	溶液中のメソトリオンの濃度 (ppm)
なし		4700
グリホサート-カリウム	100	1220
	200	700
	300	480
	360	290
	400	210
	500	180
	600	170
	640	160
硫酸アンモニウム溶液	100	625
	200	504
	300	391
	400	271
	500	263
塩化ナトリウム	50	605
	105	549
	165	510
	230	479
	300	443

30

40

【0062】

表2から、電解質は、メソトリオン粒子を取り囲むことで水溶液に溶けるメソトリオンの量を減らす強力な効果を持っているため、メソトリオンの化学的分解を減らすことに関して実施例（1と2）の裏付けとなっていることがはっきりとわかる。

【実施例 4】

50

【 0 0 6 3 】

メソトリオンとイソオキサフルトールのミルベース組成物を以下の方法で作った。

【 0 0 6 4 】

サンプルを丸底フラスコ（約140ml）の中に入れ、均一になるまで150rpmで15分間にわたって撹拌した。同じ体積のガラス・ビーズ（直径が0.8～1.0mm）をフラスコに添加し、サンプルを650rpmで60分間にわたって粉碎した。粒径を調べた。サンプルの粉碎をさらに継続した（メソトリオンでは60分間、イソオキサフルトールでは150分間）。粒径を再び調べると、どの粒子も約5ミクロンという仕様を満たしていた（D (4,3)体積の重み付き平均直径）。

【 0 0 6 5 】

サンプルを真空中で篩を通じて取り出すことで、ミルベースからビーズを分離した。以下に示す2つのミルベースを活性成分の含有量に関して調べるとともに、そのミルベースを用いて塩混合物を調製した。次に、最終混合物（以下の表を参照のこと）を-18（対照となる初期サンプル）と+45で8週間にわたって保管した。次に、有効性が確立している方法を利用して分析を行なった。使用した塩は、グリホサート・カリウム水溶液、ジクワットジプロミド水溶液、パラコートジクロリド水溶液であった。

【 0 0 6 6 】

【表 6】

	重量 (g)	実際の値	%w/w
メソトリオン	59.47	49.54	35.22
トゥイーン20	2.92	2.92	2.08
アトックス4913	0.47	0.16	0.11
水	77.79	77.79	55.31

【 0 0 6 7 】

【表 7】

	重量 (g)	実際の値	%w/w
イソオキサフルトール	49.00	49.00	34.84
アトックス4894	0.98	0.98	0.70
アトックス4913	25.96	8.57	6.09
水	64.08	64.08	45.56

【 0 0 6 8 】

分析結果：保管期間は8週間であった。“開始時”と表記したサンプルは同じ期間にわたって-18に維持した。

【 0 0 6 9 】

【表 8】

1%メソトリオンとグリホサート、pH約5

	開始時	45℃	分解率 %	開始時	45℃	分解率 %	開始時	45℃	分解率 %
メソトリオン	0.94	0.80	14.9				1.05	0.86	18.1
塩の割合(%) : 45.00 (グリホサート酸当量として)				30.00 (グリホサート酸当量として)			15.00 (グリホサート酸当量として)		

10

【 0 0 7 0 】

【表 9】

1%メソトリオンとジクワット、pH約4

	開始時	45℃	分解率 %	開始時	45℃	分解率 %	開始時	45℃	分解率 %
メソトリオン	1.09	0.86	21.10	1.07	0.93	13.08	1.06	0.96	9.43
塩の割合(%) : 22.50 (ジクワット・アニオンとして)				15.00 (ジクワット・アニオンとして)			7.50 (ジクワット・アニオンとして)		

20

【 0 0 7 1 】

【表 10】

1%メソトリオンとパラコート、pH約4

	開始時	45℃	分解率 %	開始時	45℃	分解率 %	開始時	45℃	分解率 %
メソトリオン	1.10	0.90	18.18	1.12	0.98	12.50	1.10	0.96	12.73
塩の割合(%) : 30.00 (パラコート・アニオンとして)				20.00 (パラコート・アニオンとして)			10.00 (パラコート・アニオンとして)		

30

【 0 0 7 2 】

【表 11】

pHを2に調節した1%メソトリオン（リン酸を使用）

	開始時	45℃	分解率%	pH約2
メソトリオン	1.07	0.96	10.28	

40

【 0 0 7 3 】

【表 1 2】

pH無調節でpH値が5の1%メソトリオン

	開始時	45℃	分解率%	pH約4.5
メソトリオン	1.27	0.83	34.65	

【0074】

【表 1 3】

10

1%イソオキサフルトールとジクワット、pH約4

	開始時	45℃	分解率%	開始時	45℃	分解率%	開始時	45℃	分解率%
イソオキサフルトール	1.04	0.87	16.50	1.04	0.94	9.50	1.06	0.94	11.30
塩の割合(%) : 22.50 (ジクワット・アニオンとして)				15.00 (ジクワット・アニオンとして)			7.50 (ジクワット・アニオンとして)		

20

【0075】

【表 1 4】

1%イソオキサフルトールとジクワット、pH約4

	開始時	45℃	分解率%	開始時	45℃	分解率%	開始時	45℃	分解率%
イソオキサフルトール	0.86	0.80	7.00	1.02	0.90	12.00	1.05	0.99	6.00
塩の割合(%) : 30.00 (パラコート・アニオンとして)				20.00 (パラコート・アニオンとして)			10.00 (パラコート・アニオンとして)		

30

【0076】

【表 1 5】

pH無調節でpH値が7.0の1%イソオキサフルトール

	開始時	45℃	分解率%
イソオキサフルトール	1.06	0.85	19.81

40

【0077】

【表 1 6】

pHを2に調節した1%イソオキサフルトール

	開始時	45℃	分解率%
イソオキサフルトール	0.98	1.02	なし

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
A 0 1 N 43/90 (2006.01) A 0 1 N 43/90 1 0 1
A 0 1 P 13/00 (2006.01) A 0 1 P 13/00

(74)代理人 100117019

弁理士 渡辺 陽一

(72)発明者 グリフィス, アンドリュー ジョン
 イギリス国, パークシャー アールジー 4 2 6 イーワイ, ブラックネル, ジェロッツ ヒル イ
 ンターナショナル リサーチ センター, シンジエンタ リミテッド

(72)発明者 ゴーム, ルベルト ハインリッヒ
 スイス国, ミュエンヒビレン, シンジエンタ クロップ プロテクション アクチェンゲゼルシャ
 フト

(72)発明者 フォームストーン, カール アンドリュー
 イギリス国, パークシャー アールジー 4 2 6 イーワイ, ブラックネル, ジェロッツ ヒル イ
 ンターナショナル リサーチ センター, シンジエンタ リミテッド

審査官 坂崎 恵美子

(56)参考文献 特表 2 0 0 7 - 5 1 3 1 6 0 (J P , A)
 特表 2 0 0 7 - 5 2 9 4 4 0 (J P , A)
 特表 2 0 0 6 - 5 1 9 7 9 2 (J P , A)
 特表 2 0 0 2 - 5 3 7 3 1 2 (J P , A)
 特開 2 0 0 2 - 0 6 8 9 0 3 (J P , A)
 特表 2 0 0 4 - 5 2 2 7 6 0 (J P , A)
 欧州特許出願公開第 0 1 1 6 1 8 6 8 (E P , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

A01N 25/04

CA/BIOSIS/WPIDS(STN)

JSTPlus/JST7580(JDreamII)