

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5156178号
(P5156178)

(45) 発行日 平成25年3月6日 (2013.3.6)

(24) 登録日 平成24年12月14日 (2012.12.14)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 D 209/54 (2006.01)

C O 7 D 209/54

A O 1 N 43/36 (2006.01)

A O 1 N 43/36

請求項の数 5 (全 79 頁)

(21) 出願番号 特願2004-520451 (P2004-520451)
 (86) (22) 出願日 平成15年7月1日 (2003.7.1)
 (65) 公表番号 特表2005-538073 (P2005-538073A)
 (43) 公表日 平成17年12月15日 (2005.12.15)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2003/006980
 (87) 国際公開番号 W02004/007448
 (87) 国際公開日 平成16年1月22日 (2004.1.22)
 審査請求日 平成18年3月7日 (2006.3.7)
 審判番号 不服2010-18834 (P2010-18834/J1)
 審判請求日 平成22年8月20日 (2010.8.20)
 (31) 優先権主張番号 10231333.4
 (32) 優先日 平成14年7月11日 (2002.7.11)
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)

(73) 特許権者 507203353
 バイエル・クロップサイエンス・アーゲー
 BAYER CROPPSCIENCE A
 G
 ドイツ国、40789・モンハイム、アル
 フレートーノベルーシュトラッセ・50
 (74) 代理人 110001173
 特許業務法人川口国際特許事務所
 (74) 代理人 100062007
 弁理士 川口 義雄
 (74) 代理人 100103920
 弁理士 大崎 勝真
 (74) 代理人 100124855
 弁理士 坪倉 道明

最終頁に続く

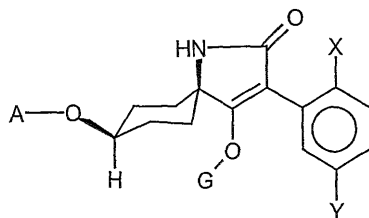
(54) 【発明の名称】 有害生物防除剤としてのシス-アルコキシ置換スピロ環-1H-ピロリジン-2,4-ジオン誘導体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

有効成分として、式(I)

【化1】



(I)

(式中、X、Y、A及びGは、下記の表に示す意味を有する)

【表1】

X	Y	A	G
CH ₃	CH ₃	CH ₃	

で表される化合物のみを含有することを特徴とする、動物害虫防除剤。

【請求項2】

請求項 1 に記載の動物害虫防除剤を害虫及び / 又はその生息環境に作用させることを特徴とする、動物害虫の防除方法。

【請求項 3】

動物害虫を防除するための請求項 1 に記載の動物害虫防除剤の使用。

【請求項 4】

請求項 1 に記載の動物害虫防除剤を増量剤及び / 又は界面活性剤と混合することの特徴とする、動物害虫防除組成物の製造方法。

【請求項 5】

動物害虫防除組成物を製造するための請求項 1 に記載の動物害虫防除剤の使用。

【発明の詳細な説明】

10

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規なシス - アルコキシ置換スピロ環 - 1H - ピロリジン - 2, 4 - ジオン誘導体、その複数の製造方法及有害生物防除剤 (pesticide) としての使用に関する。

【背景技術】

【0002】

殺ダニ作用、殺虫作用及び除草作用を有するアルコキシ置換スピロ環 - 1H - ピロリジン - 2, 4 - ジオン誘導体が知られている：欧州特許出願公開第 596298 号公報、国際公開第 WO95/26954 号明細書、国際公開第 WO95/20572 号明細書、欧州特許出願公開第 668267 号公報、国際公開第 WO96/25395 号明細書、国際公開第 WO96/35664 号明細書、国際公開第 WO97/01535 号明細書、国際公開第 WO97/02243 号明細書、国際公開第 WO97/36868 号明細書、国際公開第 WO98/05638 号明細書、国際公開第 WO99/43649 号明細書、国際公開第 WO99/48869 号明細書、国際公開第 WO99/55673 号明細書、国際公開第 WO01/23354 号明細書、国際公開第 WO01/74770 号明細書。

20

【0003】

当該製造方法により、前記の公知化合物は、種々のシス / トランス比率を有するシス / トランス異性体混合物の形で得られる。

【発明の開示】

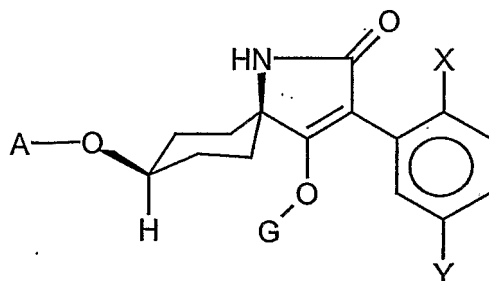
30

【0004】

本発明は、今般、式 (I)

【0005】

【化 12】



(I)

40

〔式中、X はアルキル基、ハロゲン原子、アルコキシ基、ハロアルキル基又はハロアルコキシ基を表し、

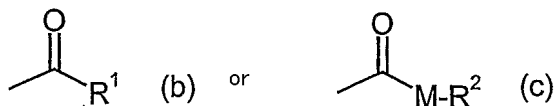
Y は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子、ハロアルキル基又はハロアルコキシ基を表し、

(但し、基 X 及び Y の一つだけは、ハロアルキル基又はハロアルコキシ基を表していてもよい)、

A は C₁ ~ C₆ アルキル基を表し、

50

Gは水素原子 (a) を表すか又は下記の基
 【 0 0 0 6 】
 【 化 1 3 】



の一つを表し、上記の基において、

Mは酸素原子又は硫黄原子を表し、

R¹は、それぞれの場合において、場合によりハロゲン原子で置換されていてもよいC₁～C₂₀アルキル基、C₂～C₂₀アルケニル基、C₁～C₈アルコキシ-C₁～C₈アルキル基、C₁～C₈アルキルチオ-C₁～C₈アルキル基又はポリ-C₁～C₈アルコキシ-C₁～C₈アルキル基を表すか、あるいは場合によりハロゲン原子、C₁～C₆アルキル基又はC₁～C₆アルコキシ基で置換されていてもよいC₃～C₈シクロアルキル基（場合によりその1個のメチレン基又は直接隣り合っていない2個のメチレン基は、酸素原子及び/又は硫黄原子で置換されていてもよい）を表すか、

場合によりハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C₁～C₆アルキル基、C₁～C₆アルコキシ基、C₁～C₆ハロアルキル基、C₁～C₆ハロアルコキシ基、C₁～C₆アルキルチオ基又はC₁～C₆アルキルスルホニル基で置換されていてもよいフェニル基を表すか、あるいはチエニル基を表し、

R²は、それぞれの場合において、場合によりハロゲン原子で置換されていてもよいC₁～C₂₀アルキル基、C₂～C₂₀アルケニル基、C₁～C₈アルコキシ-C₂～C₈アルキル基又はポリ-C₁～C₈アルコキシ-C₂～C₈アルキル基を表すか、

場合によりハロゲン原子、C₁～C₆アルキル基又はC₁～C₆アルコキシ基で置換されていてもよいC₃～C₈シクロアルキル基を表すか、あるいは

それぞれの場合において、場合によりハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、C₁～C₆アルキル基、C₁～C₆アルコキシ基、C₁～C₆ハロアルキル基又はC₁～C₆ハロアルコキシ基で置換されていてもよいフェニル基もしくはベンジル基を表す）で示される新規化合物を提供する。

【 0 0 0 7 】

基Gの種々の意味 (a)、(b) 及び (c) を含めると、次の主な構造 (I - a) から (I - c) が生じる (シス - 異性体) :

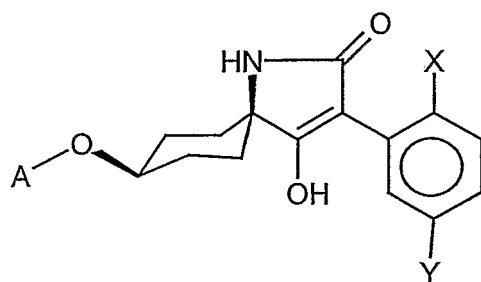
【 0 0 0 8 】

10

20

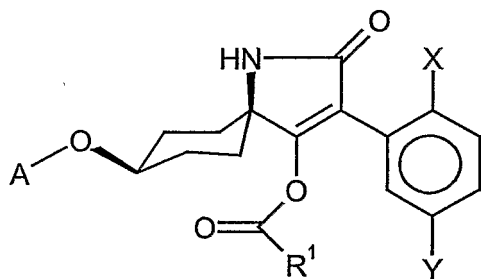
30

【化 1 4】



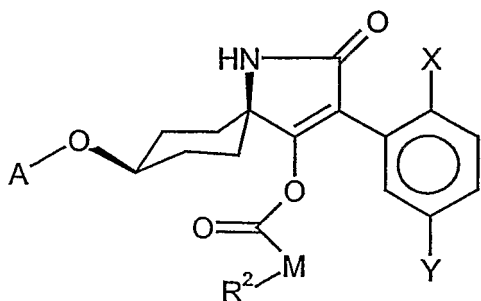
(I-a),

10



(I-b),

20



(I-c).

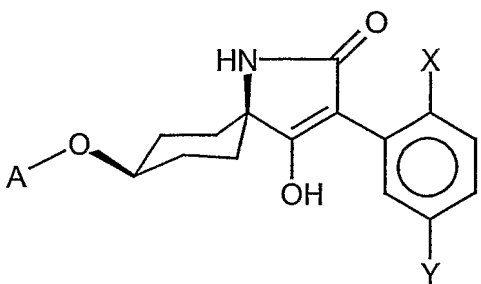
30

また、前記の式 (I) で示される新規化合物は、以下に記載の方法により得られることが知見された：

(A) 式 (I - 1 - a)

【 0 0 0 9 】

【化 1 5】



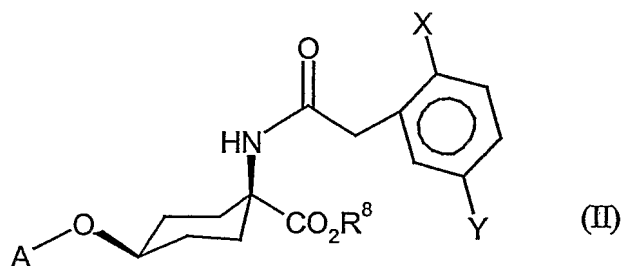
(I-1-a)

40

(式中、 A、 X 及び Y は前記で定義した通りである) で示される化合物は、式 (I I)

【 0 0 1 0 】

【化 1 6】



〔式中、A、X 及び Y は前記で定義した通りであり且つ、R⁸ はアルキル基（好ましくは C₁ ~ C₆ アルキル基）を表す〕で示される化合物を、希釈剤の存在下で及び塩基の存在下で分子内縮合させると得られる。

10

【0011】

また、

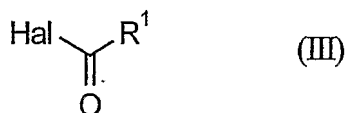
（B）前記に示す式（I - b）で示される化合物（式中、A、R¹、X 及び Y は前記で定義した通りである）は、前記に示す式（I - a）で示される化合物（式中、A、X 及び Y は前記で定義した通りである）を、

） 式（III）

【0012】

【化 1 7】

20



〔式中、R¹ は前記で定義した通りであり且つ Hal はハロゲン原子（特に塩素原子又は臭素原子）を表す〕で示される酸ハロゲン化物、又は

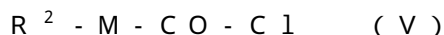
） 式（IV）



（式中、R¹ は前記で定義した通りである）で示される無水カルボン酸と、適切ならば希釈剤の存在下で及び適切ならば酸結合剤の存在下で反応させると得られること；

30

（C）前記に示す式（I - c）で示される化合物（式中、A、R²、M、X 及び Y は前記で定義した通りである）は、前記に示す式（I - a）で示される化合物（式中、A、X 及び Y は前記で定義した通りである）を、それぞれの場合に、式（V）



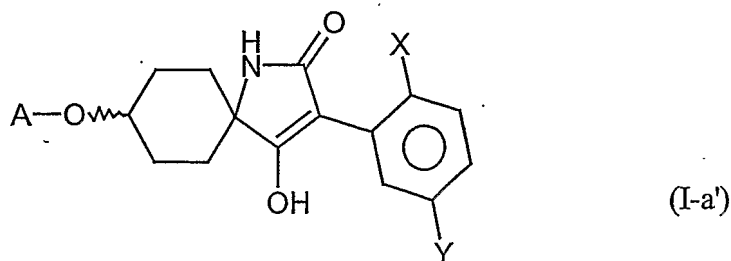
（式中、R² 及び M は前記で定義した通りである）で示されるクロロギ酸エステル又はクロロギ酸チオエステルと、適切ならば希釈剤の存在下で及び適切ならば酸結合剤の存在下で反応させると得られること；

（D）前記の式（I - a）から（I - c）で示される化合物は、例えば国際公開第 WO 98 / 05638 号又は同第 WO 01 / 74770 号明細書により公知の式（I - a'）から（I - c'）

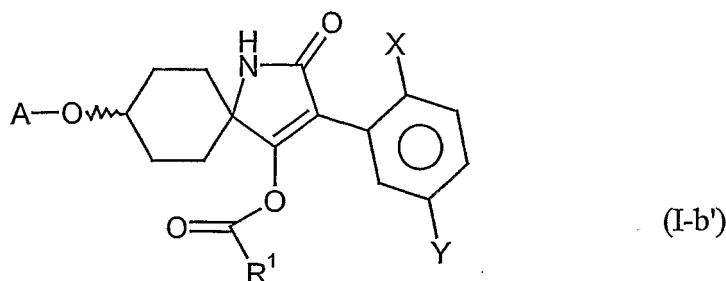
40

【0013】

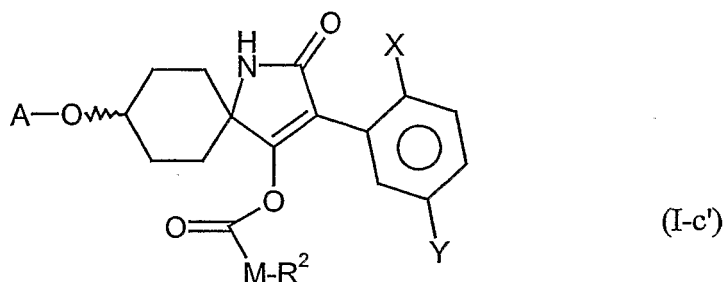
【化 18】



10



20



(式中、A、X、Y、M、R¹及びR²は前記で定義した通りである)で示されるシス/トランス異性体混合物を、物理的分離方法を使用して、例えばカラムクロマトグラフィー又は分別結晶法により分離すると得られることが知見された。

30

【0014】

さらにまた、

(E)(I-a)で示される化合物は、式(I-b)又は(I-c)で示される化合物(式中、A、M、X、Y、R¹及びR²は前記で定義した通りである)を、例えば水性塩基を用いて加水分解し、次いで酸性化すると得られることが知見された。

【0015】

さらにまた、前記の式(I)で示される新規化合物が良好な殺害虫作用、好ましくは殺虫作用及び/又は殺ダニ作用を有し、さらにまた植物、特に作物植物と高度に適合し得る場合が多い。

40

【0016】

前記の式(I)は本発明の化合物の一般的な定義を提供する。前記の複数の式に挙げた基の好ましい置換基及びその範囲を、下記に説明する：

Xは、塩素原子、臭素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、トリフルオロメチル基、メトキシ基、ジフルオロメトキシ基又はトリフルオロメトキシ基を表すことが好ましく、

Yは、水素原子、塩素原子、臭素原子、メトキシ基、メチル基、エチル基、プロピル基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメトキシ基を表すことが好ましく、

(但し、基X及びYの一つだけは、トリフルオロメチル基、ジフルオロメトキシ基又はトリフルオロメトキシ基を表していてもよい)、

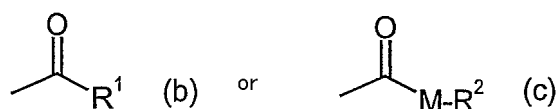
50

AはC₁～C₆アルキル基を表すことが好ましく、

Gは水素原子(a)を表すか又は下記の基

【0017】

【化19】



の一つを表すことが好ましく、上記の基において、

10

Mは酸素原子又は硫黄原子を表し、

R¹は、C₁～C₁₆アルキル基、C₂～C₁₆アルケニル基、C₁～C₆アルコキシ-C₁～C₆アルキル基、C₁～C₆アルキルチオ-C₁～C₆アルキル基又はポリ-C₁～C₆アルコキシ-C₁～C₆アルキル基(これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子又は塩素原子で1～3置換されていてもよい)を表すか、あるいは場合により弗素原子、塩素原子、C₁～C₅アルキル基又はC₁～C₅アルコキシ基で1又は2置換されていてもよく且つ場合によりその1個のメチレン基又は直接隣り合っていない2個のメチレン基が酸素原子及び/又は硫黄原子で置換されていてもよいC₃～C₇シクロアルキル基を表すか、

場合により弗素原子、塩素原子、臭素原子、シアノ基、ニトロ基、C₁～C₄アルキル基、C₁～C₄アルコキシ基、C₁～C₃ハロアルキル基、C₁～C₃ハロアルコキシ基、C₁～C₄アルキルチオ基又はC₁～C₄アルキルスルホニル基で1～3置換されていてもよいフェニル基を表すか、あるいはチエニル基を表すことが好ましく、

20

R²は、C₁～C₁₆アルキル基、C₂～C₁₆アルケニル基、C₁～C₆アルコキシ-C₂～C₆アルキル基又はポリ-C₁～C₆アルコキシ-C₂～C₆アルキル基(これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子又は塩素原子で1～3置換されていてもよい)を表すか、

場合により弗素原子、塩素原子、C₁～C₄アルキル基又はC₁～C₄アルコキシ基で1又は2置換されていてもよいC₃～C₇シクロアルキル基を表すか、あるいは

フェニル基又はベンジル基(これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子、塩素原子、臭素原子、シアノ基、ニトロ基、C₁～C₄アルキル基、C₁～C₃アルコキシ基、C₁～C₃ハロアルキル基又はC₁～C₃ハロアルコキシ基で1又は2置換されていてもよい)を表すことが特に好ましい。

30

【0018】

Xは、塩素原子、臭素原子、メチル基、エチル基、メトキシ基、トリフルオロメチル基、トリフルオロメトキシ基又はジフルオロメトキシ基を表すことが特に好ましく、

Yは、塩素原子、臭素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、メトキシ基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメトキシ基を表すことが特に好ましく、

(但し、基X及びYの一つだけは、トリフルオロメチル基、トリフルオロメトキシ基又はジフルオロメトキシ基を表していてもよい)、

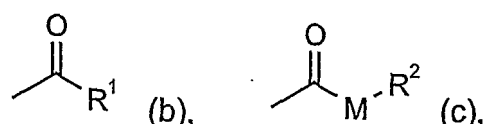
40

AはC₁～C₄アルキル基を表すことが特に好ましく、

Gは、水素原子(a)を表すか又は下記の基

【0019】

【化20】



の一つを表すことが特に好ましく、上記の基において、

50

Mは酸素原子又は硫黄原子を表し、

R^1 は、 $C_1 \sim C_8$ アルキル基、 $C_2 \sim C_8$ アルケニル基、 $C_1 \sim C_2$ アルコキシ- $C_1 \sim C_2$ アルキル基、 $C_1 \sim C_2$ アルキルチオ- $C_1 \sim C_2$ アルキル基（これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子又は塩素原子で1～3置換されていてもよい）を表すか、あるいは場合により弗素原子、塩素原子、メチル基又はメトキシ基で1又は2置換されていてもよく且つ場合により1個のメチレン基が酸素原子及び/又は硫黄原子で置換されていてもよい $C_3 \sim C_6$ シクロアルキル基を表すか、

場合により弗素原子、塩素原子、臭素原子、シアノ基、ニトロ基、メチル基、メトキシ基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメトキシ基で1又は2置換されていてもよいフェニル基を表すか、あるいはチエニル基を表すことが好ましく、

R^2 は、 $C_1 \sim C_8$ アルキル基、 $C_2 \sim C_8$ アルケニル基又は $C_1 \sim C_4$ アルコキシ- $C_2 \sim C_3$ アルキル基を表すか、 $C_5 \sim C_6$ シクロアルキル基を表すか、

フェニル基又はベンジル基（これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、メチル基、メトキシ基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメトキシ基で1置換されていてもよい）を表すことが特に好ましい。

【0020】

Xは塩素原子、臭素原子、メチル基又はトリフルオロメチル基（特に塩素原子、臭素原子又はメチル基）を表すことがさらに特に好ましく、

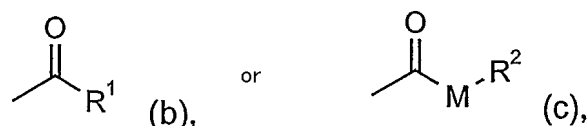
Yは塩素原子、臭素原子又はメチル基（特にメチル基）を表すことがさらに特に好ましく、

Aはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基又はイソブチル基（特にメチル基又はエチル基）を表すことがさらに特に好ましく、

Gは、水素原子（a）を表すか又は下記の基

【0021】

【化21】



の一つを表すことがさらに特に好ましく、上記の基において、

Mは酸素原子又は硫黄原子（特に酸素原子）を表し、

R^1 は、 $C_1 \sim C_6$ アルキル基、 $C_2 \sim C_6$ アルケニル基、 $C_1 \sim C_2$ アルコキシ- $C_1 \sim C_2$ アルキル基、 $C_1 \sim C_2$ アルキルチオ- $C_1 \sim C_2$ アルキル基を表すか、シクロプロピル基、シクロペンチル基又はシクロヘキシル基（これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子、メチル基又はメトキシ基で置換されていてもよい）を表すか、

場合により弗素原子、塩素原子、臭素原子、シアノ基、ニトロ基、メチル基、メトキシ基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメトキシ基で1置換されていてもよいフェニル基を表すか、あるいはチエニル基を表すことがさらに特に好ましく、

R^2 は、 $C_1 \sim C_8$ アルキル基、 $C_2 \sim C_6$ アルケニル基又は $C_1 \sim C_3$ アルコキシ- $C_2 \sim C_3$ アルキル基を表すか、

シクロペンチル基又はシクロヘキシル基を表すか、

あるいはフェニル基又はベンジル基（これらの基のそれぞれは、場合により弗素原子、塩素原子、シアノ基、ニトロ基、メチル基、メトキシ基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメトキシ基で1置換されていてもよい）を表すことがさらに特に好ましい。

【0022】

前記に示した一般的な基又は好ましい基の定義又は説明は、所望ならば相互に組み合わせることができる、すなわちそれぞれの範囲及び好ましい範囲の間の組み合わせを含むことができる。これらの基の定義及び説明は、最終生成物並びに対応する前駆物質及び中間体に適用される。

【 0 0 2 3 】

本発明の好ましい化合物は、好ましいものとして前記に示した意味の組み合わせを含む前記の式 (I) で示される化合物である。

【 0 0 2 4 】

本発明の特に好ましい化合物は、特に好ましいものとして前記に示した意味の組み合わせを含む前記の式 (I) で示される化合物である。

【 0 0 2 5 】

本発明の極めて特に好ましい化合物は、極めて特に好ましいものとして前記に示した意味の組み合わせを含む前記の式 (I) で示される化合物である。

【 0 0 2 6 】

飽和又は不飽和炭化水素基、例えばアルキル基又はアルケニル基は、それぞれの場合において可能な限りは例えばアルコキシ基におけるように異種原子との組合せを含む直鎖又は分岐鎖であることができる。

【 0 0 2 7 】

場合により置換されていてもよい基は、1置換又は多置換されることができ、この場合多置換の場合には、置換基は同じであるか又は異なることができる。

【 0 0 2 8 】

製造実施例に挙げた化合物の他に、下記の式 (I - a) で示される化合物を具体的に挙げ得る：

【 0 0 2 9 】

【 表 2 】

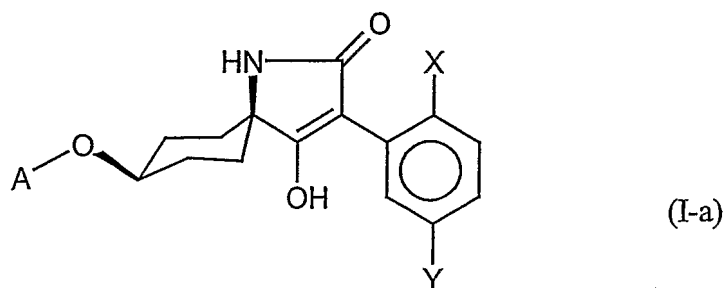


表1

A = CH₃

X	Y
CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃
CH ₃	Cl
Br	CH ₃
CH ₃	Br

【 0 0 3 0 】

【表 3】

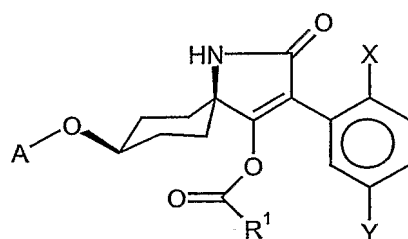
表2A = C₂H₅

X	Y
CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃
CH ₃	Cl
Br	CH ₃
CH ₃	Br

10

【 0 0 3 1 】

【表 4】



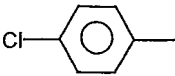

(I-b)

20

表3A = CH₃

X	Y	R ¹
CH ₃	CH ₃	CH ₃
CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	i-C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	i-C ₄ H ₉

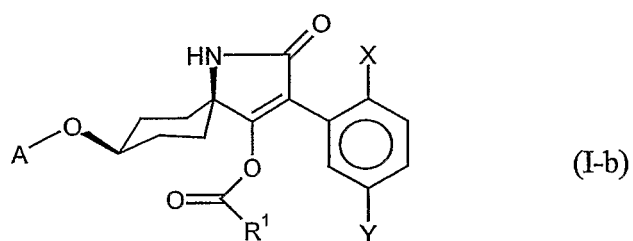
30

X	Y	R ¹
CH ₃	CH ₃	s-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	c-C ₃ H ₅
CH ₃	CH ₃	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
CH ₃	CH ₃	
CH ₃	CH ₃	

10

【 0 0 3 2 】

【 表 5 】



20

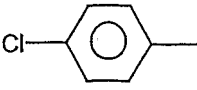
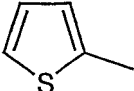
表4

A = CH₃

X	Y	R ¹
Br	CH ₃	CH ₃
Br	CH ₃	C ₂ H ₅
Br	CH ₃	C ₃ H ₇
Br	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Br	CH ₃	C ₄ H ₉
Br	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	c-C ₃ H ₅
Br	CH ₃	H ₅ C ₂ -O-CH ₂

30

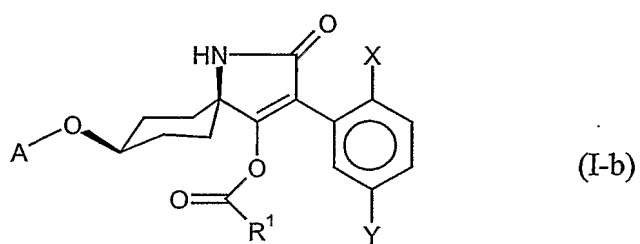
40

X	Y	R ¹
Br	CH ₃	
Br	CH ₃	

10

【 0 0 3 3 】

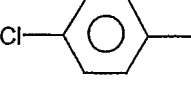
【 表 6 】



20

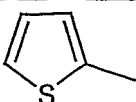
表5

A = CH₃

X	Y	R ¹
CH ₃	Br	CH ₃
CH ₃	Br	C ₂ H ₅
CH ₃	Br	C ₃ H ₇
CH ₃	Br	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Br	C ₄ H ₉
CH ₃	Br	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	c-C ₃ H ₅
CH ₃	Br	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
CH ₃	Br	

30

40

X	Y	R ¹
CH ₃	Br	

【 0 0 3 4 】

【 表 7 】

10

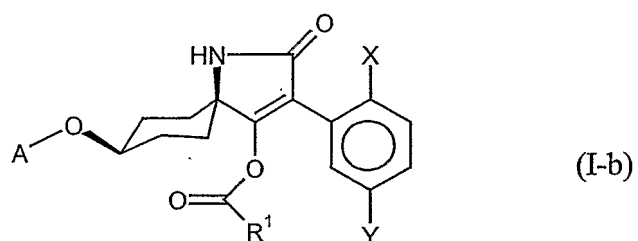
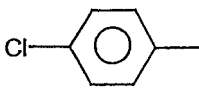
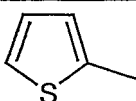


表6

A = CH₃

20

X	Y	R ¹
Cl	CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃	C ₂ H ₅
Cl	CH ₃	C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	c-C ₃ H ₅
Cl	CH ₃	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
Cl	CH ₃	
Cl	CH ₃	

30

40

【 0 0 3 5 】

【表 8】

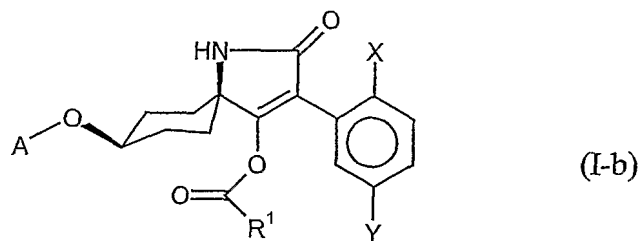
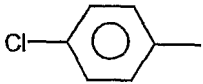
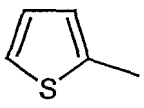


表7

A = CH₃

X	Y	R ¹
CH ₃	Cl	CH ₃
CH ₃	Cl	C ₂ H ₅
CH ₃	Cl	C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	c-C ₃ H ₅
CH ₃	Cl	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
CH ₃	Cl	
CH ₃	Cl	

【表 9】

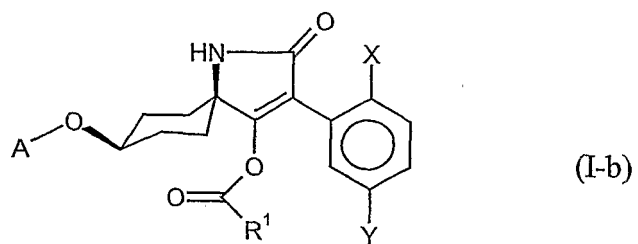
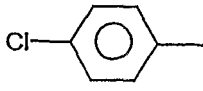
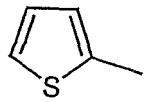


表8

A = C₂H₅

X	Y	R ¹
CH ₃	CH ₃	CH ₃
CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	i-C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	i-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	s-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	c-C ₃ H ₅
CH ₃	CH ₃	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
CH ₃	CH ₃	
CH ₃	CH ₃	

【表 10】

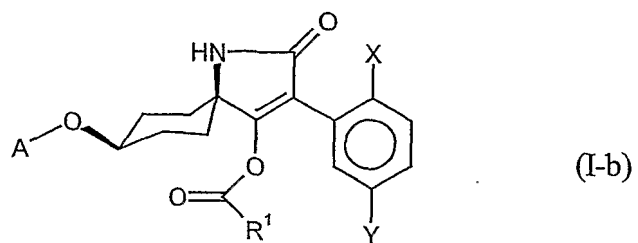
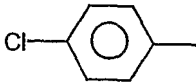
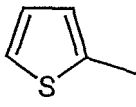


表9

A = C₂H₅

X	Y	R ¹
Br	CH ₃	CH ₃
Br	CH ₃	C ₂ H ₅
Br	CH ₃	C ₃ H ₇
Br	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Br	CH ₃	C ₄ H ₉
Br	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	c-C ₃ H ₅
Br	CH ₃	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
Br	CH ₃	
Br	CH ₃	

【0038】

10

20

30

40

【表 1 1】

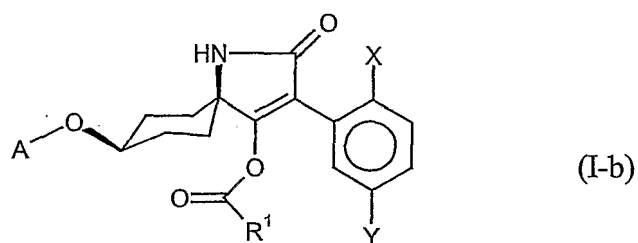
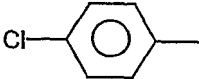
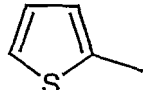


表10

A = C₂H₅

X	Y	R ¹
CH ₃	Br	CH ₃
CH ₃	Br	C ₂ H ₅
CH ₃	Br	C ₃ H ₇
CH ₃	Br	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Br	C ₄ H ₉
CH ₃	Br	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	c-C ₃ H ₅
CH ₃	Br	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
CH ₃	Br	
CH ₃	Br	

【表 1 2】

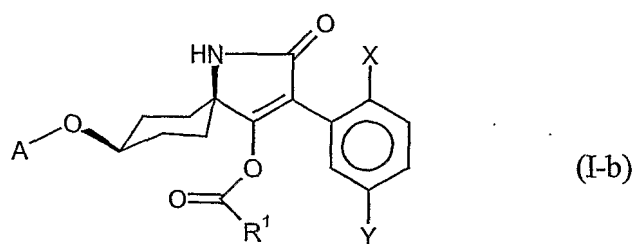
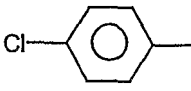
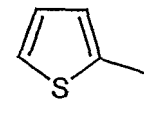


表11

A = C₂H₅

X	Y	R ¹
Cl	CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃	C ₂ H ₅
Cl	CH ₃	C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	c-C ₃ H ₅
Cl	CH ₃	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
Cl	CH ₃	
Cl	CH ₃	

【表 1 3】

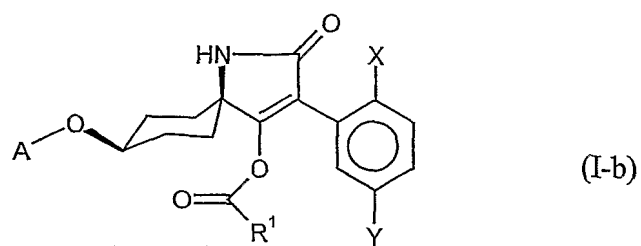


表12

A = C₂H₅

X	Y	R ¹
CH ₃	Cl	CH ₃
CH ₃	Cl	C ₂ H ₅
CH ₃	Cl	C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	c-C ₃ H ₅
CH ₃	Cl	H ₅ C ₂ -O-CH ₂
CH ₃	Cl	
CH ₃	Cl	

【 0 0 4 1 】

【表 1 4】

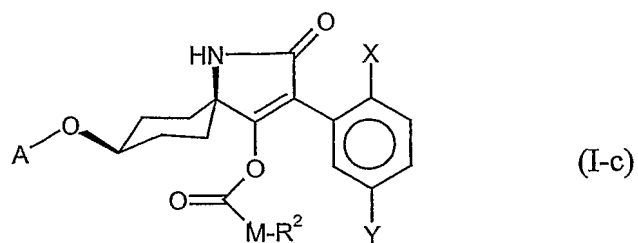


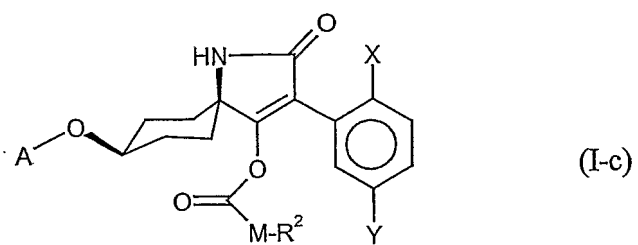
表13

A = CH₃ M = O

X	Y	R ²
CH ₃	CH ₃	CH ₃
CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	i-C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	i-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	s-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 4 2 】

【表 15】

表14 A = CH₃ M = O

X	Y	R ²
Br	CH ₃	CH ₃
Br	CH ₃	C ₂ H ₅
Br	CH ₃	C ₃ H ₇
Br	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Br	CH ₃	C ₄ H ₉
Br	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Br	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 4 3 】

【表 16】

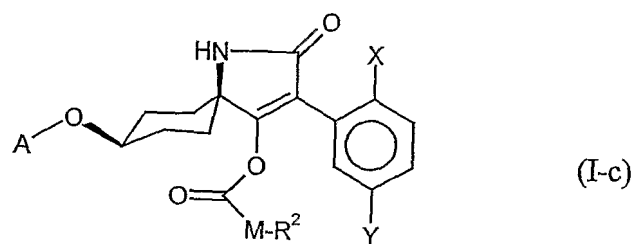


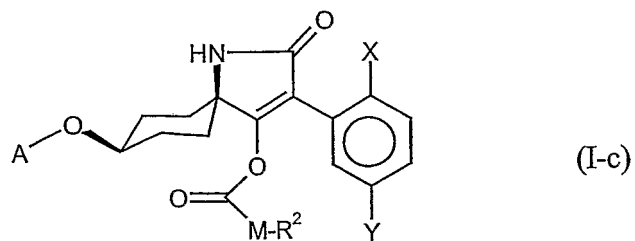
表15

A = CH₃ M = O

X	Y	R ²
CH ₃	Br	CH ₃
CH ₃	Br	C ₂ H ₅
CH ₃	Br	C ₃ H ₇
CH ₃	Br	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Br	C ₄ H ₉
CH ₃	Br	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Br	C ₆ H ₅

【 0 0 4 4 】

【表 17】

表16A = CH₃ M = O

X	Y	R ²
Cl	CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃	C ₂ H ₅
Cl	CH ₃	C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Cl	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 4 5 】

【表 18】

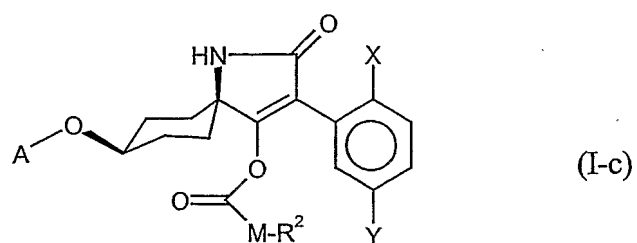


表17

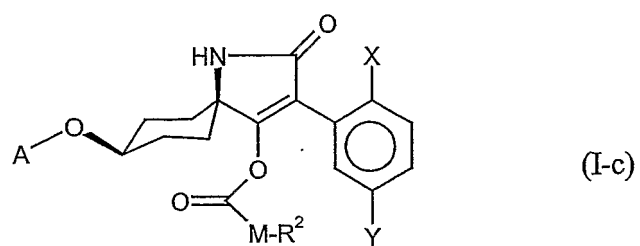
A = CH₃

M = O

X	Y	R ²
CH ₃	Cl	CH ₃
CH ₃	Cl	C ₂ H ₅
CH ₃	Cl	C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Cl	C ₆ H ₅

【 0 0 4 6 】

【表 19】



10

表18

A = C₂H₅ M = O

X	Y	R ²
CH ₃	CH ₃	CH ₃
CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	i-C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	i-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	s-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₆ H ₅

20

30

【 0 0 4 7 】

【表 20】

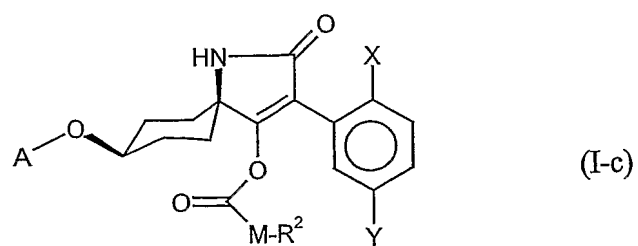


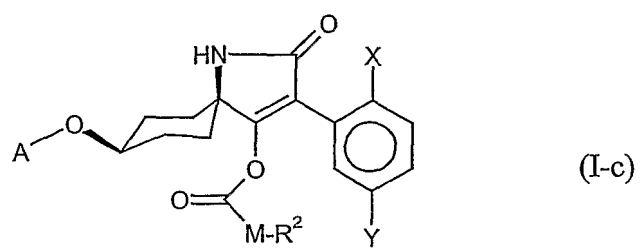
表19

A = C₂H₅ M = O

X	Y	R ²
Br	CH ₃	CH ₃
Br	CH ₃	C ₂ H ₅
Br	CH ₃	C ₃ H ₇
Br	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Br	CH ₃	C ₄ H ₉
Br	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Br	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 4 8 】

【表 2 1】

**表20**A = C₂H₅ M = O

X	Y	R ²
CH ₃	Br	CH ₃
CH ₃	Br	C ₂ H ₅
CH ₃	Br	C ₃ H ₇
CH ₃	Br	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Br	C ₄ H ₉
CH ₃	Br	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Br	C ₆ H ₅

【 0 0 4 9 】

【表 2 2】

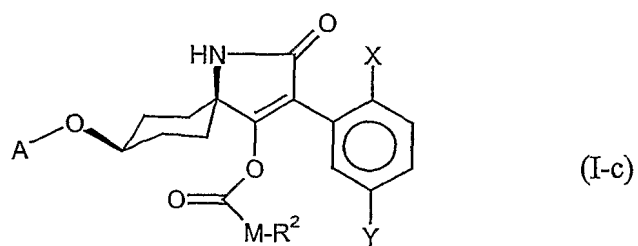
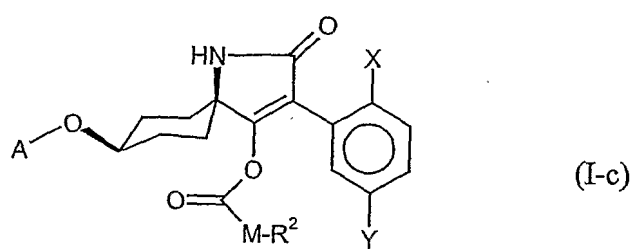


表21 $A = C_2H_5$ $M = O$

X	Y	R ²
Cl	CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃	C ₂ H ₅
Cl	CH ₃	C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Cl	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 5 0 】

【表 2 3】



10

表22 A = C₂H₅ M = O

X	Y	R ²
CH ₃	Cl	CH ₃
CH ₃	Cl	C ₂ H ₅
CH ₃	Cl	C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Cl	C ₆ H ₅

20

30

【 0 0 5 1 】

【表 2 4】

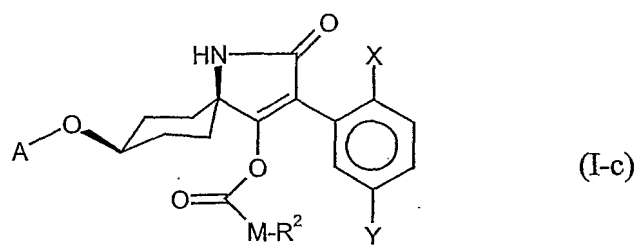


表23

A = CH₃

M = S

X	Y	R ²
CH ₃	CH ₃	CH ₃
CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	i-C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	i-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	s-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 5 2 】

【表 2 5】

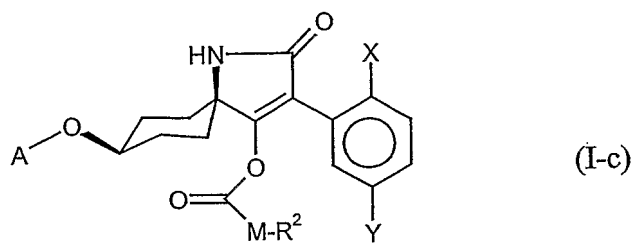


表24

A = CH₃

M = S

X	Y	R ²
Br	CH ₃	CH ₃
Br	CH ₃	C ₂ H ₅
Br	CH ₃	C ₃ H ₇
Br	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Br	CH ₃	C ₄ H ₉
Br	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Br	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 5 3 】

【表 2 6】

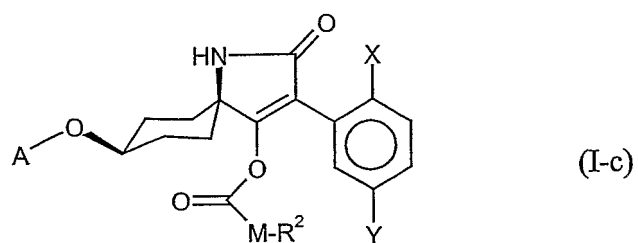


表25

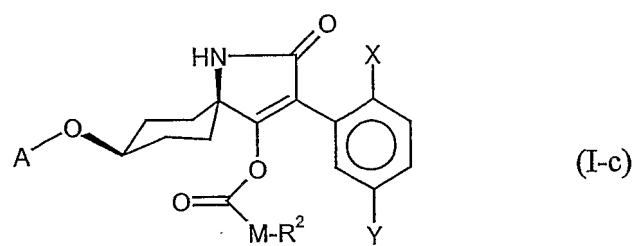
A = CH₃

M = S

X	Y	R ²
CH ₃	Br	CH ₃
CH ₃	Br	C ₂ H ₅
CH ₃	Br	C ₃ H ₇
CH ₃	Br	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Br	C ₄ H ₉
CH ₃	Br	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Br	C ₆ H ₅

【 0 0 5 4 】

【表 2 7】



10

表26 A = CH₃ M = S

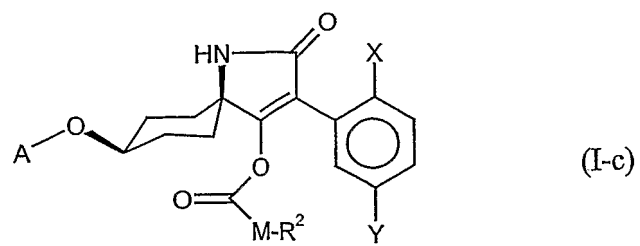
X	Y	R ²
Cl	CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃	C ₂ H ₅
Cl	CH ₃	C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Cl	CH ₃	C ₆ H ₅

20

30

【 0 0 5 5 】

【表 2 8】



10

表27 A = CH₃. M = S

X	Y	R ²
CH ₃	Cl	CH ₃
CH ₃	Cl	C ₂ H ₅
CH ₃	Cl	C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Cl	C ₆ H ₅

20

30

【 0 0 5 6 】

【表 2 9】

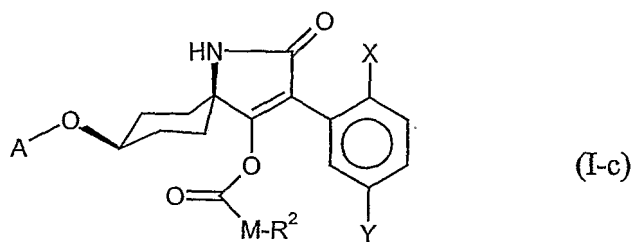


表28

A = C₂H₅ M = S

X	Y	R ²
CH ₃	CH ₃	CH ₃
CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	i-C ₃ H ₇
CH ₃	CH ₃	C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	i-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	s-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 5 7 】

【表 3 0】

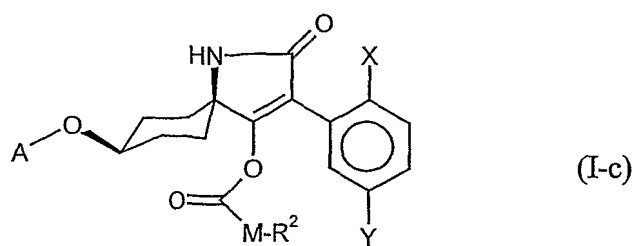


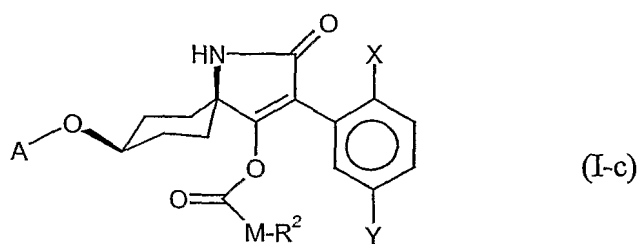
表29

A = C₂H₅ M = S

X	Y	R ²
Br	CH ₃	CH ₃
Br	CH ₃	C ₂ H ₅
Br	CH ₃	C ₃ H ₇
Br	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Br	CH ₃	C ₄ H ₉
Br	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Br	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Br	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 5 8 】

【表 3 1】

**表30**A = C₂H₅ M = S

X	Y	R ²
CH ₃	Br	CH ₃
CH ₃	Br	C ₂ H ₅
CH ₃	Br	C ₃ H ₇
CH ₃	Br	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Br	C ₄ H ₉
CH ₃	Br	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Br	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Br	C ₆ H ₅

【 0 0 5 9 】

【表 3 2】

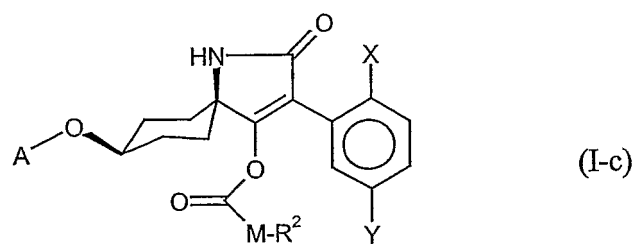


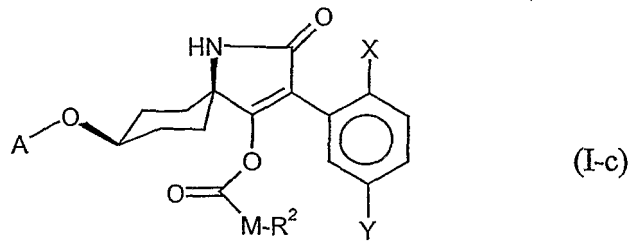
表31

A = C₂H₅ M = S

X	Y	R ²
Cl	CH ₃	CH ₃
Cl	CH ₃	C ₂ H ₅
Cl	CH ₃	C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	i-C ₃ H ₇
Cl	CH ₃	C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	i-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	s-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
Cl	CH ₃	CH ₂ -C ₆ H ₅
Cl	CH ₃	C ₆ H ₅

【 0 0 6 0 】

【表 3 3】



10

表32 A = C₂H₅ M = S

X	Y	R ²
CH ₃	Cl	CH ₃
CH ₃	Cl	C ₂ H ₅
CH ₃	Cl	C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	i-C ₃ H ₇
CH ₃	Cl	C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	i-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	s-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -t-C ₄ H ₉
CH ₃	Cl	CH ₂ -C ₆ H ₅
CH ₃	Cl	C ₆ H ₅

20

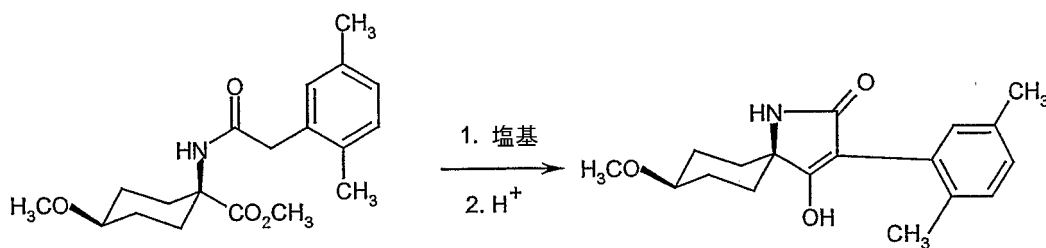
30

【 0 0 6 1 】

例えば、方法 (A) に従って、シス - N - [(2 , 5 - ジメチル) フェニルアセチル] - 1 - アミノ - 4 - メトキシシクロヘキサンカルボン酸エチルを出発原料として使用すると、本発明の方法の経路は、下記の反応工程図により表すことができる：

【 0 0 6 2 】

【 化 2 2 】



40

【 0 0 6 3 】

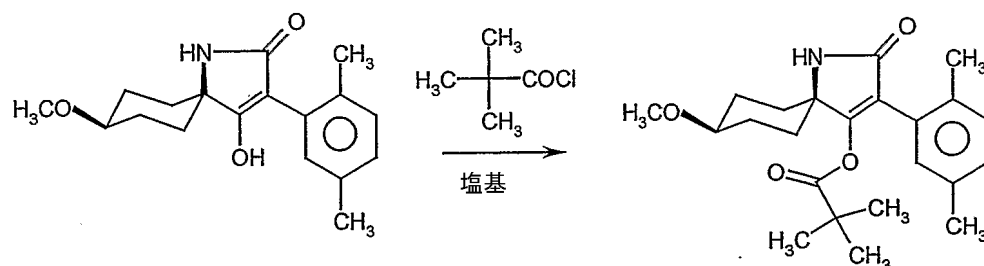
例えば、方法 (B -) に従って、シス - 3 - [(2 , 5 - ジメチル) フェニル] - 5 , 5 - (3 - メトキシ) ペンタメチレンピロリジン - 2 , 4 - ジオンとピバロイルクロリドを出発原料として使用すると、本発明の方法の経路は、下記の反応工程図により表すこ

50

とができる：

【 0 0 6 4 】

【 化 2 3 】



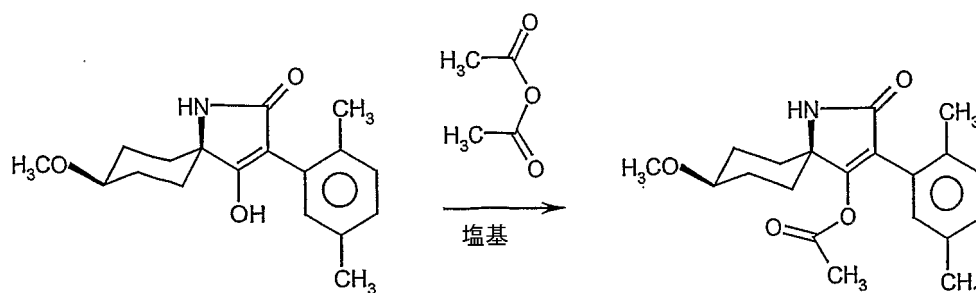
10

【 0 0 6 5 】

例えば、方法（B - ）に従って、シス - 3 - [（2，5 - ジメチル）フェニル] - 5，5 -（3 - メトキシ）ペンタメチレンピロリジン - 2，4 - ジオンと無水酢酸を出発原料として使用すると、本発明の方法の経路は、下記の反応工程図により表すことができる：

【 0 0 6 6 】

【 化 2 4 】



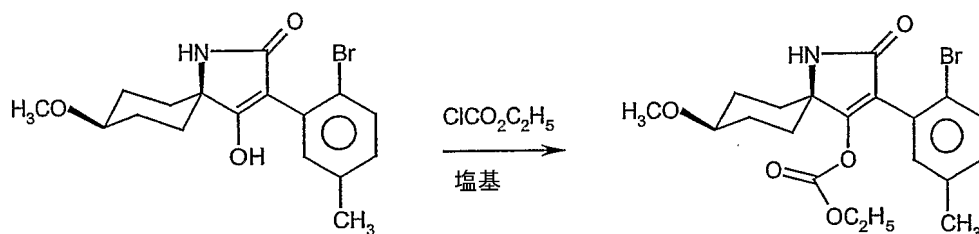
20

【 0 0 6 7 】

例えば、方法（C）に従って、シス - 3 - [（2 - ブロモ - 5 - メチル）フェニル] - 5，5 -（3 - メトキシ）ペンタメチレンピロリジン - 2，4 - ジオンとクロロギ酸エチルを出発原料として使用すると、本発明の方法の経路は、下記の反応工程図により表すことができる：

【 0 0 6 8 】

【 化 2 5 】



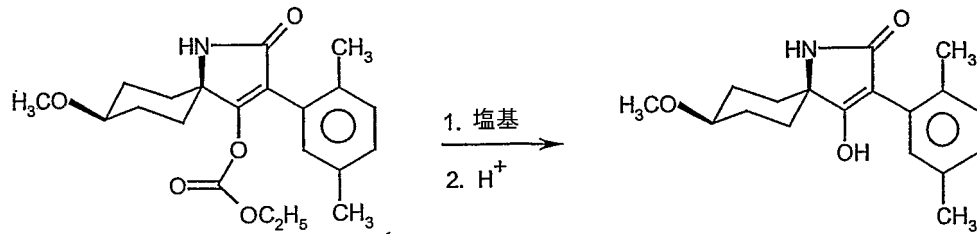
40

【 0 0 6 9 】

例えば、方法（E）に従って、シス - 3 - [（2，5 - ジメチル）フェニル] - 5，5 -（3 - メトキシ）ペンタメチレン - 4 - エトキシカルボニル - 3 - ピロリン - 2 - オンと水性塩基を出発原料として使用すると、本発明の方法の経路は、下記の反応工程図により表すことができる：

【 0 0 7 0 】

【化 2 6】



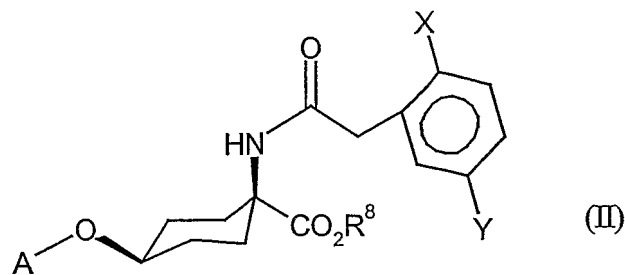
【 0 0 7 1】

10

本発明の方法 (A) の出発原料として必要な式 (I I)

【 0 0 7 2】

【化 2 7】



20

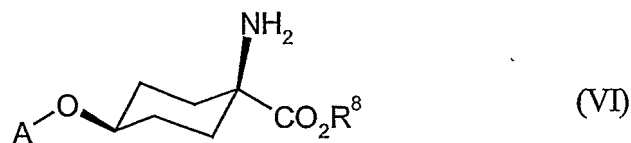
(式中、A、X、Y 及び R^8 は前記で定義した通りである) で示される化合物は、新規である。

【 0 0 7 3】

前記の式 (I I) で示されるアシルアミノ酸エステルは、例えば、式 (V I)

【 0 0 7 4】

【化 2 8】

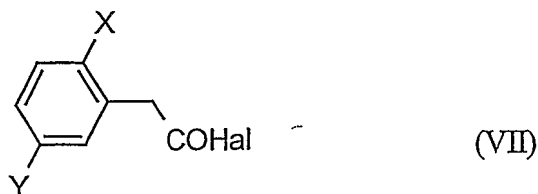


30

(式中、A、B 及び R^8 は前記で定義した通りである) で示されるシス - アミノ酸誘導体を式 (V I I)

【 0 0 7 5】

【化 2 9】

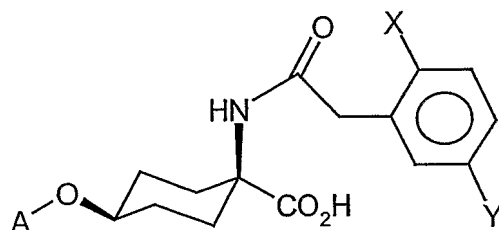


40

(式中、X 及び Y は前記で定義した通りであり且つ Hal は塩素原子又は臭素原子を表す) で示される置換フェニル酢酸ハロゲン化物を用いてアシル化するか (Chem. Reviews 52, 237 - 416 (1953); Bhattacharya, Indian J. Chem. 6, 341 - 5, 1968)、又は式 (V I I I)

【 0 0 7 6】

【化 30】



(VIII)

(式中、A、X及びYは前記で定義した通りである)で示されるアシルアミノ酸をエステル化する(Chem. Ind. (London) 1568 (1968))と得られる。

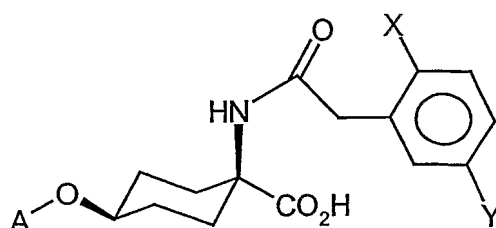
10

【0077】

式(VIII)

【0078】

【化 31】



(VIII)

20

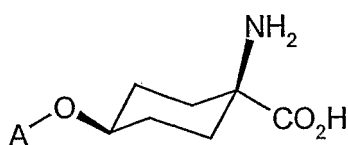
(式中、A、X及びYは前記で定義した通りである)で示される化合物は、新規である。

【0079】

前記の式(VIII)で示される化合物は、式(IX)

【0080】

【化 32】



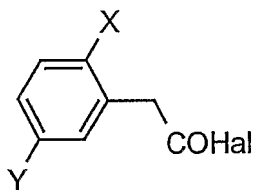
(IX)

30

(式中、Aは前記で定義した通りである)で示されるシス-アミノ酸を、式(VII)

【0081】

【化 33】



(VII)

40

(式中、X及びYは前記で定義した通りであり且つHalは塩素原子又は臭素原子を表す)で示される置換フェニル酢酸ハロゲン化物を用いてショッテン-バウマン反応(Organikum, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1977, p505)に従ってアシル化すると得られる。

【0082】

50

前記の式 (V I I) で示される化合物は、公知であるし (国際公開第 W O 9 8 / 0 5 6 3 8 号明細書、国際公開第 W O 0 1 / 7 4 7 7 0 号明細書)、又はこれら参考文献に記載の方法により製造することができる。前記の (V I) 及び (I X) で示される化合物は、公知であるし (国際公開第 W O 0 2 / 0 2 5 3 2 号明細書)、又はこの参考文献に記載の方法により製造することができる。

【 0 0 8 3 】

また、本発明の方法 (B) 及び (C) を実施するための出発原料として必要な前記の式 (I I I) で示される酸ハロゲン化物、式 (I V) で示される無水カルボン酸及び式 (V) で示されるギ酸エステル及びギ酸チオエステルは、有機又は無機化学の一般的に知られている化合物である。

10

【 0 0 8 4 】

前記の方法 (A) は、前記の式 (I I) で示される化合物 (式中、A、X、Y 及び R⁸ は前記で定義した通りである) を希釈剤の存在下及び塩基の存在下で分子内縮合に供することを特徴とする。

【 0 0 8 5 】

本発明の方法 (A) に適した希釈剤は、反応関係物に不活性である全ての有機溶媒である。炭化水素、例えばトルエン及びキシレン、さらにはエーテル類、例えばジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、グリコールジメチルエーテル及びジグリコールジメチルエーテル、さらにまた極性溶媒、例えばジメチルスルホキシド、スルホラン、ジメチルホルムアミド及び N - メチルピロリドン、並びにアルコール類、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、イソブタノール及び t e r t - ブタノールを使用することが好ましい。

20

【 0 0 8 6 】

本発明の方法 (A) を実施するのに適した塩基 (脱プロトン化剤) は、全て慣用のプロトン受容体である。アルカリ金属及びアルカリ土類金属の酸化物、水酸化物及び炭酸塩、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム及び炭酸カルシウムを使用することが好ましく、これらはまた相間移動触媒、例えばトリエチルベンジルアンモニウムクロリド、テトラブチルアンモニウムブロミド、A d o g e n 4 6 4 [=メチルトリアルキル (C₈ ~ C₁₀) アンモニウムクロリド] 又は T D A 1 [=トリス (メトキシエトキシエチル) アミン] の存在下で使用することもできる。さらにまた、ナトリウム又はカリウムのようなアルカリ金属を使用することもできる。また、アルカリ金属及びアルカリ土類金属のアミド及び水素化物、例えばナトリウムアミド、水素化ナトリウム及び水素化カルシウム、並びにアルカリ金属アルコキシド、例えばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド及びカリウム t e r t - ブトキシドも適している。

30

【 0 0 8 7 】

本発明の方法 (A) を実施する場合には、反応温度は比較的広い範囲で変化させることができる。一般に、この方法は、0 から 2 5 0 、好ましくは 5 0 から 1 5 0 の間の温度で実施される。

【 0 0 8 8 】

本発明の方法 (A) は、一般に常圧下で実施される。

40

【 0 0 8 9 】

本発明の方法 (A) を実施する場合には、前記の式 (I I) で示される反応成分と、脱プロトン性塩基とは、一般に等モル量から約 2 倍モル量で使用される。しかし、一方の成分又は他方の成分を比較的大過剰 (最大 3 モル) で使用することもできる。

【 0 0 9 0 】

前記の方法 (B) は、前記の式 (I - a) で示される化合物を前記の式 (I I I) で示されるハロゲン化カルボニルと、適切ならば希釈剤の存在下で及び適切ならば酸結合剤の存在下で反応させることを特徴とする。

【 0 0 9 1 】

50

本発明の方法（Ｂ－）に適した希釈剤は、酸ハロゲン化物に不活性である全ての有機溶媒である。炭化水素、例えばベンジン、ベンゼン、トルエン、キシレン及びテトラレン、さらにまたハロゲン化炭化水素、例えば塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン及び α -ジクロロベンゼン、さらにまたケトン類、例えばアセトン及びメチルイソプロピルケトン、さらにまたエーテル類、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン及びジオキサン、さらにまたカルボン酸エステル類、例えば酢酸エチル、さらにまた強極性溶媒、例えばジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド及びスルホランを使用することが好ましい。酸ハロゲン化物の加水分解安定性が許すならば、反応は水の存在下で実施することもできる。

【００９２】

10

本発明の方法（Ｂ）の反応に適した酸結合剤は、全て慣用のプロトン受容体である。第三級アミン、例えばトリエチルアミン、ピリジン、ジアザビスクロオクタン（ＤＡＢＣＯ）、ジアザビスクロンデセン（ＤＢＵ）、ジアザビスクロノネン（ＤＢＮ）、ヒューニツヒ塩基及び N,N -ジメチルアニリン、さらにまたアルカリ土類金属酸化物、例えば酸化マグネシウム及び酸化カルシウム、さらにまたアルカリ金属及びアルカリ土類金属の炭酸塩、例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム及び炭酸カルシウム、並びにアルカリ金属水酸化物、例えば水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムを使用することが好ましい。

【００９３】

本発明の方法（Ｂ）の反応温度は、比較的広い範囲で変化させることができる。一般に、この方法は、 -20 から $+150$ 、好ましくは 0 から 100 の間の温度で実施される。

20

【００９４】

本発明の方法（Ｂ）を実施する場合には、前記の式（Ｉ－ a ）で示される出発原料と前記の式（ＩＩ）で示されるハロゲン化カルボニルは、一般にそれぞれほぼ当量で使用される。しかし、ハロゲン化カルボニルを比較的大過剰（最大５モル）で使用することもできる。処理は、慣用の方法で実施される。

【００９５】

前記の方法（Ｂ）は、前記の式（Ｉ－ a ）で示される化合物を前記の式（ＩＶ）で示される無水カルボン酸と、適切ならば希釈剤の存在下で及び適切ならば酸結合剤の存在下で反応させることを特徴とする。

30

【００９６】

本発明の方法（Ｂ）に適した希釈剤は、酸ハロゲン化物を使用する場合にも好ましい希釈剤であることが好ましい。また、過剰の無水カルボン酸を同時に希釈剤として作用させてもよい。

【００９７】

適切ならば添加される前記の方法（Ｂ）に好ましい酸結合剤は、酸ハロゲン化物を使用する場合にも好ましい酸結合剤である。

【００９８】

本発明の方法（Ｂ）の反応温度は、比較的広い範囲で変化させることができる。一般に、この方法は、 -20 から $+150$ 、好ましくは 0 から 100 の間の温度で実施される。

40

【００９９】

本発明の方法（Ｂ）を実施する場合には、前記の式（Ｉ－ a ）で示される出発原料と前記の式（ＩＶ）で示される無水カルボン酸は、一般にそれぞれほぼ当量で使用される。しかし、無水カルボン酸を比較的大過剰（最大５モル）で使用することもできる。処理は、慣用の方法で実施される。

【０１００】

一般的に、希釈剤と、過剰の無水カルボン酸と、生成されるカルボン酸は、蒸留により除去されるか、あるいは有機溶媒又は水を用いて洗浄することにより除去される。

【０１０１】

50

前記の方法（Ｃ）は、前記の式（Ⅰ－ａ）で示される化合物を、前記の式（Ⅴ）で示されるクロロギ酸エステル又はクロロギ酸チオールエステルと、適切ならば希釈剤の存在下で及び適切ならば酸結合剤の存在下で反応させることを特徴とする。

【０１０２】

本発明の方法（Ｃ）に適した酸結合剤は、全ての慣用の酸受容体である。第三級アミン、例えばトリエチルアミン、ピリジン、ＤＡＢＣＯ、ＤＢＵ、ＤＢＡ、ヒューニッヒ塩基及びＮ，Ｎ－ジメチルアニリン、さらにまたアルカリ土類金属酸化物、例えば酸化マグネシウム及び酸化カルシウム、さらにまたアルカリ金属及びアルカリ土類金属の炭酸塩、例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム及び炭酸カルシウム、並びにアルカリ金属水酸化物、例えば水酸化ナトリウム及び水酸化カリウムを使用することが好ましい。

10

【０１０３】

本発明の方法（Ｃ）に適した希釈剤は、前記のギ酸エステル又はクロロギ酸チオールエステルに不活性である全ての溶媒である。炭化水素、例えばベンジン、ベンゼン、トルエン、キシレン及びテトラレン、さらにまたハロゲン化炭化水素、例えば塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン及びｏ－ジクロロベンゼン、さらにまたケトン類、例えばアセトン及びメチルイソプロピルケトン、さらにまたエーテル類、例えばジエチルエーテル、テトラヒドロフラン及びジオキサン、さらにまたカルボン酸エステル、例えば酢酸エチル、さらにまたニトリル類、例えばアセトニトリル、並びに強極性溶媒、例えばジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド及びスルホランを使用することが好ましい。

20

【０１０４】

本発明の方法（Ｃ）を実施する場合には、反応温度は比較的大い範囲で変化させることができる。反応温度は、一般に－２０ から＋１００、好ましくは０ から７０の間である。

【０１０５】

本発明の方法（Ｃ）は、一般に常圧下で実施される。

【０１０６】

本発明の方法（Ｃ）を実施する場合には、前記の式（Ⅰ－ａ）で示される出発原料と前記の式（Ⅴ）で示される適切なクロロギ酸エステル又はクロロギ酸チオールエステルは、一般にそれぞれほぼ当量で使用される。しかし、一方の成分又は他方の成分を比較的大過剰（最大２モル）で使用することもできる。処理は、慣用の方法で行われる。一般に、沈殿した塩を除去し、残った反応混合物を減圧下で希釈剤を除去することによって濃縮する。

30

【０１０７】

本発明の方法（Ｅ）は、前記の式（Ⅰ－ｂ）で示される化合物又は適切ならば（Ⅰ－ｃ）で示される化合物を溶媒の存在下で及び水性溶媒に溶解した塩基の存在下で加水分解し、次いで酸を用いて酸性化することの特徴とする。

【０１０８】

前記の製造方法（Ｅ）においては、前記の式（Ⅰ－ｂ）で示される出発原料１モルを、約１から１０モル、好ましくは１から３モルの塩基と、０から１５０、好ましくは２０から８０で反応させる。

40

【０１０９】

適切ならば添加される適切な希釈剤は、水と容易に混和し得る全ての有機溶媒、アルコール類、エーテル類、アミド類、スルホン類又はスルホキシド類である。

【０１１０】

メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、イソブタノール、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチルピロリドン、スルホラン又はジメチルスルホキシドを使用することが好ましい。

【０１１１】

50

酸性化に使用することが好ましい無機酸及び有機酸は、塩酸、硫酸、リン酸又は硝酸及びギ酸、酢酸又はスルホン酸、それぞれである。

【 0 1 1 2 】

本発明の方法 (D) は、前記の式 (I - b ') 又は (I - c ') で示されるシスノトランス異性体混合物をクロマトグラフ法、好ましくはシリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーで分離することを特徴とする。

【 0 1 1 3 】

前記の方法 (D) では、出発原料 1 g 当たり約 1 0 g から 2 0 0 g、好ましくは 5 0 g から 1 0 0 g のシリカゲルが使用される。

【 0 1 1 4 】

使用する移動相は、種々の極性をもつ溶媒混合物である。ケトン類、エステル類又はアルコール類と組み合わせたハロゲン化炭化水素の溶媒混合物を使用することが好ましい。

【 0 1 1 5 】

本発明の方法 (D) は、一般に常圧下で実施される。本発明の方法 (D) は、例えば分離を M P L C 又は H P L C 装置を使用して行う場合に存在するような加圧下で操作することも可能である。

【 0 1 1 6 】

本発明の活性化合物は、農業、林業、貯蔵製品及び材料の保護並びに衛生部門で遭遇する動物害虫、特に昆虫、クモ形動物及び線虫を防除するのに適しており、良好な植物許容性を有し且つ温血動物に都合のよい毒性を有する。本発明の活性化合物は、好ましくは植物保護剤として使用してもよい。本発明の活性化合物は、通常感受性及び抵抗性の種に対して及び発育段階の全部又は幾つかに対して活性である。前記の害虫としては下記のもの挙げられる：

等脚目 (I s o p o d a) から、例えばオニクス・アセルス (O n i s c u s a s e l l u s)、オカダンゴムシ (A r m a d i l l i d i u m v u l g a r e) 及びワラジムシ (P o r c e l l i o s c a b e r)、

ヤスデ綱 (D i p l o p o d a) から、例えばブラニウルス・グッツラーツ (B l a n i u l u s g u t t u l a t u s)、

ムカデ綱 (C h i l o p o d a) から、例えばツチムカデ (G e o p h i l u s c a r p o p h a g u s) 及びスクチゲラ (S c u t i g e r a) 種、

コムカデ目 (S y m p h y l a) から、例えばスクチゲラ・イマクラータ (S c u t i g e r e l l a i m m a c u l a t a)、

シミ目 (T h y s a n u r a) から、例えばセイヨウシミ (L e p i s m a s a c c h a r i n a)、

トビムシ目 (C o l l e m b o l a) から、例えばシロトビムシ (O n y c h i u r u s a r m a t u s)、

直翅目 (O r t h o p t e r a) から、例えばヨーロッパエコオロギ (A c h e t a d o m e s t i c u s)、ケラ (G r y l l o t a l p a) 種、トノサマバッタ (L o c u s t a m i g r a t o r i a m i g r a t o r i o i d e s)、メラノプルス (M e l a n o p l u s) 種及びサバクトビバッタ (S c h i s t o c e r c a g r e g a r i a)、

ゴキブリ目 (B l a t t a r i a) から、例えばトウヨウゴキブリ (B l a t t a o r i e n t a l i s)、ワモンゴキブリ (P e r i p l a n e t a a m e r i c a n a)、マデラゴキブリ (L e u c o p h a e a m a d e r a e) 及びチャバネゴキブリ (B l a t t e l l a g e r m a n i c a)、

ハサミムシ目 (D e r m a p t e r a) から、例えばヨーロッパクギヌキハサミムシ (F o r f i c u l a a u r i c u l a r i a)、

シロアリ目 (I s o p t e r a) から、例えばヤマトシロアリ (R e t i c u l i t e r m e s) 種、

シラミ目 (P h t h i r a p t e r a) から、例えばコロモジラミ (P e d i c u l u

10

20

30

40

50

s humanus corporis)、ブタジラミ(Haematopinus)種、ケモノホソジラミ(Linognathus)種、ケモノハジラミ(Trichodectes)種及びダマリニア(Damalinia)種、

総翅目(Thysanoptera)から、例えばクリバネアザミウマ(Hercinothrips femoralis)、ネギアザミウマ(Thrips tabaci)、ミナミキイロアザミウマ(Thrips palmi)及びミカンキイロアザミウマ(Frankliniella occidentalis)、

異翅目(Heteroptera)から、例えばチャイロカメムシ(Eurygaster)種、ベニホシカメムシ(Dysdercus intermedius)、ピエスマ・クアドウラータ(Piesma quadrata)、トコジラミ(Cimex lectularius)、オオサシガメ(Rhodnius prolixus)及びサシガメ(Triatoma)種、

同翅目(Homoptera)から、例えばアレウロデス・ブラシッカエ(Aleurodes brassicae)、タバココナジラミ(Bemisia tabaci)、オンシツコナジラミ(Trialeurodes vaporariorum)、ワタアブラムシ(Aphis gossypii)、ダイコンアブラムシ(Brevicoryne brassicae)、クリプトミズス・リビス(Cryptomyzus ribis)、マメクロアブラムシ(Aphis fabae)、アフイス・ポミ(Aphis pomi)、リンゴワタムシ(Eriosoma lanigerum)、モモコフキアブラムシ(Hyalopterus arundinis)、ブドウジラミ(Phylloxera vastatrix)、ワタムシ(Pemphigus)種、ムギヒゲナガアブラムシ(Macrosiphum avenae)、ミズス(Myzus)種、ホップイボアブラムシ(Phorodon humuli)、ムギクビレアブラムシ(Rhopalosiphum padi)、ニドリヒメヨコバイ(Empoasca)種、エウスケリス・ビロパーツス(Euscelis bilobatus)、ツماغロヨコバイ(Nephotettix cincticeps)、ミズキカタカイガラムシ(Lecanium corni)、オリブカタカイガラムシ(Saissetia oleae)、ヒメトビウンカ(Laodelphax striatellus)、トビイロウンカ(Nilaparvata lugens)、アカマルカイガラムシ(Aonidiella aurantii)、シロマルカイガラムシ(Aspidiotus hederiae)、コナカイガラムシ(Pseudococcus)種及びキジラミ(Psylla)種、

鱗翅目(Lepidoptera)から、例えばワタアカミムシ(Pectinophora gossypiella)、ブパルス・ピニアリウス(Bupalus pinarius)、ケイマトビア・ブルマータ(Cheimatobia brumata)、リソコレチス・ブランカルデラ(Lithocolletis blancardella)、ヒポノメウタ・パデラ(Hyponomeuta padella)、コナガ(Plutella xylostella)、オビカレハ(Malacosoma neustria)、ドクガ(Euproctis chrysorrhoea)、マイマイガ(Lymantria)種、ブククラトリクス・スルベリエラ(Bucculatrix thurberiella)、ミカンハモグリガ(Phyllocnistis citrella)、ヤガ(Agrotis)種、エウクソア(Euxoa)種、フェルテア(Feltia)種、ミスジオリング(Earias insulana)、ヒリオシス(Heliothis)種、ヨトウガ(Mamestra brassicae)、マツキリガ(Panolis flammea)、ヨトウ(Spodoptera)種、イラクサギンウワバ(Trichoplusia ni)、カルボカブサ・ポモネラ(Carposapsa pomonella)、シロチョウ(Pieris)種、ニカメイガ(Chilo)種、アワノメイガ(Pyrausta nubilalis)、スジコナマダラメイガ(Ephesia kuehniella)、ハチノスツヅリガ(Galleria mellonella)、コイガ(Tineola bissellie

10

20

30

40

50

lla)、イガ(Tinea pellionella)、ホフマンノフィラ・プセウド
スプレテルラ(Hofmannophila pseudospretella)、カコ
エキア・ボダナ(Cacoecia podana)、カプア・レテクラナ(Capua
reticulana)、トウヒシントメハマキ(Choristoneura fu
miferana)、ブドウホソハマキ(Clysia ambiguella)、チャ
ハマキ(Homona magnanima)、トルトリックス・ビリダーナ(Tort
rix viridana)、クナファロケルス(Cnaphalocerus)種、イ
ネクビボソハムシ(Oulema oryzae)

甲虫目(Coleoptera)から、例えばアノビウム・プンクターツム(Anob
ium punctatum)、コナナガシンクイ(Rhizopertha domi
nica)、エンドウゾウムシ(Bruchidius obtectus)、インゲン
マメゾウムシ(Acanthoscelides obtectus)、ヒロトルベス・
バジユルス(Hylotrupes bajulus)、アゲラスチカ・アルニ(Age
lastica alni)、コロラドハムシ(Leptinotarsa decem
lineata)、カラシナハムシ(Phaedon cochleariae)、デア
ブロチカ(Diabrotica)種、ナトビハムシ(Psylliodes chry
socephala)、インゲンテントウ(Epilachna varivestis
)、アトマリア(Atomaria)種、ノコギリヒラタムシ(Oryzaephilu
s surinamensis)、ハナゾウムシ(Anthonomus)種、コクゾウ
ムシ(Sitophilus)種、キンケクチブトリゾウムシ(Otiorrhynch
us sulcatus)、バショウオサゾウムシ(Cosmopolites sor
didus)、ケウソルリンクス・アッシミリス(Ceuthorrhynchus a
ssimilis)、アルファルフアタコゾウムシ(Hypera postica)、
カツオブシムシ(Dermestes)種、トゥロゴデルマ(Trogoderma)種
、アンスレヌス(Anthrenus)種、アッタゲヌス(Attagenus)種、ヒ
ラタキクイムシ(Lyctus)種、メリゲセス・アエネウス(Meligethes
aeneus)、プテヌス(Ptinus)種、ニプトウス・ホロレウクス(Niptu
s hololeucus)、ニセマルヒョウホンムシ(Gibbium psyllo
ides)、トゥボリウム(Tribolium)種、チャイロコメノゴミムシダマシ(
Tenebrio molitor)、アグリオテス(Agriotes)種、コノデル
ス(Conoderus)種、ヨーロッパコフキコガネ(Melolontha mel
olontha)、アンフィマロン・ソルスステテアリス(Amphimallon so
lstitialis)、コステリトゥラ・アエアランデカ(Costelytra z
eaalandica)及びイネミズゾウムシ(Lissorhopterus oryzo
philus)、

膜翅目(Hymenoptera)から、例えば、マツハバチ(Diprion)種、
ナシミバチ(Hoplocampa)種、ケアリ(Lasius)種、イエヒメアリ(M
onomorium pharaonis)及びスズメバチ(Vespa)種、

双翅目(Diptera)から、例えばヤブカ(Aedes)種、ハマダラカ(Ano
pheles)種、イエカ(Culex)種、キイロショウジョウバエ(Drosoph
ila melanogaster)、イエバエ(Musca)種、ヒメイエバエ(Fa
nnia)種、クロバエ(Calliphora erythrocephala)、キン
バエ(Lucilia)種、オビキンバエ(Chrysomyia)種、ウサギヒフバ
エ(Cuterebra)種、ウマバエ(Gastrophilus)種、シラミバエ(
Hyppobosca)種、サシバエ(Stomoxys)種、ヒツジバエ(Oestr
us)種、ヒフバエ(Hypoderma)種、アブ(Tabanus)種、タンニア(
Tannia)種、ビビオ・ホルツラヌス(Bibio hortulanus)、キモ
グリバエ(Oscinella frit)、フォルビア(Phorbia)種、アカザ
モグリハナバエ(Pegomyia hyoscyami)、チチュウカイミバエ(Ce
ratitis capitata)、オリーブミバエ(Dacus oleae)、チ

10

20

30

40

50

ブラ・パルドーサ (Tipula paludosa)、ヒレミア (Hylemyia) 種及びハモグリバエ (Liriomyza) 種、

ノミ目 (Siphonaptera) から、例えばケオプスネズミノミ (Xenopsylla cheopis) 及びニワトリノミ (Ceratophyllus) 種、

クモ綱 (Arachnida) から、例えばイスラエルゴールドスコピーオ (Scorpio maurus)、クロゴケグモ (Latrodectus mactans)、アシフトコナダニ (Acarus siro)、ナガヒメダニ (Argas) 種、カズキダニ (Ornithodoros) 種、ワクモ (Dermanyssus gallinae)、エリオフィネス・リビス (Eriophyes ribis)、ミカンサビダニ (Phyllocoptruta oleivora)、ウシダニ (Boophilus) 種、コイタマダニ (Rhipicephalus) 種、キララマダニ (Amblyomma) 種、イボマダニ (Hyalomma) 種、マダニ (Ixodes) 種、キュウセンヒゼンダニ (Psoroptes) 種、コリオプテス (Chorioptes) 種、ヒゼンダニ (Sarcoptes) 種、ホコリダニ (Tarsonemus) 種、クローバーハダニ (Bryobia praetiosa)、パノニクス (Panonychus) 種、ヒメハダニ (Tetranychus) 種、ハダニ (Tetranychus) 種、ヘミタルソネムス (Hemitarsonemus) 種、ヒメハダニ (Brevipalpus) 種。

10

【0117】

植物寄生線虫としては、例えば、ネグサレセンチュウ (Pratylenchus) 種、パナナネモグリセンチュウ (Radopholus similis)、ナミキクセンチュウ (Ditylenchus dipsaci)、ミカンネセンチュウ (Tylenchulus semipenetrans)、シストセンチュウ (Heterodera) 種、グロボデラ (Globodera) 種、ネコブセンチュウ (Meloidogyne) 種、ハガレセンチュウ (Aphelenchoides) 種、ナガハリセンチュウ (Longidorus) 種、オオハリセンチュウ (Xiphinema) 種、ユミハリセンチュウ (Trichodorus) 種及びマツノザイセンチュウ (Bursaphelenchus) 種が挙げられる。

20

【0118】

適切ならば、本発明の化合物は、ある一定の濃度又は施用量で、除草剤又は殺微生物剤として、例えば殺真菌剤 (fungicide)、抗力ビ剤 (antimycotics) 及び殺細菌剤 (bactericide) としても使用できる。適切ならば、本発明の活性化合物はまた、別の活性化合物の合成用の中間体及び前駆物質としても使用できる。

30

【0119】

全ての植物及び植物部分は、本発明に従って処理できる。植物とは、本明細書では全ての植物及び植物群、例えば望ましい及び望ましくない野生植物又は作物植物 (天然産の作物植物を含む) を意味すると理解されるべきである。作物植物は、慣用の植物育種法及び最適化法によって又はバイオテクノロジー法及び組換え法によって、あるいはこれらの方法の組み合わせによって得ることができる植物、例えばトランスジェニック植物であることができ、また例えば植物育種者の権利によって保護し得るか又は保護し得ない植物変種であることができる。植物部分とは、地上及び地下の植物の全ての部分及び器官、例えば新芽、葉、花及び根を意味すると理解されるべきであり、その例として葉、針状葉、茎、幹、花、子実体、果実、種子、根、塊茎及び地下茎を挙げ得る。また、植物部分としては、収穫物並びに栄養及び生殖繁殖材料、例えば挿し木、塊茎、地下茎、分枝及び種子が挙げられる。

40

【0120】

活性化合物による植物及び植物部分の本発明の処理は、直接に行うか又は該活性化合物を該植物及び植物部分の周囲、生育環境又は貯蔵空間に慣用の処理方法で作用させることによって、例えば浸漬、噴霧、蒸発、燻煙、散布、塗布することにより作用させることによって行い、また繁殖材料の場合、特に種子の場合には一つ又はそれ以上の被覆を施すこ

50

とによって行う。

【0121】

本発明の活性化合物は、慣用の製剤、例えば液剤、エマルジョン、水和剤、懸濁剤、粉末 (powder)、粉剤、ペースト剤、水溶剤、粒剤、フロアブル剤、活性化合物含浸天然及び合成物質、並びに高分子物質中の微細カプセル剤に変えることができる。

【0122】

これらの製剤は、公知の方法で、例えば本発明の活性化合物を増量剤、すなわち液状溶媒及び/又は固形担体と、場合によっては界面活性剤、すなわち乳化剤及び/又は分散剤、及び/又は気泡形成剤と混合することにより製造される。

【0123】

使用する増量剤が水である場合には、例えば有機溶媒を補助溶媒として使用することも可能である。本質的に、適切な液状溶媒は、芳香族炭化水素、例えばキシレン、トルエン又はアルキルナフタレン類；塩素化芳香族炭化水素及び塩素化脂肪族炭化水素、例えばクロロベンゼン類、クロロエチレン類又は塩化メチレン；脂肪族炭化水素、例えばシクロヘキサン又はパラフィン類、例えば石油留分、鉱油及び植物油；アルコール類、例えばブタノール又はグリコール及びこれらのエーテル類及びエステル類；ケトン類、例えばアセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン又はシクロヘキサノン；強極性溶媒、例えばジメチルホルムアミド及びジメチルスルホキシド；並びに水である。

【0124】

適切な固形担体としては、例えばアンモニウム塩及び粉碎天然鉱物、例えばカオリン、粘土、タルク、チョーク、石英、アタパルジャイト、モンモリロナイト又はケイソウ土、並びに粉碎合成鉱物、例えば高分散シリカ、アルミナ及びケイ酸塩が挙げられ；粒剤に適した固形担体としては、例えば破碎及び分別天然石、例えば方解石、大理石、軽石、海泡石及びドロマイト、並びに無機及び有機粉末の合成顆粒、並びに有機材料、例えばおが屑、ヤシ殻、トウモロコシ穂軸及びタバコ茎の顆粒が挙げられ；適切な乳化剤及び/又は気泡形成剤としては、例えば非イオン性乳化剤及び陰イオン性乳化剤、例えばポリオキシエチレン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレン脂肪アルコールエーテル類、例えばアルキルアリールポリグリコールエーテル類、アルキルスルホン酸塩類、アルキル硫酸塩類、アリールスルホン酸塩類及びタンパク質加水分解生成物が挙げられ；適切な分散剤としては、例えばリグノ亜硫酸塩廃液及びメチルセルロースが挙げられる。

【0125】

粘着付与剤、例えばカルボキシメチルセルロース及び粉末状、粒状又はラテックス状の天然及び合成重合体、例えばアラビアゴム、ポリビニルアルコール及びポリ酢酸ビニル、並びに天然リン脂質、例えばセファリン類及びレシチン類、並びに合成リン脂質が前記製剤に使用できる。その他の添加剤は、鉱油及び植物油であることができる。

【0126】

着色剤、例えば無機顔料、例えば酸化鉄、酸化チタン及びプルシアンブルー、並びに有機染料、例えばアリザリン染料、アゾ染料及び金属フタロシアニン染料、並びに微量栄養素、例えば鉄、マンガン、ホウ素、銅、コバルト、モリブデン及び亜鉛の塩を使用できる。

【0127】

前記の製剤は、一般に活性化合物を0.1から95重量%、好ましくは0.5から90重量%含有する。

【0128】

本発明の活性化合物は、そのまま使用できるし又はその製剤で公知の殺真菌剤、殺細菌剤、殺ダニ剤、殺線虫剤又は殺虫剤との混合物として使用して、このようにして例えば活性スペクトルを広げるか又は抵抗性の発現を防止することができる。多くの場合、相乗効果が得られる、すなわち混合物の活性が個々の成分の活性よりも大きい。

【0129】

適切な同時使用成分の例は、下記の化合物である：

殺菌剤：

アルジモルフ、アムプロピルホス、アムプロピルホス・カリウム、アンドプリム (andoprimum)、アニラジン、アザコナゾール、アゾキシストロビン、

ベナラキシル、ベノダニル、ベノミル、ベンザマクリル、ベンザマクリル・イソブチル、ピアラホス、ピナバクリル、ピフェニル、ピテルタノール、ブラストサイジン・S、フロムコナゾール、ブピリメート、ブチオベート、

多硫化石灰、カプシマイシン (capsimycin)、カプタホール、キャプタン、カルベンダジム、カルボキシシン、カルボン、キノメチオナート、クロベンチアゾン、クロルフェナゾール、クロロネブ、クロルピクリン、クロロタロニル、クロゾリネート、クロジラコン、クフラネブ、シモキサニル、シプロコナゾール、シプロジニル、シプロフラム

10

、デバカルブ、ジクロロフェン、ジクロブトラゾール、ジクロフルアニド、ジクロメジン、ジクロラン、ジエトフェンカルブ、ジフェノコナゾール、ジメチリモール、ジメトモルフ、ジニコナゾール、ジニコナゾール・M、ジノカップ、ジフェニルアミン、ジピリチオン、ジタリムホス、ジチアノン、ドデモルフ、ドジン、ドラゾキシロン、

エジフェンホス、エポキシコナゾール、エタコナゾール、エチリモール、エトリジアゾール、

ファモキサドン、フェナパニル、フェナリモール、フェンブコナゾール、フェンフラム、フェニトロパン、フェンピクロニル、フェンブロピジン、フェンブロピモルフ、酢酸トリフェニル錫、水酸化トリフェニル錫、ファーバム、フェリムゾン、フルアジナム、フル

20

メトオーバー (flumetover)、フルオロミド、フルキンコナゾール、フルブル

リミドール、フルシラゾール、フルスルファミド、フルトラニル、フルトリアホール、フ

ォルベット、ホセチル・アルミニウム、ホセチル・ナトリウム、フサライド、フベリダゾール、フララキシル、フラメトピル、フルカルバニル、フルコナゾール、フルコナゾール

30

-シス、フルメシクロックス、グアザチン、ヘキサクロロベンゼン、ヘキサコナゾール、ヒメキサゾール、

イマザリル、イミベンコナゾール、イミノクタジン、イミノクタジンアルベシル酸塩、イミノクタジン三酢酸塩、ヨードカルブ、イブコナゾール、イプロベンホス (IBP)、イプロジオン、イルママイシン、イソプロチオラン、イソバレジオン、

カスガマイシン、クレソキシムメチル；銅製剤、例えば水酸化第二銅、ナフテン酸銅、

塩基性塩化銅、硫酸銅、酸化銅、オキシシン銅及びボルドー液、マンカップー、マンコゼブ、マネブ、メフェリムゾン、メパニピリム、メブロニル、メ

タラキシル、メトコナゾール、メタスルホカルブ、メトフロキサム、メチラム、メトメクラン、メトスルホバックス (metasulfovax)、ミルディオマイシン、マイクロブタニル、マイクロゾリン、ジメチルジチオカルバミン酸ニッケル、ニトロタル・イソプロピル、ヌアリモール、

40

オフレース、オキサジキシル、オキサモカルブ (oxamocarb)、オキシリン酸

、オキシカルボキシシン、オキシフェンチン (oxyfenthion)、

パクロブトラゾール、ペフラゾエート、ベンコナゾール、ベンシクロン、ホスダイフェン、ピコストロビン、ピマリシン、ピペラリン、ポリオキシシン、ポリオキシソリム (polyoxorim)、プロベナゾール、プロクロラズ、プロシミドン、プロパモカルブ、プロパノシン (propanosine)・ナトリウム、プロピコナゾール、プロピネブ、ピラクロストロビン、ピラゾホス、ピリフェノックス、ピリメタニル、ピロキロン、ピロキシフル、

キンコナゾール (quinconazole)、キントゼン (PCNB)、

硫黄及び硫黄製剤、

テブコナゾール、テクロフタラム、テクナゼン、テトシクラシス、テトラコナゾール、チアベンダゾール、チシオフエン (thicyofen)、チフルザミド、チオフアネート・メチル、チラム、チオキシミド、トルクロホス・メチル、トリルフルアニド、トリア

50

ジメホン、トリアジメノール、トリアズブチル、トリアゾキシド、トリクラミド、トリシ
クラゾール、トリデモルフ、トリフロキシストロピン、トリフルミゾール、トリホリン、
トリチコナゾール、

ウニコナゾール、

バリダマイシン A、ピンクロゾリン、ピニコナゾール、

ザリルアミド、ジネブ、ジラム、並びに

D a g g e r G、

O K - 8 7 0 5、

O K - 8 8 0 1、

- (1 , 1 - ジメチルエチル) - - (2 - フェノキシエチル) - 1 H - 1 , 2 , 4 10

- トリアゾール - 1 - エタノール、

- (2 , 4 - ジクロロフェニル) - - フルオロ - - プロピル - 1 H - 1 , 2 , 4

- トリアゾール - 1 - エタノール、

- (2 , 4 - ジクロロフェニル) - - メトキシ - - メチル - 1 H - 1 , 2 , 4 -

トリアゾール - 1 - エタノール、

- (5 - メチル - 1 , 3 - ジオキサン - 5 - イル) - - [[4 - (トリフルオロメ
チル) フェニル] メチレン] - 1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール - 1 - エタノール、

(5 R S , 6 R S) - 6 - ヒドロキシ - 2 , 2 , 7 , 7 - テトラメチル - 5 - (1 H -
1 , 2 , 4 - トリアゾール - 1 - イル) - 3 - オクタノン、

(E) - - (メトキシイミノ) - N - メチル - 2 - フェノキシフェニルアセタミド、 20

1 - イソプロピル = { 2 - メチル - 1 - [[[1 - (4 - メチルフェニル) エチル] ア
ミノ] カルボニル] プロピル } カルバメート、

1 - (2 , 4 - ジクロロフェニル) - 2 - (1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール - 1 - イ
ル) - エタノン - O - (フェニルメチル) オキシム、

1 - (2 - メチル - 1 - ナフタレニル) - 1 H - ピロール - 2 , 5 - ジオン、

1 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 3 - (2 - プロペニル) - 2 , 5 - ピロリジンジ
オン、

1 - [(ジョードメチル) スルホニル] - 4 - メチル - ベンゼン、

1 - [[2 - (2 , 4 - ジクロロフェニル) - 1 , 3 - ジオキソラン - 2 - イル] メチ
ル] - 1 H - イミダゾール、 30

1 - [[2 - (4 - クロロフェニル) - 3 - フェニルオキシラニル] メチル] - 1 H -
1 , 2 , 4 - トリアゾール、

1 - [1 - [2 - [(2 , 4 - ジクロロフェニル) メトキシ] フェニル] エテニル] -
1 H - イミダゾール、

1 - メチル - 5 - ノニル - 2 - (フェニルメチル) - 3 - ピロリジニノール、

2 ' , 6 ' - ジブプロモ - 2 - メチル - 4 ' - トリフルオロメトキシ - 4 ' - トリフルオ
ロメチル - 1 , 3 - チアゾール - 5 - カルボキサニリド、

2 , 2 - ジクロロ - N - [1 - (4 - クロロフェニル) エチル] - 1 - エチル - 3 - メ
チルシクロプロパンカルボキサミド、

2 , 6 - ジクロロ - 5 - (メチルチオ) - 4 - ピリミジニルチオシアネート、 40

2 , 6 - ジクロロ - N - (4 - トリフルオロメチルベンジル) ベンズアミド、

2 , 6 - ジクロロ - N - [[4 - (トリフルオロメチル) フェニル] メチル] ベンズア
ミド、

2 - (2 , 3 , 3 - トリヨード - 2 - プロペニル) - 2 H - テトラゾール、

2 - [(1 - メチルエチル) スルホニル] - 5 - (トリクロロメチル) - 1 , 3 , 4 -
チアジアゾール、

2 - [[6 - デオキシ - 4 - O - (4 - O - メチル - - D - グリコピラノシル) -
- D - グルコピラノシル] アミノ] - 4 - メトキシ - 1 H - ピロロ [2 , 3 - d] ピリミ
ジン - 5 - カルボニトリル、

2 - アミノブタン、

- 2 - ブロモ - 2 - (ブロモメチル) ペンタンジニトリル、
 2 - クロロ - N - (2 , 3 - ジヒドロ - 1 , 1 , 3 - トリメチル - 1 H - インデン - 4 - イル) - 3 - ピリジンカルボキサミド、
 2 - クロロ - N - (2 , 6 - ジメチルフェニル) - N - (イソチオシアネートメチル) アセトアミド、
 2 - フェニルフェノール (OPP)、
 3 , 4 - ジクロロ - 1 - [4 - (ジフルオロメトキシ) フェニル] - 1 H - ピロール - 2 , 5 - ジオン、
 3 , 5 - ジクロロ - N - [シアノ [(1 - メチル - 2 - プロピニル) オキシ] メチル] ベンズアミド、
 3 - (1 , 1 - ジメチルプロピル - 1 - オキソ - 1 H - インデン - 2 - カルボニトリル)、
 3 - [2 - (4 - クロロフェニル) - 5 - エトキシ - 3 - イソオキサゾリジニル] ピリジン、
 4 - クロロ - 2 - シアノ - N , N - ジメチル - 5 - (4 - メチルフェニル) - 1 H - イミダゾール - 1 - スルホンアミド、
 4 - メチル - テトラゾロ [1 , 5 - a] キナゾリン - 5 (4 H) - オン、
 8 - (1 , 1 - ジメチルエチル) - N - エチル - N - プロピル - 1 , 4 - ジオキサスピロ [4 . 5] デカン - 2 - メタンアミン、
 8 - ヒドロキシキノリン硫酸塩、
 9 H - キサンテン - 2 - [(フェニルアミノ) カルボニル] - 9 - カルボン酸ヒドラジド、
 ビス - (1 - メチルエチル) - 3 - メチル - 4 - [(3 - メチルベンゾイル) オキシ] - 2 , 5 - チオフェンジカルボキシラート、
 シス - 1 - (4 - クロロフェニル) - 2 - (1 H - 1 , 2 , 4 - トリアゾール - 1 - イル) シクロヘプタノール、
 シス - 4 - [3 - [4 - (1 , 1 - ジメチルプロピル) フェニル - 2 - メチルプロピル] - 2 , 6 - ジメチルモルホリン塩酸塩、
 [(4 - クロロフェニル) アゾ] シアノ酢酸エチル、
 炭酸水素カリウム、
 メタンテトラチオールナトリウム塩、
 1 - (2 , 3 - ジヒドロ - 2 , 2 - ジメチル - 1 H - インデン - 1 - イル) - 1 H - イミダゾール - 5 - カルボン酸メチル、
 メチル = N - (2 , 6 - ジメチルフェニル) - N - (5 - イソキサゾリルカルボニル) - DL - アラニネート、
 メチル = N - (クロロアセチル) - N - (2 , 6 - ジメチルフェニル) - DL - アラニネート、
 N - (2 , 3 - ジクロロ - 4 - ヒドロキシフェニル) - 1 - メチル - シクロヘキサンカルボキサミド、
 N - (2 , 6 - ジメチルフェニル) - 2 - メトキシ - N - (テトラヒドロ - 2 - オキソ - 3 - フラニル) アセトアミド、
 N - (2 , 6 - ジメチルフェニル) - 2 - メトキシ - N - (テトラヒドロ - 2 - オキソ - 3 - チエニル) アセトアミド、
 N - (2 - クロロ - 4 - ニトロフェニル) - 4 - メチル - 3 - ニトロベンゼンスルホンアミド、
 N - (4 - シクロヘキシルフェニル) - 1 , 4 , 5 , 6 - テトラヒドロ - 2 - ピリミジンアミン、
 N - (4 - ヘキシルフェニル) - 1 , 4 , 5 , 6 - テトラヒドロ - 2 - ピリミジンアミン、
 N - (5 - クロロ - 2 - メチルフェニル) - 2 - メトキシ - N - (2 - オキソ - 3 - オ

10

20

30

40

50

キサゾリジニル)アセトアミド、

N - (6 - メトキシ - 3 - ピリジニル) シクロプロパンカルボキサミド、

N - [2 , 2 , 2 - トリクロロ - 1 - [(クロロアセチル) アミノ] エチル] ベンズアミド、

N - [3 - クロロ - 4 , 5 - ビス (2 - プロピニルオキシ) フェニル] - N ' - メトキシメタンイミドアミド、

N - ホルミル - N - ヒドロキシ - DL - アラニンナトリウム塩、

O , O - ジエチル [2 - (ジプロピルアミノ) - 2 - オキソエチル] エチルホスホロアミドチオエート、

O - メチル , S - フェニル = フェニルプロピルホスホロアミドチオエート、

S - メチル = 1 , 2 , 3 - ベンゾチアジアゾール - 7 - カルボチオエート、

スピロ [2 H] - 1 - ベンゾピラン - 2 , 1 ' (3 ' H) - イソベンゾフラン] - 3 ' - オン、

4 - [(3 , 4 - ジメトキシフェニル) - 3 - (4 - フルオロフェニル) - アクリロイル] モルホリン。

殺細菌剤：

ブノボール、ジクロロフェン、ニトラピリン、ジメチルジチオカルバミン酸ニッケル、カスガマイシン、オクチリノン、フランカルボン酸、オキシテトラサイクリン、プロベナゾール、ストレプトマイシン、テクロフタラム、硫酸銅及びその他の銅製剤。

殺虫剤 / 殺ダニ剤 / 殺線虫剤：

アバメクチン、アセフェート、アセタミプリド、アクリナトリン、アラニカルブ、アルジカルブ、アルドキシカルブ、アルファ - シペルメトリン、アルファメトリン、アミトラズ、アバメクチン、AZ60541、アザジラクチン、アザメチホス、アジンホスA、アジンホスM、アゾシクロチン、

バシラス・ポピリエ (*Bacillus popilliae*)、バシラス・スフェリカス (*Bacillus sphaericus*)、枯草菌 (*Bacillus subtilis*)、バシラス・スリンジエンシス (*Bacillus thuringiensis*)、バキュロウイルス、ボーベリア・バシアーナ (*Beauveria bassiana*)、ボーベリア・テネラ (*Beauveria tenella*)、ベンダイオカルブ、ベンフラカルブ、ベンスルタップ、ベンゾキシメート、ベータシフルトリン、ピフェナゼート、ピフェントリン、ピオエタノメトリン、ピオベルメトリン、ピストリフルロン、BPMC、プロモホスA、プフェンカルブ、ププロフェジン、ブタチオホス (*butathiofos*)、ブトカルボキシム、ブチルピリダベン (*butylpyridaben*)、

カズサホス、カルバリル、カルボフラン、カルボフェノチオン、カルボスルファン、カルタップ、クロエトカルブ、クロルエトキシホス、クロルフェナビル、クロルフェンビンホス、クロルフルアズロン、クロルメホス、クロルピリホス、クロルピリホスM、クロバトリン (*chlovaporthrin*)、クロマフェノジド、シス - レスメトリン、シスベルメトリン (*cispermethrin*)、クロシトリン (*clocthrin*)、クロエトカルブ、クロフェンテジン、クロチアニジン、シアノホス、シクロブレン (*cycloprene*)、シクロプロトリン、シフルトリン、シハロトリン、シヘキサチン、シベルメトリン、シロマジン、

デルタメトリン、ジメトンM、ジメトンS、ジメトン - S - メチル、ジアフェンチウロン、ダイアジノン、ジクロルボス、ジコホル、ジフルベンズロン、ジメトエート、ジメチルビンホス、ジオフェノラン、ジスルホトン、ドクサト - ナトリウム (*docusat - sodium*)、ドフェナピン (*dofenapyn*)、

エフルシラネート (*eflusilanate*)、エマメクチン、エンペントリン、エンドスルファン、エントモフトラ (*Entomophthora*) 種、エスフェンバレレート、エチオフェンカルブ、エチオン、エトプロホス、エトフェンブロックス、エトキサゾール、エトリムホス、

10

20

30

40

50

フェナミホス、フェナザキン、酸化フェンブタズ、フェニトロチオン、フェノチオカルブ、フェノキサクリム、フェノキシカルブ、フェンプロパトリン、フェンピラド、フェンピリトリン、フェンピロキシメート、フェンバレレート、フィプロニル、フルアジナム、フルアズロン (fluazuron)、フルプロシトリネート (flubrocyrinate)、フルシクロクスロン (flucycloxyuron)、フルシトリネート、フルフェノクスロン、フルメトリン、フルテンジン (flutenzine)、フルバリネート、ホノホス、ホスメチラン、ホスチアゼート、フブフェンブロックス (fubfenprox)、フラチオカルブ、

顆粒症ウイルス、

ハロフェノジド (halofenozide)、HCH、ヘブテノホス、ヘキサフルムロン、ヘキシチアゾックス、ハイドロプレン、

イミダクロプリド、インドキサカルブ、イサゾホス、イソフェンホス、イソキサチオン、イベルメクチン、

核多角体病ウイルス、

- シハロトリン、ルフェヌロン、

マラチオン、メカルバム、メタアルデヒド、メタミドホス、メタリジウム・アニソプリエ (Metharhizium anisopliae)、メタリジウム・フラボビリデ (Metharhizium flavoviride)、メチダチオン、メチオカルブ、メトブレネ、メソミル、メトキシフェノジド、メトルカルブ、メトキサジアゾン、メビンホス、ミルベメクチン、ミルベマイシン、モノクロトホス、

ナレド、ニテンピラム、ニチアジン、ノバルロン、

オメトエート、オキサミル、オキシジメトンM、

ペシロマイセス・フモソロセウス (Paecilomyces fumosoroseus)、パラチオンA、パラチオンM、ベルメトリン、フェントエート、ホレート、ホサロン、ホスメット、ホスファミドン、ホキシム、ピリミカーブ、ピリミホスA、ピリミホスM、プロフェノホス、プロメカルブ、プロバルギット、プロボキスル、プロチオホス、プロトエート、ピメトロジン、ピラクロホス、ピレスメトリン、ピレトリン、ピリダベン、ピリダチオン (pyridathion)、ピリミジフェン、ピリプロキシフェン、

キナルホス、

リバピリン、

サリチオン、ブチルフォス、シラフルオフエン、スピノサド、スピロディクロフェン、スルホテップ、スルプロホス、

タウ - フルバリネート、テブフェノジド、テブフェンピラド、テブピリミホス (tebupirimiphos)、テフルベンズロン、テフルトリン、テメホス、テミピンホス、テルブホス、テトラクロルピンホス、テトラジホン、 - シベルメトリン、チアクロプリド、チアメトキサム、チアプロニル、チアトリホス (thiatriphos)、チオシクラムシュウ酸塩 (thiocyclam hydrogen oxalate)、チオジカルブ、チオフアノックス、スリンジエンシン (thuringiensin)、トラロシトリン (tralocythrins)、トラロメトリン、トリアラセン、トリアゼメート、トリアゾホス、トリアズロン (triazuron)、トリクロフェニジン (trichlorophenidine)、トリクロルホン、トリフルムロン、トリメタカルブ、

バミドチオン、バニリプロール (vaniliprole)、パーティシリウム・レカニ (Verticillium lecanii)、

YI5302、

ゼータ - シベルメトリン、ゾラプロホス (Zolaprofos)、

(1R - シス) - [5 - (フェニルメチル) - 3 - フラニル]メチル = 3 - [(ジヒドロ - 2 - オキソ - 3 (2H) - フラニリデン)メチル] - 2, 2 - ジメチルシクロプロパンカルボキシレート、

(3 - フェノキシフェニル) - メチル - 2, 2, 3, 3 - テトラメチルシクロプロパン

10

20

30

40

50

カルボキシレート、

1 - [(2 - クロロ - 5 - チアゾリル) メチル] テトラヒドロ - 3 , 5 - ジメチル - N - ニトロ - 1 , 3 , 5 - トリアジン - 2 (1 H) - イミン、

2 - (2 - クロロ - 6 - フルオロフェニル) - 4 - [4 - (1 , 1 - ジメチルエチル) フェニル] - 4 , 5 - ジヒドロオキサゾール、

2 - (アセチルオキシ) - 3 - ドデシル - 1 , 4 - ナフタレンジオン、

2 - クロロ - N - [[[4 - (1 - フェニルエトキシ) フェニル] アミノ] カルボニル] ベンズアミド、

2 - クロロ - N - [[[4 - (2 , 2 - ジクロロ - 1 , 1 - ジフルオロエトキシ) フェニル] アミノ] カルボニル] ベンズアミド、

3 - メチルフェニルプロピルカルバメート

4 - [4 - (4 - エトキシフェニル) - 4 - メチルペンチル] - 1 - フルオロ - 2 - フェノキシベンゼン、

4 - クロロ - 2 - (1 , 1 - ジメチルエチル) - 5 - [[2 - (2 , 6 - ジメチル - 4 - フェノキシフェノキシ) エチル] チオ] - 3 (2 H) - ピリダジノン、

4 - クロロ - 2 - (2 - クロロ - 2 - メチルプロピル) - 5 - [(6 - ヨード - 3 - ピリジニル) メトキシ] - 3 (2 H) - ピリダジノン、

4 - クロロ - 5 - [(6 - クロロ - 3 - ピリジニル) メトキシ] - 2 - (3 , 4 - ジクロロフェニル) - 3 (2 H) - ピリダジノン、

バシラス・スリンジエンシス (Bacillus thuringiensis) 株 E G - 2348、

2 - ベンゾイル - 1 - (1 , 1 - ジメチルエチル) - ヒドラジノ安息香酸、

2 , 2 - ジメチル - 3 - (2 , 4 - ジクロロフェニル) - 2 - オキソ - 1 - オキサスピロ [4 . 5] デカ - 3 - エン - 4 - イル = ブタノエート、

[3 - [(6 - クロロ - 3 - ピリジニル) メチル] - 2 - チアゾリジニリデン] シアナミド、

ジヒドロ - 2 - (ニトロメチレン) - 2 H - 1 , 3 - チアジン - 3 (4 H) - カルボキサリデヒド、

エチル = [2 - [[1 , 6 - ジヒドロ - 6 - オキソ - 1 - (フェニルメチル) - 4 - ピリダジニル] オキシ] エチル] カルバメート、

N - (3 , 4 , 4 - トリフルオロ - 1 - オキソ - 3 - ブテニル) グリシン、

N - (4 - クロロフェニル) - 3 - [4 - (ジフルオロメトキシ) フェニル] - 4 , 5 - ジヒドロ - 4 - フェニル - 1 H - ピラゾール - 1 - カルボキサミド、

N - [(2 - クロロ - 5 - チアゾリル) メチル] - N ' - メチル - N '' - ニトログアニジン、

N - メチル - N ' - (1 - メチル - 2 - プロペニル) - 1 , 2 - ヒドラジンジカルボチオアミド、

N - メチル - N ' - 2 - プロペニル - 1 , 2 - ヒドラジンジカルボチオアミド、

O , O - ジエチル = [2 - (ジプロピルアミノ) - 2 - オキソエチル] エチルホスホリアミドチオエート、

N - シアノメチル - 4 - トリフルオロメチルニコチンアミド、

3 , 5 - ジクロロ - 1 - (3 , 3 - ジクロロ - 2 - プロペニルオキシ) - 4 - [3 - (5 - トリフルオロメチルピリジン - 2 - イルオキシ) プロボキシ] ベンゼン。

【 0130 】

本発明の化合物は、その他の公知の活性化合物、例えば除草剤、肥料及び生長調節剤と混合することも可能である。

【 0131 】

殺虫剤として使用する場合には、本発明の活性化合物は、商業的に入手できる製剤で存在させることもできるし、該製剤から相乗剤との混合物として調製される使用形態として存在させることもできる。相乗剤は、活性化合物の作用を高める化合物であり、加えられ

10

20

30

40

50

る相乗剤それ自体が活性である必要はない。

【 0 1 3 2 】

商業的に入手できる製剤から調製される使用形態の活性化合物含有量は、広い範囲で変化させることができる。前記の使用形態の活性化合物濃度は、活性化合物 0 . 0 0 0 0 0 0 1 から 9 5 重量 %、好ましくは 0 . 0 0 0 1 から 1 重量 % であり得る。

【 0 1 3 3 】

本発明の化合物は、使用形態に適切な慣用の方法で使用される。

【 0 1 3 4 】

衛生害虫及び貯蔵品の害虫に対して使用する場合には、本発明の活性化合物は、木材及び土に対する優れた残留作用によって及び石灰散布した基質 (s u b s t r a t e) に対する良好なアルカリ化作用により区別される。

【 0 1 3 5 】

前記で既に述べたように、本発明に従って全ての植物及びその部分を処理することが可能である。好ましい実施態様においては、野生植物種及び植物変種、又は慣用の生物学的育種法、例えば異種交配又はプロトプラスト融合法によって得られる植物変種及びその部分が処理される。さらに好ましい実施態様においては、遺伝子工学によって、適切ならば慣用の方法と組み合わせることによって得られるトランスジェニック植物及び植物変種 (遺伝子組換え生物)、並びにこれらの部分が処理される。「部分」又は「植物の部分」又は「植物部分」という用語は、前記で説明してある。

【 0 1 3 6 】

市販されているか又は使用されているそれぞれの場合の植物変種の植物は、本発明に従って処理されることが特に好ましい。植物変種とは、慣用の育種法、突然変異誘発又は組換え DNA 技術によって得られる新規な性質 (「特性」) を有する植物を意味する。これら植物変種は、変種、生物型又は遺伝子型であり得る。

【 0 1 3 7 】

植物種又は植物変種、その生育場所及び栽培条件 (土壌、気候、植物期間、養分) に応じて、本発明の処理はまた、付加 (「相乗」) 効果をもたらし得る。従って、例えば、施用量の低減及び / 又は活性スペクトルの拡大及び / 又は本発明に従って使用されるべき物質及び組成物の活性の増大、よりよい植物生長、高温又は低温に対する耐性の増大、干ばつ又は水もしくは土壌塩分に対する耐性の増大、開花性能の増大、収穫のより容易さ、熟成の促進、より高い収穫量、よりよい品質及び / 又はより高い栄養価の収穫品、収穫品のよりよい貯蔵安定性及び / 又は加工性が可能であり、これらは実際に期待されるべきであった効果を上回る。

【 0 1 3 8 】

本発明に従って処理されるべき好ましいトランスジェニック植物又は植物変種 (すなわち、遺伝子工学によって得られるトランスジェニック植物又は植物変種) としては、遺伝子組換えにおいてこれらの植物に特に都合のよい有用な性質 (「特性」) を付与する遺伝子材料を受け入れた植物全てが挙げられる。このような性質の例は、よりよい植物生長、高温又は低温に対する耐性の増大、干ばつ又は水もしくは土壌塩分に対する耐性の増大、高められた開花性能、収穫のより容易さ、促進された熟成、より高い収穫量、よりよい品質及び / 又はより高い栄養価の収穫品、収穫品のよりよい貯蔵安定性及び / 又は加工性である。このような性質の別の例及び特に重視される例は、動物及び微生物害虫、例えば昆虫、ダニ、植物病原性の真菌、細菌及び / 又はウイルスに対する植物のよりよい防衛能であり、またある種の除草活性化合物に対する植物の高められた抵抗性である。挙げ得るトランスジェニック植物の例は、重要な作物植物、例えば穀類 (コムギ、イネ)、トウモロコシ、ダイズ、ジャガイモ、ワタ、アブラナ及び果樹植物 (リンゴ、ナシ、柑橘系果物及びブドウ) であり、特に重要なものはトウモロコシ、ダイズ、ジャガイモ、ワタ及びアブラナが挙げられる。重視される特性は、特に、植物内で形成された毒素、特にバシラス・スリンジエンシス (*Bacillus thuringiensis*) 由来の遺伝物質 (例えば、遺伝子 *CryIA(a)*、*CryIA(b)*、*CryIA(c)*、*CryIIA*

10

20

30

40

50

、CryIIIA、CryIIB2、Cry9c、Cry2Ab、Cry3Bb及びCryIF並びにこれらの組み合わせ）によって形成された毒素による昆虫に対する植物の高められた防衛能である（以下、「Bt植物」という）。また特に重視される特性は、全身獲得抵抗性（SAR）、システミン、フィトアレキシン類、エリシター類及び耐性遺伝子及びこれらに対応して発現されるタンパク質及び毒素による真菌、細菌及びウイルスに対する植物の高められた防衛能である。さらにまた特に重視される特性は、ある種の除草活性化合物、例えばイミダゾリノン類、スルホニルウレア類、グリホセート又はホスフィノトリシンに対する植物の高められた耐性（例えば、「PAT」遺伝子）である。当該所望の特性を付与する遺伝子はまた、トランスジェニック植物内で相互に組み合わせて存在させ得る。挙げ得る「Bt植物」の例は、トウモロコシ変種、ワタ変種、ダイズ変種及びジャガイモ変種であり、これらは商品名YIELD GARD（登録商標）（例えば、トウモロコシ、ワタ、ダイズ）、KnockOut（登録商標）（例えば、トウモロコシ）、StarLink（登録商標）（例えば、トウモロコシ）、Bollgard（登録商標）（ワタ）、Nucotton（登録商標）（ワタ）及びNewLeaf（登録商標）（ジャガイモ）として販売されている。挙げ得る除草剤抵抗性植物の例は、トウモロコシ変種、ワタ変種及びダイズ変種であり、これらは商品名Roundup Ready（登録商標）（グリホセート抵抗性、例えばトウモロコシ、ワタ、ダイズ）、LibertyLink（登録商標）（ホスフィノトリシン抵抗性、例えばアブラナ）、IMI（登録商標）（イミダゾリノン抵抗性）及びSTS（登録商標）（スルホニルウレア抵抗性、例えばトウモロコシ）として販売されている。挙げ得る除草剤抵抗性植物（除草剤耐性について慣用の方法で栽培された植物）としては、商品名Clearfield（登録商標）（例えばトウモロコシ）として販売されている変種が挙げられる。勿論、これらの説明は、これらの遺伝特性又はさらに開発されるべき遺伝特性を有する植物品種にも適用され、これらの植物は今後開発され及び／又は市販される。

【0139】

前記に挙げた植物は、本発明の一般式（I）で示される化合物及び／又は活性化合物混合物を用いて本発明の方法に従って特に都合のよい方法で処理することができる。また、活性化合物又は混合物について前記で述べた好ましい範囲も、これらの植物の処理に適用される。本明細書に具体的に述べた化合物又は混合物を用いて植物を処理することが特に重要である。

【0140】

本発明の活性化合物は、植物害虫、衛生害虫及び貯蔵製品害虫に対してばかりではなく、動物薬の領域において動物寄生虫（外部寄生虫）、例えばマダニ、軟ダニ、疥癬ダニ、葉ダニ、ハエ（サシバエ及びナメバエ）、寄生性ハエ幼虫、シラミ、ケジラミ、ハジラミ及びノミに対しても作用する。これらの寄生虫としては、下記のもの挙げられる：

シラミ目（Anoplurida）から、例えばブタジラミ（Haematopinus）種、ケモノホソジラミ（Linognathus）種、シラミ（Pediculus）種、フティルス（Phtirus）種及びソレノポテス（Solenopotes）種

ハジラミ目（Mallophagida）並びにマルツノハジラミ亜目（Amblycera）及びホソツノハジラミ亜目（Ischrocerina）から、例えばトゥリメノポン（Trimenopon）種、タンカクハジラミ（Menopon）種、トゥリノトン（Trinoton）種、ボビコーラ（Bovicola）種、ウェルネキール（Werneckiella）種、レピケントゥロン（Lepikentron）種、ダマリナ（Damalina）種、ケモノジラミ（Trichodectes）種及びフェリコーラ（Felicola）種、

双翅目（Diptera）並びにネマクトケリナ（Nematocera）及びブラキケリナ（Brachycera）亜目から、例えばヤブカ（Aedes）種、ハマダラカ（Anopheles）種、イエカ（Culex）種、ブユ（Simulium）種、エウシムリウム（Eusimulium）種、フレボトムス（Phlebotom

10

20

30

40

50

us) 種、ルツオミヤ (Lutzomyia) 種、クリコイデス (Culicoides) 種、メクラアブ (Chrysops) 種、ヒボミトラ (Hybomitra) 種、アティロトウス (Atylotus) 種、アブ (Tabanus) 種、ゴマフアブ (Haematopota) 種、フィリポミア (Philipomyia) 種、ブラウラ (Bracula) 種、イエバエ (Musca) 種、ヒドロタエア (Hydrotaea) 種、サシバエ (Stomoxys) 種、ハエマトビア (Haematobia) 種、モレルリア (Morellia) 種、ヒメイエバエ (Fannia) 種、ツエツエバエ (Glossina) 種、クロバエ (Calliphora) 種、キンバエ (Lucilia) 種、オビキンバエ (Chrysomyia)、ヴォールファールトニクバエ (Wohlfahrtia) 種、ニクバエ (Sarcophaga) 種、ヒツジバエ (Oestrus) 種、ヒフバエ (Hypoderma) 種、ウマバエ (Gasterophilus) 種、シラミバエ (Hippobosca) 種、リポプテナ (Lipoptena) 種及びメロファグス (Melophagus) 種、

10

ノミ (Siphonapterida) 目から、例えば、ヒトノミ (Pulex) 種、イヌノミ (Ctenocephalides) 種、ネズミノミ (Xenopsylla) 種及びニワトリノミ (Ceratophyllus) 種、

異翅亜目 (Heteropterida) から、例えばトコジラミ (Cimex) 種、サシガメ (Triatoma) 種、ロドニウス (Rhodnius) 種及びパンストロンギルス (Panstrongylus) 種、

ゴキブリ目 (Blattarida) から、トウヨウゴキブリ (Blatta orientalis)、ワモンゴキブリ (Periplaneta americana)、チャパネゴキブリ (Blattella germanica) 及びチャオビゴキブリ (Supella) 種、

20

コナダニ (Acarida) 亜綱並びにマダニ亜目 (Metastigmata) 及びトゲダニ亜目 (Mesostigmata) から、例えばナガヒメダニ (Argas) 種、カズキダニ (Ornithodoros) 種、オトビウス (Otobius) 種、マダニ (Ixodes) 種、キララマダニ (Amblyomma) 種、オウシマダニ (Boophilus) 種、カクマダニ (Dermacentor) 種、ハエモフィラリス (Haemophysalis) 種、イボマダニ (Hyalomma) 種、コイタマダニ (Rhipicephalus) 種、サシダニ (Dermanyssus) 種、ライリーティア (Raillietia) 種、ニューモニサス (Pneumonyssus) 種、ステルノストーマ (Sternostoma) 種及びヘギイダニ (Varroa) 種、

30

ケダニ亜目 (Prostigmata) 及びコナダニ亜目 (Astigmata) から、例えばアカリンダニ (Acarapis) 種、ツメダニ (Cheyletiella) 種、オルニソケイレティア (Ornithocheyletia) 種、ケモチダニ (Myobia) 種、ヒツジツメダニ (Psorergates) 種、ニキビダニ (Demodex)、ツツガムシ (Trombicula) 種、リストオロフォルス (Listrophorus) 種、コナダニ (Acarus) 種、ケナガコナダニ (Tyrophagus) 種、ゴミコナダニ (Caloglyphus) 種、ヒポテクテス (Hypodectes) 種、プテロリクス (Pterolichus) 種、キュウセンヒゼンダニ (Psoroptes)、コリオプテス (Chorioptes) 種、ミミヒゼンダニ (Otodectes)、ヒゼンダニ (Sarcoptes) 種、ノトエドゥレス (Notoedres) 種、クネミドコプテス (Knemidocoptes) 種、シトラデテス (Cytodites) 種及びラミノシオプテス (Laminosioptes) 種。

40

【0141】

本発明の式 (I) で示される活性化合物はまた、農業生産家畜、例えば牛、羊、山羊、馬、豚、ロバ、ラクダ、水牛、ウサギ、ニワトリ、七面鳥、アヒル、ガチョウ及び蜜蜂、その他の愛玩動物、例えば犬、猫、籠で飼う鳥及び観賞魚、並びにいわゆる実験動物、例えばハムスター、モルモット、ラット及びマウスに寄生する節足動物を駆除するのに適している。これらの節足動物を駆除することによって、死亡の場合及び生産性の低下 (肉、

50

乳、毛、皮革、卵、蜜などについて)の問題が低減されるべきであり、それゆえに本発明の活性化化合物を使用することによって、よりいっそう経済的で且つ容易な畜産が可能である。

【0142】

本発明の活性化化合物は、獣医分野において公知の方法で、例えば錠剤、カプセル剤、頓服水剤、水薬、顆粒、ペースト剤、ボラス剤、フィードスルー (feed-through) 処理剤及び坐薬の形態で経腸投与によって、非経口投与、例えば注射 (筋肉内、皮下、静脈内、腹腔内など)、移植によって、鼻内投与によって、皮膚使用、例えば浸漬又は入浴、噴霧、注加 (pouring) 及びスポンジリング、洗浄及び散布の形態での皮膚使用によって、並びに活性化化合物を含有する成形品、例えば首輪、耳標、尾標、肢帯、端綱、マーキング装置などの補助器具を用いて公知の方法で使用される。

10

【0143】

牛、ニワトリ、愛玩動物などに使用する場合には、本発明の式 (I) で示される活性化化合物は、該活性化化合物を 1 から 80 重量 % 含有する製剤 (例えば、粉剤、乳剤、自由流動性組成物) として直接使用できるし又は 100 から 10000 倍希釈後に使用できるし、あるいは薬浴として使用できる。

【0144】

また、本発明の化合物が工業材料を破壊する昆虫に対して強い殺虫作用を有することが知見された。

【0145】

20

下記の昆虫を、例として及び好ましい例として挙げ得るが、これらに限定されない：

甲虫目、例えばヒロトルペス・ベジユルス (Hylotrupes bajulus)、クロホルス・ピロシス (Chlorophorus pilosis)、アノビウム・プンクタツム (Anobium punctatum)、ゼストビウム・ルフォビロスム (Xestobium rufovillosum)、プティリヌス・ペクチコルニス (Ptilinus pecticornis)、デンドロビウム・ベルチネクス (Dendrobium pertinex)、マツザイシバンムシ (Ernobius mollis)、プリオビウム・カルピニ (Priobium carpini)、ヒラタキクイムシ (Lyctus brunneus)、アフリカヒラタキクイムシ (Lyctus africanus)、リクツス・プラニコルリス (Lyctus planicollis)、ナラヒラタキクイムシ (Lyctus linearis)、リクツス・プベスケンス (Lyctus pubescens)、トオロゴキシロン・アエカレ (Trogoxylon aequale)、ケプトヒラタキクイムシ (Minthes rugicollis)、キシレボルス (Xyleborus) 種、トリプトデンドロン (Tryptodendron) 種、アパテ・モナクス (Apate monachus)、ボストリクス・カプキンス (Bostrychus capucins)、ヘテロボストリクス・ブルンネウス (Heterobostrychus brunneus)、シノキシロン (Sinoxylon) 種及びチビタケシンクシ (Dinoderus minutus)、

30

膜翅目 (Hymenopterons)、例えばコルリキバチ (Sirex juvenicus)、モミノオオキバチ (Urocerus gigas)、ウロケルス・ギガス・タイグヌス (Urocerus gigas taignus) 及びウロケルス・アウグル (Urocerus augur)、

40

シロアリ目、例えばカロテルメス・フラビコルリス (Kaloterмес flavicollis)、アメリカカンザイシロアリ (Cryptotermes brevis)、ヘテロテルメス・インディコーラ (Heterotermes indicola)、キアシシロアリ (Reticulitermes flavipes)、レティクリテルメス・サントネンシス (Reticulitermes santonensis)、レティクリテルメス・ルシフグス (Reticulitermes lucifugus)、ムカシシロアリ (Mastotermes darwiniensis)、ネバタ

50

オオシロアリ (*Zootermopsis nevadensis*) 及びイエシロアリ (*Coptotermes formosanus*)、

シミ目、例えばセイヨウシミ (*Lepisma saccharina*)。

【0146】

これに関連する工業材料は、非生物材料、例えば好ましくはプラスチック、接着剤、糊、紙及び厚紙、皮革、木材及び加工木材製品並びに塗料組成物を意味すると理解されるべきである。

【0147】

木材及び加工木材製品は、特に好ましくは昆虫の繁殖から保護されるべきである。

【0148】

本発明の薬剤及びそれを含有する混合物で保護することができる木材及び加工木材製品は、例えば、建造用木材、木製梁、鉄道枕木、橋脚部品、船舶栈橋、木製車両、箱、パレット、コンテナ、電柱、木製パネル、木製窓枠及びドア、プライウッド、合板、建具、又は家屋建造物もしくは建造物用建具に使用される木製製品を意味すると理解されるべきである。

【0149】

本発明の活性化合物は、そのまま使用できるし、濃厚物の形態で又は慣用の製剤、例えば粉末、顆粒、溶液、懸濁液、エマルジョン又はペーストで使用する。

【0150】

前記の製剤は、それ自体公知の方法で製造することができ、例えば活性化合物を少なくとも1種の溶媒又は希釈剤、乳化剤、分散剤及び/又は結合剤又は固定化剤、撥水剤、適切ならば乾燥剤及びUV安定剤並びに適切ならば染料及び顔料、並びにその他の加工補助剤と混合することによって製造することができる。

【0151】

木材及び木材製品の防腐に使用される殺虫剤組成物又は濃厚物は、本発明の活性化合物を0.0001から95重量%、特に0.001から60重量%の濃度で含有する。

【0152】

使用する組成物又は濃厚物の量は、昆虫の性質や発生及び媒体に依存する。使用する最適量は、それぞれの場合の使用について一連の試験によって決定できる。しかし、一般的には、保護すべき材料を基準として活性化合物を0.0001から20重量%、好ましくは0.001から10重量%使用するのが十分である。

【0153】

使用する溶媒及び/又は希釈剤は、有機化学溶媒もしくは溶媒混合物及び/又は低揮発性の油性もしくは油様の有機化学溶媒もしくは溶媒混合物及び/又は極性の有機化学溶媒もしくは溶媒混合物及び/又は水、並びに適切ならば乳化剤及び/又は湿潤剤である。

【0154】

使用することが好ましい有機化学溶媒は、35よりも大きい蒸発数及び30よりも高い引火点、好ましくは45よりも高い引火点をもつ油性又は油様溶媒である。このような低揮発性の油性又は油様の水不溶性溶媒として使用される物質は、適切な鉱油又はその芳香族留分であるか、あるいは鉱油、好ましくはホワイトスピリット、石油及び/又はアルキルベンゼンを含有する溶媒混合物である。

【0155】

170から220の沸点範囲をもつ鉱油、170から220の沸点範囲をもつホワイトスピリット、250から350の沸点範囲をもつスピンドル油、160から280の沸点範囲をもつ石油及び芳香族炭化水素、テルペンチン油などが都合よく使用される。

【0156】

好ましい実施態様では、180から210の沸点範囲をもつ液状脂肪族炭化水素、又は180から220の沸点範囲をもつ芳香族炭化水素と脂肪族炭化水素との高沸点混合物及び/又はスピンドル油及び/又はモノクロロナフタレン、好ましくは - モノクロロ

10

20

30

40

50

ナフタレンが使用される。

【0157】

35よりも大きい蒸発数及び30よりも高い引火点、好ましくは45よりも高い引火点をもつ低揮発性の有機油性又は油様溶媒は、溶媒混合物が同様に35よりも大きい蒸発数及び30よりも高い引火点、好ましくは45よりも高い引火点をもつこと及び殺虫剤/殺菌剤混合物がこの溶媒混合物に溶解又は乳化できることを条件として、その一部を高揮発性又は中揮発性の有機化学溶媒で交換し得る。

【0158】

好ましい実施態様によれば、有機化学溶媒又は溶媒混合物の幾分は、脂肪族極性有機化学溶媒又は溶媒混合物で置換される。ヒドロキシル基及び/又はエステル基及び/又はエーテル基を含有する脂肪族有機化学溶媒、例えばグリコールエーテル、エステルなどを使用することが好ましい。

10

【0159】

本発明に照らして使用される有機化学結合剤は、それ自体公知である合成樹脂及び/又は結合性乾性油、水希釈可能である合成樹脂及び/又は結合性乾性油、及び/又は使用する有機化学溶媒に溶解又は分散又は乳化することができる合成樹脂及び/又は結合性乾性油であり、特にアクリル酸樹脂、ビニル樹脂、例えばポリ酢酸ビニル、ポリエステル樹脂、重縮合又は重付加樹脂、ポリウレタン樹脂、アルキド樹脂又は変性アルキド樹脂、フェノール樹脂、炭化水素樹脂、例えばインデン-クマロン樹脂、シリコン樹脂、乾性植物油及び/又は乾性油及び/又は天然樹脂及び/又は合成樹脂を基材とした物理的乾燥性結合剤のみからなるか又はこれらを含有してなる結合剤である。

20

【0160】

結合剤として使用される合成樹脂は、エマルジョン、分散物又は溶液の形態で使用できる。また、ピチューメン又はピチューメン様物質も、最大10重量%の量で結合剤として使用できる。それ自体公知の染料、顔料、撥水剤、臭気中和剤及び阻害剤又は防錆剤などがさらに使用できる。

【0161】

本発明によれば、前記の組成物又は濃厚物は、有機化学結合剤として、少なくとも1種のアルキド樹脂又は変性アルキド樹脂及び/又は乾性植物油を含有することが好ましい。45重量%を超える含油量、好ましくは50から68重量%の含油量を有するアルキド樹脂を本発明に従って使用することが好ましい。

30

【0162】

前記の結合剤の全部又はあるものは、固定化剤(混合物)又は可塑剤(混合物)で置換することができる。これらの添加剤は、活性化合物の蒸発、結晶化又は沈降を防止することを目的とする。これらの添加剤は、結合剤の0.01から30%(使用する結合剤100%を基準として)を置換することが好ましい。

【0163】

可塑剤は、フタル酸エステル、例えばフタル酸ジブチル、フタル酸ジオクチル又はフタル酸ベンジルブチル;リン酸エステル、例えばリン酸トリブチル;アジピン酸エステル、例えばアジピン酸ジ(2-エチルヘキシル);ステアリン酸エステル、例えばステアリン酸ブチル又はステアリン酸アミル;オレイン酸エステル、例えばオレイン酸ブチル;グリセリンエーテルあるいは高分子量グリコールエーテル、グリセリンエステル及びp-トルエンスルホン酸エステルの化学分類のものである。

40

【0164】

固定化剤は、ポリビニルアルキルエーテル、例えばポリビニルメチルエーテルあるいはケトン類、例えばベンゾフェノン又はエチレンベンゾフェノンを化学的に基剤とする。

【0165】

可能な溶媒又は希釈剤は、特に水、適切ならば前記の有機化学溶媒又は希釈剤、乳化剤及び分散剤の1種又はそれ以上との混合物としての水である。

【0166】

50

木材の特に効果的な防腐は、大きな工業的規模での含浸法によって、例えば減圧法、二重減圧 (double vacuum) 法又は加圧法によって達成される。

【0167】

すぐ使用できる組成物もまた、適切ならばその他の殺虫剤を含有することができ、また適切ならば1種又はそれ以上の殺菌剤を含有することができる。

【0168】

可能な追加の混合成分は、国際公開第WO94/29268号明細書に記載の殺虫剤及び殺菌剤であることが好ましい。該明細書に記載の化合物は、本出願の明示構成要素である。

【0169】

挙げ得る特に好ましい混合成分は、殺虫剤、例えばクロルピリホス、ホキシム、シラフルオフィン (silaflofin)、アルファメトリン、シフルトリン、シベルメトリン、デルタメトリン、ペルメトリン、イミダクロプリド、NI-25、フルフェノクスロン、ヘキサフルムロン、トランスフルトリン、チアクロプリド、メトキシフェノジド及びトリフルムロン、並びに殺菌剤、例えばエポキシコナゾール、ヘキサコナゾール、アザコナゾール、プロピコナゾール、テブコナゾール、シプロコナゾール、メトコナゾール、イマザリル、ジクロフルアニド、トリルフルアニド、3-ヨード-2-プロピニルブチルカルバメート、N-オクチルイソチアゾリン-3-オン及び4,5-ジクロロ-N-オクチルイソチアゾリン-3-オンである。

【0170】

本発明の化合物は、同時に、塩水又は塩気のある水と接触する物体、例えば船体、スクリーン、網、建造物、係留及び信号設備を付着物から保護するのに使用できる。

【0171】

付着性の貧毛綱 (Oligochaeta)、例えばサンザシゴカイ科 (Serpulidae) による付着物及びレダモルファ (Ledamorpha) 群 (フジツボ類) の貝及び種、例えば種々のエボシガイ (Lepas) 種及びスカルペルム (Scalpellum) 種による付着物又はフジツボ下目 (Balanomorpha) 群 (フジツボ) の種、例えばフジツボ (Balanus) 種又はポリキペス (Pollicipes) 種による付着物は、船舶の摩擦抵抗を大きくし、その結果、より大きなエネルギー消費及び更に頻繁な乾ドックにおける居留による運転コストの著しい増加を招く。

【0172】

藻類例えばシオミドロ (Ectocarpus) 種及びケラミウム (Ceramium) 種による付着物は別にして、蔓脚類 (Cirripedia) (cirriped crustaceans) という一般名に入る付着性エントモストラカ (Entomostirakia) 群による付着物が特に重要である。

【0173】

今般、本発明の化合物が単独で又は他の活性化合物との組み合わせで顕著な防汚作用をもつことが意外にも知見された。

【0174】

本発明の化合物を単独で又は他の活性化合物と組み合わせて使用すると、重金属の使用例えば、ビス(トリアルキル錫)スルフィド、トリ-n-ブチル錫ラウレート、トリ-n-ブチル錫クロリド、酸化銅(I)、トリエチル錫クロリド、トリ-n-ブチル(2-フェニル-4-クロロフェノキシ)錫、トリブチル錫オキシド、モリブデンジスルフィド、酸化アンチモン、高分子チタン酸ブチル、フェニル-(ビスピリジン)-ビスマスキロリド、トリ-n-ブチル錫フルオリド、エチレンビスチオカルバミン酸マンガン、ジメチルジチオカルバミン酸亜鉛、エチレンビスチオカルバミン酸亜鉛、2-ピリジンチオール-1-オキシドの亜鉛塩及び銅塩、ビスジメチルジチオカルバモイルエチレン-ビスチオカルバミン酸亜鉛、酸化亜鉛、エチレン-ビスジチオカルバミン酸銅(I)、チオシアン酸銅、ナフテン酸銅及びトリブチル錫ハライドにおける重金属の使用なしで済ますことを可能にし又はこれらの化合物の濃度を実質的に下げることが可能にする。

【 0 1 7 5 】

適切ならば、すぐ使用できる防汚塗料は、追加成分として他の活性化合物、好ましくは殺藻剤、殺菌剤、除草剤、殺軟体動物剤、又はその他の防汚活性化合物を含有することができる。

【 0 1 7 6 】

本発明の防汚組成物との組み合わせに適した好ましい成分は、下記のものである：

殺藻剤、例えば 2 - tert - ブチルアミノ - 4 - シクロプロピルアミノ - 6 - メチルチオ - 1 , 3 , 5 - トリアジン、ジクロロフェン、ジウロン、エンドタール、酢酸トリフェニル錫、イソプロツロン、メタベンズチアズロン、オキシフルオルフェン、キノクラミン及びテルブトリン；

殺菌剤、例えばベンゾ [b] チオフェンカルボン酸シクロヘキシルアミド - S , S - ジオキシド、ジクロフルアニド、フルオロフォルベット、3 - ヨード - 2 - プロピニルブチルカルバメート、トリルフルアニド及びアゾール類、例えばアザコナゾール、シプロコナゾール、エポキシコナゾール、ヘキサコナゾール、メトコナゾール、プロピコナゾール及びテブコナゾール；

殺軟体動物剤、例えば酢酸トリフェニル錫、メタルデヒド、メチオカルブ、ニクロサミド、チオジカルブ及びトリメタカルブ；

又は慣用の防汚活性化合物、例えば 4 , 5 - ジクロロ - 2 - オクチル - 4 - イソチアゾリン - 3 - オン、ジヨードメチルパラトリルスルホン、2 - (N , N - ジメチルチオカルバモイルチオ) - 5 - ニトロチアジル、2 - ピリジンチオール - 1 - オキシドのカリウム塩、銅塩、ナトリウム塩及び亜鉛塩、ピリジン - トリフェニルボラン、テトラブチルジスタノキサン、2 , 3 , 5 , 6 - テトラクロロ - 4 - (メチルスルホニル) - ピリジン、2 , 4 , 5 , 6 - テトラクロロイソフタロニトリル、テトラメチルチウラムジスルフィド及び 2 , 4 , 6 - トリクロロフェニルマレイミド。

【 0 1 7 7 】

使用する防汚組成物は、本発明の化合物の発明の活性化合物を 0 . 0 0 1 から 5 0 重量 %、特に 0 . 0 1 から 2 0 重量 % の濃度で含有する。

【 0 1 7 8 】

また、本発明の防汚組成物は、慣用の成分、例えば、U n g e r e r , C h e m . I n d . , 1 9 8 5 , 3 7 , 7 3 0 - 7 3 2 及び W i l l i a m s , A n t i f o u l i n g M a r i n e C o a t i n g s , N o y e s , P a r k R i d g e , 1 9 7 3 に記載の成分を含有する。

【 0 1 7 9 】

防汚塗料は、本発明の殺藻、殺菌、殺軟体動物活性化合物及び殺虫活性化合物の他に特に結合剤を含有する。

【 0 1 8 0 】

認められている結合剤の例は、溶媒系中のポリ塩化ビニル、溶媒系中の塩素化ゴム、溶媒系特に水性系中のアクリル樹脂、水性分散物又は有機溶媒系の形態の塩化ビニル / 酢酸ビニル共重合体系、ブタジエン / スチレン / アクリロニトリルゴム、乾性油例えば亜麻仁油、タール又はピチューメン、アスファルト及びエポキシ化合物と組み合わせた樹脂エステル又は変性硬化樹脂、少量の塩素ゴム、塩素化ポリプロピレン及びビニル樹脂である。

【 0 1 8 1 】

適切ならば、塗料はまた、塩水に溶けないことが好ましい無機顔料、有機顔料又は着色剤を含有する。塗料はまた、活性化合物の制御された放出を可能にするロジンなどの物質を含有する。さらにまた、塗料は可塑剤、流動学的性質に影響を及ぼす変性剤及びその他の慣用の成分を含有していてもよい。本発明の化合物又は前記の混合物はまた、自己研磨性防汚系に配合してもよい。

【 0 1 8 2 】

また本発明の活性化合物は、例えば住居、工場ホール、事務所、車両操縦室などの密閉空間に認められる動物害虫、特に昆虫類、クモ形類動物及びダニ類を防除するのに適して

10

20

30

40

50

いる。本発明の活性化合物は前記害虫を防除するための家庭用殺虫剤製品に単独で又は他の活性化合物及び補助剤と組み合わせて使用できる。発明の活性化合物は、感受性及び抵抗性の種や全ての発育段階に対して活性である。これらの害虫としては下記の害虫が挙げられる：

カサゴ目 (Scorpionidea) から、例えばサハライエロースコーピオン (Buthus occitanus)、

ダニ目 (Acarina)、例えばペルシャダニ (Argas persicus)、鳩扁ダニ (Argas reflexus)、ハダニ (Bryobia) 種、ワクモ (Dermanyssus gallinae)、グリキファグス・ドメスチクス (Glyciphagus domesticus)、オルニトドルス・モウバートゥ (Ornithodoros moubat)、クリイロコイタマダニ (Rhipicephalus sanguineus)、トゥロンビクラ・アルフレッドゥゲシ (Trombicula alfreddugesi)、ネウトゥロビクラ・アウトゥムナリス (Neutrombicula autumnalis)、デルマトファゴイデス・プテロニッシムス (Dermatophagoides pteronissimus) 及びデルマトファゴイデス・フォリネ (Dermatophagoides forinae)、

クモ目 (Araneae) から、例えばオオツチグモ科 (Aviculariidae) 及びコガネクモ科 (Araneidae)、

メクラグモ目 (Opiliones) から、例えばプセウドコルピオーネス・ケリフェル (Pseudoscorpiones chelifer)、プセウドコルピオーネス・ケリディウム (Pseudoscorpiones cheiridium) 及びオピリオネス・ファランギウム (Opiliones phalangium)、

等脚目 (Isopoda) から、例えばオニクス・アセルス (Oniscus asellus) 及びワラジウムシ (Porcellio scaber)、

ヤスデ類 (Diplopoda)、例えばブラニウルス・グッツラートゥス (Blaniulus guttulatus) 及びポリデスムス (Polydesmus) 種、

唇脚綱 (Chilopoda) から、例えばツチムカデ (Geophilus) 種、

シミ亜目 (Zygentoma) から、例えば、クテノレピスマ (Ctenolepisma) 種、セイヨウシミ (Lepisma saccharina) 及びレピスマデス・インクイリヌス (Lepismodes inquilineus)、

ゴキブリ目 (Blattaria) から、例えばトウヨウゴキブリ (Blatta orientalis)、チャバネゴキブリ (Blattella germanica)、オキナワチャバネゴキブリ (Blattella asahinai)、ロイコファエア・マデラエ (Leucophaea maderae)、パンクローラ (Panchlora) 種、ウッドゴキブリ (Parcoblatta) 種、コワモンゴキブリ (Periplaneta australasiae)、ワモンゴキブリ (Periplaneta americana)、トビイロゴキブリ (Periplaneta brunnea)、クロゴキブリ (Periplaneta fuliginosa) 及びチャオビゴキブリ (Supella longipalpa) 種、

長弁亜目 (Saltatoria) から、例えばヨーロッパイエコオロギ (Achet a domesticus)、

ハサミムシ目 (Dermaptera) から、例えばヨーロッパクギヌキハサミムシ (Forficula auricularia)、

シロアリ目 (Isoptera) から、例えばカロテルメス (Kaloterme s) 種及びヤマトシロアリ (Reticulitermes) 種、

チャタテムシ目 (Psocoptera) から、例えば、レピナツス (Lepinat us) 種及びリボスケリス (Liposcelis) 種、

コレプテラ (Coleptera) から、例えばアンスレヌス (Anthrenus) 種、アッタゲヌス (Attagenus) 種、カツラブシムシ (Dermestes) 種、コゴメゴミムシダマシ (Lateticus oryzae)、ネクロビア (Ne

10

20

30

40

50

crobia)種、プテヌス(Ptinus)種、コナナガシנקイ(Rhizopertha dominica)、グラナリアコクゾウムシ(Sitophilus granaries)、ココクゾウムシ(Sitophilus oryzae)、コクゾウムシ(Sitophilus zeamais)及びシンサンシバンムシ(Stegobium paniceum)、

双翅目(Diptera)から、例えばネツタイシマカ(Aedes aegypti)、ヒトスジシマカ(Aedes albopictus)、アエデス・タエニオリンクス(Aedes taeniorhynchus)、ハマダラカ(Anopheles)種、クロバエ(Calliphora erythrocephala)、クリソゾーナ・ブルビアリス(Chrysosona pluvialis)、ネツタイイカ(Culex quinquefasciatus)、アカイイカ(Culex pipiens)、クレックス・タルサリス(Culex tarsalis)、ショウジョウバエ(Drosophila)種、ヒメイエバエ(Fannia canicularis)、イエバエ(Musca domestica)、サシチョウバエ(Phlebotomus)種、サルコファガ・カルナルア(Sarcophaga carnaria)、ブコ(Simulium)種、サシバエ(Stomoxys calcitrans)及びチブラ・パルドーサ(Tipula paludosa)、

鱗翅目(Lepidoptera)から、例えばアクロイア・グリセルラ(Achroia grisella)、ハチノスツヅリガ(Galleria mellonella)、ノシメマダラメイガ(Plodia interpunctella)、チネア・コアケルラ(Tinea cloacella)、イガ(Tinea pellionella)及びコイガ(Tineola bisselliella)、

ノミ目(Siphonaptera)から、例えばイヌノミ(Ctenocephalides canis)、ネコノミ(Ctenocephalides felis)、ヒトノミ(Pulex irritans)、スナノミ(Tunga penetrans)及びケオプスネズミノミ(Xenopsylla cheopsis)、

膜翅目(Hymenoptera)から、例えばカンボノトウス・ヘルクレアヌス(Camponotus herculeanus)、クロクサアリ(Lasius fuliginosus)、トビイロケアリ(Lasius niger)、アメイロケアリ(Lasius umbratus)、イエヒメアリ(Monomorium pharaonis)、スズメバチ(Paravespula)種及びトビイロシワアリ(Tetramorium caespitum)、

シラミ目(Anoplura)、例えばアタマジラミ(Pediculus humanus capitis)、コロモジラミ(Pediculus humanus corporis)及びケジラミ(Phthirus pubis)、

半翅目(Heteroptera)から、例えばネツタイナンキンムシ(Cimex hemipterus)、トコジラミ(Cimex lectularius)、ローデヌス・プロリクス(Rhodinus prolixus)及びブラジルサシガメ(Triatoma infestans)。

【0183】

家庭用殺虫剤の分野において、本発明の活性化合物は、単独で又は他の適切な活性化合物、例えばリン酸エステル、カルバメート、ピレスロイド、生長調節剤又は公知のクラスの殺虫剤からの活性化合物と組み合わせて使用できる。

【0184】

本発明の活性化合物は、エアゾール、非加圧スプレー製品、例えばポンプ付き及びアトマイザー付きスプレー、自動噴霧装置、煙霧器、フォーム、ゲル、セルローズ又は重合体製蒸発剤を有する蒸発器製品、液体蒸発器、ゲル及び膜式蒸発器、噴射剤駆動蒸発器、無動力又は受動蒸発装置、モスペーパー(moth paper)、モスバッグ(moth bag)及びモスゲル(moth gel)として、展着用餌又は誘引ステーションにおいて顆粒又は粉末として使用される。

【 0 1 8 5 】

本発明の活性化合物の製造及び使用を以下の実施例に示す。

【実施例】

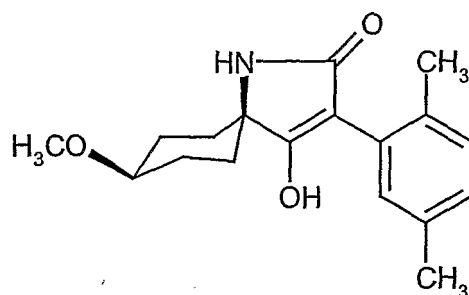
【 0 1 8 6 】

製造実施例

実施例 (I - a - 1)

【 0 1 8 7 】

【化 3 4 】



10

【 0 1 8 8 】

方法 A :

室温で、製造実施例 (I I - 1) の化合物 (純度 9 9 % 、シス/トランス 9 7 : 3) 5 3 . 3 g (0 . 1 6 モル) を 1 6 0 m l のジメチルホルムアミド (D M F) に溶解した溶液を、3 0 % 濃度のメタノール性 N a O M e 溶液 (7 2 g 、 0 . 4 モル) を 2 4 0 m l の D M F に溶解した溶液 (メタノールは予め蒸留することにより除去する) に滴加した。

20

【 0 1 8 9 】

反応混合物を 6 0 に加熱し、6 0 で 4 時間攪拌した。

【 0 1 9 0 】

反応中に生成したメタノールは、若干の減圧下で留去した。次いで、5 0 から 6 0 で、3 2 % 濃度の塩酸 (9 6 m l) と 9 6 0 m l の水との混合物を滴加した。得られた溶液を室温で 1 時間攪拌し、固形物を吸引濾過し、それぞれ 2 0 0 m l の水で 2 回洗浄し、次いで乾燥した。

30

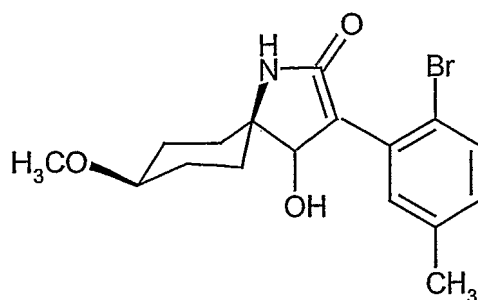
【 0 1 9 1 】

収量 : 4 4 . 1 6 g (理論値の 9 1 . 6 %) 、 m . p . 2 2 4 ~ 2 2 8 。

実施例 (I - a - 2)

【 0 1 9 2 】

【化 3 5 】



40

【 0 1 9 3 】

方法 E :

実施例 (I - c - 2) の化合物 1 . 7 5 g を最初に 5 m l のエタノールに加え、次いで、4 m l の水に溶解した 0 . 5 g の N a O H を室温で滴加した。得られた混合物を 4 0 か

50

ら 50 で攪拌し、反応を薄層クロマトグラフィーで監視した。

【0194】

反応が終結した時に、エタノールを留去し、残留物を水で 10 ml の容量に調製した。0 から 10 で、この混合物を濃塩酸で酸性化し、沈殿物を吸引濾過し、乾燥した。

【0195】

収量：1.35 g (理論値の 92%)、m.p. 274。

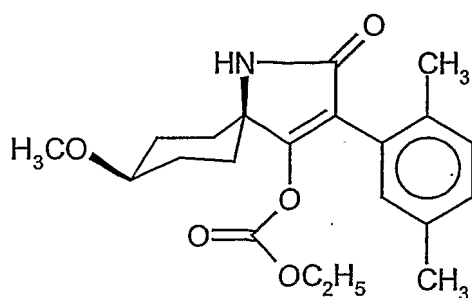
【0196】

実施例 (I - a - 2) と同様にして、方法 E に従って融点 226 の実施例 (I - a - 1) の化合物を得た。

実施例 (I - c - 1)

【0197】

【化 36】



【0198】

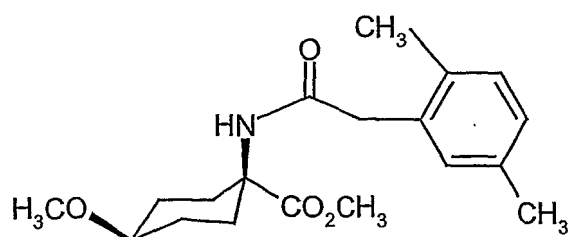
方法 C

実施例 (I - a - 1) の化合物 3.02 g (10 ミリモル) とトリエチルアミン 1.21 g (12 ミリモル) を、最初に 20 ml のクロロベンゼンに加えた。次いで、60 から 65 で、クロロギ酸エチル 1.14 g (10.5 ミリモル) を 8 ml のクロロベンゼンに溶解した溶液を滴加した。得られた混合物を 60 から 65 で 4 時間攪拌した。室温で、反応溶液を 20 ml のクロロベンゼンで希釈し、次いで水 20 ml で抽出し、5% 濃度水酸化ナトリウム水溶液 20 ml で抽出し、最後に飽和 NaCl 水溶液 10 ml で抽出し、有機相を乾燥し、溶媒を留去した。これにより 3.88 g の粗生成物を得られ、その 1.523 g を 15 ml のメチルシクロヘキサンから再結晶した。これにより 1.437 g の生成物を得られた；従って、I - c - 1 の全体量についての算出収量は 3.72 g であった。99.6% の純度を基準とすると、収量は 3.68 g (理論のほぼ 98.6%) であった、m.p. 142 ~ 143。

実施例 (II - 1)

【0199】

【化 37】



【0200】

107 g (0.43 モル) のシス - 4 - メトキシシクロヘキサン - 1 - アミノカルボン酸メチル塩酸塩 (国際公開第 WO 02 / 02532 号明細書、実施例 15) と 221 g (1.6 モル) の炭酸カリウムを最初に 370 ml のアセトニトリルに加えた。

【 0 2 0 1 】

5 から 1 0 で、2, 5 - ジメチルフェニルアセチルクロリド 7 5 . 1 g (0 . 4 モル) を 1 4 0 m l のアセトニトリルに溶解した溶液に滴加した。

【 0 2 0 2 】

次いで、得られた混合物を室温で 3 時間攪拌した。その後に、反応混合物を 2 リットルの氷水に加えた。混合物を約 1 時間攪拌し、沈殿物を吸引濾過し、それぞれ 1 5 0 m l の水で 3 回洗浄し、次いで乾燥した。

【 0 2 0 3 】

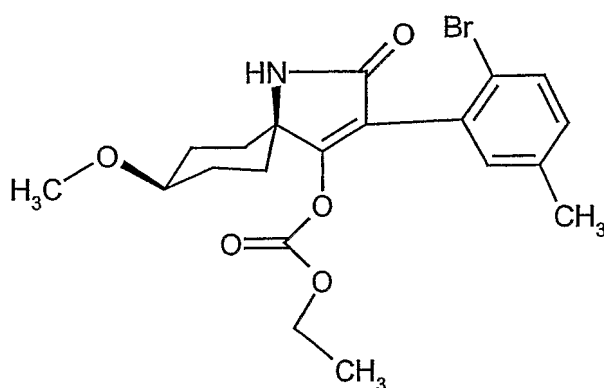
収量 : 1 3 1 g (理論の 9 8 . 2 %)、m . p . 1 0 1 ~ 1 0 2 。

実施例 (I - c - 2)

10

【 0 2 0 4 】

【 化 3 8 】



20

【 0 2 0 5 】

方法 D

9 . 4 m l (6 7 ミリモル) のトリエチルアミンを、2 4 . 6 8 g の実施例 (I - 1 - a - 2 8) の化合物 (国際公開第 W O 9 8 / 0 5 6 3 8 号明細書) を 5 6 0 m l の無水ジクロロメタンに溶解した溶液に加え、次いで 6 . 7 m l (6 7 ミリモル) のクロロギ酸エチルを 5 6 m l の無水 CH_2Cl_2 に溶解した溶液を 0 から 1 0 で滴加した。

【 0 2 0 6 】

30

混合物を室温で攪拌し、反応を薄層クロマトグラフィーで監視した。

【 0 2 0 7 】

反応が終結した後に、溶媒を留去し、残留物を 5 0 0 m l の 0 . 5 N NaOH 溶液で 2 回洗浄した。有機相を乾燥し、溶媒を留去し、残留物をカラムクロマトグラフィー (シリカゲル、ジクロロメタン / 酢酸エチル 3 : 1) で精製した。

収量 : 9 . 8 2 g (理論の 3 3 %)、m . p . 1 5 9 。

【 0 2 0 8 】

方法 D に従って得られたシス異性体 (I - c - 2) (9 . 8 2 g) を、シリカゲルを用いたカラムクロマトグラフィーによりジクロロメタン / アセトン (5 : 1) を使用して再度精製した。

40

【 0 2 0 9 】

収量 : 4 . 2 4 g (理論の 1 4 %)、m . p . 1 6 4 。

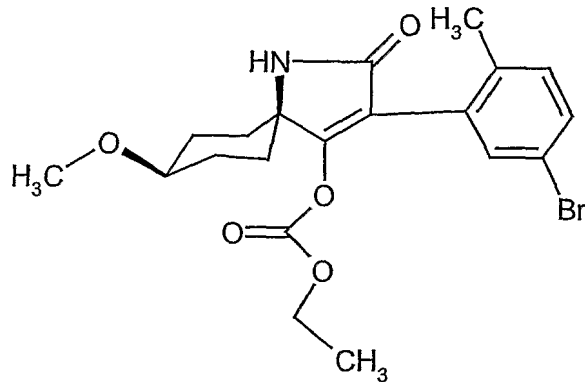
【 0 2 1 0 】

実施例 (I - c - 2) と同様にして、 CH_2Cl_2 / アセトン (5 : 1) を使用してシリカゲルクロマトグラフィーにより、融点 1 4 4 の実施例 (I - c - 2) の化合物を得た。

実施例 (I - c - 4)

【 0 2 1 1 】

【化 3 9】



10

【 0 2 1 2 】

方法 D

国際公開第 WO 9 8 / 0 5 6 3 8 号明細書の実施例 I - 1 - c - 3 2 の化合物のシス / トランス異性体混合物 (約 8 1 : 1 8) 0 . 8 g を、移動相として塩化メチレン / 酢酸エチル (2 : 1) を使用してシリカゲルを用いてクロマトグラフ分離した。

【 0 2 1 3 】

収量 : 0 . 5 1 g、m . p . 1 6 0 。

【 0 2 1 4 】

H P L C による純度 (面積 %) > 9 9 %。

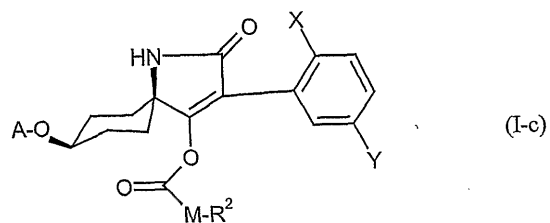
20

【 0 2 1 5 】

実施例 (I - c - 1) 及び (I - c - 2) と同様にして並びに製造及び単離に関する前記の記載に従って、下記の式 (I - c) で示される化合物を得た。

【 0 2 1 6 】

【化 4 0】



(I-c)

30

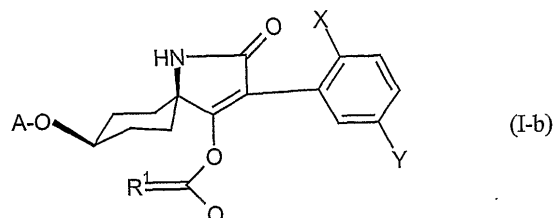
Bsp.-Nr	X	Y	A	M	R ²	Fp°C
I-c-3	Br	CH ₃	CH ₃	O	C ₅ H ₅ -CH ₂ -	171

【 0 2 1 7 】

実施例 (I - c - 1) 及び (I - c - 2) と同様にして並びに製造及び単離に関する前記の記載に従って、下記の式 (I - b) で示される化合物を得た。

【 0 2 1 8 】

【化 4 1】



Bsp.-Nr.	X	Y	A	R ¹	Fp°C
I-b-1	Br	CH ₃	CH ₃		205
I-b-2	Cl	CH ₃	C ₂ H ₅	i-C ₃ H ₇	159

10

【0219】

実施例 A

ワタアブラムシ (*Aphis gossypii*) 試験

溶 媒： ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤： アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び
乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

20

【0220】

ワタアブラムシ (*Aphis gossypii*) を多数寄生させたワタの葉 (*Gossypium hirsutum*) を、所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理した。

【0221】

所望の期間後に、殺虫率 (%) を調べた。100% は、アブラムシ全部が死んだことを意味し；0% は、アブラムシが全く死ななかったことを意味する。

【0222】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

30

【0223】

【表 3 4】

表 A 植物に害を与える昆虫 ワタアブラムシ (<i>Aphis gossypii</i>) 試験		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	6 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-c-4 (W098/05638 号の公知化合物)	40	70
実施例 I-c-1 (本発明の化合物)	20	90

40

【0224】

実施例 B

オオタバコガ (*Heliothis virescens*) 試験

溶 媒： ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤： アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び
乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0225】

50

ダイズの新芽を所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理し、その葉がまだ湿っている間にオオタバコガ (Heliothis virescens) の毛虫を生息させた。

【0226】

所望の期間後に、殺虫率(%)を調べた。100%は、前記の毛虫全部が死んだことを意味し；0%は、前記の毛虫が全く死ななかったことを意味する。

【0227】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0228】

【表35】

10

表 B 植物に害を与える昆虫 オオタバコガ (<u>Heliothis virescens</u>) 試験		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	6 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-c-22 (W098/05638 号の公知化合物)	500	65
実施例 I-c-2 (本発明の化合物)	500	100

20

【0229】

実施例 C

カラシナハムシ (Phaedon) 幼虫試験

溶 媒： ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤： アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0230】

キャベツの葉を所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理し、その葉がまだ湿っている間にカラシナハムシ (Phaedon cochleariae) の幼虫を生息させた。

30

【0231】

所望の期間後に、殺虫率(%)を調べた。100%は、上記の幼虫全部が死んだことを意味し；0%は、上記の幼虫が全く死ななかったことを意味する。

【0232】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0233】

【表36】

40

表 C 植物に害を与える昆虫 カラシナハムシ (<u>Phaedon</u>) 幼虫試験		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	6 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-c-4 (W098/05638 号の公知化合物)	100 10	90 0
実施例 I-c-1 (本発明の化合物)	100 20	100 80

50

【 0 2 3 4 】

実施例 D

コナガ (Plutella) 試験 (耐性種)

溶 媒: ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【 0 2 3 5 】

キャベツの葉を所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理し、その葉がまだ湿っている間にコナガ (Plutella xylostella / 耐性種) の毛虫を

10

【 0 2 3 6 】

所望の期間後に、殺虫率 (%) を調べた。100 % は、毛虫全部が死んだことを意味し; 0 % は、毛虫が全く死ななかったことを意味する。

【 0 2 3 7 】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【 0 2 3 8 】

【 表 3 7 】

20

表 D 植物に害を与える昆虫 コナガ (<u>Plutella</u>) 試験 (耐性種)		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	6 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-c-22 (W098/05638 号の公知化合物)	4	75
実施例 I-c-2 (本発明の化合物)	4	100

【 0 2 3 9 】

30

実施例 E

ナミハダニ (Tetranychus urticae) 試験 (OP 耐性 / 浸漬処理)

溶 媒: ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【 0 2 4 0 】

全ての段階のナミハダニ (Tetranychus urticae) を多数蔓延させたインゲンマメの苗を、所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理した。

【 0 2 4 1 】

40

所望の期間後に、殺ダニ率 (%) を調べた。100 % は、ナミハダニが全部死んだことを意味し; 0 % は、ナミハダニが全く死ななかったことを意味する。

【 0 2 4 2 】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【 0 2 4 3 】

【表 3 8】

表 E 植物に害を与える昆虫 タニハダニ(Tetranychus urticae) 試験(OP 耐性/浸漬処理)		
活性化化合物	活性化化合物の濃度 (ppm)	7 日後の殺ダニ率 (%)
実施例 I-1-a-28 (W098/05638 号の公知化合物)	1	0
実施例 I-a-2 (本発明の化合物)	0.8	80

10

【0 2 4 4】

実施例 F

モモアカアブラムシ (*Myzus*) 試験

溶 媒: ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化化合物の適切な製剤を製造するために、活性化化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0 2 4 5】

モモアカアブラムシ (*Myzus persicae*) を多数蔓延させたキャベツの葉を所望濃度の活性化化合物の製剤に浸漬することにより処理した。

20

【0 2 4 6】

所望の期間後に、殺虫率 (%) を調べた。100 % は、モモアカアブラムシ全部が死んだことを意味し; 0 % は、モモアカアブラムシが全く死ななかったことを意味する。

【0 2 4 7】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0 2 4 8】

【表 3 9】

表 F 植物に害を与える昆虫 モモアカアブラムシ(<i>Myzus</i>) 試験		
活性化化合物	活性化化合物の濃度 (ppm)	6 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-c-32 (W098/05638 号の公知化合物)	10	20
実施例 I-c-4 (本発明の化合物)	4	50
実施例 I-1-b-47 (W098/05638 号の公知化合物)	100	60
実施例 I-b-1 (本発明の化合物)	100	80

30

40

【0 2 4 9】

実施例 G

カラシナハムシ (*Phaedon*) 幼虫試験

溶 媒: ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化化合物の適切な製剤を製造するために、活性化化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

50

【0250】

キャベツの葉を所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理し、その葉がまだ湿っている間にカラシナハムシ (Phaedon cochleariae) の幼虫を生息させた。

【0251】

所望の期間後に、殺虫率(%)を調べた。100%は、上記の幼虫全部が死んだことを意味し；0%は、上記の幼虫が全く死ななかったことを意味する。

【0252】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0253】

【表40】

表 G 植物に害を与える昆虫 カラシナハムシ(Phaedon) 幼虫試験		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	6 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-a-4 (W098/05638 号の公知化合物)	100	0
実施例 I-a-1 (本発明の化合物)	100	100
実施例 I-1-c-32 (W098/05638 号の公知化合物)	100	0
実施例 I-c-4 (本発明の化合物)	100	25

【0254】

実施例 H

ヨトウガ (Spodoptera frugiperda) 試験

溶 媒： ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤： アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0255】

キャベツの葉を所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理し、その葉がまだ湿っている間にヨトウガ (Spodoptera frugiperda) の毛虫を生息させた。

【0256】

所望の期間後に、殺虫率(%)を調べた。100%は、毛虫全部が死んだことを意味し；0%は、毛虫が全く死ななかったことを意味する。

【0257】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0258】

10

20

30

40

【表 4 1】

表 H 植物に害を与える昆虫 ヨトウガ (Spodoptera frugiperda) 試験		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	7 日後の殺虫率 (%)
実施例 I-1-a-4 (W098/05638 号の公知化合物)	100	35
実施例 I-a-1 (本発明の化合物)	100	50
実施例 I-1-c-32 (W098/05638 号の公知化合物)	100	0
実施例 I-c-4 (本発明の化合物)	100	20
実施例 I-1-c-39 (W098/05638 号の公知化合物)	1000	80
実施例 I-c-3 (本発明の化合物)	500	100
実施例 I-1-b-47 (W098/05638 号の公知化合物)	100	0
実施例 I-b-1 (本発明の化合物)	100	60

10

20

【0259】

実施例 I

ナミハダニ (Tetranychus urticae) 試験 (OP 耐性 / 噴霧処理)

溶 媒: アセトン 78 重量部

ジメチルホルムアミド 1.5 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 0.5 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0260】

全ての段階のナミハダニ (Tetranychus urticae) を多数蔓延させたインゲンマメの円板に、所望濃度の活性化合物の製剤を噴霧した。

【0261】

所望の期間後に、殺ダニ率 (%) を調べた。100% は、ナミハダニが全部死んだことを意味し; 0% は、ナミハダニが全く死ななかったことを意味する。

【0262】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0263】

30

40

【表 4 2】

表 I 植物に害を与える昆虫 ナミハダニ(Tetranychus urticae)試験(OP 耐性/噴霧処理)		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	4 日後の殺ダニ率 (%)
	100	70
実施例 I-1-b-2 (本発明の化合物)	100	100

10

【0 2 6 4】

実施例 J

ナミハダニ (Tetranychus urticae) 試験 (OP 耐性 / 浸漬処理)

溶 媒: ジメチルホルムアミド 7 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 2 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0 2 6 5】

全ての段階のナミハダニ (Tetranychus urticae) を多数蔓延させたインゲンマメの苗を、所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理した。

20

【0 2 6 6】

所望の期間後に、殺ダニ率 (%) を調べた。100% は、ナミハダニが全部死んだことを意味し; 0% は、ナミハダニが全く死ななかったことを意味する。

【0 2 6 7】

この試験において、例えば、製造実施例の下記の化合物は、従来技術の化合物よりも優れた効果を示した。

【0 2 6 8】

【表 4 3】

表 J 植物に害を与える昆虫 ナミハダニ(Tetranychus urticae)試験(OP 耐性/浸漬処理)		
活性化合物	活性化合物の濃度 (ppm)	7 日後の殺ダニ率 (%)
実施例 I-1-c-32 (W098/05638 号の公知化合物)	10	30
実施例 I-c-4 (本発明の化合物)	4	40

30

【0 2 6 9】

実施例 K

臨界濃度試験 / 土壌昆虫 - トランスジェニック植物の処理

試験昆虫: コーンルート・ワーム (Diabrotica balteata) 土壌幼虫

40

溶 媒: アセトン 7 重量部

乳化剤: アルキルアリールポリグリコールエーテル 1 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0 2 7 0】

活性化合物の製剤を土壌に注入した。製剤中の活性化合物の濃度は、実質的に重要ではなく、ppm (mg / リットル) で表される土壌の単位容量当たりの活性化合物の重量に

50

よる量のみが重要である。この土壌を 0.25 リットル容の鉢に詰め、これを 20 放置した。

【0271】

調製後直ちに、栽培変種植物 YIELD GUARD (米国所在の Monsanto Comp. の登録商標) の予め発芽させたトウモロコシ 5 粒をそれぞれの鉢に入れた。2 日後に、対応する試験昆虫を処理土壌に入れた。さらに 7 日後に、出芽したトウモロコシ植物の個数を数えることにより活性化合物の効果を調べた (1 植物 = 活性 20%)。

実施例 L

オオタバコガ (Heliothis virescens) - 試験 - トランスジェニック植物の処理

溶 媒 : アセトン 7 重量部

乳化剤 : アルキルアリアルポリグリコールエーテル 1 重量部

活性化合物の適切な製剤を製造するために、活性化合物 1 重量部を前記の量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を乳化剤含有水で所望の濃度に希釈した。

【0272】

栽培変種植物 Roundup Ready (米国所在の Monsanto Comp. の登録商標) のダイズ新芽を所望濃度の活性化合物の製剤に浸漬することにより処理し、その葉をさらに湿らせながらオオタバコガ (Heliothis virescens) の毛虫を生息させた。

【0273】

所望の期間後に、昆虫の死亡数を調べた。

10

20

フロントページの続き

- (72)発明者 ヒムラー, トーマス
ドイツ国、5 1 5 1 9・オーデンタル、シエーネ・アオツシヒト・１・ペー
- (72)発明者 フイツシヤー, ライナー
ドイツ国、4 0 7 8 9・モンハイム、ネリー - ザクス - シュトラーセ・2 3
- (72)発明者 ガレンカンブ, ベルト
ドイツ国、4 2 1 1 3・ブツパータール、パウル - エーリツヒ - シュトラーセ・1 3
- (72)発明者 クノプス, ハンス - ヨアヒム
ドイツ国、4 0 7 8 9・モンハイム、ケーペニツカー・シュトラーセ・3 5
- (72)発明者 ムルデル, ルーベルタス
ドイツ国、5 8 1 3 5・ハーゲン、アウフデム・ゲレンカンブ・4 4
- (72)発明者 ランツィヒ, ラインハルト
ドイツ国、4 2 1 1 5・ブツパータール、アム・ブツシユホイスヒエン・5 1
- (72)発明者 エーアデレン, クリストフ
ドイツ国、4 2 7 9 9・ライヒリンゲン、ウンタービューシエルホフ・1 5
- (72)発明者 コンツエ, イエルク
ドイツ国、5 1 1 4 7・ケルン、マガツイーンシュトラーセ・6 1
- (72)発明者 ナウエン, ラルフ
ドイツ国、4 0 7 6 4・ランゲンフェルト、デヒヤント - ミーバハ - ベーク・4 3
- (72)発明者 マルサム, オルガ
ドイツ国、5 1 5 0 3・レスラス、フオーア・デム・クロスターホフ・1 9
- (72)発明者 アーノルド, クリステイアン
ドイツ国、5 3 3 4 3・バハトベルク、グリメルスドルファー・ベーク・1 1

合議体

審判長 井上 雅博

審判官 木村 敏康

審判官 大畑 通隆

- (56)参考文献 特表2 0 0 0 - 5 1 6 9 1 8 (J P , A)

日本化学会編, 季刊 化学総説 No . 6 光学異性体の分離, 学会出版センター, 1 9 8 9 年
, p . 2 1 9 - 2 2 0

- (58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C07D209/00

A01N 43/36

A01P 1/00-23/00