

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3728324号
(P3728324)

(45) 発行日 平成17年12月21日(2005.12.21)

(24) 登録日 平成17年10月7日(2005.10.7)

(51) Int. Cl.⁷

C O 7 D 249/12

A O 1 N 47/38

C O 7 D 401/12

F I

C O 7 D 249/12 5 O 7

A O 1 N 47/38 A

C O 7 D 401/12

請求項の数 17 (全 96 頁)

(21) 出願番号	特願平10-537516	(73) 特許権者	北興化学工業株式会社
(86) (22) 出願日	平成10年2月26日(1998.2.26)		東京都中央区日本橋本石町4丁目4番20号
(86) 国際出願番号	PCT/JP1998/000803		
(87) 国際公開番号	W01998/038176	(74) 代理人	弁理士 浜野 孝雄
(87) 国際公開日	平成10年9月3日(1998.9.3)		
審査請求日	平成14年1月24日(2002.1.24)	(74) 代理人	弁理士 森田 哲二
(31) 優先権主張番号	特願平9-42743		
(32) 優先日	平成9年2月26日(1997.2.26)	(72) 発明者	森田 健
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		神奈川県平塚市出縄222番地の4
		(72) 発明者	木戸 庸裕
			神奈川県秦野市鶴巻北1丁目11番1-5
			05

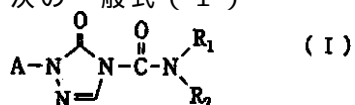
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 1-置換-4-カルバモイル-1, 2, 4-トリアゾール-5-オン誘導体及び除草剤

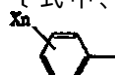
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

次の一般式(Ⅰ)



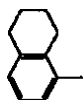
〔式中、(i) Aは式



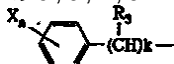
(但しXは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、メチルチオ基、メチルスルフィニル基、メチルスルホニル基、フェノキシ基、アセチルアミノ基、又はトリフルオロアセチルアミノ基であり、nは0又は1~5の整数である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基であるか、あるいは(ii) Aは式



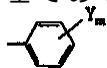
の1-ナフチル基又は式



の5,6,7,8 - テトラヒドロ - 1 - ナフチル基であるか、あるいは (iii) Aは式



(但しXおよびnは前記と同じ意味を有し、R₃は水素原子又はメチル基であり、kは1~2の整数を示す)で示される非置換の又は置換されたベンジル基又はフェネチル基であり;さらにR₁は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は低級シクロアルキル基であり、R₂は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式



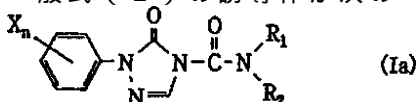
(但しmは0又は1~5の整数、Yは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基あるいは式



(但しZは水素原子又は塩素原子である)で示される非置換の又は置換されたピリジル基であるが、但しAが非置換または置換フェニル基である場合にR₁とR₂とが同時に低級アルキル基であることは除外される)で表される1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体。

【請求項2】

一般式(I)の誘導体が次の一般式(Ia)



[式中、Xは、請求項1で定義されたと同じ意味であり、すなわちXは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、メチルチオ基、メチルスルフィニル基、メチルスルホニル基、フェノキシ基、アセチルアミノ基又はトリフルオロアセチルアミノ基であり、nは0又は1~5の整数であり、R₁及びR₂は請求項1で定義されたと同じ意味であり、すなわちR₁は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は低級シクロアルキル基であり、またR₂は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式



(但し、mは0又は1~5の整数、Yは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基、あるいは式



(但しZは水素原子又は塩素原子を示す)で示される非置換の又は置換されたピリジル基であるが、但しR₁とR₂とが同時に低級アルキル基であることは除外される)で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項1に記載の誘導体。

【請求項3】

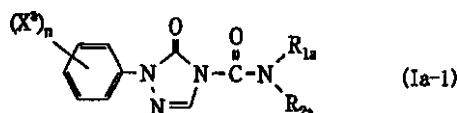
一般式(Ia)の誘導体が次の一般式(Ia-1)

10

20

30

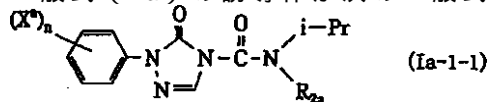
40



〔式中、 R_{1a} が低級アルキル基であり、 R_{2a} がモノ・ハロ置換あるいはジ・ハロ置換フェニル基であり、 X^a がハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、 n が0又は1~2の整数である〕で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項2に記載の誘導体。

【請求項4】

一般式(Ia)の誘導体が次の一般式(Ia-1-1)

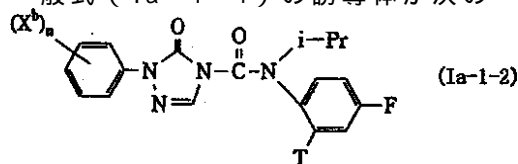


10

〔式中、 $i-Pr$ はイソプロピル基であり、 R_{2a} がモノ・ハロ置換あるいはジ・ハロ置換フェニル基であり、 X^a がハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、 n が0又は1~2の整数である〕で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項2又は3に記載の誘導体。

【請求項5】

一般式(Ia-1-1)の誘導体が次の一般式(Ia-1-2)



20

〔式中、 $i-Pr$ はイソプロピル基であり、 T は水素原子又はフッ素原子であり、 X^b は同じでも異なってもよく、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、メチル基、エチル基又はトリフルオロメチル基であり、 n は0又は1~2の整数である〕で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項4に記載の誘導体。

【請求項6】

一般式(Ia-1-2)の誘導体が1-フェニル-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン；

30

1-(2-クロロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、

1-(3-クロロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、

1-(2-フルオロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、

1-(2,4-ジフルオロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、

1-(2-フルオロ-4-クロロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、

40

1-(2-メチルフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、

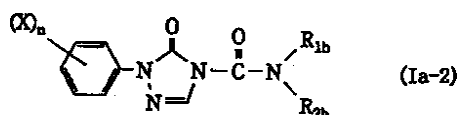
1-(2,3-ジメチルフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン、または

1-(2-クロロ-4-メチルフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オンである請求項5に記載の誘導体。

【請求項7】

一般式(Ia)の誘導体が次の一般式(Ia-2)

50



〔式中、X及びnは請求項1又は2に定義されたと同じ意味であり、 R_{1b} は低級アルキル基であり、 R_{2b} は低級シクロアルキル基である〕で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項2に記載の誘導体。

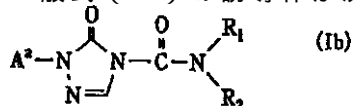
【請求項8】

一般式(Ia-2)においてXが塩素原子、フッ素原子、メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基又はトリフルオロメチルオキシ基であり、nは0又は1~2の整数であり、 R_{1b} はメチル基、エチル基、n-プロピル基又はイソプロピル基であり、 R_{2b} がシクロプロピル基、シクロペンチル基又はシクロヘキシル基である一般式(Ia-2)の1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オンである請求項7に記載の誘導体。

10

【請求項9】

一般式(I)の誘導体が次の一般式(Ib)



〔式中、A^aは式

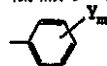


20

の1-ナフチル基又は式



の5,6,7,8-テトラヒドロナ-1-フチル基であり、 R_1 及び R_2 は請求項1に定義されたと同じ意味であり、すなわち R_1 は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は低級シクロアルキル基であり、また R_2 は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式



30

(但しmは0又は1~5の整数、Yは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基、あるいは式



(但しZは水素原子又は塩素原子を示す)で示される非置換の又は置換されたピリジル基である〕で表される1-ナフチル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項1に記載の誘導体。

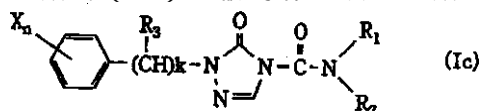
40

【請求項10】

一般式(Ib)において R_1 が低級アルキル基、特にイソプロピル基であり、 R_2 がモノ-ハロ置換あるいはジ-ハロ置換フェニル基、特に4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル基である一般式(Ib)で表される1-ナフチル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項9に記載の誘導体。

【請求項11】

一般式(I)の誘導体が次の一般式(Ic)



50

(式中、Xは、請求項1で定義されたと同じ意味であり、すなわちXは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、メチルチオ基、メチルスルフィニル基、メチルスルホニル基、フェノキシ基、アセチルアミノ基又はトリフルオロアセチルアミノ基であり、nは0又は1～5の整数であり、R₁及びR₂は請求項1で定義されたと同じ意味であり、すなわちR₁は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は低級シクロアルキル基であり、またR₂は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式



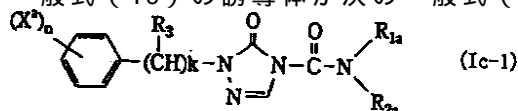
(但し、mは0又は1～5の整数、Yは同一であるか又は相異なっているもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基、あるいは式



(但しZは水素原子又は塩素原子を示す)で示される非置換の又は置換されたピリジル基であり、R₃は水素原子又はメチル基であり、kは1又は2の整数である)で表される1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項1に記載の誘導体。

【請求項12】

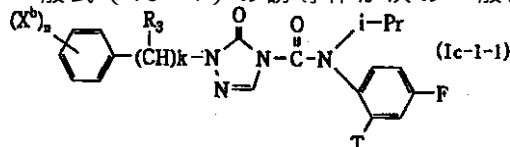
一般式(Ic)の誘導体が次の一般式(Ic-1)



(式中、R_{1a}が低級アルキル基であり、R_{2a}がモノ-ハロ置換あるいはジ-ハロ置換フェニル基であり、X^aがハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、nが0又は1～2の整数であり、kは1又は2の整数である)で表される1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項11に記載の誘導体。

【請求項13】

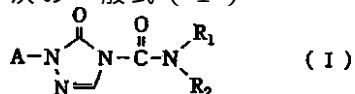
一般式(Ic-1)の誘導体が次の一般式(Ic-1-1)



(式中、i-Prはイソプロピル基であり、Tは水素原子又はフッ素原子であり、X^bは同じでも異なってもよく、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、メチル基、エチル基又はトリフルオロメチル基であり、nが0又は1～2の整数であり、R₃は水素原子又はメチル基であり、kは1又は2の整数である)で表される1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体である請求項12に記載の誘導体。

【請求項14】

次の一般式(I)



(式中、A, R₁及びR₂は請求項1に定義されたと同じ意味である)で表される1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体を有効成分として含有する除草剤組成物。

【請求項15】

請求項2に定義された一般式(Ia)の1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,

10

20

30

40

50

2,4-トリアゾール-5-オン誘導体を有効成分として含有する請求項14に記載の除草剤組成物。

【請求項16】

請求項9に定義された一般式(1b)の1-ナフチル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体を有効成分として含有する請求項14に記載の除草剤組成物。

【請求項17】

請求項11に定義された一般式(1c)の1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体を有効成分として含有する請求項14に記載の除草剤組成物。

【発明の詳細な説明】

技術分野

本発明は、除草剤として有用で新規の1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体に関し、また該誘導体を活性成分として含有することを特徴とする除草剤組成物に関する。本発明は化学工業ならびに農業、特に農薬の製造業の分野で有用である。

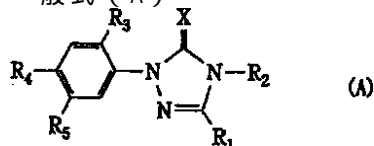
背景技術

従来、以下に示すように、ある種の1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体、及びテトラゾリノン誘導体が除草活性や殺菌活性を有することは既に知られている。

例えば、既知の1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体としては、次の文献に記載される化合物が挙げられる。

(1) 特開平7-76578号公報には、下記の一般式(A)で示される化合物が示されている。

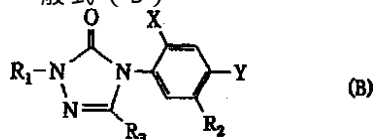
一般式(A)



(式中、Xは酸素原子又は硫黄原子を示し、R₁はハロアルキル基を示し、R₂はシクロアルキル基、シクロアルキルアルキル基などを示し、R₃は水素原子又はハロゲン原子を示し、R₄はニトリル基又はニトロ基を示し、R₅はハロゲン原子又はヘテロサイクリックアルコキシ基などを示す)で表される化合物。

(2) 特開平3-106865号公報には、下記の一般式(B)で示される化合物が記載されている。

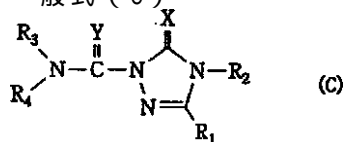
一般式(B)



(式中、R₁はシクロアルキル基、フェニルアルキル基、ハロゲン原子、置換フェニルで置換されたアミノカルボニル基などを示し、R₂は水素原子又は低級アルキル基を示し、R₃はハロゲン原子、アルキル基などを示す)で表される化合物。

(3) 特開昭64-29368号公報には、下記の一般式(C)で示される化合物が記載されている。

一般式(C)

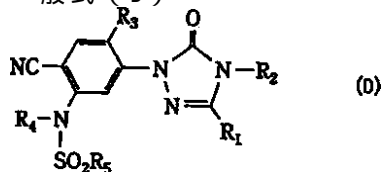


(式中、XとYは酸素原子又は硫黄原子を示し、R₁は水素原子などを示し、R₂は置換されてもよいフェニル基、アラルキル基などを示し、R₃、R₄は水素原子、アルキル基、又は置換

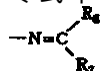
してもよいアリール基などを示す)で表される化合物。

(4) 特開平6 - 293744号公報には、下記の一般式(D)で示される化合物が記載されている。

一般式(D)



[式中、R₁は水素原子などを示し、R₂は



(R₆、R₇はアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シクロアルキル基、アリール基などを示す)を示し、R₃は水素原子、アルキル基、ハロアルキル基などを示し、R₄は水素原子などを示し、R₅はアミノ基又はヒドロキシ基などを示す)で表される化合物。

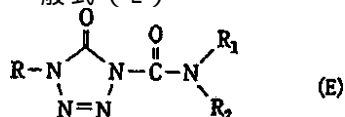
また種々の1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体が次の文献、すなわち(5) 特開昭56 - 32403号公報；(6) 特開昭56 - 53663号公報；(7) 特開昭56 - 53662号公報；(8) 特開昭58 - 23680号公報；(9) 米国特許第4705557号明細書；(10) PCT国際公開W085/01637号公報；(11) PCT国際公開W086/02642号公報；(12) 英国特許第2230261号公報；(13) 特開平3 - 106865号公報；(14) ドイツ特許第4437049号公報；(15) ドイツ特許第4435476号公報；(16) ドイツ特許第4431219号公報；(17) 米国特許第5035740号明細書；(18) 特開平3 - 181472号公報；(19) ドイツ特許第3920414号公報；(20) 特開平3 - 17070号公報；(21) 南アフリカ特許第8805308号公報；(22) 特開昭64 - 29368号公報；(23) 特開昭63 - 255271号公報；(24) 特開昭52 - 118471号公報に示される。

しかしながら、上記の文献(1)～(24)には、1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体の4位にカルバモイル基を有する化合物は記載されていない。

さらに、テトラゾリノン誘導体としては、次の文献(25)～(50)に記載される化合物が知られている。

(25) 特開昭62 - 12767号公報には、下記の一般式(E)で示される化合物が記載されている。

一般式(E)



(式中、Rはシクロアルキル基、フェニル基、ナフチル基などを示し、R₁、R₂は同一又は相異なり、C₁～C₆ - アルキル基、C₅～C₆ - アルケニル基、C₅～C₆ - シクロアルキル基、C₇～C₉ - アラルキル基を示すか、あるいはハロゲン原子、C₁～C₆ - アルキル基またはC₁～C₆ - ハロアルキル基又はC₁～C₆ - アルコキシ基などで置換されてもよいフェニル基を示す)で表される化合物。

(26) 特開昭60 - 146879号公報；(27) 特開平5 - 331154号公報；(28) 特開平5 - 339249号公報；(29) 特開平5 - 331153号公報；(30) 特開平6 - 306061号公報；(31) 特開平6 - 199818号公報；(32) 特開平7 - 258230号公報；(33) 特開平8 - 81459号公報；(34) 特開平8 - 99975号公報；(35) 特開平8 - 119947号公報；(36) 特開平8 - 119948号公報；(37) 特開平8 - 119950号公報；(38) 特開平8 - 119151号公報；(39) 特開平8 - 225547号公報；(40) 特開平8 - 311048号公報；(41) 特開平8 - 259549号公報；(42) 米国特許第4830661号明細書；(43) 米国特許第4956469号明細書；(44) 米国特許第5003075号明細書；(45) 米国特許第5019152号明細書；(46) ポルトガル特許101563号明細書；(47) 特開平8 - 119949号公報；(48) 特開平8 - 259548号公報；(49) 米国特許第5136868号明細書；(50) PCT国際公開W085/01939号に示されるテトラゾリノン誘導体。

除草剤の開発においては、作物すなわち有用な栽培植物と雑草との間の除草剤に対する感

10

20

30

40

50

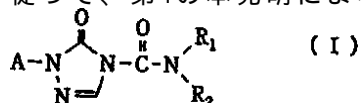
受性の点で差異があることなどに基づいて選択的殺草活性を有する新しい除草活性化合物を創製することは重要な課題である。ある種の除草活性化合物は、それが高い除草効果を示しても、作物に薬害を与えるならば除草剤としては満足に使用できる化合物とは言い難い。従ってこのような欠点のない新しい除草剤の開発が望まれている。これらの点で、前記した既知の化合物である1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体ならびにテトラゾリノン誘導体は、必ずしも満足できる除草剤ではない。従って、本発明の目的は、これらの既知の除草性化合物に代わり、優れた除草活性のみならず作物に対して極めて低い植物毒性を示して除草剤として用いるのに安全性をも有する新規な1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体を提供することにあり、またそれを含有する除草剤を提供することにある。

10

発明の開示

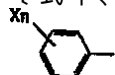
本発明者は、上記の目的を達成するために広く研究を行った。その結果、これまでに知られていない数多くの新規な1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体の合成に成功した。また、それらの除草活性とその他の有用性について鋭意検討した。その結果、驚くべきことに、後記の一般式(1)で示される新規な1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は有用な栽培植物すなわち作物に薬害を与えることがなく、また低施用量で施用しても優れた除草活性を示すことを見いだした。これらの知見に基づいて本発明は完成されるに至った。

従って、第1の本発明によれば、次の一般式(1)



20

[式中、(i) Aは式



(但しXは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、メチルチオ基、メチルスルフィニル基、メチルスルホニル基、フェノキシ基、アセチルアミノ基、又はトリフルオロアセチルアミノ基であり、nは0又は1~5の整数である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基であるか、あるいは(ii) Aは式

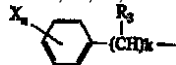
30



1-のナフチル基又は式



の5,6,7,8-テトラヒドロ-1-ナフチル基であるか、あるいは(iii) Aは式



40

(但しXおよびnは前記と同じ意味を有し、R₃は水素原子又はメチル基であり、kは1~2の整数を示す)で示される非置換の又は置換されたベンジル基又はフェネチル基であり；さらにR₁は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は低級シクロアルキル基であり、R₂は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式



(但しmは0又は1~5の整数、Yは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基あるいは式

50



(但しZは水素原子又は塩素原子である)で示される非置換の又は置換されたピリジル基であるが、但しAが非置換または置換フェニル基である場合にR₁とR₂とが同時に低級アルキル基であることは除外されるで表される1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体が提供される。

本発明による一般式(1)の新規な1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は、1,2,4-トリアゾール-5-オン環の1位が非置換の又は置換されたフェニル基あるいは1-ナフチル基あるいはアラルキル基で置換されており且つその4位がN,N-ジ置換カルバモイル基で置換されている点で特徴的な化学構造を有するものである。

前記一般式(1)の誘導体において、R₁、R₂、X、およびYの定義において用いる用語「低級アルキル基」とは、例えば、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、s-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、イソペンチル、2-メチルブチル、ネオペンチル、n-ヘキシル、4-メチルペンチル、3-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3,3-ジメチルブチル、1,1-ジメチルブチル、1,3-ジメチルブチル、2,3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、1-エチル-2-メチル-プロピル、1-メチル-1-エチルプロピル、1-メチル-2-エチルプロピル、2-メチル-1-エチルプロピル又は2-メチル-2-エチルプロピル基のような、炭素数1~6の直鎖状又は分岐状のアルキル基を意味する。

前記一般式(1)に示されるR₁の定義において用いる用語「低級アルケニル基」は、例えば、ビニル、1-プロペニル、2-プロペニル、1-メチル-2-プロペニル、2-メチル-2-プロペニル、2-エチル-2-プロペニル、2-ブテニル、1-メチル-2-ブテニル、2-メチル-2-ブテニル、1-エチル-2-ブテニル、3-ブテニル、2-ペンテニル、3-ペンテニル、4-ペンテニル、2-ヘキセニル、3-ヘキセニル又は4-ヘキセニルのような、炭素数2~6個の直鎖状又は分岐状のアルケニル基を意味する。

前記一般式(1)に示されるR₁の定義において用いる用語「低級アルキニル基」とは、例えば、2-プロピニル、1-メチル-2-プロピニル、2-ブチニル、1-メチル-2-ブチニル、1-エチル-2-ブチニル、3-ブチニル、2-メチル-3-ブチニル、2-ペンチニル、4-ペンチニル、2-ヘキシニル、3-ヘキシニル、4-ヘキシニル又は5-ヘキシニル基のような、炭素数3~6個の直鎖状又は分岐状のアルキニル基を意味する。

前記一般式(1)に示されるR₁及びR₂の定義において用いる用語「低級シクロアルキル基」とは、例えば、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、2-メチルシクロプロピル、2-メチルシクロペンチル又は2-メチルシクロヘキシル基のような、分岐鎖を持ってもよい炭素数3~7のシクロアルキル基を意味する。

前記一般式(1)に示されるX及びYの定義に言われるハロゲン原子とは、塩素、臭素、フッ素又は沃素原子を意味する。

前記一般式(1)に示されるX及びYの定義において用いる用語「低級ハロアルキル基」とは、例えば、トリフルオロメチル、クロルメチル、ブロムメチル、ジクロルメチル、ジフルオロメチル、トリクロルメチル、2-クロルエチル、2-ブロムエチル、1,1-ジフルオロエチル、2,2,2-トリフルオロエチル、3-クロルプロピル又は3-ヨードプロピル基のような、塩素、臭素、フッ素、沃素のようなハロゲン原子1個又は複数が置換基として結合した低級アルキル基を示す。

前記一般式(1)に示されるX及びYの定義において用いる用語「低級アルコキシ基」とは、例えば、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキシ、s-ブトキシ、t-ブトキシ、n-ペンチルオキシ、イソペンチルオキシ又はn-ヘキシルオキシ基のような、炭素数1~6個の直鎖状又は分岐状のアルコキシ基を意味する。

前記一般式(1)に示されるX及びYの定義において用いる用語「低級ハロアルコキシ基」とは、例えば、ジフルオロメトキシ、トリフルオロメトキシ、2,2,2-トリフルオロエトキシ基のような炭素数1~6個のハロアルコキシ基を意味する。

前記一般式(1)に示されるR₂の定義において用いる用語「ベンジル基」のベンゼン環上

10

20

30

40

50

にハロゲン原子で置換されてもよいベンジル基とは、例えば、ベンジル基、あるいは2-クロロベンジル基、3-クロロベンジル基、4-クロロベンジル基、2-フルオロベンジル基、3-フルオロベンジル基又は4-フルオロベンジル基のようなハロベンジル基を意味する。

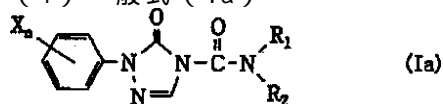
前記一般式(1)に示される R_2 の定義において用いる用語「非置換の又は置換されたピリジル基」とは、例えば、2-ピリジル基、4-ピリジル基、5-クロロ-2-ピリジル基及びその他を意味する。

前記の一般式(1)で表される1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は、 R_1 が低級アルキル基であり、 R_2 がモノ-ハロ置換あるいはジ-ハロ置換フェニル基であり、Xがハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、nが0又は1~2の整数である一般式(1)による1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体が好ましい。また一般式(1)において R_1 が低級アルキル基であり、 R_2 が低級シクロアルキル基であり、Xがハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、nが0又は1~2の整数である一般式(1)による1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体が好ましい。

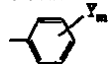
さらに一般式(1)において R_1 がイソプロピル基であり、 R_2 がモノ-ハロ置換あるいはジ-フルオロ置換フェニル基であり、Xがハロゲン原子又は低級アルキル基であり、nが0又は1~2の整数である一般式(1)による1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体が特に好ましい。

第1の本発明による一般式(1)の1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は、下記の3群の誘導体、すなわち下記の一般式(1a)、(1b)および(1c)の誘導体に大別される。

(1) 一般式(1a)



〔式中、Xは、一般式(1)で定義されたと同じ意味であり、すなわちXは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、メチルチオ基、メチルスルフィニル基、メチルスルホニル基、フェノキシ基、アセチルアミノ基又はトリフルオロアセチルアミノ基であり、nは0又は1~5の整数であり、 R_1 及び R_2 は一般式(1)で定義されたと同じ意味であり、すなわち R_1 は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は低級シクロアルキル基であり、また R_2 は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式

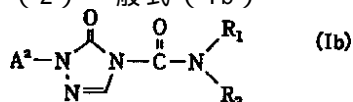


(但し、mは0又は1~5の整数、Yは同一であるか又は相異なってもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基、あるいは式



(但しZは水素原子又は塩素原子を示す)で示される非置換の又は置換されたピリジル基であるが、但し R_1 と R_2 とが同時に低級アルキル基であることは除外される)で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体。

(2) 一般式(1b)



〔式中、 A^a は式

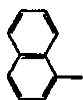
10

20

30

40

50



の1-ナフチル基又は式



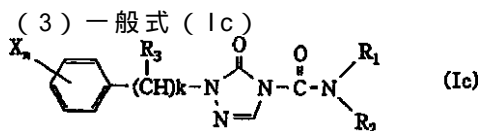
の5,6,7,8-テトラヒドロ-1-ナフチル基であり、 R_1 及び R_2 は一般式(1)に定義された
と同じ意味であり、すなわち R_1 は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基
又は低級シクロアルキル基であり、また R_2 は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式



(但し m は0又は1~5の整数、 Y は同一であるか又は相異なっているもよく、ハロゲン原子
、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基又は
シアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基のベン
ゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基、あるいは式



(但し Z は水素原子又は塩素原子を示す)で示される非置換の又は置換されたピリジル基
である)で表される1-ナフチル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体。



(式中、 X は、一般式(1)で定義されたと同じ意味であり、すなわち X は同一であるか又は
相異なっているもよく、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコ
キシ基、低級ハロアルコキシ基、シアノ基、ニトロ基、メチルチオ基、メチルスルフィ
ニル基、メチルスルホニル基、フェノキシ基、アセチルアミノ基又はトリフルオロアセチ
ルアミノ基であり、 n は0又は1~5の整数であり、 R_1 及び R_2 は一般式(1)で定義されたと
同じ意味であり、すなわち R_1 は低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルキニル基又は
低級シクロアルキル基であり、また R_2 は低級アルキル基、低級シクロアルキル基、式

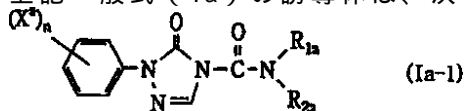


(但し、 m は0又は1~5の整数、 Y は同一であるか又は相異なっているもよく、ハロゲン原
子、低級アルキル基、低級ハロアルキル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルコキシ基
又はシアノ基である)で示される非置換の又は置換されたフェニル基、又はベンジル基の
ベンゼン環上にハロゲン原子で置換されていてもよいベンジル基、あるいは式



(但し Z は水素原子又は塩素原子を示す)で示される非置換の又は置換されたピリジル基
であり、 R_3 は水素原子又はメチル基であり、 k は1又は2の整数である)で表される1-ア
ルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体。

上記一般式(1a)の誘導体は、次の一般式(1a-1)



(式中、 R_{1a} が低級アルキル基であり、 R_{2a} がモノ-ハロ置換あるいはジ-ハロ置換フェ
ニル基であり、 X^a がハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、 n が0
又は1~2の整数である)で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4

10

20

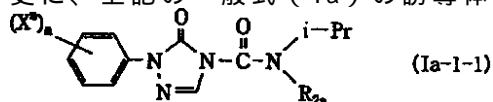
30

40

50

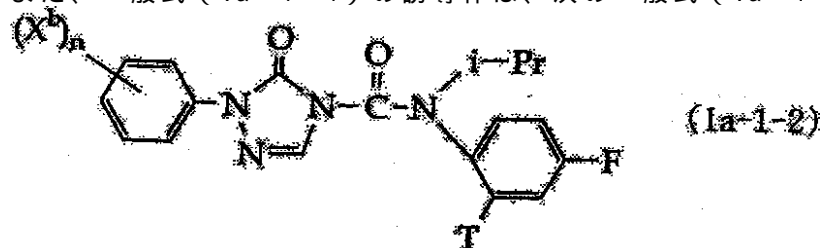
- トリアゾール - 5 - オン誘導体であるのが好ましい。

更に、上記の一般式 (Ia) の誘導体は、次の一般式 (Ia-1-1)



〔式中、i-Prはイソプロピル基であり、R_{2a}がモノ - ハロ - 置換あるいはジ - ハロ - 置換フェニル基であり、X^aがハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、nが0又は1~2の整数である〕で表される1 - フェニル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体であるのが好ましい。

また、一般式 (Ia-1-1) の誘導体は、次の一般式 (Ia-1-2)



〔式中、i-Prはイソプロピル基であり、Tは水素原子又はフッ素原子であり、X^bは同じでも異なってもよく、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、メチル基、エチル基又はトリフルオロメチル基であり、nは0又は1~2の整数である〕で表される1 - フェニル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体であることができる。

第1の本発明による一般式 (Ia) の誘導体に包含される前記一般式 (Ia-1-2) の1 - フェニル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの代表的な具体例には後記の表1aに示された化合物がある。好ましい具体例化合物の若干例には、下記に列記した一連の化合物がある。

(1) 1 - フェニル - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.4又は8)

(2) 1 - (2 - クロロフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.38又は35)

(3) 1 - (3 - クロロフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.75又は76)

(4) 1 - (2 - フルオロフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.165又は166)

(5) 1 - (2,4 - ジフルオロフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.184又は181)

(6) 1 - (2 - フルオロ - 4 - クロロフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.322)

(7) 1 - (2 - メチルフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.332又は331)

(8) 1 - (2,4 - ジメチルフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の表1aの化合物No.581又は582)

(9) 1 - (2 - クロロ - 4 - メチルフェニル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 4 - フルオロ又は2,4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (後記の

10

20

30

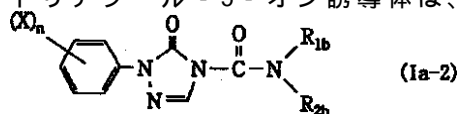
40

50

表1aの化合物No.634又は633)。

また、後記の表1aに示された化合物No.231; 234; 269; 270; 281; 284; 576; 577; 587; 591; 592; 596; 597; 635; 636; 637; 638; 639及び640の化合物も、好ましい具体例化合物である。

さらに、前記の一般式(1a)の1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は、好ましくは、次の一般式(1a-2)



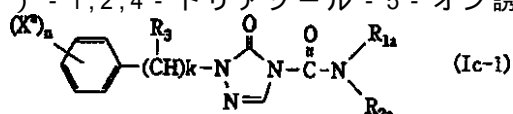
〔式中、X及びnは一般式(1)又は(1a)で定義されたと同じ意味であり、R_{1b}は低級アルキル基であり、R_{2b}は低級シクロアルキル基である〕で表される1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体であることもできる。

一般式(1a-2)の誘導体は、Xが塩素原子、フッ素原子、メチル基、エチル基、トリオルオロメチル基又はトリフルオロメチルオキシ基であり、nは0又は1~2の整数であり、R_{1b}はメチル基、エチル基、n-プロピル基又はイソプロピル基であり、R_{2b}がシクロプロピル基、シクロペンチル基又はシクロヘキシル基である一般式(1a-2)の1-フェニル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オンであることが特に好適である。

前記一般式(1b)の1-ナフチル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は、一般式(1b)におけるR₁が低級アルキル基、特にイソプロピル基であり、R₂がモノ-ハロ置換あるいはジ-ハロ置換フェニル基、特に4-フルオロ又は2,4-ジフルオロフェニル基であり、Xがハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、nが0又は1~2の整数であるのが好ましい。

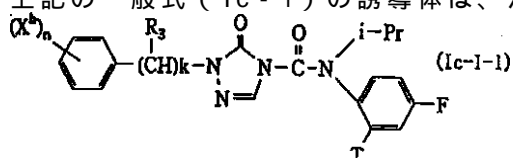
この一般式(1b)の誘導体の代表的な具体例には、後記の表1bで示された化合物No.649~652の化合物がある。特に、1-(5,6,7,8-テトラヒドロ-1-ナフチル)-4-(N-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(化合物No.650)が好適な化合物である。

第1の本発明による前記の一般式(1c)の1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体は、好ましくは、次の一般式(1c-1)



〔式中、R_{1a}が低級アルキル基であり、R_{2a}がモノ-ハロ置換あるいはジ-ハロ置換フェニル基であり、X^aがハロゲン原子、低級アルキル基又は低級ハロアルキル基であり、nが0又は1~2の整数であり、kは1又は2の整数である〕で表される誘導体であることができる。

上記の一般式(1c-1)の誘導体は、次の一般式(1c-1-1)



〔式中、i-Prはイソプロピル基であり、Tは水素原子又はフッ素原子であり、X^bは同じでも異なってもよく、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、メチル基、エチル基又はトリフルオロメチル基であり、nが0又は1~2の整数であり、R₃は水素原子又はメチル基であり、kは1又は2の整数である〕で表される1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体であるのが特に好ましい。

一般式(1c)の1-アラルキル-4-(N,N-ジ置換カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体の代表的な具体例化合物には、後記の表1cで示される化合物No.653~684の化合物がある。特に、好ましい例は、1-(2,3-ジクロロベンジル)-4-(N-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(化合物No.662)および1-(2-クロロ- -メチルベンジル)-4-(N-イソプロピル

10

20

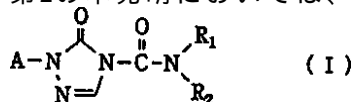
30

40

50

- N - 2 , 4 - ジフルオロフェニル - カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (化合物No.675) である。

第2の本発明においては、次の一般式 (I)



〔式中、A、R₁及びR₂は前記に定義されたと同じ意味である〕で表される1 - 置換 - 4 - カルバモイル - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体を有効成分として含有する除草剤組成物が提供される。

第2の本発明による除草剤組成物は、前記に定義された一般式 (Ia) の1 - フェニル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体を有効成分として含有することができる。また、前記に定義された一般式 (Ib) の1 - ナフチル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体を有効成分として含有することもできる。

更に、第2の本発明の除草剤組成物は、前記に定義された一般式 (Ic) の1 - アラルキル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体を有効成分として含有することもできる。

発明を実施するための最良の形態

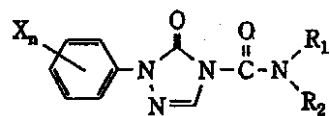
次に、第1の本発明による一般式 (Ia) の1 - フェニル - 4 - カルバモイル - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの代表的な具体例を後記の表1aに示す。また一般式 (Ib) の1 - ナフチル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの代表的な具体例を後記の表1bに示し、さらに一般式 (Ic) の1 - アラルキル - 4 - (N,N - ジ置換カルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの代表的な具体例を後記の表1cに示す。これら表1a、表1bおよび表1cに示した化合物No.は、以下の実施例および試験例でも参照される。

表1aにおいてX_nがHと表示された化合物は、式 (I) に示されたフェニル基上に置換基 (X) がないこと、すなわちn = 0であるものを示す。また、表1a ~ 表1cにおいて、Meはメチル基、Etはエチル基、Prはプロピル基、Buはブチル基を意味する。例えば、i - Prはイソプロピル基、n - Prはn - プロピル基、i - Buはイソブチル基、n - Buはn - ブチル基、sec - Buは第2級ブチル基を示す。

なお、一般式 (Ia) におけるR₁とR₂とが同時に低級アルキル基である場合の化合物の例として、表1aに示される化合物No. 13, 15, 65, 71, 115, 211, 261, 311, 361, 411, 461, 511, 561, 575, 580, 590, 605, 610, 620の化合物は、第1の本発明の範囲から除外される。

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
1	H	i-Pr		mp144-145°C
2	H	i-Pr		
3	H	i-Pr		
4	H	i-Pr		mp142-143°C
5	H	i-Pr		
6	H	i-Pr		
7	H	i-Pr		
8	H	i-Pr		mp104-106°C
9	H	i-Pr		
10	H	i-Pr		
11	H	i-Pr		
12	H	i-Pr		

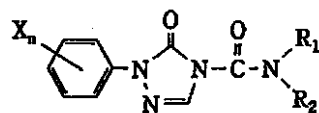
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
13	H	i-Pr	i-Pr	mp174-175℃
14	H	i-Pr		mp136-137℃
15	H	Et	Et	
16	H	Et		mp123-124℃
17	H	n-Pr		mp79-80℃
18	H	-CH ₂ CH=CH ₂		mp101-102℃
19	H	-CH ₂ C≡CH		
20	H	i-Bu		
21	H	i-Pr		
22	H	i-Pr		
23	H	i-Pr		
24	H	i-Pr		
25	2-Cl	Me		mp141-143℃

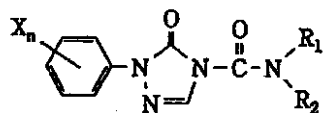
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
26	2-Cl	Et		mp110-111℃
27	2-Cl	n-Pr		mp94-95℃
28	2-Cl	n-Bu		mp90-91℃
29	2-Cl	i-Bu		mp112-114℃
30	2-Cl	sec-Bu		mp88-89℃
31	2-Cl			mp90-91℃
32	2-Cl	-CH ₂ CH=CH ₂		mp105-106℃
33	2-Cl	-CH ₂ C≡CH		mp97-99℃
34	2-Cl	i-Pr		mp132-134℃
35	2-Cl	i-Pr		mp146-147℃
36	2-Cl	i-Pr		mp106-108℃

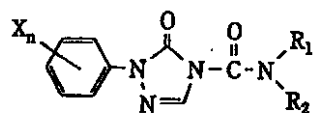
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
37	2-Cl	i-Pr		
38	2-Cl	i-Pr		mp118-120°C
39	2-Cl	i-Pr		mp125-127°C
40	2-Cl	i-Pr		mp134-135°C
41	2-Cl	i-Pr		m154-156°C
42	2-Cl	i-Pr		mp187-189°C
43	2-Cl	i-Pr		
44	2-Cl	i-Pr		mp164-166°C
45	2-Cl	i-Pr		mp80-82°C
46	2-Cl	i-Pr		
47	2-Cl	i-Pr		

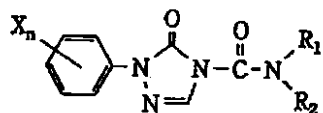
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
48	2-Cl	i-Pr		
49	2-Cl	i-Pr		
50	2-Cl	i-Pr		
51	2-Cl	i-Pr		
52	2-Cl	i-Pr		
53	2-Cl	i-Pr		
54	2-Cl	i-Pr		mp114-116°C
55	2-Cl	i-Pr		
56	2-Cl	i-Pr		
57	2-Cl	i-Pr		
58	2-Cl	i-Pr		
59	2-Cl	i-Pr		

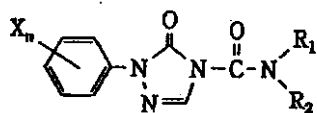
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
60	2-Cl	i-Pr		
61	2-Cl	i-Pr		
62	2-Cl	n-Pr		n_D^{20} 1.5556
63	2-Cl	$\begin{array}{c} \text{Me} \\ \\ -\text{CH}_2\text{C}=\text{CH}_2 \end{array}$	Et	n_D^{18} 1.5558
64	2-Cl			
65	2-Cl	Et	Et	mp 71-72°C
66	2-Cl	Et		mp 105-106°C
67	2-Cl	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$	Et	
68	2-Cl	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$	Et	
69	2-Cl	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		mp 83-85°C
70	2-Cl	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
71	2-Cl	i-Pr	i-Pr	mp 150-151°C
72	2-Cl	i-Pr	$-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_4-\text{F}$	n_D^{18} 1.5669
73	2-Cl	i-Pr		mp 125-127°C

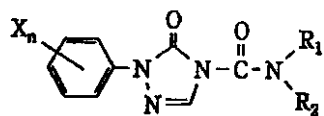
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
74	2-Cl	i-Pr		mp131-133°C
75	3-Cl	i-Pr		mp154-155°C
76	3-Cl	i-Pr		mp173-174°C
77	4-Cl	n-Pr		
78	4-Cl	n-Bu		
79	4-Cl	i-Bu		
80	4-Cl	sec-Bu		
81	4-Cl			
82	4-Cl	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		
83	4-Cl	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
84	4-Cl	i-Pr		

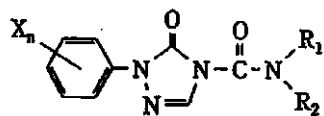
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



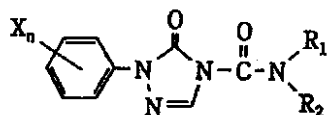
化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
85	4-Cl	i-Pr		mp206-208℃
86	4-Cl	i-Pr		
87	4-Cl	i-Pr		
88	4-Cl	i-Pr		mp181-183℃
89	4-Cl	i-Pr		
90	4-Cl	i-Pr		
91	4-Cl	i-Pr		
92	4-Cl	i-Pr		
93	4-Cl	i-Pr		
94	4-Cl	i-Pr		
95	4-Cl	i-Pr		

10

20

30

【表 1a】
一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
96	4-Cl	i-Pr		
97	4-Cl	i-Pr		
98	4-Cl	i-Pr		
99	4-Cl	i-Pr		
100	4-Cl	i-Pr		
101	4-Cl	i-Pr		
102	4-Cl	i-Pr		
103	4-Cl	i-Pr		
104	4-Cl	i-Pr		
105	4-Cl	i-Pr		
106	4-Cl	i-Pr		
107	4-Cl	i-Pr		

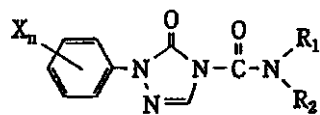
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
108	4-Cl	i-Pr		
109	4-Cl	i-Pr		
110	4-Cl	i-Pr		
111	4-Cl	i-Pr		
112	4-Cl			
113	4-Cl			
114	4-Cl			
115	4-Cl	Et	Et	
116	4-Cl	Et		
117	4-Cl	-CH ₂ CH=CH ₂	Et	
118	4-Cl	-CH ₂ C≡CH	Et	
119	4-Cl	-CH ₂ CH=CH ₂		
120	4-Cl	-CH ₂ C≡CH		
121	4-Cl	i-Pr		

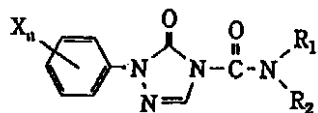
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
122	4-Cl	i-Pr		
123	4-Cl	i-Pr		
124	4-Cl	i-Pr		
125	2-Br	Me		
126	2-Br	Et		
127	2-Br	n-Pr		
128	2-Br	n-Bu		
129	2-Br	i-Bu		
130	2-Br	sec-Bu		
131	2-Br			
132	2-Br	-CH ₂ CH=CH ₂		

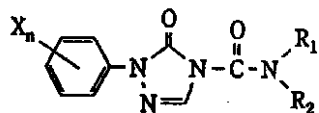
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
133	2-Br	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
134	2-Br	i-Pr		
135	2-Br	i-Pr		mp146-147°C
136	2-Br	i-Pr		
137	2-Br	i-Pr		
138	2-Br	i-Pr		mp104-105°C
139	2-Br	i-Pr		
140	2-Br	i-Pr		
141	2-Br	i-Pr		
142	2-Br	i-Pr		
143	2-Br	i-Pr		

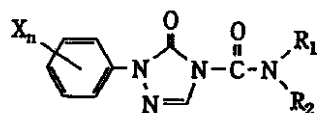
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
144	2-Br	i-Pr		
145	2-Br	i-Pr		
146	2-Br	i-Pr		
147	2-Br	i-Pr		
148	2-Br	i-Pr		
149	2-Br	i-Pr		
150	2-Br	i-Pr		
151	2-Br	i-Pr		
152	2-Br	i-Pr		
153	2-Br	i-Pr		
154	2-Br	i-Pr		

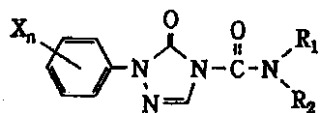
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
155	2-Br	i-Pr		
156	2-Br	i-Pr		
157	2-Br	i-Pr		
158	2-Br	i-Pr		
159	2-Br	i-Pr		
160	2-Br	i-Pr		
161	2-Br	i-Pr		
162	2-Br			
163	2-Br			
164	2-F		Et	$\Pi_D^{18} 1.5414$
165	2-F	i-Pr		mp126-127℃
166	2-F	i-Pr		mp135-136℃
167	3-F	i-Pr		mp134-136℃

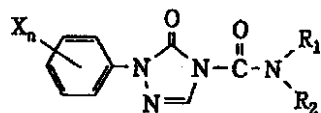
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
168	3-F	i-Pr		mp140-141℃
169	4-F	i-Pr		mp120-121℃
170	4-F	i-Pr		mp151-152℃
171	2,4-F ₂	Me		
172	2,4-F ₂	Et		
173	2,4-F ₂	n-Pr		
174	2,4-F ₂	n-Bu		
175	2,4-F ₂	i-Bu		
176	2,4-F ₂	sec-Bu		
177	2,4-F ₂			
178	2,4-F ₂	-CH ₂ CH=CH ₂		

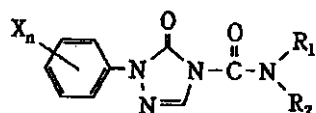
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
179	2,4- F_2	$-CH_2C\equiv CH$		
180	2,4- F_2	i-Pr		
181	2,4- F_2	i-Pr		mp166-167°C
182	2,4- F_2	i-Pr		
183	2,4- F_2	i-Pr		
184	2,4- F_2	i-Pr		mp142-143°C
185	2,4- F_2	i-Pr		
186	2,4- F_2	i-Pr		
187	2,4- F_2	i-Pr		
188	2,4- F_2	i-Pr		
189	2,4- F_2	i-Pr		

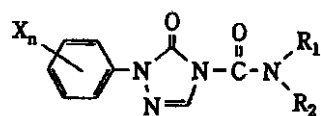
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
190	2,4-F ₂	i-Pr		
191	2,4-F ₂	i-Pr		
192	2,4-F ₂	i-Pr		
193	2,4-F ₂	i-Pr		
194	2,4-F ₂	i-Pr		
195	2,4-F ₂	i-Pr		
196	2,4-F ₂	i-Pr		
197	2,4-F ₂	i-Pr		
198	2,4-F ₂	i-Pr		
199	2,5-F ₂	i-Pr		mp105-107°C
200	2,5-F ₂	i-Pr		mp126-127°C
201	2,4-F ₂	i-Pr		

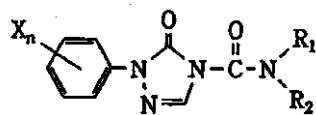
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
202	2,4- F_2	i-Pr		
203	2,4- F_2	i-Pr		
204	2,4- F_2	i-Pr		
205	2,4- F_2	i-Pr		
206	2,4- F_2	i-Pr		
207	2,4- F_2	i-Pr		
208	2,4- F_2			
209	2,4- F_2			
210	2,4- F_2			
211	2,4- F_2	Et	Et	
212	2,4- F_2	Et		
213	2,4- F_2	$-CH_2CH=CH_2$	Et	
214	2,4- F_2	$-CH_2C\equiv CH$	Et	

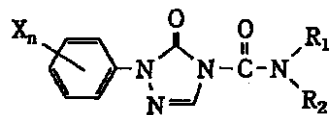
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
215	2,4-F ₂	-CH ₂ CH=CH ₂		
216	2,4-F ₂	-CH ₂ C≡CH		
217	2,4-F ₂	i-Pr	-CH ₂ -	
218	2,4-F ₂	i-Pr	-CH ₂ -	
219	2,4-F ₂	i-Pr		
220	2,4-F ₂	i-Pr		
221	2,3-Cl ₂	i-Pr		mp107-108°C
222	2,3-Cl ₂	i-Pr		mp103-104°C
223	2,4-Cl ₂	n-Pr		
224	2,4-Cl ₂	n-Bu		
225	2,4-Cl ₂	i-Bu		
226	2,4-Cl ₂	sec-Bu		

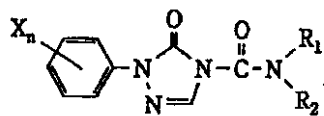
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
227	2,4-Cl ₂			
228	2,4-Cl ₂	-CH ₂ CH=CH ₂		
229	2,4-Cl ₂	-CH ₂ C≡CH		
230	2,4-Cl ₂	i-Pr		
231	2,4-Cl ₂	i-Pr		mp129-131°C
232	2,4-Cl ₂	i-Pr		
233	2,4-Cl ₂	i-Pr		
234	2,4-Cl ₂	i-Pr		mp170-172°C
235	2,4-Cl ₂	i-Pr		
236	2,4-Cl ₂	i-Pr		
237	2,4-Cl ₂	i-Pr		

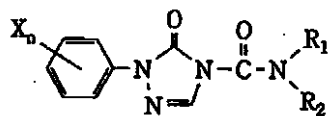
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
238	2,4-Cl ₂	i-Pr		
239	2,4-Cl ₂	i-Pr		
240	2,4-Cl ₂	i-Pr		
241	2,4-Cl ₂	i-Pr		
242	2,4-Cl ₂	i-Pr		
243	2,4-Cl ₂	i-Pr		
244	2,4-Cl ₂	i-Pr		
245	2,4-Cl ₂	i-Pr		
246	2,4-Cl ₂	i-Pr		
247	2,4-Cl ₂	i-Pr		
248	2,4-Cl ₂	i-Pr		

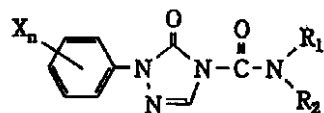
10

20

30

[表 1a]

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
249	2,4-Cl ₂	i-Pr		
250	2,4-Cl ₂	i-Pr		
251	2,4-Cl ₂	i-Pr		
252	2,4-Cl ₂	i-Pr		
253	2,4-Cl ₂	i-Pr		
254	2,4-Cl ₂	i-Pr		
255	2,4-Cl ₂	i-Pr		
256	2,4-Cl ₂	i-Pr		
257	2,4-Cl ₂	i-Pr		
258	2,4-Cl ₂			
259	2,4-Cl ₂			
260	2,4-Cl ₂			

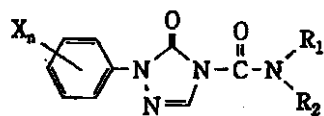
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
261	2,4-Cl ₂	Et	Et	
262	2,4-Cl ₂	Et		
263	2,4-Cl ₂	-CH ₂ CH=CH ₂	Et	
264	2,4-Cl ₂	-CH ₂ C≡CH	Et	
265	2,4-Cl ₂	-CH ₂ CH=CH ₂		
266	2,4-Cl ₂	-CH ₂ C≡CH		
267	2,4-Cl ₂	i-Pr	-CH ₂ -	
268	2,4-Cl ₂	i-Pr	-CH ₂ -	
269	2,5-Cl ₂	i-Pr		mp163-164°C
270	2,5-Cl ₂	i-Pr		mp149-150°C
271	2,6-Cl ₂	Me		
272	2,6-Cl ₂	Et		
273	2,6-Cl ₂	n-Pr		

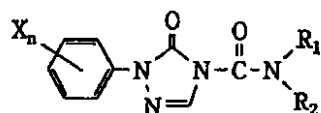
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
274	2,6-Cl ₂	n-Bu		
275	2,6-Cl ₂	i-Bu		
276	2,6-Cl ₂	sec-Bu		
277	2,6-Cl ₂			
278	2,6-Cl ₂	-CH ₂ CH=CH ₂		
279	2,6-Cl ₂	-CH ₂ C≡CH		
280	2,6-Cl ₂	i-Pr		
281	2,6-Cl ₂	i-Pr		mp129-131°C
282	2,6-Cl ₂	i-Pr		
283	2,6-Cl ₂	i-Pr		
284	2,6-Cl ₂	i-Pr		mp223-225°C

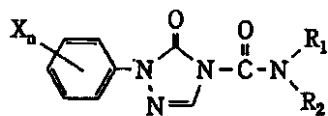
10

20

30

[表 1a]

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
285	2,6-Cl ₂	i-Pr		
286	2,6-Cl ₂	i-Pr		
287	2,6-Cl ₂	i-Pr		
288	2,6-Cl ₂	i-Pr		
289	2,6-Cl ₂	i-Pr		
290	2,6-Cl ₂	i-Pr		
291	2,6-Cl ₂	i-Pr		
292	2,6-Cl ₂	i-Pr		
293	2,6-Cl ₂	i-Pr		
294	2,6-Cl ₂	i-Pr		
295	2,6-Cl ₂	i-Pr		

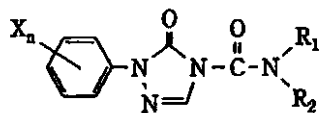
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
296	2,6-Cl ₂	i-Pr		
297	2,6-Cl ₂	i-Pr		
298	2,6-Cl ₂	i-Pr		
299	2,6-Cl ₂	i-Pr		
300	2,6-Cl ₂	i-Pr		
301	2,6-Cl ₂	i-Pr		
302	2,6-Cl ₂	i-Pr		
303	2,6-Cl ₂	i-Pr		
304	2,6-Cl ₂	i-Pr		
305	2,6-Cl ₂	i-Pr		
306	2,6-Cl ₂	i-Pr		
307	2,6-Cl ₂	i-Pr		
308	2,6-Cl ₂			

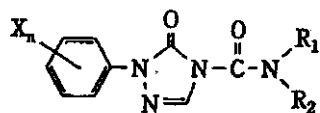
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
309	2,6-Cl ₂			
310	2,6-Cl ₂			
311	2,6-Cl ₂	Et	Et	
312	2,6-Cl ₂	Et		
313	2,6-Cl ₂	-CH ₂ CH=CH ₂	Et	
314	2,6-Cl ₂	-CH ₂ C≡CH	Et	
315	2,6-Cl ₂	-CH ₂ CH=CH ₂		
316	2,6-Cl ₂	-CH ₂ C≡CH		
317	3,5-Cl ₂	i-Pr		mp179-181°C
318	3,5-Cl ₂	i-Pr		mp124-126°C
319	3,4-Cl ₂	i-Pr		mp146-147°C
320	3,4-Cl ₂	i-Pr		mp176-177°C
321	2-F, 4-Cl	i-Pr		mp171-172°C

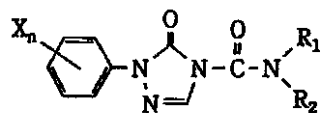
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :

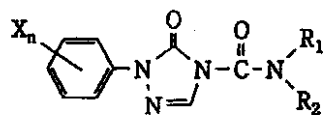








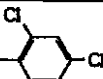
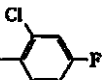
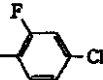
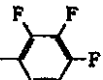
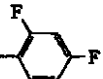
化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
322	2-F,4-Cl	i-Pr		mp199-200°C
323	2-Cl,4-F	i-Pr		mp121-122°C
324	2-Cl,4-F	i-Pr		mp122-124°C
325	2-Me	i-Bu		
326	2-Me	sec-Bu		
327	2-Me			
328	2-Me	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		
329	2-Me	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
330	2-Me	i-Pr		
331	2-Me	i-Pr		mp106-107°C

10

20

一般式 (Ia) :

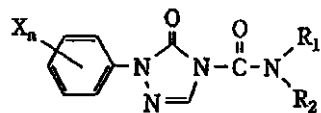


化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
332	2-Me	i-Pr		mp96-98°C
333	2-Me	i-Pr		
334	2-Me	i-Pr		mp94-95°C
335	2-Me	i-Pr		
336	2-Me	i-Pr		
337	2-Me	i-Pr		
338	2-Me	i-Pr		
339	2-Me	i-Pr		
340	2-Me	i-Pr		
341	2-Me	i-Pr		
342	2-Me	i-Pr		

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
343	2-Me	i-Pr		
344	2-Me	i-Pr		
345	2-Me	i-Pr		
346	2-Me	i-Pr		
347	2-Me	i-Pr		
348	2-Me	i-Pr		
349	2-Me	i-Pr		
350	2-Me	i-Pr		
351	2-Me	i-Pr		
352	2-Me	i-Pr		
353	2-Me	i-Pr		
354	2-Me	i-Pr		

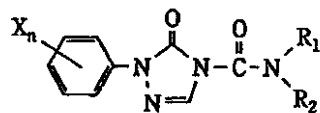
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
355	2-Me	i-Pr		
356	2-Me	i-Pr		
357	2-Me	i-Pr		
358	2-Me			
359	2-Me			
360	2-Me	n-Pr		$n_D^{20} 1.5511$
361	2-Me	Et	Et	
362	2-Me	i-Pr		mp 116–117°C
363	2-Me	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$	Et	
364	2-Me	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$	Et	
365	2-Me	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		mp 72–74°C
366	2-Me	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
367	2-Me	i-Pr		
368	2-Me	i-Pr		

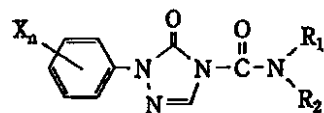
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
369	2-Me	i-Pr		
370	2-Me	i-Pr		
371	3-Me	Me		
372	3-Me	Et		
373	3-Me	n-Pr		
374	3-Me	n-Bu		
375	3-Me	i-Bu		
376	3-Me	sec-Bu		
377	3-Me			
378	3-Me	-CH ₂ CH=CH ₂		
379	3-Me	-CH ₂ C≡CH		

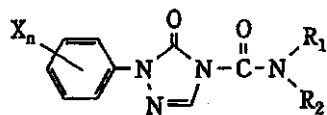
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
380	3-Me	i-Pr		
381	3-Me	i-Pr		mp133-134°C
382	3-Me	i-Pr		
383	3-Me	i-Pr		
384	3-Me	i-Pr		mp150-151°C
385	3-Me	i-Pr		
386	3-Me	i-Pr		
387	3-Me	i-Pr		
388	3-Me	i-Pr		
389	3-Me	i-Pr		
390	3-Me	i-Pr		

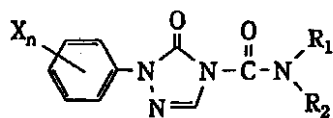
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
391	3-Me	i-Pr		
392	3-Me	i-Pr		
393	3-Me	i-Pr		
394	3-Me	i-Pr		
395	3-Me	i-Pr		
396	3-Me	i-Pr		
397	3-Me	i-Pr		
398	3-Me	i-Pr		
399	3-Me	i-Pr		
400	3-Me	i-Pr		
401	3-Me	i-Pr		
402	3-Me	i-Pr		

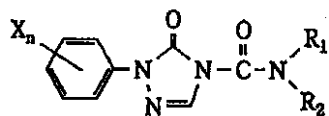
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
403	3-Me	i-Pr		
404	3-Me	i-Pr		
405	3-Me	i-Pr		
406	3-Me	i-Pr		
407	3-Me	i-Pr		
408	3-Me			
409	3-Me			
410	3-Me			
411	3-Me	Et	Et	
412	3-Me	Et		
413	3-Me	-CH ₂ CH=CH ₂	Et	
414	3-Me	-CH ₂ C≡CH	Et	
415	3-Me	-CH ₂ CH=CH ₂		

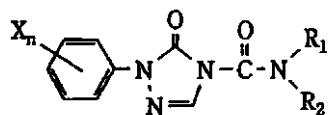
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
416	3-Me	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
417	3-Me	i-Pr	$-\text{CH}_2-$	
418	3-Me	i-Pr	$-\text{CH}_2-$	
419	3-Me	i-Pr		
420	3-Me	i-Pr		
421	4-Me	Me		
422	4-Me	Et		
423	4-Me	n-Pr		
424	4-Me	n-Bu		
425	4-Me	i-Bu		
426	4-Me	sec-Bu		
427	4-Me			

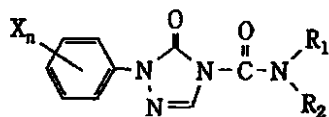
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
428	4-Me	-CH ₂ CH=CH ₂		
429	4-Me	-CH ₂ C≡CH		
430	4-Me	i-Pr		
431	4-Me	i-Pr		mp164-165°C
432	4-Me	i-Pr		
433	4-Me	i-Pr		
434	4-Me	i-Pr		mp153-155°C
435	4-Me	i-Pr		
436	4-Me	i-Pr		
437	4-Me	i-Pr		
438	4-Me	i-Pr		

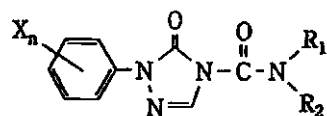
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
439	4-Me	i-Pr		
440	4-Me	i-Pr		
441	4-Me	i-Pr		
442	4-Me	i-Pr		
443	4-Me	i-Pr		
444	4-Me	i-Pr		
445	4-Me	i-Pr		
446	4-Me	i-Pr		
447	4-Me	i-Pr		
448	4-Me	i-Pr		
449	4-Me	i-Pr		

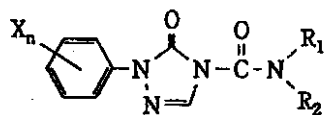
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
450	4-Me	i-Pr		
451	4-Me	i-Pr		
452	4-Me	i-Pr		
453	4-Me	i-Pr		
454	4-Me	i-Pr		
455	4-Me	i-Pr		
456	4-Me	i-Pr		
457	4-Me	i-Pr		
458	4-Me			
459	4-Me			
460	4-Me			
461	4-Me	Et	Et	

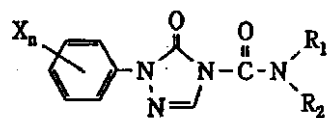
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
462	4-Me	Et		
463	4-Me	-CH ₂ CH=CH ₂	Et	
464	4-Me	-CH ₂ C≡CH	Et	
465	4-Me	-CH ₂ CH=CH ₂		
466	4-Me	-CH ₂ C≡CH		
467	4-Me	i-Pr	-CH ₂ -	
468	4-Me	i-Pr	-CH ₂ -	
469	4-Me	i-Pr		
470	4-Me	i-Pr		
471	2-Et	Me		
472	2-Et	Et		
473	2-Et	n-Pr		
474	2-Et	n-Bu		

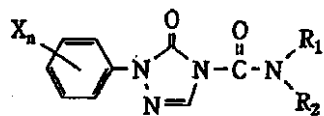
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
475	2-Et	i-Bu		
476	2-Et	sec-Bu		
477	2-Et			
478	2-Et	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		
479	2-Et	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
480	2-Et	i-Pr		
481	2-Et	i-Pr		mp66-68°C
482	2-Et	i-Pr		
483	2-Et	i-Pr		
484	2-Et	i-Pr		$n_D^{20} 1.5483$
485	2-Et	i-Pr		

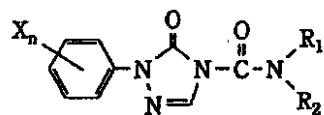
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
486	2-Et	i-Pr		
487	2-Et	i-Pr		
488	2-Et	i-Pr		
489	2-Et	i-Pr		
490	2-Et	i-Pr		
491	2-Et	i-Pr		
492	2-Et	i-Pr		
493	2-Et	i-Pr		
494	2-Et	i-Pr		
495	2-Et	i-Pr		
496	2-Et	i-Pr		

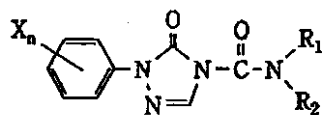
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
497	2-Et	i-Pr		
498	2-Et	i-Pr		
499	2-Et	i-Pr		
500	2-Et	i-Pr		
501	2-Et	i-Pr		
502	2-Et	i-Pr		
503	2-Et	i-Pr		
504	2-Et	i-Pr		
505	2-Et	i-Pr		
506	2-Et	i-Pr		
507	2-Et	i-Pr		
508	2-Et			
509	2-Et			

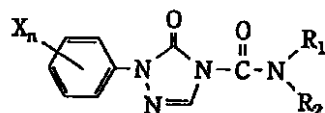
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
510	2-Et			
511	2-Et	Et	Et	
512	2-Et	Et		
513	2-Et	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$	Et	
514	2-Et	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$	Et	
515	2-Et	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		
516	2-Et	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
517	2-n-Pr	i-Pr		mp100-101°C
518	2-n-Pr	i-Pr		mp57-59°C
519	2-i-Pr	i-Pr		mp139-140°C
520	2-i-Pr	i-Pr		mp92-93°C
521	2-MeO	i-Pr		mp107-109°C
522	2-MeO	i-Pr		mp113-115°C

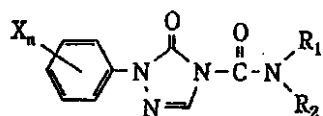
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
523	3-MeO	i-Pr		
524	3-MeO	i-Pr		mp150-151°C
525	4-MeO	i-Bu		
526	4-MeO	sec-Bu		
527	4-MeO			
528	4-MeO	-CH ₂ CH=CH ₂		
529	4-MeO	-CH ₂ C≡CH		
530	4-MeO	i-Pr		
531	4-MeO	i-Pr		mp148-149°C
532	4-MeO	i-Pr		
533	4-MeO	i-Pr		

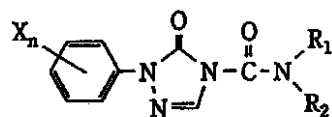
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
534	4-MeO	i-Pr		mp125-126°C
535	4-MeO	i-Pr		
536	4-MeO	i-Pr		
537	4-MeO	i-Pr		
538	4-MeO	i-Pr		
539	4-MeO	i-Pr		
540	4-MeO	i-Pr		
541	4-MeO	i-Pr		
542	4-MeO	i-Pr		
543	4-MeO	i-Pr		

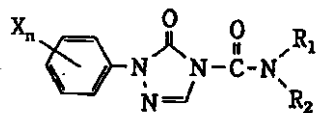
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
544	4-MeO	i-Pr		
545	4-MeO	i-Pr		
546	4-MeO	i-Pr		
547	4-MeO	i-Pr		
548	4-MeO	i-Pr		
549	4-MeO	i-Pr		
550	4-MeO	i-Pr		
551	4-MeO	i-Pr		
552	4-MeO	i-Pr		
553	4-MeO	i-Pr		
554	4-MeO	i-Pr		
555	4-MeO	i-Pr		

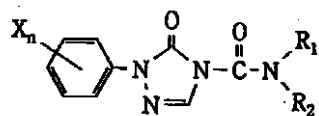
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
556	4-MeO	i-Pr		
557	4-MeO	i-Pr		
558	4-MeO			
559	4-MeO			
560	4-MeO			
561	4-MeO	Et	Et	
562	4-MeO	Et		
563	4-MeO	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$	Et	
564	4-MeO	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$	Et	
565	4-MeO	$-\text{CH}_2\text{CH}=\text{CH}_2$		
566	4-MeO	$-\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CH}$		
567	4-MeO	i-Pr		
568	4-MeO	i-Pr		
569	3,5-(MeO) ₂	i-Pr		

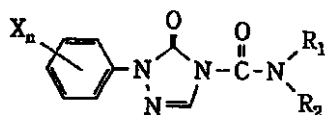
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
570	3,5-(MeO) ₂	i-Pr		mp99-100°C
571	2-Cl,6-Me	i-Pr		mp204-205°C
572	2-Cl,6-Me	i-Pr		mp94-96°C
573	2-Cl,6-Me	i-Pr		
574	2-Cl,6-Me	Et		
575	2-Cl,6-Me	Et	Et	
576	2,6-(Me) ₂	i-Pr		mp190-191°C
577	2,6-(Me) ₂	i-Pr		mp101-102°C
578	2,6-(Me) ₂	i-Pr		
579	2,6-(Me) ₂	Et		
580	2,6-(Me) ₂	Et	Et	
581	2,4-(Me) ₂	i-Pr		mp133-134°C
582	2,4-(Me) ₂	i-Pr		mp91-93°C

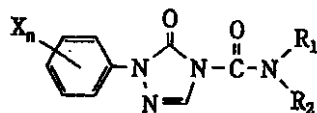
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
583	2,4-(Me) ₂	i-Pr		
584	2,4-(Me) ₂	Et		
585	2,4-(Me) ₂	Et	Et	
586	2,5-(Me) ₂	i-Pr		mp125-127°C
587	2,5-(Me) ₂	i-Pr		mp86-88°C
588	2,5-(Me) ₂	i-Pr		
589	2,5-(Me) ₂	Et		
590	2,5-(Me) ₂	Et	Et	
591	2,3-(Me) ₂	i-Pr		mp122-124°C
592	2,3-(Me) ₂	i-Pr		mp109-110°C
593	2,3-(Me) ₂	i-Pr		
594	2-Et,6-Me	i-Pr		mp115-117°C
595	2-Et,6-Me	i-Pr		mp97-99°C
596	2-CF ₃	i-Pr		mp129-130°C

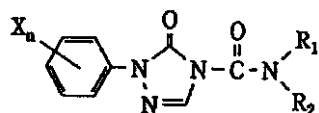
10

20

30

【表 1a】

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
597	2-CF ₃	i-Pr		mp106-107°C
598	2-CF ₃	i-Pr		
599	3-CF ₃	i-Pr		mp171-172°C
600	3-CF ₃	i-Pr		mp188-189°C
601	4-CF ₃	i-Pr		mp161-162°C
602	4-CF ₃	i-Pr		mp192-193°C
603	4-CF ₃	i-Pr		
604	4-CF ₃	Et		
605	4-CF ₃	Et	Et	
606	2-CHF ₂ O	i-Pr		
607	2-CHF ₂ O	i-Pr		
608	2-CHF ₂ O	i-Pr		
609	2-CHF ₂ O	Et		

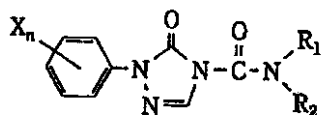
10

20

30

【表 1a】

一般式 (1a) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
610	2-CHF ₂ O	Et	Et	
611	2-CF ₃ O	i-Pr		mp91-92℃
612	2-CF ₃ O	i-Pr		mp80-82℃
613	2-CF ₃ O	i-Pr		
614	2-CF ₃ O	Et		
615	2-CF ₃ O	Et	Et	
616	2,4,6-(Me) ₃	i-Pr		
617	2,4,6-(Me) ₃	i-Pr		mp141-143℃
618	2,4,6-(Me) ₃	i-Pr		
619	2,4,6-(Me) ₃	Et		
620	2,4,6-(Me) ₃	Et	Et	
621	2,4,6-Cl ₃	i-Pr		mp183-185℃
622	2,4,6-Cl ₃	i-Pr		

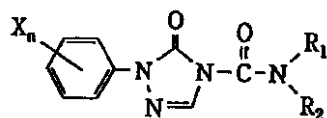
10

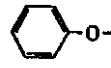
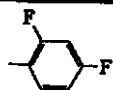
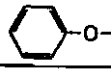
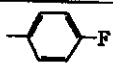
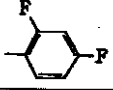
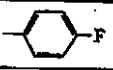
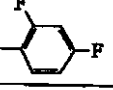
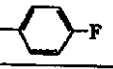
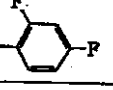
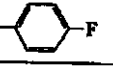
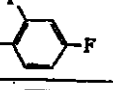
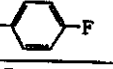
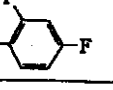
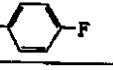
20

30

[表 1a]

一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
623	2-  -	i-Pr		mp121-122°C
624	2-  -	i-Pr		mp132-133°C
625	2-MeS	i-Pr		mp112-114°C
626	2-MeS	i-Pr		mp98-100°C
627	2-MeSO	i-Pr		mp111-112°C
628	2-MeSO	i-Pr		
629	2-MeSO ₂	i-Pr		mp176-177°C
630	2-MeSO ₂	i-Pr		
631	2-CF ₃ ,4-Cl	i-Pr		mp124-125°C
632	2-CF ₃ ,4-Cl	i-Pr		mp154-155°C
633	2-Cl,4-Me	i-Pr		mp139-140°C
634	2-Cl,4-Me	i-Pr		mp178-179°C

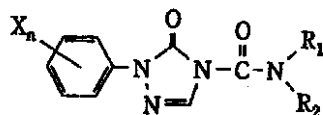
10

20

30

【表 1a】

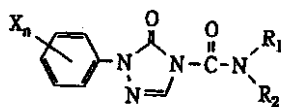
一般式 (Ia) :



化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
635	2-Me,4-Cl	i-Pr		mp136-137°C
636	2-Me,4-Cl	i-Pr		mp142-143°C
637	2-Me,3-Cl	i-Pr		mp111-112°C
638	2-Me,3-Cl	i-Pr		mp121-122°C
639	2-Me,5-Cl	i-Pr		mp136-137°C
640	2-Me,5-Cl	i-Pr		mp146-147°C
641	2-CN	i-Pr		mp115-117°C
642	2-CN	i-Pr		mp126-127°C
643	2-NO ₂	i-Pr		mp131-132°C
644	2-NO ₂	i-Pr		mp135-136°C
645	2-NHCOMe	i-Pr		mp105-107°C
646	2-NHCOMe	i-Pr		n _D ²⁰ 1.5576

【表 1a】

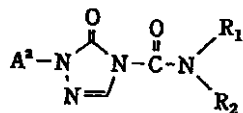
一般式 (Ia) :





化合物 No.	X _n	R ₁	R ₂	物性値
647	2-NHCOCF ₃	i-Pr		mp132-133°C
648	2-NHCOCF ₃	i-Pr		mp143-144°C









【表 1b】

一般式 (Ib) :



但し式中、 A^a は 1-ナフチル基  又は 5,6,7,8-

テトラヒドロ-1-ナフチル基  である。

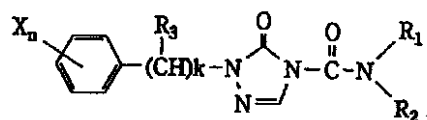
化合物 No.	$\text{A}^a -$	R_1	R_2	物性値
649		i-Pr		mp90-92°C
650		i-Pr		mp95-96°C
651		i-Pr		mp130-131°C
652		i-Pr		mp77-78°C

10

20

【表 1c】

一般式 (Ic) :



化合物 No.		R ₁	R ₂	物性値
653		Et	Et	
654		Et		mp75-76℃
655		i-Pr		mp96-97℃
656		i-Pr		mp109-111℃
657		i-Pr		
658		i-Pr		mp104-105℃
659		i-Pr		mp99-101℃
660		Et	Et	n _D ²⁰ 1.5511
661		i-Pr		mp90-92℃
662		i-Pr		mp91-92℃

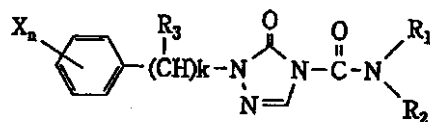
10

20

30

【表 1c】

一般式 (Ic) :



化合物 No.	X_n	R_1	R_2	物性値
663		i-Pr		
664		i-Pr		
665		i-Pr		mp87-89°C
666		i-Pr		mp93-94°C
667		i-Pr		
668		i-Pr		
669		i-Pr		
670		i-Pr		
671		i-Pr		

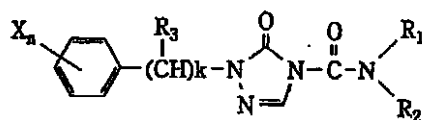
10






















20

30

【表 1c】

一般式 (Ic) :










化合物 No.	X_n  R_3 $-(CH)_k-$	R_1	R_2	物性値
672		i-Pr		
673		i-Pr		
674		i-Pr		
675		i-Pr		mp160-161°C
676		i-Pr		
677		i-Pr		mp164-165°C
678		i-Pr		mp128-130°C
679		i-Pr		
680		i-Pr		
681		i-Pr		

【表 1c】

一般式 (Ic) :



化合物 No.	X_n  R_3 $-(CH)_k-$	R_1	R_2	物性値
682		i-Pr		
683		i-Pr		
684		i-Pr		

次に、第1の本発明による一般式 (1) の1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾー

10

20

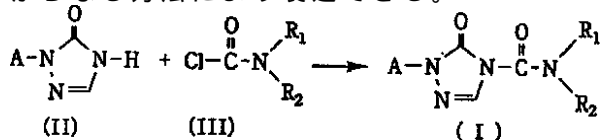
30

40

50

ル - 5 - オン誘導体の製造法を説明する。

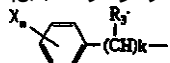
一般的には、一般式 (I) の化合物は、後記の一般式 (II) の 1 - 置換 - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体に後記の一般式 (III) のカルバモイルクロライドを反応させることからなる方法により製造できる。



但し、上記の反応式において、Aは、次式



(但しXおよびnは前記と同じ意味である) の非置換の又は置換されたフェニル基、あるいは1 - ナフチル基又は5,6,7,8 - テトラヒドロ - 1 - ナフチル基、あるいは式



(但しX, n, R₃およびkは前記と同じ意味である) のアラルキル基を示し、さらにR₁およびR₂は前記に定義された意味を有する(以下、同様である)。

この方法の反応は、有機溶媒の中で一般式 (II) の 1 - 置換 - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体に一般式 (III) のカルバモイルクロライドを脱塩酸剤の存在下に接触させることにより達成される。

上記の反応に用いられる脱塩酸剤としては、塩基、例えばトリエチルアミン、トリブチルアミン、ジエチルイソプロピルアミン、4 - ジメチルアミノピリジン、ピリジンのような有機第三級アミン類や炭酸ナトリウム、炭酸カリウムのようなアルカリ金属炭酸塩、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムのようなアルカリ金属水酸化物をあげることができるが、好ましくは塩基はピリジンと炭酸カリウムである。上記の塩基は、炭酸カリウムを用いるときで約1当量の量で使用する事が好ましく、ピリジンを用いるときは溶媒としても作用させるのでピリジンの過剰量を用いる。

反応に用いられる有機溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタンのようなハロゲン化炭化水素、アセトニトリル、プロピオニトリルのようなニトリル、酢酸エチル、プロピオン酸エチルのようなエステル、ジエチルエーテル、テトラヒドロフランのようなエーテル、アセトン、メチルエチルケトンのようなケトンや、ピリジンなどを使用することができる。またはこれらの混合溶媒も使用できる。好ましくはアセトニトリル或いはピリジンである。

反応温度が通常、室温から150 で反応は行われ、好ましくは20 ~ 80 である。反応時間は、反応温度や反応基質により異なるが、通常30分 ~ 24時間で完結する。

目的の反応生成物である一般式 (I) の化合物は、得られた反応溶液から通常の後処理により採取される。例えば、得られた反応溶液に水を加えて水洗後、溶媒を留去することにより得られる。得られた目的生成物は、必要ならばカラムクロマトグラフィーや再結晶などの操作によって精製することもできる。

上記の方法による一般式 (I) の本発明化合物の製造の具体的な例は、後記の実施例1 ~ 9に示した。

なお、上記の方法で出発原料として用いる一般式 (II) の 1 - 置換 - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン誘導体は、新規な又は公知の化合物であり、これらは例えば、「SYNTHETIC COMMUNICATIONS」, 第16巻(2), 第163 - 167頁(1986)に記載の方法に従って容易に合成されるが、その製造を後記の参考製造例1 ~ 4に示した。

また上記の方法で反応剤として用いる一般式 (III) のカルバモイルクロライド類は、有機化学の分野ではよく知られているが、例えば、「Chemische Berichte」, 88巻, 301頁(1955)に記載の方法に従って容易に合成される。

更に、第2の本発明による除草剤組成物について具体的に説明する。

本発明の一般式(1)で示される化合物は、後記試験例に示すとおり、優れた除草活性を有しており、雑草を防除するための除草剤として使用することができる。本発明化合物は以下に示す雑草と作物との間で選択的除草活性を示すので選択的除草剤として使用することができる。

禾本科雑草としては、スズメノテッポウ (Alopecurus)、カラスムギ (Avena)、イヌムギ (Bromus)、カヤツリグサ (Cyperus)、メヒシバ (Digitaria)、ヒエ (Echinochloa)、クログワイ (Eleocharis)、オヒシバ (Eleusine)、コナギ (Monochoria)、オオクサキビ (Panicum)、スズメノヒエ (Paspalum)、オオアワガエリ (Phleum)、スズメノカタビラ (Poa)、オモダカ (Sagittaria)、ホタルイ (Scirpus)、エノコログサ (Setaria)、ジョンスングラス (Sorghum) などがある。

10

広葉雑草としては、イチビ (Abutilon)、イヌビユ (Amaranthus)、ブタクサ (Ambrosia)、コセンダングサ (Bidens)、アカザ (Chenopodium)、ヤエムグラ (Galium)、ヒルガオ (Ipomoea)、アゼナ (Lindernia)、イヌタデ (Persicaria)、スベリヒユ (Portulaca)、キカシグサ (Rotala)、ハコベ (Stellaria)、スミレ (Viola)、オナモミ (Xanthium) などがある。

本発明化合物を施用できる圃場における禾本科の有用な栽培植物すなわち作物としては、オオムギ (Hordeum)、イネ (Oryza)、サトウキビ (Saccharum)、コムギ (Triticum)、トウモロコシ (Zea) などがある。広葉作物としては、ピーナツ (Arachis)、テンサイ (Beta)、アブラナ (Brassica)、ダイズ (Glycine)、ワタ (Gossypium)、トマト (Lycopersicon) などがある。

20

本発明の一般式(1)の化合物の除草剤としての使用は、上記の雑草と、上記の作物圃場に限定されないのは言うまでもない。

第2の本発明による除草剤組成物においては、第1の本発明による一般式(1)の1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリアゾール-5-オン誘導体が有効成分として、担体と共に配合されている組成物の形で製剤化される。このように除草剤組成物として製剤化する場合には、その活性成分の一般式(1)の化合物を担体もしくは希釈剤と混合し、しかも所望ならば添加剤、及び補助剤等の少なくとも一つと公知の手法で混合して、通常農薬として用いられる製剤形態、例えば、粒剤、微粒剤、水和剤、顆粒水和剤、乳剤、水溶剤、フロアブル剤、錠剤、粉剤などの適宜の形態として調合できる。

また他の農薬、例えば殺菌剤、殺虫剤、除草剤、殺ダニ剤、植物生長調節剤や肥料、土壌改良剤等と混合または併用して本発明化合物を使用することができる。特に他の除草剤と混合使用することにより、本発明化合物の使用量を軽減させ、また省力化をもたらすのみならず、両薬剤の共力作用による除草スペクトラムの拡大および相乗作用による一層強力な効果も期待できる。この際、同時に複数の公知除草剤との組み合わせも可能である。前記の製剤化に際して用いられる上記の担体としては、一般に農薬製剤用に常用される担体ならば固体または液体のいずれの担体でも使用できる。担体は特定のものに限定されるものではない。例えば、これら固体担体としては、鉱物質粉末(カオリン、ベントナイト、クレー、モンモリトナイト、タルク、珪藻土、雲母、バーミキュライト、石英、炭酸カルシウム、リン灰石、ホワイトカーボン、消石灰、珪砂、硫安、尿素など)、植物質粉末(大豆粉、小麦粉、木粉、タバコ粉、デンプン、結晶セルロースなど)、高分子化合物(石油樹脂、ポリ塩化ビニル、ケトン樹脂など)、アルミナ、ケイ酸塩、糖重合体、高分散性ケイ酸、ワックス類などが挙げられる。

30

40

また使用できる液体担体としては、水、アルコール類(メチルアルコール、エチルアルコール、n-プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ブタノール、エチレングリコール、ベンジルアルコールなど)、芳香族炭化水素類(トルエン、ベンゼン、キシレン、エチルベンゼン、メチルナフタレンなど)、ハロゲン化炭化水素類(クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロメタン、クロロエチレン、モノクロロベンゼン、トリクロロフルオロメタン、ジクロロフルオロメタンなど)、エーテル類(エチルエーテル、エチレンオキシド、ジオキサン、テトラヒドロフランなど)、ケトン類(アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン、メチルイソブチルケトン、イソホロンなど)、エステル類(酢酸エチ

50

ル、酢酸ブチル、エチレングリコールアセテート、酢酸アミルなど)、酸アミド類(ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドなど)、ニトリル類(アセトニトリル、プロピオニトリル、アクリロニトリルなど)、スルホキシド類(ジメチルスルホキシドなど)、アルコールエーテル類(エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテルなど)、脂肪族または脂環式炭化水素類(n-ヘキサン、シクロヘキサンなど)、工業用ガソリン(石油エーテル、ソルベントナフサなど)、石油留分(パラフィン類、灯油、軽油など)が挙げられる。

また、乳剤、水和剤、フロアブル剤などに製剤化する場合には、乳化、分散、可溶化、湿潤、発泡、潤滑、拡張などの目的で各種の界面活性剤が本組成物に配合される。このような界面活性剤としては、非イオン型界面活性剤(ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエステル、ポリオキシエチレンソルビタンアルキルエステルなど)、陰イオン型界面活性剤(アルキルベンゼンスルホネート、アルキルスルホサクシネート、アルキルサルフェート、ポリオキシエチレンアルキルアルキルサルフェート、アリールスルホネートなど)、陽イオン型界面活性剤[アルキルアミン類(ラウリルアミン、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライドなど)、ポリオキシエチレンアルキルアミン類]、両性型界面活性剤[カルボン酸(ベタイン型)、硫酸エステル塩など]などが挙げられるが、これらの例示されたもののみに限定されるものでない。

また、これらの他にポリビニルアルコール(PVA)、カルボキシメチルセルロース(CMC)、アラビアゴム、ポリビニルアセテート、アルギン酸ソーダ、ゼラチン、トラガカントゴムなどの各種補助剤を使用することができる。

第2の本発明の除草剤組成物においては、前記した各種製剤を製造するに際して、一般式(1)の本発明化合物を0.001%~95%(重量%;以下同じ)、好ましくは0.01%~75%の範囲で含有するように製剤化することができる。例えば、通常、粒剤の場合は、0.01%~10%、水和剤、フロアブル剤、液剤、乳剤の場合には、1~75%、粉剤、ドリフトレス粉剤、微粉剤の場合は0.01%~5%の範囲で本発明化合物を含有できる。

このように調製された製剤は、例えば粒剤およびフロアブル剤の場合は、そのまま土壌表面、土壌中または水中に活性成分の換算量として10アール当たり0.3g~300g程度の範囲になる量で散布すればよい。水和剤、および乳剤などの場合は、水または適当な溶剤に希釈し、活性成分として10アール当たり0.3g~300g程度の範囲になる量で散布すればよい。

なお、第1の本発明による一般式(1)の化合物のうち、多くの具体例化合物は、10アール当たりで3~30gの範囲の低い施用量で施用した場合にも、水田雑草や畑作雑草を100%の殺草率で完全枯死させることができてすぐれた除草効果を示すことが認められた。

以下に、実施例と参考製造例を挙げて本発明による一般式(1)の化合物の製造例を更に説明する。

実施例1

1-(2-クロロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.35)の製造

1-(2-クロロフェニル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン2.0gのアセトニトリル50ml溶液に炭酸カリウム1.7gを加えた。得られた混合物を室温で30分攪拌した後、N-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイルクロライド3.0gを加え80℃で1時間攪拌した。得られた反応液から無機塩をろ過により除去した。その後、減圧下に濾液から溶媒を留去した。得られた残留物をトルエン80mlに溶解してその溶液を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、溶媒を留去した。得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物3.2g(収率80%)を得た。融点146-148℃

実施例2

1-(2-クロロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-4-フルオロフェニル-カルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.38)の製造

1-(2-クロロフェニル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン2.0gのピリジン50ml溶液にN-イソプロピル-N-4-フルオロフェニルカルバモイルクロライド2.6gを加えた。得られた混合物を室温で20時間放置した。その反応液からピリジンを減圧下、留去した。得られ

た残留物をトルエン80mlに溶解し、その溶液を1規定塩酸水、次いで水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。乾燥された溶液から溶媒を留去後に、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物2.9g(収率77%)を得た。融点118 - 120

実施例3

1-フェニル-4-(N-イソプロピル-N-フェニルカルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.1)の製造

1-フェニル-1,2,4-トリアゾール-5-オン1.6gのピリジン50ml溶液にN-イソプロピル-N-フェニルカルバモイルクロライド2.4gを加えた。その混合物を室温で20時間放置した。反応液からピリジンを減圧下、留去した。得られた残留物をトルエン80mlに溶解し、その溶液を1規定塩酸水、次いで水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒留去後に、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物2.4g(収率75%)を得た。融点144 - 145

10

実施例4

1-(2-クロロフェニル)-4-(N-エチル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.26)の製造

1-(2-クロロフェニル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン2.0gのピリジン50ml溶液にN-エチル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイルクロライド2.8gを加えた。その混合物を室温で20時間放置した。反応液からピリジンを減圧下、留去した。得られた残留物をトルエン80mlに溶解し、その溶液を1規定塩酸水、次いで水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒留去後に、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物3.0g(収率79%)を得た。融点110 - 111

20

実施例5

1-(2-クロロフェニル)-4-(N-エチル-N-シクロヘキシルカルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.66)の製造

1-(2-クロロフェニル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン2.0gのピリジン50ml溶液にN-エチル-N-シクロヘキシルカルバモイルクロライド2.0gを加えた。その混合物を、室温で20時間放置した。反応液からピリジンを減圧下、留去した。得られた残留物をトルエン80mlに溶解し、その溶液を1規定塩酸水、次いで水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒留去後に、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物3.0g(収率84%)を得た。融点105 - 106

30

実施例6

1-(2-メチルフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.331)の製造

1-(2-メチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン1.8gのピリジン50ml溶液にN-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイルクロライド3.0gを加えた。その混合物を、室温で20時間放置した。反応液からピリジンを減圧下、留去した。得られた残留物をトルエン80mlに溶解し、その溶液を1規定塩酸水、次いで水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒留去後に、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物3.1g(収率81%)を得た。融点106 - 107

40

実施例7

1-(2,4-ジクロロフェニル)-4-(N-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン(表1aの化合物No.231)の製造

1-(2,4-ジクロロフェニル)-1,2,4-トリアゾール-5-オン2.3gのピリジン50ml溶液にN-イソプロピル-N-2,4-ジフルオロフェニルカルバモイルクロライド3.0gを加えた。その混合物を、室温で20時間放置した。ピリジンを減圧下、留去した。得られた残留物をトルエン80mlに溶解し、その溶液を1規定塩酸水、次いで水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。溶媒留去後に、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物3.1g(収率71%)を得た。融点129 - 131

実施例8

50

1 - (2 - クロロ - - メチルベンジル) - 4 - (N - イソプロピル - N - 2,4 - ジフルオロフェニルカルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (表1cの化合物No.675) の製造
 1 - (2 - クロロ - - メチルベンジル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン1.0gのアセトニトリル30ml溶液に炭酸カリウム0.8gを加えた。その混合物を、室温で30分攪拌した後それにN - イソプロピル - N - 2,4 - ジフルオロフェニルカルバモイルクロライド1.3gを加えた。得られた混合物を80 で1時間攪拌した。反応液から無機塩をろ去後に減圧下で溶媒を留去した。得られた残留物をトルエン50mlに溶解し、その溶液を水洗後、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、その溶液から減圧下溶媒を留去した。得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物1.3g (収率68%) を得た。融点160 - 161 。

実施例9

10

1 - ベンジル - 4 - (N - イソプロピル - N - 2,4 - ジフルオロフェニルカルバモイル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン (表1cの化合物No.656) の製造

1 - ベンジル - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オン1.3gとN - イソプロピル - N - 2,4 - ジフルオロフェニルカルバモイルクロライド2.3gをピリジン30mlに加えた。その混合物を、室温で1時間攪拌しその後一晩放置した。その反応液にトルエン150mlと水150mlを加えた後に分液した。得られたトルエン層を更に1規定塩酸及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。トルエン溶液から減圧下に溶媒を留去し、得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物1.5g (収率54%) を得た。融点109 - 111

参考製造例1

1 - (2 - クロロフェニル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの調製

20

2 - クロロフェニルヒドラジン塩酸塩25gを水230mlに溶解した。その溶液に氷水冷下にグリオキシル酸40%水溶液29gを滴下した。得られた混合物を10 - 20 で2時間攪拌し、析出した粉末を吸引ろ過により採取し、水洗した。得られた粉末をデシケータ内で減圧下に乾燥し、褐色粉末を27.2g得た。この粉末27.2gをトルエン400mlに懸濁してその懸濁液にトリエチルアミン14gを滴下し、次いでアジ化ジフェニルホスホリル37.8gを滴下した。この反応混合物を70 - 80 で4時間、更に100 で2時間加熱攪拌した。得られた反応液を放冷後、氷水冷下に2規定水酸化カリウム760mlを加え抽出した。抽出液として得たアルカリ水性層に濃塩酸160gを少しずつ加え酸性にした。析出した結晶をろ過し、水洗した。得た結晶をトルエンとエタノール混合溶媒に溶かし、その溶液から減圧下に共沸により脱水した。得られた結晶を酢酸エチルで再結晶し、標記目的化合物19.1g (収率70%) を得た。融点155 - 156

30

参考製造例2

1 - フェニル - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの調製

フェニルヒドラジン塩酸塩12gを水100mlに溶解した。その溶液に氷水冷下にグリオキシル酸40%水溶液15.3gを滴下した。得られた混合物を10 - 20 で2時間攪拌し、析出した粉末を吸引ろ過し、水洗した。得られた粉末をデシケータ内で減圧下に乾燥し、褐色粉末を12.9g得た。この粉末12.9gをトルエン250mlに懸濁してその懸濁液にトリエチルアミン7.9gを滴下し、次いでアジ化ジフェニルホスホリル21.7gを滴下した。この反応混合物を70 - 80 で2時間、更に100 で1時間加熱攪拌した。えられた反応液を放冷後、氷水冷下に2規定水酸化ナトリウム400mlを加え抽出した。抽出液として得たアルカリ水性層に濃塩酸90gを少しずつ加え酸性にした。析出した結晶をろ過し、水洗した。得た結晶をトルエンとエタノール混合溶媒に溶かし、その溶液から減圧下に共沸により脱水した。得られた結晶を酢酸エチルで再結晶し、標記目的化合物9.1g (収率68%) を得た。融点182 - 183

40

参考製造例3

1 - (2 - クロロ - - メチルベンジル) - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの調製

2 - クロロ - - メチルベンジルヒドラジン塩酸塩4.5gを水100mlに溶解した。その溶液に氷水冷下にグリオキシル酸40%水溶液4.1gを滴下した。得られた混合物を10 - 20 で2時間攪拌し、析出した粉末をろ過し、水洗した。得られた粉末をデシケータ内で減圧下に乾燥し、褐色粉末を4.7g得た。この粉末4.7gをトルエン100mlに懸濁し、それにトリエチルアミン2.1gを滴下し、次いでアジ化ジフェニルホスホリル5.7gを滴下した。この反応混合

50

物を70 - 80 で1時間、更に100 で1時間加熱撹拌した。反応液を放冷後、氷水冷下に2規定水酸化ナトリウム100mlを加え抽出した。このアルカリ水性層に濃塩酸25gを少しずつ加え酸性にした。析出した結晶をろ過し、水洗した。得た結晶をトルエンとエタノール混合溶媒に溶かし、その溶液から減圧下に共沸により脱水した。得られた結晶を酢酸エチルで再結晶し、標記の目的化合物3.0g (収率65%)を得た。融点141 - 144

参考製造例4

1 - ベンジル - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの調製

ベンジルヒドラジン二塩酸塩16.2gを水300mlに溶解した。その溶液に氷水冷下にグリオキシル酸40%水溶液15.4gを滴下した。得られた混合物を10 - 20 で1時間撹拌し、析出した粉末をろ過し、水洗した。得られた粉末をデシケータ内で減圧下に乾燥し、褐色粉末を9.9g得た。この粉末9.0gをトルエン250mlに懸濁し、それにトリエチルアミン5.1gを滴下し、次いでアジ化ジフェニルホスホリル13.9gを滴下した。この反応混合物を70 - 80 で1時間、更に100 で1時間加熱撹拌した。反応液を放冷後、氷水冷下に2規定水酸化ナトリウム300mlを加え抽出した。このアルカリ水性層に濃塩酸60gを少しずつ加え酸性にし、酢酸エチル150mlで抽出した。酢酸エチル層 (抽出液) を飽和食塩水で洗い、無水硫酸ナトリウムで乾燥し、その溶液から減圧下に溶媒を留去した。得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトにて精製し、標記の目的化合物4.7g (収率53%)を得た。融点147 - 149

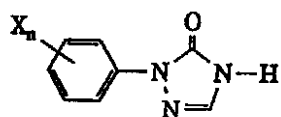
上記の参考製造例1~4と同様に製造された後記の一般式 (IIa), (IIb) 又は (IIc) で表される1 - 置換 - 1,2,4 - トリアゾール - 5 - オンの別の代表的な具体例を、次の表2 - 1、表2 - 2、表2 - 3に示す。

10

20

【表 2-1】

一般式(IIa):



X _n	融点
H	182-183℃
2-Cl	155-156℃
4-Cl	256-257℃
2-F	164-165℃
3-F	166-168℃
4-F	231-232℃
2-Br	150-151℃
2,3-Cl ₂	194-195℃
2,4-Cl ₂	188-189℃
2,5-Cl ₂	183-185℃
2,6-Cl ₂	243-244℃
2-F,4-Cl	208-209℃
2,4-F ₂	231-232℃
2-Me	148-149℃
3-Me	183-184℃
4-Me	211-212℃
2-Et	149-151℃
2-n-Pr	113-114℃
2-i-Pr	153-154℃
2,3-(Me) ₂	190-192℃
2,4-(Me) ₂	146-148℃
2,5-(Me) ₂	135-137℃
2,6-(Me) ₂	167-168℃
2-Me,6-Et	143-144℃

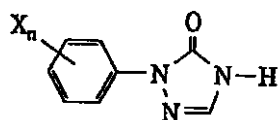
10

20

30

【表 2-1 続き】

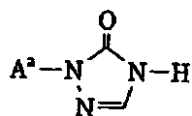
一般式(IIa):

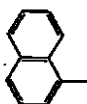
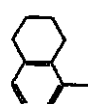


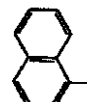
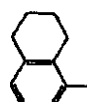
X _n	融点
2-MeO	127-128°C
4-MeO	180-181°C
2-MeS	136-138°C
2-CN	169-171°C
4-CF ₃	258-260°C
2-Me,3-Cl	197-198°C
2-Me,4-Cl	192-193°C
2-Me,5-Cl	187-188°C
2-Me,6-Cl	198-199°C
4-Me,2-Cl	159-161°C
2-NO ₂	181-182°C
2-NHCOMe	262-263°C
2-NHCOCF ₃	156-158°C
2,4,6-Cl ₃	268-269°C

【表 2-2】

一般式(IIb):



但し A^a は  または  である。

A ^a	融点
	mp188-189°C
	mp191-192°C

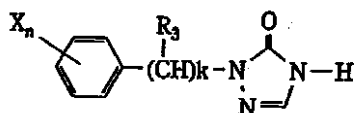
10

20

30

【表 2-3】

一般式 (IIc):



Xn	R3	k	融点
H	H	1	147-149℃
2-Cl	H	1	162-164℃
2-Me	H	1	166-168℃
2-Cl	Me	1	141-144℃
2-Me	Me	1	156-158℃

なお更に、前記した一般式 (I) の本発明化合物を除草剤組成物に製剤化する方法は具体的には以下の実施例 10 ~ 15 をもって説明する。ただし、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではなく、これら実施例に例示されたその以外の他の種々の添加物と任意の割合で混合し、製剤化することもできる。なお、化合物 No. は前記の表 1a、表 1b 及び表 1c に示したものであり、また実施例で「部」とは、すべて重量部を示す。

実施例 10 (粒剤)

化合物 No. 1	1部
リグニンスルホン酸カルシウム	1部
ラウリルサルフェート	1部
ベントナイト	30部
タルク	67部

以上の成分に水 15 部を加えて、その混合物を混練機で混練した後、押出式造粒機で造粒した。これを流動乾燥機で乾燥して、活性成分 1% を含む粒剤を得た。

実施例 11 (フロアブル剤)

化合物 No. 35	20.0部
スルホコハク酸ジ - 2 - エチルヘキシル	
エステルナトリウム塩	2.0部
ポリオキシエチレンノニルフェニル	
エーテル	2.0部
プロピレングリコール	5.0部
消泡剤	0.5部
水	70.5部

以上の成分を湿式ボールミルで均一に混合粉碎し、活性成分 20% を含むフロアブル剤を得た。

実施例 12 (ドライフロアブル剤)

化合物 No. 331	75部
イソバン No. 1 [アニオン性界面活性剤:]	
クラレイソプレンケミカル (株) 商品名]	10部
パニレックス N [アニオン性界面活性剤:]	
山陽国策パルプ (株) 商品名]	5部
ホワイトカーボン	5部
クレ-	5部

以上の成分を均一に混合微粉碎して活性成分 75% を含むドライフロアブル (顆粒水和) 剤を得る。

実施例 13 (水和剤)

化合物 No. 231	15部
ホワイトカーボン	15部

リグニンスルホン酸カルシウム	3部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	2部
珪藻土	5部
クレー	60部

以上の成分を粉碎混合機で均一に混合して、活性成分15%を含む水和剤を得る。

実施例14(乳剤)

化合物No.8	20部
ソルポール700H〔乳化剤：東邦化学 (株)商品名〕	20部
キシレン	60部

10

以上の成分を混合して、活性成分20%を含む乳剤を得る。

実施例15(粉剤)

化合物No.481	0.5部
ホワイトカーボン	0.5部
ステアリン酸カルシウム	0.5部
クレー	50.0部
タルク	48.5部

以上の成分を均一に混合粉碎して、活性成分0.5%を含む粉剤を得る。

なお、上述の製剤例に準じて、本発明による一般式(1)の化合物を含む除草剤組成物はすべてが各種の剤型の除草剤としてそれぞれ製剤できることは言うまでもない。

20

次に、本発明の一般式(1)の化合物の除草効果を試験例を挙げて説明する。

試験例1 タイヌビエに対する除草効果試験および水稻に対する薬害試験(雑草の発生前の除草処理および水稻移植1日後の除草処理)

1/5000アールポットに水田土壌を充填し、水を加え土壌に化成肥料(N:P:K=17:17:17)を混入した。代かきを行った後、タイヌビエ種子を土壌表層1cmに混入した。次いで、2.5葉期の水稻苗(品種：日本晴)を移植し、約3cmに湛水した。その後の管理はガラス温室内で行い、水稻移植1日後に、実施例13に準じて調製した水和剤を水で希釈した水希釈液の所定量を滴下して除草処理した。薬剤処理後28日後に、除草効果および水稻薬害を調査し、除草効果(%)を下記の計算式により求めた。その結果を表3に表示した。

除草効果(%) = $[1 - (a/b)] \times 100$

30

〔式中、aは処理区の雑草の乾燥重量(g)を表し、bは無処理区の雑草の乾燥重量(g)を表す〕。

また、水稻への薬害は、以下に示す評価の指標に基づいて調査した。

薬害の評価値

薬害程度

5	枯死
4	薬害大
3	薬害中
2	薬害小
1	薬害僅少
0	薬害なし

40

比較薬剤として後記の比較化合物Aを用い、これを含む水和剤を実施例13に準じて調製した。上記と同様に比較試験を実施した。その結果を表3に示した。化合物No.は前記の表1a、表1b、表1cに示したものである。

【表 3】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	除草効果 (%)	薬 害
1	15	100	0
4	4	100	0
8	4	100	0
25	4	100	0
26	4	100	0
27	4	100	0
28	4	100	0
29	4	100	0
30	4	100	0
31	4	100	0
32	4	100	0
33	4	100	0
34	4	100	0
35	1	100	0
38	1	100	0
42	4	100	0
65	15	100	0
66	4	100	0
72	15	100	0
73	15	100	0
74	15	100	0
75	15	100	0
76	15	100	0
85	2	100	0
88	4	100	0
135	15	100	0
165	4	100	0
166	1	100	0
169	15	100	0

10

20

30

【表3続】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	除草効果 (%)	薬 害
170	4	100	0
181	2	100	0
184	4	100	0
200	2	100	0
221	1	100	0
222	1	100	0
231	2	100	0
234	2	100	0
269	2	100	0
270	2	100	0
281	2	100	0
284	2	100	0
318	4	100	0
320	15	100	0
322	2	100	0
324	2	100	0
331	1	100	0
334	2	100	0
381	4	100	0
384	4	100	0
431	2	100	0
434	2	100	0
481	1	100	0
484	1	100	0
518	2	100	0
520	15	100	0
521	4	100	0
522	4	100	0
531	4	100	0
534	4	100	0

10

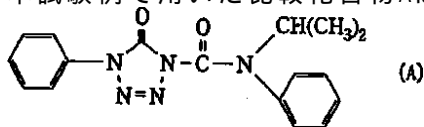
20

30

【表3続】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	除草効果 (%)	薬 害
576	2	100	0
577	2	100	0
581	4	100	0
582	4	100	0
586	4	100	0
587	4	100	0
591	2	100	0
592	2	100	0
596	1	100	0
597	1	100	0
631	2	100	0
632	2	100	0
633	15	100	0
634	15	100	0
635	4	100	0
636	4	100	0
637	15	100	0
638	15	100	0
639	2	100	0
640	4	100	0
650	4	100	0
656	15	100	0
658	15	100	0
662	4	100	0
665	4	100	0
666	4	100	0
675	4	100	0
678	15	100	0
比較化合物A	100	60	3

本試験例で用いた比較化合物Aは次式



で示されるテトラゾリノン誘導体、すなわち1-フェニル-4-(N-イソプロピル-N-フェニルカルバモイル)-テトラゾリン-5-オン(特開昭62-12767号公報に記載)である(以下の試験例2~4でも同様)。

試験例2 タイヌビエに対する除草効果試験(雑草の生育期の除草処理)

1/5000アールポットに水田土壌を充填し、水を加え、土壌に化成肥料(N:P:K=17:17:17)を混入した。代かきを行った後、タイヌビエ種子を土壌表層1cmに混入し3cmに湛水した。その後の管理はガラス室温内で行い、タイヌビエが1.5葉期に達した時点で、本発明化合物を含み実施例13に準じて調製した水和剤を水で希釈した水稀釈液の所定量を滴下して除草処理した。

薬剤処理後21日後に、除草効果を調査し、試験例1と同じ基準で除草効果を評価した。比較薬剤として比較化合物Aを含む水和剤を実施例11に準じて調製した。上記と同様に比較試験を実施した。その結果を表4に示した。化合物No.は前記の表1a~表1cに示したものである。

【表 4】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	除草効果 (%)
1	30	100
4	8	100
8	8	100
25	8	100
26	8	100
27	8	100
28	8	100
29	8	100
30	8	100
31	8	100
32	8	100
33	8	100
34	8	100
35	2	100
38	2	100
42	8	100
65	30	100
66	8	100
72	30	100
73	30	100
74	30	100
75	30	100
76	30	100
85	4	100
88	4	100
135	30	100
165	8	100
166	2	100
169	30	100
170	8	100

10

20

30

【表 4 続】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	除草効果 (%)
181	4	100
184	4	100
200	4	100
221	2	100
222	2	100
231	4	100
234	4	100
269	4	100
270	4	100
281	4	100
284	4	100
318	8	100
320	30	100
322	4	100
324	4	100
331	2	100
334	2	100
381	8	100
384	8	100
431	4	100
434	4	100
481	2	100
484	2	100
518	2	100
520	30	100
521	15	100
522	8	100
531	4	100
534	8	100
576	4	100

10

20

30

【表 4 続】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	除草効果 (%)
577	8	100
581	15	100
582	8	100
586	8	100
587	15	100
591	8	100
592	8	100
596	4	100
597	4	100
631	8	100
632	8	100
633	30	100
634	30	100
635	15	100
636	15	100
637	30	100
638	30	100
639	8	100
640	30	100
650	30	100
656	30	100
658	30	100
662	30	100
665	15	100
666	15	100
675	15	100
678	30	100
比較化合物A	100	50

試験例3

水田雑草（アゼナ、コナギ、ホタルイ）に対する除草効果の試験

1/5000アールポットに水田土壌を充填し、水を加え、土壌に化成肥料（N:P:K=17:17:17）を混入した。代かきを行った後、アゼナ、コナギ、ホタルイの種子を1～2cmの深さにそれぞれ30粒ずつを播種した。播種後ただちに湛水し、水深を2cmに保った。その後の管理はガラス室内で行い、播種1日後に、実施例13に準じて調製した水和剤を水希釈した水稀釈液の所定量を滴下処理した。

薬剤処理後21日後に、除草効果を調査し、試験例1と同じ基準で除草効果を評価した。比較薬剤としての比較化合物Aを含む水和剤を実施例13に準じて調製した。上記と同様に比較試験を実施した。その結果を表5に示した。化合物No.は前記の表1a～表1cに示したものである。

【表5】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	水田雑草に対する除草率 (%)		
		アゼナ	コナギ	ホタルイ
1	15	100	95	95
4	4	100	100	100
8	4	100	100	100
25	4	100	100	100
26	4	100	100	100
27	4	100	100	100
28	4	100	100	100
29	4	100	100	100
30	4	100	100	100
31	4	100	100	100
32	4	100	100	100
33	4	100	100	100
34	4	100	100	100
35	2	100	100	100
38	2	100	100	100
42	4	100	100	100
65	15	100	90	90
66	4	100	100	100
72	15	100	90	95
73	15	100	90	95
74	15	100	90	95
75	15	95	100	100
76	15	90	90	100
85	2	100	100	100
88	4	100	100	100
135	15	90	90	90
165	4	100	90	90
166	2	100	100	100
169	15	90	90	100
170	4	100	100	90

10

20

30

【表5 続き】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	水田雑草に対する除草率 (%)		
		アゼナ	コナギ	ホタルイ
181	2	100	100	100
184	4	100	100	100
200	2	100	100	100
221	2	100	95	100
222	2	100	100	100
231	2	100	100	100
234	2	100	100	100
269	4	100	100	100
270	4	100	100	100
281	2	100	100	100
284	2	100	100	100
318	4	95	90	100
320	15	100	90	95
322	2	100	100	100
324	2	100	100	100
331	2	100	100	100
334	2	100	100	100
381	4	100	100	100
384	4	100	100	100
431	4	100	100	100
434	4	100	100	100
481	2	100	100	100
484	2	100	100	100
518	4	100	100	100
520	15	90	95	90
521	4	100	95	100
522	4	100	100	95
531	4	100	100	100
534	4	100	100	100
576	4	100	100	100

10

20

30

【表5 続き】

供試化合物 No.	有効成分施用量 (g/10 アール)	水田雑草に対する除草率 (%)		
		アゼナ	コナギ	ホタルイ
577	4	100	100	100
581	4	100	100	100
582	4	100	95	100
586	4	100	100	100
587	4	95	100	95
591	4	100	100	100
592	4	100	100	100
596	2	100	100	100
597	2	100	100	100
631	4	100	100	100
632	4	95	100	90
633	15	95	95	90
634	15	95	95	95
635	4	100	90	90
636	4	100	95	90
637	15	90	90	90
638	15	90	90	90
639	4	100	100	100
640	4	100	100	100
650	4	100	100	100
656	15	95	95	95
658	15	95	100	95
662	4	100	100	100
665	4	100	100	100
666	4	100	100	100
675	4	100	100	100
678	15	95	95	100
比較化合物A	100	70	70	40

試験例4 畑作雑草に対する除草効果試験および薬害試験

(1) 畑作雑草に対する除草効果試験

5000分の1アールの大きさの素焼製ポットに畑土壌（沖積壤土）をつめ、表層1cmの土壌とメヒシバ、エノコログサ、イチビ、イヌビユ、イヌタデ、の各雑草種子それぞれ50粒を均一に混合し、表層を軽く押圧した。播種2日後に、実施例14に準じて調製した乳剤を水で希釈した水希釈液を10アール当たり100リットルの割合で土壌表面に噴霧した。活性成分の施用量は、換算すると10アール当たり50gに相当した。

薬剤処理30日後に、除草効果を試験例1と同じ基準で評価した。

(2) 作物に対する薬害試験

10,000分の1アールの大きさの素焼製ポットに畑土壌（沖積壤土）をつめ、各作物の種子（ダイズ5粒、トウモロコシ5粒、テンサイ10粒、ナタネ10粒、ワタ5粒コムギ10粒およびオオムギ10粒）をそれぞれ別のポットに播種し、表層を軽く押圧した。播種1日後に、実施例14に準じて調製した乳剤を水で希釈した水希釈液を10アール当たり100リットルの割合で土壌表面に噴霧した。活性成分の施用量は、換算すると10アール当たり50gに相当した。

薬剤処理30日後に、各作物に対する薬害程度を、試験例1と同様の基準に基づいて調査した。その結果は、表6に示した。化合物No.は前記の表1a～表1cに示したものである。なお、上記の両試験（1）および（2）とも、前記の比較化合物Aを含み実施例14に準じて調製した比較乳剤を用い、本発明化合物と同様に試験を実施した。

【表 6】

試験化合物 No.	畑地耕種に対する除草率 (%)						作物に対する被害					
	メヒシバ	エノコログサ	イタビ	イヌビユ	イヌタデ	ダイズ	トウモロコシ	テンサイ	ナタネ	コムギ	オオムギ	ワタ
1	90	100	90	90	90	0	0	0	0	0	0	0
4	100	100	90	90	95	1	1	0	0	0	0	0
8	100	100	90	90	90	0	1	0	0	0	0	0
25	100	100	90	90	90	0	1	1	0	0	0	0
26	100	100	90	90	90	1	0	0	0	0	0	0
27	100	100	90	90	90	0	0	0	0	0	0	0
28	100	100	90	90	90	0	0	0	0	0	0	0
29	100	100	90	90	90	0	0	1	0	0	0	0
30	100	100	95	95	90	0	1	0	0	0	0	0
31	100	100	95	90	90	0	1	1	0	0	1	0
32	100	100	90	90	90	0	1	1	0	0	0	1
33	100	100	95	90	90	0	1	0	0	0	0	0
34	100	100	95	90	90	0	1	1	0	0	0	0
35	100	100	100	95	90	0	0	0	0	0	0	0
38	100	100	100	100	95	0	0	1	0	0	0	0
42	100	100	95	90	90	0	0	0	0	0	0	0
65	95	100	90	80	90	0	1	1	0	0	0	1
66	100	100	90	90	90	0	1	0	1	0	0	0
72	90	95	90	90	90	1	0	1	0	0	0	0
73	95	100	90	90	90	1	0	0	0	1	0	0
74	95	100	90	90	90	0	0	1	0	0	0	0
75	95	100	90	90	95	0	0	1	0	0	0	0
76	95	95	100	100	95	0	0	0	1	0	0	0
85	100	100	95	90	90	0	0	0	0	0	1	0
88	100	100	95	90	90	0	0	1	0	0	0	0

10

20

30

【表 6 続】

供試化合物 No.	畑地雑草に対する除草率 (%)						作物に対する薬害					
	メヒシバ	エノコログサ	イデビ	イヌビユ	イヌタデ	ダイズ	トウモロコシ	テンサイ	ナタネ	コムギ	オオムギ	ワタ
135	95	95	95	100	90	0	0	0	0	1	0	0
165	100	100	100	95	90	0	1	0	0	1	0	0
166	100	100	90	90	95	0	1	0	0	1	1	0
169	100	100	90	95	95	0	1	0	0	0	0	0
170	100	100	90	95	95	0	0	0	0	0	0	0
181	100	100	95	90	90	0	0	0	0	1	1	0
184	100	100	100	90	90	0	0	0	0	0	0	0
200	100	100	100	95	90	0	1	0	0	0	0	0
221	100	100	100	90	90	0	1	0	1	0	1	0
222	100	100	100	95	85	0	1	0	0	1	1	0
231	100	100	95	90	90	1	0	0	0	1	1	0
234	100	100	100	90	90	0	0	0	0	0	0	0
269	100	100	95	95	95	0	0	1	0	0	0	0
270	100	100	95	90	90	0	0	1	0	0	1	0
281	100	100	100	90	90	0	1	0	0	0	0	0
284	100	100	95	90	90	0	0	0	0	0	0	0
318	100	100	90	80	90	0	0	0	0	0	0	0
320	90	90	90	90	90	0	1	0	1	0	0	0
322	100	100	100	90	90	1	1	0	0	1	1	0
324	100	100	90	90	95	1	1	0	0	1	0	0
331	100	100	95	90	90	0	0	1	0	0	0	0
334	100	100	95	90	90	0	1	0	1	0	0	0

10

20

30

【表 6 続】

供試化合物 No.	畑地耕算に対する除草率 (%)					作物に対する薬害						
	メビシバ	エノコログサ	イタビ	イヌビユ	イヌタデ	ダイズ	トウモロコシ	テンサイ	ナタネ	コムギ	オオムギ	ワタ
381	100	100	95	90	90	0	0	0	0	0	0	0
384	100	100	95	90	90	0	1	0	1	0	0	0
431	100	100	90	90	90	0	0	1	0	0	0	0
434	100	100	95	90	90	0	0	0	0	1	0	0
481	100	100	95	90	90	0	1	0	1	0	0	0
484	100	100	100	95	90	1	1	0	0	0	0	0
518	100	95	95	90	95	0	1	1	0	1	1	0
520	95	95	90	95	95	1	1	0	0	1	0	1
521	100	100	100	100	100	0	1	0	1	0	1	0
522	100	100	95	95	95	0	1	1	0	1	1	0
531	100	100	90	90	90	0	0	0	0	0	0	0
534	100	100	90	90	90	0	0	0	0	0	0	0
576	100	100	95	90	90	0	0	0	1	1	0	0
577	100	100	95	90	90	0	0	0	1	1	0	0
581	100	100	90	90	90	0	0	0	1	0	1	0
582	100	100	90	90	90	0	1	1	0	1	0	0
586	100	100	90	90	95	0	1	1	0	1	0	0
587	100	100	95	95	100	0	1	1	0	1	0	0
591	100	100	100	95	100	1	0	0	0	1	0	0
592	100	100	95	100	100	0	1	0	0	0	1	0
596	100	100	90	100	100	1	0	0	0	0	0	0
597	100	100	95	90	90	0	1	0	0	0	0	0
631	100	100	80	90	90	0	1	0	0	0	1	0
632	100	100	90	95	90	0	0	0	0	1	1	0

10

20

30

【表6続】

供試化合物 No.	如地雑草に対する除草率 (%)					作物に対する薬害						
	メヒシバ	エノコログサ	イチビ	イヌビロ	イヌタデ	ダイズ	トウモロコシ	チンサイ	ナタネ	コムギ	オオムギ	ワタ
633	100	90	90	90	100	1	0	0	0	1	1	1
634	100	100	90	90	95	0	1	1	0	0	0	0
635	100	100	95	95	100	1	0	0	0	0	1	0
636	100	100	95	95	95	0	0	0	1	1	0	0
637	100	90	90	90	90	0	1	0	0	1	0	0
638	100	85	90	90	90	0	1	1	0	1	0	0
639	100	100	95	95	100	0	0	1	1	0	0	0
640	100	100	95	95	100	0	0	1	1	0	0	0
650	100	100	90	90	95	0	0	0	1	0	0	0
656	100	90	90	90	95	0	1	1	0	1	0	0
668	100	95	90	90	90	0	0	1	1	0	0	0
662	100	100	90	95	95	0	0	1	1	0	0	0
665	100	100	90	95	95	1	0	1	0	2	0	0
666	100	100	90	90	100	0	1	1	0	1	0	0
675	100	100	95	95	100	0	0	0	1	1	1	0
678	100	95	90	95	100	0	0	0	0	1	0	0
比較化合物A	70	70	70	60	40	3	2	3	3	0	0	0

産業上の利用可能性

以上に説明したとおり、本発明の新規な除草性1-置換-4-カルバモイル-1,2,4-トリ
アゾール-5-オン誘導体は、除草活性を有し、しかも水田および畑の各種雑草を低施用
量で除草し、雑草と作物との間の選択性も優れる。従って、本発明の新規な化合物は、選
択的除草剤として極めて有用である。

10

20

30

40

フロントページの続き

- (72)発明者 平山 一雄
神奈川県伊勢原市伊勢原4 14 27 舞ハウス に 106号
- (72)発明者 沖田 洋行
神奈川県厚木市戸田2385番地 北興化学寮
- (72)発明者 大野 利治
神奈川県厚木市恩名1247番地の6
- (72)発明者 渡邊 嘉久
神奈川県厚木市戸田2352番地の1
- (72)発明者 尾上 雅英
神奈川県厚木市戸田1445番地の1

審査官 榎本 佳予子

- (56)参考文献 特開昭52-118471(JP,A)
特開平06-340639(JP,A)
特開平03-106865(JP,A)
Synthesis and Herbicidal Properties of Aryltriazolinones, ACS Symposium Series 504 (Synthesis. Chemical Agrochem. III), 米国, American Chemical Society, 1992年, p.134-146

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)

C07D249/12
C07D401/12
A01N 47/38
CA(STN)
CAOLD(STN)
REGISTRY(STN)