

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5250032号
(P5250032)

(45) 発行日 平成25年7月31日 (2013. 7. 31)

(24) 登録日 平成25年4月19日 (2013. 4. 19)

(51) Int. Cl.

F I

A O 1 N 25/08 (2006. 01)

A O 1 N 25/08

A O 1 N 43/56 (2006. 01)

A O 1 N 43/56

D

A O 1 N 25/30 (2006. 01)

A O 1 N 25/30

A O 1 P 7/04 (2006. 01)

A O 1 P 7/04

請求項の数 10 (全 35 頁)

(21) 出願番号 特願2010-514992 (P2010-514992)
 (86) (22) 出願日 平成20年6月20日 (2008. 6. 20)
 (65) 公表番号 特表2010-531884 (P2010-531884A)
 (43) 公表日 平成22年9月30日 (2010. 9. 30)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2008/067577
 (87) 国際公開番号 W02009/002810
 (87) 国際公開日 平成20年12月31日 (2008. 12. 31)
 審査請求日 平成23年5月31日 (2011. 5. 31)
 (31) 優先権主張番号 60/937, 346
 (32) 優先日 平成19年6月27日 (2007. 6. 27)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 390023674
 イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
 アンド・カンパニー
 E. I. DU PONT DE NEMO
 URS AND COMPANY
 アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイلم
 ントン、マーケット・ストリート 100
 7
 (74) 代理人 100127926
 弁理士 結田 純次
 (74) 代理人 100140132
 弁理士 竹林 則幸

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 カルボキサミド殺節足動物剤の固形剤

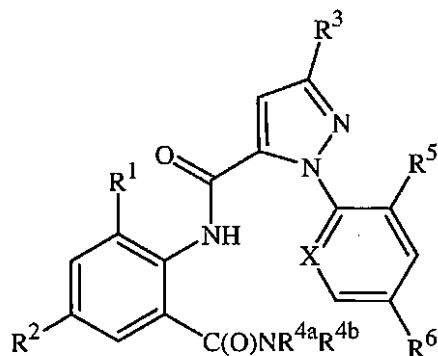
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

質量基準で

(a) 式 1

【化 1】



1

10

(式中

X が、N、C F、C C l、C B r または C I であり；

20

R¹が、C H₃、C l、B rまたはFであり；

R²が、H、F、C l、B rまたは-C Nであり；

R³が、F、C l、B r、C₁～C₄ハロアルキルまたはC₁～C₄ハロアルコキシであり

；

R^{4a}が、H、C₁～C₄アルキル、シクロプロピルメチルまたは1-シクロプロピルエチルであり；

R^{4b}が、HまたはC H₃であり；

R⁵が、H、F、C lまたはB rであり；そして

R⁶が、H、F、C lまたはB rである）

のアントラニルアミド、そのN-オキシドおよび塩から選択される、0.1～50%の1つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤；

(b) 0.5～95%の水-不混和性液体成分で浸潤された固形キャリアの粒子を含む粒状構成成分；

(c) 0.1～50%の分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分；および

(d) 0～99.3%の1つまたはそれ以上の追加の製剤成分を含む固形殺節足動物組成物。

【請求項2】

1つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、3-プロモ-1-(3-クロロ-2-ピリジニル)-N-[4-シアノ-2-メチル-6-[(メチルアミノ)カルボニル]フェニル]-1H-ピラゾール-5-カルボキサミドを含む、請求項1に記載の組成物。

【請求項3】

1つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、3-プロモ-N-[4-クロロ-2-メチル-6-[(メチルアミノ)カルボニル]フェニル]-1-(3-クロロ-2-ピリジニル)-1H-ピラゾール-5-カルボキサミドを含む、請求項1に記載の組成物。

【請求項4】

固形キャリアが、少なくとも1つのシリカまたはシリケートを含む、請求項1に記載の組成物。

【請求項5】

固形キャリアが、ケイ酸カルシウムを含む、請求項4に記載の組成物。

【請求項6】

水-不混和性液体成分が、C₁～C₄アルカノールの脂肪酸エステル、種子油および果実油、ならびに鉱油から選択される少なくとも1種の物質を含む、請求項1に記載の組成物。

【請求項7】

水-不混和性液体成分が、メチル化種子油を含む、請求項6に記載の組成物。

【請求項8】

界面活性剤構成成分が、アルキルナフタレンスルホネート、ナフタレンスルホン酸ホルムアルデヒド縮合物の塩、およびリグノスルホネートからなる群から選択される1つまたはそれ以上の界面活性剤を含む、請求項1に記載の組成物。

【請求項9】

1つまたはそれ以上の追加の製剤成分が、1つまたはそれ以上のクレイを質量基準で組成物の1～15%の範囲の量で含む、請求項1に記載の組成物。

【請求項10】

1つまたはそれ以上の追加の製剤成分が、1つまたはそれ以上のサッカライドを質量基準で組成物の1～85%の範囲の量で含む、請求項1に記載の組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

10

20

30

40

50

本発明は、カルボキサミド殺節足動物剤の一定の固体配合物に関する。

【背景技術】

【0002】

節足有害生物の防除は、高い収穫率の達成のためにきわめて重要である。栽培中および保存中の農耕作物に対する節足有害生物による損害は、生産性の著しい低減を生じさせ、これにより、消費者へのコストの増加をもたらす可能性がある。森林、温室作物、観賞用植物、苗床作物、貯蔵食品および繊維製品、家畜、家庭、芝生、木製品、ならびに公衆衛生および家畜衛生における節足有害生物の防除もまた重要である。

【0003】

アントラニルアミド（特許文献1、2および3を参照のこと）およびフタル酸ジアミド（特許文献4を参照のこと）は、経済的に重要な数多くの節足有害生物に対して有効性を有するカルボキサミド殺節足動物剤の近年発見されたクラスである。

【0004】

典型的には、例えば殺節足動物剤といった植物を保護するための化学的活性成分が、活性化合物、ならびにキャリアおよび補助剤などの不活性成分を含む組成物（配合物）として配合されている。これらの組成物は非希釈形態でまたは水での希釈後に、使用者により目標有害生物または保護されるべき植物に適用されることができる。植物保護製品の配合組成物は、一般に、固体または液体配合物として区分されることができる。液体組成物は、溶液（乳化性濃縮物を含む）、懸濁液およびエマルジョン（マイクロエマルジョンおよび/またはサスエマルジョンを含む）を含む。固体組成物は、粉剤、粉末、顆粒、ペレット、プリル、香錠および錠剤を含む。配合物タイプは、各々、他の配合物タイプと比して利点および不利益を有し、各用途について最適なタイプは、活性成分の物理的および生物学的特徴、ならびに防除されるべき有害生物、保護されるべき植物部位または他の箇所、環境条件等を含む保管条件および使用条件に依存することとなる。

【0005】

一般に補助剤として知られる一定の不活性配合成分は、活性成分の効能を促進するかまたは延ばすことが可能である。例えば、石油流出物、植物油およびメチル化植物油などの誘導体などの水 - 不混和性液体は、葉のワックス状の角皮に対する活性成分の接着性を向上させ、これにより、耐洗浄性の向上を高めることが可能である。しかも、接着性および接触性を向上させることで、このような水 - 不混和性の液体は、角皮への活性成分の取り込みを促進させることができ、ここから植物の維管束系（例えば師部）を通してさらに輸送される。殺節足動物剤活性成分の葉角皮および表皮細胞を通った浸透性および経層性移動、ならびにその後の葉肉細胞、維管束系および他の組織における分布が、主に、葉などの植物部位の内部構造からの植物汁液を抽出することにより栄養分を得る節足有害生物を防除するために特に望ましい。このような節足有害生物の特に注目すべき例は、コナジラミ科（コナジラミ）、アブラムシ科（アブラムシ）、ウンカ科（ウンカ）およびオオヨコバイ科（ヨコバイ）の構成種などの同翅目の刺吸 - 吸汁性有害生物である。

【0006】

水 - 不混和性の液体補助剤は、主として、活性成分の配合組成物とは別にスプレータンクに入れられる添加剤として用いられるが、これらは、活性成分の配合組成物中に含まれることがより好都合であろう。しかも、いくつかの国では、スプレータンクに個別に添加される液体補助剤の登録が必要であり、他の国では、このようなスプレータンク混合物の形成を制限しているかまたは禁止している場合がある。これらの物理的性質により、液体配合組成物は液体処方成分を容易に含むことが可能であるが、液体組成物であっても、活性成分への水 - 不混和性液体のアジュバント効果がスプレータンク中での配合組成物の希釈で損失されないよう、十分な水 - 不混和性の液体を組成物中に含むことは挑戦である。この挑戦は、相当量の液体処方成分を容易に導入し、かつ、なお固体で維持されることは本質的に不可能である固体組成物についてはさらに困難である。それにもかかわらず、カルボキサミド殺節足動物剤活性成分を活性成分の効能を増強するに十分な量の水 - 不混和性液体と一緒に含む固体配合組成物がここに発見された。

10

20

30

40

50

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】米国特許第6,747,047号明細書

【特許文献2】国際公開第2003/015519号パンフレット

【特許文献3】国際公開第2004/067528号パンフレット

【特許文献4】米国特許第6,603,044号明細書

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明は、質量基準で

(a) 0.1 ~ 50% の1種以上のカルボキサミド殺節足動物剤；

(b) 0.5 ~ 95% の水 - 不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子を含む粒状構成成分；

(c) 0.1 ~ 50% の分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分；ならびに

(d) 0 ~ 99.3% の1種以上の追加の配合成分

を含む固体殺節足動物剤組成物に関する。

【発明を実施するための形態】

【0009】

本明細書に使用される場合、用語「含んでなる」、「含んでなっている」、「含む」、「含んでいる」、「有する」、「有している」またはそれらの他のいずれかの変形は、非排他的包含を包括するように意図される。例えば、要素のリストを含んでなる組成物、プロセス、方法、物品または装置はそれらの要素のみに必ず限定されるのではなく、明白に記載されていないか、またはかかる組成物、プロセス、方法、物品もしくは装置に固有である他の要素を含んでもよい。さらに、それとは反対の記載が明白にされない限り、「あるいは、または、もしくは」は包含的論理和を指し、そして排他的論理和を指さない。例えば、条件AまたはBは以下のいずれか1つによって満たされる：Aが真であり（または存在する）、そしてBが偽である（または存在しない）。Aが偽であり（または存在しない）、そしてBが真である（または存在する）。ならびにAおよびBの両方が真である（または存在する）。

【0010】

また本発明の要素または構成成分を先行する不定冠詞「a」および「an」は、要素または構成成分の実例の数（すなわち、発生数）に関して非限定的であるように意図される。従って、「a」または「an」は1または少なくとも1を含むように読解されるべきであり、そして数が明らかに単数を意味しない限り、要素または構成成分の単数形は複数も含む。

【0011】

本明細書に使用される場合、「シリカ」という用語は、約2個の酸素原子対1個のケイ素原子の比で主に（例えば、少なくとも90または95質量%）ケイ素および酸素原子から構成され、それ故、 SiO_2 の実験式を有する固体化学物質を指す。シリカとしては、例えば、沈降シリカ、ヒュームドシリカ、アモルファスシリカ、珪藻土シリカ（珪藻土としても知られている）、ならびにこれらのシリカのシラン化形態が挙げられる。「ケイ酸」という用語は、主に（例えば、少なくとも90または95質量%）ケイ素、酸素および少なくとも1種の金属（例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム、アルミニウム）の原子から構成されている固体化学物質を指す。

【0012】

技術分野において通例公知であるとおり、「サッカライド」という用語は、単純な糖質類（アルドースまたはケトース単糖）（例えば、グルコース）であるか、または、二糖類（例えば、スクロース、ラクトース）、三糖類あるいは多糖類からのグリコシド結合を解して単純な糖質と一緒に結合されている化合物のいずれかである化学化合物を指す。多糖

10

20

30

40

50

類としてはデンプンが挙げられる。サッカライドは、糖質分子の置換基が変性された化合物は含まない。例えば、マンニトールは、糖質またはサッカライドではないが、変性糖質または糖質誘導体としてみなすことが可能である。

【 0 0 1 3 】

「孔」という用語は、粒子（または粒子凝塊物）中の空隙を指し、空隙は幅広であるよりも深いような寸法を有する。孔径としてのこのような寸法に関連する孔は密閉気孔（すなわち、外部流体から隔絶されていると共に、周辺から完全に独立している孔）を含まない。従って、他に示されていない限りにおいて、本開示および特許請求の範囲においては、「孔」という用語は、開口気孔（すなわち、粒状構成成分外部の流体が到達可能である孔）を指す。孔は、粒子の内部への流体の浸潤（すなわち吸収）を許容する。浸入体積は、多孔性粒子の単位質量当たりの収容されることが可能である流体の体積である。浸入体積について本明細書において用いられる単位は cm^3 / g である。内部表面積は、多孔性粒子の単位質量当たりの孔または空隙の凝集表面積である。内部表面積について本明細書において用いられる単位は m^2 / g である。平均孔径は孔の平均直径に関し、本明細書においては μm （すなわち、ミクロン）の単位を用いて記載されている。従来技術において周知であるとおり、多孔性物質の浸入体積、内部表面積および平均孔径は、Porous Materials, Inc. (Ithaca, NY, USA) により市販されているモデルなどの水銀圧入ポロシメータを用いて計測することが可能である。本明細書において記載されている浸入体積、内部表面積および平均孔径についての値は、水銀圧入ポロシメータを用いて計測した値を指す。水銀圧入ポロシメータを用いる間隙率計測について、平均孔径と内部表面積との積が浸入体積に 4 を乗算したものに等しくなるよう円柱状の孔が仮定される。

【 0 0 1 4 】

本発明の実施形態は：

実施形態 1 . 構成成分 (a)（すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤）が、炭素原子に結合している（少なくとも）2 つのピシナルカルボキサミド部分を含むカルボキサミド殺節足動物剤を含む、発明の概要に記載の組成物を含む。

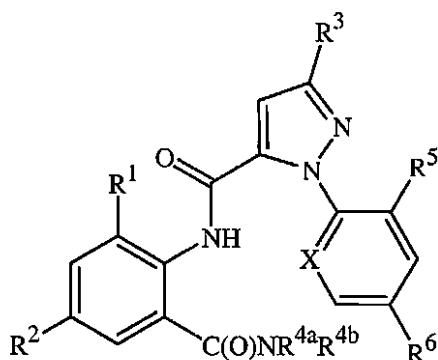
【 0 0 1 5 】

実施形態 1 A . 構成成分 (a) が、リアノジンレセプタリガンドであるカルボキサミド殺節足動物剤から選択される発明の概要または実施形態 1 に記載の組成物。

【 0 0 1 6 】

実施形態 2 . 構成成分 (a)（すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤）が、式 1

【 化 1 】



1

(式中、

X は、N、CF、CCl、CBr または CI であり；

R¹ は、CH₃、Cl、Br または F であり；

10

20

30

40

50

R^2 は、H、F、Cl、Br または -CN であり；

R^3 は、F、Cl、Br、 $C_1 \sim C_4$ ハロアルキルまたは $C_1 \sim C_4$ ハロアルコキシであり；

R^{4a} は、H、 $C_1 \sim C_4$ アルキル、シクロプロピルメチルまたは 1 - シクロプロピルエチルであり；

R^{4b} は、H または CH_3 であり；

R^5 は、H、F、Cl または Br であり；および

R^6 は、H、F、Cl または Br である）

のアントラニルアミド、その N - オキシドおよび塩から選択される、発明の概要または実施形態 1 あるいは 1A に記載の組成物。

10

【0017】

実施形態 2A . 構成成分 (a) が、式 1 のアントラニルアミド、その N - オキシドおよび塩 (式中、X は N であり； R^1 は CH_3 であり； R^2 は Cl または -CN であり； R^3 は Cl、Br または CF_3 であり； R^{4a} は $C_1 \sim C_4$ アルキルであり； R^{4b} は H であり； R^5 は Cl であり；および R^6 は H である) から選択される実施形態 2 の組成物。

【0018】

実施形態 2B . 構成成分 (a) が、式 1 のアントラニルアミド、その N - オキシドおよび塩 (式中、X は N； R^1 は CH_3 であり； R^2 は Cl または -CN であり； R^3 は Cl、Br または CF_3 であり； R^{4a} は Me または $CH(CH_3)_2$ であり； R^{4b} は H であり； R^5 は Cl であり；および R^6 は H である) から選択される実施形態 2A の組成物。

20

【0019】

実施形態 2C . 構成成分 (a) が：

N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [[(1 - メチルエチル) - アミノ] - カルボニル] - フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 3 - (トリフルオロメチル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 3 - (トリフルオロメチル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [[(1 - メチルエチル) アミノ] カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

30

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] - フェニル] - 3 - (トリフルオロメチル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

40

3 - ブロモ - 1 - (2 - クロロフェニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [[(1 - メチルエチル) - アミノ] カルボニル] フェニル] - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - 1 - (2 - クロロフェニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) - カルボニル] - フェニル] - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - 1 - (2 - クロロフェニル) - N - [2, 4 - ジクロロ - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] - フェニル] - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - [[(シクロプロピルメチル) アミノ] カルボニル]

50

ル] - 6 - メチル - フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - [[(シクロプロピルメチル) - アミノ] - カルボニル] - 6 - メチルフェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - [[(1 - シクロプロピルエチル) アミノ] カルボニル] - 6 - メチル - フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド、および

3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - [[(1 - シクロプロピルエチル) - アミノ] カルボニル] - 6 - メチルフェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド

10

からなる群から選択される実施形態 2 B の組成物。

【0020】

実施形態 2 D . 構成成分 (a) が 3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミドを含む実施形態 2 ~ 2 C のいずれか 1 つの組成物。

【0021】

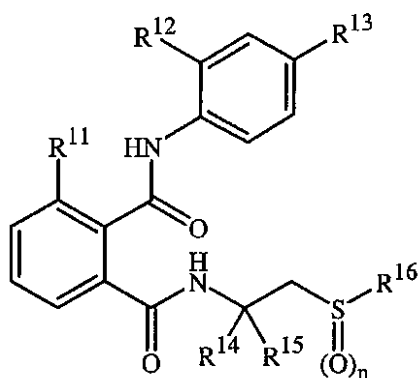
実施形態 2 E . 構成成分 (a) が 3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミドを含む実施形態 2 ~ 2 C のいずれか 1 つの組成物。

20

【0022】

実施形態 3 . 構成成分 (a) (すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤) が、式 2

【化 2】



2

30

(式中

R^{11} は、 CH_3 、 Cl 、 Br または I であり；

R^{12} は、 CH_3 または Cl であり；

40

R^{13} は、 $C_1 \sim C_3$ フルオロアルキルであり；

R^{14} は、 H または CH_3 であり；

R^{15} は、 H または CH_3 であり；

R^{16} は、 $C_1 \sim C_2$ アルキルであり；および

n は、0、1 または 2 である)

のフタル酸ジアミドおよびその塩から選択される発明の概要または実施形態 1 あるいは 1 A に記載の組成物。

【0023】

実施形態 3 A . 構成成分 (a) が、式 2 のフタル酸ジアミドおよびその塩 (式中、 R^{11} は Cl 、 Br または I であり； R^{12} は CH_3 であり； R^{13} は CF_3 、 CF_2CF_3

50

または $CF(CF_3)_2$ であり；および R^{16} は CH_3 である）から選択される実施形態 3 の組成物。

【0024】

実施形態 3 B . 構成成分 (a) が、 N^2 - [1 , 1 - ジメチル - 2 - (メチルスルホニル) エチル] - 3 - ヨード - N^1 - [2 - メチル - 4 - [1 , 2 , 2 , 2 - テトラフルオロ - 1 - (トリフルオロメチル) エチル] フェニル] - 1 , 2 - ベンゼンジカルボキサミドである実施形態 3 A の組成物。

【0025】

実施形態 3 C . 構成成分 (a) が、 N^2 - [1 , 1 - ジメチル - 2 - (メチルスルホニル) エチル] - 3 - ヨード - N^1 - [2 - メチル - 4 - [1 , 2 , 2 , 2 - テトラフルオロ - 1 - (トリフルオロメチル) エチル] フェニル] - 1 , 2 - ベンゼンジカルボキサミドを含む実施形態 3 または 3 A の組成物。

10

【0026】

実施形態 4 . 構成成分 (a) (すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤) が、約 80 を超える融点 (他の成分または構成成分が存在しないニート) を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 3 C のいずれか 1 つに記載の組成物。

【0027】

実施形態 4 A . 構成成分 (a) が約 100 を超える融点を有する実施形態 4 の組成物。

【0028】

実施形態 4 B . 構成成分 (a) が約 120 を超える融点を有する実施形態 4 A の組成物。

20

【0029】

実施形態 4 C . 構成成分 (a) が約 160 を超える融点を有する実施形態 4 B の組成物。

【0030】

実施形態 4 D . 構成成分 (a) が約 180 を超える融点を有する実施形態 4 C の組成物。

【0031】

実施形態 4 E . 構成成分 (a) が約 200 を超える融点を有する実施形態 4 D の組成物。

30

【0032】

実施形態 5 . 構成成分 (a) (すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤) が、質量基準で組成物の少なくとも約 1 % である発明の概要または実施形態 1 ~ 4 E のいずれか 1 つに記載の組成物。

【0033】

実施形態 6 . 構成成分 (a) が、質量基準で組成物の約 20 % 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 5 のいずれか 1 つに記載の組成物。

【0034】

実施形態 6 A . 構成成分 (a) が質量基準で組成物の約 10 % 以下である実施形態 6 の組成物。

40

【0035】

実施形態 7 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアの粒子 (すなわち、水 - 不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子を含む粒状構成成分) の平均粒子径 (すなわち、体積モーメント平均、De Brouker 平均) が少なくとも約 $0.1 \mu m$ である発明の概要または実施形態 1 ~ 6 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【0036】

実施形態 7 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアの粒子の平均粒子径が少なくとも約 $5 \mu m$ である実施形態 7 の組成物。

【0037】

50

実施形態 8 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアの粒子の平均粒子径が約 $200\text{ }\mu\text{m}$ 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 7 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 3 8 】

実施形態 8 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアの粒子の平均粒子径が約 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下である実施形態 8 の組成物。

【 0 0 3 9 】

実施形態 9 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $0.05\text{ }\mu\text{m}$ の平均孔径を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 8 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 4 0 】

実施形態 9 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ の平均孔径を有する実施形態 9 の組成物。

10

【 0 0 4 1 】

実施形態 10 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $2\text{ }\mu\text{m}$ 以下の平均孔径を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 9 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 4 2 】

実施形態 10 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下の平均孔径を有する実施形態 10 の組成物。

【 0 0 4 3 】

実施形態 10 B . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下の平均孔径を有する実施形態 10 A の組成物。

20

【 0 0 4 4 】

実施形態 11 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $1\text{ m}^2/\text{g}$ の内部表面積を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 10 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 4 5 】

実施形態 11 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $20\text{ m}^2/\text{g}$ の内部表面積を有する実施形態 11 の組成物。

【 0 0 4 6 】

実施形態 11 B . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $80\text{ m}^2/\text{g}$ の内部表面積を有する実施形態 11 A の組成物。

【 0 0 4 7 】

30

実施形態 11 C . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $90\text{ m}^2/\text{g}$ の内部表面積を有する実施形態 11 B の組成物。

【 0 0 4 8 】

実施形態 11 D . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $100\text{ m}^2/\text{g}$ の内部表面積を有する実施形態 11 C の組成物。

【 0 0 4 9 】

実施形態 12 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $600\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の内部表面積を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 11 D のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 5 0 】

実施形態 12 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $400\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の内部表面積を有する実施形態 12 の組成物。

40

【 0 0 5 1 】

実施形態 12 B . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $200\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の内部表面積を有する実施形態 12 A の組成物。

【 0 0 5 2 】

実施形態 13 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $1\text{ cm}^3/\text{g}$ の浸入体積を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 12 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 5 3 】

実施形態 13 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $2\text{ cm}^3/\text{g}$ の浸入体積を有する実施形態 13 の組成物。

50

【 0 0 5 4 】

実施形態 1 3 B . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $3 \text{ cm}^3 / \text{g}$ の浸入体積を有する実施形態 1 3 A の組成物。

【 0 0 5 5 】

実施形態 1 3 C . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $4 \text{ cm}^3 / \text{g}$ の浸入体積を有する実施形態 1 3 B の組成物。

【 0 0 5 6 】

実施形態 1 3 D . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが少なくとも約 $5 \text{ cm}^3 / \text{g}$ の浸入体積を有する実施形態 1 3 C の組成物。

【 0 0 5 7 】

実施形態 1 4 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $20 \text{ cm}^3 / \text{g}$ 以下の浸入体積を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 1 3 D のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 5 8 】

実施形態 1 4 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが約 $10 \text{ cm}^3 / \text{g}$ 以下の浸入体積を有する実施形態 1 4 の組成物。

【 0 0 5 9 】

実施形態 1 5 . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが、少なくとも 1 種のシリカまたはケイ酸を含む発明の概要または実施形態 1 ~ 1 4 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 6 0 】

実施形態 1 5 A . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが、シリカ、ならびにリチウム、ナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウムおよびアルミニウムのケイ酸（これらの混合物を含む）からなる群から選択される少なくとも 1 種のシリカまたはケイ酸を含む実施形態 1 5 の組成物。

【 0 0 6 1 】

実施形態 1 5 B . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが、シリカ、ならびにマグネシウム、カルシウムおよびアルミニウムのケイ酸（これらの混合物を含む）からなる群から選択される少なくとも 1 種のシリカまたはケイ酸を含む実施形態 1 5 A の組成物。

【 0 0 6 2 】

実施形態 1 5 C . 構成成分 (b) 中の固体キャリアが、ケイ酸カルシウムを含む実施形態 1 5 B の組成物。

【 0 0 6 3 】

実施形態 1 6 . 固体キャリアが 20 で約 $10 \text{ g} / \text{L}$ 以下の水溶性を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 1 5 C のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 6 4 】

実施形態 1 6 A . 固体キャリアが 20 で約 $5 \text{ g} / \text{L}$ 以下の水溶性を有する実施形態 1 5 の組成物。

【 0 0 6 5 】

実施形態 1 6 B . 固体キャリアが 20 で約 $2 \text{ g} / \text{L}$ 以下の水溶性を有する実施形態 1 5 A の組成物。

【 0 0 6 6 】

実施形態 1 6 C . 固体キャリアが 20 で約 $1 \text{ g} / \text{L}$ 以下の水溶性を有する実施形態 1 5 B の組成物。

【 0 0 6 7 】

実施形態 1 7 . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分が少なくとも約 200 の標準沸点を有する発明の概要または実施形態 1 ~ 1 6 C のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 6 8 】

実施形態 1 7 A . 水 - 不混和性液体成分が少なくとも約 250 の標準沸点を有する実施形態 1 7 の組成物。

【 0 0 6 9 】

実施形態 1 7 B . 水 - 不混和性液体成分が少なくとも約 280 の標準沸点を有する実

10

20

30

40

50

施形態 17 A の組成物。

【 0 0 7 0 】

実施形態 17 C . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノール (種子油および果実油に由来するものを含む) の脂肪酸エステル、種子油および果実油、ならびに鉱油から選択される少なくとも 1 種の物質を含む発明の概要または実施形態 1 ~ 17 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 7 1 】

実施形態 17 D . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノールの脂肪酸エステルを含む実施形態 17 の組成物。

【 0 0 7 2 】

実施形態 17 E . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノールの脂肪酸エステルを含む実施形態 17 D の組成物。

【 0 0 7 3 】

実施形態 17 F . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノールの $C_{10} \sim C_{22}$ 脂肪酸エステルを含む実施形態 17 E の組成物。

【 0 0 7 4 】

実施形態 17 G . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノールの $C_{12} \sim C_{20}$ 脂肪酸エステルを含む実施形態 17 F の組成物。

【 0 0 7 5 】

実施形態 17 H . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノールの $C_{16} \sim C_{18}$ 脂肪酸エステルを含む実施形態 17 G の組成物。

【 0 0 7 6 】

実施形態 17 I . 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_2$ アルカノールの $C_{16} \sim C_{18}$ 脂肪酸エステルを含む実施形態 17 H の組成物。

【 0 0 7 7 】

実施形態 17 J . 水 - 不混和性液体成分が、メタノールの $C_{16} \sim C_{18}$ 脂肪酸エステルを含む実施形態 17 I の組成物。

【 0 0 7 8 】

実施形態 17 K . 水 - 不混和性液体成分がメチル化種子油を含む実施形態 17 C の組成物。

【 0 0 7 9 】

実施形態 17 L . 水 - 不混和性液体成分が、アブラヤシ、ヒマワリ、ダイズ、綿、ナタネまたはアマニのメチル化種子油 (これらの混合物を含む) を含む実施形態 17 K の組成物。

【 0 0 8 0 】

実施形態 17 M . 水 - 不混和性液体成分が、ヒマワリ、ダイズ、綿またはアマニのメチル化種子油を含む実施形態 17 L の組成物。

【 0 0 8 1 】

実施形態 17 N . 水 - 不混和性液体成分がメチル化大豆油 (大豆メチル) を含む実施形態 17 M の組成物。

【 0 0 8 2 】

実施形態 17 O . 水 - 不混和性液体成分が、アブラヤシ、ヒマワリ、ダイズ、綿またはナタネのメチル化種子油を含む実施形態 17 N の組成物。

【 0 0 8 3 】

実施形態 17 P . 水 - 不混和性液体成分が、ダイズまたはナタネのメチル化種子油を含む実施形態 17 O の組成物。

【 0 0 8 4 】

実施形態 18 . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が少なくとも約 1 : 3 である発明の概要または実施形態 1 ~ 17 P のいずれか 1 つに記載の組成物。

10

20

30

40

50

【 0 0 8 5 】

実施形態 18 A . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が少なくとも約 1 : 2 である実施形態 18 の組成物。

【 0 0 8 6 】

実施形態 18 B . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が少なくとも約 2 : 3 である実施形態 18 A の組成物。

【 0 0 8 7 】

実施形態 19 . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が約 5 : 1 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 18 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 8 8 】

実施形態 19 A . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が約 4 : 1 以下である実施形態 19 の組成物。

【 0 0 8 9 】

実施形態 19 B . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が約 3 : 1 以下である実施形態 19 A の組成物。

【 0 0 9 0 】

実施形態 19 C . 構成成分 (b) 中の水 - 不混和性液体成分対固体キャリアの質量比が約 2 : 1 以下である実施形態 19 B の組成物。

【 0 0 9 1 】

実施形態 20 . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分対構成成分 (a) (すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤) の質量比が少なくとも約 1 : 1 である発明の概要または実施形態 1 ~ 19 C のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 9 2 】

実施形態 20 A . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分対構成成分 (a) の質量比が少なくとも約 3 : 1 である実施形態 20 の組成物。

【 0 0 9 3 】

実施形態 20 B . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分対構成成分 (a) の質量比が少なくとも約 4 : 1 である実施形態 20 A の組成物。

【 0 0 9 4 】

実施形態 21 . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分対構成成分 (a) の質量比が約 40 : 1 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 20 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 9 5 】

実施形態 21 A . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分対構成成分 (a) の質量比が約 20 : 1 以下である実施形態 21 の組成物。

【 0 0 9 6 】

実施形態 21 B . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分対構成成分 (a) の質量比が約 10 : 1 以下である実施形態 21 A の組成物。

【 0 0 9 7 】

実施形態 22 . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分が、質量基準で組成物の少なくとも約 1 % である発明の概要または実施形態 1 ~ 21 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 0 9 8 】

実施形態 22 A . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分が、質量基準で組成物の少なくとも約 10 % である実施形態 22 の組成物。

【 0 0 9 9 】

実施形態 22 B . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分が、質量基準で組成物の少なくとも約 30 % である実施形態 22 A の組成物。

【 0 1 0 0 】

実施形態 22 C . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分が、質量基準で組成物の少なくとも約 35 % である実施形態 22 B の組成物。

10

20

30

40

50

【 0 1 0 1 】

実施形態 2 3 . 構成成分 (b) の水 - 不混和性液体成分が質量基準で組成物の約 4 0 % 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 2 2 C のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 0 2 】

実施形態 2 4 . 構成成分 (b) が、質量基準で組成物の少なくとも約 5 % である発明の概要または実施形態 1 ~ 2 3 のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 0 3 】

実施形態 2 4 A . 構成成分 (b) が、質量基準で組成物の少なくとも約 2 0 % である実施形態 2 4 の組成物。

【 0 1 0 4 】

実施形態 2 5 . 構成成分 (b) が質量基準で組成物の約 7 0 % 以下である発明の概要またはいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 0 5 】

実施形態 2 5 A . 構成成分 (b) が質量基準で組成物の約 6 0 % 以下である実施形態 2 5 の組成物。

【 0 1 0 6 】

実施形態 2 6 . 構成成分 (c) (すなわち、分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分) が、アルキルナフタレンスルホン酸塩 (すなわち、アルキルナフタレンスルホン酸の塩) 、ナフタレンホルムアルデヒド縮合物スルホン酸塩の塩 (すなわち、スルホン化ナフタレンホルムアルデヒド縮合物の塩) 、およびリグノスルホン酸塩 (すなわち、リグノスルホン酸の塩) からなる群から選択される 1 種以上の界面活性剤を含む発明の概要または実施形態 1 ~ 2 5 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 0 7 】

実施形態 2 6 A . 構成成分 (c) が 1 種以上のリグノスルホン酸塩を含む実施形態 2 6 の組成物。

【 0 1 0 8 】

実施形態 2 6 B . 構成成分 (c) が、1 種以上のナトリウム、カリウムまたはカルシウムリグノスルホン酸塩を含む実施形態 2 6 A の組成物。

【 0 1 0 9 】

実施形態 2 7 . 構成成分 (c) が、質量基準で組成物の少なくとも約 1 % である発明の概要または実施形態 1 ~ 2 6 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 1 0 】

実施形態 2 7 A . 構成成分 (c) が、質量基準で組成物の少なくとも約 5 % である実施形態 2 7 の組成物。

【 0 1 1 1 】

実施形態 2 8 . 構成成分 (c) が質量基準で組成物の約 3 0 % 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 2 7 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 1 2 】

実施形態 2 8 A . 構成成分 (c) が質量基準で組成物の約 1 5 % 以下である実施形態 2 8 の組成物。

【 0 1 1 3 】

実施形態 2 9 . 構成成分 (d) (すなわち、1 種以上の追加の配合成分) が、潤滑剤、固化防止剤、化学的安定化剤および固体希釈剤からなる群から選択される 1 種以上の配合成分を含む発明の概要または実施形態 1 ~ 2 8 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 1 4 】

実施形態 2 9 A . 構成成分 (d) が、粉碎添加物、バインダおよび水溶性希釈剤からなる群から選択される 1 種以上の配合成分を含む発明の概要または実施形態 1 ~ 2 9 のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 1 5 】

実施形態 2 9 B . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 1 ~ 約 1 5 % の範囲の量で

10

20

30

40

50

1 種以上のクレイを含む発明の概要または実施形態 1 ~ 2 9 A のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 1 6 】

実施形態 2 9 C . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 1 ~ 約 8 5 % の範囲の量で 1 種以上のサッカライドを含む発明の概要または実施形態 1 ~ 2 9 B のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 1 7 】

実施形態 2 9 D . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 5 ~ 約 3 5 % の範囲の量で 1 種以上のサッカライドを含む実施形態 2 9 C の組成物。

【 0 1 1 8 】

実施形態 2 9 E . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 5 ~ 約 2 5 % の範囲の量で 1 種以上のサッカライドを含む実施形態 2 9 D の組成物。

【 0 1 1 9 】

実施形態 2 9 F . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 1 ~ 約 8 0 % の範囲の量でラクトースー水和物を含む実施形態 2 9 C の組成物。

【 0 1 2 0 】

実施形態 2 9 G . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 1 ~ 約 3 5 % の範囲の量でラクトースー水和物を含む実施形態 2 9 F の組成物。

【 0 1 2 1 】

実施形態 2 9 H . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 1 ~ 約 2 5 % の範囲の量でラクトースー水和物を含む実施形態 2 9 G の組成物。

【 0 1 2 2 】

実施形態 2 9 I . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の約 0 . 1 ~ 約 5 % の範囲の量でスクロースを含む実施形態 2 9 C の組成物。

【 0 1 2 3 】

実施形態 3 0 . 構成成分 (d) が、質量基準で組成物の少なくとも約 5 % である発明の概要または実施形態 1 ~ 2 9 I のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 2 4 】

実施形態 3 1 . 構成成分 (d) が質量基準で組成物の約 4 0 % 以下である発明の概要または実施形態 1 ~ 3 0 のいずれか 1 つに記載の組成物。

【 0 1 2 5 】

実施形態 3 1 A . 構成成分 (d) が質量基準で組成物の約 3 0 % 以下である実施形態 3 1 の組成物。

【 0 1 2 6 】

本発明の実施形態は、いずれの方法でも組み合わせることが可能である。

【 0 1 2 7 】

「カルボキサミド殺節足動物剤」という用語は、本文脈において、その分子構造中に 1 つ以上のカルボキサミド部分を含む節足有害生物の防除に有用である化合物を示す。カルボキサミド部分は極性であって水素結合を補助するため、カルボキサミド殺節足動物剤は、典型的には、純粋な形態においては、室温で（例えば、2 0 ）結晶性固形分である。従って、典型的には、構成成分 (a) の 1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤の少なくとも 1 種は、約 2 0 を超える、より典型的には約 5 0 を超える、より典型的には約 8 0 を超える、さらにより典型的には約 1 0 0 超、および最も典型的には約 1 2 0 、 1 6 0 、 1 8 0 またはさらには 2 0 0 超の融点を有する。度々、構成成分 (a) の 1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤のすべては、約 8 0 を超える、約 1 0 0 超、または、約 1 2 0 、 1 6 0 、 1 8 0 またはさらには 2 0 0 超もの融点を有する。典型的には、構成成分 (a) の 1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤は、約 1 0 g / L 未満およびより典型的には約 5 g / L 未満の水溶性を有する。

【 0 1 2 8 】

従来技術において周知であるとおり、「カルボキサミド」という用語は、式 A に示され

10

20

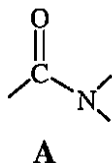
30

40

50

ている立体配置に結合されている炭素、窒素および酸素原子を含む部分を指す。式 A 中の炭素原子は、カルボキサミド部分が結合しているラジカル中の炭素原子に結合している。式 A 中の窒素原子は式 A のカルボニル炭素に結合していると共に、他の 2 つの原子にも結合しており、その少なくとも一方の原子は、カルボキサミド部分が結合している他のラジカルの水素原子または炭素原子から選択される。

【化 3】



10

【0129】

一実施形態において、本組成物は、室温で固体である少なくとも 1 種のカルボキサミド殺節足動物剤を含むと共に、少なくとも 2 つのカルボキサミド部分を含有する。他の実施形態において、少なくとも 1 種のカルボキサミド殺節足動物剤は、炭素環または複素環の炭素原子（すなわち、オルト配置、換言すると、炭素原子に結合した 2 つのビシナルカルボキサミド部分）に隣接して結合している少なくとも 2 つのカルボキサミド部分を含有する。これにより、各カルボキサミド部分は、式 A のカルボニル炭素または式 A の窒素原子を介して、炭素環または複素環の炭素原子に独立して結合することが可能である。従って、隣接配置にある各カルボキサミド部分がカルボニル炭素を介して結合していることが可能であり、または各カルボキサミド部分が窒素原子を介して結合していることが可能であり、または一方のカルボキサミド部分がカルボニル炭素を介して結合していると共に他方のカルボキサミド部分が窒素原子を介して結合していることが可能である。分子構造中の 2 つのビシナルカルボキサミド部分の存在は、強い結晶格子引力、および比較的高い融点をもたらすことが可能である。さらなる実施形態において、少なくとも 1 種のカルボキサミド殺節足動物剤の炭素環または複素環は芳香族（すなわち、芳香族についての H u e c k e l の $4n + 2$ ルールを満たす）である。

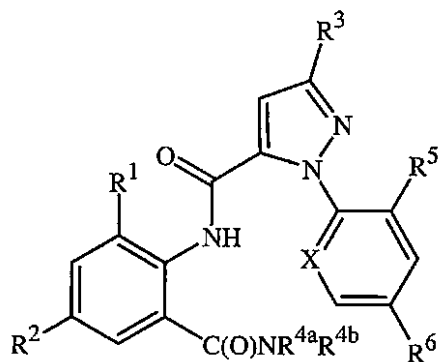
20

【0130】

本発明の組成物において有用なカルボキサミド殺節足動物剤として特に注目すべきは式 1 のもの、N - オキシドおよびその塩、ならびに式 2 のものおよびその塩である。

30

【化 4】



1

40

式中

X は N、CF、CCl、CBr または CI であり；

R¹ は、CH₃、Cl、Br または F であり；

R² は、H、F、Cl、Br または -CN であり；

R³ は、F、Cl、Br、C₁ ~ C₄ ハロアルキルまたは C₁ ~ C₄ ハロアルコキシで

50

あり；

R^{4a} は、H、 $C_1 \sim C_4$ アルキル、シクロプロピルメチルまたは 1 - シクロプロピルエチルであり；

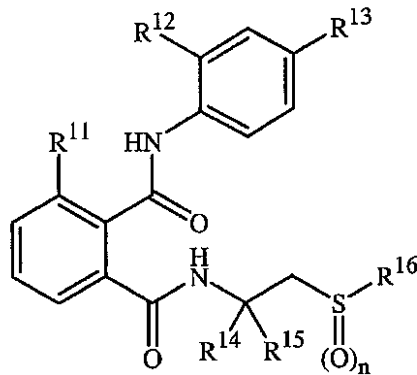
R^{4b} は、H または CH_3 であり；

R^5 は、H、F、Cl または Br であり；および

R^6 は、H、F、Cl または Br である。

【0131】

【化5】



2

式中

R^{11} は、 CH_3 、Cl、Br または I であり；

R^{12} は、 CH_3 または Cl であり；

R^{13} は、 $C_1 \sim C_3$ フルオロアルキルであり；

R^{14} は、H または CH_3 であり；

R^{15} は、H または CH_3 であり；

R^{16} は、 $C_1 \sim C_2$ アルキルであり；および

n は、0、1 または 2 である。

【0132】

上記の列挙において、単独で、または「ハロアルキル」あるいは「フルオロアルキル」などの複合語で用いられる「アルキル」という用語は、メチル、エチル、n - プロピル、i - プロピル、または異なるブチル異性体などの直鎖または分岐アルキルを含む。「アルコキシ」としては、例えば、メトキシ、エトキシ、n - プロピルオキシ、イソプロピルオキシおよび異なるブトキシ異性体が挙げられる。用語「ハロゲン」としては、単独または「ハロアルキル」のような組み合わせた語において、フッ素、塩素、臭素またはヨウ素が挙げられる。さらに、「ハロアルキル」または「ハロアルコキシ」のような組み合わせた語において使用される場合、前記アルキルは、同一または異なってもよいハロゲン原子によって部分的または完全に置換されていてもよい。「ハロアルキル」の例としては、 CF_3 、 CH_2Cl 、 CH_2CF_3 および CCl_2CF_3 が挙げられる。「ハロアルコキシ」等という用語は、用語「ハロアルキル」と同様に定義される。「ハロアルコキシ」の例としては、 OCF_3 、 OCH_2Cl 、 $OCH_2CH_2CHF_2$ および OCH_2CF_3 が挙げられる。

【0133】

置換基中の炭素原子の総数は接頭部「 $C_i \sim C_j$ 」により示され、ここで、i および j は 1 ~ 4 の数字である。例えば、 $C_1 \sim C_4$ アルキルは種々の異性体を含むメチルからブチルを示す。

【0134】

置換基は上記のとおりである式 1 および式 2 の化合物の各々は、フェニル環の炭素原子に結合しているビシナルカルボキサミド置換基を有する。式 1 においては、一方のカルボ

キサミド部分がカルボニル炭素を介して結合していると共に他方のカルボキサミド部分が窒素原子を介して結合しており、式 2 においては、両方のカルボキサミド部分がカルボニル炭素を介して、カルボキサミド部分の隣接配置を補助するフェニル環に結合している。式 1 および式 2 の化合物の殺節足動物活性は、筋細胞中のリアノジンレセプタへの結合に関与してチャネルを開放し、原形質にカルシウムイオンを放出させると考えられている。カルシウムイオン貯蔵の欠乏は節足動物に麻痺および死をもたらす。従って、式 1 および 2 のカルボキサミド殺節足動物剤化合物は、リアノジンレセプタリガンドとして説明される。国際公開第 2 0 0 4 / 0 2 7 0 4 2 号パンフレットは、リアノジンレセプタリガンドについてのアッセイを記載している。部分的にはあるがこれらの分子構造中の 2 つのカルボキサミド部分のために、純粋状態での式 1 および 2 の化合物は、典型的には、比較的高い融点、すなわち約 1 5 0 超、および、度々、さらには 2 0 0 超を有する結晶性固形分である。従って、本発明の組成物は、これらの化合物の殺節足動物効能を促進させることが可能である。従って、構成成分 (a) (すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤) が、リアノジンレセプタリガンドである少なくとも 1 種のカルボキサミド殺節足動物剤を含む本発明の組成物に注目されたい。また、構成成分 (a) が、リアノジンレセプタリガンドであるカルボキサミド殺節足動物剤から選択される本発明の組成物にも注目されたい。式 1 および 2 の化合物、ならびにこれらを調製する方法は特許文献に報告されている；例えば、米国特許第 6 , 7 4 7 , 0 4 7 号明細書、および国際公開第 2 0 0 3 / 0 1 5 5 1 8 号パンフレット、国際公開第 2 0 0 3 / 0 1 5 5 1 9 号パンフレットおよび式 1 に関して国際公開第 2 0 0 4 / 0 6 7 5 2 8 号パンフレット、および式 2 に関して米国特許第 6 , 6 0 3 , 0 4 4 号明細書を参照のこと。

【 0 1 3 5 】

構成成分 (a) (すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤) が：

3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] - フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [[(1 - メチルエチル) アミノ] カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 3 - (トリフルオロメチル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 3 - (トリフルオロメチル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [[(1 - メチルエチル) アミノ] カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 3 - (トリフルオロメチル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

3 - ブロモ - 1 - (2 - クロロフェニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [[(1 - メチルエチル) アミノ] - カルボニル] - フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

3 - ブロモ - 1 - (2 - クロロフェニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

3 - ブロモ - 1 - (2 - クロロフェニル) - N - [2 , 4 - ジクロロ - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - [[(シクロプロピルメチル) アミノ] カルボニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (式 1)、

10

20

30

40

50

ル] - 6 - メチルフェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド(式1)、

3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - [[(シクロプロピルメチル) アミノ] - カルボニル] - 6 - メチルフェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド(式1)、

3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - [[(1 - シクロプロピルエチル) アミノ] カルボニル] - 6 - メチルフェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド(式1)、

3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - [[(1 - シクロプロピルエチル) アミノ] カルボニル] - 6 - メチルフェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド(式1)、および

N^2 - [1, 1 - ジメチル - 2 - (メチルスルホニル) エチル] - 3 - ヨード - N^1 - [2 - メチル - 4 - [1, 2, 2, 2 - テトラフルオロ - 1 - (トリフルオロメチル) エチル] フェニル] - 1, 2 - ベンゼンジカルボキサミド(式2)

からなる群から選択されるカルボキサミド殺節足動物剤を含む発明の概要に記載の組成物に特に注目されたい。

【0136】

本組成物におけるカルボキサミド殺節足動物剤として特に注目すべきは、3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミドおよび3 - ブロモ - N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] - フェニル] - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミドである。

【0137】

本組成物におけるカルボキサミド殺節足動物剤(例えば式1)はまた、N - オキシドの形態であることが可能である。当業者は、窒素はオキシドを酸化するために利用可能な孤立電子対を必要とするために、すべての窒素含有複素環のすべてがN - オキシドを形成することが可能であるわけではないことを理解するであろう；当業者は、N - オキシドを形成することが可能である窒素含有複素環を認識するであろう。当業者はまた、第三級アミンがN - オキシドを形成することが可能であることを認識するであろう。複素環および第三級アミンのN - オキシドの調製のための合成方法は当業者によりきわめて周知であり、ペルオキシ酢酸およびm - クロロ安息香酸(MCPBA)などのペルオキシ酸；過酸化水素；t - ブチルヒドロ過酸化物などのアルキルヒドロ過酸化物；過ホウ酸ナトリウム；およびジメチルジオキシランなどのジオキシランでの複素環および第三級アミンの酸化が含まれる。N - オキシドの調製のためのこれらの方法は、文献において広範に記載および概説されてきており、例えば：T. L. Gilchrist, Comprehensive Organic Synthesis, 第7巻、第748~750ページ、S. V. Ley編、Pergamon Press；M. TislerおよびB. Stanovnik, Comprehensive Heterocyclic Chemistry, 第3巻、第18~20ページ、A. J. BoultonおよびA. McKillop編、Pergamon Press；M. R. GrimmettおよびB. R. T. Keene, Advances in Heterocyclic Chemistry, 第43巻、第149~161ページ、A. R. Katritzky編、Academic Press；M. TislerおよびB. Stanovnik, Advances in Heterocyclic Chemistry, 第9巻、第285~291ページ、A. R. KatritzkyおよびA. J. Boulton編、Academic Press；およびG. W. H. CheesemanおよびE. S. G. Werstiuk, Advances in Heterocyclic Chemistry, 第22巻、第390~392ページ、A. R. KatritzkyおよびA. J. Boulton編、Academic Pressを参照のこと。

【 0 1 3 8 】

当業者は、環境条件および生理的条件下では化学化合物の塩は対応する非塩形態と平衡状態にあるため、塩は、非塩形態の生物学的実用性を共有することを認識する。それ故、カルボキサミド殺節足動物剤（例えば、式 1 または 2）の広く多様な塩が本組成物において有用である（すなわち、農学上好適である）。かかる塩としては、臭化水素酸、塩酸、硝酸、リン酸、硫酸、酢酸、酪酸、フマル酸、乳酸、マレイン酸、マロン酸、シュウ酸、プロピオン酸、サリチル酸、酒石酸、4 - トルエンスルホン酸または吉草酸などの無機または有機酸との酸付加塩が挙げられる。カルボキサミド殺節足動物剤がカルボン酸またはフェノールなどの酸性部分を含有する場合には、塩はまた、有機塩基（例えば、ピリジン、トリエチルアミンまたはアンモニア）または無機塩基（例えば、ナトリウム、カリウム、リチウム、カルシウム、マグネシウムまたはバリウムの水素化物、水酸化物または炭酸塩）と一緒に形成されるものを含むことが可能である。

10

【 0 1 3 9 】

構成成分（a）（すなわち、1 種以上のカルボキサミド殺節足動物剤）は質量基準で本組成物の約 0 . 1 ~ 約 5 0 % の範囲であることができるが、本組成物は、典型的には、質量基準で組成物の約 1 % ~ 約 2 0 %、より典型的には約 1 % ~ 約 1 0 % で含む。

【 0 1 4 0 】

本発明の組成物において、構成成分（b）は水 - 不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子を含む粒状構成成分である。本発明の組成物は、一般に、構成成分（b）を質量基準で組成物の約 0 . 5 ~ 約 9 5 % の範囲の量で含むが、より典型的には、構成成分（b）は約 5 % ~ 約 7 0 % の量であり、最も典型的には構成成分（b）は質量基準で組成物の約 2 0 % ~ 約 6 0 % の量である。

20

【 0 1 4 1 】

「水 - 不混和性液体成分」という用語は、本明細書に使用される場合、2 0 で液体であると共に 2 0 で約 2 質量% 未満程度に水に可溶である化学化合物、または化学化合物の混合物を指す。水への液体化合物の低溶解度は、低い分子極性をもたらす。水 - 不混和性液体の低い分子極性は、水のきわめて高い極性よりもカルボキサミド殺節足動物剤の中等度の極性に近いために、カルボキサミド殺節足動物剤は、一般に、ほとんど溶解しない水よりも水 - 不混和性液体中により可溶性である。水 - 不混和性液体中へのカルボキサミド殺節足動物剤のより大きい溶解度は、葉角皮との接触を促進させることによりカルボキサミド殺節足動物剤の取り込みを促進させることが可能である。それにもかかわらず、水 - 不混和性液体成分は、本発明の組成物中に比較的限られた量で存在すると共に、その上、固体キャリア粒子に浸潤されているため、本組成物により提供されている向上した殺節足動物効能は特に意外である。

30

【 0 1 4 2 】

葉角皮へのカルボキサミド殺節足動物剤の輸送は、カルボキサミド殺節足動物剤および葉角皮の両方への水 - 不混和性液体成分の接触により促進される。接触を維持するために、水 - 不混和性液体成分は、比較的非揮発性であることが望ましい。本開示および特許請求の範囲の文脈において、「比較的非揮発性」という用語は、水 - 不混和性液体成分が少なくとも約 2 0 0 の標準沸点を有することを意味する。好ましくは、水 - 不混和性液体成分は、少なくとも約 2 5 0 、より好ましくは少なくとも約 2 8 0 の標準沸点を有する。従来技術において周知であるとおり、標準沸点は、1 0 1 k P a での沸点である。

40

【 0 1 4 3 】

本組成物の一実施形態において、水 - 不混和性液体成分は、2 0 で 5 0 c P 未満の粘度を有し、これは、水 - 不混和性液体成分の固体キャリア粒子への吸収を促進させることが可能である。本組成物の他の実施形態において、水 - 不混和性液体成分は、6 5 超の引火点および/または低い毒性を有し、これらの両方の特性は安全性の有益性をもたらす。

【 0 1 4 4 】

広い範囲の水 - 不混和性液体化合物が、本発明の組成物における水 - 不混和性液体成分

50

の形成に有用である。典型的には、水 - 不混和性の化合物は有機化合物（すなわち、1つ以上の炭素原子を含有する）である。特定の範囲の条件下（例えば、カルボキサミド殺節足動物剤、防除されるべき節足有害生物種、保護されるべき植物種、環境条件）で最も有効である水 - 不混和性液体化合物は単純な実験を通じて用意に判定することが可能である。一般に、 $C_1 \sim C_4$ アルカノール（種子油および果実油に由来するものを含む）の脂肪エステル、種子油および果実油、ならびに鉱油が本組成物において水 - 不混和性液体として有用である。これらの特定の水 - 不混和性液体は、低い極性、水溶性を有すると共に本組成物において良好に作用するばかりではなく、これらは比較的無毒であり、手ごろな価格で市販業者から容易に入手可能である。

【0145】

10

液体ペトロラタム、液体パラフィン、パラフィン油およびパラフィン系オイルとしても公知である鉱物油は、石油から得られる長鎖、液体炭化水素の混合物を含む。鉱物油は、多くの供給業者から、例えば、ISOPAR H (Deutsche Exxon Chemicals) または SUREMIX (DuPont (USA)) のように、直鎖鉱物油または乳化剤とのブレンドとして商業的に入手することが可能である。

【0146】

種子油および果実油、すなわち植物油は、植物から得られる油である。植物油は、典型的には、種子（例えば、ヒマワリ、ナタネ、ダイズ、コーン（トウモロコシ）、アマニ（亜麻））または果実（例えば、オリーブ）を圧搾または溶剤抽出することにより得られる。手ごろな価格で市販されている植物油の例は、ヒマワリ油、ナタネ油、カノーラ油、大豆油およびコーン油である。植物油は、脂肪酸グリセリド、すなわち脂肪酸のグリセロールエステルを主に含む。

20

【0147】

$C_1 \sim C_4$ アルカノールの脂肪酸エステル（すなわち、グリセロールの代わりに $C_1 \sim C_4$ アルカノールでエステル化された脂肪酸）は植物油より低い粘度を有し、それ故、本組成物の水 - 不混和性液体成分の形成に特に有用である。

【0148】

脂肪酸エステルの脂肪酸部分は、直鎖であるかまたは分岐であることが可能であるが、天然源においては典型的には直鎖である炭化水素鎖に結合するカルボキシレート部分から構成される。炭化水素鎖は飽和であることもまたは不飽和であることも可能であり；典型的には、炭化水素鎖は飽和である（すなわちアルキル）か、または、1つまたは2つの炭素 - 炭素二重結合を含有する（すなわちアルケニル）。奇数個の炭素原子（すなわち、炭化水素鎖中に偶数個の炭素原子）または偶数個の炭素原子（すなわち、炭化水素鎖中に奇数個の炭素原子）を含有する脂肪酸から形成された脂肪酸エステルが本発明の組成物において有用である。低級脂肪酸（例えば、わずかに4個の炭素原子を含有する）のエステルを本組成物中に含むことが可能であるが、これらは、極性、水溶性および揮発度を下げるために、高級脂肪酸のエステルと混合されていることが好ましく、少なくとも10個の炭素原子を有する脂肪酸のエステルが好ましい物理特性を有することが可能である。天然源から得られる脂肪酸は、典型的には、10 ~ 22個の炭素原子の範囲で偶数個の炭素原子を含有するため、これらの脂肪酸のアルカノールエステルは、商業的な入手性およびコストの理由から注目すべきである。偶数個の炭素原子を有する $C_{10} \sim C_{22}$ 脂肪酸エステルは例えば、エルカ酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、リノール酸およびリノレン酸である。12 ~ 20個の炭素原子を含有する脂肪酸のエステルを含む、本発明の組成物中の1種以上の脂肪酸エステルに注目されたい。水 - 不混和性液体成分が16 ~ 18個の炭素原子を含有する脂肪酸のエステルを含む本発明の組成物にさらに注目されたい。

30

40

【0149】

脂肪酸エステルの $C_1 \sim C_4$ アルカノール由来部分は未分岐（すなわち直鎖）であるかまたは分岐であることができるが、典型的には未分岐である。好ましい物理特性、商業的な入手可能性および価格を含む理由のために、 $C_1 \sim C_2$ アルカノールでエステル化され

50

た脂肪酸である脂肪酸エステルに注目すべきであり、 C_{11} アルカノール（すなわち、メタノール）であるエステル化された脂肪酸である脂肪酸エステルにさらに注目すべきである。本発明の組成物中の脂肪酸アルカノールエステルはまた、アルコール（例えば、メタノールおよびエタノール）の混合物から誘導することが可能である。

【0150】

天然源から得られる脂肪酸組成物（例えば、種子油）は、典型的には、様々な鎖長および異なる不飽和度を有する脂肪酸から構成される。このような脂肪酸混合物に由来する脂肪酸エステル組成物は、最初に脂肪酸エステルを分離する必要なく、本発明の組成物において有用であることができる。植物から得られる好適な脂肪酸エステル組成物としては、ヒマワリ、ナタネ、オリーブ、コーン、ダイズ、綿およびアマニ、ならびにアブラヤシの種子油および果実油が挙げられる。水 - 不混和性液体がヒマワリ、ダイズ、綿またはアマニの種子油に由来する脂肪酸メチルエステルを含む本発明の組成物に注目されたい。また、水 - 不混和性液体が、アブラヤシ、ヒマワリ、ダイズ、綿、ナタネまたはアマニ、特に、アブラヤシ、ヒマワリ、ダイズ、綿またはナタネ、ならびに、さらにはダイズまたはナタネの種子油に由来する脂肪酸メチルエステルを含む本発明の組成物にも注目されたい。水 - 不混和性液体が、大豆油（メチル化大豆油または大豆メチルとしても知られている）に由来する脂肪酸メチルエステルを含む本発明の組成物に特に注目されたい。

【0151】

アルカノールの脂肪酸エステルおよびこれらの調製方法は当該技術分野において周知である。例えば、「バイオディーゼル」は、典型的には、エタノールまたはより一般的にはメタノールの脂肪酸エステルを含む。脂肪酸アルカノールエステルの調製に用いられる2種の主要な経路は、他の脂肪酸エステル（度々、天然のエステルとグリセロール）とのエステル交換および脂肪酸から開始する直接エステル化である。これらの経路について多様な方法が知られている。例えば、直接エステル化は、硫酸などの強酸触媒の存在下に脂肪酸をアルカノールと接触させることにより達成されることが可能である。エステル交換は、硫酸などの強酸触媒、より一般的には、水酸化ナトリウムなどの強塩基の存在下に、出発脂肪酸エステルをアルコールと接触させることにより達成することが可能である。

【0152】

アルキル化種子油は、種子油のアルカノールとのエステル交換生成物である。例えば大豆メチルとしても知られるメチル化大豆油は、大豆油のメタノールとのエステル交換により生成されるメチルエステルを含む。大豆メチルは、それ故、脂肪酸のメチルエステルを、ダイズ種子油中のグリセロールと脂肪酸がエステル化されるおおよそのモル比で含む。大豆メチルなどのアルキル化種子油を蒸留してメチル脂肪酸エステルの割合を変更させることが可能であるが、この追加的なステップは、典型的には本発明の組成物に対する利点はもたらさない。

【0153】

本発明の組成物において、水 - 不混和性液体成分は、固体キャリアの粒子に浸潤（すなわち吸収）される。このキャリアは、水 - 不混和性液体成分に対する支持を提供すると共に、例えば、粉碎、造粒といったさらなる配合プロセスの最中の機械的強度をも提供する。従って、固体キャリアは、多孔性の吸収性材料から形成される。本発明の組成物は、典型的には殺節足動物用餌としては用いられず、キャリアは、典型的には、節足有害生物に誘引性の食料を含まない。所望の量の水 - 不混和性液体成分を吸収するために、固体キャリアは、十分な内部表面積および水 - 不混和性液体成分を受け入れるための十分な浸入体積を有している必要があり、水 - 不混和性液体成分の吸収を促進するために十分に大きい孔径を有している必要もある。典型的には、浸入体積は、 $1 \sim 20 \text{ cm}^3 / \text{g}$ 、より典型的には $3 \sim 10 \text{ cm}^3 / \text{g}$ および最も典型的には $5 \sim 10 \text{ cm}^3 / \text{g}$ である。内部表面積は、典型的には $20 \sim 400 \text{ m}^2 / \text{g}$ およびより典型的には $100 \sim 200 \text{ m}^2 / \text{g}$ である。平均孔径は、典型的には、 $0.05 \sim 2 \mu\text{m}$ 、より典型的には $0.05 \sim 1 \mu\text{m}$ 、および最も典型的には $0.1 \sim 0.5 \mu\text{m}$ である。このような特性を備える材料クラスとしては、沈降、アモルファスおよびヒュームドシリカ；リチウム、ナトリウム、マグネシウ

10

20

30

40

50

ム、カリウム、カルシウムおよびアルミニウムのケイ酸、珪藻土、ならびにベントナイト、カオリンおよびアタパルジャイトクレイが挙げられる。シリカの例としては、Degussa FK-35、SIPERNAT D-17、SIPERNAT 22およびSIPERNAT 50S（すべて沈降シリカ）、Degussa AEROSIL 200（ヒュームドシリカ）、Davison SYLOID 244（アモルファスシリカ）、Johns-Manville CELITE 209（珪藻土）が挙げられる。ケイ酸の例としては、Johns-Manville MICROCEL E（ケイ酸カルシウム）、Huber HUBERSORB 600（沈降アモルファスケイ酸カルシウム）、Harbourlite Perlite 2005（アモルファスケイ酸アルミニウム）およびHuber ZEOLEX 7A（ナトリウムケイ酸）が挙げられる。クレイの例としては、American Colloid VOLCLAY 325（ベントナイト）、Huber Bardenクレイ（カオリン）およびEnglehard MICROSORB LVM（アタパルジャイト）が挙げられる。

10

【0154】

シリカ化合物（すなわち、シリカまたはケイ酸）を含む固体キャリアが、本発明の組成物の構成成分（b）において特に良好に作用する。従って、構成成分（b）中の固体キャリアが、リチウム、ナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウムおよびアルミニウム（これらの混合物を含む）、ならびに特に、マグネシウム、カルシウムおよびアルミニウム（これらの混合物を含む）のシリカおよびケイ酸からなる群から選択される少なくとも1種のシリカまたはケイ酸を含む本発明の組成物に注目されたい。本組成物の構成成分（b）における固体キャリアとして特に有用とする孔径および他の特性を有する形態（例えば、MICROCEL E）で市販されているケイ酸カルシウムに特に注目されたい。

20

【0155】

組成物の配合プロセス、用途および使用に応じて、構成成分（b）における固体キャリアの水溶性は重要である場合と重要でない場合がある。固体キャリアが容易に水中に溶解する場合、噴霧の前の水中の組成物の希釈は、典型的には、水 - 不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子の分散体の代わりに、水 - 不混和性液体成分のエマルジョンを形成することとなる。それにもかかわらず、エマルジョンは、それでもなお良好な殺節足動物効能を提供することができる。水和剤を造粒するためなどの配合プロセスが水を含む場合、構成成分（b）中の固体キャリアは、比較的不水溶性であるべきである。典型的には、本組成物の構成成分（b）中の固体キャリアは比較的不水溶性である。本開示および特許請求の範囲の文脈における「比較的不水溶性」という表現は、粉末形態の固体キャリアを水中で20で6時間攪拌した結果、10g以下の固体キャリアが1Lの水中に溶解することを意味する。好ましくは、これらの条件下で、約5g以下、およびより好ましくは約2または1g以下の固体キャリアが1Lの水中に溶解する。マグネシウム、カルシウムおよびアルミニウムのクレイ、シリカおよびケイ酸は、典型的には、2g/L未満および、度々、これよりかなり低い水溶性を有する。

30

【0156】

粒子がその孔よりも小さいことは不可能であるために、孔径が粒子径に下限を設ける。従って、典型的には、固体キャリアの粒子の平均粒子径（すなわち、体積モーメント平均、De Broucker平均）は、少なくとも0.1μmおよびより典型的には少なくとも5μmである。水 - 不混和性液体成分の吸収速度は、粒子表面と中心間の距離が増えることによる粒子径の増大に伴って低下し得る。しかも、希釈された組成物が噴霧される場合、組成物中の粒子は、スプレーヘッドの開口部より小さくなくてはならない。従って、典型的には、固体キャリアの粒子の平均粒子径は、200μm以下およびより典型的には20μm以下である。

40

【0157】

典型的には、水 - 不混和性液体成分対構成成分（b）中の固体キャリアの質量比は少なくとも1:3である。1:2および2:3などのより大きい比が、組成物中により高い濃度の水 - 不混和性液体をもたらすために望ましい場合がある。市販されている材料で達成

50

可能な最大の比は、典型的には約 5 : 1 であり、材料に応じて、この限界は、4 : 1、3 : 1 または 2 : 1 などのより低い比であり得る。典型的には、構成成分 (b) の水 - 不混和性の成分対構成成分 (a) の質量比は少なくとも 1 : 1 であり、3 : 1 および 4 : 1 などのより高い比が、よりよい殺節足動物効能を提供し得る。典型的には、構成成分 (b) の水 - 不混和性の成分対構成成分 (a) の質量比は 40 : 1 以下、より典型的には、20 : 1 以下および最も典型的には、10 : 1 以下である。水 - 不混和性液体は、典型的には、組成物の総質量に基づいて、約 1 ~ 約 40 質量%、より典型的には、約 10 ~ 約 40 質量%、または約 30 ~ 約 40 質量%、および最も典型的には、約 35 ~ 約 40 質量%の量で存在する。

【0158】

本発明の組成物において、構成成分 (c) は、分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分である。本発明の組成物は、一般に、構成成分 (c) を、質量基準で組成物の約 0.1% ~ 約 50% の範囲の量で含むが、より典型的には、構成成分 (c) は、質量基準で組成物の約 1% ~ 約 30% の量であり、最も典型的には、構成成分 (b) は質量基準で組成物の約 5% ~ 約 15% の量である。

【0159】

配合物の技術分野において一般に理解されているとおり、「界面活性剤」という用語は、「表面活性剤」を意味し、液体に添加されたときにその液体の特性を表面で変化させる化学物質または化学物質の混合物を指す。特性の変化は、一般に、表面張力の変化であって典型的には低下を含む。本組成物において、界面活性剤構成成分 (c) は、分散性および湿潤性の両方を有する。界面活性剤構成成分 (c) はまた、消泡効果などの界面活性剤について知られている他の特性を有し得る。界面活性剤の分散性は同様の組成物の粒子間の粘着性の引力を低減させ、それ故、水での希釈後に粒子が一緒に固着する傾向を低減させる。一緒に固着する粒子は、水中に良好に分散しない凝集物の形成をもたらす。分散剤 (dispersing agents) とも呼ばれる分散剤 (dispersant) は、近接する粒子間の引力を低減することが可能である。界面活性剤の湿潤性は、液体の表面張力を低下させることにより液体の延展および浸透する能力を高める。湿潤性ならびに分散性は、固体配合物からの粒子の水性分散体の形成を促進させる。湿潤剤はまた、噴霧混合物の群葉表面の全体への延展を補助して、より良好な被覆面積をもたらすことが可能である。いくつかの界面活性剤は、分散性および湿潤性の両方を有する。しかしながら、通常は、界面活性剤は、分散または湿潤化効果のいずれかについて最も有用であろう。従って、典型的には、界面活性剤構成成分 (c) は、少なくとも 2 種の界面活性剤を含み、そのうちの少なくとも 1 種が分散剤とみなされ、その少なくとも 1 種が湿潤剤とみなされる。

【0160】

広く多様な分散剤が配合の技術分野において公知であり、McCutcheon's Detergents and Emulsifiers Annual、Allured Publ. Corp. (Ridgewood, New Jersey)、ならびに、Sisely および Wood、Encyclopedia of Surface Active Agents、Chemical Publ. Co., Inc. (New York)、1964 年に記載されているものが含まれる。分散剤の例としては、これらに限定されないが、リグノスルホン酸塩 (任意によりポリエトキシ化) のナトリウム、カルシウムおよびアンモニウム塩 (例えば、MARASPERSE N22) ; ナフタレン - スルホン酸塩またはアルキルナフタレン - スルホン酸塩のホルムアルデヒド縮合物 (例えば、MORWET D425) ; 縮合メチルナフタレンスルホン酸塩 (例えば、SUPRAGIL MNS/90) ; アルキルフェノールの、ホルムアルデヒドおよび任意により亜硫酸ナトリウムのアニオン性縮合物 ; ポリカルボン酸 (例えば、ポリアクリル酸およびコポリマー) の塩 (例えば、METASPERSE 550) ; トリスチリルフェノールエトキシレートのリン酸エステル (例えば、SOPROPHOR 3D33) ; ポリエチレン / ポリプロピレンブロックポリマー (例えば、PLURONIC F108、ATLO

10

20

30

40

50

X 4 9 1 2、A T L A S G - 5 0 0 0、S Y N P E R O N I C P E シリーズコポリマー) ; およびメチルメタクリレートグラフトコポリマー (例えば、A T L O X 4 9 1 3) などのエチレンオキシド - プロピレンオキシドベースのアクリル酸グラフトコポリマーが挙げられる。湿潤剤の例としては、これらに限定されないが、長鎖アルコール、アセチレン系ジオール、エトキシフッ化アルコールのアルキルスルホコハク酸塩 (例えば、エアロゾル O T B)、ラウリン酸塩、硫酸塩およびリン酸塩 ; エトキシ化シリコン ; アルキルフェノールエトキシレート ; ベンゼンスルホン酸塩 ; ドデシルベンゼンスルホン酸塩ナトリウム (例えば、R H O D A C A L D S 1 0) などのアルキル - 置換ベンゼンスルホン酸塩 ; アルキル - オレフィンスルホン酸塩 ; ナフタレンスルホン酸塩 ; アルキル置換ナフタレンスルホン酸塩 (例えば、M O R W E T E F W) ; およびアルコールエトキシ

10

【 0 1 6 1 】

本発明の組成物について特に有用な分散剤としては、M A R A S P E R S E N 2 2 などのリグノスルホン酸塩、アクリル酸ポリマーおよび M E T A S P E R S E 5 5 0 などのコポリマーおよび M O R W E T D 4 2 5 などのアルキルナフタレンスルホン酸塩ホルムアルデヒド縮合物のアニオン性塩が挙げられる。本発明の組成物について特に有用な湿潤剤としては、M O R W E T E F W などのアニオン性アルキル置換ナフタレンスルホン酸塩 ; 長鎖アルコールのアニオン性硫酸塩 ; エアロゾル O T B などのアルキルスルホコハク酸塩 ; ドデシルベンゼンスルホン酸塩ナトリウム (R H O D A C A L D S 1 0) などのアルキル置換ベンゼンスルホン酸塩が挙げられる。

20

【 0 1 6 2 】

本発明の組成物において、構成成分 (d) は、1 種以上の追加の配合成分を含む。構成成分 (d) は任意 (すなわち、本組成物の 0 % であり得る) であるが、典型的には、組成物は、質量基準で構成成分 (d) の少なくとも約 5 % を構成する。一般に、本発明の組成物は質量基準で構成成分 (d) の約 9 9 . 3 % 以下を構成し得るが、典型的には、構成成分 (d) は、質量基準で組成物の約 4 0 % 以下、より典型的には、質量基準で組成物の約 3 0 % 以下の量である。構成成分 (d) の追加の配合成分は、配合物の技術分野において公知である広く多様な処方成分から選択され得る。これらの処方成分の多くは、M C P u b l i s h i n g C o m p a n y 発行の M c C u t c h e o n ' s 2 0 0 1 V o l u m e 2 : F u n c t i o n a l M a t e r i a l s に記載されている。追加の配合成分としては、例えば、潤滑剤、固化防止剤、化学的安定化剤および固体希釈剤が挙げられる。本組成物の形成において特に有用である追加の配合成分は、粉碎助剤、バインダおよび水溶性希釈剤 (バインダ以外) である固体希釈剤である。

30

【 0 1 6 3 】

粉碎助剤は、典型的には、脆弱で、非塗沫性のクレイ、シリカおよび珪藻土などの無機化学物質である。粉碎助剤は、機械式インパクトミル内での蓄積を防止する。本発明の組成物において特に有用な粉碎助剤は、B a r d e n クレイ、ペントナイトクレイ、アタパルジャイトクレイ、および沈降およびヒュームドシリカである。本発明の組成物は、典型的には、質量基準で、組成物の約 1 % ~ 約 1 5 % の 1 種以上の粉碎添加物を含む。典型的には、本組成物中の 1 種以上の粉碎添加物は、クレイから選択される。

40

【 0 1 6 4 】

バインダは、配合物構成成分と一緒に結合していくことにより顆粒の機械的強度を高める。広く多様なバインダが、配合物の技術分野において公知である。本発明の組成物において特に有用なバインダは、一定のサッカライドおよび変性サッカライドである。これらとしては、一定の糖質 (例えば、スクロース)、糖質誘導体 (例えば、マンニトール)、ならびにデンプンおよびデキストリンなどの変性デンプンが挙げられる。デキストリンは、スターチを単独で、または微量の酸触媒 (これは、スターチの加水分解、続いて、転位反応および得られる断片の組み合わせを生じさせる) の存在下にドライローストすることによりもたらされる。特に有用なデキストリンは、多くの市販業者から入手可能である黄色デキストリンである。黄色デキストリンは、典型的には、スターチを、度々、1 5 0

50

長の温度で、微量の酸触媒の存在下にドライローストすることにより得られる。黄色デキストリンは、室温近くで水に実質的に可溶性である黄色がかった粉末である。バインダの最適な量は、単純な実験で判定することが可能である。スクロースがバインダとして用いられる場合、典型的には、組成物の約 0.1 質量%および約 5 質量%の量で本組成物中に含まれる。

【0165】

水溶性希釈剤は急速に水中に溶解し、それ故、顆粒の水分散性または水溶性のスケルトンを水に露出させて、顆粒の破壊および分散を加速させる。広範な水溶性希釈剤が、配合物の技術分野において公知である。これらは水中に急速に溶解する塩または炭水化物を含み；非限定的な例としては、ナトリウム、カリウム、マグネシウムおよび亜鉛、塩化ナトリウムおよび塩化カリウムのアルカリ金属リン酸塩、アルカリ土類リン酸塩、硫酸塩；安息香酸ナトリウム、ラクトースおよびスクロースが挙げられる。サッカライドおよび変性サッカライドバインダの多くが水溶性であり、それ故、水と接触したときの顆粒の破壊および分散を促進させる。ある種の水溶性希釈剤は、わずかな弱い結合能を有し、それ故、これらは水溶性希釈剤として主に有益である。本組成物において特に有用である、弱く結合している水溶性希釈剤は、ラクトース、典型的には、ラクトース-水和物の形態である。ラクトースが含まれている場合、これは、典型的には、質量基準で本組成物の約 1%～約 80%、より典型的には、約 1%～約 35%、および最も典型的には、約 1%～25%の量（その一水和物として）。

【0166】

本発明の組成物は、殺節足動物剤活性成分の配合に通例用いられるいずれかのタイプの固体組成物で形成されることが可能である。これらのタイプとしては、粉剤、粉末、顆粒、ペレット、プリル、香錠、錠剤等が挙げられる。典型的には、本発明の組成物は、先ず、水和剤として調製される。他の固体組成物タイプを、配合の技術分野において周知である一般的な方法を用いて水和剤から調製することが可能である。水への露出を含む方法に対しては、構成成分（b）の固体キャリアは比較的不水溶性であるべきである。

【0167】

本発明の組成物の水和剤は、水 - 不混和性液体成分を固体キャリアに吸収する工程、水 - 不混和性液体 - 浸潤キャリアを他の配合成分と混合する工程、および最後に混合物を粉碎する工程により調製することが可能である。

【0168】

固体キャリアを水 - 不混和性の成分に添加することが可能であるが、典型的には、水 - 不混和性液体を固体キャリアに徐々に添加することにより最良の結果が達成される。混合物は、次いで、典型的には、例えば、回転ミキサを低速で用いて、水 - 不混和性の成分で浸潤された粉末が流動性となるまで穏やかに攪拌される。水 - 不混和性液体を、固体キャリアへの添加の前に揮発性溶剤で希釈し、次いで、加熱および減圧などの方法を用いて溶剤が除去することが可能であるが；しかしながら、ほとんどの水 - 不混和性液体について、この手法は不要であり、従って、追加の処理労力およびコスト観点から望ましくない。

【0169】

水 - 不混和性液体 - 浸潤キャリアは、他の配合成分とブレンダーを用いて最も簡便に混合することが可能である。ブレンダーでの予備混合は、粉碎される前に処方成分を大規模に混合する。スクリー、パドル、コーンおよびリボンブレンダーのすべてが処方成分の予備混合に好適である。

【0170】

粉碎の主目的は、配合成分間の密接な接触をもたらすためである。例えば、300USメッシュスクリーンを備えるハンマーミルといった多くのインパクトミルが好適である。

【0171】

水和剤に追加して、顆粒が、本発明による固体組成物の特に有用なタイプである。顆粒は、水和剤から開始して、パン造粒、流動床造粒および押出し成形などの周知である一般的な方法を用いて調製することが可能である。これらの造粒法は、典型的には、水などの

造粒液体を粉碎後の水和剤に添加する工程、特定の方法に基づいて造粒する工程、および、最後に造粒された生成物を乾燥させる工程を含む。パン造粒および流動床造粒は凝集技術を含む；Browning、「Agglomeration」、Chemical Engineering、1967年12月4日、第147～48ページ、Perry's Chemical Engineer's Handbook、第4版、McGraw-Hill (New York)、1963年および米国特許第3,920,442号明細書を参照のこと。ペースト押し出し成形は湿潤化された混合物を押す工程を含み、典型的には、国際公開第2004/023876号パンフレットに記載のものと同様の手法を用いて、オーガーによりダイを通して供給される。ペレットおよび錠剤は、ブリケットプレス（例えば、モデル220 Komarek Roll Briquetter、K. R. Komarek Inc.、(Elk Grove Village, Illinois, USA)）、ロールコンパクタ（例えば、TF-MINI、Freund Sangyo K. K.）を用いる水和剤を乾式圧縮する工程により、または米国特許第4,172,714号明細書、同5,180,587号明細書、同5,208,030号明細書および同5,232,701号明細書に記載のものと同様の方法を用いる錠剤プレスにより調製されることが可能である。配合方法の最近の概説については、T. S. Woods、「The Formulator's Toolbox - Product Forms for Modern Agriculture」、Pesticide Chemistry and Bioscience, The Food-Environment Challenge、T. BrooksおよびT. R. Roberts編、第9回農薬化学国際会議の予稿週、The Royal Society of Chemistry (Cambridge)、1999年、第120～133ページおよびDevelopments in Formulation Technology、PJB Publications (Richmond, UK)、2000年を参照のこと。

【0172】

それ故、本明細書に記載のとおり、本発明の組成物は、その基本的な構成要素の1つとして、水 - 不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子を含む粒状構成成分を含む。従って、水 - 不混和性液体成分が、固体キャリア中の孔に吸収されている。孔は、固体キャリア粒子中のチャネルまたは他の空隙の形態であることが可能であるが、組成物の製造中に水 - 不混和性液体成分の粒子への浸潤を許容するために、次いで、固体キャリアの破壊を必要としない、1種以上のカルボキサミド殺節足動物剤を粒子の外部に担持する水 - 不混和性液体成分の葉角皮または他の植物部位へのその後の放出を許容するために粒子の外部に開口していなければならない。固体キャリアは主に支持を提供することが意図されており、固体キャリア自体の材料は、一般に、水 - 不混和性液体成分、カルボキサミド殺節足動物剤または界面活性剤を含まない。

【0173】

水 - 不混和性液体成分が、固体キャリアへの吸収を促進するために揮発性溶剤と混合された場合には、揮発性溶剤の残渣が、揮発性溶剤を蒸発させた後もキャリア中に浸潤されたまま残る可能性がある。典型的には、残存揮発性溶剤の量は、水 - 不混和性液体成分約20%以下、より典型的には、水 - 不混和性液体成分の約10%以下である。通常は、水 - 不混和性液体成分は、揮発性溶剤での希釈なしでも十分に急速に固体キャリアに吸収され、それ故、浸潤材料が水 - 不混和性液体成分のほとんどを構成する。本組成物において、水 - 不混和性液体成分は、典型的には、主に（すなわち、少なくとも約80%、より典型的には、少なくとも約90%、最も典型的には、少なくとも約95%）、粒子の表面または粒子間ではなく固体キャリアの粒子内に位置される。

【0174】

本組成物において、構成成分(a)の1種以上のカルボキサミド殺節足動物剤は、主に（すなわち、少なくとも約90%、より典型的には、少なくとも約95%および最も典型的には、少なくとも約98または99%）、粒子の内部に浸潤されるのではなく、粒子の表面または構成成分(b)の固体キャリアの粒子間に位置されている。1種以上のカルボ

キサミド殺節足動物剤に加えて、構成成分(c)(すなわち、分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分)もまた、主に、粒子の内部に浸潤されるのではなく、粒子の表面および固体キャリアの粒子間に位置される。分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分は、水性媒体中(例えば、植物群葉への噴霧用の混合物で)の浸潤粒子の分散を補助する。本明細書に記載のとおり、他の配合成分もまた粒子の表面または粒子間に存在することが可能である。水が、典型的には、適用媒体(例えば、噴霧混合物)および環境に存在する。従って、粒子を囲っている他の配合成分は多様な有用な機能を有していると共に対応する多様な特性を有し得る一方で、これらは、典型的には、粒状構成成分からの1種以上のカルボキサミド殺節足動物剤と一緒に葉角皮または他の植物部位への水-不混和性液体成分の輸送が妨害されないように、粒子の表面上および粒子間(そのすべては、粒子をコーティングしているとみなされ得る)の材料が水中に溶解するかあるいは崩壊するか、または、水によって少なくとも弱くされるかまたは多孔性とされるよう選択される。粒子中の水-不混和性液体成分はカルボキサミド殺節足動物剤の植物部位への輸送を促進させることが可能であるため、粒子を囲っている物質は望ましくはこの輸送を遅延させるべきではない。

10

【0175】

本発明の組成物は、防除(例えば、抑圧されるまたは死滅される)されるべき節足有害生物または植物群葉などのその環境に直接的に(例えば、粉剤として)適用されることが可能であるが、通常は、組成物は、先ず、希釈されて水中の分散体が形成され、次いで、節足有害生物またはその環境に噴霧される。植食性の刺咬-吸汁性節足有害生物の防除のためには、保護されるべきの植物の群葉への水中に分散された本組成物での噴霧は、カルボキサミド殺節足動物剤活性成分の群葉の角皮を介した吸収を促進させる。本組成物の水への添加は、典型的には、懸濁液またはサスポエマルジョン、すなわち、水-不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子、ならびにカルボキサミド殺節足動物剤およびクレイなどの他の不溶性物質の粒子を含む懸濁液、または(固体キャリアが水溶性である場合には特に)固体粒子の懸濁液だけではなく、水-不混和性液体キャリアを含む小滴をも含むサスポエマルジョンを形成する。

20

【0176】

さらなる詳細がなくても、前出の説明を使用する当業者は、本発明をその最も十分な範囲まで利用することができると考えられる。従って、以下の実施例は単なる実例として解釈され、かついずれかの様式に本開示を限定するものではない。

30

【実施例】

【0177】

配合例

実施例実施例1~10には本発明の組成物の調製が記載されている。比較例1~2には比較目的のために形成した組成物の調製が記載されている。これらの組成物において用いた発明の対象である処方成分の識別が表1に記載されている。調製の説明において参照されるIKA M20ミルは、IKA Labortechnik (Stauffen, Germany)製のモデルM20 S3 Universal Mill (Universal muehle)であった。このミルは、高速で回転するブレードカッターを粉碎チャンバ中に含んでいる。

40

【0178】

【表 1】

表 1- 実施例において用いた成分の識別

名称	識別	
化合物 1	3-プロモ-1-(3-クロロ-2-ピリジニル)-N-[4-シアノ-2-メチル-6-[(メチルアミノ)カルボニル]フェニル]-1H-ピラゾール-5-カルボキサミド	
AGNIQUE ME 18SDU (Cognis Corp.)	メチル化大豆油	
MICROCEL E (Johns-Manville)	多孔性ケイ酸カルシウム粉末	
MARASPERSE N22 (Uniqema)	カルシウムリグノスルホン酸塩	10
MORWET D425 (Witco)	ナフタレンホルムアルデヒド縮合物のスルホン酸塩、ナトリウム塩	
Barden Clay	カオリンクレイ	
MORWET EFW (Witco)	ナトリウムアルキルナフタレンスルホン酸塩	
RHODACAL BX78 (Rhodia)	ナトリウムジブチルナフタレンスルホン酸塩	
REAX 88B (MeadWestvaco)	ナトリウムリグノスルホン酸塩(高度スルホン化クラフトリグナンポリマー)	
CAB-O-SIL M5 (Cabot Corp.)	ヒュームドシリカ	

【 0 1 7 9 】

本実施例および比較例において用いた化合物 1 のサンプルは、参照例 1 に記載のとおり調製した。化合物 1 について列挙されている量は、工業グレード（「工業グレード」）物質の量を参照している。技術資料における化合物 1 のアッセイは、様々な量の水を吸収する物質の能力のためにわずかに変更させた。比較例 1 および 2 を調製するために用いた特定のサンプルの H P L C 分析は、工業グレード物質が質量基準で 93.4% の化合物 1 を含有していたことを示した。

【 0 1 8 0 】

参照例 1

3 - プロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド (化合物 1) の調製

3 - プロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボン酸 (20.6 kg) および 2 - アミノ - 5 - シアノ - N , 3 - ジメチルベンズアミド (14.1 kg) のアセトニトリル (114 kg) 中の混合物に、3 - ピコリン (22.2 kg) を添加した。この混合物を - 10 ~ - 14 に冷却し、次いで、メタンスルホニルクロリド (10.6 kg) を、温度が 5 を超えないように徐々に添加した。H P L C および N M R 分析による確認で反応が完了した後、この混合物を水 (72.6 kg) および濃塩酸 (7.94 kg) を順番に、温度が 5 を超えないような割合で添加することにより処理した。5 を超えない温度で約 30 分間維持した後、反応混合物をろ過して固体生成物を回収し、これを、アセトニトリル - 水 (2 : 1、2 × 12.3 kg) およびアセトニトリル (2 × 10.4 kg) で順番に洗浄した。次いで、固体を約 50 で減圧下、かつ、窒素ガス流下で乾燥させて表題の生成物を白色の結晶性固体を得、これを、本配合例および比較例において直接的に用いた。緩く含有されている溶剤の固体生成物からの揮発を促進するための中程度の加熱速度 (5 分間かけた約 150 までの加熱、次いで、約 4 ~ 5 / 分から約 3 / 分に加熱速度を下げて約 15 分間以上かけて 210 に到達させた) で、204 ~ 210 の範囲内で溶融が生じた。

【 0 1 8 1 】

実施例 1 ~ 11

水和剤配合物

表 2 は、本発明による組成物を調製するために用いた処方成分の質量割合量を列挙している。実施例 1 ~ 11 の組成物は 10 g スケールで調製し、従って、用いた処方成分の量

は、10gに列挙した割合を乗じたものであった。準拠した基本手順により、ピーカ中でAGNIQUE ME 18SDUをMICROCEL E粉末に添加し、および粉末が再度流動性になると共に乾燥した外観を呈するまで、処方成分をスパチュラで穏やかに攪拌することにより混合した。次いで、AGNIQUE ME 18で浸潤したMICROCEL E粉末をIKA M20ミルに移し、化合物1、MARASPERSE N22、MORWET D425、Barden Clay、スクロース、ラクトース（その一水和物として）および任意によりMORWET EFWを添加した。この混合物を15秒間かけてIKA M20ミル中で粉砕し、次いで、粉砕を停止した。この粉砕プロセスを2回以上繰り返した（すなわち、各15秒間の粉砕サイクルを合計で3回）。次いで、最終生成物を回収した。

10

【0182】

【表2】

表2-実施例1~11の組成物の調製に用いられる成分の割合量

実施例	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%
AGNIQUE ME 18SDU	36.6	9.6	2.9	36.2	15.4	20.5	36.0	36.5	36.5	28.7	21.8
MICROCEL E	18.3	4.8	1.5	18.8	23.1	20.5	18.9	18.5	18.5	26.3	33.2
化合物1、工業グレード	20.0	20.0	20.0	9.0	20.0	20.0	20.0	5.0	9.0	5.0	5.0
MARASPERSE N22	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.0
MORWET D425	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0
Barden Clay	2.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	2.0	7.0	7.0	7.0	7.0
スクロース	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
ラクトース一水和物	12.1	47.1	57.1	17.5	23.0	20.5	12.1	21.5	17.5	21.5	21.5
MORWET EFW	0.0	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.0	0.5	0.5	0.5	0.5

20

【0183】

実施例12

水和剤配合物

MICROCEL E (50.00g)を600mLガラスピーカに移し、次いでAGNIQUE ME 18SDU大豆メチル(32.7g)を滴下した。混合物を、粉末が再度流動性になると共に乾燥した外観を呈するまでオーバーヘッドミキサで穏やかに攪拌した。第2のサンプルを同一の規模で同様に調製し、これら2つのサンプルを十分に混合して、163.96gの大豆メチルで浸潤したMICROCEL Eをもたらした。この大豆メチルで浸潤したMICROCEL Eに、工業グレード化合物1、MARASPERSE N22、スクロース、ラクトース一水和物、MORWET EFWおよびBarden clayを、表2において例えば11に記載の量で添加して約300gの混合物を生成した。混合物中の処方成分を混合し、次いで、この混合物を、0.75mmの円形ホールスクリーンおよび6個の粉砕ハンマーを有すると共に8000rpmで操作したハンマーミル(Retsch Inc. (Newtown, PA, USA)製)で2回粉砕して、294.64gの水和剤生成物を生成した。

30

40

【0184】

実施例13

水和剤配合物

MICROCEL E (56.82g)を600mLガラスピーカに移し、次いでAGNIQUE ME 18SDU大豆メチル(107.9g)を滴下した。混合物を、粉末が再度流動性になると共に乾燥した外観を呈するまでオーバーヘッドミキサで穏やかに攪拌した。164.01gの大豆メチルで浸潤したMICROCEL Eを得た。この大豆メチルで浸潤したMICROCEL Eに、工業グレード化合物1、MARASPERSE N22、スクロース、ラクトース一水和物、MORWET EFWおよびBarden

50

Clayを、表2において例えば4に記載の量で添加して、約300gの混合物を生成した。混合物中の処方成分を混合し、次いで、この混合物を、0.75mmの円形ホールスクリーンおよび6個の粉碎ハンマーを有すると共に8000rpmで操作したハンマーミル(Retsch Inc. (Newtown, PA, USA)製)で2回粉碎して水和剤生成物を生成した。

【0185】

比較例1~2

比較のために、水-不混和性液体成分で浸潤された固体キャリアの粒子を含まない2種の水和剤配合物を調製した。表3に明記された割合に準拠して、処方成分をプラスチックバッグ中に計量して700gの予備混合物を調製した。処方成分は、閉じたバッグを数回反転させることにより手作業でブレンドした。次いで、バッグの全内容物を、60メッシュスクリーンを備えるハンマーミルを用いて粉碎した。粉碎した予備混合物をパドルニーダーに移し、十分な水を添加して水分含有量を12%にした。湿潤化された予備混合物をパドルニーダー中に4分間混練し、次いで、これを容量スクリューフィーダに移した。スクリューフィーダは、約450g/分の速度で予備混合物をドーム押出し機に移動させた。押出した顆粒を回収し、流動床ドライヤーを用いて乾燥させた。表3に列挙した処方成分を有する、この手法で得た顆粒成分は容易に押出されると共に水中に急速に分散した。

【0186】

【表3】

表3- 比較例1~2の組成物を調製するために用いた成分の割合量

比較例	1	2
	%	%
化合物1、工業グレード	37.0	53.8
RHODACAL BX78	0.5	0.5
MARASPERSE N22	3.0	3.0
REAX 88B	6.0	6.0
CAB-O-SIL M5	0.5	0.5
Barden Clay	2.0	2.0
スクロース	1.0	1.0
ラクトース-水和物	50.0	33.2

【0187】

本発明の生物学的実施例

テストA

Redi-earth培地に生長している綿植物(1本の植物/ポット)をテストのために用いた。2枚の本葉を有するテスト植物をケージ内に入れ、そこで、シルバーリーフコナジラミ(Bemisia argentifolii)の成虫におよそ24時間かけて産卵させた。産卵が見られる植物のみを配合組成物のテストに用いた。組成物の適用前に、植物を、孵化および幼虫(新たに付加したコナジラミ幼体)定着について再度確認した。1枚の葉/植物を1回の反復としてみなし; 4回の反復を1回の処理当たりで用いた。

【0188】

すべての配合組成物を、各組成物の4種の異なる濃度を用いて水中に混合した。植物に、最も高い植物より19cmに配置したTeet Jetフラットファンスプレーノズルを用いて噴霧した。噴霧流は468L/haに等しい施用量をもたらした。噴霧後、植物を通風させた筐体中で乾燥させ、次いで、16/8時間の昼間/夜間光周期および28/24昼間/夜間温度および50%相対湿度で操作した生育チャンバに移した。

【 0 1 8 9 】

植物を噴霧してから6日間後に評価を行った。すべての葉を各テスト植物から採り、各葉の裏側に存在している、死亡しているおよび生存している若虫を計数した。データを Logit/Probit 用量反応/死亡率回帰式により分析し、および致死濃度 LC_{50} および LC_{90} を、工業グレード化合物1の全質量が化合物1であることを仮定して、 g a.i./ha の単位で算出した。工業グレード材料は、実際には化合物1の100%未満（例えば93%）であったため、実際のコナジラミ防除効能は、未補正の算出 LC_{50} および LC_{90} 値により示されているよりも実際にはわずかに優れている。各表（表A1、A2、A3およびA4）は、1つ以上の同時のテストの組に対応する。 LC_{50} および LC_{90} 値は2桁の有効数字に丸めて示されているが、比較例1および2の組成物は、 LC_{50} および LC_{90} についての下界しか意味をもって判定することができないほどにほとんど有効性を示さなかった。

【 0 1 9 0 】

【表4】

表 A1. 綿でのシルバーリーフコナジラミの防除における比較例で配合した化合物1の致死濃度(*)

組成物	LC_{50}	LC_{90}
比較例 1	> 6000	> 190000
比較例 2	> 9000	> 220000

(*) LC 値は g a.i./ha である。比較配合物はこのテストにおいてほとんど有効性を示さなかったために下界のみが判定可能であった

【 0 1 9 1 】

【表5】

表 A2. 綿でのシルバーリーフコナジラミの防除における実施例1～7で配合した化合物1の致死濃度(*)

組成物	LC_{50}	LC_{90}
実施例 1	1300	7900
実施例 2	1900	16000
実施例 3	1400	18000
実施例 4	110	310
実施例 5	790	6000
実施例 6	300	1200
実施例 7	760	3600

(*) LC 値は g a.i./ha である

【 0 1 9 2 】

【表 6】

表 A3. 綿でのシルバーリーフコナジラミの防除における実施例 4 で配合した化合物 1 の致死濃度(*)

組成物	LC ₅₀	LC ₉₀
実施例 4	170	480

(*) LC 値は g a.i./ha である

【 0 1 9 3 】

10

【表 7】

表 A4. 綿でのシルバーリーフコナジラミの防除における実施例 8~9 で配合した化合物 1 の致死濃度(*)

組成物	LC ₅₀	LC ₉₀
実施例 8	200	430
実施例 9	190	420

(*) LC 値は g a.i./ha である

20

表 A 1 の結果から見ることはできるとおり、比較例 1 および 2 の組成物は、このテストにおいてシルバーリーフコナジラミを防除する有効性をほとんど示さなかった。対照的に、本発明の組成物のすべては顕著な有効性を示した。実施例 4 (表 A 2 および A 3)、実施例 6 (表 A 2) および実施例 8 および 9 (表 A 4) の組成物が特に有効であった。有効性は、化合物 1 の量に対する水 - 不混和性液体 (例えば、大豆メチル) の量の増加に伴って増加することが認められた。従って、実施例 4 の組成物は、コナジラミの 90% 死滅をもたらすために、一つのテスト (表 A 2) ではわずかに 310 g a.i./ha での最大の有効性を示し、他のテスト (表 A 3) では 480 g a.i./ha を示した。

【 0 1 9 4 】

以上、本発明を要約すると下記のとおりである。

30

1. 質量基準で

(a) 0.1 ~ 50% の 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤 ;
(b) 0.5 ~ 95% の水 - 不混和性液体成分で浸潤された固形キャリアの粒子を含む粒状構成成分 ;

(c) 0.1 ~ 50% の分散性および湿潤性を有する界面活性剤構成成分 ; および

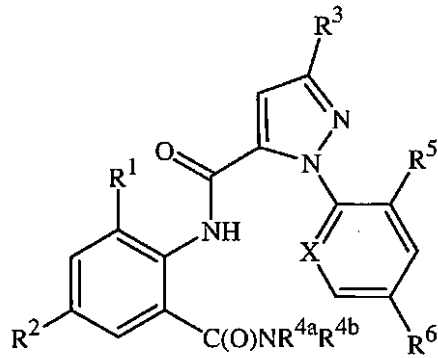
(d) 0 ~ 99.3% の 1 つまたはそれ以上の追加の製剤成分を含む固形殺節足動物組成物。

2. 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、炭素原子に結合した少なくとも 2 つのピシナルカルボキサミド部分を含むカルボキサミド殺節足動物剤を含む、上記 1 に記載の組成物。

40

3. 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、式 1

【化 6】



1

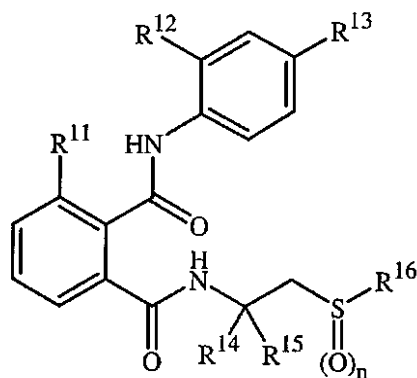
(式中

X が、N、CF、CCl、CBr または CI であり；

R¹ が、CH₃、Cl、Br または F であり；R² が、H、F、Cl、Br または -CN であり；R³ が、F、Cl、Br、C₁ ~ C₄ ハロアルキルまたは C₁ ~ C₄ ハロアルコキシで
あり；R^{4a} が、H、C₁ ~ C₄ アルキル、シクロプロピルメチルまたは 1 - シクロプロピル
エチルであり；R^{4b} が、H または CH₃ であり；R⁵ が、H、F、Cl または Br であり；そしてR⁶ が、H、F、Cl または Br である）のアントラニルアミド、その N - オキシドおよび塩から選択される、上記 2 に記載の組成
物。4 . 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、3 - ブロモ - 1 - (3 - クロ
ロ - 2 - ピリジニル) - N - [4 - シアノ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボ
ニル] フェニル] - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミドを含む、上記 3 に記載の組成
物。5 . 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、3 - ブロモ - N - [4 - クロ
ロ - 2 - メチル - 6 - [(メチルアミノ) カルボニル] フェニル] - 1 - (3 - クロロ -
2 - ピリジニル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミドを含む、上記 3 に記載の組成
物。

6 . 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、式 2

【化 7】



2

10

20

30

40

50

(式中

R^{11} が、 CH_3 、 Cl 、 Br または I であり；

R^{12} が、 CH_3 または Cl であり；

R^{13} が、 $C_1 \sim C_3$ フルオロアルキルであり；

R^{14} が、 H または CH_3 であり；

R^{15} が、 H または CH_3 であり；

R^{16} が、 $C_1 \sim C_2$ アルキルであり；そして

n が、0、1 または 2 である)

のフタル酸ジアミドおよびその塩から選択される、上記 2 に記載の組成物。

7. 1 つまたはそれ以上のカルボキサミド殺節足動物剤が、 $N^2 - [1, 1 - \text{ジメチル} - 2 - (\text{メチルスルホニル}) \text{エチル}] - 3 - \text{ヨード} - N^1 - [2 - \text{メチル} - 4 - [1, 2, 2, 2 - \text{テトラフルオロ} - 1 - (\text{トリフルオロメチル}) \text{エチル}] \text{フェニル}] - 1, 2 - \text{ベンゼンジカルボキサミド}$ を含む、上記 6 に記載の組成物。

10

8. 固形キャリアが、少なくとも 1 つのシリカまたはシリケートを含む、上記 1 に記載の組成物。

9. 固形キャリアが、ケイ酸カルシウムを含む、上記 8 に記載の組成物。

10. 水 - 不混和性液体成分が、 $C_1 \sim C_4$ アルカノールの脂肪酸エステル、種子油および果実油、ならびに鉱油から選択される少なくとも 1 種の物質を含む、上記 1 に記載の組成物。

11. 水 - 不混和性液体成分が、メチル化種子油を含む、上記 10 に記載の組成物。

20

12. 界面活性剤構成成分が、アルキルナフタレンスルホネート、ナフタレンスルホン酸ホルムアルデヒド縮合物の塩、およびリグノスルホネートからなる群から選択される 1 つまたはそれ以上の界面活性剤を含む、上記 1 に記載の組成物。

13. 1 つまたはそれ以上の追加の製剤成分が、1 つまたはそれ以上のクレイを質量基準で組成物の 1 ~ 15 % の範囲の量で含む、上記 1 に記載の組成物。

14. 1 つまたはそれ以上の追加の製剤成分が、1 つまたはそれ以上のサッカライドを質量基準で組成物の 1 ~ 85 % の範囲の量で含む、上記 1 に記載の組成物。

フロントページの続き

- (72)発明者 アイザック・ビリー・アナン
アメリカ合衆国デラウェア州 1 9 7 1 1 . ニューアーク . イーストペリウィンクルレーン 3 8
- (72)発明者 ジョン・ヘンリー・グリーン
アメリカ合衆国ペンシルベニア州 1 9 3 6 3 . オックスフォード . サギノーロード 7 3 1
- (72)発明者 オリヴァー・ヴァルター・グーチェ
アメリカ合衆国デラウェア州 1 9 8 1 0 . ウィルミントン . オーチャードロード 1 6 0 9
- (72)発明者 エクトル・エドワルド・ポルティエーリョ
アメリカ合衆国デラウェア州 1 9 7 0 1 . ベアー . モーリーンウェイ 1 0

審査官 太田 千香子

- (56)参考文献 特表 2 0 0 6 - 5 1 5 6 0 2 (J P , A)
特開平 0 4 - 2 7 9 5 0 2 (J P , A)

- (58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
- | | |
|---------|-----------|
| A 0 1 N | 2 5 / 0 4 |
| A 0 1 N | 2 5 / 3 0 |
| A 0 1 N | 4 3 / 5 6 |
| A 0 1 N | 4 1 / 1 0 |