

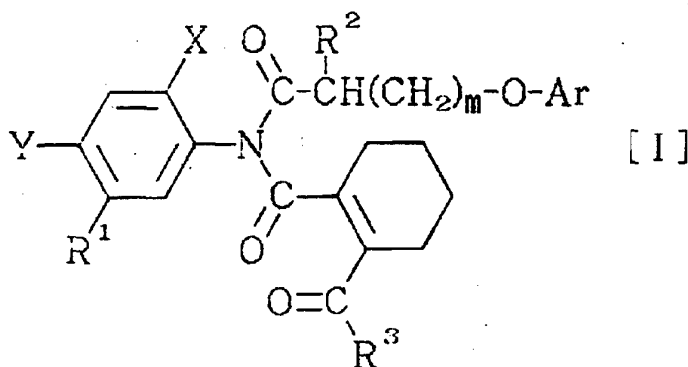


特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類 5 C07C 235/88, 233/92, 231/08, A01N 37/30	A1	(11) 国際公開番号 WO 94/12469 (43) 国際公開日 1994年6月9日 (09.06.94)
(21) 国際出願番号 PCT/JP93/01756 (22) 国際出願日 1993年12月2日 (02. 12. 93) (30) 優先権データ 特願平4/323468 1992年12月2日 (02. 12. 92) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) セントラル硝子株式会社 (CENTRAL GLASS CO., LTD.) [JP/JP] 〒755 山口県宇部市大字沖宇部5253番地 Yamaguchi, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 竹松哲夫 (TAKEMATSU, Tetsuo) [JP/JP] 〒321 栃木県宇都宮市峰町612 Tochigi, (JP) 久米孝司 (KUME, Takashi) [JP/JP] 山岡正次 (YAMAOKA, Shoji) [JP/JP] 古俣武夫 (KOMATA, Takeo) [JP/JP] 河村松江 (KAWAMURA, Matsue) [JP/JP] 神田由美子 (KODA, Yumiko) [JP/JP] 森 馨 (MORI, Kaoru) [JP/JP] 〒356 埼玉県川越市今福中台2805番地 セントラル硝子株式会社 東京研究所内 Saitama, (JP) 鈴木清志 (SUZUKI, Kiyoshi) [JP/JP] 〒321 栃木県宇都宮市平松本町775-23 Tochigi, (JP) 池田幸雄 (IKEDA, Yukio) [JP/JP] 〒329-11 栃木県河内郡河内町下岡本3741-11 Tochigi, (JP)		(74) 代理人 弁理士 坂本栄一 (SAKAMOTO, Eiichi) 〒166 東京都杉並区堀之内1丁目8番3-607号 Tokyo, (JP) (81) 指定国 AU, BR, CA, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). 添付公開書類 国際調査報告書

(54) Title : **N-ARYLOXYACYL-N-PHENYLTETRAHYDROPHTHALAMIC ACID DERIVATIVE, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND HERBICIDE CONTAINING THE SAME AS ACTIVE INGREDIENT**

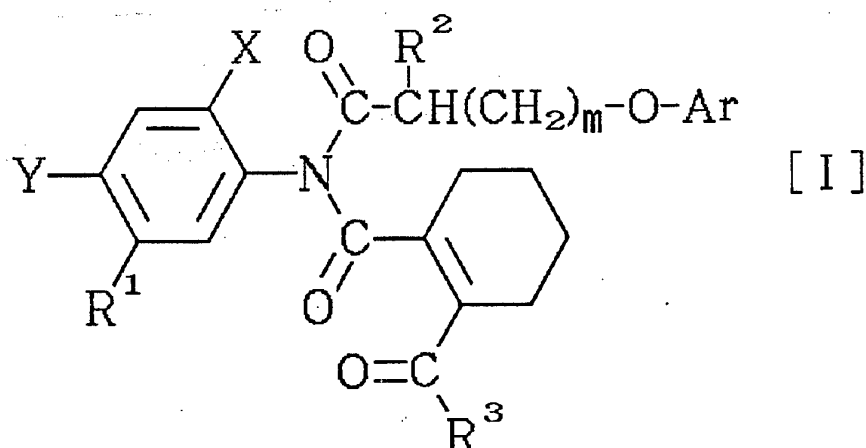
(54) 発明の名称 N-アリーロキシアンシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体およびその製造法ならびにそれを有効成分とする除草剤



(57) Abstract

An N-aryloxyacyl-N-phenyltetrahydrophthalamic acid derivative represented by general formula (I), a process for producing the same, and a herbicide containing the same as the active ingredient, which is very useful as a herbicide because it can be widely applied to upland field, lowland, orchard, pasture, turf, forest and non-crop land, and is highly safe for crop. In formula (I), X and Y represent each independently hydrogen or halogen; R¹ represents hydrogen, halogen, lower alkyl, lower alkoxy, lower alkenyloxy, lower alkynyloxy or lower alkoxycarbonylalkoxy; R² represents hydrogen or lower alkyl; R³ represents hydroxy, lower alkoxy, lower alkenyloxy, lower alkynyloxy, lower alkoxy-alkoxy, benzyloxy or lower alkoxycarbonylalkoxy; and m represents an integer of 0 to 5.

(57) 要約 一般式 [I]



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わし、R³はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

で示されるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体およびその製造法ならびにそれを有効成分とする除草剤であり、この除草剤は畑地、水田、果樹園、牧草地、芝生地、森林あるいは非農耕地などに広く適用でき、かつ、作物に対して安全性の高いものであり、除草剤として非常に有用である。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第1頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AT オーストリア	DE ドイツ	KR 大韓民国	PL ポーランド
AU オーストラリア	DK デンマーク	KZ カザフスタン	PT ポルトガル
BB バルバドス	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	RO ルーマニア
BE ベルギー	FI フィンランド	LK スリランカ	RU ロシア連邦
BF ブルキナ・ファソ	FR フランス	LU ルクセンブルグ	SD スーダン
BG ブルガリア	GA ガボン	LV ラトヴィア	SE スウェーデン
BJ ベナン	GB イギリス	MC モナコ	SI スロヴェニア
BR ブラジル	GE ジョージア	MD モルドバ	SK スロヴァキア共和国
BY ベラルーシ	GN ギニア	MG マダガスカル	SN セネガル
CA カナダ	GR ギリシャ	ML マリ	TD チャード
CF 中央アフリカ共和国	HU ハンガリー	MN モンゴル	TG トーゴ
CG コンゴ	IE アイルランド	MR モリタニア	TJ タジキスタン
CH スイス	IT イタリア	MW マラウイ	TT トリニダードトバゴ
CI コート・ジボアール	JP 日本	NE ニジェール	UA ウクライナ
CM カメルーン	KE ケニア	NL オランダ	US 米国
CN 中国	KG キルギスタン	NO ノルウェー	UZ ウズベキスタン共和国
CS チェコスロヴァキア	KP 朝鮮民主主義人民共和国	NZ ニュー・ジーランド	VN ヴィエトナム
CZ チェコ共和国			

明 細 書

N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体およびその製造法ならびにそれを有効成分とする除草剤

〔技術分野〕

本発明は、除草剤に関し、さらに詳しくは新規な化合物であるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体およびその製造法ならびにそれを有効成分として含有する除草剤に関するものである。本発明のN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体は、優れた除草活性を有し、畑地、水田、果樹園、牧草地、芝生地、森林あるいは非農耕地などに広く適用できる除草剤として有用であり、かつ、作物に対して安全性の高いものである。

〔背景技術〕

従来より、テトラヒドロフタラミン酸誘導体の除草活性はよく知られており、例えば、特開昭48-44425号公報に開示されているN-(4'-クロロフェニル)-3,4,5,6-テトラヒドロフタラミン酸メチルエステルなどが知られている。

しかしながら、従来のテトラヒドロフタラミン酸誘導体の除草活性は必ずしも充分ではなかったり、雑草に対する殺草スペクトルに大きな制限があり、さらには、作物、雑草間の選択性が充分でなく、作物に対する安全性に問題がある。これらの問題点を解決し、優れた除草活性を有する化合物としては特開平4-803407号公報に開示されている化合物が知られているが、N-アシル基部分にN-アリールオキシアシル基を有する化合物およびそれらの化合物の

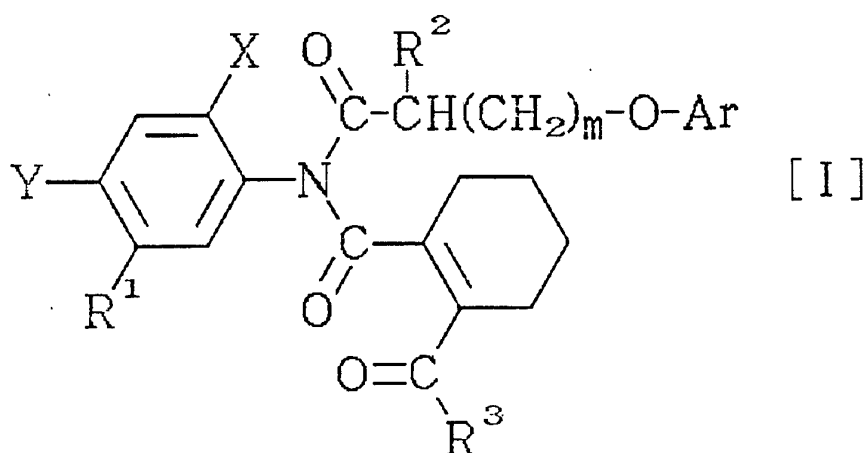
有する生物活性についての記載はない。

本発明は、上記のような従来の問題点を解決し、各種強害雑草に対して優れた除草活性を有し、かつ、作物に対して安全性の高い新規な化合物である N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタリジン酸誘導体およびその製造法ならびにそれを有効成分として含有する除草剤を提供することを目的とする。

[発明の開示]

本発明者らは、アミド窒素原子上に特定のアリールオキシアシル置換基を有する新規なテトラヒドロフタリジン酸誘導体が極めて優れた除草活性と選択性、殺草スペクトルを有することを見出し、本発明を完成した。

すなわち、本発明は、一般式 [I]



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わし、R³はヒ

ドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

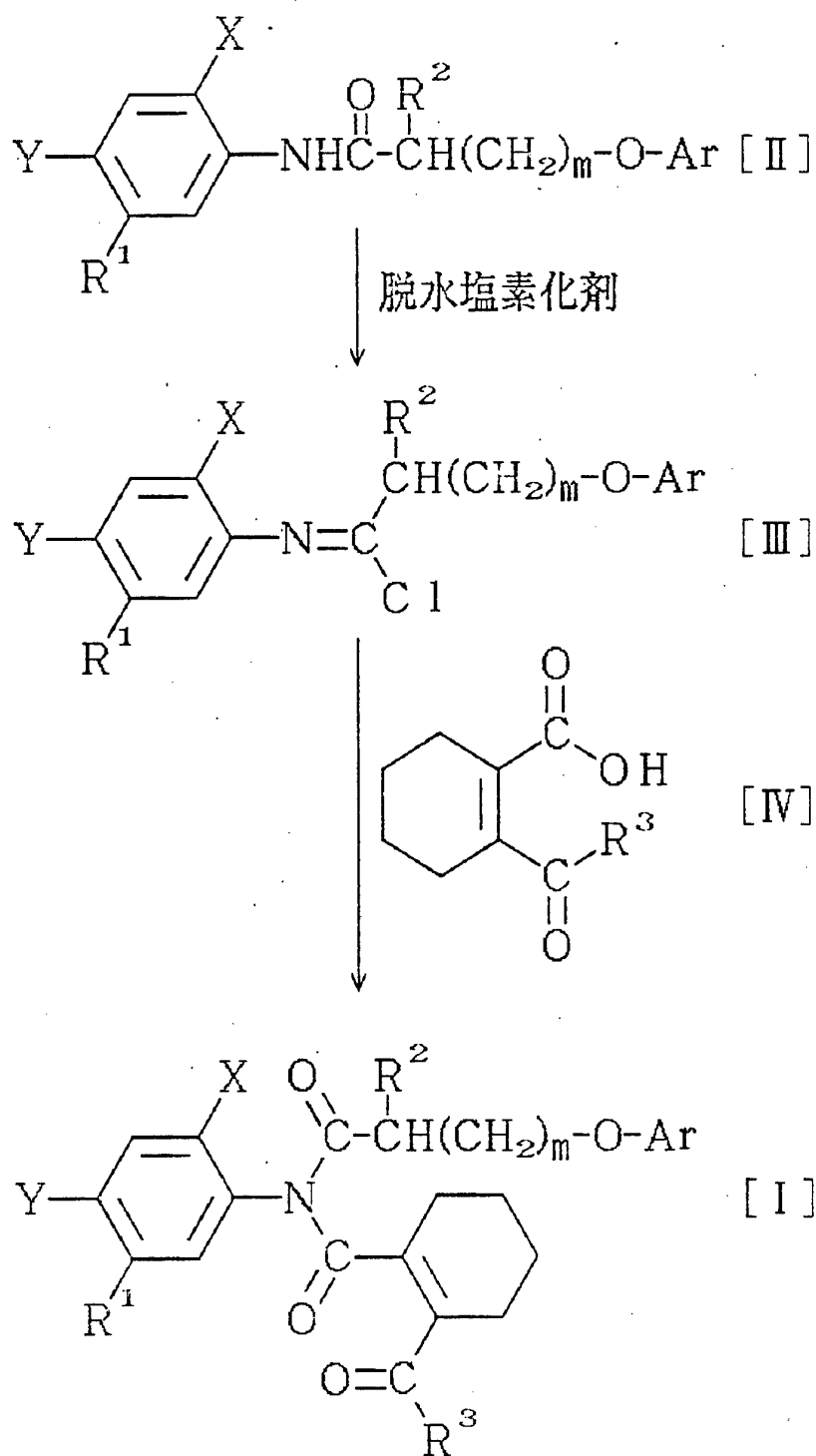
で示されるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタリミン酸誘導体およびその製造方法ならびにそれを有効成分として含有する除草剤である。

本発明の化合物であるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタリミン酸誘導体〔I〕は、例えば、次の方法によって合成することができる。

まず、無溶媒、または、塩化メチレン、クロロホルム、ベンゼン、トルエン、キシレン、酢酸エチル、エーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド、スルホランなどの溶媒中、0℃～200℃、好ましくは0℃～100℃で脱水塩素化剤、例えば、ポリマー担持トリフェニルホスフィンおよび四塩化炭素を一般式〔II〕で示されるアニリド誘導体と反応させることにより、一般式〔III〕で示されるイミドイルクロリド誘導体を中間生成物として得る。

次に、得られた一般式〔III〕で示されるイミドイルクロリド誘導体を単離精製後、または、単離精製することなく、一般式〔IV〕で示されるカルボン酸類、および、適当な脱酸剤、例えば、トリエチルアミン、ピリジンなどの有機塩基、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどの無機塩基を加え、無溶媒、または、塩化メチレン、クロロホルム、ベンゼン、トルエン、キシレン、クメン、酢酸エチル、エーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシド、スルホラン、アセトン、メチルエチルケトンなどの溶媒中、一

20℃～250℃、好ましくは0℃～100℃で反応させることにより、本発明の化合物であるN-アリールオキシシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体 [I] を合成できる。



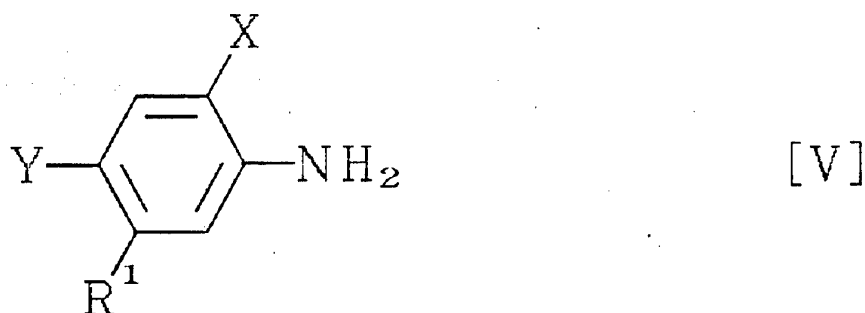
(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わし、R³はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

反応に用いられる脱水塩素化剤の好ましい例としては、上記のポリマー担持トリフェニルホスフィン-四塩化炭素系のほか、五塩化リン、三塩化リン-塩素系、チオニルクロリド、アリアルスルホニルクロリド、ホスゲン、トリフェニルホスフィン-四塩化炭素系などを挙げることができる。

また、反応に用いられる溶媒の好ましい例としては、ジクロロエタン、四塩化炭素、クロロホルム、塩化メチレンなどのハロゲン化炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼンなどの芳香族炭化水素類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシドなどの極性溶媒などを挙げることができる。

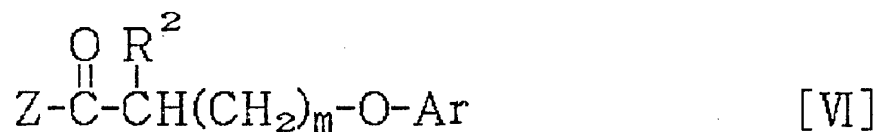
また、本発明の化合物であるN-アリアルオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体〔I〕を得るための出発物質として必要とされるアニリド誘導体〔II〕は、例えば、下記の方法に従って容易に製造することができる。

すなわち、アニリド誘導体〔II〕は、一般式〔V〕



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、
R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ
基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アル
コキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基
を表わす。)

で示されるアニリン誘導体と一般式 [VI]



(式中、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基
を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わす。mは整
数で、0～5を表わす。Zはヒドロキシ基またはハロゲン原子を表
わす。)

で示されるアリールオキシカルボン酸誘導体とを反応させることに
より容易に得ることができる。

[発明を実施するための最良の形態]

以下、実施例により本発明を具体的に説明する。

実施例 1

N-フェノキシアセチル-N-[2-フルオロ-4-クロロ-5
-(1-メチルプロパルギルオキシ)フェニル]-3, 4, 5, 6

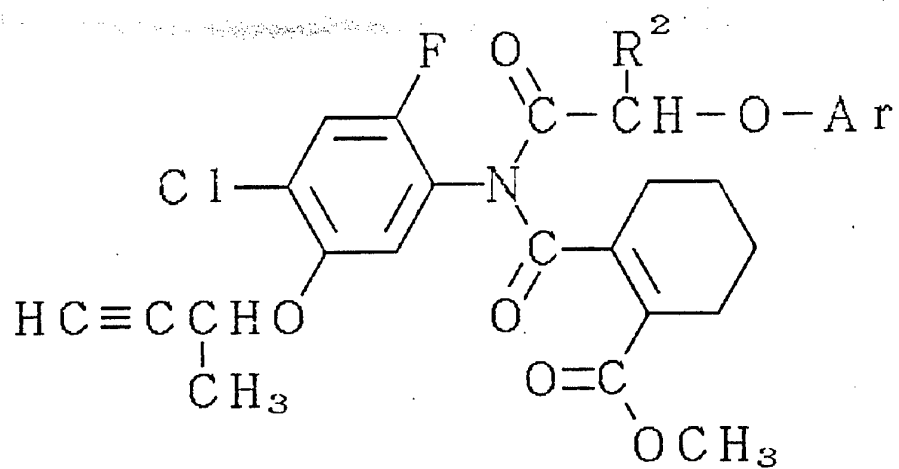
ーテトラヒドロフタラミン酸メチルエステルの合成（第1表における化合物No. 1の化合物、一般式〔I〕の化合物）

N-〔2-フルオロ-4-クロロ-5-（1-メチルプロパルギルオキシ）フェニル〕-フェノキシアセトアミド 3.07 g、ポリスチレン担持トリフェニルホスフィン（3 mmol/g） 9.00 g、四塩化炭素 10 ml を 1, 2-ジクロロエタン 45 ml 中に混合し、3.5 時間、加熱還流した。放冷後、ポリスチレンをろ別除去し、ろ液の溶媒を減圧下、留去し、残渣に 3, 4, 5, 6-テトラヒドロフタル酸モノメチルエステル 1.66 g、ベンゼン 35 ml を加えた。トリエチルアミン 0.91 g をベンゼン 5 ml に溶解し、室温下、滴下した。70℃で4時間、撹拌を行なった。放冷後、氷水に注ぎ込み、有機層を分液し、水洗後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去した後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶出液：塩化メチレン／n-ヘキサン（v/v）= 4/1）で精製し、N-フェノキシアセチル-N-〔2-フルオロ-4-クロロ-5-（1-メチルプロパルギルオキシ）フェニル〕-3, 4, 5, 6-テトラヒドロフタラミン酸メチルエステル 1.20 g を固形物として得た。

以上の方法に準じて得た本発明の化合物であるN-アリールオキシシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体〔I〕を第1表に示し、その¹H-NMR吸収スペクトル値を第2表に示したが、本発明の化合物は第1表に記載の化合物に限定されるものではない。

また、化合物No. は、以下の実施例、試験例においても適用する。

第 1 表



化合物 No.	R ²	Ar	形状
1	H		油状物
2	H		油状物
3	CH ₃		固形物
4	H		油状物

第 2 表

化合物 No.	^1H -NMR 吸収スペクトル値 δ (ppm, CDCl_3)
1	1.5~1.8 (m, 4H), 1.70 (d, $J=6.6\text{Hz}$, 3H), 2.1~2.5 (m, 4H), 2.43 (d, $J=2.0\text{Hz}$, 1H), 3.77 (s, 3H), 4.6~5.2 (m, 3H), 6. 8~7.0 (m, 3H), 7.1~7.4 (m, 4H)
3	1.5~1.8 (m, 10H), 2.2~2.6 (m, 5H), 3.76 (s, 3H), 4.7~4. .9 (m, 2H), 6.8~7.4 (m, 7H)
4	1.6~1.8 (m, 4H), 1.70 (d, $J=6.4\text{Hz}$, 3H), 2.3~2.6 (m, 5H), 3.76 (s, 3H), 4.7~5.1 (m, 3H), 6.8~7.0 (m, 4H), 7.1~7. .3 (m, 5H)

発明の化合物である N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフトラミン酸誘導体 [1] を有効成分として含む本発明の除草剤は、水田における湛水土壤処理において問題となる種々の雑草、例えば、ノビエなどのイネ科雑草、アゼナ、キカシグサ、ミゾハコベなどの広葉雑草、タマガヤツリ、ホタルイなどのカヤツリグサ科雑草およびコナギなどの雑草に対して優れた除草活性を有し、また、畑地の茎葉処理および土壤処理のいずれにおいても問題となる種々の雑草、例えば、カラシナ、アオビユ、ハコベ、シロザ、オナモミ、マルバアサガオ、ヤエムグラ、スベリヒユ、イチビ、アメリカツノクサネム、エビスグサ、イヌホウズキ、イヌノフグリ類、タデ類、スミレ類などの広葉雑草、イヌビエ、エノコログサ、カラスミギ、メヒシバ、セイバンモロコシ、エンバクなどのイネ科雑草、コゴメガヤツリ、ハマスゲ類などのカヤツリグサ科雑草およびツユクサ類などのツユクサ科雑草に対しても優れた除草活性を有し、かつ、本発明の除草剤は、イネ、コムギ、トウモロコシ、ダイズなどの主要作物に対して問題となる薬害をほとんど示さない。

従って、本発明の除草剤は、畑地、水田、果樹園、牧草地、芝生地、森林あるいは非農耕地などに対して広く用いることができる。

本発明の除草剤は、上記した本発明の化合物である N-アリール

オキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体〔1〕を有効成分とし、この分野において一般に用いられている農薬補助剤、つまり、不活性な固体担体、液体担体および乳化分散剤などを用いて水和剤、乳剤、粒剤、粉剤、フロアブル剤などの任意の剤型にして使用することができる。これらの不活性な担体としては、例えば、タルク、クレー、ベントナイト、カオリン、珪そう土、炭酸カルシウム、木粉、澱粉、アラビアゴム、水、アルコール、ケロシン、ベンゼン、キシレン、n-ヘキサン、アセトン、N,N-ジメチルホルムアミド、グリコールエーテル、N-メチルピロリドンなどが挙げられる。

また、製剤上の補助剤、例えば、展着剤、希釈剤、界面活性剤、溶剤などを適宜配合することも出来る。

本発明の化合物であるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体〔1〕を除草剤として使用する際の使用量は、その方法、目的、時期、雑草の発生状況などにより適宜選択できるが、通常、有効成分として10アール当り0.1g～300gが好ましく、特に好ましくは10アール当り1g～300gである。0.1g以下では十分な除草効果が得られず、また、300g以上では経済的に不利であるばかりではなく、薬害の発生する場合もあるので好ましくない。

また、本発明の化合物であるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体〔1〕を含有する除草剤に他種の除草剤、植物生長調節剤、殺菌剤、殺虫剤およびその他の農薬、肥料、土壌改良剤などを混合して使用することもできる。

次に本発明の除草剤の実施例を挙げるが、化合物、担体、補助剤および使用割合などは、本実施例に限られるものではない。なお、本実施例中の成分の構成比は、重量部を示す。

実施例2（水和剤）

化合物 No. 1	10 部
リグニンスルホン酸ナトリウム	1.5 部
ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル	1.5 部
クレー	87 部

これらの各成分を均一になるまで混合し、粉碎して水和剤を得た。

実施例 3 (粒剤)

化合物 No. 1	7 部
ベントナイト	30 部
アルキル硫酸ソーダ	2 部
クレー	61 部

これらの成分を均一になるまで混合し、練り合わせ、通常の造粒方法で造粒し、粒剤を得た。

実施例 4 (乳剤)

化合物 No. 1	5 部
N-メチルピロリドン	44 部
ソルポール 7065	43 部
(東邦化学工業株式会社製品)	
ソルポール 355	8 部
(東邦化学工業株式会社製品)	

これらの成分を均一になるまで混合し、乳剤を得た。

次に試験例により本発明の化合物である N-アリアルオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体 [1] の除草効果を説明する。

試験例 1 (湛水土壤処理)

1/15500 アールのポットに水田土壌 (埴壤土) を充填し、表層にノビエ、広葉雑草、ホタルイ、タマガヤツリおよびコナギの各種雑草種子を均一に混合して播種し、2~3 葉期の水稻幼苗を 2 cm の深さに移植し、3 cm の深さに湛水した。3 日後のノビエ発

生始期に各化合物の水和剤希釈液の所定量を水面に滴下処理した。その後、ガラス室で育成し、処理 4 週間後に除草効果および水稻薬害を評価した。この結果を第 3 表に示した。なお、表中の数値は、水稻薬害および除草効果を示すもので、具体的には下記の通りである。

5 : 完全枯死 4 : 大害 3 : 中害
2 : 小害 1 : 僅少害 0.5 : 極僅少害
0 : 無害 (正常発育)

試験例 2 (茎葉処理)

1 / 1 5 5 0 0 アールのポットで土耕により育成したイネ、食用ビエ、ダイコン、アオビユおよびメヒシバの各植物の幼植物期 (2 ~ 3 葉期) に各化合物の水和剤希釈液を噴霧処理した。その後、ガラス室において育成し、処理 4 週間後に除草効果を評価した。この結果を第 4 表に示した。なお、除草効果の評価は試験例 1 と同様に行なった。

第 3 表

化合物 No.	薬量 g/10a	水稻の 薬害	除 草 効 果				
			ビエ	広葉 雑草	ホタルイ	タマガヤツリ	コナギ
1	6.25	0.5	5	5	4	5	5
	3.125	0.5	5	5	4	5	5
2	6.25	0.5	5	5	3	5	5
	3.125	0.5	5	5	3	5	5
3	6.25	0.5	5	5	5	5	5
	3.125	0	5	5	5	5	5
4	6.25	0.5	5	5	4	5	5
	3.125	0	5	5	3	5	5
比較剤 - A	6.25	0	4	4	4	5	5
	3.125	0	2	3	1	5	5

比較剤 - A : MO

第 4 表

化合物 No.	薬量 g/10a	イネ	食用ビエ	ダイコン	アオビユ	メヒバ
1	16 8	1 1	1 1	5 5	5 5	1 1
2	16 8	1 1	1 0	5 5	5 5	1 0
3	16 8	1 1	0 0	5 5	5 5	1 1
4	16 8	2 1	0 0	4 3	5 5	0 0
比較剤 -B	16 8	0 0	0 0	5 5	5 5	0 0

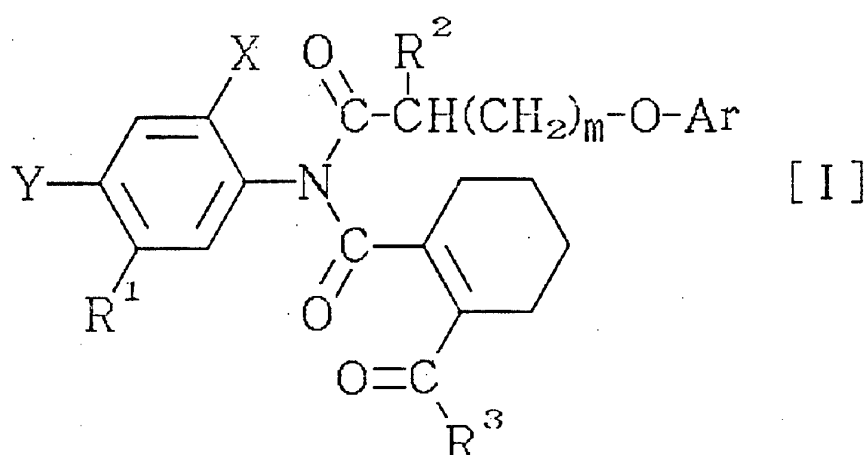
比較剤 - B : P r o p a n i l

〔産業上の利用可能性〕

本発明の新規な化合物である N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体は、優れた除草活性を有し、畑地、水田、果樹園、牧草地、芝生地、森林あるいは非農耕地などに広く適用できる除草剤として有用であり、かつ、作物に対して安全性の高いものである。

請 求 の 範 囲

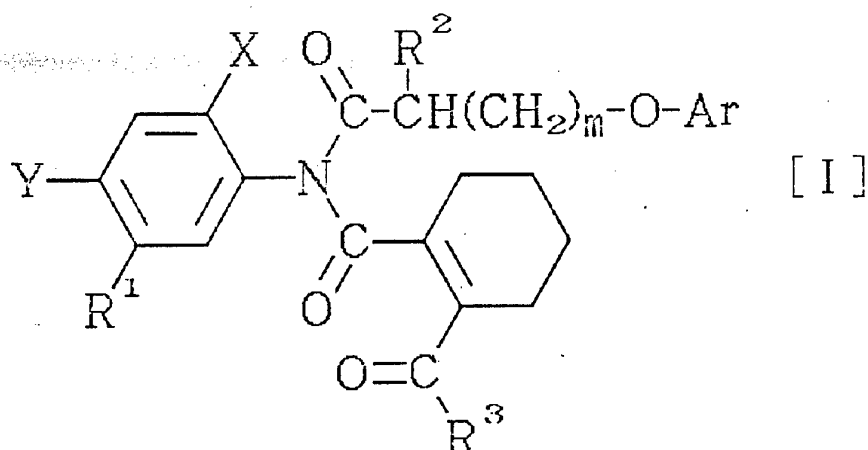
1. 一般式 [I]



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わし、R³はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

で示されるN-アリアルオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体。

2. 一般式 [I]



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わし、R³はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

で示されるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタリン酸誘導体を有効成分として含有することを特徴とする除草剤。

3. 不活性な担体を含む水和剤として調剤された請求の範囲第2項に記載の除草剤。

4. 不活性な担体を含む粒剤として調剤された請求の範囲第2項に記載の除草剤。

5. 不活性な担体を含む乳剤として調剤された請求の範囲第2項に記載の除草剤。

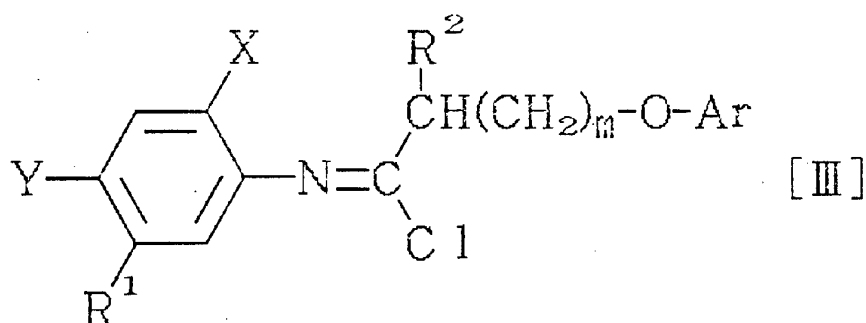
6. N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体がN-フェノキシアセチル-N-[2-フルオロ-4-クロロ-5-(1-メチルプロパルギルオキシ)フェニル]-3,4,5,6-テトラヒドロフタラミン酸メチルエステルである請求の範囲第2項に記載の除草剤。

7. N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体がN-(2,4-ジクロロフェノキシ)アセチル-N-[2-フルオロ-4-クロロ-5-(1-メチルプロパルギルオキシ)フェニル]-3,4,5,6-テトラヒドロフタラミン酸メチルエステルである請求の範囲第2項に記載の除草剤。

8. N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体がN-2-フェノキシプロピオニル-N-[2-フルオロ-4-クロロ-5-(1-メチルプロパルギルオキシ)フェニル]-3,4,5,6-テトラヒドロフタラミン酸メチルエステルである請求の範囲第2項に記載の除草剤。

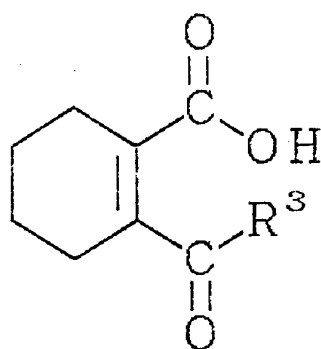
9. N-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体がN-β-ナフトキシアセチル-N-[2-フルオロ-4-クロロ-5-(1-メチルプロパルギルオキシ)フェニル]-3,4,5,6-テトラヒドロフタラミン酸メチルエステルである請求の範囲第2項に記載の除草剤。

10. 一般式 [III]



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

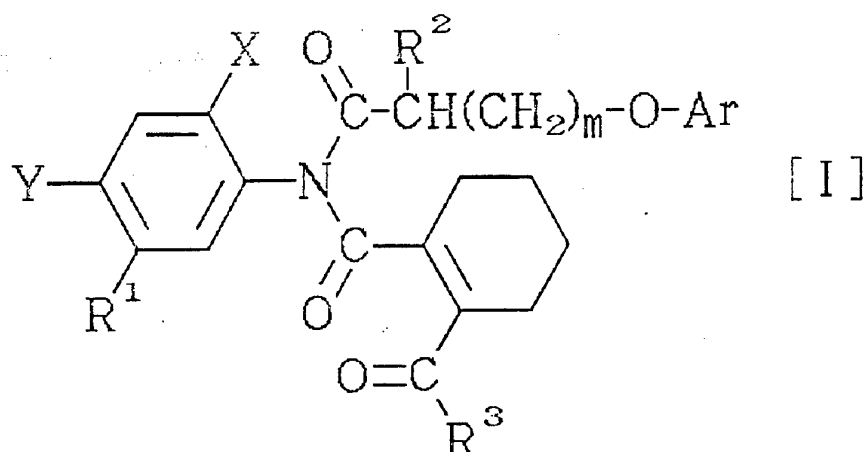
で示されるイミドイルクロリド誘導体と一般式 [IV]



[IV]

(式中、R³はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。)

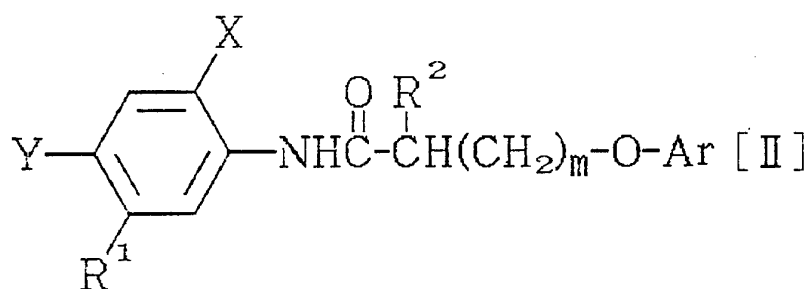
で示されるカルボン酸類とを塩基の存在下、反応させることを特徴とする一般式 [I]



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わし、R³はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

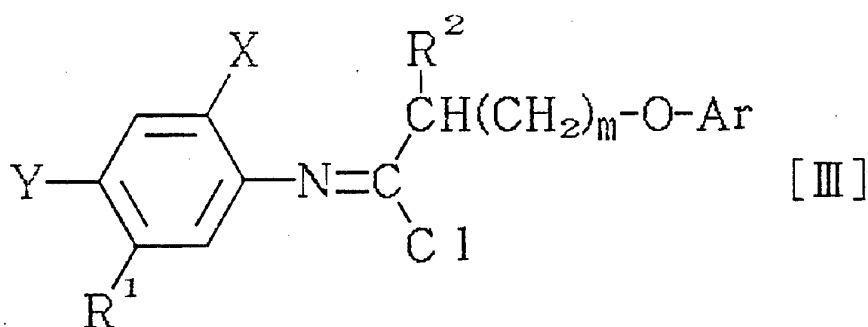
で示されるN-アリアルオキシアシルーN-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体の製造方法。

1.1. 一般式 [II]



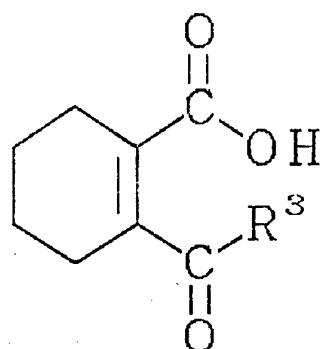
(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

で示されるアニリド誘導体を脱水塩素化して一般式〔Ⅲ〕



(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、R¹は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わし、R²は水素原子または低級アルキル基を表わす。mは整数で、0～5を表わす。)

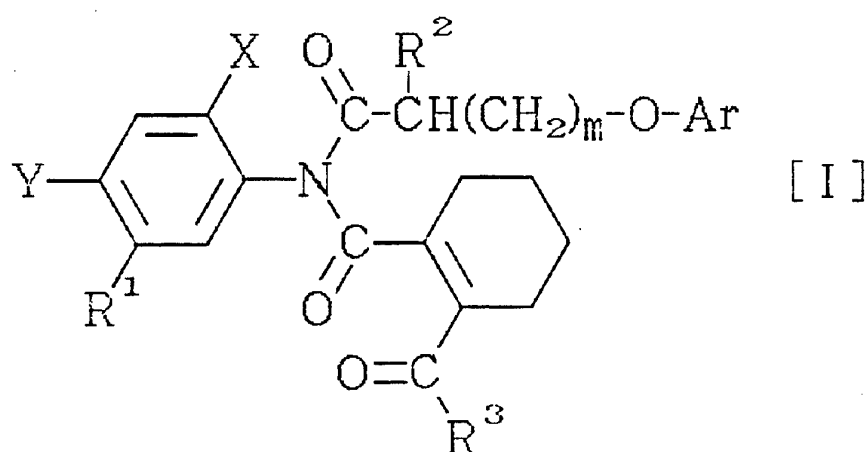
で示されるイミドイルクロリド誘導体を得、ついで一般式〔Ⅳ〕



[IV]

(式中、 R^3 はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。)

で示されるカルボン酸類と塩基の存在下、反応させることを特徴とする一般式 [I]



[I]

(式中、X、Yは独立に水素原子またはハロゲン原子を表わし、Arは置換もしくは非置換のフェニル基またはナフチル基を表わし、 R^1 は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基

を表わし、 R^2 は水素原子または低級アルキル基を表わし、 R^3 はヒドロキシ基、低級アルコキシ基、低級アルケニルオキシ基、低級アルキニルオキシ基、低級アルコキシアルコキシ基、ベンジルオキシ基または低級アルコキシカルボニルアルコキシ基を表わす。 m は整数で、0～5を表わす。)

で示されるN-アリールオキシアシル-N-フェニルテトラヒドロフタラミン酸誘導体の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP93/01756

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl⁵ C07C235/88, C07C233/92, C07C231/08, A01N37/30

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl⁵ C07C235/88, C07C233/92, C07C231/08, A01N37/30

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

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

CAS ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, A, 59-67255 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), April 16, 1984 (16. 04. 84), (Family: none)	1-11
A	JP, A, 55-157545 (Takeda Chemical Industries, Ltd.), December 8, 1980 (08. 12. 80), (Family: none)	1-11

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

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

March 1, 1994 (01. 03. 94)

Date of mailing of the international search report

March 22, 1994 (22. 03. 94)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.³ C07C235/88, C07C233/92,
C07C231/08, A01N37/30

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.³ C07C235/88, C07C233/92,
C07C231/08, A01N37/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

CAS ONLINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, A, 59-67255 (住友化学工業株式会社), 16. 4月. 1984 (16. 04. 84) (ファミリーなし)	1-11
A	JP, A, 55-157545 (武田薬品工業株式会社), 8. 12月. 1980 (08. 12. 80) (ファミリーなし)	1-11

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

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

国際調査を完了した日

01. 03. 94

国際調査報告の発送日

22. 03. 94

名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 修 印

4 H 7 1 0 6

電話番号 03-3581-1101 内線

3445