(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(51) Int. Cl.[7]
C07D 213/61
C07D 213/63

(45) 공고일자 2001년02월15일
(11) 등록번호 10-0282243
(24) 등록일자 2000년11월27일

(21) 출원번호 10-1993-0013885
(22) 출원일자 1993년07월22일
(65) 공개번호 특1994-0005575
(43) 공개일자 1994년03월21일

(30) 우선권주장 92-238804 1992년07월23일 일본(JP)
93-57668 1993년02월05일 일본(JP)
93-96428 1993년03월17일 일본(JP)

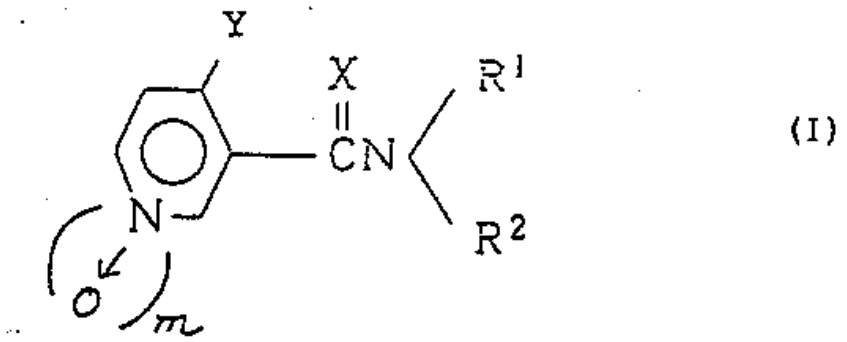
(73) 특허권자 이시하라 산교 가부시끼가이샤 이시하라 겐조
일본 오오사까시 니시꾸에 도보리1쪼메3방15고
(72) 발명자 도끼다다아끼
일본국시가껭구사쯔시니시시부까와2쪼메3방1고이시하라산교가부시끼가이샤주오겐뀨쇼
고야나기도루
일본국시가껭구사쯔시니시시부까와2쪼메3방1고이시하라산교가부시끼가이샤주오겐뀨쇼
모리따마사유끼
일본국시가껭구사쯔시니시시부까와2쪼메3방1고이시하라산교가부시끼가이샤주오겐뀨쇼
요네다데쯔오
일본국시가껭구사쯔시니시시부까와2쪼메3방1고이시하라산교가부시끼가이샤주오겐뀨쇼
가기모또지하루
일본국시가껭구사쯔시니시시부까와2쪼메3방1고이시하라산교가부시끼가이샤주오겐뀨쇼
오까다히로시
일본국시가껭구사쯔시니시시부까와2쪼메3방1고이시하라산교가부시끼가이샤주오겐뀨쇼
(74) 대리인 주성민

심사관 : 김희수

(54) 아미드화합물및그의염,이들의제조방법및이들을함유하는살충조성물

요약

본 발명은 아미드 화합물 및 그의 염, 그의 제조 방법 및 이들을 함유하는 살충 조성물에 관한 것이다. 하기 일반식(Ⅰ)의 아미드 화합물 또는 그의 염이 개시된다.



(I)

식 중, X는 산소 원자 또는 황 원자이고, Y는 할로알킬기이고, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기, 치환될 수도 있는 시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6- 원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는

알키닐기, 치환될 수도 있는 시클로알킬기, 치환될 수도 있는 아릴기, 알콕시기, 알킬티오기 또는 모노- 또는 디-알킬아미노기이고, R^4는 알킬기 또는 디알킬아미노기이고, R^5는 알킬기 또는 아릴기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적이고, 알콕시기 또는 알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, m은 0 또는 1이고, n은 1 또는 2이고, 단, m이 0이고, X가 산소 원자이고, Y가 트리플루오로메틸기인 경우, R^1 및 R^2는 동시에 수소 원자가 아니다.

명세서

[발명의 명칭]

아미드 화합물 및 그의 염, 이들의 제조 방법 및 이들을 함유하는 살충 조성물

[발명의 상세한 설명]

본 발명은 아미드 화합물 및 그의 염, 이들의 제조 방법 및 활성 성분으로서 이들을 함유하는 살충 조성물에 관한 것이다.

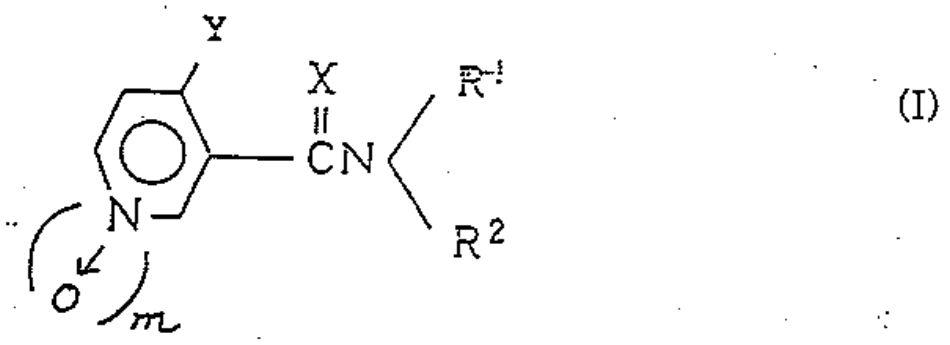
다양한 화합물이 살충제용 활성 성분으로서 알려져 있다. 그러나, 이들의 화학적 구조는 본 발명의 아미드 화합물과는 상이한 것이다.

지금까지는 유기인 화합물, 카르바메이트 화합물 및 피레트로이드 화합물이 살충제와 같은 유해 동물 방제제용 활성 성분으로서 사용되어져 왔다. 결국, 최근 몇년 동안에 일부 해충은 상기한 살충제에 대하여 내성을 갖게 되었다. 그러므로, 이와 같은 내성을 갖는 해충에 대하여 활성인 살충제가 요구된다. 또한, 해충에 대해서는 더욱 효과적이고, 어류, 갑각류 및 가축에 대해서는 더욱 안정하거나 또는 더 광범위한 살충 범위를 갖는 신규 살충제에 대한 연구 및 개발이 진행되어 왔다.

본 발명의 목적은 살충 활성을 갖는 아미드 화합물, 그의 제조 방법 및 이들을 함유하는 살충 조성물을 제공하는 것이다.

본 발명자들은 살충제를 개발하기 위하여 광범위한 연구를 진행하였으며, 특정 화학 구조를 갖는 아미드 화합물이 뛰어난 살충 활성을 갖는다는 것을 발견하였다. 본 발명은 이러한 발견에 기초하여 완성되었다.

따라서, 본 발명은 하기 일반식(I)의 아미드 화합물 또는 그의 염, 이들의 제조방법 및 이들을 함유하는 살충 조성물을 제공한다.



(I)

식 중, X는 산소 원자 또는 황 원자이고,

Y는 할로알킬기이고,

R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기, 치환될 수도 있는 시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)_nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는

R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6- 원 헤테로시클릭기를 형성하고,

R^3은 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기, 치환될 수도 있는 시클로알킬기, 치환될 수도 있는 아릴기, 알콕시기, 알킬티오기 또는 모노- 또는 디-알킬아미노기이고,

R^4는 알킬기 또는 디알킬아미노기이고,

R^5는 알킬기 또는 아릴기이고,

R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적이고, 알콕시기 또는 알킬티오기이고,

W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고,

m은 0 또는 1이고,

n은 1 또는 2이고,

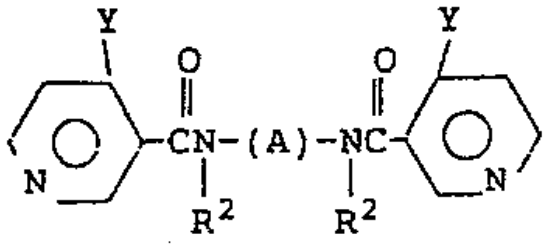
단, m이 0이고, X가 산소 원자이고, Y가 트리플루오로메틸기인 경우, R^1 및 R^2는 동시에 수소 원자가 아니다.

지금부터 본 발명의 바람직한 실시태양을 참조하여 본 발명을 상세히 설명한다.

일반식(I)에서 Y는 CF_3, CHF_2, CH_2F, CF_2Cl, $CFCl_2$, CCl_3, CH_2CF_3, CF_2CF_3, $CHBr_2$, CH_2Br과 같은 할로알킬기이다. Y는 1 내지 2개의 탄소 원자 및 1 내지 5개의 할로겐 원자를 갖는 할로알킬기가 바람직하고, 트리플루오로메틸이 더욱 바람직하다.

일반식(I)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 예를 들면 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; C_{2-6} 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피레라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; $-C(W^2)R^8$(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 $-OC(W^2)R^9$(여기서, R^9는 알킬 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐일 수 있다. 상기 치환제가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있다.

R^1 및 R^2 각각의 정의에서 치환될 수도 있는 알킬기의 치환체로서는 예를 들면, 4-할로알킬-3-피리딘 카르복스아미드기, N-메틸-4-할로알킬-3-피리딘 카르복스 아미드기 및 4-할로알킬-3-피리딘 카르복스아미드-N-알킬렌옥시기가 있다. 이와 같은 치환체를 갖는 일반식(Ⅰ)의 화학 구조는 예를 들면, 다음의 일반식으로 나타내어진다.



식 중, Y 및 R^2는 상기 정의한 바와 같고, A는 $-(CH_2)_\ell-$ 또는 $-(CH_2)_q-O-(CH_2)_q-$ 이고, ℓ은 1 내지 4의 정수이고, q는 1 또는 2이다. 즉, 이 일반식의 화합물은 예를 들면, 알킬렌 사슬에 의해서 연결된 일반식(Ⅰ)의 화합물을 갖는 다이머이다. 이와 마찬가지로, 본 발명의 화합물에는 동일한 개념에 기초한 트라이머가 포함된다.

일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 아릴기의 치환체는, 예를 들면 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

일반식(Ⅰ)에서, R^1 또는 R^2의 알킬기 또는 그에 함유된 알킬 부분은, 예를 들면 1 내지 6개의 탄소 원자를 갖는, 예를 들면 메틸기, 에틸기, 프로필기, 부틸기, 펜틸기 또는 헥실기이고, 3개 이상의 탄소 원자를 갖는 것은 직쇄 또는 분지쇄 이성질체 구조를 가질 수도 있다. R^1 또는 R^2에 포함된 알케닐기는, 예를 들면 2 내지 6개의 탄소 원자를 갖는, 예를 들면 에테닐기, 프로페닐기, 부테닐기, 펜테닐기 또는 헥세닐기이고, 3개 이상의 탄소 원자를 갖는 것은 직쇄 또는 분지쇄 이성질체 구조를 가질 수도 있다. R^1 또는 R^2에 포함된 알키닐기는, 예를 들면 2 내지 6개의 탄소 원자를 갖는, 예를 들면 에티닐기, 프로피닐기, 부티닐기, 펜티닐기 또는 헥시닐기이고, 3개 이상의 탄소 원자를 갖는 것은 직쇄 또는 분지쇄 이성질체 구조를 가질 수도 있다. R^1 또는 R^2에 포함된 시클로알킬기는, 예를 들면 3 내지 8개의 탄소 원자를 갖는, 예를 들면 시클로프로필기, 시클로부틸기, 시클로펜틸기 또는 시클로헥실기일 수 있다.

일반식(Ⅰ)에서, 인접한 질소 원자와 함께 R^1 및 R^2에 의해서 형성된, 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6-원 헤테로시클릭기는, 예를 들면 모르폴리노기, 피롤리디노기, 피페리디노기, 1-이미다졸리디닐기, 2-시아노이미노-3-메틸-1-이미다졸리디닐기, 1-피페라지닐기 또는 4-메틸-1-피페라지닐기일 수도 있다.

일반식(Ⅰ)의 정의에 사용된 아릴기는, 예를 들면 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기일 수도 있다.

일반식(I)의 화합물은 산성 물질 또는 염기성 물질과 함께 염을 형성할 수도 있다. 산성 물질과의 염은 염산염, 브롬화수소산염, 인산염, 황산염 또는 질산염과 같은 무기염일 수 있다. 염기성 물질과의 염은 나트륨염, 칼륨염, 칼슘염, 암모늄염 또는 디메틸아민염과 같은 무기 또는 유기 염기의 염일 수도 있다.

본 발명의 아미드 화합물 또는 그의 염으로서는 다음의 것이 바람직하다:

(1) 일반식(I)의 화합물 또는 그의 염(여기서, X는 산소 원자임).

(2) 일반식(I)의 화합물 또는 그의 염 (여기서, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적이고, 수소 원자, 치환될 수도 있는 알킬기, 또는 $-C(W^1)R^3$이거나 또는, R^1 및 R^2가 $=C(R^6)R^7$을 형성하고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, R^3은 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 아릴기, 또는 알콕시기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적으로 알콕시기 또는 알킬티오기임).

X가 산소 원자이고, R^1 및 R^2 각각이 서로 독립적으로 수소 원자, 알킬기, 알콕시알킬기, 알킬아미노알킬기, C_{2-6} 시클릭 아미노알킬기, 히드록시알킬기, 시아노알킬기, 티오카르바모일알킬기, 알킬카르보닐옥시알킬기, 알킬카르보닐기 아릴카르보닐기, 트리플루오로메틸-치환 아릴카르보닐기, 알콕시티오카르보닐기 또는 알콕시카르보닐기이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^5)R^7$을 형성하고, R^6 및 R^7은 각각 알콕시기 및 알킬티오기인 일반식(I)의 화합물 또는 그의 염이 더욱 바람직하다.

바람직한 화합물의 구체적인 예는 다음과 같다:

4-트리플루오로메틸-3-피리딘카르복스아미드,

N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-티오카르바모일메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-에톡시메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-이소프로필아미노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-시아노메틸-N,N-비스(4-트리플루오로메틸니코티노일)아민,

N-아세틸-N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-시아노메틸-N-메틸-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

O-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)티오카르바메이트,

N-메틸-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-(N',N'-디메틸아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-(1-피페리디닐)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-시아노메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)아미노메틸피바레이트,

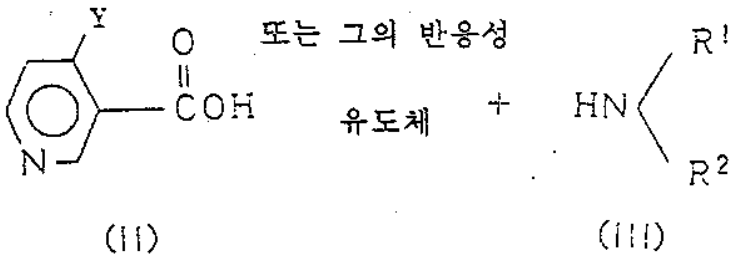
O,S-디메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)이미노포르메이트,

N-히드록시메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

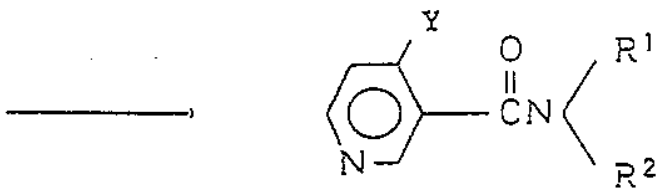
N-아세틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 또는

메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)카르바메이트, 또는 이들의 1-옥시드.

일반식(II)의 화합물 또는 그의 염 또는 그의 반응성 유도체는, 예를 들면 다음 방법(A)에 의해서 제조될 수 있다;



(II) (III)



(I-1)

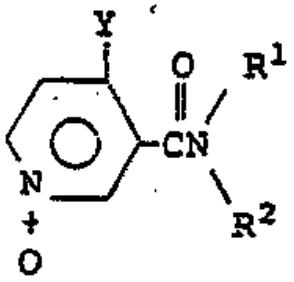
상기 식 중, Y, R^1 및 R^2는 상기 정의한 바와 같다.

일반식(II)의 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산의 반응성 유도체는, 예를 들면 산 할로겐화물, 에스테르 또는 산 무수물일 수도 있다.

상기 반응은 대개 용매 존재 하에, 필요에 따라 염기 존재하에 수행된다. 용매는 예를 들면 벤젠 또는 톨루엔과 같은 방향족 탄화수소; 디에틸 에테르 또는 테트라히드로푸란과 같은 에테르; 염화 메틸렌 또는 클로로포름과 같은 할로겐화 탄화수소; 또는 아세토니트릴, 디메틸포름아미드 또는 피리딘과 같은 비양성자성 극성용매일 수 있다. 이들 용매는 단독 또는 혼합물로서 함께 사용될 수도 있다. 염기는, 예를 들면 트리메틸아민, 트리에틸아민 또는 피리딘과 같은 3급 아민; 수산화나트륨 또는 수산화칼륨과 같은 알칼리 금속 수산화물; 탄산나트륨 또는 탄산칼륨과 같은 알칼리 금속 탄산염; 또는 메톡시화나트륨 또는 에톡시화나트륨과 같은 알칼리 금속 알콕시드가 있다. 반응물이 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산인 경우, 디시클로헥실카르보디이미드, N,N'-카르보닐디이미다졸 또는 1-에틸-3-(3-디메틸아미노프로필)카르보디이미드와 같은 축합제를 사용하는 것이 일반적이다.

상기 반응의 반응 온도는 대개 -50 ℃ ~ 100 ℃이다. 그러나, 반응성 유도체가 산 할로겐화물 또는 산 무수물인 경우, 온도는 0~30 ℃가 바람직하고, 반응성 유도체가 에스테르인 경우, 온도는 50 ~ 100 ℃가 바람직하다. 반응시간은 대개 0.1~24시간이다.

m이 1인 일반식(I)의 화합물, 즉, 하기 일반식(I-2)의 화합물은 상기 일반식(I-1)의 화합물을 산화제와 반응시켜서 제조할 수 있다.



(I-2)

식 중, Y, R^1 및 R^2는 상기한 바와 같다.

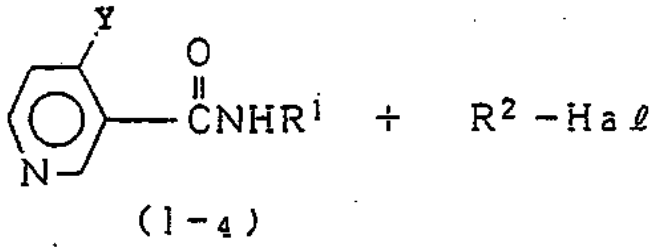
이 반응은 대개 용매 존재 하에 수행된다. 용매로서는 예를 들면, 아세트산을 언급 할 수 있다. 산화제로서는 대개 과산화수소가 사용된다. 반응 온도는 대개 50 ~ 100 ℃이고, 반응시간은 대개 6 ~ 24시간이다.

X가 황원자인 일반식(I)의 화합물은 상기 일반식(I-1)의 화합물을 오황화인과 같은 황화제와 반응시켜서 제조할 수 있다.

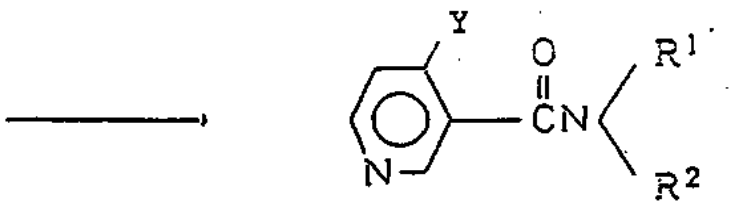
이 반응은 대개 용매 존재 하에 수행된다. 용매로서, 톨루엔 또는 크실렌과 같은 방향족 탄화수소가 바람직하게 사용된다. 상기 반응의 반응 온도는 대개 80 ~ 150 ℃, 바람직하게는 110 ~ 130 ℃이다. 반응시간은 대개 1~12시간이다.

또한, 일반식(I)의 화합물 또는 그의 염은, 예를 들면 다음의 방법(B)에 의해서 제조될 수도 있다.

(B)



(I-4)



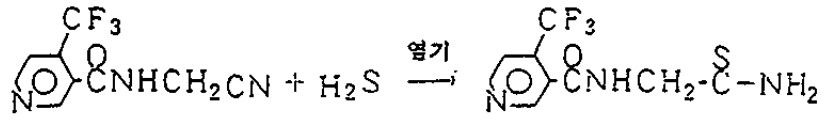
(I-1)

상기 식에서, Y, R^1 및 R^2는 상기한 바와 같고, 단, R^2는 수소 원자가 아니며, Hal은 할로겐 원자이다.

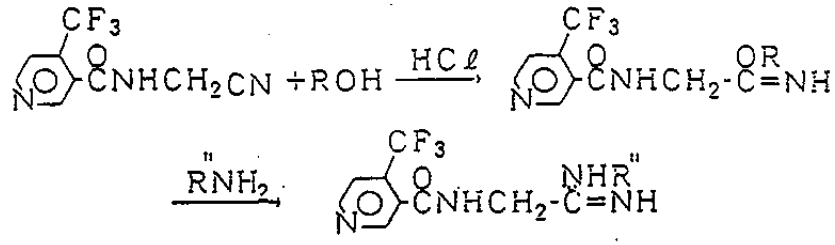
방법(B)의 반응은 상기 방법(A)의 반응과 동일한 방식으로 수행될 수 있다.

또한, 예를 들면, 다음의 방법들이 일반식(I)의 화합물 또는 그의 염을 제조하는 다른 방법으로서 제시될 수도 있다.

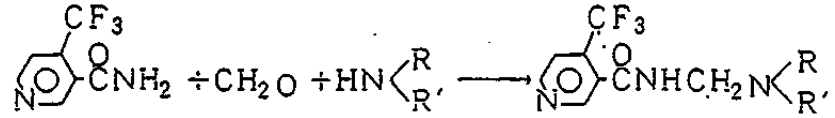
(C-1)



(C-2)



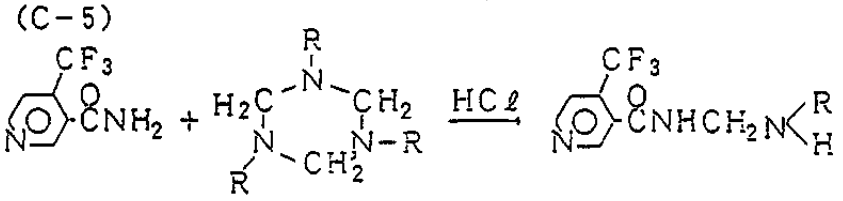
(C-3)



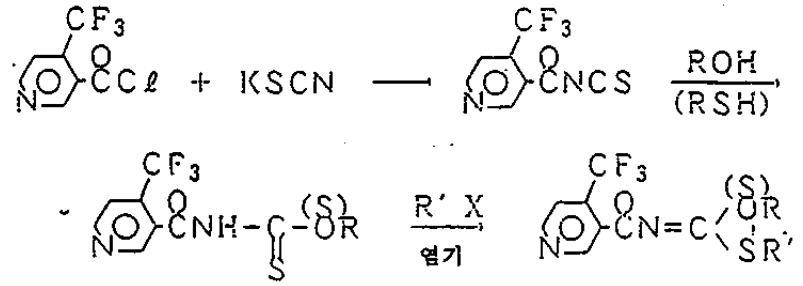
(C-4)



(C-5)



(C-6)



상기 식 중, R 및 R'은 알킬기이고, R"은 수소 원자 또는 알킬기이다.

상기 방법(C-1)의 반응은 용매 및 염기의 존재 하에 수행될 수 있다. 용매는, 예를 들면 벤젠 또는 톨루엔과 같은 방향족 탄화수소; 디에틸에테르 또는 테트라히드로푸란과 같은 에테르; 염화메틸렌 또는 클로로포름과 같은 할로겐화 탄화수소; 또는 아세토니트릴, 디메틸포름아미드 또는 피리딘과 같은 비양성자성 극성 용매일 수 있다. 이들 용매는 단독 또는 혼합물로서 함께 사용될 수도 있다. 염기로서, 트리에틸아민 또는 피리딘과 같은 3급 염기가 바람직하다. 상기 반응의 반응 온도는 대개 0~50 ℃, 바람직하기로는 20~40 ℃이고, 반응시간은 대개 1~6시간이다.

상기 방법(C-2)의 처음 반쪽 반응은 염화수소 기체 및 용매 존재하에 수행될 수 있다. 용매는, 예를 들면 테트라히드로푸란 또는 디에틸에테르와 같은 에테르; 염화메틸렌 또는 클로로포름과 같은 할로겐화 탄화수소; 또는 벤젠 또는 니트로벤젠과 같은 방향족 탄화수소일 수 있다. 이들 용매는 단독 또는 혼합물로서 함께 사용될 수도 있다. 반응 온도는 대개 -10~30 ℃, 바람직하기로는 -5~10 ℃이고, 반응시간은 대개 4~168시간이다.

후반 반응은 용매 존재 하에 수행될 수 있다. 용매는, 예를 들면 메탄올 또는 에탄올과 같은 알콜일 수도 있다. 반응 온도는 대개 0~80 ℃, 바람직하기로는 20~50 ℃이고, 반응시간은 대개 1~8시간이다.

상기 방법(C-3)의 반응은 용매 존재 하에 수행될 수 있다. 용매는, 예를 들면 물, 또는 메탄올 또는 에탄올과 같은 알콜일 수도 있다. 이들 용매는 단독 또는 혼합물로서 함께 사용될 수도 있다. 반응 온도는 대개 10~100 ℃, 바람직하기로는 20~80 ℃이고, 반응 시간은 대개 1~12시간이다.

상기 방법(C-4)의 반응은 방법(C-3)과 동일한 조건 하에 수행될 수 있다.

상기 방법(C-5)의 반응은 염화 수소 기체 및 용매 존재 하에 수행될 수 있다. 용매는, 예를 들면 디메톡시에탄 또는 디옥산과 같은 에테르일 수 있다. 반응 온도는 대개 -50 내지 +50 ℃, 바람직하기로는 -30~+20 ℃이다. 반응 시간은 대개 1~8시간이다.

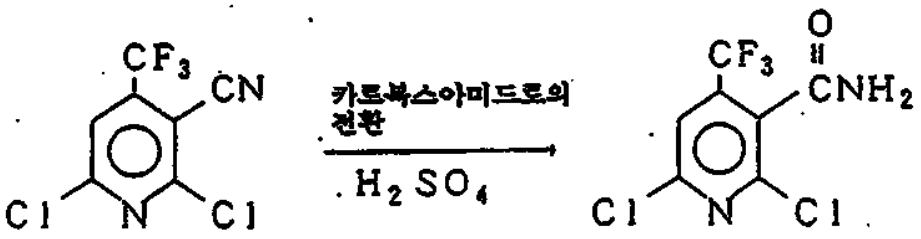
상기 방법(C-6)의 반응은 3단계 반응이다. 제 1단계 반응은 용매 존재 하에 수행된다. 용매는 예를 들면, 벤젠 또는 톨루엔과 같은 방향족 탄화수소; 디에틸에테르 또는 테트라히드로푸란과 같은 에테르; 염화메틸렌 또는 클로로포름과 같은 할로겐화 탄화수소; 또는 아세토니트릴 또는 디메틸포름아미드와 같은 비양성자성 극성 용매일 수 있다. 이들 용매는 단독으로 또는 혼합물로서 함께 사용될 수도 있다. 반응 온도는 대개 30~120 ℃, 바람직하기로는 50~80 ℃이고, 반응 시간은 대개 1~12시간이다.

제 2단계 반응은 용매 존재하에 수행된다. 용매는, 예를 들면 상기 제1 단계 반응에서 언급된 동일한 용매일 수도 있다. 반응 온도는 대개 0~100 ℃, 바람직하기로는 20~50 ℃이고, 반응시간은 대개 1~12시간이다.

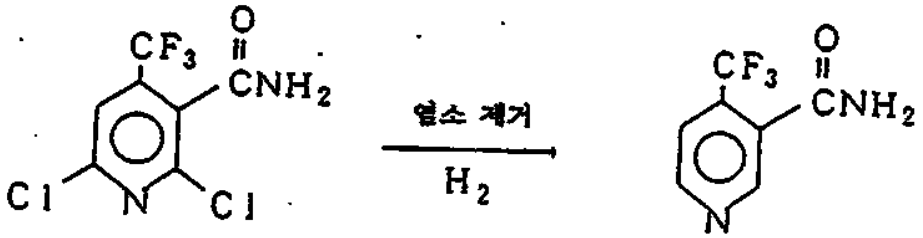
제 3단계 반응은 용매 및 염기 존재 하에 수행된다. 용매는, 예를 들면 아세토니트릴 또는 디메틸포름아미드와 같은 비양성자성 극성 용매일 수 있다. 염기는, 예를 들면 수소화나트륨 또는 수소화칼륨과 같은 알칼리 금속 수소화물; 수산화나트륨 또는 수산화칼슘과 같은 알칼리 금속 수산화물; 메톡시화 나트륨 또는 에톡시화나트륨과 같은 알칼리 금속 알콕시드; 또는 트리에틸아민 또는 피리딘과 같은 3급 아민일 수도 있다. 반응 온도는 대개 0~100 ℃, 바람직하기로는 20~50 ℃이고, 반응 시간은 대개 1~12시간이다.

일반식(I)의 화합물 중에서 X가 산소 원자이고, Y가 CF_3이고, R^1 및 R^2가 동시에 수소 원자인 화합물, 즉 4-트리플루오로메틸-3-피리딘카르복스아미드는 일반식(III)의 화합물로서 암모니아를 사용하는 상기 방법(A)에 의해서 제조될 수 있다. 별법으로, 2,6-디클로로-3-시아노-4-트리플루오로메틸피리딘으로부터 다음 방법에 의해서 제조될 수 있다:

(D-1)



(D-2)



단계(D-1)은 2,6-디클로로-3-시아노-4-트리플루오로메틸피리딘을 진한 황산과 반응시켜서 수행한다.

단계(D-2)는 수소 및 상기 단계(D-1)에서 얻어진 2,6-디클로로-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드를 용매, 촉매 및 염기 존재하에 반응시켜서 수행한다. 용매는, 예를 들면 메탄올 또는 에탄올과 같은 알콜, 또는 테트라히드로푸란과 같은 에테르일 수도 있다. 촉매는, 예를 들면 팔라듐 또는 염화 팔라듐(II)일 수도 있다. 염기는, 예를 들면 아세트산나트륨, 수산화나트륨, 수산화칼륨 또는 트리에틸아민일 수도 있다.

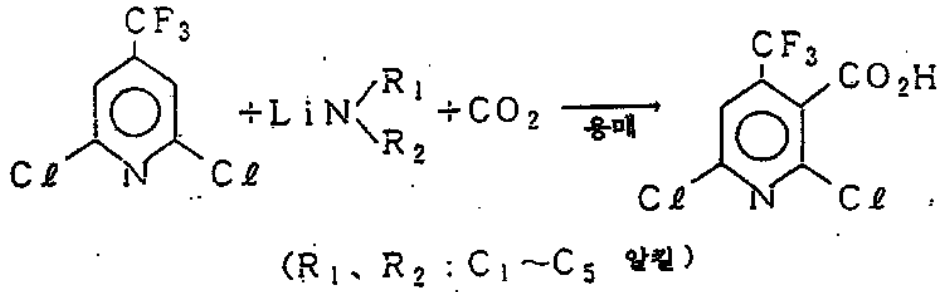
단계(D-2)의 반응 온도는 대개 0~100 ℃이고, 반응 시간은 대개 1~24시간이다.

또한, 상기 단계(D-1)에서, 2,6-디클로로-3-시아노-4-트리플루오로메틸피리딘 대신에 2,6-디브로모-3-시아노-4-트리플루오로메틸피리딘을 사용하여 유사한 반응을 수행할 수도 있다. 이 2,6-디브로모-3-시아노-4-트리플루오로메틸피리딘은 3-시아노-2,6-디히드록시-4-트리플루오로메틸피리딘을 인 옥시브로마이드와 같은 브롬화제와 반응시켜서 얻을 수 있다.

이들 일반식(II)의 화합물 중에서 Y가 CF_3인 화합물, 즉 4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복실산은 공지의 화합물이고 상품화되어 있다.

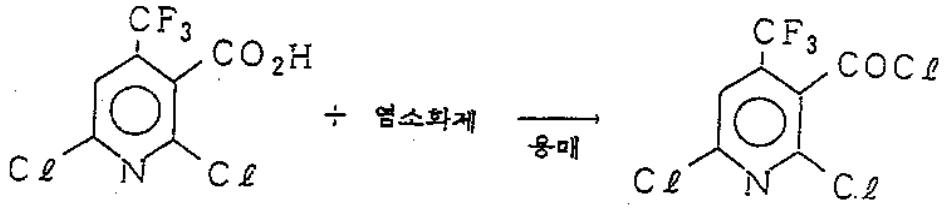
또한, 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산은, 예를 들면 하기 방법에 의해서 제조될 수 있다.

[단계 1]

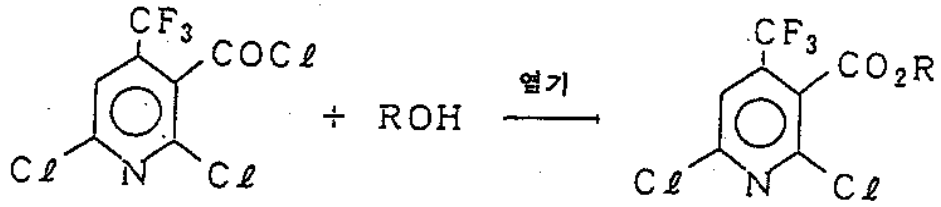


(R1, R2 : C1~C5 알킬)

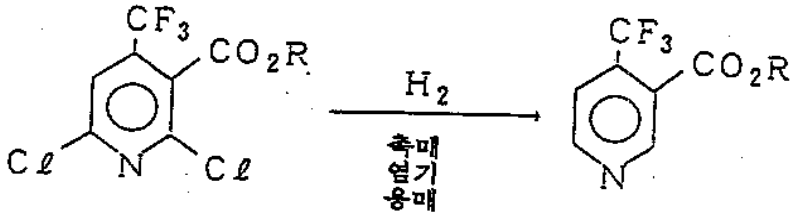
[단계 2]



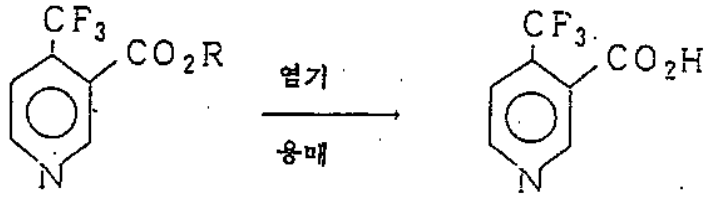
[단계 3]



[단계 4]



[단계 5]



[단계 1]

단계 1은 2,6-디클로로-4-할로알킬피리딘을 디알킬아미드 리튬(바람직하기로는 디이소프로필아미드 리튬) 및 용매 존재 하에 기체상 또는 고상 이산화탄소와 반응시켜서 수행할 수 있다. 용매는 테트라히드로푸란 또는 디에틸에테르와 같은 에테르일 수도 있다. 반응 온도는 대개 -100 ~ +20℃, 바람직하기로는 -80 ~ -20℃이고, 반응 시간은 1~12 시간이다.

[단계 2]

단계 2는 단계 1에서 형성된 2,6-디클로로-4-할로알킬피리딘-3-카르복실산을 용매 존재 하에 염소화제와 반응시켜서 수행할 수 있다. 염소화제는 염화 티오닐 또는 오염화인일 수도 있고, 용매는 벤젠 또는 톨루엔과 같은 방향족 탄화수소일 수도 있다. 반응 온도는 대개 20~120℃, 바람직하기로는 50~100℃이고, 반응 시간은 1~6 시간이다.

[단계 3]

단계 3은 단계 2에서 형성된 2,6-디클로로-4-할로알킬피리딘-3-카르복실산의 염화물을 염기 존재 하에 알콜과 반응시켜서 수행할 수 있다. 알콜은 메탄올 또는 에탄올과 같은 알콜일 수도 있고, 염기는 트리에틸아민 또는 피리딘과 같은 3급 염기일 수도 있다. 반응 온도는 대개 0 ~ 80℃, 바람직하기로는 20 ~ 50℃이고, 반응 시간은 1~12 시간이다.

[단계 4]

단계 4는 단계 3에서 형성된 2,6-디클로로-4-할로알킬피리딘-3-카르복실산의 에스테르를 용매, 촉매 및 염기 존재하에 수소 기체와 반응시켜서 수행할 수 있다. 용매는 메탄올 또는 에탄올과 같은 알콜, 또는 테트라히드로푸란과 같은 에테르일 수도 있고, 촉매는 팔라듐 또는 염화 팔라듐(II)일 수도 있고, 염기는 트리에틸아민 또는 피리딘과 같은 3급 염기, 또는 아세트산나트륨일 수도 있다. 반응 온도는 대개 0~100℃, 바람직하기로는 20~50℃이고, 반응 시간은 1~24 시간이다.

[단계 5]

단계 5는 단계 4에서 형성된 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산의 에스테르를 용매 존재 하에 염기와 반응시켜서 수행할 수 있다. 용매는 물 또는 메탄올 또는 에탄올과 같은 알콜일 수 있고, 단독으로 또는 혼합물로서 함께 사용될 수 있다. 염기는 수산화나트륨 또는 수산화칼륨과 같은 알칼리 금속 수산화물일 수도 있다. 반응온도는 대개 0~100℃, 바람직하기로는 20~80℃이고, 반응 시간은 1~12 시간이다.

또한, 그의 반응성 유도체는 일반식(II)의 화합물로부터 제조될 수 있다.

산염화물의 합성은 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산을 환류 온도에서 필요하다면 촉매량의 디메틸포름아미드 존재 하에 염화티오닐 또는 삼염화인과 같은 염소화제와 반응시켜서 수행할 수 있다.

4-할로알킬-3-피리딘 카르보닐 클로라이드 이외의 일반식(II)의 반응성 유도체는 벤조산을 반응성 유도체로 전환시키는 통상적인 방법과 유사한 방법으로 제조할 수 있다. 예를 들면, 브롬화 산은 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산을 삼브롬화인, 옥시브롬화인 또는 브롬화아세틸과 같은 브롬화제와 반응시켜서 제조할 수 있고; 산무수물은 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산 또는 그의 염화물을 건조제와 반응시켜서 제조할 수 있고; 에스테르는 4-할로알킬피리딘-3-카르복실산을 알콜과 반응시켜서 제조할 수 있다.

본 발명의 화합물은 유해동물 방제제, 예를 들면, 살충제, 진드기 박멸제, 선충 박멸제 및 토양 살충제용 활성 성분으로서 우수한 활성을 나타낸다. 예를 들면, 본 발명의 화합물들은 식물 기생성 응애류, 예를 들면 점박이 응애(Tetranychus urticae), 카르민 응애(Tetranychus cinnabarinus) 또는 귤 응애(Panonychus citri) 또는 뿌리 응애(Rhizoglyphus echinopus); 진디, 예를 들면, 자두진디(Myzus persicae) 또는 코튼 아피드(Aphis gossypii); 농업 해충류, 예를 들면 배추좀 나방(Plutella xylostella), 마메스트라 브라시캐(Mamestra brassicae), 스포돕테라 리투라(Spodoptera litura), 콜로라도 잎벌레(Leptinotarsa decemlineata), 과수나방(Laspeyresia pomonella), 솜벌레(Heliothis zea), 회색 담배 나방 유충(Heliothis virescens), 멕시코 솜바구니(Anthonomus grandis), 매미 나방(Lymantria dispar), 아울라코포라 페모랄리스(Aulacophora femoralis), 장삼벌레과, 매미충과, 개각충류, 반시류, 화이트플라이스(whiteflies), 삽주벌레, 메뚜기, 안토미이드 플라이스(anthomyiid flies), 풍뎅이, 검거세미나방(Agrotis ipsilon), 거세미나방(Agrotis segetum) 또는 개미; 위생 해충, 예를 들면 열대 쥐 응애(Ornithonyssus bacoti), 바퀴, 집파리(Musca domestica) 또는 집모기(Culex pipiens pallens); 저곡 해충, 예를 들면 시토트로가 세레알렐라(Sitotroga cerealella), 칼로소브루쿠스 키넨시스(Callosobruchus chinensis), 트리볼륨 콘푸섬(Tribolium confusum) 또는 가루진드기 속; 가옥 해충류, 예를 들면 티네아 펠리오넬라(Tinea pellionella), 안트레누스 스크로풀라리대(Anthrenus scrophularidae), 또는 지하 흰개미; 및 기타 가축의 기생충, 예를 들면 벼룩, 이 또는 파리 등에 효과적이다. 또한, 본 발명의 화합물은 식물 기생 선충, 예를 들면 고구마혹선충, 씨스트 선충, 루트-레젼 네마토드(root-lesion nematodes), 벼이삭선충(Aphelenchoides besseyi), 노토틸렌쿠스 아크리스(Nothotylenchus acris) 또는 부르사펠렌쿠스 리그니콜루스(Bursaphelenchus lignicolus)에 대하여 활성하다. 또한 본 발명의 화합물들은 토양 해충에 효과적이다. 본 발명에 있어서 토양 해충에는 괄태충 또는 달팽이와 같은 복족류, 또는 쥐며느리와 같은 등각류가 있다. 그 중에서도, 본 발명의 화합물은 특히 자두 진디 또는 코튼 아피드와 같은 진디에 대하여 활성하다. 또한, 본 발명의 화합물은 유기인, 카르바메이트 및(또는) 합성 피레트로이드 살충제에 대하여 내성을 획득한 진디와 같은 해충에 대하여 활성하다. 또한, 본 발명의 화합물은 우수한 침투 이행성을 가지며, 본 발명의 화합물을 토양 처리에 사용함으로써 토양에서 유해 곤충류, 유해 응애류, 유해 선충류, 유해 복족류 및 유해 등각류 뿐만 아니라 경엽부 해충류를 방제할 수 있다.

살충제, 진드기 박멸제, 선충박멸제 또는 토양 해충 박멸제용 활성성분으로 사용되는 경우, 본 발명의 화합물은 농업용 보조제와 함께, 여러가지 제제, 예를 들면 분제, 입제, 과립수화제, 수화제, 유화농축물, 현탁 농축물, 가용성 농축물, 습윤성 분제, 유동제, 에어로졸제 또는 페이스트제, 미량제형 및 유사한 통상의 농화학제로 제형될 수 있다. 상기 제제를 실제로 사용할 때는, 그대로 또는 물과 같은 적당한 희석제로 소정 농도로 희석시킨 후 사용할 수 있다.

이러한 제제들은 일반적으로 0.1~90 중량부의 활성 성분 및 10~99.9 중량부의 농업용 보조제로 구성된다.

농업용 보조제로는, 담체, 유화제, 현탁제, 분산제, 전착제, 침투제, 습윤제, 증점제 또는 안정제를 들 수 있다. 이들 보조제는 필요할 경우 첨가할 수 있다. 담체는 고상 담체 및 액상 담체로 나눌 수 있다. 고상 담체로는 동식물성 분말, 예를 들면 전분, 활성탄, 대두분, 소표분, 목분, 어분 또는 분유; 또는 광물성 분말, 예를 들면 탈크, 카올린, 벤토나이트, 탄산칼슘, 제올라이트, 규조토, 화이트 카본, 클레이 또는 알루미나를 들 수 있다. 액상 담체로는 물; 알코올류, 예를 들면 이소프로필 알코올 또는 에틸렌 글리콜; 케톤류, 예를 들면 시클로헥사논 또는 메틸 에틸 케톤; 에테르, 예를 들면, 디옥산 또는 테트라히드로푸란; 지방족 탄화수소, 예를 들면 등유; 방향족 탄화수소, 예를 들면 크실렌, 트리메틸벤젠, 테트라메틸벤젠, 메틸나프탈렌 또는 용매 나프타; 할로겐화된 탄화수소, 예를 들면 클로로벤젠; 산 아미드류, 예를 들면 디메틸아세트아미드; 디메틸아세트아미드; 에스테르류, 예를 들면 지방산의 글리세린 에스테르; 니트릴, 예를 들면 아세토니트릴또는 황 함유 화합물, 예를 들면 디메틸 술폭시드를 들 수 있

다.

또한, 본 발명의 화합물은 필요에 따라서 다른 농화학제, 예를 들면 살충제, 진드기 박멸제, 선충 박멸제, 살진균제, 항균제, 유인제, 제초제 또는 식물 성장 조절제와 함께 사용될 수도 있다. 일부 경우에는 이와 같이 혼합 사용하면 효능이 개선될 것이다.

이러한 살충제, 진드기 박멸제 또는 선충 박멸제의 예는 다음과 같다:

[유기인산염 화합물]

O-(4-브로모-2-클로로페닐) O-에틸 S-프로필 포스포로티오에이트(일반명: 프로페노포스),

O-(2,2-디클로로비닐) O,O-디메틸포스페이트(일반명: 디클로르보스),

O-에틸 O-[3-메틸-4-(메틸티오)페닐] N-이소프로필 포스포르아미데이트(일반명: 페나미포스),

O,O-디메틸 O-(4-니트로-m-톨릴) 포스포로티오에이트(일반명: 페니트로티온),

O-에틸 O-(4-니트로페닐)페닐 포스포노티오에이트(일반명: EPN),

O,O-디에틸 O-(2-이소프로필-6-메틸피리미딘-4-일) 포스포로티오에이트(일반명: 디아지논),

O,O-디메틸 O-(3,5,6-트리클로로-2-피리딜) 포스포로티오에이트(일반명: 클로르피리포스-메틸),

O,S-디메틸 N-아세틸포스포르아미도티오에이트(일반명: 아세페이트),

O-(2,4-디클로로페닐) O-에틸 S-프로필 포스포로디티오에이트(일반명: 프로티오포스), 및

(RS)-S-sec-부틸 O-에틸 2-옥소-1,3-티아졸리딘-3-일 포스포노티오에이트(일반명: 포스티아제이트);

[카르밤산염 화합물]

1-나프틸 N-메틸카르바메이트(일반명: 카르바릴),

2-이소프로폭시페닐 N-메틸카르바메이트(일반명: 프로폭셔),

2-메틸-2-(메틸티오)프로피온알데히드 O-메틸카르바모일옥심(일반명: 알디카르브),

2,3-디히드로-2,2-디메틸벤조푸란-7-일 N-메틸카르바메이트(일반명: 카르보푸란),

디메틸 N,N'-[티오비스[(메틸이미노)카르보닐옥시]]비스에탄이미도티오에이트(일반명: 티오디카르브),

S-메틸 N-(메틸카르바모일옥시)티오아세트이미데이트(일반명: 메토밀),

N,N-디메틸-2-메틸카르바모일옥시이미노-2-(메틸티오)아세트아미드(일반명: 옥사밀),

2-(에틸티오메틸)페닐 N-메틸카르바메이트(일반명: 에티오펜카르브),

2-디메틸아미노-5,6-디메틸피리미딘-4-일 N,N-디메틸카르바메이트(일반명: 피리미카르브), 및

2-sec-부틸페닐 N-메틸카르바메이트(일반명: 페노부카르브);

[네레이스톡신 유도체]

S,S'-2-디메틸아미노트리메틸렌비스(티오카르바메이트)(일반명: 카르탑), 및

N,N-디메틸-1,2,3-트리티안-5-일아민(일반명: 티오시클람);

[유기 염소 화합물]

2,2,2-트리클로로-1,1-비스(4-클로로페닐)에탄올(일반명: 디코폴), 및

4-클로로페닐-2,4,5-트리클로로페닐술폰(일반명: 테트라디폰);

[유기 금속 화합물]

비스[트리스(2-메틸-2-페닐프로필)틴] 옥시드(일반명: 펜부타틴 옥시드); 피레트로이드 화합물

(RS)-α-시아노-3-페녹시벤질 (RS)-2-(4-클로로페닐)-3-메틸부틸레이트 (일반명: 펜발러레이트),

3-페녹시벤질 (1RS)-시스,트란스-3-(2,2-디클로로비닐)-2,2-디메틸시클로프로판카르복실레이트(일반명: 퍼메트린),

(RS)-α-시아노-3-페녹시벤질 (1RS)-시스,트란스-3-(2,2-디클로로비닐)-2,2-디메틸시클로프로판카르복실레이트 (일반명: 시페르메트린),

(S)-α-시아노-3-페녹시벤질 (1R)-시스-3-(2,2-디브로모비닐)-2,2-디메틸시클로프로판카르복실레이트(일반명: 델타메트린),

(RS)-α-시아노-3-페녹시벤질 (1RS)-시스,트란스-3-(2-클로로-3,3,3-트리플루오로프로페닐)-2,2-디메틸시클로프로판카르복실레이트(일반명: 시할로트린),

4-메틸-2,3,5,6-테트라플루오로벤질-3-(2-클로로-3,3,3-트리플루오로-1-프로페닐)-2,2-디메틸시클로프로판카르복실레이트(일반명: 데플루트린), 및

2-(4-에톡시페닐)-2-메틸프로필-3-페녹시벤질에테르(일반명: 에토펜프록스);

[벤조일우레아 화합물]

1-(4-클로로페닐)-3-(2,6-디플루오로벤조일)우레아 (일반명: 디플루벤주론),

1-[3,5-디클로로-4-(3-클로로-5-트리플루오로메틸-2-피리딜옥시)페닐]-3-(2,6-디플루오로벤조일)우레아 (일반명: 클로르플루아주론), 및

1-(3,5-디클로로-2,4-디플루오로페닐)-3-(2,6-디플루오로벤조일)우레아 (일반명: 테플루벤주론);

[알라타체(juvenile) 호르몬 유사 화합물]

이소프로필(2E,4E)-11-메톡시-3,7,11-트리메틸-2,4-도데카디에노에이트 (일반명: 메토프렌);

[피리다지논 화합물]

2-t-부틸-5-(4-t-부틸벤질티오)-4-클로로-3-(2H)피리다지논(일반명: 피리다벤);

[피라졸 화합물]

t-부틸 4-[(1,3-디메틸-5-페녹시피라졸-4-일)-메틸렌아미노-옥시메틸]벤조에이트 (일반명: 펜피록시메이트);

5-아미노-1-(2,6-디클로로-α,α,α-트리플루오로-p-톨릴)-4-트리플루오로메틸술피닐피라졸-3-카르보니트릴(일반명: 피프로닐);

N-(4-tert-부틸벤질)-4-클로로-3-에틸-1-메틸피라졸-5-카르복스아미드(일반명: 테부펜피라드);

[니트로 화합물]

1-(6-클로로-3-피리딜메틸)-N-니트로-이미다졸리딘-2-일리덴아민(일반명: 이미다클로프리드),

1-[N-(6-클로로-3-피리딜메틸)-N-에틸아미노]-1-메틸아미노-2-니트로에틸렌(일반명: 니텐피람),

N^1-[(6-클로로-3-피리딜)메틸]-N^2-시아노-N^1-메틸아세트아미딘(유럽 특허 공개 제456826호),

1-(6-클로로-3-피리딜메틸)-2-(1-니트로-2-알릴-티오에틸리덴)이미다졸리딘(유럽 특허 공개 제437,784호),

1-(6-클로로-3-피리딜메틸)-2-(1-니트로-2-에틸-티오에틸리덴)이미다졸리딘(유럽 특허 공개 제437,784호), 및

1-(6-클로로-3-피리딜메틸)-2-(1-니트로-2-β-메틸알릴티오에틸리덴)이미다졸리딘(유럽 특허 공개 제437,784호);

[히드라진 화합물]

N'-t-부틸-N'-3,5-디메틸벤조일-N-벤조[b]티오펜-2-카르보히드라지드,

N'-t-부틸-N'-3,5-디메틸벤조일-N-4,5,6,7-테트라히드로벤조[b] 티오펜-2-카르보히드라지드,

N'-t-부틸-N'-3,5-디메틸벤조일-N-5,6-디히드로-4H-시클로펜타[b]-티오펜-2-카르보히드라지드 및

N'-t-부틸-N'-3',5'-디메틸벤조일-N-4-에틸페닐-카르보히드라지드 (일반명: 테부페노지드).

[디니트로 화합물]

[유기황 화합물]

[우레아 화합물]

[트리아진 화합물]

[히드라존 화합물]

[기타 화합물]

2-tert-부틸이미노-3-이소프로필-5-페닐-3,4,5,6-테트라히드로-2H-1,3,5-티아디아진-4-온 (일반명 : 부프로페진),

트란스-(4-클로로페닐)-N-시클로헥실-4-메틸-2-옥소티아졸리디논-3-카르복스아미드 (일반명: 헥시티아족스),

N-메틸비스(2,4-크실릴이미노메틸)아민 (일반명: 아미트라즈),

N'-(4-클로로-o-톨릴)-N,N-디메틸포름아미딘 (일반명: 클로르디메포름), 및 (4-에톡시페닐)-[3-(4-플루오로-3-페녹시페닐)-프로필](디메틸)실란 (일반명: 실라플루오펜)

에틸(3-tert-부틸-1-디메틸카르바모일-1H-1,2,4-트리아졸-5-일티오)아세테이트(일반명: 트리아자메이트)

4,5-디히드로-6-메틸-4-(3-피리딜메틸렌아미노)-1,2,4-트리아진-3(2H)-온 (일반명: 피메트로진)

5-클로로-N-{2-[4-(2-에톡시에틸)-2,3-디메틸페녹시]에틸]-6-에틸피리미딘-4-아민 (일반명: 피리미디펜)

4-브로모-2-(4-클로로페닐)-1-에톡시메틸-5-트리플루오로메틸피롤-3-카르보니트릴 (일본국 출원 공개 제104042/1989호).

본 발명의 화합물은 B.T. 및 곤충 바이러스와 같은 미생물 농화학제, 및 아버멕틴 및 밀베마이신과 같은 항생제와의 혼합물 또는 배합물로서 사용될 수도 있다.

상기한 살진균제의 활성성분의 특정예에는 다음 화합물이 포함된다.

[피리미딘아민 화합물]

2-아닐리노-4-메틸-6-(1-프로피닐)피리미딘(일본국 출원 공개 제208,581/1988호에 기재됨).

[아졸 화합물]

1-(4-클로로페녹시)-3,3-디메틸-1-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일)부타논 (일반명: 트리아디메폰),

1-(비페닐-4-일옥시)-3,3-디메틸-1-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일)부탄-2-올 (일반명: 비테르탄올),

1-[N-(4-클로로-2-트리플루오로메틸페닐)-2-프로폭시아세트이미도일]이미다졸 (일반명: 트리플루미졸),

1-[2-(2,4-디클로로페닐)-4-에틸-1,3-디옥솔란-2-일-메틸]-1H-1,2,4-트리아졸 (일반명: 에타코나졸)

1-[2-(2,4-디클로로페닐)-4-프로필-1,3-디옥솔란-2-일-메틸]-1H-1,2,4-트리아졸 (일반명: 프로피코나졸)

1-[2-(2,4-디클로로페닐)펜틸]-1H-1,2,4-트리아졸 (일반명: 펜코나졸)

비스(4-플루오로페닐)(메틸)(1H-1,2,4-트리아졸-1-일-메틸)실란 (일반명: 플루실라졸),

2-(4-클로로페닐)-2-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일-메틸)헥산니트릴 (일반명; 마이클로부타닐),

(2RS, 3RS)-2-(4-클로로페닐)-3-시클로프로필-1-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일)부탄-2-올 (일반명: 시프로코나졸),

(RS)-1-(4-클로로페닐)-4,4-디메틸-3-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일메틸)펜탄-3-올 (일반명: 테르부코나졸),

(RS)-2(2,4-디클로로페닐)-1-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일)헥산-2-올 (일반명: 헥사코나졸),

(2RS, 5RS)-5-(2,4-디클로로페닐)테트라히드로-5-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일메틸)-2-푸릴 2,2,2-트리플루오로에틸 에테르 (일반명: 푸르코나졸-시스), 및

N-프로필-N-[2-(2,4,6-트리클로로페녹시)에틸]-이미다졸-1-카르복스아미드 (일반명: 프로클로라즈);

[퀴녹살린 화합물]

6-메틸-1,3-디티올로[4,5-b]퀴녹살린-2-온 (일반명: 퀴노메티오네이트);

[디티오카르바메이트 화합물]

망간 에틸렌비스(디티오카르바메이트) 중합체 (일반명: 마네브),

아연 에틸렌비스(디티오카르바메이트) 중합체 (일반명: 지네브),

망간 에틸렌비스(디티오카르바메이트) (마네브)와 아연의 착화합물 (일반명: 만코제브),

이아연 비스(디메틸디티오카르바메이트)에틸렌비스(디티오카르바메이트) (일반명: 폴리카르바메이트), 및

아연 프로필렌비스(디티오카르바메이트) 중합체 (일반명: 프로피네브);

[유기 염소 화합물]

4,5,6,7-테트라클로로프탈리드 (일반명: 프탈리드),

테트라클로로이소프탈로니트릴 (일반명: 클로로탈로닐), 및

펜타클로로니트로벤젠 (일반명: 퀸토젠);

[벤즈이미다졸 화합물]

메틸 1-(부틸카르바모일)벤즈이미다졸-2-일-카르바메이트 (일반명: 베노밀),

디메틸 4,4'-(o-페닐렌)비스(3-티오알로파네이트) (일반명: 티오파네이트-메틸), 및

메틸 벤즈이미다졸-2-일카르바메이트 (일반명: 카르벤다짐);

[피리딘아민 화합물]

3-클로로-N-(3-클로로-2,6-디니트로-4-α, α, α-트리플루오로톨릴)-5-트리플루오로메틸-2-피리딘아민 (일반명: 플루아지남);

[시아노아세트아미드 화합물]

1-(2-시아노-2-메톡시이미노아세틸)-3-에틸우레아 (일반명: 시목사닐);

[페닐아미드 화합물]

메틸 N-(2-메톡시아세틸)-N-(2,6-크실릴)-DL-알라니네이트 (일반명: 메트알락실),

2-메톡시-N-(2-옥소-1,3-옥사졸리딘-3-일)아세토-2',6'-크실리디드 (일반명: 옥사딕실),

(±)-α-2-클로로-N-(2,6-크실릴아세트아미도)-γ-부티롤락톤 (일반명: 오프라스),

메틸 N-페닐아세틸-N-(2,6-크실릴)-DL-알라니네이트 (일반명: 베날락실),

메틸 N-(2-푸로일)-N-(2,6-크실릴)-DL-알라니네이트 (일반명: 푸르알락실), 및

(±)-α-[N-(3-클로로페닐)시클로프로판카르복스아미도]-γ-부티롤락톤 (일반명: 시프로푸람);

[술펜산 화합물]

N-디클로로플루오로메틸티오-N',N'-디메틸-N-페닐술프아미드 (일반명: 디클로플루아니드);

[구리 화합물]

수산화제이구리 (일반명: 수산화제이구리), 및

구리 8-퀴놀리놀레이트 (일반명: 옥신 카퍼);

[이속사졸 화합물]

5-메틸이속사졸-3-올 (일반명: 히드록시 이속사졸);

[유기인 화합물]

알루미늄 트리스(에틸 포스포네이트) (일반명: 포세틸-Al),

O-2,6-디클로로-p-톨릴-O,O-디메틸 포스포로티오에이트 (일반명: 톨코포스-메틸),

S-벤질 O,O-디이소프로필 포스포로티오에이트,

O-에틸 S,S-디페닐 포스포로디티오에이트, 및

알루미늄 에틸 히드로겐포스포네이트;

[N-할로게노티오알킬 화합물]

N-(트리클로로메틸티오)시클로헥스-4-엔-1,2-디카르복스이미드 (일반명: 캅탄),

N-(1,1,2,2-테트라클로로에틸티오)시클로헥스-4-엔-1,2-디카르복스이미드 (일반명: 캅타폴), 및

N-(트리클로로메틸티오)프탈이미드 (일반명: 폴페트);

[디카르복스이미드 화합물]

N-(3,5-디클로로페닐)-1,2-디메틸시클로프로판-1,2-디카르복스이미드 (일반명: 프로시미돈),

3-(3,5-디클로로페닐)-N-이소프로필-2,4-디옥소 이미다졸리딘-1-카르복스아미드 (일반명: 이프로디온), 및

(RS)-3-(3,5-디클로로페닐)-5-메틸-5-비닐-1,3-옥사졸리딘-2,4-디온 (일반명: 빈클로졸린);

[벤즈아닐리드 화합물]

α,α,α-트리플루오로-3'-이소프로폭시-o-톨루아닐리드 (일반명: 플루톨라닐), 및

3'-이소프로폭시-o-톨루아닐리드(일반명; 메프로닐);

[벤즈아미드 화합물]

2-(1,3-디메틸피라졸-4-일카르보닐아미노)-4-메틸-3-펜텐니트릴 (영국 특허 제2,190,375호에 기재됨), 및

α-(니코티닐아미노)-(3-플루오로페닐)아세토니트릴(일본 특허 공개 제135,364/1988호에 기재됨);

[피페라진 화합물]

N,N'-[피페라진-1,4-디일비스[트리클로로메틸)-메틸렌]]디포름아미드 (일반명: 트리포린);

[피리딘 화합물]

2',4'-디클로로-2-(3-피리딜)아세토페논 O-메틸옥심 (일반명: 피리페녹스);

[카르비놀 화합물]

(±)-2,4'-디클로로-α-(피리미딘-5-일)벤즈히드릴 알콜 (일반명 : 펜아리몰), 및

(±)-2,4'-디플루오로-α-(1H-1,2,4-트리아졸-1-일-메틸)벤즈히드릴 알콜 (일반명: 플루트리아폴);

[피페리딘 화합물]

(RS)-1-[3-(4-tert-부틸페닐)-2-메틸프로필]-피페리딘 (일반명: 펜프로피딘);

[모르폴린 화합물]

(±)-시스-4-[3-(4-tert-부틸페닐)-2-메틸-프로필]-2,6-디메틸모르폴린 (일반명: 펜프로피모르프);

[유기주석 화합물]

트리페닐틴 히드록시드 (일반명: 펜틴 히드록시드), 및

트리페닐틴 아세테이트 (일반명: 펜틴 아세테이트);

[우레아 화합물]

1-(4-클로로벤질)-1-시클로펜틸-3-페닐우레아 (일반명: 펜시쿠론);

[신남산 화합물]

(E,Z) 4-[3-(4-클로로페닐)-3-(3,4-디메톡시페닐)아크릴로일]모르폴린 (일반명: 디메토모르프);

[페닐카르바메이트 화합물]

이소프로필 3,4-디에톡시카르브아닐레이트 (일반명: 디에토펜카르브);

[시아노피롤 화합물]

3-시아노-4-(2,2-디플루오로-1,3-벤조디옥솔-4-일)-피롤 (상품명: 사피르(Saphire)), 및

3-(2',3'-디클로로페닐)-4-시아노피롤 (일반명: 펜피클로닐).

[피리딘아민 화합물]

3-클로로-N-(3-클로로-2,6-디니트로-4-α,α,α-트리플루오로톨릴-5-트리플루오로메틸-2-피리딘아민 (일반명: 플루아지남).

다른 살진균제의 활성 성분에는 안트라퀴논 화합물, 크로톤산 화합물, 항생제 및 기타 화합물, 예를 들면 디이소프로필 1,3-디티올란-2-일리덴말로네이트(일반명: 이소프로티올란), 5-메틸-1,2,4-트리아졸로[3,4-b]벤조티아졸(일반명: 트리시클라졸), 1,2,5,6-테트라히드로피롤로[3,2,1-ij]퀴놀린-4-온(일반명: 피로퀼론), 6-(3,5-디클로로-4-메틸페닐)-3(2H)-피리다지논(일반명: 디클로메진), 3-알릴옥시-1,2-벤즈이소티아졸-1,1-디옥시드(일반명: 프로베나졸)가 포함된다.

본 발명의 화합물 대 다른 농화학제의 적합한 혼합 중량비는 혼합물 또는 배합물로서 사용될 때 일반적으로 1:300 내지 300:1, 바람직하기로는 1:100 내지 100:1의 범위내 일 수 있다.

본 발명의 살충제는 0.1 내지 500,000ppm, 바람직하기로는 1 내지 100,000ppm의 활성 성분 농도로 시용된다. 활성 성분 농도는 제형, 방식, 목적 시용 시기 또는 장소 및 해충의 발생 상황 등에 따라서 임의로 변경될 수 있다. 예를 들면, 수생 유해충은 상기 농도 범위를 갖는 제제를 발생 부위에 사용함으로써 방제될 수 있기 때문에, 수중 활성 성분의 농도는 상기 범위 보다 작다.

단위 표면적 당 활성 성분의 시용량은 일반적으로 헥타르 당 약 0.1 내지 5,000g, 바람직하기로는 10 내지 1,000g이다. 그러나, 일부의 특별한 경우에 시용량은 상기 범위를 벗어날 수도 있다.

본 발명의 화합물을 함유하는 여러 제제 또는 그의 희석된 조성물은 일반적으로 통상의 시용 방법, 예를 들면 산포(예, 산포, 분무, 미스팅, 분사, 산립 또는 수중 분산), 토양 시용(예, 혼입 또는 관주), 표면 시용(예, 도포, 분의 또는 피복) 또는 유해 먹이를 얻을 수 있는 침적법에 의해 시용될 수 있다. 또한, 본 발명을 함유한 제제 또는 그의 희석된 조성물은, 상기 활성 성분을 함유하는 사료를 가축에 먹임으로써 사축의 배설물에서 해충, 특히 유해 곤충의 발생 또는 성장을 방제시킬 수 있다. 또한, 활성 성분은 소위 미량 시용법에 의해 시용될 수 있다. 이 방법에서 조성물은 활성 성분 100%로 구성될 수 있다.

또한, 본 발명의 살충제의 시용법에는, 해충에 직접 시용하는 외에도 일반식(I)의 아미드 화합물 또는 그의 염이 해충에 대하여 작용하는 또다른 시용법이 포함된다. 이러한 다른 시용법으로서는, 다른 활성 화합물이 토양과 같은 환경에서 일반식(I)의 아미드 화합물로 분해되어 해충에 작용하는 경우가 언급될 수도 있다.

지금부터, 실시예를 참조하여 본 발명을 기재한다. 그러나, 본 발명이 이들 트정 실시예에 의해서 결코 제한되지 않음을 이해해야 한다.

[합성예 1]

N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드(화합물 제1번)의 제조

벤젠 5ml 중의 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복실산 0.96g 및 염화티오닐 1.19g의 용액을 촉매량의 디메틸포름아미드의 존재 하에 30분 동안 가열 환류시켰다. 감압하에서 과량의 염화티오닐 및 벤젠을 증류 제거하였다. 이어서, 잔류물을 테트라히드로푸란 15ml 중에 용해시켰다. 이어서, 여기에 트리에틸아민 1.82g 및 황산 아미노아세토니트릴 1.05g을 첨가하고, 이 혼합물을 실온에서 18시간 동안 교반하였다. 이어서, 이 혼합물을 물에 붓고, 에틸 아세테이트로 추출하였다. 유기층을 염화암모늄 수용액, 물 및 염화나트륨 포화 수용액으로 세척하고, 무수 황산나트륨상에서 건조시키고 난 후, 감압하에 농축시켰다. 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피에 의해 정제하여 융점 155 내지 161℃인 목적 화합물 (화합물 제1번) 0.50g을 얻었다.

[합성예 2]

N-알릴-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드(화합물 제22번)의 제조

벤젠 10ml 중의 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복실산 0.26g 및 염화티오닐 0.24g의 용액을 촉매량의 디메틸포름아미드의 존재 하에 30분 동안 가열 환류시켰다. 감압하에서 과량의 염화티오닐 및 벤젠을 증류 제거하였다. 이어서, 잔류물을 테트라히드로푸란 15ml 중에 용해시켰다. 이어서, 여기에 트리에틸아민 0.21g 및 알릴아민 0.12g을 가하고, 이 혼합물을 실온에서 20시간 동안 교반하였다. 이어서, 이 혼합물을 염화 암모늄 수용액에 붓고, 에틸아세테이트로 추출하였다. 유기층을 물 및 염화나트륨 포화 수용액으로 세척하고, 무수 황산나트륨 상에서 건조시키고 난 후, 감압하에 농축시켰다. 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피에 의해 정제하여 융점이 75.5 내지 77℃인 목적 화합물(화합물 제22번) 0.21g을 얻었다.

[합성예 3]

4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드(화합물 제5번)의 제조

4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복실산 3.0g, 염화티오닐 6.7ml 및 벤젠 20ml를 함유하는 용액을 촉매

량의 디메틸포름아미드의 존재 하에 1.5 시간 동안 가열 환류시켰다. 과량의 염화티오닐 및 벤젠을 증류 제거하였다. 이어서, 잔류물을 에틸아세테이트 5ml 중에 용해시켰다. 이 용액을 빙냉하에 암모니아 20ml에 서서히 적가하였다. 적가가 끝난 후, 이 혼합물을 실온에서 30분 동안 교반하였다. 이어서, 물 및 에틸아세테이트를 감압 하에 증류·제거하였다. 잔류물을 가열된 에틸아세테이트로 추출하여 목적 화합물로서 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 2.1g (융점: 162.7℃)을 얻었다.

[합성예 4]

4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 (화합물 제5번)의 제조

(1) 3-시아노-2,6-디클로로-4-트리플루오로메틸피리딘 11.3 g을 진한 황산 22.6 ml에 서서히 가하고, 이어서 이 혼합물을 가열하고, 1시간 동안 100 ℃에서 반응시켰다. 이 반응을 완결시킨 후에, 이 혼합물을 빙냉수에 부었다. 이 때 백색 침전이 형성되었다. 침전물을 여과하여 수집하고, 여액을 염화메틸렌으로 추출하였다. 유기층을 무수 황산나트륨을 사용하여 건조시키고 난 후, 감압 하에 용매를 증발시켜서 백색 고상물을 얻었다. 이 고상물과 이전에 얻은 침전물을 합하여 2,6-디클로로-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 9.2 g을 얻었다.

(2) 상기 단계(1)에서 얻은 2,6-디클로로-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 9.2 g, 10 % 팔라듐 탄소 0.66 g 및 무수 아세트산나트륨 6.4 g을 메탄올 200 ml에 가하였다. 이어서, 실온에서 수소압하에 12시간 동안 환원 반응을 수행하였다. 반응이 완결된 후에, 셀라이트로 환원 촉매를 제거하고 여액을 농축시켰다. 에틸아세테이트 및 물을 잔류물에 가하여 추출을 수행하였다. 유기층을 무수황산나트륨 상에서 건조시켰다. 이어서, 용매를 증류 제거하여 목적 화합물로서 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 5.2 g을 얻었다.

[합성예 5]

에틸 4-트리플루오로메틸니코티노일아미노아세트이미데이트 (화합물 제32번)의 제조

냉각된 켈다알(kjeldahl) 형 플라스크에 무수 에탄올 5 ml를 가하고, 여기에 4-트리플루오로메틸-N-(시아노메틸)-3-피리딘 카르복스아미드 100 mg(0.4 mmol)을 가하였다. 이 혼합물에 염화수소를 흡수시킨 후에, 플라스크를 밀봉하여 21시간 동안 냉장고에 방치시켰다. 이어서, 이 혼합물을 실온으로 회복시켜서 감압하에 증류시킨 후 진공 건조시켰다.

이렇게 얻어진 염산염을 탄산수소나트륨 수용액에 가함으로써 중화시켰다. 이어서, 이것을 디에틸에테르로 추출하였다. 유기층을 무수 황산나트륨 상에서 건조시키고 감압 하에 농축시켰다. 얻어진 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(전개 용매 : n-헥산/에틸아세테이트 = 3/7)에 의해 정제하여 융점이 64.5 내지 66.0 ℃인 에틸 4-트리플루오로메틸니코티노일아미드 아세트이미데이트 0.165 g(수득율 : 45.8 %)을 얻었다.

[합성예 6]

O-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)티오카르바메이트(화합물 제9번)의 제조

벤젠 30 ml에, 포타슘 티오시아네이트 1.12 g(11 mmol)을 가하고, 여기에 4-트리플루오로메틸니코틴산 클로라이드 2.19 g(10 mmol)을 실온에서 적가하였다. 이어서, 이 혼합물을 추가로 6시간 동안 가열·환류시켰다. 가열·환류후에, 이 혼합물을 감압하에 증류시켜서 4-트리플루오로메틸니코티닐 티오이소시아네이트를 얻었다.

이렇게 얻어진 티오이소시아네이트를 아세토니트릴 30 ml에 가하고, 여기에 메탄올 0.44 ml(10.5 mmol)을 0 ℃에서 적가하였다. 이 혼합물을 실온에서 16시간 동안 교반하였다. 이 반응 용액을 물에 붓고, 에틸아세테이트로 추출하였다. 유기층을 염화나트륨 포화수용액으로 세척하고 이어서, 감압하에 농축시켰다. 이렇게 하여 얻은 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(전개 용매 : n-헥산/에틸아세테이트 = 6/4)에 의해서 정제하여 융점이 138 내지 141.5 ℃인 O-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)티오카르바메이트 0.84g(수득율 : 30.4%)을 얻었다.

[합성예 7]

O-메틸 S-메틸 N-(4-트리플루오로니코티노일)이미노티오카르보네이트(화합물 제14번)의 제조

상기 합성예 6에서 얻은 O-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)티오카르바메이트 0.200 g(0.76 mmol) 및 디메틸포름아미드 2 ml를 함유하는 용액에 60 % 수소화나트륨 0.034 g(0.85 mmol)을 실온에서 가하였다. 이 혼합물을 15분 동안 교반하고 나서, 요오드화메틸 0.118g (0.83 mmol)을 여기에 적가하였다. 이 혼합물을 실온에서 1시간 동안 교반하고, 이어서, 물을 붓고, 에틸아세테이트로 추출하였다. 유기층을 염화나트륨 포화 수용액으로 세척하고, 무수 황산나트륨으로 건조시키고, 감압하에 농축시켰다. 이렇게 하여 얻은 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(전개 용매 : n-헥산/에틸아세테이트=7/3)에 의해서 정제하여 오일상의 O-메틸 S-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)이미노카르보네이트 0.133 g(수득율 : 63.1%)을 얻었다.

[합성예 8]

N-(N'-이소프로필아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드(화합물 제4번)의 제조

디메톡시에탄 30 ml에, 염화수소 기체 0.6 g을 20 ℃에서 불어넣었다. 이어서, 이 용액을 -30 ℃로 냉각시켰다. 이어서, 디메톡시에탄 5 ml 중에 용해시킨 1,3,5-트리이소프로필-2,4,6-헥사히드로트리아진 0.72 g(3.4 mmol)을 함유한 용액을 여기에 적가하고, 여기에 4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드 1.88 g(9.9 mmol)을 더 가하였다.

이 용액을 실온에서 12시간 동안 교반하였다. 이어서, 감압 하에 용매를 증류제거하였다. 잔류물을 메탄올 30 ml에 용해시키고, 이어서 여기에 트리에틸아민 3 g(30 mmol)을 가하였다. 감압 하에 메탄올을

증류, 제거하고, 이어서 여기에 에틸 아세테이트 30 ml를 가하였다. 이어서, 불순물을 여과해 내고, 여액을 농축시키고, 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(용출제 : 에틸아세테이트/에탄올=85/15)에 의해서 정제하여 목적 화합물로서 융점이 119.8 ℃인 N-(N'-이소프로필아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드 1.1 g(수득율 : 42.6 %)을 얻었다.

[합성예 9]

N-(N',N'-디메틸아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드(화합물 제11번)의 제조

4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드 1.3 g(6.8 mmol), 물 1.5 ml 및 디메틸아민 0.63 g(7 mmol)을 함유하는 혼합 용액에 37 % 포름알데히드 수용액 0.57 g(7 mmol)을 가하였다. 이어서, 이 혼합물을 80 ℃에서 2시간 동안 반응시켰다. 반응이 종결된 후, 반응 용액이 포화될 때까지 무수 탄산나트륨을 반응 용액에 가하였다. 이어서, 여기에 염화메틸렌 및 물을 가하고, 추출하였다. 무수 황산나트륨 상에서 유기층을 건조시키고, 이어서, 감압 하에 용매를 증류, 제거하였다. 이렇게 하여 얻은 잔류물을 실리카겔 컬럼 크로마토그래피(용출제 : 에틸아세테이트/메탄올=19/1)에 의해서 정제하여 목적 화합물로서 N-(N',N'-디메틸아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드(융점 : 50~58 ℃) 0.55 g (수득율 : 32.5%)을 얻었다.

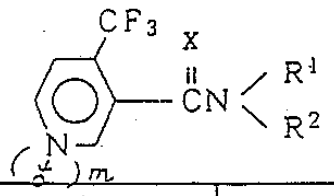
[합성예 10]

4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 1-옥시드(화합물 제111번)의 제조

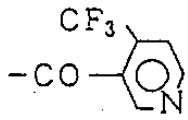
4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 0.8 g을 아세트산 7ml 중에 용해시켰다. 이어서, 여기에 30 % 과산화수소 수용액 0.72 g을 천천히 적가하였다. 적가가 종결된 후에, 반응 용액을 70 ℃로 가열하고 이 온도에서 8시간 동안 교반하였다. 반응이 종결된 후에, 감압 하에 용매를 증류, 제거하였다. 이렇게 하여 얻어진 잔류물을 n-헥산으로 세척하여 목적하는 화합물로서 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 1-옥시드(융점 : 198.8 ℃) 0.6 g을 얻었다.

본 발명에 의해서 제조된 일반식(I')의 화합물을 표 1에 나타내었다.

[표 1a]



(I')

원합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
1	O	$-CH_2CN$	H	0	융점 155-161℃
2	O	$-CH_2CSNH_2$	H	0	융점 190.5-193.5
3	O	$-CH_2OC_2H_5$	H	0	무정형 고상물
4	O	$-CH_2NH-C_3H_7$ (i)	H	0	융점 119.8 ℃
5	O	H	H	0	융점 162.7 ℃
6	O	$-CH_2CN$		0	융점 116-123 ℃
7	O	$-CH_2CN$	$-COCH_3$	0	오일
8	O	$-CH_2CN$	$-CH_3$	0	$n_D^{19.2}$ 1.4883
9	O	$-C(S)OCH_3$	H	0	융점 138-141.5 ℃
10	O	$-CH_3$	H	0	융점 83-89 ℃
11	O	$-CH_2N(CH_3)_2$	H	0	융점 50-58 ℃
12	O	$-CH_2-N$ 	H	0	융점 195-200℃
13	O	$-CH_2CN$	$-CH_2OC(O)C(CH_3)_3$	0	오일

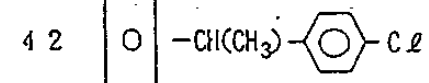
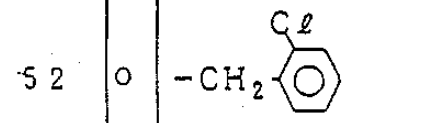
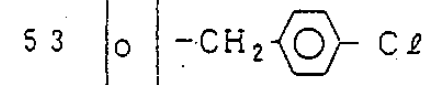
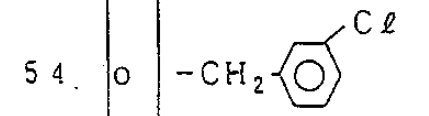
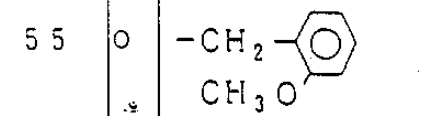
[표 1b]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
14	O	$=C\begin{matrix}OCH_3\\SCH_3\end{matrix}$		0	오일
15	O	$-CH_2OH$	H	0	융점 105-113 ℃
16	O	$-COCH_3$	H	0	융점 114-119 ℃
17	O	$-CO_2CH_3$	H	0	융점 118-128 ℃
18	O	$-CH_2$-(C$_6$H$_4$)-CF_3	H	0	융점 145-148 ℃
19	O	$-CH_2$-(C$_6$H$_4$)-O-(C$_6$H$_4$)-SCH_3	H	0	융점 103-106 ℃
20	O	$-CH_2$-(C$_6$H$_4$)-CF_3	H	0	융점 76.5-78.5℃
21	O	$-CH_2-C\equiv CH$	H	0	융점 108.5-109.5℃
22	O	$-CH_2CH=CH_2$	H	0	융점 75.5-77 ℃
23	O	$-CH_2CH_2$-(C$_6$H$_5$)	H	0	융점 110-111 ℃
24	O	$-CH_2CH_2OCH_3$	H	0	융점 56.5-59 ℃
25	O	$-CH_2CH_2CH_2CH_3$	H	0	융점 47.7 ℃
26	O	시클로프로필	H	0	융점 105.1 ℃
27	O	$-CH_2CH\begin{matrix}CH_3\\CH_3\end{matrix}$	H	0	융점 90.6 ℃

[표 1c]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
28	O	$-CH_2$-시클로프로필	H	0	융점 90.6 ℃
29	O	$-CH_2CH_2CN$	H	0	융점 93.1 ℃
30	S	$-CH_2CONH_2$	H	0	융점 155-158.5 ℃
31	O	$-CH_2SCH_3$	H	0	융점 106.4 ℃
32	O	$-CH_2C(OC_2H_5)=NH$	H	0	융점 64.5-66℃
33	O	$-CH_2OC_2H_5$	$-CH_2OC_2H_5$	0	$n_D^{22.4}$ 1.4648
34	O	$-CH_2CN$	$-CO_2CH_3$	0	오일
35	O	$-CH_3$	$-CH_3$	0	$n_D^{22.0}$ 1.4717
36	O	$-CH_2CH(OH)CH_3$	H	0	융점 94.9 ℃
37	O	$-CH_2CH_2OH$	H	0	융점 101.5 ℃
38	O	$-CH_2CO_2CH_3$	H	0	융점 77.9 ℃
39	O	$-CH_2COCH_3$	H	0	융점 112.7 ℃
40	O	$-CH_2CO-C_6H_5$	H	0	융점 144.2 ℃
41	O	$-CH_2C\equiv CCH_2CH_3$	H	0	융점 87.9 ℃

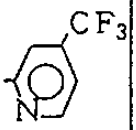
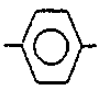
[표 1d]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
42	O		H	0	융점 107-112 ℃
43	O	$-CH_2CH(OC_2H_5)_2$	H	0	융점 73-77 ℃
44	O	$-CH_2CN$	$-CH_2OCH_3$	0	오일
45	O	$-CH_2CN$	$-SO_2CH_3$	0	오일
46	O	$-C(S)SC_2H_5$	H	0	융점 83-85 ℃
47	O			0	융점 30-33 ℃
48	O			0	융점 30-32 ℃
49	O	$-CO_2CH_3$	$-CO_2CH_3$	0	융점 67-87 ℃
50	O	$-CH_2CHO$	H	0	무정형 고상물
51	O			0	융점 46.5-48.0℃
52	O		H	0	융점 123-124 ℃
53	O		H	0	융점 161-163 ℃
54	O		H	0	융점 105.5-108 ℃
55	O		H	0	융점 119.5-123.5℃

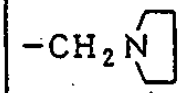
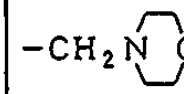
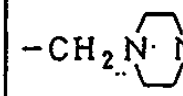
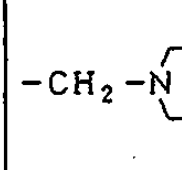
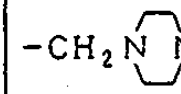
[표 1e]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
56	O	$-CH_2-C_6H_4-OCH_3$	H	0	융점 140.5-143 °C
57	O	$-CH_2-C_6H_4-NO_2$	H	0	융점 165-169 °C
58	O	$-CH_2-C_6H_4-C(CH_3)_3$	H	0	융점 65-67 °C
59	O	$-CH_2-C_6H_4-NO_2$	H	0	융점 127-133 °C
60	O	$-CH_2-C_6H_4-CH_3$	H	0	융점 130-132 °C
61	O	$-CH_2-C_6H_4-CH_3$	H	0	융점 92-94 °C
62	O	$-CH_2-C_6H_4-CF_3$	H	0	융점 115.5-117°C
63	O	$-CH_2CH_2N(CH_3)_2$	H	0	융점 94.5-96.5°C
64	O	$-CH_2CH_3$	H	0	융점 85-86 °C
65	O	$-CH_2CH_2-N$	H	0	융점 82-83 °C
66	O	$-CH_2CH_2-O-C_6H_5$	H	0	융점 112-113.3 °C
67	O	$-NH-C_5H_4N$	H	0	융점 186-188 °C
68	O	$-CH(CH_2CH_3)CN$	H	0	오일
69	O	시클로펜틸	H	0	융점 115.0 °C

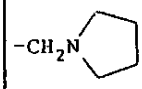
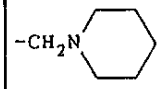
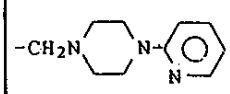
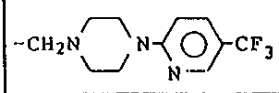
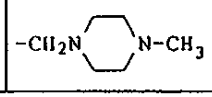
[표 1f]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
70	O	시클로헥실	H	0	융점 112.4 ℃
71	O	$-CH_2C(CH_3)_3$	H	0	융점 87.7 ℃
72	O	$-CH_2\overset{\overset{NH_2}{\vert}}{C}=NH$	H	0	융점166−169 ℃
73	O	$-CH_2CONHC(CH_3)_3$	H	0	융점158−160 ℃
74	O	$-CH_2SO_2CH_3$	H	0	융점 198-203 ℃
75	O	$-CH_2CH_2OC(O)-$ 	H	0	융점 121.2 ℃
76	O	$-CH_2CH(OCH_3)_2$	H	0	융점 123.1 ℃
77	O	$-CH_2CH_2CH_2C\equiv CH$	H	0	융점 73.0 ℃
78	O	$-CH_2CH=C(CH_3)_2$	H	0	융점 62-66℃
79	O	$-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$		0	$n_D^{14.8}$ 1.4922
80	O	$-CH_2CH_2-N(CH_3)-CH_2CH_2-$		0	$n_D^{21.0}$ 1.4476
81	O	$-CH_2-$  $-CH_3$	H	0	융점 143-146 ℃
82	O	$-CH_2CF_3$	H	0	융점119.5-121℃
83	O	$-\overset{\overset{CH_3}{\vert}}{\underset{\underset{CH(CH_3)_2}{\vert}}{C}}-CO_2CH_3$	H	0	융점115−116 ℃

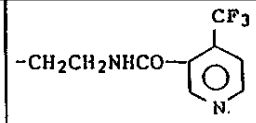
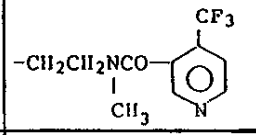
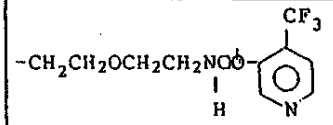
[표 1g]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
84	O	$-C(CH_3)_3$	H	0	융점 104.8 ℃
85	O		H	0	융점 107-110 ℃
86	O		H	0	융점 143-146 ℃
87	O		H	0	융점 155-157 ℃
88	O		H	0	융점 166-171 ℃
89	S	H	H	0	융점 143-147 ℃
90	S	$-CH_2CN$	H	0	—
91	O		H	0	융점 142-146 ℃

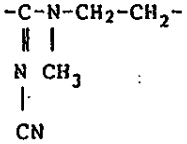
[표 1h]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
92	O		$-CH_3$	0	
93	O		$-C_2H_5$	0	
94	O	$-CH_2N(CH_3)_2$	$-CH_3$	0	
95	O	$-CH_2Si(CH_3)_3$	H	0	
96	O		H	0	
97	O		H	0	
98	O		$-CH_3$	0	

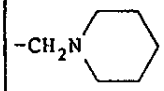
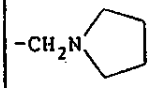
[표 1i]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
99	O		H	0	융점 271-275°C
100	O		$-CH_3$	0	
101	O		H	0	
102	O	$-SO_2CH_3$	H	0	67-75°C (. 무정형)
103	O	$-CH_2OCOC(CH_3)_3$	H	0	142-145°C

[표 1j]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
104	O	$-COCH_3$	COCH3	0	융점 60-72°C
105	O	$-SO_2N(CH_3)_2$	H	0	융점 172-174°C
106	O	$-CONHCH_3$	H	0	융점 161-164.5°C
107	O	$-CH_3$	$-COCH_3$	0	융점 49-51°C
108	O	$-CH_3$	$-CO_2CH_3$	0	융점 44-46°C
109	O	$-CH_2SCH_3$	$-CH_2SCH_3$	0	$n_D^{22.4}$ 1.5344
110	O			0	융점 160-163°C

[표 1k]

화합물 번호	X	R^1	R^2	m	물성치
111	O	H	H	1	융점 198.8°C
112	O	$-CH_3$	H	1	융점 119-127°C
113	O	$-CH_2CH_3$	H	1	
114	O	$-CH_2CN$	H	1	융점 155-156.5°C
115	O		H	1	
116	O		H	1	
117	O	$-COCH_3$	H	1	
118	O	$-CH_2CH=CH_2$	H	1	
119	O	$-CH_2-C\equiv CH$	H	1	
120	O	$-CH_2CSNH_2$	H	1	
121	O	$-CH_2NHCH_3$	H	1	
122	O	$-CH_2OH$	H	1	
123	S	H	H	1	

일반식(Ⅰ)의 화합물에는 다음 화합물들도 포함된다.

화합물 제124번; 4-클로로디플루오로메틸-3-피리딘-카르복스아미드

화합물 제125번; 4-디클로로디플루오로메틸-3-피리딘-카르복스아미드

화합물 제126번; 4-트리클로로메틸-3-피리딘 카르복스아미드

화합물 제127번; 4-디플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드

화합물 제128번; 4-플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드

화합물 제129번; 4-β, β, β-트리플루오로에틸-3-피리딘 카르복스아미드

화합물 제130번; 4-펜타플루오로에틸-3-피리딘 카르복스아미드

화합물 제131번; 4-디브로모메틸-3-피리딘 카르복스아미드

(융점 : 115~117.5℃)

화합물 제132번; 4-브로모메틸-3-피리딘 카르복스아미드

[시험예 1]

자두 진디(Myzus persicae)에 대한 살충 시험

활성 성분을 함유하는 각각의 제제를 물에 분산시켜 800 ppm 농도의 활성 성분을 함유하는 분산액을 각각 얻었다. 지름 8 ㎝, 높이 7 ㎝의 화분에 심은, 한장의 잎사귀만 남긴 가지 각각의 엽병을 스티커로 덮고, 약 2-3령의 자두 진디(Myzus persicae)의 날개 없는 태생 암컷을 방충시키고, 가지의 잎사귀 위에서 인큐베이션시켰다. 방충 개시 2일 후, 성충을 제거하고 유충의 수를 세었다. 이어서, 유충을 방충시킨 가지의 잎사귀를 소정 농도의 앞에서 제조된 분산액에 약 10초 동안 침지시키고 난 후, 대기 중에서 건조시키고 조명이 있는 26 ℃의 항온기 내에서 방치시켰다. 처리한 5일째에 사충수를 세고, 아래 식에 따라서 사충률을 계산하였다.

$$\text{사충률 (\%)} = \frac{\text{사충수}}{\text{방충수}} \times 100$$

잎에서 떨어진 곤충을 사충으로 계수하였다.

결과적으로, 화합물 1~56번, 제58~66번, 제69번, 제70번, 제72~79번, 제82번, 제85~89번, 제91번, 제99번

및 제 102~111번의 사충률은 각각 100 %이었고, 화합물 57번, 제67번, 제68번, 제71번 및 제80번 화합물의 사충률은 각각 90 내지 99 % 이었다.

[시험예 2]

자두 진디(Myzus persicae)에 대한 침투 이행 시험

활성 성분을 함유하는 각각의 제제를 물에 분산시켜 800 ppm 농도의 활성 성분을 함유하는 분산액을 각각 얻었다. 지름 8 ㎝, 높이 7 ㎝의 화분에 심은, 한장의 잎사귀만 남긴 가지 각각의 엽병을 스티커로 덮고, 약 2~3령의 자두 진디(Myzus persicae)의 날개 없는 태생 암컷을 방충시키고, 가지의 잎사귀 위에서 인큐베이션시켰다. 방충 개시 2일 후, 성충을 제거하고 유충의 수를 세었다. 이어서, 유충을 방충시킨 가지를, 소정 농도의 앞에서 제조된 분산액 10 ml를 화분의 토양에 흠뻑 적심으로써 처리하고, 조명이 있는 26 ℃의 항온기 내에서 유지시켰다. 처리 후 5일째에, 사충수를 세고, 시험예 1에서와 같은 방법으로 사충률을 계산하였다.

결과적으로, 화합물 제1~17번, 제20~23번, 제26~28번, 제30번, 제31번, 제33~37번, 제39~41번, 제44번, 제46번, 제49번, 제50번, 제78번, 제85번, 제86번, 제88번, 제89번, 제99번, 제103번, 제104 및 제111번 각각의 사충률은 100 % 였다.

[시험예 3]

트립스 팔미(Thrips pami)에 대한 침투 이행 시험

활성 성분을 함유하는 각각의 제제를 물에 분산시켜 800 ppm 농도의 활성 성분의 분산액을 각기 얻었다. 지름 8 ㎝, 높이 7 ㎝의 화분에 심은, 한 장의 잎사귀만 남긴 가지 각각의 엽병을 스티커로 덮고, 가지의 잎사귀에 약 20 마리의 트립스 팔미(Thrips palmi) 성충을 방충시켰다. 방충 개시 1일 후, 성충을 방충한 가지를, 소정 농도의 앞에서 제조된 분산액 10 ml를 화분의 토양에 흠뻑 적심으로써 처리하고, 조명이 있는 26 ℃의 항온기 내에서 유지시켰다. 처리 후 8일째에, 죽은 성충 및 다음 세대의 유충의 수를 세었다.

미처리 가지 상에서, 성충 4마리 및 유충 172 마리가 살충되었다. 반면에 화합물 제1번, 제5번 및 제85번으로 처리한 가지 상에서, 성충 또는 유충이 전혀 관찰되지 않았으며, 따라서 높은 살충 효과를 나타내는 것이다.

이제, 본 발명의 제제예를 다음에 기재한다. 그러나, 본 발명의 화합물, 활성성분의 양, 또는 제제의 유형은 이들 특정예에 한정되지는 않는다.

[제제예 1]

(a) 화합물 제1번 20 중량부

(b) 카올린 72 중량부

(c) 리그닌술폰산나트륨 8 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합시켜 습윤성 분제를 얻었다.

[제제예 2]

(a) 화합물 제4번 5 중량부

(b) 탈크 95 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합시켜 분제를 얻었다.

[제제예 3]

(a) 화합물 제2번 20 중량부

(b) N,N'-디메틸아세트아미드 20 중량부

(c) 폴리옥시에틸렌알킬페닐 에테르 10 중량부

(d) 크실렌 50 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합하고 용해시켜 유화 농축물을 얻었다.

[제제예 4]

(a) 카올린 68 중량부

(b) 리그닌술폰산나트륨 2 중량부

(c) 폴리옥시에틸렌알킬아릴 술페이트 5 중량부

(d) 미분 실리카 25 중량부

상기 성분들의 혼합물을 화합물 제5번과 4:1의 중량비로 혼합시켜 습윤성 분제를 얻었다.

[제제예 5]

(a) 화합물 제12번 50 중량부

(b) 옥실화 폴리알킬페닐 포스페이트트리에탄올아민 2 중량부

(c) 실리콘 0.2 중량부

(d) 물 47.8 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합시키고 분쇄하여 염기성 액체를 얻고,

(e) 폴리카르복실산나트륨 5 중량부

(f) 무수 황산나트륨 42.8 중량부

를 가하고, 이 혼합물을 균일하게 혼합시키고 건조시켜서 수분산성 과립을 얻었다.

[제제예 6]

(a) 화합물 제85번 5 중량부

(b) 폴리옥시에틸렌옥틸페닐 에테르 1 중량부

(c) 폴리옥시에틸렌의 인산에스테르 0.5 중량부

(d) 탄산칼슘 과립 93.5 중량부

상기 성분들 (a) 내지 (c)를 소량의 아세톤과 함께 균일하게 혼합하고 반죽 한 후, 이 혼합물을 성분(d) 상에 분무시켜 아세톤을 제거하여 과립을 얻었다.

[제제예 7]

(a) 화합물 제16번 2.5 중량부

(b) N-메틸-2-피롤리돈 2.5 중량부

(c) 대두유 95.0 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합 및 용해시켜 미량 제제를 얻었다.

[제제예 8]

(a) 화합물 제3번 5 중량부

(b) N,N'-디메틸아세트아미드 15 중량부

(c) 폴리옥시에틸렌알킬 아릴 에테르 10 중량부

(d) 크실렌 70 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합시켜 유화 농축물을 얻었다.

[제제예 9]

(a) 화합물 제111번 20 중량부

(b) 소듐 라우릴술페이트 3 중량부

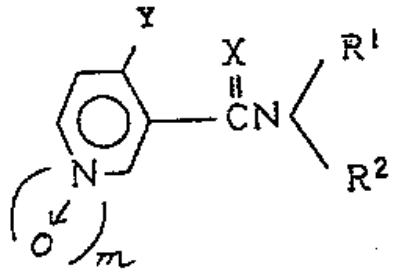
(c) 수용성 전분 77 중량부

상기 성분들을 균일하게 혼합시켜 수용성 분제를 얻었다.

(57) 청구의 범위

청구항 1

하기 일반식(Ⅰ)의 아미드 화합물 또는 그의 염.



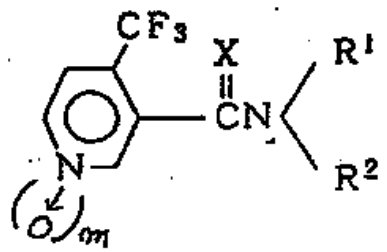
(I)

식 중, X는 산소 원자 또는 황 원자이고, Y는 할로C_{1-2}알킬기이고, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6-원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기, C_{1-6}알콕시기, C_{1-6}알

킬티오기 또는 모노- 또는 디-C_{1-6}알킬아미노기이고, R^4는 C_{1-6}알킬기 또는 디C $_{1-6}$알킬아미노기이고, R^5는 C_{1-6}알킬기 또는 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적으로, C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, m은 0 또는 1이고, n은 1 또는 2이고, 단, m이 0이고, X가 산소 원자이고, Y가 트리플루오로메틸기 또는 디브로모메틸기인 경우, R^1 및 R^2는 동시에 수소 원자가 아니며, 일반식(Ⅰ)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피페라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; $-C(W^2)R^8$(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 $-OC(W^2)R^9$(여기서, R^9는 알킬, 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐이고, 상기 치환체가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있고, 일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 알킬기의 치환체는, 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

청구항 2

하기 일반식(Ⅰ')의 아미드 화합물 또는 그의 염.



(I')

식 중, X는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6- 원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기, C_{1-6}알콕시기, C_{1-6}알킬티오기 또는 모노- 또는 디-C_{1-6}알킬아미노기이고, R^4는 C_{1-6}알킬기 또는 디C_{1-6}알킬아미노기이고, R^5는 C_{1-6}알킬기 또는 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적으로, C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, m은 0 또는 1이고, n은 1 또는 2이고, 단, m이 0이고, X가 산소 원자인 경우, R^1 및 R^2는 동시에 수소 원자가 아니며, 일반식(Ⅰ)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피페라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; $-C(W^2)R^8$(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 $-OC(W^2)R^9$(여기서, R^9는 알킬, 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐이고, 상기 치환체가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있고, 일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 알릴기의 치환체는, 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

청구항 3

제2항에 있어서, X가 산소 원자인 일반식(Ⅰ')의 화합물 또는 그의 염.

청구항 4

제2항에 있어서, R^1 및 R^2 각각이 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 또는 $-C(W^1)R^3$ 이거나, 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기, 또는 C_{1-6}알콕시기이고, R^6 및 R^7 각각이 서로 독립적으로 C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기인 일반식(Ⅰ')의 화합물 또는 그의 염.

청구항 5

제2항에 있어서, X가 산소 원자이고, R^1 및 R^2 각각이 서로 독립적으로 수소 원자, C_{1-6}알킬기, C_{1-6}알콕시C_{1-6}알킬기, C_{1-6}알킬아미노C_{1-6}알킬기, C_{2-6} 시클릭 아미노알킬기, 히드록시C_{1-6}알킬기, 시아노C_{1-6}알킬기, 티오카르바모일C_{1-6}알킬기, C_{1-6}알킬카르보닐옥시C_{1-6}알킬기, C_{1-6}알킬카르보닐기, 아릴카르보닐기, 트리플루오로메틸-치환된 아릴카르보닐기(여기서, 아릴은 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기임), C_{1-6}알콕시티오카르보닐기 또는 C_{1-6}알콕시카르보닐기이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하고, R^5 및 R^7은 각각 C_{1-6}알콕시기 및 C_{1-6}알킬티오기인 일반식(Ⅰ')의 화합물 또는 그의 염.

청구항 6

제2항에 있어서, 화합물이

4-트리플루오로메틸-3-피리딘카르복스아미드 1-옥시드,

N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-티오카르바모일메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-에톡시메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-이소프로필아미노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-시아노메틸-N,N-비스(4-트리플루오로메틸니코티노일)아민,

N-아세틸-N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-시아노메틸-N-메틸-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

O-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)티오카르바메이트,

N-메틸-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-(N',N'-디메틸아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-(1-피페리디닐메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-시아노메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)아미노메틸피바레이트,

O,S-디메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)이미노포르메이트,

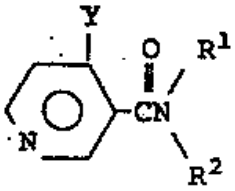
N-히드록시메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-아세틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 또는

메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)카르바메이트, 또는 이들의 1-옥시드인 일반식(Ⅰ')의 화합물 또는 그의 염.

청구항 7

4-할로알킬피리딘-3-카르복실산 또는 그의 산 할라이드, 에스테르 또는 산 무수물을 하기 일반식(Ⅲ)의 화합물과 반응시키는 것을 특징으로 하는 하기 일반식(Ⅰ-1)의 화합물 또는 그의 염의 제조 방법.



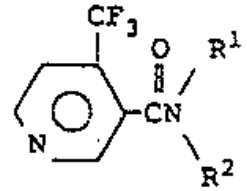
(I-1)

$HN(R^1)R^2$ (III)

식 중, Y는 할로C_{1-2} 알킬기이고, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6- 원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기, C_{1-6}알콕시기, C_{1-6}알킬티오기 또는 모노- 또는 디-C_{1-6}알킬아미노기이고, R^4는 C_{1-6}알킬기 또는 디C_{1-6}알킬아미노기이고, R^5는 C_{1-6}알킬기 또는 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적으로, C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, n은 1 또는 2이며, 일반식(Ⅰ)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피페라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; $-C(W^2)R^8$(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 $-OC(W^2)R^9$(여기서, R^9는 알킬, 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐이고, 상기 치환체가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있고, 일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 아릴기의 치환체는, 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

청구항 8

4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복실산 또는 그의 산 할라이드, 에스테르 또는 산 무수물을 하기 일반식(Ⅲ)의 화합물과 반응시키는 것을 특징으로 하는 하기 일반식(Ⅰ-1)의 화합물 또는 그의 염의 제조 방법.



(I-1′)

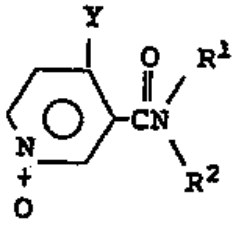
$HN(R^1)(R^2)$ (III)

식 중, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6- 원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기

또는 퀴놀리닐기인 아릴기, C_{1-6}알콕시기, C_{1-6}알킬티오기 또는 모노- 또는 디-C_{1-6}알킬아미노기이고, R^4는 C_{1-6}알킬기 또는 디C_{1-6}알킬아미노기이고, R^5는 C_{1-6}알킬기 또는 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기이고, R^5 및 R^7 각각은 서로 독립적으로, C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, n은 1 또는 2이며, 일반식(Ⅰ)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피페라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; $-C(W^2)R^8$(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 $-OC(W^2)R^9$(여기서, R^9는 알킬, 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐이고, 상기 치환체가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있고, 일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 아릴기의 치환체는, 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

청구항 9

제7항의 방법으로 제조된 일반식(Ⅰ-1)의 화합물을 산화제와 반응시켜서 하기 일반식(Ⅰ-2)의 화합물을 얻는 것을 특징으로 하는 아미드 화합물 또는 그의 염의 제조 방법.

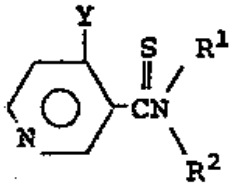


(I-2)

식 중, R^1, R^2 및 Y는 제7항에서 정의한 바와 같다.

청구항 10

제7항의 방법으로 제조된 일반식(Ⅰ-1)의 화합물을 황화제와 반응시켜서 하기 일반식(Ⅰ-3)의 화합물을 얻는 것을 특징으로 하는 아미드 화합물 또는 그의 염의 제조 방법.

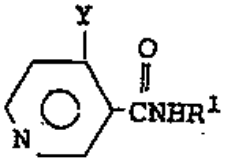


(I-3)

식 중, R^1, R^2 및 Y는 제7항에서 정의한 바와 같다.

청구항 11

하기 일반식(Ⅰ-4)의 화합물을 하기 일반식(A)의 화합물과 반응시키는 것을 특징으로 하는 제7항 기재의 일반식(Ⅰ-1)의 아미드 화합물 또는 그의 염의 제조 방법.



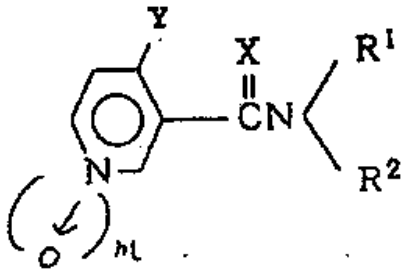
(I-4)

R^2-Hal (A)

식 중, R^1 및 Y는 제7항에서 정의한 바와 같고, R^2는 제7항에서 정의한 바와 같으나 수소 원자는 아니며, Hal은 할로겐 원자이다.

청구항 12

활성 성분으로서 살충 활성량의 하기 일반식(Ⅰ)의 아미드 화합물 또는 그의 염과 농업용 보조제를 함유하는 살충 조성물.

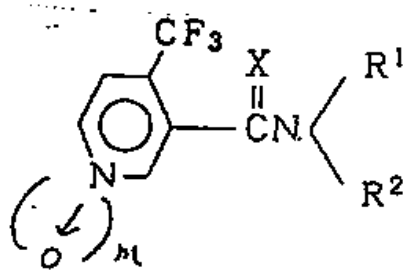


(I)

식 중, X는 산소 원자 또는 황 원자이고, Y는 할로C_{1-6}알킬기이고, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6-원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기, C_{1-6}알콕시기, C_{1-6}알킬티오기 또는 모노- 또는 디-C_{1-6}알킬아미노기이고, R^4는 C_{1-6}알킬기 또는 디C $_{1-6}$알킬아미노기이고, R^5는 C_{1-6}알킬기 또는 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적으로, C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, m은 0 또는 1이고, n은 1 또는 2이며, 일반식(Ⅰ)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피페라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; $-C(W^2)R^8$(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 $-OC(W^2)R^9$(여기서, R^9는 알킬, 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐이고, 상기 치환체가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있고, 일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 알킬기의 치환체는, 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

청구항 13

활성 성분으로서 살충 활성량의 하기 일반식(Ⅰ')의 아미드 화합물 또는 그의 염과 농업용 보조제를 함유하는 살충 조성물.



(I')

식 중, X는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^1 및 R^2 각각은 서로 독립적으로 수소 원자, 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, $-C(W^1)R^3$, $-S(O)nR^4$ 또는 $-NHR^5$이거나 또는 R^1 및 R^2가 함께 $=C(R^6)R^7$을 형성하거나 또는 인접하는 질소 원자와 함께 질소 원자 또는 산소 원자를 함유할 수도 있는 C_{4-5} 5- 또는 6- 원 헤테로시클릭기를 형성하고, R^3은 치환될 수도 있는 C_{1-6}알킬기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알케닐기, 치환될 수도 있는 C_{2-6}알키닐기, 치환될 수도 있는 C_{3-8}시클로알킬기, 치환될 수도 있는, 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기, C_{1-6}알콕시기, C_{1-6}알킬티오기 또

는 모노- 또는 디-C_{1-6}알킬아미노기이고, R^4는 C_{1-6}알킬기 또는 디C_{1-6}알킬아미노기이고, R^5는 C_{1-6}알킬기 또는 페닐기, 티에닐기, 푸라닐기, 피리딜기, 나프틸기, 벤조티에닐기, 벤조푸라닐기 또는 퀴놀리닐기인 아릴기이고, R^6 및 R^7 각각은 서로 독립적으로, C_{1-6}알콕시기 또는 C_{1-6}알킬티오기이고, W^1은 산소 원자 또는 황 원자이고, m은 0 또는 1이고, n은 1 또는 2이며, 일반식(Ⅰ)의 R^1, R^2 및 R^3 각각의 정의에 있어서, 치환될 수도 있는 알킬기, 치환될 수도 있는 알케닐기, 치환될 수도 있는 알키닐기 또는 치환될 수도 있는 시클로알킬기의 치환체는 할로겐 원자; 알콕시; 알킬티오; 트리알킬실릴; 페닐; 할로겐, 알킬, 알콕시, 니트로 또는 할로알킬에 의해서 치환된 페닐; 알콕시 또는 알킬티오에 의해 치환될 수도 있는 페녹시에 의해서 치환된 페닐; 페녹시; 페닐티오; 아미노; 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노; 시클릭 아미노; 모르폴리노; 알킬에 의해서 치환된 모르폴리노; 1-피페라지닐; 알킬, 페닐, 피리딜 또는 트리플루오로메틸피리딜에 의해서 치환된 1-피페라지닐; 히드록시; 시아노; 시클로알킬; 이미노; -C(W^2)R^8(여기서, W^2는 산소 원자 또는 황 원자이고, R^8은 수소 원자, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 알킬, 알콕시, 알킬티오 또는 아릴임) 또는 -OC(W^2)R^9(여기서, R^9는 알킬, 또는 할로알킬에 의해서 치환된 아릴임); 또는 알킬술포닐이고, 상기 치환체가 이미노기인 경우, 아미노기 또는 알콕시기와 함께 아미디노기 또는 이미데이트기를 형성할 수 있고, 일반식(Ⅰ)의 R^3에 대한 정의에서 치환될 수도 있는 아릴기의 치환체는, 할로겐원자, 알킬, 할로알킬, 알콕시, 할로알콕시, 알킬티오, 시클로알킬, 시클로알콕시, 알콕시카르보닐, 알킬카르보닐, 알킬카르보닐옥시, 아릴, 아릴옥시, 아릴티오, 아미노, 1 또는 2개의 알킬에 의해서 치환된 아미노, 시아노, 니트로 또는 히드록시이다.

청구항 14

제13항에 있어서, 활성 성분이 4-트리플루오로메틸-3-피리딘카르복스아미드,

N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-티오카르바모일메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-에톡시메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-이소프로필아미노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-시아노메틸-N,N-비스(4-트리플루오로메틸니코티노일)아민,

N-아세틸-N-시아노메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-시아노메틸-N-메틸-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

O-메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)티오카르바메이트,

N-메틸-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-(N',N'-디메틸아미노메틸)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-(1-피페리디닐)-4-트리플루오로메틸피리딘-3-카르복스아미드,

N-시아노메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)아미노메틸피바레이트,

O,S-디메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)이미노포르메이트,

N-히드록시메틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드,

N-아세틸-4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 또는

메틸 N-(4-트리플루오로메틸니코티노일)카르바메이트, 또는 이들의 1-옥시드인 살충 조성물.

청구항 15

제13항에 있어서, 활성 성분이 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스아미드 또는 그의 1-옥시드인 살충 조성물.

청구항 16

활성 성분으로서 활성량의 제13항 기재의 일반식(Ⅰ)의 아미드 화합물 또는 그의 염을 해충에게 살포하는 것을 특징으로 하는 해충 방제 방법.

청구항 17

제16항에 있어서, 활성 성분이 4-트리플루오로메틸-3-피리딘 카르복스 아미드 또는 그의 1-옥시드인 해충 방제 방법.