

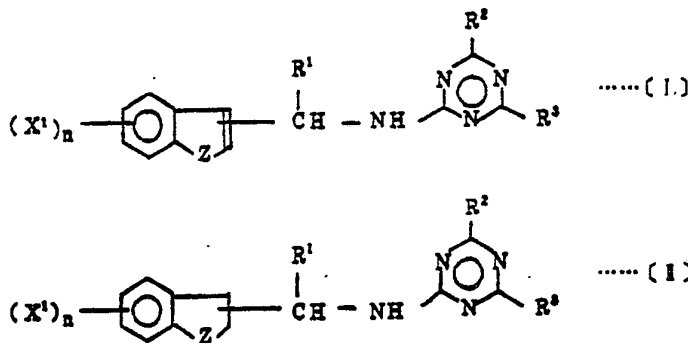


特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類<sup>4</sup> C07D 405/12, 409/12 A01N 43/68</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO 88/ 02368</p> <p>(43) 国際公開日 1988年4月7日 (07.04.88)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP87/00710 (22) 国際出願日 1987年9月29日 (29. 09. 87) (31) 優先権主張番号 特願昭61-229781 (32) 優先日 1986年9月30日 (30. 09. 86) (33) 優先権主張国 JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN COMPANY LIMITED)(JP/JP) 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者: および (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ) 竹松哲夫 (TAKEMATSU, Tetsuo)(JP/JP) 〒321 栃木県宇都宮市峰町612番地 Tochigi, (JP) 西井正博 (NISHII, Masahiro)(JP/JP) 小林 泉 (KOBAYASHI, Izumi)(JP/JP) 〒299-02 千葉県君津郡袖ヶ浦町上泉1280番地 出光興産株式会社内 Chiba, (JP) (74) 代理人 弁理士 久保田藤郎, 外 (KUBOTA, Fujio et al.) 〒104 東京都中央区京橋1丁目1番10号 西勘ビル Tokyo, (JP)</p>		<p>(81) 指定国 AT (欧州特許), BE (欧州特許), CH (欧州特許), DE (欧州特許), FR (欧州特許), GB (欧州特許), IT (欧州特許), JP, LU (欧州特許), NL (欧州特許), SE (欧州特許), US. 添付公開書類 国際調査報告書</p>

(54) Title: TRIAZINE DERIVATIVE, PRODUCTION THEREOF, AND HERBICIDE CONTAINING SAME AS EFFECTIVE INGREDIENT

(54) 発明の名称 トリアジン誘導体, その製造方法およびそれを有効成分とする除草剤



(57) Abstract

A triazine derivative, a herbicide containing the same as an effective ingredient and the production of said derivative represented by general formula (I) or (II), [wherein X<sup>1</sup> represents H, an alkyl, alkoxy or alkylthio group each having 1-4 carbon atoms, and alkyl, alkoxy or alkylthio group each having 1-4 carbon atoms and substituted by halogen, or a halogen atom, n represents an integer of 1-4, Z represents O or S, R<sup>1</sup> represents a C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl group, R<sup>2</sup> represents a C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl group substituted by halogen and R<sup>3</sup> represents NH<sub>2</sub>, NHCOR<sup>4</sup> or N=CHR<sup>5</sup> (wherein R<sup>4</sup> represents H, a C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl group, a C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> substituted alkyl group, a C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub> cycloalkyl group or a C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub> alkenyl group and R<sup>5</sup> represents an alkyl, alkoxy or alkylamino group each having 1-4 carbon atoms)]. These compounds are produced by reacting a salt of corresponding benzofuranylalkylamine with cyanoguanidine to prepare a salt of benzofuranylbiguanide and then by reacting it with an ester of the general formula R<sup>2</sup> COOR<sup>6</sup> (wherein R<sup>2</sup> represents a C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl group substituted by halogen and R<sup>6</sup> represents a C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> alkyl group) to prepare a triazine derivative (R<sup>3</sup> in the general formulas I, II represents an NH<sub>2</sub> group provided that the NH<sub>2</sub> group can be changed optionally to other R<sup>3</sup>).

(57) 要約

本発明のトリアジン誘導体は一般式 [ I ] と [ II ] の化合物に大別され、かつ一般式中の Z の種類およびアミノアルキル基のベンゾ (チア) フラニル基への結合位置によってそれぞれ四種のタイプに分類される。これらトリアジン誘導体は 6 種類の方法によってそれぞれ効率よく製造することができる。

さらに、このトリアジン誘導体は除草剤、とりわけ水稲用除草剤として有用であり、既知のものよりも薬効が大きく、しかも薬害が小さい。その上、殺草スペクトル幅が大きく、各種の雑草に対して著しい効果を示す。

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	FR	フランス	MR	モーリタニア
AU	オーストラリア	GA	ガボン	MW	マラウイ
BB	バルバドス	GB	イギリス	NL	オランダ
BE	ベルギー	HU	ハンガリー	NO	ノルウェー
BG	ブルガリア	IT	イタリア	RO	ルーマニア
BJ	ベナン	JP	日本	SD	スーダン
BR	ブラジル	KR	朝鮮民主主義人民共和国	SE	スウェーデン
CF	中央アフリカ共和国	KR	大韓民国	SN	セネガル
CG	コンゴ	LI	リヒテンシュタイン	SU	ソビエト連邦
CH	スイス	LK	スリランカ	TD	チャド
CM	カメルーン	LU	ルクセンブルグ	TG	トーゴ
DE	西ドイツ	MC	モナコ	US	米国
DK	デンマーク	MG	マダガスカル		
FI	フィンランド	ML	マリ		

## 明 細 書

トリアジン誘導体、その製造方法および  
それを有効成分とする除草剤

技術分野

本発明は新規なトリアジン誘導体、その製造方法およびそれを有効成分として含有する除草剤に関する。

背景技術

トリアジン系除草剤として、トリアジン環にハロアルキル基を置換した2-アミノ-4-( $\alpha$ -メチルベンジルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン等を有効成分とするものが知られている。

しかし、これらの化合物は水稻に対して用いた場合、除草効果が十分でなく、しかも水稻に対する薬害が大きいという欠点を有している。

本発明の第一の目的は、水稻に対する薬害を解消し、かつ一年生雑草から多年生雑草にわたる種々の雑草に対して優れた除草効果を発揮し、しかも効果の持続性が良好な除草剤を提供することである。さらに、トウモロコシ、小麦、大麦などのイネ科畑作物にも適用しうる除草剤を提供することである。

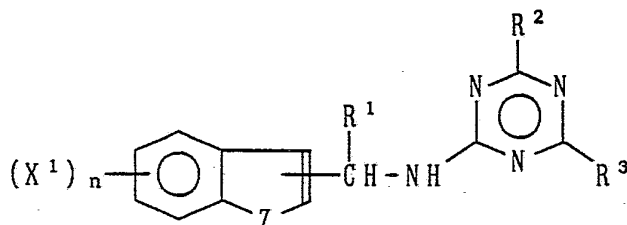
本発明の第二の目的は上記除草剤の有効成分として用いる新規トリアジン誘導体ならびにその効率的な製造方

法を提供することである。

### 発明の開示

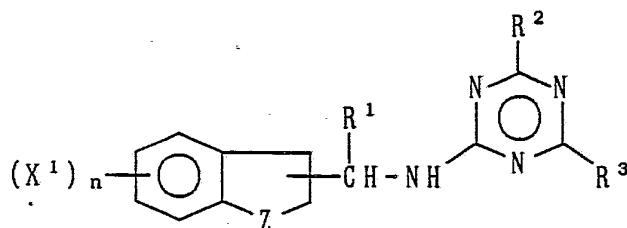
本発明は、

(1) 一般式



あるいは

一般式

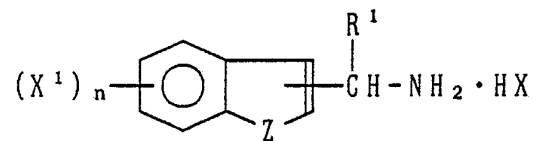


[式中、X<sup>1</sup>は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、nは1～4の整数を示し、Zは酸素原子あるいは硫黄原子を示し、R<sup>1</sup>は炭素数1～4のアルキル基を示し、R<sup>2</sup>は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、R<sup>3</sup>はNH<sub>2</sub>，NHCOR<sup>4</sup>あるいはN=CHR<sup>5</sup>（ここで、R<sup>4</sup>は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロア

ルキル基あるいは炭素数 2～5 のアルケニル基であり、 $R^5$  は炭素数 1～4 のアルキル基、炭素数 1～4 のアルコキシ基あるいは炭素数 1～4 のアルキルアミノ基である。) を示す。]

で表わされるトリアジン誘導体

(2) 一般式



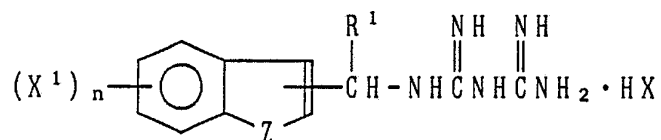
[式中、 $X^1$  は水素原子、炭素数 1～4 のアルキル基、炭素数 1～4 のアルコキシ基、炭素数 1～4 のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数 1～4 のハロゲン置換アルキル基、炭素数 1～4 のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数 1～4 のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$  は 1～4 の整数を示し、 $Z$  は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$  は炭素数 1～4 のアルキル基を示し、 $X$  はハロゲン原子を示す。]

で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩と、

式  $H_2N-\overset{NH}{\parallel}C-NH-CN$  で表わされるシアノグアニジン

を反応させて

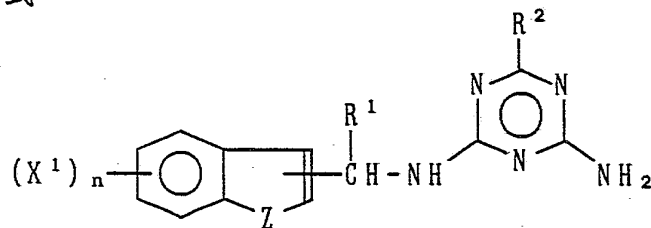
一般式



[式中、 $X^1$ 、 $n$ 、 $Z$ 、 $R^1$ 、 $X$  は前記と同じ。]

で表わされるベンゾフラニルピグアニドの塩を製造し、次いで該ベンゾフラニルピグアニドの塩に一般式  $R^2COOR^6$  [式中、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^6$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。]で表わされるアルキルエステルを反応させることを特徴とする

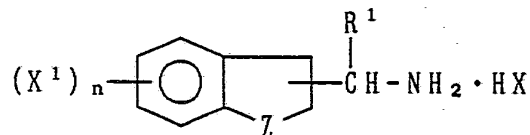
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法

(3) 一般式



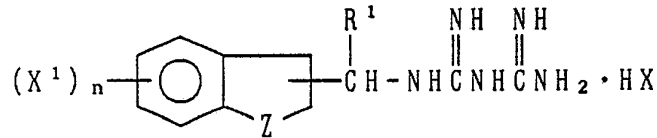
[式中、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $X$ はハロゲン原子を示す。]

で表わされるジヒドロベンゾフラニルアルキルアミンの

塩と、

式  $\text{H}_2\text{N}-\overset{\text{NH}}{\parallel}{\text{C}}-\text{NH}-\text{CN}$  で表わされるシアノグアニジンを反応させて

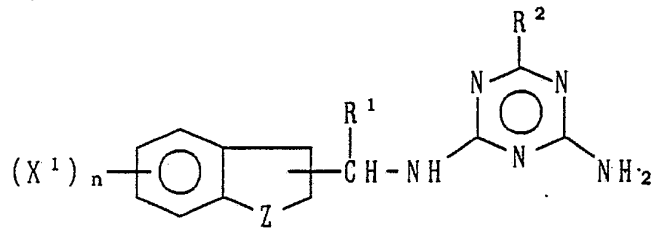
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $X$ は前記と同じ。]

で表わされるジヒドロベンゾフラニルビグアニドの塩を製造し、次いで該ベンゾフラニルビグアニドの塩に一般式  $\text{R}^2\text{COOR}^6$  [式中、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^6$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアルキルエステルを反応させることを特徴とする

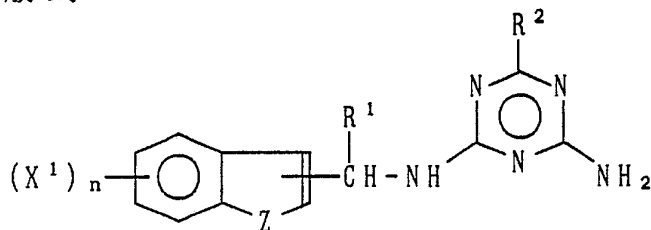
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法

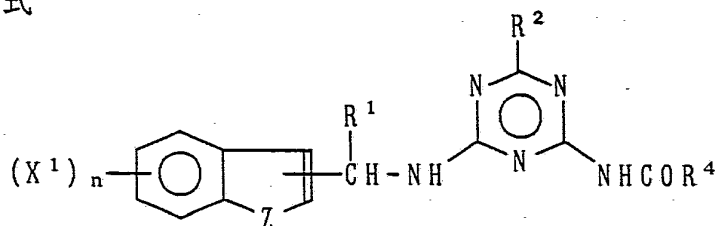
(4) 一般式



[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^4COOH$  [式中、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基を示す。] で表わされるカルボン酸， $(R^4CO)_2O$  [式中、 $R^4$ は前記と同じ。] で表わされるカルボン酸無水物， $R^4COX$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $X$ はハロゲン原子を示す。] で表わされるカルボン酸ハロゲン化物あるいは  $R^4COOR^7$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $R^7$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるカルボン酸エステルを反応させることを特徴とする

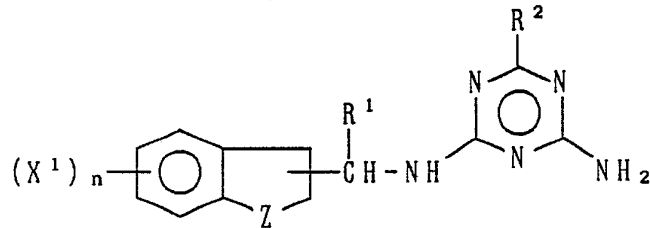
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法

(5) 一般式

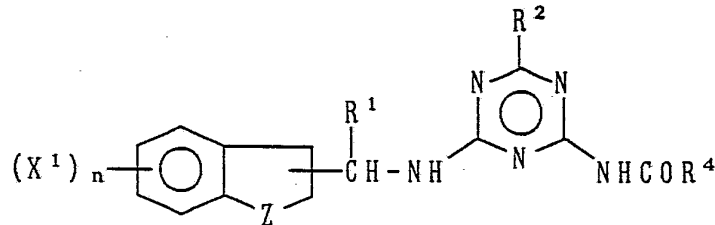


[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^4COOH$  [式中、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基を示す。] で表わされるカルボン酸， $(R^4CO)_2O$  [式中、 $R^4$ は前記と同じ。] で表わされるカルボン酸無水物， $R^4COX$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $X$ はハロゲン原子を示す。] で表わされるカルボン酸ハロゲン化物

あるいは  $R^4COOR^7$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $R^7$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるカルボン酸エステルを反応させることを特徴とする

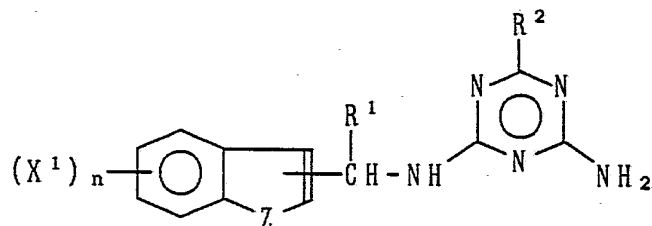
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法

(6) 一般式



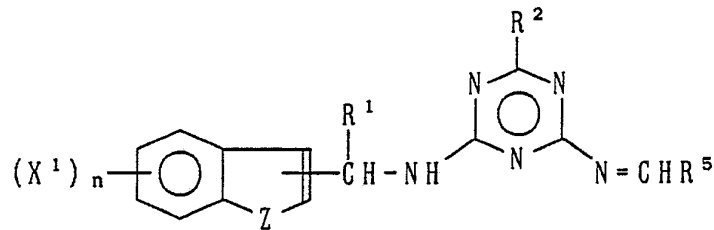
[式中、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般

式  $R^5CHO$  [式中、 $R^5$ は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を示す。] で表わされるアルデヒドあるいは  $R^5CH(OR^6)_2$

[式中、 $R^5$ は前記と同じであり、 $R^6$ は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を示す。] で表わされるアセタールを反応させることを特徴とする

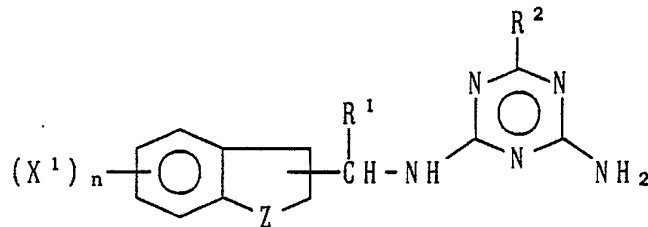
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法

(7) 一般式



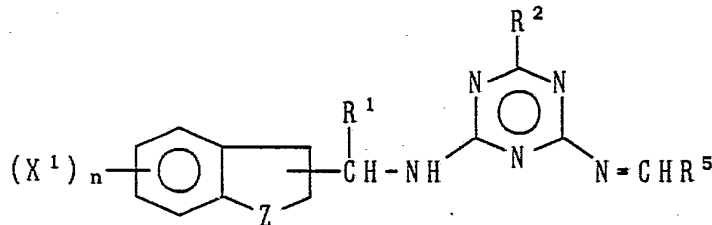
[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数 1 ~ 4 のアルキル基，炭素数 1 ~ 4 のアルコキシ基，炭素数 1 ~ 4 のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数 1 ~ 4 のハロゲン置換アルキル基，炭素数 1 ~ 4 のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数 1 ~ 4 のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は 1 ~ 4 の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数 1 ~ 4 のアルキ

ル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^5CHO$  [式中、 $R^5$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアルデヒドあるいは  $R^5CH(OR^8)_2$

[式中、 $R^5$ は前記と同じであり、 $R^8$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアセタールを反応させることを特徴とする

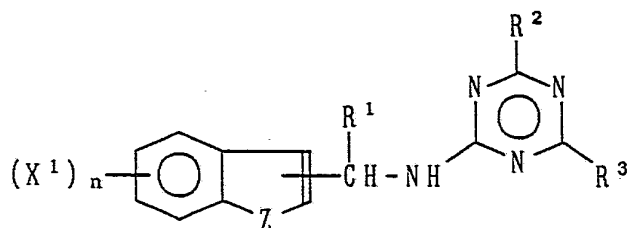
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ は前記と同じ。]

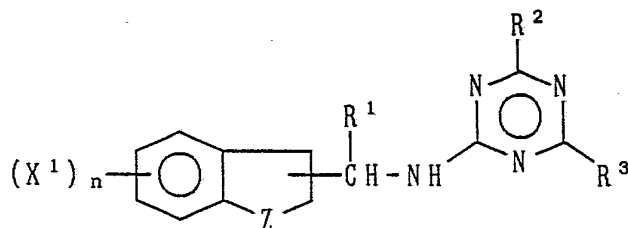
で表わされるトリアジン誘導体の製造方法

(8) 一般式



あるいは

一般式



[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^3$ は $NH_2$ ， $NHCOR^4$ あるいは $N=CHR^5$ （ここで、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基であり、 $R^5$ は炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基あるいは炭素数1～4のアルキルアミノ基である。）を示す。]

で表わされるトリアジン誘導体を有効成分として含有する除草剤

を提供するものである。

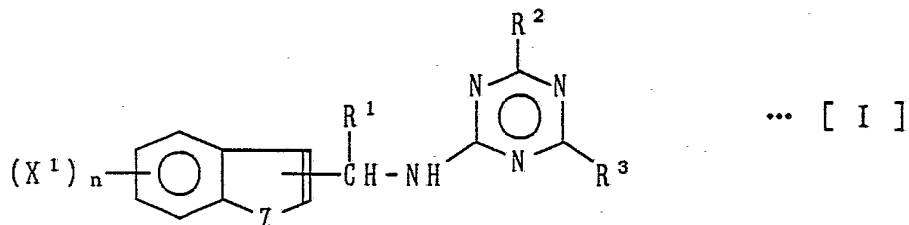
本発明のトリアジン誘導体は新規化合物であり、除草剤として有効に利用することができるものである。また、本発明の方法によれば、該トリアジン誘導体を効率よく高純度、高収率にて製造することができる。

さらに、このトリアジン誘導体を有効成分とする本発明の除草剤は、既知の水稲用除草剤に比べて薬効が大きい。

く、しかも薬害が小さい。その上、殺草スペクトル幅が大きく、各種殺草に対して著しい効果を示す。

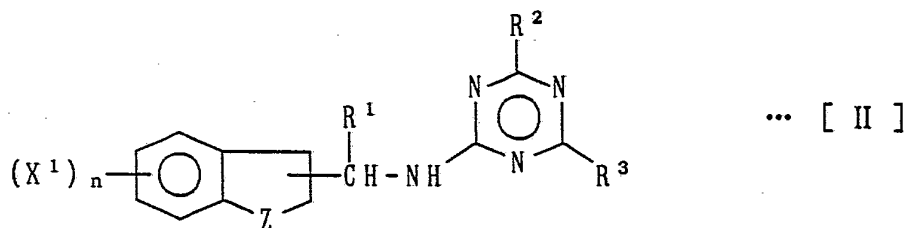
発明を実施するための最良の形態

本発明は一般式



あるいは

一般式

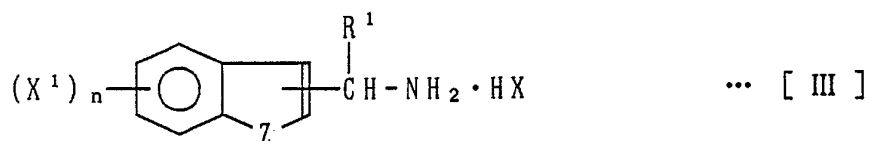


[式中、X<sup>1</sup>は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、nは1～4の整数を示し、Zは酸素原子あるいは硫黄原子を示し、R<sup>1</sup>は炭素数1～4のアルキル基を示し、R<sup>2</sup>は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、R<sup>3</sup>はNH<sub>2</sub>，NHCOR<sup>4</sup>あるいはN=CHR<sup>5</sup>（ここで、R<sup>4</sup>は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロア

ルキル基あるいは炭素数 2 ～ 5 のアルケニル基であり、 $R^5$  は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基、炭素数 1 ～ 4 のアルコキシ基あるいは炭素数 1 ～ 4 のアルキルアミノ基である。) を示す。]

で表わされるトリアジン誘導体を提供するとともに、

一般式

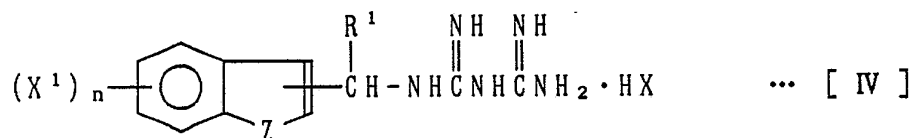


[ 式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$  は前記と同じであり、 $X$  はハロゲン原子である。]

で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩と、

式  $\text{H}_2\text{N}-\overset{\text{NH}}{\parallel}{\text{C}}-\text{NH}-\text{CN}$  で表わされるシアノグアニジンを反応させて

一般式



[ 式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $X$  は前記と同じ。]

で表わされるベンゾフラニルビグアニドの塩を製造し、次いで該ベンゾフラニルビグアニドの塩に

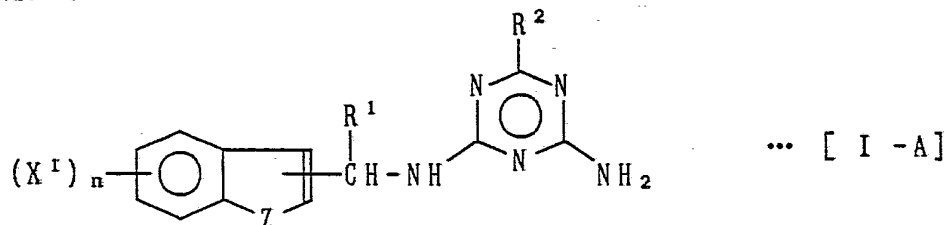
一般式



[ 式中、 $R^2$  は炭素数 1 ～ 4 のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^6$  は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基を示す。]

で表わされるアルキルエステルを反応させることを特徴とする

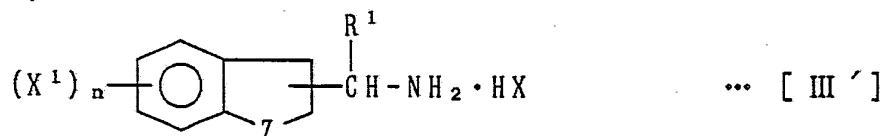
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法（以下、「方法1」という。）、

一般式

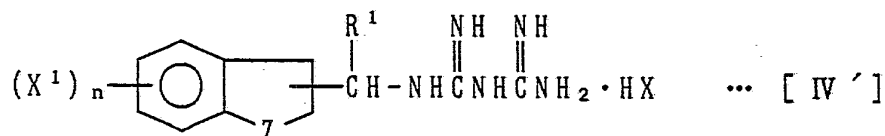


[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ は前記と同じであり、 $X$ はハロゲン原子である。]

で表わされるジヒドロベンゾフランアルキルアミンの塩と、

式  $H_2N-\overset{NH}{\parallel}C-NH-CN$  で表わされるシアノグアニジンに反応させて

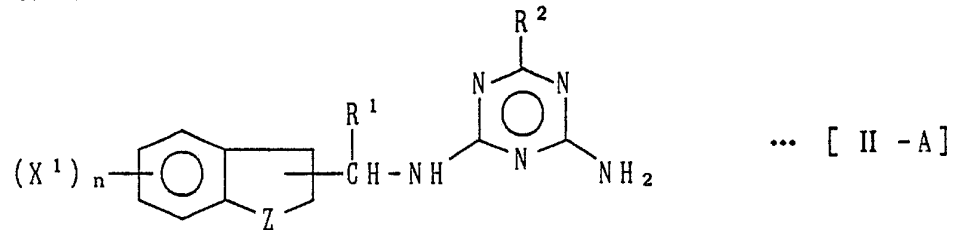
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $X$ は前記と同じ。]

で表わされるジヒドロベンゾフラニルビグアニドの塩を製造し、次いで該ベンゾフラニルビグアニドの塩に上記一般式 [ V ] で表わされるアルキルエステルを反応させることを特徴とする

一般式



[ 式中、 $X^1$ 、 $n$ 、 $Z$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ は前記と同じ。 ]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法（以下、「方法 2」という。）を提供する。

また、本発明は上記方法 1 あるいは方法 2 をさらに進めて一般式 [ I ] あるいは [ II ] のトリアジン誘導体における置換基  $R^3$  が  $NHCO R^4$  や  $N=CHR^5$  である化合物の製造方法をも提供する。

つまり、上記方法 1 で製造された一般式

[ I - A ] で表わされるトリアジン誘導体（アミノ基含有トリアジン誘導体）に、一般式



[ 式中、 $R^4$ は前記と同じ。 ] で表わされるカルボン酸、  
一般式



[ 式中、 $R^4$ は前記と同じ。 ] で表わされるカルボン酸無

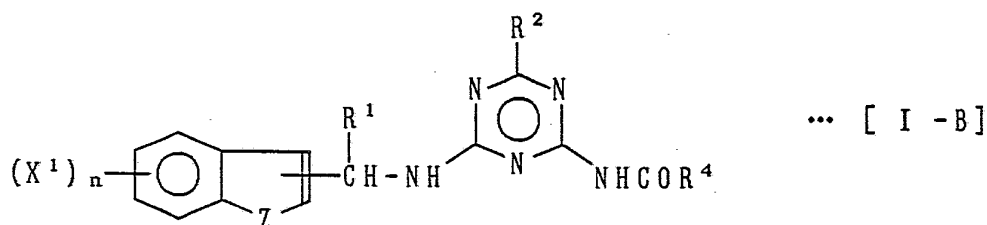
水物，一般式



[式中、 $R^4$ 、 $X$ は前記と同じ。]で表わされるカルボン酸ハロゲン化物あるいは一般式

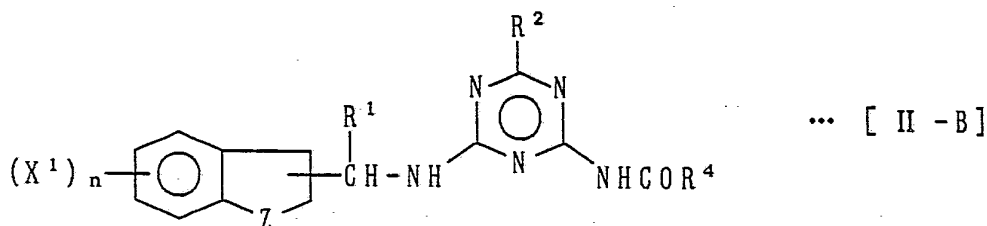


[式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $R^7$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。]で表わされるカルボン酸エステルを反応させることを特徴とする一般式



[式中、 $X^1$ 、 $n$ 、 $Z$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^4$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法（以下、「方法3」という。）、上記方法2で製造された一般式[II-A]で表わされるトリアジン誘導体（アミノ基含有トリアジン誘導体）に、上記一般式[VI]のカルボン酸、一般式[VII]のカルボン酸無水物、一般式[VIII]のカルボン酸ハロゲン化物あるいは一般式[IX]のカルボン酸エステルを反応させることを特徴とする一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$ は前記と同じ。]

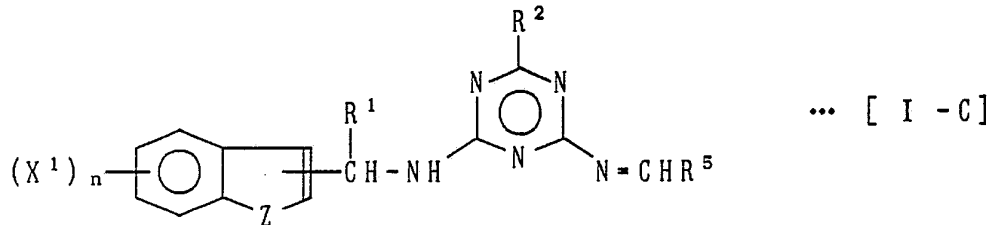
で表わされるトリアジン誘導体の製造方法（以下、「方法4」という。）を提供し、さらに上記方法1で製造された一般式 [I-A] で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式



[式中、 $R^5$ は前記と同じ。] で表わされるアルデヒドあるいは一般式

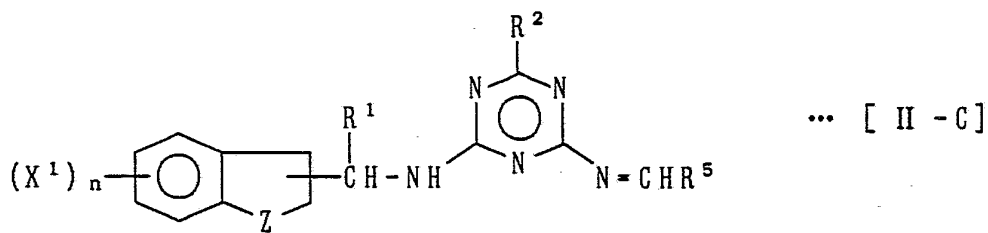


[式中、 $R^5$ は前記と同じであり、 $R^8$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアセタールを反応させることを特徴とする一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法（以下、「方法5」という。）、ならびに上記方法2で製造された一般式 [II-A] で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、上記一般式 [X] のアルデヒドあるいは一般式 [XI] のアセタールを反応させることを特徴とする一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ は前記と同じ。]  
 で表わされるトリアジン誘導体の製造方法（以下、「方法6」という。）を提供するものである。

さらに本発明は、前記一般式 [ I ] （これは一般式 [ I - A ], [ I - B ] および [ I - C ] を包含するものである。）あるいは一般式 [ II ] （これは一般式 [ II - A ], [ II - B ] および [ II - C ] を包含するものである。）で表わされるトリアジン誘導体を有効成分として含有する除草剤をも提供するものである。

前記一般式 [ I ] で表わされる化合物はトリアジン誘導体（ベンゾ（チア）フラニル基を有するトリアジン誘導体）であり、式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ は前述したとおりである。すなわち、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基（メチル基、エチル基、 $n$ -プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、イソブチル基、 $sec$ -ブチル基、 $tert$ -ブチル基）、炭素数1～4のアルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、 $n$ -プロポキシ基、イソプロポキシ基、 $n$ -ブトキシ基、イソブトキシ基、 $sec$ -ブトキシ基、 $tert$ -ブトキシ基）、炭素数

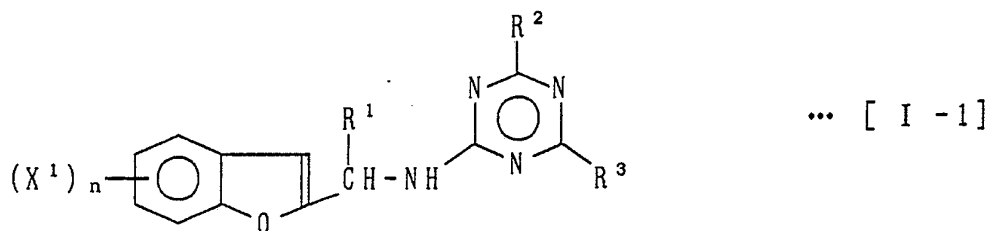
1～4のアルキルチオ基（メチルチオ基，エチルチオ基，プロピルチオ基，ブチルチオ基），ハロゲン原子（塩素原子，臭素原子，弗素原子，沃素原子など），炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基（トリフルオロメチル基，トリクロロメチル基，トリクロロエチル基，ジクロロエチル基，テトラフルオロエチル基，モノクロロメチル基，モノプロモメチル基，モノフルオロメチル基など），炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基（モノクロロメトキシ基，ジフルオロメトキシ基，モノクロロエトキシ基，モノフルオロメトキシ基，トリフルオロメトキシ基など）あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基（モノクロロメチルチオ基，ジフルオロメチルチオ基，モノクロロエチルチオ基，モノフルオロメチルチオ基，トリフルオロメチルチオ基）を示す。また、 $n$ は1～4のいずれかの整数を示し、 $Z$ は酸素原子または硫黄原子を示す。また $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基、例えばメチル基，エチル基， $n$ -プロピル基，イソプロピル基， $n$ -ブチル基，イソブチル基， $sec$ -ブチル基， $tert$ -ブチル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、具体的にはトリフルオロメチル基，トリクロロメチル基，ジクロロエチル基，テトラフルオロエチル基，モノクロロメチル基，モノプロモメチル基，モノフルオロメチル基，ジフルオロメチル基，クロロフルオロメチル基，ジプロモエチル基，ジクロロメ

チル基, プロモフルオロメチル基, ヘプタフルオロプロ  
ピル基, シプロモメチル基, シプロモフルオロメチル  
基, クロロジフルオロメチル基, プロモジフルオロメチ  
ル基, シクロフルオロメチル基, ペンタフルオロエチ  
ル基, ジフルオロエチル基などを示す。また  $R^3$  は  $NH_2$ ,  
 $NHCO R^4$  あるいは  $N=CHR^5$  を示す。ここで  $R^4$  は水素原子, 炭  
素数 1 ~ 4 のアルキル基, 炭素数 1 ~ 4 の置換アルキル  
基, 炭素数 3 ~ 6 のシクロアルキル基あるいは炭素数  
2 ~ 5 のアルケニル基、具体的にはメチル基, エチル  
基, n-プロピル基, イソプロピル基, n-ブチル基,  
イソブチル基, sec-ブチル基, tert-ブチル基; メト  
キシメチル基, メトキシエチル基, エトキシメチル基,  
クロロメチル基, シクロロメチル基, プロモメチル基,  
メチルチオメチル基, エチルチオメチル基; シクロプロ  
ピル基, シクロブチル基, シクロペンチル基, シクロヘ  
キシル基; ビニル基, プロベニル基, アリル基などを示  
す。さらに  $R^5$  は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基, 炭素数 1 ~  
4 のアルコキシ基あるいは炭素数 1 ~ 4 のアルキルアミ  
ノ基、具体的にはメチル基, エチル基, n-プロピル  
基, イソプロピル基, n-ブチル基, イソブチル基,  
sec-ブチル基, tert-ブチル基; メトキシ基, エトキ  
シ基, n-プロポキシ基, イソプロポキシ基, n-ブト  
キシ基, イソブトキシ基, sec-ブトキシ基, tert-ブ  
トキシ基; モノメチルアミノ基, ジメチルアミノ基, モ

ノエチルアミノ基，ジエチルアミノ基などを示す。

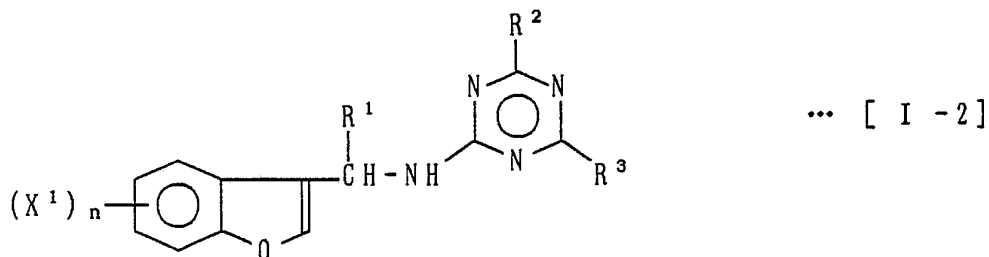
この一般式 [ I ] で表わされるトリアジン誘導体は式中の Z の種類およびアミノアルキル基  $\left[ \begin{array}{c} R^1 \\ | \\ -CH-NH \end{array} \right]$  のベンゾ（チア）フラニル基への結合位置により、次の四つに分類される。即ち、Z が酸素原子の場合は、

一般式



で表わされるトリアジン誘導体（2-ベンゾフラニル基を有するトリアジン誘導体）、

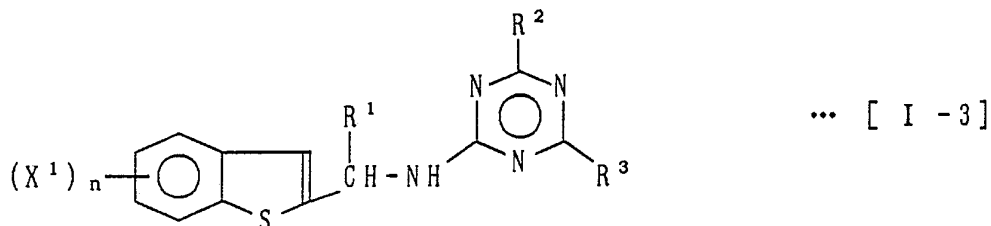
一般式



で表わされるトリアジン誘導体（3-ベンゾフラニル基を有するトリアジン誘導体）となり、

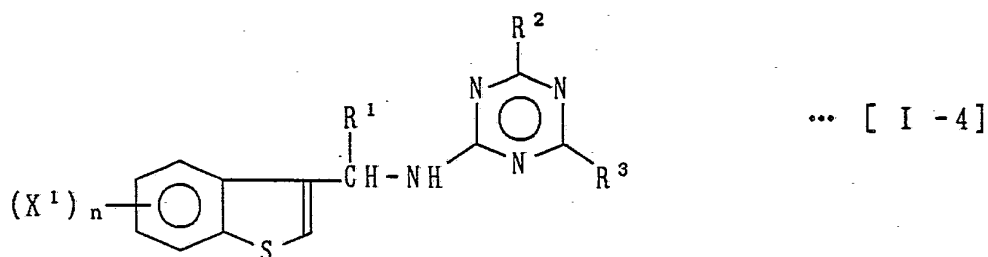
Z が硫黄原子の場合は、

一般式



で表わされるトリアジン誘導体（2-ベンゾチアフラニル基（2-ベンゾチエニル基あるいは2-チアナフテニル基）を有するトリアジン誘導体）、

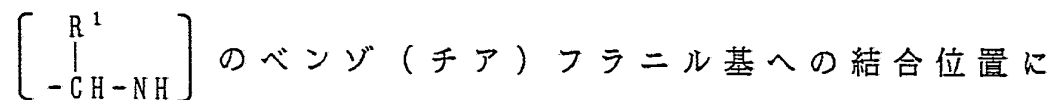
一般式



で表わされるトリアジン誘導体（3-ベンゾチアフラニル基（3-ベンゾチエニル基あるいは3-チアナフテニル基）を有するトリアジン誘導体）となる。

一方、一般式 [ II ] で表わされる化合物もトリアジン誘導体（ジヒドロベンゾ（チア）フラニル基を有するトリアジン誘導体）であり、一般式 [ I ] のトリアジン誘導体とはベンゾ（チア）フラニル基の2,3-位の炭素原子が水素原子で飽和されているか否かの違いであり、したがって、式中の  $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  の具体例は一般式のトリアジン誘導体の場合と同じである。

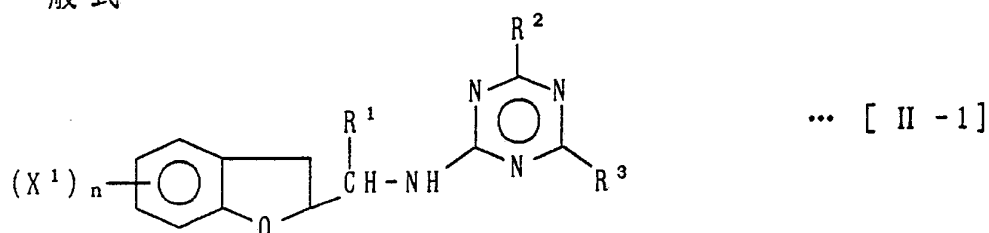
また、この一般式 [ II ] で表わされるトリアジン誘導体についても、前記一般式 [ I ] のトリアジン誘導体と同様に式中の  $Z$  の種類およびアミノアルキル基



により、次の四つに分類される。

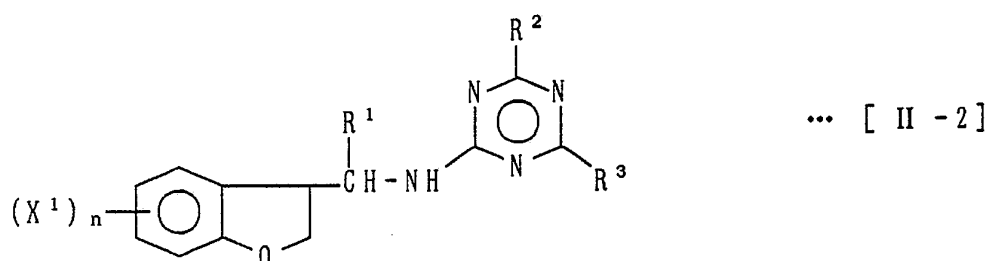
即ち、Zが酸素原子の場合は、

一般式



で表わされるトリアジン誘導体（2-ジヒドロベンゾフラニル基を有するトリアジン誘導体）、

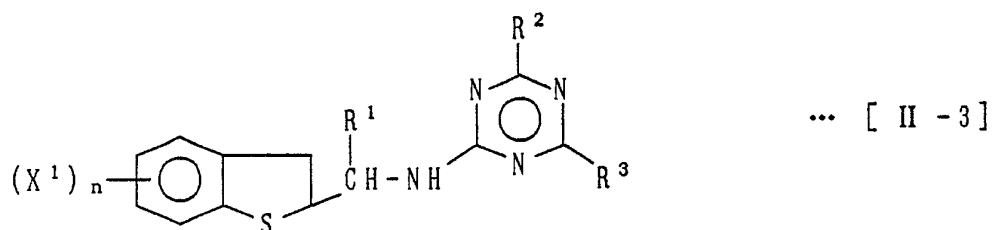
一般式



で表わされるトリアジン誘導体（3-ジヒドロベンゾフラニル基を有するトリアジン誘導体）となり、

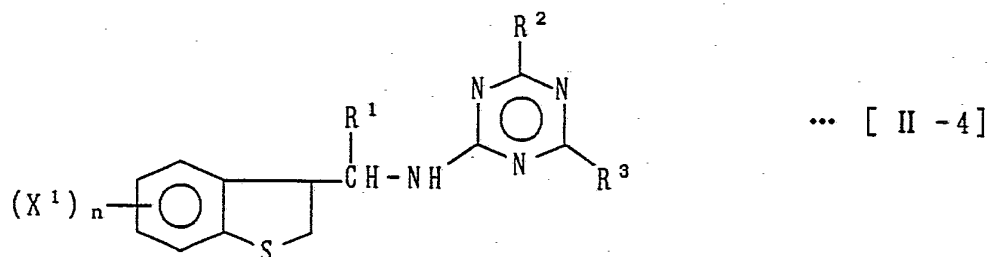
Zが硫黄原子の場合は、

一般式



で表わされるトリアジン誘導体（2-ジヒドロベンゾチアフラニル基（2-ジヒドロベンゾチエニル基あるいは2-ジヒドロチアナフテニル基）を有するトリアジン誘導体）、

一般式



で表わされるトリアジン誘導体（3-ジヒドロベンゾチアフラニル基（3-ジヒドロベンゾチエニル基あるいは3-ジヒドロチアナフテニル基）を有するトリアジン誘導体）となる。

上記一般式 [ I - 1 ] ~ [ I - 4 ] および [ II - 1 ] ~ [ II - 4 ] で表わされる本発明のトリアジン誘導体の具体例としては、後述する製造例で得る化合物以外に、

2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ジクロロメチル-s-トリアジン、  
 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ジブromoメチル-s-トリアジン、  
 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリクロロメチル-s-トリアジン、  
 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ジクロロフルオロメチル-s-トリアジン、  
 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-クロロフルオロメチル-s-トリアジン、  
 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ブromoフルオ

ロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ジブ  
ロモフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4  
-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-  
6-プロモジフルオロメチル-s-トリアジン, 2-ア  
ミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルア  
ミノ)-6-プロモメチル-s-トリアジン, 2-アミ  
ノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミ  
ノ)-6-クロロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ  
-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミ  
ノ)-6- $\alpha$ ,  $\beta$ -ジブロモエチル-s-トリアジン,  
2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エ  
チルアミノ)-6-ペンタフルオロエチル-s-トリア  
ジン, 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イ  
ル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジフルオロエチル-s  
-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラ  
ン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ヘプタフルオロ  
プロピル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-  
(チアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリ  
フルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-  
(1-(チアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6  
- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミ  
ノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)エチルアミ  
ノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\beta$ -テトラフルオロメチル-s

トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-モノフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリクロロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-3'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-3'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\beta$ -テトラフルオロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-3'-イル)エチルアミノ)-6-トリクロロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)プロピルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)プロピルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)プロピルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)プロピルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)ブチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)ブチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン,

2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 5', 7' - ジクロロベンゾフラン  
 - 2' - イル ) エチルアミノ ) - 6 - トリフルオロメチル  
 - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 4', 7' - ジ  
 クロロベンゾフラン - 2' - イル ) エチルアミノ ) - 6 -  
 トリフルオロメチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4  
 - ( 1 - ( 6' - メチルベンゾフラン - 2' - イル ) エチル  
 アミノ ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$  - ジクロロエチル - s - トリアジ  
 ン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6' - メチルベンゾフラン  
 - 2' - イル ) エチルアミノ ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\beta$  - テ  
 トラフルオロエチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4  
 - ( 1 - ( 6' - メチルベンゾフラン - 2' - イル ) プロピ  
 ルアミノ ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジ  
 ン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6', 7' - ジメチルベンゾフ  
 ラン - 2' - イル ) エチルアミノ ) - 6 - トリフルオロメ  
 チル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6', 7'  
 - ジメチルベンゾフラン - 2' - イル ) エチルアミノ ) -  
 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$  - ジクロロエチル - s - トリアジン, 2 - ア  
 ミノ - 4 - ( 1 - ( 6', 7' - ジメチルベンゾフラン - 2' -  
 イル ) エチルアミノ ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\beta$  - テトラフ  
 ルオロエチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1  
 - ( 4', 7' - ジメチルベンゾフラン - 2' - イル ) エチルア  
 ミノ ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$  - ジクロロエチル - s - トリアジ  
 ン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 4', 7' - ジメチルベンゾフ  
 ラン - 2' - イル ) エチルアミノ ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\beta$

-テトラフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ  
-4-(1-(4',6'-ジメチルベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリ  
リアジン, 2-アミノ-4-(1-(4',6'-ジメチルベ  
ンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -  
ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-  
(1-(4',6'-ジメチルベンゾフラン-2'-イル)エチ  
ルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\beta$ -テトラフルオロメチ  
ル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-エ  
チルベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ト  
リフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-  
(1-(6'-イソプロピルベンゾフラン-2'-イル)エ  
チルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジ  
ン, 2-アミノ-4-(1-(6'-クロロベンゾフラン  
-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-  
s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-フルオ  
ロベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリ  
フルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-  
(1-(5'-フルオロベンゾフラン-2'-イル)エチル  
アミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン,  
2-アミノ-4-(1-(6'-ブロモベンゾフラン-2'  
-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s  
-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(5'-メトキシ  
ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフ

ルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-エトキシベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-イソプロポキシベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-メチルチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(5'-メチルチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(4',6'-ジメチルチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(4',6'-ジメチルチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6',7'-ジメチルチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6',7'-ジメチルチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-クロロチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(7'-クロロチアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s

トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-メトキシ  
チアナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフ  
ルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1  
-(4',6'-ジメトキシチアナフテン-2'-イル)エチル  
アミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン,  
2-アミノ-4-(1-(6',7'-ジメトキシチアナフテ  
ン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチ  
ル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-メ  
チルチオベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6  
-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-  
4-(1-(6'-メチルチオベンゾフラン-2'-イル)  
エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-ト  
リアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-エチルチオベ  
ンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフル  
オロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-(1-  
(6'-ジフルオルメチルチオベンゾフラン-2'-イル)  
エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリア  
ジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-ジフルオルメチル  
チオベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-  
 $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-アミノ  
-4-(1-(6'-クロロメチルベンゾフラン-2'-イ  
ル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-ト  
リアジン, 2-アミノ-4-(1-(6'-ジフルオロメ  
トキシベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-

トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4-  
 - (1 - (6'-ジフルオロメトキシベンゾフラン-2'-  
 イル) エチルアミノ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-  
 s-トリアジン, 2-アミノ-4 - (1 - (6'-クロロ  
 エトキシベンゾフラン-2'-イル) エチルアミノ) - 6  
 -トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-  
 4 - (1 - (6'-ジフルオロエチルベンゾフラン-2'-  
 イル) エチルアミノ) - 6 -トリフルオロメチル-s-  
 トリアジン, 2-アミノ-4 - (1 - (6'-トリフルオ  
 ロメチルベンゾフラン-2'-イル) エチルアミノ) - 6  
 -トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-  
 4 - (1 - (6'-トリフルオロメチルベンゾフラン-2'  
 -イル) エチルアミノ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル  
 -s-トリアジン, 2-アミノ-4 - (1 - (2',3'-ジ  
 ヒドロベンゾフラン-2'-イル) エチルアミノ) - 6 -  
 トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4  
 - (1 - (2',3'-ジヒドロベンゾフラン-2'-イル) エ  
 チルアミノ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリ  
 アジン, 2-アミノ-4 - (1 - (2',3'-ジヒドロベン  
 ゾフラン-2'-イル) プロピルアミノ) - 6 -トリフル  
 オロメチル-s-トリアジン, 2-アミノ-4 - (1 -  
 (2',3'-ジヒドロベンゾフラン-3'-イル) エチルアミ  
 ノ) - 6 -トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-  
 アミノ-4 - (1 - (2',3'-ジヒドロチアナフテン-2'

-イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s  
- トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 2', 3' - ジヒド  
ロチアナフテン - 3' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリ  
フルオロメチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 -  
( 1 - ( 6' - メチル - 2', 3' - ジヒドロベンゾフラン - 2'  
- イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s  
- トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 4', 7' - ジメチ  
ル - 2', 3' - ジヒドロベンゾフラン - 2' - イル) エチルア  
ミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジン,  
2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6', 7' - ジメチル - 2', 3' - ジヒ  
ドロベンゾフラン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - ト  
リフルオロメチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 -  
( 1 - ( 4', 6' - ジメチル - 2', 3' - ジヒドロベンゾフラン  
- 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル  
- s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6' - メト  
キシ - 2', 3' - ジヒドロベンゾフラン - 2' - イル) エチル  
アミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジン,  
2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6' - クロロ - 2', 3' - ジヒドロ  
ベンゾフラン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリフ  
ルオロメチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1  
- ( 6' - フルオロ - 2', 3' - ジヒドロベンゾフラン - 2' -  
イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s -  
トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6' - メチル -  
2', 3' - ジヒドロチアナフテン - 2' - イル) エチルアミ

ノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジン, 2 -  
 アミノ - 4 - ( 1 - (4', 7' - ジメチル - 2', 3' - ジヒドロ  
 チアナフテン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリフ  
 ルオロメチル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1  
 - (4', 6' - ジメチル - 2', 3' - ジヒドロチアナフテン - 2'  
 - イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s  
 - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - (4', 6' - ジメチ  
 ル - 2', 3' - ジヒドロチアナフテン - 2' - イル) エチルア  
 ミノ) - 6 -  $\alpha$ ,  $\alpha$  - ジクロロエチル - s - トリアジ  
 ン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - (6', 7' - ジメチル - 2', 3' -  
 ジヒドロチアナフテン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6  
 - トリフルオロメチル - s - トリアジン, 2 - アミノ -  
 4 - ( 1 - ( 6' - イソプロピル - 2', 3' - ジヒドロチアナ  
 フテン - 2' - イ) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメ  
 チル - s - トリアジン, 2 - アミノ - 4 - ( 1 - ( 6' -  
 イソプロピル - 2', 3' - ジヒドロベンゾフラン - 2' - イ  
 ル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - ト  
 リアジン, 2 - プロピオニルアミノ - 4 - ( 1 - (ベン  
 ゴフラン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオ  
 ロメチル - s - トリアジン, 2 - クロロメチルカルボニ  
 ルアミノ - 4 - ( 1 - (ベンゾフラン - 2' - イル) エチ  
 ルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジ  
 ン, 2 - プロモメチルカルボニルアミノ - 4 - ( 1 -  
 (ベンゾフラン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリ

フルオロメチル-s-トリアジン, 2-エトキシメチル  
カルボニルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)  
エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-ト  
リアジン, 2-メチルチオメチルカルボニルアミノ-4  
-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-  
6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-アクリ  
ロイルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)  
エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリア  
ジン, 2-ホルミルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン  
-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル  
-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミノ-4-(1  
-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ト  
リフルオロメチル-s-トリアジン, 2-n-ブチレン  
イミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチル  
アミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン,  
2-n-プロピレンイミノ-4-(1-(ベンゾフラン  
-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル  
-s-トリアジン, 2-エトキシメチレンイミノ-4-  
(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6  
-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-(N,N-  
ジチルメチレンイミノ)-4-(1-(ベンゾフラン-  
2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-  
s-トリアジン, 2-アセチルアミノ-4-(1-(ベ  
ンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -

ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-メトキシメチル  
カルボニルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イ  
ル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s  
-トリアジン, 2-クロロメチルカルボニルアミノ-4  
-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-  
6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン, 2-ア  
クリロイルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イ  
ル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s  
-トリアジン, 2-ホルミルアミノ-4-(1-(ベン  
ゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジ  
クロロエチル-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミ  
ノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミ  
ノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s-トリアジン,  
2-エチレンイミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-  
イル)エチルアミノ)-6- $\alpha$ ,  $\alpha$ -ジクロロエチル-s  
-トリアジン, 2-アセチルアミノ-4-(1-(チ  
アナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフル  
オロメチル-s-トリアジン, 2-メトキシメチルカル  
ボニルアミノ-4-(1-(チアナフテン-2'-イル)  
エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリア  
ジン, 2-イソブチレンイミノ-4-(1-(チアナフ  
テン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメ  
チル-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミノ-4-  
(1-(チアナフテン-3'-イル)エチルアミノ)-6

トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-メトキシ  
メチルカルボニルアミノ-4-(1-(チアナフテン-  
3'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル  
-s-トリアジン, 2-アセチルアミノ-4-(1-  
(4',6'-ジメチルベンゾフラン-2'-イル)エチルアミ  
ノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2-  
イソブチレンイミノ-4-(1-(4',6'-ジメチルベン  
ゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオ  
ロメチル-s-トリアジン, 2-アセチルアミノ-4-  
(1-(2',3'-ジヒドロベンゾフラン-2'-イル)エチ  
ルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジ  
ン, 2-イソブチレンイミノ-4-(1-(2',3'-ジヒ  
ドロベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-ト  
リフルオロメチル-s-トリアジン, 2-メトキシメチ  
ルカルボニルアミノ-4-(1-(2',3'-ジヒドロチア  
ナフテン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオ  
ロメチル-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミノ-  
4-(1-(2',3'-ジヒドロチアナフテン-2'-イル)  
エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリア  
ジン, 2-メトキシメチルカルボニルアミノ-4-(1  
-(2',3'-ジヒドロチアナフテン-3'-イル)エチルア  
ミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン, 2  
-イソブチレンイミノ-4-(1-(2',3'-ジヒドロチ  
アナフテン-3'-イル)エチルアミノ)-6-トリフル

オロメチル-s-トリアジン, 2-メトキシメチルカル  
 ボニルアミノ-4-(1-(2',3'-ジヒドロベンゾフラ  
 ン-3'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチ  
 ル-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミノ-4-  
 (1-(2',3'-ジヒドロベンゾフラン-3'-イル)エチ  
 ルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジ  
 ン, 2-アセチルアミノ-4-(1-(6'-メチルベン  
 ゴフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオ  
 ロメチル-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミノ-  
 4-(1-(6'-メチルベンゾフラン-2'-イル)エチ  
 ルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジ  
 ン, 2-アセチルアミノ-4-(1-(4',7'-ジメチル  
 ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフ  
 ルオロメチル-s-トリアジン, 2-イソブチレンイミ  
 ノ-4-(1-(4',7'-ジメチルベンゾフラン-2'-イ  
 ル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-ト  
 リアジンなどが挙げられる。

上記一般式 [ I ] あるいは一般式 [ II ] で表わされる  
 本発明のトリアジン誘導体は、種々の方法により製造す  
 ることができる。そのうち効率のよい製造方法として  
 は、前述の「方法1」～「方法6」があげられ、一般式  
 [ I ] で表わされるトリアジン誘導体の製造方法として  
 前述の方法1, 方法3および方法5、一般式 [ II ] で表  
 わされるトリアジン誘導体の製造方法として前述の方法

2. 方法 4 および方法 6 がある。

方法 1 によれば、一般式 [III] で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩とシアノグアニジンとを反応させて、一般式 [IV] で表わされるベンゾフラニルビグアニドの塩を得、これを一般式 [V] で表わされるアルキルエステルと反応させることにより、目的とする一般式 [I-A] で表わされるトリアジン誘導体（これは一般式 [I] のトリアジン誘導体の一部に相当する。即ち、式 [I] 中の  $R^3$  が  $NH_2$  の場合のトリアジン誘導体である。）が得られる。

ここで一般式 [III] で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩としては、例えば 1-ベンゾフラン-2-イルエチルアミンの塩、1-ベンゾフラン-3-イルエチルアミンの塩、1-チアナフテン-2-イルエチルアミンの塩、1-チアナフテン-3-イルエチルアミンの塩、1-ベンゾフラン-2-イルプロピルアミンの塩、1-ベンゾフラン-2-イルブチルアミンの塩、1-チアナフテン-2-イルプロピルアミンの塩、1-チアナフテン-2-イルブチルアミンの塩、1-(6-クロロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩、1-(5-クロロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩、1-(4,7-ジメチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩、1-(4,6-ジメチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩、1-(6-エチル

ベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-イソプロピルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-フルオロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(5-フルオロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-ブロモベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(5-ブロモベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メトキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(5-メトキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(5-エトキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-イソプロポキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(5,7-ジクロロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,7-ジクロロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メチルベンゾフラン-2-イル)プロピルアミンの塩, 1-(6,7-ジメチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メチルチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(5-メチルチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,6-ジメチルチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6,7-ジメチルチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-クロロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-

(7-クロロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メトキシチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,6-ジメトキシチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6,7-ジメトキシチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メチルチオベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-エチルチオベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-ジフルオロメチルチオベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-クロロメチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-ジフルオロエチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-トリフルオロメチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-ジフルオロメトキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-クロロエトキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩などがある。

ここで上記一般式 [III] で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩とシアノグアニジンの反応にあたっては、両化合物をほぼ等モルの割合で用いればよく、また溶媒は必ずしも必要ではないが、メタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール、アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン、n-ヘキサン、n-ヘプタン等の脂肪族炭化水素、ベンゼン、デカリン、アルキルナフタレン等の環状炭化水素、

四塩化炭素，二塩化エチレン，クロロベンゼン，ジクロロベンゼン等の塩化炭化水素、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテルなど、さらには灯油等を用いることもできる。また、反応温度は特に制限はなく、低温から高温、具体的には80～200℃の範囲で十分に進行する。

この反応により一般式 [IV] で表わされるベンゾフランニルピグアニド誘導体の塩が得られるが、本発明の方法1ではこれに一般式 [V] のアルキルエステル  $R^2COOR^6$  を反応させることにより、目的とする一般式 [I-A] で表わされるトリアジン誘導体を製造する。この反応は、通常はメタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコールや各種ケトン、脂肪族炭化水素、各種エーテル類、各種環状炭化水素、塩化炭化水素などの溶媒中で塩基等の触媒の存在下に、10～100℃程度にて効率よく進行する。

続いて本発明の方法3では、上記方法1で得られた一般式 [I-A] で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、前記一般式 [VI] のカルボン酸、一般式 [VII] のカルボン酸無水物、一般式 [VIII] のカルボン酸ハロゲン化物あるいは一般式 [IX] のカルボン酸エステルを反応させる。この反応は用いる化合物の種類にもよるが、一般式 [VIII] のカルボン酸ハロゲン化物を用いる場合、通常は一般式 [I-A] のアミノ基含有トリアジン誘導体

1 モルに対して、上記カルボン酸ハロゲン化物を1～3倍モルの割合で用い、また溶媒は必ずしも必要ではないが、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；クロロホルム、塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン；ヘキサン、ヘプタン等の脂肪族炭化水素；テトラヒドロフラン、エチルエーテル等のエーテルあるいはピリジン等の塩基性溶媒などを用いることが好ましい。さらにこの反応系はトリエチルアミン等の塩基を加えることも有効である。また、反応温度は特に制限はないが、低温から高温まで、具体的には $-20^{\circ}\text{C}$ ～ $80^{\circ}\text{C}$ の範囲で十分に進行する。

また、一般式 [ IX ] のカルボン酸エステルを用いる場合は、一般式 [ I -A ] のアミノ基含有トリアジン誘導体の等モル以上用いればよく、また溶媒は必ずしも必要ではないが、水；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン；ヘキサン、ヘプタン等の脂肪族炭化水素；テトラヒドロフラン、エチルエーテル等のエーテル；メタノール、エタノール等のアルコール、さらにはジメチルホルムアミドやジメチルスルホキシドを溶媒に用いることが好ましい。さらに、この反応系にはナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、*n*-ブチルリチウム、水素化ナトリウム等の塩基を加えることも有効である。ま

た、反応温度は特に制限はないが、低温から高温、具体的には10～100℃の範囲で十分に進行する。

なお、一般式〔VI〕のカルボン酸や一般式〔VII〕のカルボン酸無水物を用いる場合も、前述のカルボン酸エステルを用いる場合に準じて行なえばよい。

このような本発明の方法3にしたがえば、上記反応により目的とする一般式〔I-B〕で表わされるトリアジン誘導体を得られる。

さらに、本発明の方法5では、上記方法1で得られた一般式〔I-A〕のトリアジン誘導体（アミノ基含有トリアジン誘導体）に、一般式〔X〕のアルデヒドあるいは一般式〔XI〕のアセタールを反応させる。

この反応では、一般式〔I-A〕のアミノ基含有トリアジン誘導体に対して、一般式〔X〕のアルデヒドや一般式〔XI〕のアセタールをほぼ等モル用いればよく、また溶媒は必ずしも必要としないが、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；クロロホルム、塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素；ヘキサン、ヘプタン等の脂肪族炭化水素；テトラヒドロフラン、エチルエーテル等のエーテルなどを好適な溶媒として用いることができる。さらに、この反応系には水酸化カリウム等の脱水剤やパラトルエンスルホン酸等の触媒を用いることが好ましく、また、反応温度は特に制限はなく、低温から高温、具体的には10～100℃の範囲で十分に進行する。

このような本発明の方法 5 にしたがえば、上記反応により目的とする一般式 [ I -C ] で表わされるトリアジン誘導体を得られる。

次に、上記一般式 [ II ] で表わされる本発明のトリアジン誘導体（ジヒドロベンゾ（チア）フラニル基を有するトリアジン誘導体）もまた、一般式 [ I ] のトリアジン誘導体と同様にして製造することができるが、効率のよい方法としては前述した如く本発明の方法 2，方法 4 および方法 6 があげられる。

方法 3 によれば、一般式 [ III' ] で表わされるジヒドロベンゾフラニルアルキルアミンの塩とシアノグアニジンとを反応させて一般式 [ IV' ] で表わされるジヒドロベンゾフラニルピグアニドの塩を得、これを一般式 [ V ] で表わされるアルキルエステルと反応させることにより、目的とする一般式 [ II -A ] で表わされるトリアジン誘導体（これは一般式 [ II ] のトリアジン誘導体の一部に相当する。即ち、式 [ II ] 中の  $R^3$  が  $NH_2$  の場合のトリアジン誘導体である。）を得られる。

ここで一般式 [ III' ] で表わされるジヒドロベンゾフラニルアルキルアミンの塩としては、例えば 1 - ( 2,3 - ジヒドロベンゾフラン - 2 - イル ) エチルアミンの塩， 1 - ( 2,3 - ジヒドロベンゾフラン - 2 - イル ) プロピルアミンの塩， 1 - ( 2,3 - ジヒドロベンゾフラン - 3 - イル ) エチルアミンの塩， 1 - ( 2,3 - ジヒドロチア

ナフテン-3-イル)エチルアミンの塩, 1-(2,3-ジヒドロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メチル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-3-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,7-ジメチル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6,7-ジメチル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,6-ジメチル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メトキシ-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-クロロ-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-フルオロ-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-メチル-2,3-ジヒドロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,7-ジメチル-2,3-ジヒドロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(4,6-ジメチル-2,3-ジヒドロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6,7-ジメチル-2,3-ジヒドロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-イソプロピル-2,3-ジヒドロチアナフテン-2-イル)エチルアミンの塩, 1-(6-イソプロピル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-2-イル)エチルアミンの塩などが挙げられる。

本発明の方法2は、一般式[III']で表わされるジヒド

ロベンゾフラニルアルキルアミンの塩を、一般式 [ III ] で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩に代えて用いたこと以外は、前述した方法 1 に準じて反応を行なえばよい。

この方法 2 によれば、一般式 [ II -A ] で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体が高純度かつ高収率で得られる。

また、本発明の方法 4 では、上述の本発明の方法 2 に従って一般式 [ II -A ] で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体を製造した後、このトリアジン誘導体に、前記一般式 [ VI ] のカルボン酸、一般式 [ VII ] のカルボン酸無水物、一般式 [ VIII ] のカルボン酸ハロゲン化物あるいは一般式 [ IX ] のカルボン酸エステルを反応させることにより、目的とする一般式 [ II -B ] で表わされるトリアジン誘導体を得られる。

なお、この方法 4 を実施するにあたっては、前述した方法 3 に準ずればよい。

また、本発明の方法 6 では、上述した本発明の方法 2 に従って一般式 [ II -A ] で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体を製造した後、このトリアジン誘導体に、一般式 [ X ] のアルデヒドあるいは一般式 [ XI ] のアセタールを反応させることにより、目的とする一般式 [ II -C ] で表わされるトリアジン誘導体を得られる。

なお、この方法 6 を実施するにあたっては、前述した

方法5に準ずればよい。

以上のように、本発明の方法1によって得られる一般式 [ I -A ] のトリアジン誘導体、方法3によって得られる一般式 [ I -B ] のトリアジン誘導体および方法5によって得られる一般式 [ I -C ] のトリアジン誘導体はいずれも一般式 [ I ] で表わされる本発明のトリアジン誘導体に包含されるものであり、新規な化合物である。

また、本発明の方法2によって得られる一般式 [ II -A ] のトリアジン誘導体、方法4によって得られる一般式 [ II -B ] のトリアジン誘導体および方法6によって得られる一般式 [ II -C ] のトリアジン誘導体は、いずれも一般式 [ II ] で表わされる本発明のトリアジン誘導体に包含されるものであり、新規な化合物である。

さらに、この一般式 [ I ] あるいは [ II ] で表わされるトリアジン誘導体は、雑草の発芽、生長を抑制し、しかも高選択性を有するため、除草剤として好適である。また、水稻に薬害を与えることなくキカシグサ、アゼナ、コナギなどの広葉雑草、タマガヤツリ等のカヤツリグサ科雑草あるいはノビエなどのイネ科雑草などの雑草に対して卓越した除草効果を示すばかりでなく、現在防除困難とされているホタルイ、ミズガヤツリ、ウリカワ等の多年生雑草に対しても卓越した雑草効果を示す。

また、さらにこのトリアジン誘導体は畑地の重要作物であるトウモロコシやモロコシに薬害を与えることな

く、エビスグサ、マルバアサガオ、イチビ等の強害雑草に対して卓越した除草効果を示す。

次に、本発明の除草剤は、上述の発明の化合物、すなわち一般式 [ I ] あるいは [ II ] で表わされるトリアジン誘導体を有効成分として含有するものであり、これらの化合物を溶媒等の液状担体または鉱物質微粉等の固体担体と混合し、水和剤、乳剤、粉剤、粒剤等の形態に製剤化して使用することができる。製剤化に際して乳化性、分散性、展着性等を付与するためには界面活性剤を添加すればよい。

本発明の除草剤を水和剤の形態で用いる場合、通常は上述した本発明のトリアジン誘導体を有効成分として10～55重量%、固体担体40～88重量%および界面活性剤2～5重量%の割合で配合して組成物を調製し、これを用いればよい。また、乳剤の形態で用いる場合は、通常は有効成分として本発明のトリアジン誘導体20～50重量%、溶剤35～75重量%および界面活性剤5～15重量%の割合で配合して調製すればよい。

一方、粉剤の形態で用いる場合は、通常は有効成分として本発明のトリアジン誘導体1～15重量%、固体担体80～97重量%および界面活性剤2～5重量%の割合で配合して調製すればよい。さらに、粒剤の形態で用いる場合は、有効成分として本発明のトリアジン誘導体0.1～15重量%、固体担体80～97.9重量%および界面活性剤

2～5重量%の割合で配合して調製すればよい。ここで固体担体としては鋳物質の微粉が用いられ、この鋳物質の微粉としては、ケイソウ土、消石灰等の酸化物、リン灰石等のリン酸塩、セッコウ等の硫酸塩、タルク、パイロフェライト、クレー、カオリン、ベントナイト、酸性白土、ホワイトカーボン、石英粉末、ケイ石粉等のケイ酸塩などをあげることができる。

また、溶剤としては有機溶媒が用いられ、具体的にはキシレン、トルエン、ベンゼン等の芳香族炭化水素、 $\alpha$ -クロロトルエン、トリクロルメタン、トリクロルエチレン等の塩素化炭化水素、シクロヘキサノール、アミルアルコール、エチレングリコール等のアルコール、イソホロン、シクロヘキサノン、シクロヘキセニル-シクロヘキサノン等のケトン、ブチルセロソルブ、ジメチルエーテル、メチルエチルエーテル等のエーテル、酢酸イソプロピル、酢酸ベンジル、フタル酸メチル等のエステル、ジメチルホルムアミド等のアミドあるいはこれらの混合物をあげることができる。

さらに、界面活性剤としては、アニオン型、ノニオン型、カチオン型あるいは両性イオン型（アミノ酸、ベタイン等）のいずれを用いることもできる。

このような本発明の一般式 [ I ] あるいは [ II ] で表わされる新規化合物のトリアジン誘導体は、一年生雑草はもとより多年生雑草に対しても除草効果が高く、水稻

に対しても葉害のない高選択性の除草剤として極めて有用である。また、トウモロコシ、小麦、大麦、エン麦、モロコシ等の畑作物に対して、畑茎葉処理剤として使用すれば、市販の畑茎葉処理剤よりもすぐれた効果を発揮する。

なお、本発明の除草剤は、有効成分として一般式 [ I ] あるいは [ II ] で表わされるトリアジン誘導体と共に、他の除草成分を併用することもできる。このような他の除草成分としては、従来から市販されている除草剤をあげることができ、例えばフェノキシ系除草剤、ジフェニルエーテル系除草剤、トリアジン系除草剤、尿素系除草剤、カーバメート系除草剤、チオールカーバメート系除草剤、酸アニリド系除草剤、ピラゾール系除草剤、リン酸系除草剤、スルホニルウレア系除草剤、オキサジアゾンなど様々なものがあげられる。

さらに本発明の除草剤は、必要に応じて殺虫剤、殺菌剤、植物の生長調節剤、肥料等と混用することもできる。

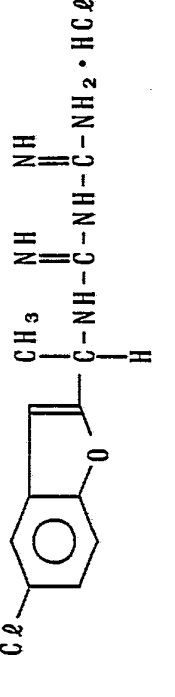
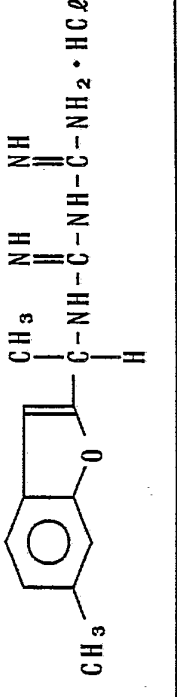
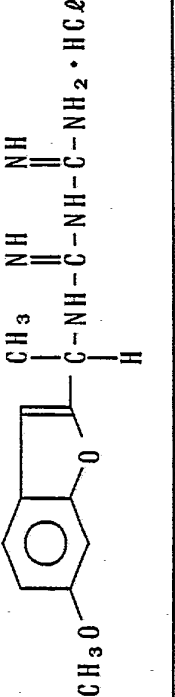
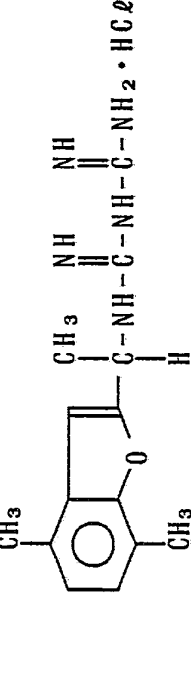
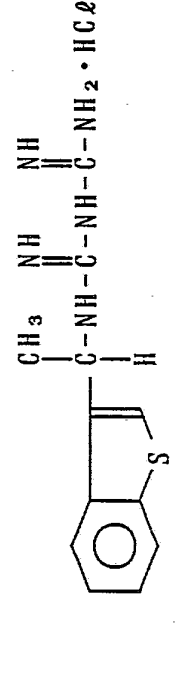
#### 参考例 1

1 - (ベンゾフラン-2-イル) エチルアミン塩酸塩 9.9 g (50ミリモル) およびシアノグアニジン 4.2 g (50ミリモル) を *o*-ジクロロベンゼン 35 ml とともに加え、140 ~ 150 °C で 8 時間加熱攪拌を行なった。

反応終了後、冷却し、析出した沈殿を濾取し、5 ml の



第 1 表

	使用したエチルアミン塩酸塩	得られたエチルピグアニド塩酸塩の構造式	収率 (%)
参考例 2	1-(5-クロロベンゾフラン-2-イル)エチルアミン塩酸塩		96
参考例 3	1-(6-メチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミン塩酸塩		95
参考例 4	1-(6-メトキシベンゾフラン-2-イル)エチルアミン塩酸塩		93
参考例 5	1-(4,7-ジメチルベンゾフラン-2-イル)エチルアミン塩酸塩		94
参考例 6	1-(チアナフテン-3-イル)エチルアミン塩酸塩		89

## 製造例 1

乾燥したメタノール 20ml にナトリウム 0.46 g (20ミリモル) を徐々に加え、ナトリウムメトキシドを生成させたところに、原料 I として参考例 1 で得た 1 - (ベンゾフラン - 2'-イル) エチルピグアニド塩酸塩 2.92 g (10ミリモル) を加え、室温下で 30 分間攪拌した。次いで、原料 II としてトリフルオロ酢酸エチルエステル 2.38 ml (20ミリモル) を滴下し、室温下で 10 時間攪拌した。反応終了後、内容物を水 100ml に注入し、酢酸エチル 50ml で 3 回抽出を行なった。この酢酸エチル層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下で酢酸エチルを留去した。残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (展開溶媒: ヘキサン / 酢酸エチル = 4 / 1) により精製した後、ヘキサン - エチルエーテルから再結晶し、白色の 2 - アミノ - 4 - (1 - (ベンゾフラン - 2'-イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジン (化合物 1) を 2.82 g 得た。このものの収量, 収率, 分析結果, 構造式等を第 2 ~ 4 表に示す。

## 製造例 2 ~ 6

原料 II としてトリフルオロ酢酸エチルエステルの代わりに第 2 表に示すエステル 20ミリモルを用いたこと以外は製造例 1 と同様の操作を行なって化合物 2 ~ 6 を得た。これらの化合物の収量, 収率, 分析結果, 構造式等を第 2 ~ 4 表に示す。

## 製造例 7 ~ 11

原料 I として 1 - (ベンゾフラニル - 2 - イル) エチルビグアニド塩酸塩の代りに第 2 表に示すビグアニド塩酸塩を用いたこと以外は製造例 1 と同様の操作を行なって化合物 7 ~ 11 を得た。これらの化合物の収量, 収率, 分析結果, 構造式等を第 2 ~ 4 表に示す。

## 製造例 12 および 13

原料 I として 1 - (ベンゾフラニル - 2 - イル) エチルビグアニド塩酸塩を用い、また原料 II としてトリフルオロ酢酸エチルエステルを用いたこと以外は製造例 1 と同様の操作を行なって化合物 12 ~ 13 を得た。これらの化合物の収量, 収率, 分析結果, 構造式等を第 2 ~ 4 表に示す。

## 製造例 14

原料 I として製造例 1 で得た 2 - アミノ - 4 - (1 - (ベンゾフラン - 2' - イル) エチルアミノ) - 6 - トリフルオロメチル - s - トリアジン (化合物 1) 3.23 g (10 ミリモル) をベンゼン 20 ml に溶解した後、トリエチルアミン 1.57 g (20 ミリモル) を添加した。次いで、これに氷冷却下攪拌しながら原料 II としてアセチルクロライド 2.02 g (20 ミリモル) を滴下後、室温で 3 時間加熱還流を行なった。冷却後、ベンゼン層を水洗し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、減圧下でベンゼンを留去した。残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに展

開して（展開溶媒：トルエン／酢酸エチル＝8／2）精製し、アセトン－水から再結晶して白色結晶の2－アセチルアミノ－4－（1－（ベンゾフラン－2′－イル）エチルアミノ）－6－トリフルオロメチル－s－トリアジン（化合物14）1.31gを得た。このものの収量，収率，分析結果，構造式等を第2～4表に示す。

#### 製造例15

原料Iとして製造例1で得た2－アミノ－4－（1－（ベンゾフラン－2′－イル）エチルアミノ）－6－トリフルオロメチル－s－トリアジン（化合物1）3.23g（10ミリモル）に28%ナトリウムメトキシドメタノール溶液1.93g（10ミリモル）およびメタノール10mlを加え50℃に加温後、メタノールを減圧下で留去した。残留物に原料IIとしてシクロプロパンカルボン酸エチル20mlを加え、50℃に加温後、水20mlを加えた。シクロプロパンカルボン酸エチル層を水洗後、シクロプロパンカルボン酸エチルを減圧下で留去した。残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに展開して（展開溶媒：トルエン／酢酸エチル＝8／2）精製し、無色樹脂様の2－シクロプロピルカルボニルアミノ－4－（1－（ベンゾフラン－2′－イル）エチルアミノ）－6－トリフルオロメチル－s－トリアジン（化合物15）1.84gを得た。このものの収量，収率，分析結果，構造式等を第2～4表に示す。

## 製造例 16

原料 II としてシクロプロパンカルボン酸エチルの代りにメトキシ酢酸エチルを用いたこと以外は製造例 15 と同様の操作を行ない、無色樹脂様の 2-メトキシカルボニルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン(化合物 16) を 2.53 g 得た。このものの収量, 収率, 分析結果, 構造式等を第 2 ~ 4 表に示す。

第 2 表



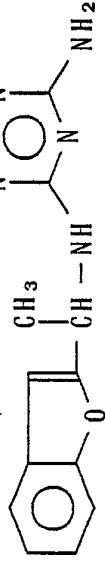

製造例番号 (化合物番号)	原 料		収量 (g)	収率 (%)	融 点 (℃)	分 析 結 果			
	I	II				炭 素	水 素	窒 素	塩 素
製造例 1 (化合物 1)	参考例 1	トリフルオロ酢酸エチル エステル	2.82	87	159.4 ~160.1	51.5 (52.0)	3.4 (3.7)	21.7 (21.7)	—
製造例 2 (化合物 2)	”	α,α,β,β-テトラフルオロプロ ピオン酸メチルエステル	2.14	60	158.2 ~158.6	51.3 (50.7)	3.4 (3.7)	19.2 (19.7)	—
製造例 3 (化合物 3)	”	クロロジフルオロ酢酸エチ ルエステル	2.04	60	172.8 ~173.9	50.5 (49.5)	3.6 (3.6)	20.2 (20.6)	10.3 (10.4)
製造例 4 (化合物 4)	”	α, α-ジクロロプロピオ ン酸メチルエステル	2.42	69	154.4 ~154.9	51.0 (51.1)	4.2 (4.3)	19.7 (19.9)	19.9 (20.1)
製造例 5 (化合物 5)	”	モノフルオロ酢酸エチル エステル	2.44	80	138.8 ~141.5	55.5 (55.1)	4.2 (4.3)	22.6 (22.9)	—
製造例 6 (化合物 6)	”	ジフルオロ酢酸エチル エステル	1.78	62	162.5 ~163.5	58.1 (58.5)	4.8 (4.9)	24.7 (24.4)	—
製造例 7 (化合物 7)	参考例 2	トリフルオロ酢酸エチル エステル	2.61	73	149.4 ~150.7	46.6 (47.0)	3.3 (3.1)	19.8 (19.6)	10.2 (9.9)
製造例 8 (化合物 8)	参考例 3	”	2.99	80	126.9 ~128.0	53.8 (53.4)	4.1 (4.2)	20.5 (20.8)	—

第 2 表 (続き)

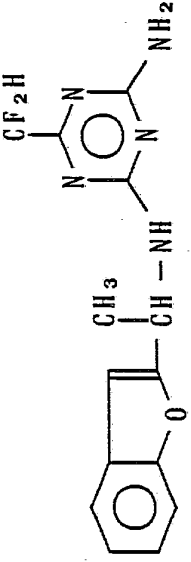
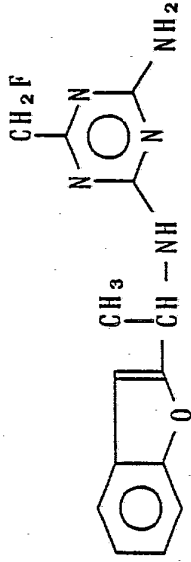
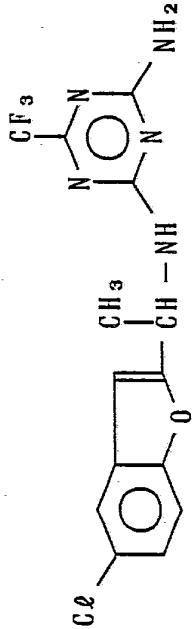
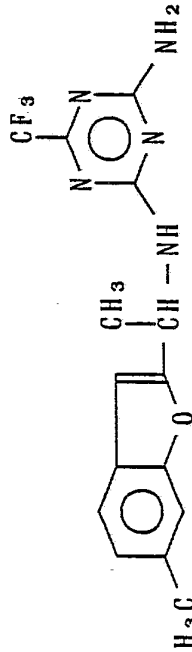
製造例番号 (化合物番号)	原 料		収量 (g)	収率 (%)	融 点 (℃)	分 析 結 果			
	I	II				元 素 分 析 値 * ( % )			
						炭 素	水 素	窒 素	塩 素
製造例 9 (化合物 9)	参考例 4	トリフルオロ酢酸エチル エステル	2.65	75	144.8 ~146.1	51.4 (51.0)	4.2 (4.0)	19.7 (20.0)	—
製造例 10 (化合物 10)	参考例 5	”	2.74	78	145.5 ~146.6	55.0 (54.7)	4.3 (4.6)	19.8 (20.0)	—
製造例 11 (化合物 11)	参考例 6	”	2.48	73	138.0 ~138.9	49.9 (49.6)	3.4 (3.6)	20.4 (20.6)	—
製造例 12 (化合物 12)	参考例 3	モノフルオロ酢酸エチル エステル	2.17	72	189.9 ~189.4	60.0 (59.8)	5.3 (5.4)	23.1 (23.2)	—
製造例 13 (化合物 13)	参考例 5	”	2.21	70	182.6 ~183.6	60.5 (60.9)	5.9 (5.8)	22.5 (22.2)	—
製造例 14 (化合物 14)	製造例 1	アセチルクロライド	1.31	36	150.1 ~151.8	52.9 (52.6)	3.8 (3.9)	19.0 (19.2)	—
製造例 15 (化合物 15)	”	シクロプロパンカルボン酸 エチル	1.84	47	無色 樹脂様	55.0 (55.2)	4.3 (4.1)	17.7 (17.9)	—
製造例 16 (化合物 16)	”	メトキシ酢酸エチル	2.53	64	無色 樹脂様	51.8 (51.6)	4.0 (4.1)	17.5 (17.7)	—

\* : 括弧内の数値は計算値を示す。

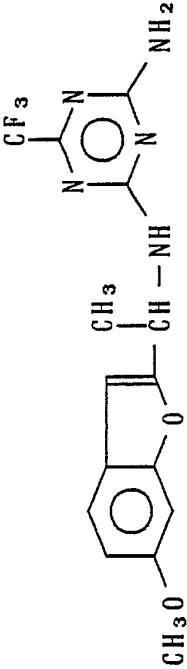
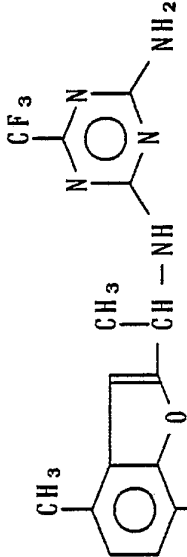
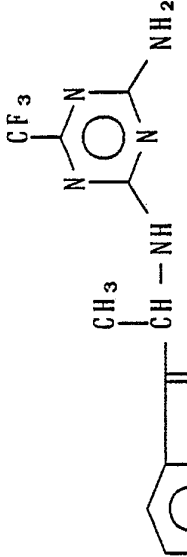
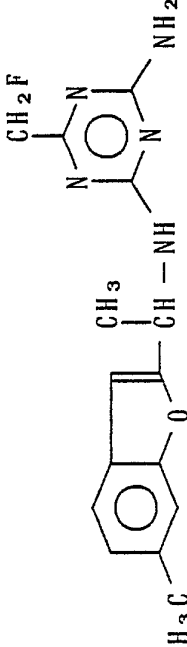
第 3 表

番号	トリアジン誘導体の構造式	トリアジンの分子 導体の分子量	トリアジン誘導体
製造例 1	 <p>Chemical structure showing a benzotriazine ring system with a methyl group (CH<sub>3</sub>) and an amino group (NH<sub>2</sub>) attached to the triazine ring, and a trifluoromethyl group (CF<sub>3</sub>) attached to the benzene ring.</p>	<p>C<sub>14</sub>H<sub>12</sub>N<sub>5</sub>OF<sub>3</sub> 323.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(ベンゾフuran-2'-イル)エチル)エチルアミノ-6-トルフルオロメチル-s-トリアジン</p>
製造例 2	 <p>Chemical structure showing a benzotriazine ring system with a methyl group (CH<sub>3</sub>) and an amino group (NH<sub>2</sub>) attached to the triazine ring, and a difluoromethyl group (CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>H) attached to the benzene ring.</p>	<p>C<sub>14</sub>H<sub>13</sub>N<sub>5</sub>OF<sub>4</sub> 355.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(ベンゾフuran-2'-イル)エチル)エチルアミノ-6-α,α,β,β-テトラフルオロエチル-s-トリアジン</p>
製造例 3	 <p>Chemical structure showing a benzotriazine ring system with a methyl group (CH<sub>3</sub>) and an amino group (NH<sub>2</sub>) attached to the triazine ring, and a difluoromethyl group (CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>) attached to the benzene ring.</p>	<p>C<sub>14</sub>H<sub>12</sub>N<sub>5</sub>OF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> 339.7</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(ベンゾフuran-2'-イル)エチル)エチルアミノ-6-クロロジフルオロメチル-s-トリアジン</p>
製造例 4	 <p>Chemical structure showing a benzotriazine ring system with a methyl group (CH<sub>3</sub>) and an amino group (NH<sub>2</sub>) attached to the triazine ring, and a dichloromethyl group (CCl<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>) attached to the benzene ring.</p>	<p>C<sub>15</sub>H<sub>15</sub>N<sub>5</sub>OC<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> 352.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(ベンゾフuran-2'-イル)エチル)エチルアミノ-6-α, α-ジクロロエチル-s-トリアジン</p>

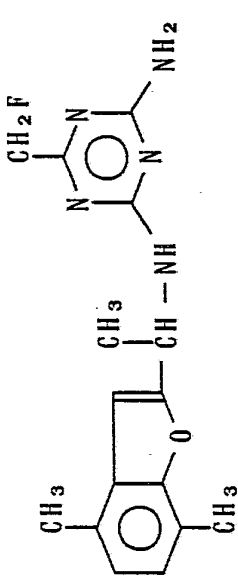
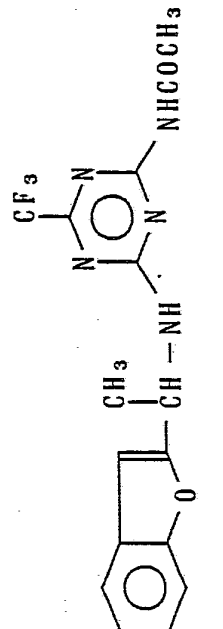
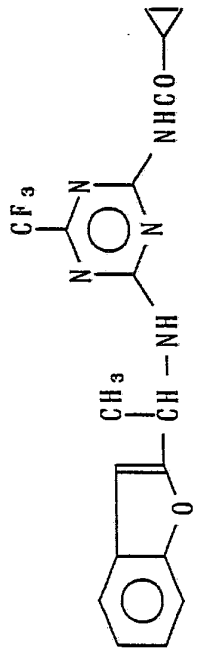
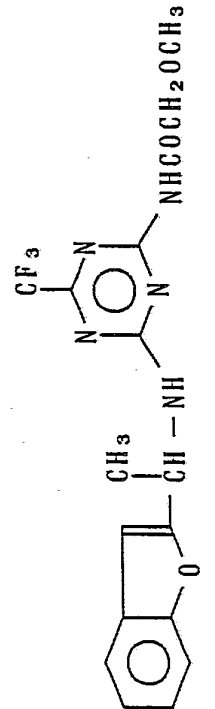
第 3 表 ( 続き )

番号	トリアジン誘導体の構造式	トリアジンの分子誘導体の量	トリアジン誘導体
製造例 5		$C_{14}H_{13}N_5OF_2$ 305.3	2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラ ン-2'-イル)エチル)アミノ -6-ジフルオロメチル-s-ト リアジン
製造例 6		$C_{14}H_{14}N_5OF$ 287.3	2-アミノ-4-(1-(ベンゾフラ ン-2'-イル)エチル)アミノ -6-モノフルオロメチル-s- トリアジン
製造例 7		$C_{14}H_{11}N_5OC_2F_3$ 357.7	2-アミノ-4-(1-(5'-クロルベ ンゾフラン-2'-イル)エチル アミノ)-6-トリフルオロメ チル-s-トリアジン
製造例 8		$C_{15}H_{14}N_5OF_3$ 337.3	2-アミノ-4-(1-(6'-メチルベ ンゾフラン-2'-イル)エチル アミノ)-6-トリフルオロメ チル-s-トリアジン

第 3 表 (続き)

番号	トリアジン誘導体の構造式	トリアジンの分子 導体の分子量	トリアジン誘導体
製造例 9	 <p>Chemical structure of 2-amino-4-(4-methoxyphenyl)-5-(trifluoromethyl)imidazole. It features a benzimidazole ring system with a trifluoromethyl group (CF<sub>3</sub>) at position 5, an amino group (NH<sub>2</sub>) at position 2, and a 4-methoxyphenyl group (CH<sub>3</sub>O-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>-) at position 4. The imidazole ring is substituted at position 4 with a methylene group (-CH<sub>2</sub>-) which is further substituted with a methyl group (-CH<sub>3</sub>).</p>	<p>C<sub>15</sub>H<sub>14</sub>N<sub>5</sub>O<sub>2</sub>F<sub>3</sub> 353.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(6'-メトキシベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トルフルオロメチル-s-トリアジン</p>
製造例 10	 <p>Chemical structure of 2-amino-4-(2,6-dimethylphenyl)-5-(trifluoromethyl)imidazole. It features a benzimidazole ring system with a trifluoromethyl group (CF<sub>3</sub>) at position 5, an amino group (NH<sub>2</sub>) at position 2, and a 2,6-dimethylphenyl group (2,6-(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>H<sub>3</sub>-) at position 4. The imidazole ring is substituted at position 4 with a methylene group (-CH<sub>2</sub>-) which is further substituted with a methyl group (-CH<sub>3</sub>).</p>	<p>C<sub>16</sub>H<sub>16</sub>N<sub>5</sub>O F<sub>3</sub> 351.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(4',7'-ジメチルベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トルフルオロメチル-s-トリアジン</p>
製造例 11	 <p>Chemical structure of 2-amino-4-(thiophen-2-yl)-5-(trifluoromethyl)imidazole. It features a benzimidazole ring system with a trifluoromethyl group (CF<sub>3</sub>) at position 5, an amino group (NH<sub>2</sub>) at position 2, and a thiophen-2-yl group (thiophene ring at position 2) at position 4. The imidazole ring is substituted at position 4 with a methylene group (-CH<sub>2</sub>-) which is further substituted with a methyl group (-CH<sub>3</sub>).</p>	<p>C<sub>14</sub>H<sub>12</sub>N<sub>5</sub>SF<sub>3</sub> 339.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(チアアナフテン-3'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン</p>
製造例 12	 <p>Chemical structure of 2-amino-4-(4-methylphenyl)-5-(difluoromethyl)imidazole. It features a benzimidazole ring system with a difluoromethyl group (CH<sub>2</sub>F) at position 5, an amino group (NH<sub>2</sub>) at position 2, and a 4-methylphenyl group (H<sub>3</sub>C-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>-) at position 4. The imidazole ring is substituted at position 4 with a methylene group (-CH<sub>2</sub>-) which is further substituted with a methyl group (-CH<sub>3</sub>).</p>	<p>C<sub>15</sub>H<sub>16</sub>N<sub>5</sub>O F 301.3</p>	<p>2-アミノ-4-(1-(6'-メチルベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-モノフルオロメチル-s-トリアジン</p>

第 3 表 (続き)

番号	トリアジン誘導体の構造式	トリアジン誘導体の分子量	トリアジン誘導体
製造例 13		$C_{16}H_{16}N_5OF$ 315.4	2-アミノ-4-(1-(4',7'-ジメチルベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-モノフルオロメチル-s-トリアジン
製造例 14		$C_{16}H_{14}N_5O_2F_3$ 365.3	2-アセチルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン
製造例 15		$C_{18}H_{16}N_5O_2F_3$ 391.4	2-シクロプロピルカルボニルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン
製造例 16		$C_{17}H_{16}N_5O_3F_3$ 395.3	2-メトキシメチルカルボニルアミノ-4-(1-(ベンゾフラン-2'-イル)エチルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン

第 4 表

製造例 番号	製造した 化合物	赤外線吸収スペクトル *1 (cm <sup>-1</sup> )			プロトン核磁気共鳴スペクトル (ppm) *2
		NH <sub>2</sub>	NH	s-トリアジン C=O	
1	化合物 1	3490 3340	3280	1580	1.63 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 5.36~5.62 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.57 (1H, s, C=CH), 7.12~7.53 (4H, m, ベンゼン環)
2	化合物 2	3480 3340	3280	1580	1.62 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 5.33~5.50 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.32 (1H, t, CF <sub>2</sub> -CF <sub>2</sub> H), 6.58 (1H, s, C=CH), 7.12~7.55 (4H, m, ベンゼン環)
3	化合物 3	3480 3340	3320	1580	1.62 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 5.38~5.53 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.59 (1H, s, C=CH), 7.12~7.58 (4H, m, ベンゼン環)
4	化合物 4	3500 3410	3340	1560	1.63 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.42 (3H, s, CCl <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub> ), 5.38~5.57 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.59 (1H, s, C=CH), 7.13~7.52 (4H, m, ベンゼン環)
5	化合物 5	3540 3460	3360	1580	1.56 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 5.40~5.60 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.04~6.39 (1H, m, -CHF <sub>2</sub> ), 6.66 (1H, s, C=CH), 7.14~7.56 (4H, m, ベンゼン環)
6	化合物 6	3530 3470	3360	1570	1.61 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 4.91~5.50 (2H, q, -CH <sub>2</sub> F), 5.39~5.62 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.65 (1H, s, C=CH), 7.14~7.56 (4H, m, ベンゼン環)

第 4 表 (続き)

製造例 番号	製造した 化合物	赤外線吸収スペクトル *1 (cm <sup>-1</sup> )			プロトン核磁気共鳴スペクトル (ppm) *2
		NH <sub>2</sub>	NH	s-トリアジン C=O	
7	化合物7	3540 3500	3340	1580	1.66 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 5.41~5.60 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.69 (1H, s, C=CH), 7.21~7.58 (3H, m, ベンゼン環+NH)
8	化合物8	3540 3460	3360	1560	1.58 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.40 (3H, s, φ-CH <sub>3</sub> ), 5.20~5.60 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.48 (1H, s, C=CH), 6.83~7.48 (4H, m, ベンゼン環+NH)
9	化合物9	3500 3440	ブロー ドな吸 収あり	1580	1.63 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 3.81 (3H, s, OCH <sub>3</sub> ), 5.38~5.56 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.60 (1H, s, C=CH), 6.80~7.42 (4H, m, ベンゼン環+NH)
10	化合物10	3540 3480	3350	1580	1.65 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.38 (6H, s, φ-CH <sub>3</sub> × 2), 5.41~5.56 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 7.71 (1H, s, C=CH), 6.80~6.95 (4H, m, ベンゼン環+NH <sub>2</sub> )
11	化合物11	3540 1500	3360	1570	1.69 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 5.64~5.80 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 7.31~7.97 (5H, m, ベンゼン環+C=CH)
12	化合物12	3510 3450	3350	1560	1.56 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.38 (3H, s, φ-CH <sub>3</sub> ), 4.91~5.04 (2H, q, CH <sub>2</sub> F), 5.36~5.56 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.68 (1H, s, C=CH), 6.96~7.40 (4H, m, ベンゼン環+NH)

第 4 表 (続き)

製造例番号	製造した化合物	赤外線吸収スペクトル *1 (cm <sup>-1</sup> )			プロトン核磁気共鳴スペクトル *2 (ppm)
		NH <sub>2</sub>	NH	s-トリアジン	
13	化合物13	ブロードな吸収あり	3360	1550	1.56 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.36 (6H, s, φ-CH <sub>3</sub> × 2), 4.94~5.06 (2H, d, -CH <sub>2</sub> F), 5.37~5.56 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.66 (1H, s, C=CH), 6.84~6.93 (2H, m, ベンゼン環)
14	化合物14	—	3280	1560	1.71 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.62 (3H, s, COCH <sub>3</sub> ), 5.49~5.66 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.64 (1H, s, C=CH), 7.14~7.56 (4H, m, ベンゼン環)
15	化合物15	—	3280	1560	0.90~1.21 (4H, m, シクロプロピル基 (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ), 1.71 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 2.88~3.03 (1H, m, シクロプロピル基 CH), 5.45~5.61 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.60 (1H, s, C=CH), 7.13~7.56 (4H, m, ベンゼン環)
16	化合物16	—	ブロードな吸収あり	1550	1.60 (3H, d, CH-CH <sub>3</sub> ), 3.38 (3H, s, OCH <sub>3</sub> ), 4.03 (2H, s, COCH <sub>2</sub> -), 5.40~5.56 (1H, m, CH-CH <sub>3</sub> ), 6.54 (1H, s, C=CH), 7.06~7.46 (4H, m, ベンゼン環)

6 5

\*1 臭化カリウム錠剤法による。

\*2 ソルベント: 製造例 1~4, 14~16は CDCl<sub>3</sub>, 製造例 5~13はアセトン-d<sub>6</sub>  
内部標準: テトラメチルシラン

## 実施例 1 ~ 16

## (1) 除草剤の調製

担体としてタルク（商品名：ジークライト）97重量部、界面活性剤としてアルキルアリアルスルホン酸塩（商品名：ネオベレックス，花王アトラス（株）製）1.5重量部およびノニオン型とアニオン型の界面活性剤（商品名：ソルボール 800A，東邦化学工業（株）製）1.5重量部を均一に粉碎混合して、水和剤用担体を得た。

この水和剤用担体90重量部と上記製造例 1 ~ 16で得られたトリアジン誘導体10重量部を均一に粉碎混合して除草剤を得た。

## (2) 生物試験（湛水土壌処理試験）

1/15500 アールの磁製ポットに水田土壌をつめ、表層にノビエ，タマガヤツリ，広葉雑草（キカシグサ，コナギ），ホタルイの種子を均一に播種して、さらにミズガヤツリ，ウリカワの塊茎を移植して、2葉期の水稻を移植した。

その後、雑草の発芽時に、上記(1)で得た除草剤の希釈液を所定量水面に均一滴下して処理した後、ポットを温室内に放置して適時撒水した。

薬液処理の20日後の除草効果および稲作薬害を調査した結果を第5表に示す。なお薬量は10アールあたりの有効成分量で示した。また水稻薬害，除草効果は、各々風乾重を測定し、以下のように表示した。

薬害の程度	水稻薬害（対無処理区比）
-------	--------------

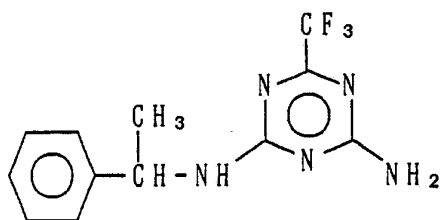
0	100 %
1	95 ~ 99 %
2	90 ~ 94 %
3	80 ~ 89 %
4	60 ~ 79 %
5	50 ~ 69 %

除草効果の程度	除草効果（対無処理区比）
---------	--------------

0	100 %
1	61 ~ 99 %
2	21 ~ 60 %
3	11 ~ 20 %
4	1 ~ 10 %
5	0 %

## 比較例

実施例 1 において、製造例 1 で製造したトリアジン誘導体の代わりに、下記の式で表わされる 2-アミノ-4-( $\alpha$ -メチルベンジルアミノ)-6-トリフルオロメチル-s-トリアジン（米国特許第 3816419 号明細書）を用いたこと以外は、実施例 1 と同様の操作を行なった。結果を第 5 表に示す。



第 5 表

番号	使用した化合物	薬量 (g/107-ll)	除 草 効 果						水 稲 害 薬
			ノビエ	ミズガヤツリ	ホタルイ	タマガヤツリ	広葉雑草	ウリカワ	
実施例 1	製造例 1 のもの	50	5	5	5	5	5	5	0
		25	5	5	5	5	5	4	0
" 2	製造例 2 のもの	100	5	5	5	5	5	5	0
		50	5	5	5	5	5	4	0
" 3	製造例 3 のもの	25	5	5	5	5	5	5	0
		100	5	5	5	5	5	4	0
" 4	製造例 4 のもの	50	5	5	4	5	5	5	0
		25	5	5	5	5	5	4	0
" 5	製造例 5 のもの	50	5	5	5	5	5	5	0
		25	5	5	5	5	5	5	0
" 6	製造例 6 のもの	100	5	5	5	5	5	5	0
		50	5	5	5	5	5	5	0
" 6	製造例 6 のもの	25	5	5	5	5	5	5	0

第 5 表 (続き)

番号	使用した化合物	薬量 (g/107-ll)	除 草				効 果			水 稲 薬 害
			ノビエ	ミズガヤツリ	ホタルイ	タマガヤツリ	広葉雑草	ウリカワ		
実施例 7	製造例 7 のもの	100 50 25	5 5 5	5 5 5	5 5 4	5 5 5	5 5 5	5 4 4	0 0 0	
” 8	製造例 8 のもの	100 50 25	5 5 5	5 5 5	5 5 4	5 5 5	5 5 5	5 4 4	0 0 0	
” 9	製造例 9 のもの	100 50 25	5 5 5	5 5 5	5 5 5	5 5 5	5 5 5	5 5 5	0 0 0	
” 10	製造例 10 のもの	100 50 25	5 5 5	5 4 4	5 5 5	5 5 5	5 5 5	5 5 4	0 0 0	
” 11	製造例 11 のもの	100 50 25	5 5 5	5 4 4	5 5 4	5 5 5	5 5 5	5 4 4	0 0 0	
” 12	製造例 12 のもの	100 50 25	5 5 5	5 5 5	5 4 4	5 5 5	5 5 5	5 5 5	0 0 0	

第 5 表 (続き)

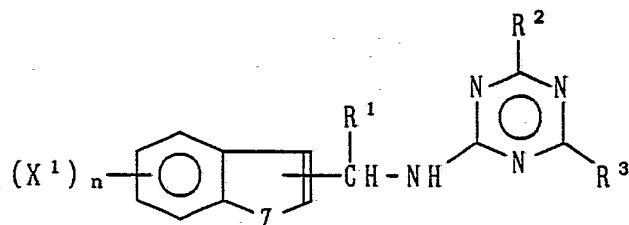
番号	使用した化合物	薬量 (g/107-ll)	除 草 効 果						水 稲 薬 害
			ノビエ	ミズガヤツリ	ホタルイ	タマガヤツリ	広葉雑草	ウリカワ	
実施例13		100	5	5	5	5	5	5	0
”	製造例13のもの	50	5	5	5	5	5	5	0
”	製造例14のもの	25	5	5	5	5	5	5	0
”	製造例15のもの	100	5	5	5	5	5	5	0
”	製造例16のもの	50	5	5	5	5	5	5	0
”	製造例16のもの	25	5	5	5	5	5	5	0
比較例	—	100	5	1	2	5	5	5	5
		50	4	0	0	5	5	0	3
		25	1	0	0	2	5	0	1

産業上の利用可能性

本発明の新規なトリアジン誘導体は、開示した方法によって効率よく製造することができ、このトリアジン誘導体は水稲用除草剤として有用であり、既知の除草剤よりも薬効が大きく、しかも水稲に対する薬害が小さい。その上、殺草スペクトル幅が大きく、一年生雑草から多年生雑草にわたる種々の雑草に対して優れた除草効果を発揮する。

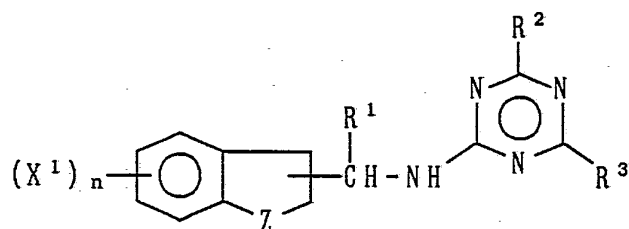
## 請 求 の 範 囲

## 1. 一般式



あるいは

一般式

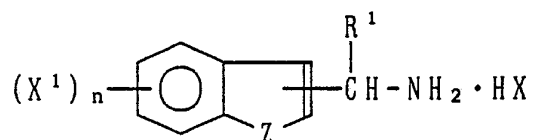


〔式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^3$ は $NH_2$ ， $NHCOR^4$ あるいは $N=CHR^5$ （ここで、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基であ

り、 $R^5$ は炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基あるいは炭素数1～4のアルキルアミノ基である。)を示す。]

で表わされるトリアジン誘導体。

## 2. 一般式



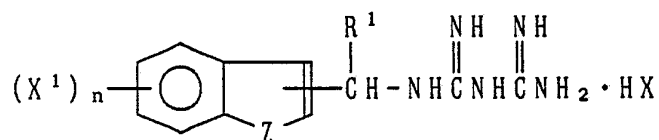
[式中、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $X$ はハロゲン原子を示す。]

で表わされるベンゾフラニルアルキルアミンの塩と、

式  $H_2N-\overset{NH}{\parallel}C-NH-CN$  で表わされるシアノグアニジン

を反応させて

## 一般式

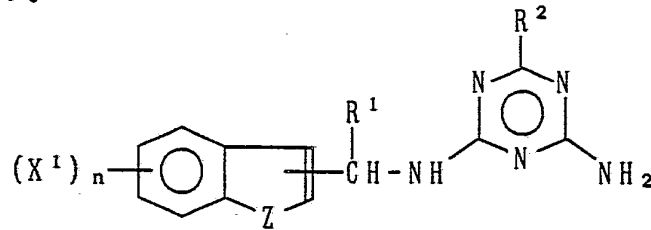


[式中、 $X^1$ 、 $n$ 、 $Z$ 、 $R^1$ 、 $X$ は前記と同じ。]

で表わされるベンゾフラニルビグアニドの塩を製造

し、次いで該ベンゾフラニルビグアニドの塩に一般式  $R^2COOR^6$  [式中、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^6$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアルキルエステルを反応させることを特徴とする

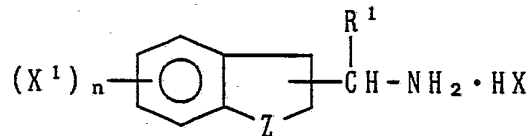
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法。

3. 一般式

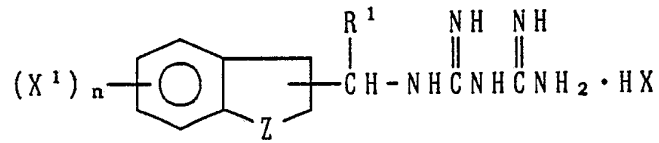


[式中、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $X$ はハロゲン原子を示す。]

で表わされるジヒドロベンゾフラニルアルキルアミンの塩と、

式  $\text{H}_2\text{N}-\overset{\text{NH}}{\parallel}{\text{C}}-\text{NH}-\text{CN}$  で表わされるシアノグアニジンを反応させて

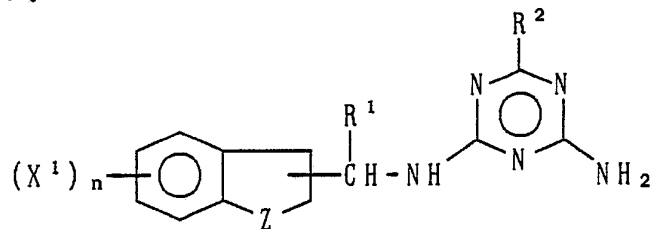
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $X$  は前記と同じ。]

で表わされるジヒドロベンゾフランニルビグアニドの塩を製造し、次いで該ベンゾフランニルビグアニドの塩に一般式  $\text{R}^2\text{COOR}^6$  [式中、 $\text{R}^2$  は炭素数 1 ~ 4 のハロゲン置換アルキル基を示し、 $\text{R}^6$  は炭素数 1 ~ 4 のアルキル基を示す。] で表わされるアルキルエステルを反応させることを特徴とする

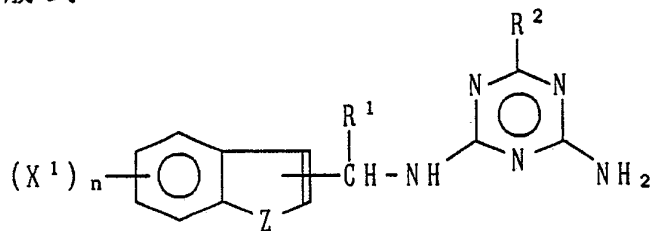
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$  は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法。

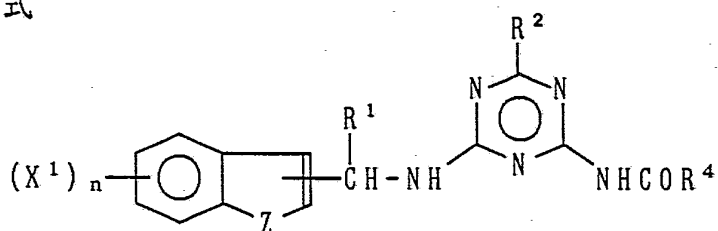
4. 一般式



[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^4COOH$  [式中、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基を示す。] で表わされるカルボン酸， $(R^4CO)_2O$  [式中、 $R^4$ は前記と同じ。] で表わされるカルボン酸無水物， $R^4COX$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $X$ はハロゲン原子を示す。] で表わされるカルボン酸ハロゲン化物あるいは  $R^4COOR^7$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $R^7$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるカルボン酸エステルを反応させることを特徴とする

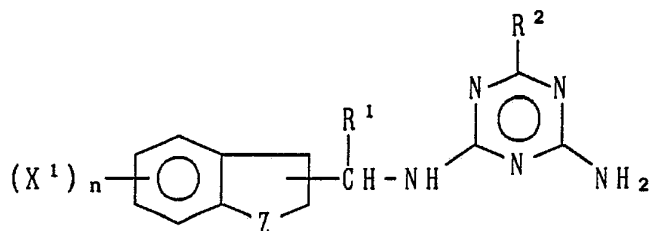
一般式



[式中、 $X^1$ 、 $n$ 、 $Z$ 、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^4$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法。

### 5. 一般式

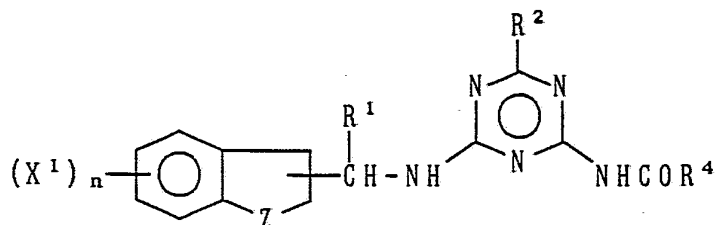


[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^4COOH$  [式中、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基を示す。] で表わされるカルボン酸， $(R^4CO)_2O$  [式中、 $R^4$ は前記と同じ。] で表わされるカルボン酸無水物， $R^4COX$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $X$ はハロゲン原子を示す。] で表わされるカルボン酸ハロゲン化物

あるいは  $R^4COOR^7$  [式中、 $R^4$ は前記と同じであり、 $R^7$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるカルボン酸エステルを反応させることを特徴とする

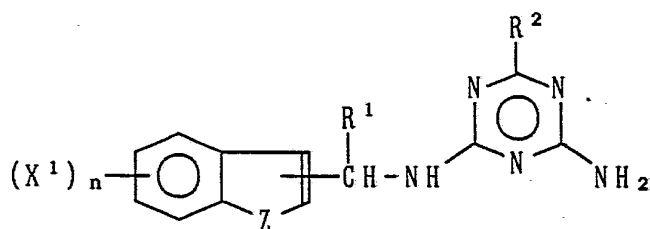
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^4$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法。

6. 一般式

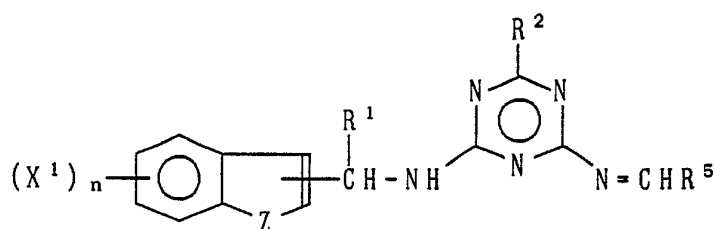


[式中、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^5CHO$  [式中、 $R^5$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアルデヒドあるいは  $R^5CH(OR^8)_2$

[式中、 $R^5$ は前記と同じであり、 $R^8$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアセタールを反応させることを特徴とする

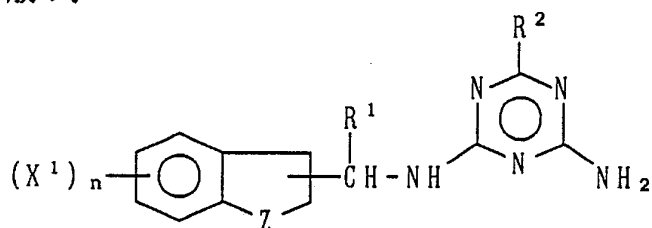
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ は前記と同じ。]

で表わされるトリアジン誘導体の製造方法。

7. 一般式



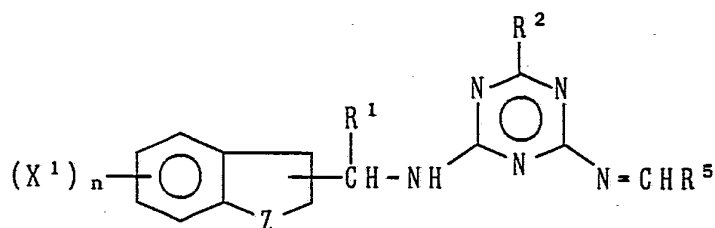
[式中、 $X^1$ は水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシ基、炭素数1～4のアルキルチオ基、ハロゲン原子、炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基、炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキ

ル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示す。]

で表わされるアミノ基含有トリアジン誘導体に、一般式  $R^5CHO$  [式中、 $R^5$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアルデヒドあるいは  $R^5CH(OR^8)_2$

[式中、 $R^5$ は前記と同じであり、 $R^8$ は炭素数1～4のアルキル基を示す。] で表わされるアセタールを反応させることを特徴とする

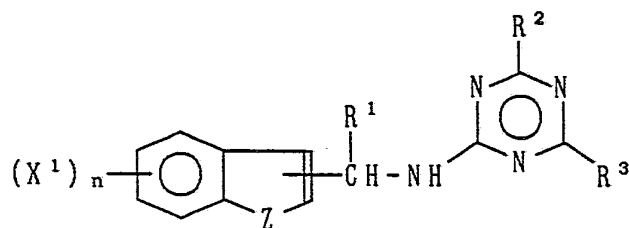
一般式



[式中、 $X^1$ ,  $n$ ,  $Z$ ,  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^5$ は前記と同じ。]

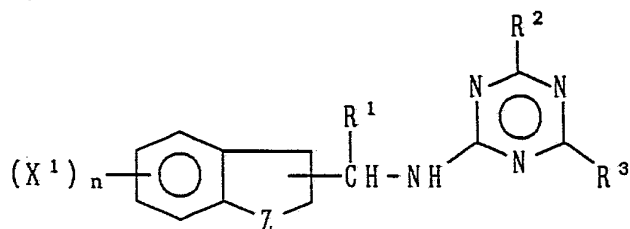
で表わされるトリアジン誘導体の製造方法。

8. 一般式



あるいは

一般式



[式中、 $X^1$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基，炭素数1～4のアルキルチオ基，ハロゲン原子，炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基，炭素数1～4のハロゲン置換アルコキシ基あるいは炭素数1～4のハロゲン置換アルキルチオ基を示し、 $n$ は1～4の整数を示し、 $Z$ は酸素原子あるいは硫黄原子を示し、 $R^1$ は炭素数1～4のアルキル基を示し、 $R^2$ は炭素数1～4のハロゲン置換アルキル基を示し、 $R^3$ は $NH_2$ ， $NHCOR^4$ あるいは $N=CHR^5$ （ここで、 $R^4$ は水素原子，炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4の置換アルキル基，炭素数3～6のシクロアルキル基あるいは炭素数2～5のアルケニル基であり、 $R^5$ は炭素数1～4のアルキル基，炭素数1～4のアルコキシ基あるいは炭素数1～4のアルキルアミノ基である。）を示す。]

で表わされるトリアジン誘導体を有効成分として含有する除草剤。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No **PCT/JP87/00710**

<b>I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> (if several classification symbols apply, indicate all) <sup>3</sup>		
According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC		
Int.Cl <sup>4</sup> C07D405/12, 409/12, A01N43/68		
<b>II. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum Documentation Searched <sup>4</sup>		
Classification System	Classification Symbols	
IPC	C07D405/12, 409/12, A01N43/68	
Documentation Searched other than Minimum Documentation to the Extent that such Documents are Included in the Fields Searched <sup>5</sup>		
<b>III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <sup>14</sup>		
Category <sup>6</sup>	Citation of Document, <sup>16</sup> with indication, where appropriate, of the relevant passages <sup>17</sup>	Relevant to Claim No. <sup>18</sup>
X	JP, A, 46-4398 (Esso Research and Engineering Company) 15 November 1971 (15. 11. 71) Claim (Family: none)	1, 8
<p><sup>*</sup> Special categories of cited documents: <sup>16</sup></p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"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)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>"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</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step</p> <p>"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</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>		
<b>IV. CERTIFICATION</b>		
Date of the Actual Completion of the International Search <sup>2</sup>	Date of Mailing of this International Search Report <sup>2</sup>	
December 9, 1987 (09.12.87)	December 21, 1987 (21.12.87)	
International Searching Authority <sup>1</sup>	Signature of Authorized Officer <sup>20</sup>	
Japanese Patent Office		

国際調査報告

国際出願番号PCT/JP 87/ 00710

I. 発明の属する分野の分類		
国際特許分類 (IPC) <b>Int. Cl.<sup>4</sup></b> <b>C07D405/12, 409/12, A01N43/68</b>		
II. 国際調査を行った分野		
調査を行った最小限資料		
分類体系	分類記号	
<b>IPC</b>	<b>C07D405/12, 409/12, A01N43/68</b>	
最小限資料以外の資料で調査を行ったもの		
III. 関連する技術に関する文献		
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	請求の範囲の番号
<b>X</b>	<b>JP, A, 46-4398 (エッソ、リサーチ、エンド、 エンジニアリング、コンパニー) 15. 11月. 1971 (15. 11. 71) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)</b>	<b>1, 8</b>
<p>※ 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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日の後に公表された文献</p> <p>「T」 国際出願日又は優先日の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                  「&amp;」 同一パテントファミリーの文献</p>		
IV. 認 証		
国際調査を完了した日 <b>09. 12. 87</b>	国際調査報告の発送日 <b>21.12.87</b>	
国際調査機関 <b>日本国特許庁 (ISA/JP)</b>	権限のある職員 <b>特許庁審査官 石田吉信</b>	<b>4C 6761</b>