

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4150379号
(P4150379)

(45) 発行日 平成20年9月17日 (2008. 9. 17)

(24) 登録日 平成20年7月4日 (2008. 7. 4)

(51) Int. Cl.

F I

C O 7 D 401/04 (2006. 01)
A O 1 N 43/56 (2006. 01)
A 6 1 K 31/4439 (2006. 01)
A 6 1 P 33/00 (2006. 01)

C O 7 D 401/04 C S P
 A O 1 N 43/56 Z
 A 6 1 K 31/4439
 A 6 1 P 33/00

請求項の数 12 (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願2005-33829 (P2005-33829)
 (22) 出願日 平成17年2月10日 (2005. 2. 10)
 (65) 公開番号 特開2006-131607 (P2006-131607A)
 (43) 公開日 平成18年5月25日 (2006. 5. 25)
 審査請求日 平成19年11月8日 (2007. 11. 8)
 (31) 優先権主張番号 特願2004-41295 (P2004-41295)
 (32) 優先日 平成16年2月18日 (2004. 2. 18)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)
 (31) 優先権主張番号 特願2004-133722 (P2004-133722)
 (32) 優先日 平成16年4月28日 (2004. 4. 28)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)
 (31) 優先権主張番号 特願2004-261507 (P2004-261507)
 (32) 優先日 平成16年9月8日 (2004. 9. 8)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000000354
 石原産業株式会社
 大阪府大阪市西区江戸堀一丁目3番15号
 (74) 代理人 100097582
 弁理士 水野 昭宣
 (72) 発明者 小柳 徹
 滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
 産業株式会社 中央研究所内
 (72) 発明者 森田 雅之
 滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
 産業株式会社 中央研究所内
 (72) 発明者 中元 健一
 滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原
 産業株式会社 中央研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アントラニルアミド系化合物、それらの製造方法及びそれらを含む有害生物防除剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

N - [2 - ブロモ - 4 - クロロ - 6 - [[- メチル - (シクロプロピルメチル) アミノ] カルボニル] - フェニル] - 3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド又はその塩。

【請求項 2】

N - [2 - ブロモ - 4 - クロロ - 6 - [[- メチル - (シクロプロピルメチル) アミノ] カルボニル] - フェニル] - 3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1 H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド又はその塩の製造方法であって、

(1) N - [- メチル - (シクロプロピルメチル)] 2 - アミノ - 3 - ブロモ - 5 - クロロベンズアミドと、 3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロピリジン - 2 - イル) - 1 H - 5 - ピラゾールカルボン酸クロリドとを反応させるか、

(2) 2 - [3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1 H - ピラゾール - 5 - イル] - 6 - クロロ - 8 - ブロモ - 4 H - 3 , 1 - ベンゾオキサジン - 4 - オンと、 - メチル - シクロプロピルメチルアミン塩酸塩とを反応させることを特徴とする方法。

【請求項 3】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する有害生物防除剤。

【請求項 4】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する農園芸用

有害生物防除剤。

【請求項 5】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する殺虫、殺ダニ又は殺線虫剤。

【請求項 6】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する動物寄生生物防除剤。

【請求項 7】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する動物外部寄生性生物の防除剤。

10

【請求項 8】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する寄生生物起因動物疾患の予防又は治療剤。

【請求項 9】

請求項 1 のアントラニルアミド系化合物又はその塩の有効量を施用して有害生物を防除する方法。

【請求項 10】

前記アントラニルアミド系化合物又はその塩と、他の農薬の有効成分を含有する請求項 3 に記載の有害生物防除剤。

【請求項 11】

20

他の農薬が殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤又は殺土壌害虫剤である請求項 10 に記載の有害生物防除剤。

【請求項 12】

他の農薬が殺菌剤である請求項 10 に記載の有害生物防除剤。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

WO 03 / 24222、WO 03 / 15518、WO 03 / 15519 及び WO 01 / 70671 には、それぞれ一定の化学構造を有するアントラニルアミド系化合物が開示されている。しかしながら、後記式 (I) 中の A に相当する置換基として C3 - 4 シクロアルキルで置換されたアルキルを有する化合物はどこにも記載されていない。

30

WO 04 / 67528 には、ベンゼン環の 4 位にシアノ基を有するアントラニルアミド系化合物が開示されている。一方、本発明の化合物は、後記式 (I) 中の R¹ の定義にシアノ基を含まず、両者の化学構造は異なる。

【0002】

【特許文献 1】国際公開公報 WO 03 / 24222

【特許文献 2】国際公開公報 WO 03 / 15518

【特許文献 3】国際公開公報 WO 03 / 15519

【特許文献 4】国際公開公報 WO 01 / 70671

40

【特許文献 5】国際公開公報 WO 04 / 67528

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

長年にわたり、多数の有害生物防除剤が使用されているが、効力が不十分、有害生物が抵抗性を獲得しその使用が制限される等、種々の課題を有するものが少なくない。従って、かかる欠点の少ない新規な有害生物防除剤、例えば、農園芸分野で問題となる各種有害生物や、動物に寄生する有害生物を防除できる有害生物防除剤の開発が望まれている。

【課題を解決するための手段】

【0004】

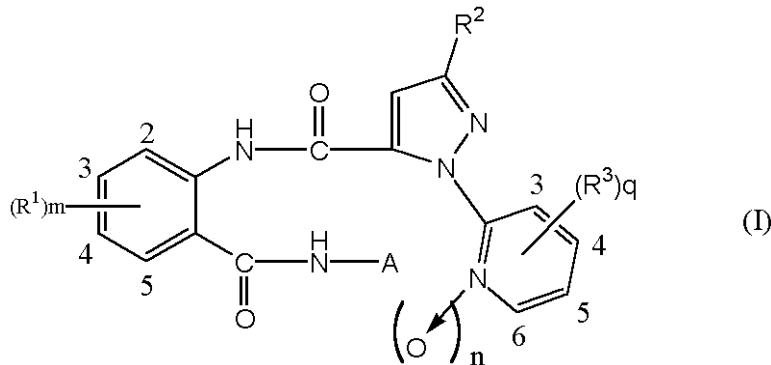
50

本発明者らは、より優れた有害生物防除剤を見出すべくアントラニルアミド系化合物につき種々検討した。その結果、新規なアントラニルアミド系化合物が、低薬量で有害生物に対して極めて高い防除効果を有することを見出し、本発明を完成した。

すなわち本発明は、式(1)：

【0005】

【化1】



10

【0006】

(式中、 R^1 はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、アルケニル、ハロアルケニル、アルキニル、ハロアルキニル、アルコキシ、ハロアルコキシ、アルキルカルボニル、ハロアルキルカルボニル、アルコキシカルボニル、ハロアルコキシカルボニル、置換されてもよいフェノキシカルボニル、ニトロ又はホルミルであり、 R^2 及び R^3 は各々ハロゲン、アルキル、ハロアルキル、アルコキシ、ハロアルコキシ又はシアノであり、 A は Y で置換されたアルキルであり、 Y はハロゲン、アルキル及びハロアルキルよりなる群から選ばれる少なくとも1つの置換基で置換されてもよいC3 - 4シクロアルキルであり、 m は0 ~ 4であり、 n は0又は1であり、 q は0 ~ 4であり、但し R^1 がベンゼン環2位に置換したフッ素原子、塩素原子、臭素原子又はメチルであり、且つ別の R^1 がベンゼン環4位に置換したハロゲンであるとき、その4位のハロゲンはフッ素原子又は塩素原子である)で表されるアントラニルアミド系化合物又はその塩、それらの製造方法並びにそれらを含む有害生物防除剤などに関する。

20

【発明の効果】

30

【0007】

前記式(1)の新規アントラニルアミド系化合物を有効成分とする有害生物防除剤は、低薬量で有害生物に対して極めて高い防除効果を有する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0008】

R^1 中の置換されてもよいフェノキシカルボニルの置換基としては、例えばハロゲン、アルキル、ハロアルキル、アルコキシ、ハロアルコキシ、アルキルチオ、ハロアルキルチオ、アルキルスルフィニル、ハロアルキルスルフィニル、アルキルスルホニル、ハロアルキルスルホニル、シアノ、ニトロなどが挙げられる。これら置換基の置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、各置換基は同一でも相異なってもよい。また、各置換基の置換位置はいずれの位置でもよい。

40

A 中の置換基 Y の置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、各置換基 Y は同一でも相異なってもよい。また、置換基 Y の置換位置はいずれの位置でもよい。 A 中の置換基 Y の置換数は、望ましくは1である。

Y 中のC3 - 4シクロアルキルの置換基であるハロゲン、アルキル又はハロアルキルの置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、各置換基は同一でも相異なってもよい。また、各置換基の置換位置はいずれの位置でもよい。 Y 中のC3 - 4シクロアルキルは、望ましくは無置換であるか、或は前述の置換基を有する場合、その置換数は1 ~ 5が望ましい。

R^1 、 R^2 、 R^3 又は Y 中のハロゲン又は置換基としてのハロゲンとしては、フッ素、

50

塩素、臭素又はヨウ素の各原子が挙げられる。置換基としてのハロゲンの数は1又は2以上であってよく、2以上の場合、各ハロゲンは同一でも相異なってもよい。また、ハロゲンの置換位置はいずれの位置でもよい。

【0009】

R^1 、 R^2 、 R^3 、A又はY中のアルキル又はアルキル部分は、直鎖又は分枝状のいずれでもよく、その具体例としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、ターシャリーブチル、ペンチル、ヘキシルのようなC1-6のものなどが挙げられる。

R^1 中のアルケニル又はアルケニル部分は、直鎖又は分枝状のいずれでもよく、その具体例としては、ビニル、1-プロペニル、アリル、イソプロペニル、1-ブテニル、1,3-ブタジエニル、1-ヘキセニルのようなC2-6のものなどが挙げられる。

10

R^1 中のアルキニル又はアルキニル部分は、直鎖又は分枝状のいずれでもよく、その具体例としては、エチニル、2-ブチニル、2-ペンチニル、3-ヘキシニルのようなC2-6のものなどが挙げられる。

Y中のC3-4シクロアルキル又はシクロアルキル部分の具体例としては、シクロプロピル又はシクロブチルが挙げられ、中でもシクロプロピルが望ましい。

【0010】

前記式(1)のアントラニルアミド系化合物の塩としては、農業上許容されるものであればあらゆるものが含まれるが、例えば、ナトリウム塩、カリウム塩のようなアルカリ金属塩；マグネシウム塩、カルシウム塩のようなアルカリ土類金属塩；ジメチルアンモニウム塩、トリエチルアンモニウム塩のようなアンモニウム塩；塩酸塩、過塩素酸塩、硫酸塩、硝酸塩のような無機酸塩；酢酸塩、メタンスルホン酸塩のような有機酸塩などが挙げられる。

20

【0011】

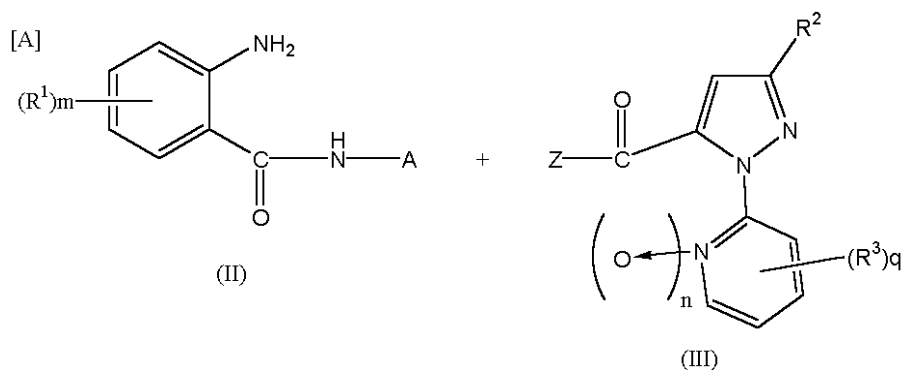
前記式(1)のアントラニルアミド系化合物には、光学異性体、幾何異性体のような異性体が存在する場合があるが、本発明には各異性体及び異性体混合物の双方が含まれる。尚、本発明には、当該技術分野における技術常識の範囲内において、前記したもの以外の各種異性体も含まれる。また、異性体の種類によっては、前記式(1)とは異なる化学構造となる場合があるが、当業者であればそれらが異性体の関係にあることが十分認識できる為、本発明の範囲内であることは明らかである。

前記式(1)のアントラニルアミド系化合物又はその塩（以下本発明化合物と略す）は、以下の反応〔A〕～〔B〕と、通常の塩の製造方法に従って製造することができる。

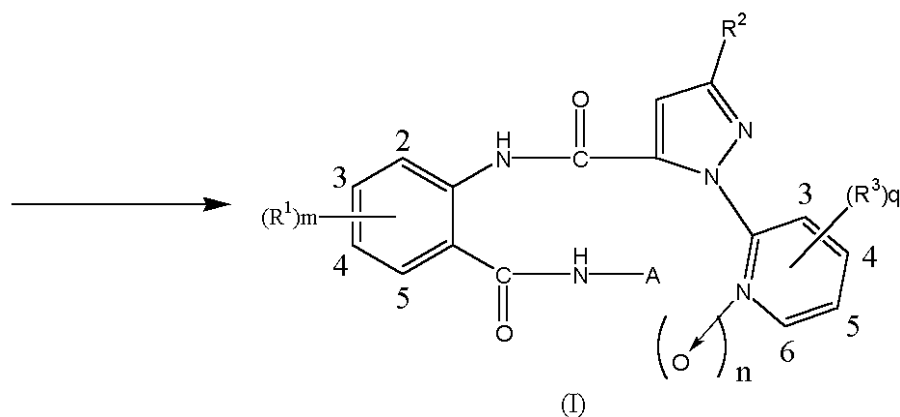
30

【0012】

【化 2】



10



20

【 0 0 1 3 】

R^1 、 R^2 、 R^3 、 A 、 m 、 n 及び q は前述の通りであり、 Z は塩素原子、 $-OH$ 又は C_{1-4} アルコキシである。

反応〔A〕は、 Z が塩素原子である場合、通常塩基の存在下で行うことができる。

塩基としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムのようなアルカリ金属水酸化物；炭酸ナトリウム、炭酸カリウムのようなアルカリ金属炭酸塩；水素化ナトリウム、水素化カリウムのようなアルカリ金属水素化物；トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリイソプロピルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、ピリジン、4 - ジメチルアミノピリジン、2, 6 - ジメチルピリジン、4 - ピロリジノピリジン、 N - メチルモルホリン、 N, N - ジメチルアニリン、 N, N - ジエチルアニリン、 N - エチル - N - メチルアニリン、1, 8 - ジアザビシクロ〔5.4.0〕 - 7 - ウンデセン、1, 4 - ジアザビシクロ〔2.2.2〕オクタンのような第三級アミン類などから 1 種又は 2 種以上を適宜選択することができる。塩基は、式 (II) の化合物に対して 1 ~ 5 倍モル、望ましくは 1 ~ 2.5 倍モル使用することができる。

30

【 0 0 1 4 】

反応〔A〕は、 Z が塩素原子である場合、所望により溶媒の存在下で行うことができる。溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類；アセトニトリル、プロピオニトリル、 N, N - ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリクトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、 N - メチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピルのようなエステル類；アセトン、ジエチルケトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンのようなケトン類などから 1 種又は 2 種以上を適宜選択することができる。

40

【 0 0 1 5 】

50

反応〔A〕は、Zが塩素原子である場合、通常 - 20 ~ + 60 、望ましくは 0 ~ 30 で行うことができ、その反応時間は、通常 1 ~ 24 時間程度、望ましくは 2 ~ 12 時間程度とすることができる。

【0016】

反応〔A〕は、Zが - OHである場合、通常、脱水縮合剤及び溶媒の存在下で行うことができる。

脱水縮合剤としては、N, N' - ジシクロヘキシルカルボジイミド、1, 3 - ジイソプロピルカルボジイミド、1 - エチル - 3 - (3 - ジメチルアミノプロピル) カルボジイミド塩酸塩のようなカルボジイミド類；その他に、1, 1' - カルボニル - ビス - 1 H - イミダゾール、リン酸ジシクロリドフェニルエステル、ジエチルホスホロシアニダート、1, 3, 5 - トリアザ - 2, 4, 6 - トリホスホリン - 2, 2, 4, 4, 6, 6 - ヘキサクロリド、シアヌリックスクロリド、クロロギ酸イソブチル、クロロスルホニルイソシアネート、トリフルオロ酢酸無水物などが挙げられる。

【0017】

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類；アセトニトリル、プロピオニトリル、N, N - ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリクトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、N - メチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒；酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピルのようなエステル類；アセトン、ジエチルケトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンのようなケトン類；ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサンのような脂肪族炭化水素類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

【0018】

反応〔A〕は、Zが - OHである場合、通常 - 20 ~ + 60 、望ましくは 0 ~ 30 で行うことができ、その反応時間は、通常 0.5 ~ 24 時間程度、望ましくは 1 ~ 12 時間程度とすることができる。

【0019】

反応〔A〕は、ZがC₁ - 4 アルコキシである場合、通常、塩基及び溶媒の存在下で行うことができる。

塩基としては、水素化ナトリウム、水素化カリウムのようなアルカリ金属水素化物；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム第3級ブトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド；トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリエチルプロピルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、ピリジン、4 - ジメチルアミノピリジン、2, 6 - ジメチルピリジン、4 - ピロリジノピリジン、N - メチルモルホリン、N, N - ジメチルアニリン、N, N - ジエチルアニリン、N - エチル - N - メチルアニリン、1, 8 - ジアザビシクロ〔5.4.0〕 - 7 - ウンデセン、1, 4 - ジアザビシクロ〔2.2.2〕オクタンのような第3級アミン類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。塩基は、式(II)の化合物に対して1 ~ 5 倍モル、望ましくは 1 ~ 2.5 倍モル使用することができる。

【0020】

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類；アセトニトリル、プロピオニトリル、N, N - ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリクトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、N - メチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒；メタノール、エタノール、プロパノール、ノルマルブタノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類などから1種又は2種

10

20

30

40

50

以上を適宜選択することができる。

【 0 0 2 1 】

反応〔 A 〕は、Z が C_{1-4} アルコキシである場合、通常 0 ~ 120 、望ましくは 20 ~ 80 で行うことができ、その反応時間は、通常 0.5 ~ 24 時間程度、望ましくは 1 ~ 12 時間程度とすることができる。

【 0 0 2 2 】

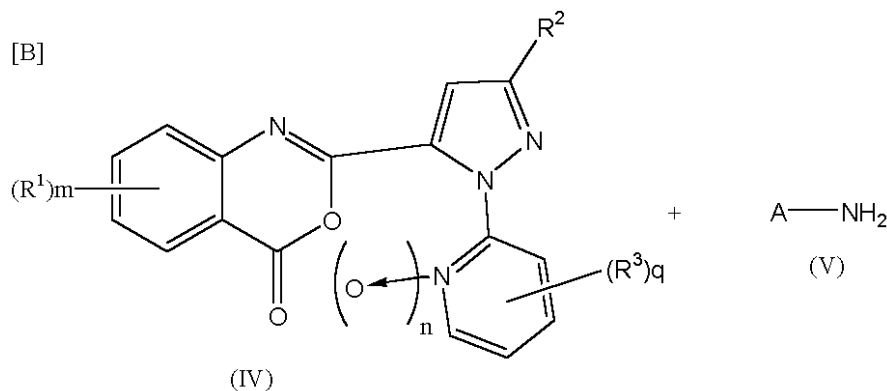
前記式 (II) 又は式 (III) の化合物は、それぞれ公知化合物であるか、或は公知資料に準じて製造することができる。例えば、式 (II) の化合物は、Synthesis、1980年、505 頁に記載された方法又はそれに準じて製造することができ、式 (III) の化合物は、WO 03 / 24222 中のスキーム 9 ~ 22 に記載された方法又はそれに準じて製造することが

10

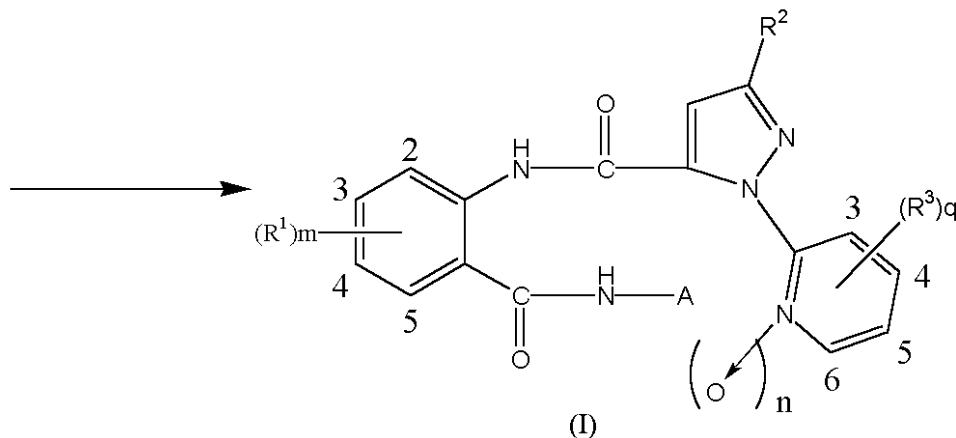
【 0 0 2 3 】

【 化 3 】

[B]



20



30

【 0 0 2 4 】

R^1 、 R^2 、 R^3 、A、m、n 及び q は前述の通りである。

反応〔 B 〕は、通常、溶媒の存在下で行うことができる。

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類；アセトニトリル、プロピオニトリル、N,N - ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリクトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、N - メチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒などから 1 種又は 2 種以上を適宜選択することが

40

【 0 0 2 5 】

反応〔 B 〕は、通常 0 ~ 120 、望ましくは 20 ~ 80 で行うことができ、その反応時間は、通常 0.5 ~ 24 時間程度、望ましくは 1 ~ 12 時間程度とすることができる

50

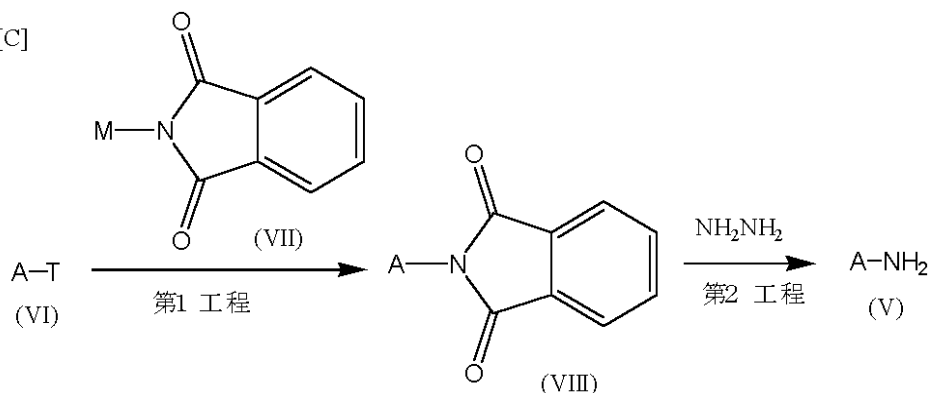
。

前記式(IV)の化合物は、公知化合物であるか、或は公知資料に準じて製造することができる。例えば、式(IV)の化合物は、Org. Prep. Proceed. Int.、1993年、25巻、585頁に記載された方法、W O 0 3 / 2 4 2 2 2 中のスキーム 8 ~ 1 0 に記載された方法又はそれらに準じて製造することができる。

前記式(V)の化合物には新規化合物が含まれる。当該化合物はGabriel法にて製造可能であるが、例えば以下の反応〔C〕に従って製造することができる。

【 0 0 2 6 】

〔C〕



10

【 0 0 2 7 】

Aは前述の通りであり、Tはハロゲン、 $-\text{OSO}_2\text{G}$ (Gはスルホン酸エステル残基) 又は $-\text{OH}$ であり、Tがハロゲン又は $-\text{OSO}_2\text{G}$ のとき、Mはナトリウム又はカリウムであり、Tが $-\text{OH}$ のとき、Mは水素原子である。前記スルホン酸エステル残基としては、例えばメチル、エチルのような C_{1-6} のアルキル； C_{1-6} のアルキルで置換されてもよいフェニルなどが挙げられる。

20

【 0 0 2 8 】

反応〔C〕の第1工程は、Tがハロゲン又は $-\text{OSO}_2\text{G}$ であり、且つMがナトリウム又はカリウムである場合、通常溶媒の存在下で行うことができる。

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類；アセトニトリル、プロピオニトリル、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリクトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒；メタノール、エタノール、プロパノール、ノルマルブタノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

30

【 0 0 2 9 】

反応〔C〕の第1工程は、Tがハロゲン又は $-\text{OSO}_2\text{G}$ であり、且つMがナトリウム又はカリウムである場合、通常 $0 \sim 150^\circ\text{C}$ 、望ましくは $30 \sim 110^\circ\text{C}$ で行うことができ、その反応時間は、通常 $0.5 \sim 24$ 時間程度、望ましくは $1 \sim 12$ 時間程度とすることができる。

40

【 0 0 3 0 】

反応〔C〕の第1工程は、Tが $-\text{OH}$ であり、且つMが水素原子である場合、通常、光延法に従って行うことができるが、例えば、溶媒の存在下、ジアルキルアゾジカルボキシレート及びトリフェニルホスフィンを用いて行うことができる。前記ジアルキルアゾジカルボキシレートとトリフェニルホスフィンは、通常、式(VI)の化合物に対し、それぞれ等モル程度用いることができる。前記ジアルキルアゾジカルボキシレートとしては、例えばジエチルアゾジカルボキシレート、ジイソプロピルアゾジカルボキシレートなどが挙げられる。

【 0 0 3 1 】

50

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類などから１種又は２種以上を適宜選択することができる。

【 0 0 3 2 】

反応〔Ｃ〕の第１工程は、Ｔが－ＯＨであり、且つＭが水素原子である場合、通常０～８０、望ましくは２０～６０で行うことができ、その反応時間は、通常０．５～２４時間程度、望ましくは１～１６時間程度とすることができる。

10

【 0 0 3 3 】

反応〔Ｃ〕の第２工程は、通常、溶媒の存在下、式（ⅥⅡ）の化合物を、ヒドラジンを用いて分解することにより行うことができる。前記ヒドラジンは、通常、式（ⅥⅡ）の化合物に対し、等モル程度用いることができる。

【 0 0 3 4 】

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類；ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類；メタノール、エタノール、プロパノール、ノルマルブタノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類などから１種又は２種以上を適宜選択することができる。

20

【 0 0 3 5 】

反応〔Ｃ〕の第２工程は、通常０～１４０、望ましくは３０～１００で行うことができ、その反応時間は、通常０．５～２４時間程度、望ましくは２～１２時間程度とすることができる。

【 0 0 3 6 】

本発明化合物を含有する有害生物防除剤の望ましい態様について以下に記述する。本発明化合物を含有する有害生物防除剤は、例えば農園芸分野で問題となる各種有害生物の防除剤、即ち農園芸用有害生物防除剤や、動物に寄生する有害生物の防除剤、即ち動物寄生生物防除剤として特に有用である。

【 0 0 3 7 】

30

農園芸用有害生物防除剤としては、例えば、殺虫、殺ダニ、殺線虫、殺土壌害虫剤として有用であるが、具体的には、ナミハダニ、ニセナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハダニ、リンゴハダニ、チャノホコリダニ、ミカンサビダニ、ネダニなどのような植物寄生性ダニ類；コナガ、ヨトウムシ、ハスモンヨトウ、コドリガ、ボールワーム、タバコバッドワーム、マイマイガ、コブノメイガ、チャノコカクモンハマキ、リンゴコカクモンハマキ、モモシンクイガ、ナシヒメシンクイ、タマナヤガ、カブラヤガ、コロラドハムシ、ウリハムシ、ボールウィービル、アブラムシ類、ウンカ類、ヨコバイ類、カイガラムシ類、カメムシ類、コナジラミ類、アザミウマ類、バッタ類、ハナバエ類、コガネムシ類、アリ類、ハモグリバエ類などのような農業害虫類；ネコブセンチュウ類、シストセンチュウ類、ネグサレセンチュウ類、イネシンガレセンチュウ、イチゴメセンチュウ、マツノザイセンチュウなどのような植物寄生性線虫類；ナメクジ、マイマイなどのような腹足類；ダンゴムシ、ワラジムシなどのような等脚類などのような土壌害虫類；イエダニ、イエバエ、アカイエカ、ゴキブリ類などのような衛生害虫類；バクガ、アズキゾウムシ、コクヌストモドキ、ゴミムシダマシ類などのような貯穀害虫類；イガ、ヒメカツオブシムシ、シロアリ類などのような衣類、家屋害虫類；ケナガコナダニ、コナヒョウダニ、ミナミツメダニなどのような屋内塵性ダニ類；などの防除に有効である。なかでも、本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、植物寄生性ダニ類、農業害虫類、植物寄生性線虫類などの防除に特に有効である。また、本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、有機リン剤、カーバメート剤、合成ピレスロイド剤などの薬剤に対する各種抵抗性害虫の防除にも有効である。さらに本発明化合物は、優れた浸透移行性を有していることから、本発

40

50

明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤を土壤に処理することによって土壤有害昆虫類、ダニ類、線虫類、腹脚類、等脚類の防除と同時に茎葉部の害虫類をも防除することができる。

【 0 0 3 8 】

本発明化合物を含有する有害生物防除剤の別の望ましい態様としては、前記した植物寄生性ダニ類、農業害虫類、植物寄生性線虫類、腹足類、土壤害虫類などを総合的に防除する農園芸用有害生物防除剤が挙げられる。

【 0 0 3 9 】

本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、通常該化合物と各種農業上の補助剤とを混合して粉剤、粒剤、顆粒水和剤、水和剤、水性懸濁剤、油性懸濁剤、水溶剤、乳剤、液剤、ペースト剤、エアゾール剤、微量散布剤などの種々の形態に製剤して使用されるが、本発明の目的に適合するかぎり、通常の当該分野で用いられているあらゆる製剤形態にすることができる。製剤に使用する補助剤としては、珪藻土、消石灰、炭酸カルシウム、タルク、ホワイトカーボン、カオリン、ベントナイト、カオリナイト及びセリサイトの混合物、クレー、炭酸ナトリウム、重曹、芒硝、ゼオライト、澱粉などの固型担体；水、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、ジオキサン、アセトン、イソホロン、メチルイソブチルケトン、クロロベンゼン、シクロヘキサン、ジメチルスルホキシド、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン、アルコールなどの溶剤；脂肪酸塩、安息香酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリカルボン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキル硫酸塩、アルキルアリール硫酸塩、アルキルジグリコールエーテル硫酸塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、アリールスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、ポリスチレンスルホン酸塩、アルキルリン酸エステル塩、アルキルアリールリン酸塩、スチリルアリールリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールリン酸エステル塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物の塩のような陰イオン系の界面活性剤や展着剤；ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、脂肪酸ポリグリセライド、脂肪酸アルコールポリグリコールエーテル、アセチレングリコール、アセチレンアルコール、オキシアルキレンブロックポリマー、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルアリールエーテル、ポリオキシエチレングリコールアルキルエーテル、ポリエチレングリコール、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシプロピレン脂肪酸エステルのような非イオン系の界面活性剤や展着剤；オリーブ油、カポック油、ひまし油、シュロ油、椿油、ヤシ油、ごま油、トウモロコシ油、米ぬか油、落花生油、綿実油、大豆油、菜種油、亜麻仁油、きり油、液状パラフィンなどの植物油や鉱物油などが挙げられる。これら補助剤の各成分は、本発明の目的から逸脱しないかぎり、1種又は2種以上を適宜選択して使用することができる。また、前記した補助剤以外にも当該分野で知られたものの中から適宜選んで使用することもでき、例えば、増量剤、増粘剤、沈降防止剤、凍結防止剤、分散安定剤、薬害軽減剤、防黴剤など通常使用される各種補助剤も使用することができる。本発明化合物と各種補助剤との配合割合は0.001：99.999～95：5、望ましくは0.005：99.995～90：10である。これら製剤の実際の使用に際しては、そのまま使用するか、または水等の希釈剤で所定濃度に希釈し、必要に応じて各種展着剤（界面活性剤、植物油、鉱物油など）を添加して使用することができる。

【 0 0 4 0 】

本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤の施用は、気象条件、製剤形態、施用時期、施用場所、病害虫の種類や発生状況などの相違により一概に規定できないが、一般に0.05～800000ppm、望ましくは0.5～500000ppmの有効成分濃度で行ない、その単位面積

10

20

30

40

50

あたりの施用量は、1ヘクタール当り本発明化合物が0.05～50000g、望ましくは1～30000gである。また、本発明化合物を含有する有害生物防除剤の別の望ましい態様である農園芸用の有害生物防除剤の施用は、前記有害生物防除剤の施用に準じて行われる。本発明には、このような施用方法による有害生物の防除方法、特に植物寄生性ダニ類、農業害虫類、植物寄生性線虫類の防除方法も含まれる。

【0041】

本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤の種々の製剤、またはその希釈物の施用は、通常一般に行なわれている施用方法すなわち、散布（例えば散布、噴霧、ミスティング、アトマイジング、散粒、水面施用等）、土壌施用（混入、灌注等）、表面施用（塗布、粉衣、被覆等）、浸漬毒餌等により行うことができる。また、家畜に対して前記有効成分を飼料に混合して与え、その排泄物での有害虫、特に有害昆虫の発生及び生育を阻害することも可能である。またいわゆる超高濃度少量散布法(ultra low volume)により施用することもできる。この方法においては、活性成分を100%含有することが可能である。

10

【0042】

また、本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、他の農薬、肥料、薬害軽減剤などと混用或は併用することができ、この場合に一層優れた効果、作用性を示すことがある。他の農薬としては、除草剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺土壌害虫剤、殺菌剤、抗ウイルス剤、誘引剤、抗生物質、植物ホルモン、植物成長調整剤などが挙げられる。特に、本発明化合物と他の農薬の有効成分化合物の1種又は2種以上とを混用或は併用した混合有害生物防除組成物は、適用範囲、薬剤処理の時期、防除活性等を好ましい方向へ改良することが可能である。尚、本発明化合物と他の農薬の有効成分化合物は各々別々に製剤したものを散布時に混合して使用しても、両者を一緒に製剤して使用してもよい。本発明には、このような混合有害生物防除組成物も含まれる。

20

【0043】

本発明化合物と他の農薬の有効成分化合物との混合比は、気象条件、製剤形態、施用時期、施用場所、病虫害の種類や発生状況などの相違により一概に規定できないが、一般に1:300～300:1、望ましくは1:100～100:1である。また、施用適量は1ヘクタール当りの総有効成分化合物量として0.1～50000g、望ましくは1～30000gである。本発明には、このような混合有害生物防除組成物の施用方法による有害生物の防除方法も含まれる。

【0044】

30

上記他の農薬中の、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤或いは殺土壌害虫剤、すなわち害虫防除剤の有効成分化合物（一般名；一部申請中を含む）としては、例えばプロフェノホス(Profenofos)、ジクロルボス(Dichlorvos)、フェナミホス(Fenamiphos)、フェニトロチオン(Fenitrothion)、E P N、ダイアジノン(Diazinon)、クロルピリホスメチル(Chlorpyrifos-methyl)、アセフェート(Acephate)、プロチオホス(Prothiofos)、ホスチアゼート(Fosthiazate)、ホスホカルブ(Phosphocarb)、カズサホス(Cadusafos)、ジスルホトン(Disulfoton)、クロルピリホス(Chlorpyrifos)、デメトン-S-メチル(Demeton-S-methyl)、ジメトエート(Dimethoate)、メタミドホス(Methamidophos)、パラチオン(Parathion)のような有機リン酸エステル系化合物；

カルバリル(Carbaryl)、プロボキスル(Propoxur)、アルジカルブ(Aldicarb)、カルボフラン(Carbofuran)、チオジカルブ(Thiodicarb)、メソミル(Methomyl)、オキサミル(Oxamyl)、エチオフェンカルブ(Ethiofencarb)、ピリミカルブ(Pirimicarb)、フェノブカルブ(Fenobucarb)、カルボスルファン(Carbosulfan)、ベンフラカルブ(Benfuracarb)のようなカーバメート系化合物；

40

カルタップ(Cartap)、チオシクラム(Thiocyclam)、ベンスルタップ(Bensultap)のようなネライストキシン誘導體；

ジコホル(Dicofol)、テトラジホン(Tetradifon)、エンドスルファン(Endosulfan)のような有機塩素系化合物；

酸化フェンブタスズ(Fenbutatin Oxide)のような有機金属系化合物；

フェンバレレート(Fenvalerate)、ペルメトリン(Permethrin)、シベルメトリン(Cyperm

50

ethrin)、デルタメトリン(Deltamethrin)、シハロトリン(Cyhalothrin)、テフルトリン(Tefluthrin)、エトフェンプロックス(Ethofenprox)、フェンプロパトリン(Fenpropathrin)、ピフェントリン(Bifenthrin)のようなピレスロイド系化合物；

ジフルベンズロン(Diflubenzuron)、クロルフルアズロン(Chlorfluazuron)、テフルベンズロン(Teflubenzuron)、フルフェノクスロン(Flufenoxuron)、ルフエヌロン(Lufenuron)、ノバルロン(Novaluron)、ビストリフルロン(Bistrifluron)、ノビフルムロン(Noviflumuron)のようなベンゾイルウレア系化合物；

メトプレン(Methoprene)、ピリプロキシフェン(Pyriproxyfen)、フェノキシカルブ(Fenoxycarb)のような幼若ホルモン様化合物；

ピリダベン(Pyridaben)のようなピリダジノン系化合物；

フェンピロキシメート(Fenpyroximate)、フィプロニル(Fipronil)、テブフェンピラド(Tebufenpyrad)、エチピロール(Ethiprole)、トルフェンピラド(Tolfenpyrad)、アセトプロール(Acetoprole)、ピラフルプロール(Pyrafluprole)、ピリプロール(Pyriprole)のようなピラゾール系化合物；

イミダクロプリド(Imidacloprid)、ニテンピラム(Nitenpyram)、アセタミプリド(Acetamiprid)、チアクロプリド(Thiacloprid)、チアメトキサム(Thiamethoxam)、クロチアニジン(Clothianidin)、ジノテフラン(Dinotefuran)などのネオニコチノイド；

テブフェノジド(Tebufenozide)、メトキシフェノジド(Methoxyfenozide)、クロマフェノジド(Chromafenozide)、ハロフェノジド(Halofenozide)などのヒドラジン系化合物；

ジニトロ系化合物、有機硫黄化合物、尿素系化合物、トリアジン系化合物、ヒドラゾン系化合物また、その他の化合物として、フロニカミド(Flonicamid)、ブプロフェジン(Buprofezin)、ヘキシチアゾクス(Hexythiazox)、アミトラズ(Amitraz)、クロルジメホルム(Chlordimeform)、シラフルオフエン(Silafluofen)、トリアザメイト(Triazamate)、ピメトロジン(Pymetrozine)、ピリミジフェン(Pyrimidifen)、クロルフェナピル(Chlorfenapyr)、インドキサカルブ(Indoxacarb)、アセキノシル(Acequinocyl)、エトキサゾール(Etoxazole)、シロマジン(Cyromazine)、1,3-ジクロロプロペン(1,3-dichloropropene)、ジアフェンチウロン(Diafenthiuron)、ベンクロチアズ(Benclothiaz)、フルフェンリム(Flufenerim)、ピリダリル(Pyridalyl)、スピロジクロフェン(Spirodiclofen)、ビフェナゼート(Bifenazate)、スピロメシフェン(Spiromesifen)、プロパルギット(Propargite)、クロフェンテジン(Clofentezine)、フルアクリピリム(Fluacrypyrim)、フルベンジアミド(Flubendiamide)、シフルメトフェン(Cyflumetofen)、メタフルミゾン(Metaflumizone)、アミドフルメット(Amidoflumet)のような化合物；などが挙げられる。更に、BT剤、昆虫病原ウイルス剤、昆虫病原系状菌剤、線虫病原系状菌剤などのような微生物農薬；アベルメクチン(Avermectin)、エマメクチンベンゾエート(Emamectin-Benzoate)、ミルベメクチン(Milbemectin)、スピノサッド(Spinosad)、イベルメクチン(Ivermectin)、レピメクチン(Lepimectin)のような抗生物質；アザディラクチン(Azadirachtin)、ロテノン(Rotenone)のような天然物などと、混用、併用することでもできる。

【 0 0 4 5 】

上記他の農薬中の、殺菌剤の有効成分化合物（一般名；一部申請中を含む）としては、例えば、メパニピリム(Mepanipyrim)、ピリメサニル(Pyrimethanil)、シプロジニル(Cyprodinil)のようなピリミジナミン系化合物；

トリアジメホン(Triadimefon)、ピテルタノール(Bitertanol)、トリフルミゾール(Triflumizole)、エタコナゾール(Etaconazole)、プロピコナゾール(Propiconazole)、ペンコナゾール(Penconazole)、フルシラゾール(Flusilazole)、マイクロブタニル(Myclobutanil)、シプロコナゾール(Cyproconazole)、ターブコナゾール(Terbuconazole)、ヘキサコナゾール(Hexaconazole)、ファーコナゾールシス(Furconazole-cis)、プロクロラズ(Prochloraz)、メトコナゾール(Metconazole)、エポキシコナゾール(Epoxiconazole)、テトラコナゾール(Tetraconazole)、オキシポコナゾール(Oxpoconazole)、シプロコナゾール(Sipconazole)のようなアゾール系化合物；

- キノメチオネート(Quinomethionate)のようなキノキサリン系化合物；
- マンネブ(Maneb)、ジネブ(Zineb)、マンゼブ(Mancozeb)、ポリカーバメート(Polycarbamate)、プロピネブ(Propineb)のようなジチオカーバメート系化合物；
- フサライド(Fthalide)、クロロタロニル(Chlorothalonil)、キントゼン(Quintozene)のような有機塩素系化合物；
- ベノミル(Benomyl)、チオフアネートメチル(Thiophanate-Methyl)、カーベンダジム(Carbendazim)、シアゾファミド(Cyazofamid)のようなイミダゾール系化合物；
- フルアジナム(Fluazinam)のようなピリジナミン系化合物；
- シモキサニル(Cymoxanil)のようなシアノアセトアミド系化合物；
- メタラキシル(Metalaxyl)、オキサジキシル(Oxadixyl)、オフレース(Ofurace)、ベナラキシル(Benalaxyl)、フララキシル(Furalaxyl)、シプロフラム(Cyprofuram)のようなフェニルアミド系化合物；
- ジクロフルアニド(Dichlofluanid)のようなスルフェン酸系化合物；
- 水酸化第二銅(Cupric hydroxide)、有機銅(Oxine Copper)のような銅系化合物；
- ヒドロキシイソキサゾール(Hydroxyisoxazole)のようなイソキサゾール系化合物；
- ホセチルアルミニウム(Fosetyl-Al)、トルクロホスメチル(Tolclofos-Methyl)、S - ベンジル O, O - ジイソプロピルホスホロチオエート、O - エチル S, S - ジフェニルホスホロジチオエート、アルミニウムエチルハイドロゲンホスホネートのような有機リン系化合物；
- キャプタン(Captan)、キャプタホル(Captafol)、フォルペット(Folpet)のようなN - ハロゲノチオアルキル系化合物；
- プロシミドン(Procymidone)、イプロジオン(Iprodione)、ビンクロゾリン(Vinclozolin)のようなジカルボキシミド系化合物；
- フルトラニル(Flutolanil)、メプロニル(Mepronil)、ゾキサミド(Zoxamide)のようなベンズアニリド系化合物；
- トリホリン(Triforine)のようなピペラジン系化合物；
- ピリフェノックス(Pyriphenox)のようなピリジン系化合物；
- フェナリモル(Fenarimol)、フルトリアフォル(Flutriafol)のようなカルピノール系化合物；
- フェンプロピジン(Fenpropidine)のようなピペリジン系化合物；
- フェンプロピモルフ(Fenpropimorph)のようなモルフォリン系化合物；
- フェンチンヒドロキシド(Fentin Hydroxide)、フェンチンアセテート(Fentin Acetate)のような有機スズ系化合物；
- ペンシキュロン(Pencycuron)のような尿素系化合物；
- ジメトモルフ(Dimethomorph)のようなシンナミック酸系化合物；
- ジエトフェンカルブ(Diethofencarb)のようなフェニルカーバメート系化合物；
- フルジオキシニル(Fludioxonil)、フェンピクロニル(Fenpiclonil)のようなシアノピロール系化合物；
- アゾキシストロビン(Azoxystrobin)、クレソキシムメチル(Kresoxim-Methyl)、メトミノフェン(Metominofen)、トリフロキシストロビン(Trifloxystrobin)、ピコキシストロビン(Picoxystrobin)、ピラクロストロビン(Pyraclostrobin)のようなストロビルリン系化合物；
- ファミキサドン(Famoxadone)のようなオキサゾリジノン系化合物；
- エタボキサム(Ethaboxam)のようなチアゾールカルボキサミド系化合物；
- シルチオフアム(Silthiopham)のようなシリルアミド系化合物；
- イプロバリカルブ(Iprovalicarb)のようなアミノアシッドアミドカーバメート系化合物；
- フェナミドン(Fenamidone)のようなイミダゾリジン系化合物；
- フェンヘキサミド(Fenhexamid)のようなヒドロキシアニリド系化合物；
- フルスルファミド(Flusulfamide)のようなベンゼンスルホンアミド系化合物；

アトラキノン系化合物；クロトン酸系化合物；抗生物質またその他の化合物として、イソプロチオラン(Isoprothiolane)、トリシクラゾール(Tricyclazole)、ピロキロン(Pyroquilon)、ジクロメジン(Diclomezine)、プロベナゾール(Probenazole)、キノキシフェン(Quinoxifen)、プロパモカルブ塩酸塩(Propamocarb Hydrochloride)、スピロキサミン(Spiroxamine)、クロロピクリン(Chloropicrin)、ダゾメット(Dazomet)、メタムナトリウム塩(Metam-sodium)；などが挙げられる。

【 0 0 4 6 】

その他、本発明化合物と混用或いは併用することが可能な農薬としては、例えば、Farm Chemicals Handbook (2002年版) に記載されているような除草剤の有効成分化合物、特に土壌処理型のものなどがある。

【 0 0 4 7 】

動物寄生生物防除剤としては、例えば、宿主動物の体表(背、腋下、下腹部、内股部など)に寄生する外部寄生生物や、宿主動物の体内(胃、腸管、肺、心臓、肝臓、血管、皮下、リンパ組織など)に寄生する内部寄生生物の防除に有効であるが、なかでも、外部寄生生物の防除に有効である。

外部寄生生物としては、例えば、動物寄生性のダニやノミなどが挙げられる。これらの種類は非常に多く、全てを列記することが困難であるので、その一例を挙げる。

【 0 0 4 8 】

動物寄生性のダニとしては、例えばオウシマダニ(Boophilus microplus)、クリイロコイタマダニ(Rhipicephalus sanguineus)、フタトゲチマダニ(Haemaphysalis longicornis)、キチマダニ(Haemaphysalis flava)、ツリガネチマダニ(Haemaphysalis campulata)、イスカチマダニ(Haemaphysalis concinna)、ヤマトチマダニ(Haemaphysalis japonica)、ヒゲナガチマダニ(Haemaphysalis kitaokai)、イヤスチマダニ(Haemaphysalis jias)、ヤマトマダニ(Ixodes ovatus)、タネガタマダニ(Ixodes nipponensis)、シュルツェマダニ(Ixodes persulcatus)、タカサゴキラマダニ(Amblyomma testudinarium)、オオトゲチマダニ(Haemaphysalis megaspinosa)、アミノカクマダニ(Dermacentor reticulatus)、タイワンカクマダニ(Dermacentor taiwanensis)のようなマダニ類；ワクモ(Dermanyssus gallinae)；トリサシダニ(Ornithonyssus sylviarum)、ミナミトリサシダニ(Ornithonyssus bursa)のようなトリサシダニ類；ナンヨウツツガムシ(Eutrombicula wichmanni)、アカツツガムシ(Leptotrombidium akamushi)、フトゲツツガムシ(Leptotrombidium pallidum)、フジツツガムシ(Leptotrombidium fuji)、トサツツガムシ(Leptotrombidium tosa)、ヨーロッパアキダニ(Neotrombicula autumnalis)、アメリカツツガムシ(Eutrombicula alfreddugesi)、ミヤガワタマツツガムシ(Helenicula miyagawai)のようなツツガムシ類；イヌツメダニ(Cheyletiella yasguri)、ウサギツメダニ(Cheyletiella parasitivorax)、ネコツメダニ(Cheyletiella blakei)のようなツメダニ類；ウサギキュウセンダニ(Psoroptes cuniculi)、ウシシヨクヒダニ(Chorioptes bovis)、イヌミミヒゼンダニ(Otodectes cynotis)、ヒゼンダニ(Sarcoptes scabiei)、ネコシヨウセンコウヒゼンダニ(Notoedres cati)のようなヒゼンダニ類；イヌニキビダニ(Demodex canis)のようなニキビダニ類などが挙げられる。なかでも、本発明化合物を含有する動物寄生生物防除剤は、マダニ類などの防除に特に有効である。

【 0 0 4 9 】

ノミとしては、例えば、ノミ目(Siphonaptera)に属する外部寄生性無翅昆虫、より具体的には、ヒトノミ科(Pulicidae)、ナガノミ科(Ceratophyllus)などに属するノミ類が挙げられる。ヒトノミ科に属するノミ類としては、例えば、イヌノミ(Ctenocephalides canis)、ネコノミ(Ctenocephalides felis)、ヒトノミ(Pulex irritans)、ニワトリフトノミ(Echidnophaga gallinacea)、ケオブスネズミノミ(Xenopsylla cheopis)、メクラネズミノミ(Leptopsylla segnis)、ヨーロッパネズミノミ(Nosopsyllus fasciatus)、ヤマトネズミノミ(Monopsyllus anisus)などが挙げられる。なかでも、本発明化合物を含有する動物寄生生物防除剤は、ヒトノミ科に属するノミ類、特にイヌノミ、

10

20

30

40

50

ネコノミなどの防除に有効である。

【0050】

その他の外部寄生生物としては、例えば、ウシジラミ、ウマジラミ、ヒツジジラミ、ウシホソジラミ、アタマジラミのようなシラミ類；イヌハジラミのようなハジラミ類；ウシアブ、ウアイヌカカ、ツメトゲブユのような吸血性双翅目害虫などが挙げられる。また、内部寄生生物としては、例えば、肺虫、ベンチュウ、結節状ウオーム、胃内寄生虫、回虫、糸状虫類のような線虫類；マンソン裂頭条虫、広節裂頭条虫、瓜実条虫、多頭条虫、単包条虫、多包条虫のような条虫類；日本住血吸虫、肝蛭のような吸虫類；コクシジウム、マラリア原虫、腸内肉胞子虫、トキソプラズマ、クリプトスポリジウムのような原生動物などが挙げられる。

10

【0051】

宿主動物としては、種々の愛玩動物、家畜、家禽などが挙げられ、より具体的には、イヌ、ネコ、マウス、ラット、ハムスター、モルモット、リス、ウサギ、フェレット、鳥（例えば、ハト、オウム、九官鳥、文鳥、インコ、ジュウシマツ、カナリアなど）、ウシ、ウマ、ブタ、ヒツジ、アヒル、ニワトリなどが挙げられる。なかでも、本発明化合物を含有する動物寄生生物防除剤は、愛玩動物又は家畜に寄生する有害生物、特に外部寄生生物の防除に有効である。愛玩動物又は家畜の中ではイヌ、ネコ、ウシ又はウマに特に有効である。

【0052】

本発明化合物を動物寄生生物防除剤として使用する際、そのまま使用してもよく、また、適当な補助剤と共に粉剤、粒剤、錠剤、散剤、カプセル剤、液状剤、乳剤、水生懸濁剤、油性懸濁剤などの種々の形態に製剤して使用することもできる。尚、前記製剤形態以外にも、本発明の目的に適合するかぎり、通常の出該分野で用いられているあらゆる製剤形態にすることができる。製剤に使用する補助剤としては、前記した農園芸用有害生物防除剤の製剤用補助剤として例示した陰イオン系の界面活性剤や非イオン系の界面活性剤；セチルトリメチルアンモニウムブロミドのような陽イオン系の界面活性剤；水、アセトン、アセトニトリル、モノメチルアセトアミド、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド、2-ピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン、ケロシン、トリアセチン、メタノール、エタノール、イソプロパノール、ベンジルアルコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール、液体ポリオキシエチレングリコール、ブチルジグリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールノルマルブチルエーテル、ジブチレングリコールモノメチルエーテル、ジブチレングリコールノルマルブチルエーテルのような溶剤；ブチルヒドロキシアニソール、ブチルヒドロキシトルエン、アスコルビン酸、メタ亜硫酸水素ナトリウム、プロピル没食子酸塩、チオ硫酸ナトリウムのような酸化防止剤；ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、酢酸ビニルとビニルピロリドンのコポリマーのような被膜形成剤；前記した農園芸用有害生物防除剤の製剤用補助剤として例示した植物油や鉱物油；乳糖、蔗糖、ブドウ糖、澱粉、麦粉、コーン粉、大豆油粕、脱脂米糠、炭酸カルシウム、その他市販の飼料原料のような担体などが挙げられる。これら補助剤の各成分は、本発明の目的から逸脱しないかぎり、1種又は2種以上を適宜選択して使用することができる。また、前記した補助剤以外にも出該分野で知られたものの中から適宜選択して使用することもでき、更には、前記した農園芸分野で使用される各種補助剤などから適宜選択して使用することもできる。

20

30

40

【0053】

本発明化合物と各種補助剤との配合割合は、通常0.1：99.9～90：10程度である。これら製剤の実際の使用に際しては、そのまま使用するか、または水等の希釈剤で所定濃度に希釈し、必要に応じて各種展着剤（界面活性剤、植物油、鉱物油など）を添加して使用することができる。

【0054】

宿主動物への本発明化合物の投与は、経口又は非経口によって行われる。経口投与法と

50

しては、例えば本発明化合物を含有する錠剤、液状剤、カプセル剤、ウエハース、ビスケット、ミンチ肉、その他の飼料等を投与する方法などが挙げられる。非経口投与方法としては、例えば本発明化合物を適当な製剤に調製した上で、静注投与、筋肉内投与、皮内投与、皮下投与等により体内に取り込ませる方法；スポットオン（spot-on）処理、ポワオン（pour-on）処理、スプレー処理等により体表面に投与する方法；宿主動物の皮下に本発明化合物を含有する樹脂片等を埋め込む方法などが挙げられる。

【0055】

宿主動物への本発明化合物の投与量は、投与方法、投与目的、疾病症状等によって異なるが、通常、宿主動物の体重 1 Kg に対して 0.01 mg ~ 100 g、望ましくは 0.1 mg ~ 10 g の割合で投与するのが適当である。

10

本発明には、前記したような投与方法又は投与量による有害生物の防除方法、特に外部寄生生物又は内部寄生生物の防除方法も含まれる。

また、本発明においては、前述のようにして動物寄生性の有害生物を防除することにより、それらに起因する宿主動物の各種疾患を予防又は治療できる場合がある。このように、本発明には、本発明化合物を有効成分として含有する寄生生物起因動物疾患の予防又は治療剤並びに、寄生生物起因動物疾患を予防又は治療する方法も含まれる。

【0056】

本発明化合物を動物寄生生物防除剤として使用する際、補助剤と共に各種ビタミン類、ミネラル類、アミノ酸類、栄養剤、酵素製剤、解熱剤、鎮静剤、消炎剤、殺菌剤、着色剤、芳香剤、保存剤等と混用又は併用することができる。また、必要に応じて他の各種動物薬や農薬、例えば駆虫剤、抗コクシジウム剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺ノミ剤、殺線虫剤、殺菌剤、抗菌剤などと混用又は併用することができ、この場合に一層優れた効果を示すこともある。本発明には、前記したような各種成分を混用又は併用した混合有害生物防除組成物が含まれ、また、それを使用した有害生物の防除方法、特に外部寄生生物又は内部寄生生物の防除方法も含まれる。

20

【0057】

次に本発明化合物の望ましい態様として、いくつかを例示する。例示したものの内、(1) ~ (8) については、任意の 1 又は 2 以上を適宜組み合わせることもでき、その組み合わせに基づく化合物も、本発明化合物の望ましい態様である。また、以下の化合物を有効成分として含有する有害生物防除剤、同じく農園芸用有害生物防除剤、同じく殺虫、殺ダニ又は殺線虫剤、同じく動物寄生生物防除剤、同じく動物外部寄生性生物の防除剤、同じく寄生生物起因動物疾患の予防又は治療剤も、本発明における望ましい態様である。また、以下の化合物の有効量を施用して有害生物を防除する方法も、本発明における望ましい態様である。但し、本発明はこれらに限定されるものではない。

30

【0058】

(1) R^1 の少なくとも 1 つが 4 位に置換しており、その R^1 がフッ素原子又は塩素原子である前記化合物。

(2) R^1 の少なくとも 1 つが 4 位に置換しており、その R^1 が塩素原子である前記化合物。

(3) R^1 の少なくとも 1 つが 4 位に置換しており、その R^1 がアルキル、ハロアルキル、アルケニル、ハロアルケニル、アルキニル、ハロアルキニル、アルコキシ、ハロアルコキシ、アルキルカルボニル、ハロアルキルカルボニル、アルコキシカルボニル、ハロアルコキシカルボニル、置換されてもよいフェノキシカルボニル、ニトロ又はホルミルである前記化合物。

40

(4) R^2 がハロゲン、ハロアルキル又はハロアルコキシである前記化合物。

(5) R^3 がハロゲンである前記化合物。

(6) R^3 がハロゲンであり、3 - 又は 5 - モノ置換であるか、或は 3, 5 - ジ置換である前記化合物。

【0059】

(7) Y がシクロプロピルである前記化合物。

50

(8) Y がシクロプロピルであり、そのシクロプロピルが、ハロゲン、アルキル及びハロアルキルよりなる群から選ばれる 1 ~ 5 の置換基で置換されている前記化合物。

(9) R^1 がハロゲン、アルキル、ハロアルキル、アルキルカルボニル又はホルミルであり、 R^2 がハロゲン、ハロアルキル又はハロアルコキシであり、 R^3 がハロゲン又はハロアルキルであり、A が Y で置換されたアルキルであり、Y がハロゲン及びアルキルよりなる群から選ばれる少なくとも 1 つの置換基で置換されてもよいシクロプロピルであり、m が 1 又は 2 であり、n が 0 であり、q が 1 である前記化合物。

(10) R^1 が 2 - モノ置換又は 2, 4 - ジ置換であり、 R^3 が 3 - モノ置換である前記 (9) の化合物。

【 0 0 6 0 】

10

(11) R^1 がハロゲン、アルキル又はハロアルキルであり、 R^2 がハロゲン、ハロアルキル又はハロアルコキシであり、 R^3 がハロゲンであり、A が Y で置換されたアルキルであり、Y がシクロプロピルであり、m が 2 であり、n が 0 であり、q が 1 である前記化合物。

(12) R^1 が 2, 4 - ジ置換であり、 R^3 が 3 - モノ置換である前記 (11) の化合物。

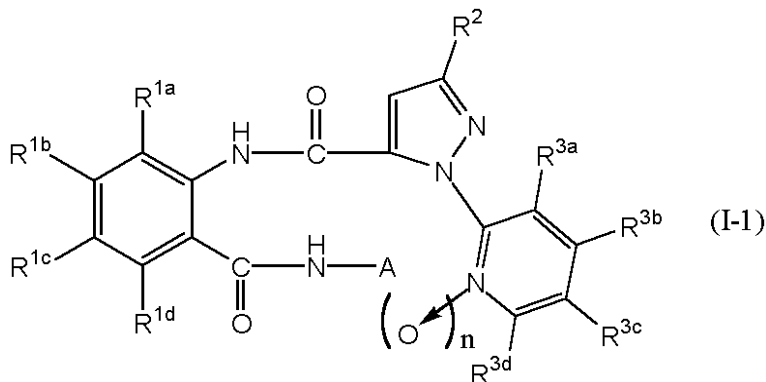
(13) 4 位の R^1 が塩素原子である前記 (12) の化合物。

(14) 式 (I) が式 (I-1) :

【 0 0 6 1 】

【 化 4 】

20



30

【 0 0 6 2 】

であり、 R^{1a} がハロゲン又はアルキルであり、 R^{1b} 及び R^{1d} が各々水素原子であり、 R^{1c} がアルキル、ハロアルキル、アルケニル、ハロアルケニル、アルキニル、ハロアルキニル、アルコキシ、ハロアルコキシ、アルキルカルボニル、ハロアルキルカルボニル、アルコキシカルボニル、ハロアルコキシカルボニル、置換されてもよいフェノキシカルボニル、ニトロ又はホルミルであり、 R^2 がハロゲン、ハロアルキル又はハロアルコキシであり、 R^{3a} がハロゲン又はハロアルキルであり、 R^{3b} 、 R^{3c} 及び R^{3d} が各々水素原子であり、A が Y で置換されたアルキルであり、Y がハロゲン、アルキル及びハロアルキルよりなる群から選ばれる 1 ~ 5 の置換基で置換されてもよいシクロプロピルであり、n が 0 である化合物。

40

(15) R^{1c} がハロアルキル、アルキルカルボニル又はホルミルである前記 (14) の化合物。

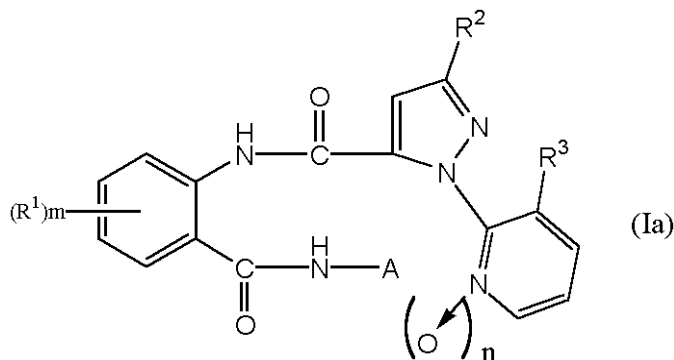
(16) R^{1c} がハロアルキルである前記 (14) の化合物。

(17) Y がシクロプロピルである前記 (14) の化合物。

(18) 式 (I) が式 (Ia) :

【 0 0 6 3 】

【化 5】



10

【 0 0 6 4 】

であり、 R^1 がハロゲン又はアルキルであり、 R^2 及び R^3 が各々ハロゲン又は $-CF_3$ であり、 A が Y で置換されたアルキルであり、 Y がハロゲン若しくはアルキルで置換されてもよい $C3-4$ シクロアルキルであり、 m が 1 又は 2 であり、 n が 0 又は 1 である化合物。

(19) 式 (I) が前記式 (Ia) であり、 R^1 がハロゲン又はアルキルであり、 R^2 及び R^3 が各々ハロゲン又は $-CF_3$ であり、 A が $-X-Y$ であり、 X がアルキレンであり、 Y がハロゲン若しくはアルキルで置換されてもよい $C3-4$ シクロアルキルであり、 m が 1 又は 2 であり、 n が 0 又は 1 である化合物。

20

【実施例】

【 0 0 6 5 】

次に本発明の実施例を記載するが、本発明はこれらに限定されるものではない。まず本発明化合物の合成例を記載する。

合成例 1

N-[6-[[[(シクロプロピルメチル)アミノ]カルボニル]-2-メチルフェニル]-1-(3-クロロ-2-ピリジル)-3-(トリフルオロメチル)-1H-ピラゾール-5-カルボキサミド(後記化合物No. 1)の合成

シクロプロピルメチルアミン塩酸塩 0.8 g 及びテトラヒドロフラン 40 ml の混合溶液に、氷冷下でトリエチルアミン 1.49 g を徐々に滴下した後、室温で 30 分間攪拌した。次に 2-[1-(3-クロロ-2-ピリジル)-3-(トリフルオロメチル)-1H-ピラゾール-5-イル]-8-メチル-4H-3,1-ベンゾオキサジン-4-オン 1 g 及びテトラヒドロフラン 10 ml の混合溶液を徐々に滴下した。滴下終了後、混合溶液を還流下に 4 時間反応させた。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、残渣に酢酸エチルと水とを加えて抽出した。有機層を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液： n -ヘキサン/酢酸エチル = 1/1)で精製して、融点 199.4 の目的物 0.54 g を得た。

30

【 0 0 6 6 】

合成例 2

N-[4-クロロ-2-メチル-6-[[-メチル-(シクロプロピルメチル)アミノ]カルボニル]-フェニル]-3-(トリフルオロメチル)-1-(3-クロロ-2-ピリジル)-1H-ピラゾール-5-カルボキサミド(後記化合物No. 3)の合成

-メチル-シクロプロピルメチルアミン塩酸塩 0.82 g 及びテトラヒドロフラン 40 ml の混合溶液に、氷冷下でトリエチルアミン 1.37 g を徐々に滴下した後、室温で 30 分間攪拌した。次に 2-[1-(3-クロロ-2-ピリジル)-3-(トリフルオロメチル)-1H-ピラゾール-5-イル]-6-クロロ-8-メチル-4H-3,1-ベンゾオキサジン-4-オン 1 g 及びテトラヒドロフラン 10 ml の混合溶液を徐々に滴下した。滴下終了後、混合溶液を還流下に 4 時間反応させた。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、残渣に酢酸エチルと水とを加えて抽出した。有機層を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水

40

50

硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：n - ヘキサン / 酢酸エチル = 1 / 1）で精製して、融点 210.0 の目的物 0.45 g を得た。

【0067】

合成例 3

N - [4 - クロロ - 2 - メチル - 6 - [[- メチル - (シクロプロピルメチル)アミノ]カルボニル] - フェニル] - 3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド（後記化合物No. 9）の合成

- メチル - シクロプロピルメチルアミン塩酸塩 0.65 g 及びテトラヒドロフラン 40 ml の混合溶液に、氷冷下でトリエチルアミン 1.07 g を徐々に滴下した後、室温で 30 分間攪拌した。次に 2 - [3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1H - ピラゾール - 5 - イル] - 6 - クロロ - 8 - メチル - 4H - 3,1 - ベンゾオキサジン - 4 - オン 0.8 g 及びテトラヒドロフラン 10 ml の混合溶液を徐々に滴下した。滴下終了後、混合溶液を還流下に 4 時間反応させた。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、残渣に酢酸エチルと水とを加えて抽出した。有機層を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：n - ヘキサン / 酢酸エチル = 1 / 1）で精製して、融点 183.6 の目的物 0.33 g を得た。

【0068】

合成例 4

N - [2 - ブロモ - 4 - クロロ - 6 - [[- メチル - (シクロプロピルメチル)アミノ]カルボニル] - フェニル] - 3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1H - ピラゾール - 5 - カルボキサミド（後記化合物No. 15）の合成

- メチル - シクロプロピルメチルアミン塩酸塩 0.6 g 及びテトラヒドロフラン 40 ml の混合溶液に、氷冷下でトリエチルアミン 1 g を徐々に滴下した後、室温で 1 時間攪拌した。次に 2 - [3 - ブロモ - 1 - (3 - クロロ - 2 - ピリジル) - 1H - ピラゾール - 5 - イル] - 6 - クロロ - 8 - ブロモ - 4H - 3,1 - ベンゾオキサジン - 4 - オン 0.85 g 及びテトラヒドロフラン 10 ml の混合溶液を徐々に滴下した。滴下終了後、混合溶液を還流下に 4 時間反応させた。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、残渣に酢酸エチルと水とを加えて抽出した。有機層を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：n - ヘキサン / 酢酸エチル = 1 / 2）で精製して、融点 260.6 の目的物 0.7 g を得た。

【0069】

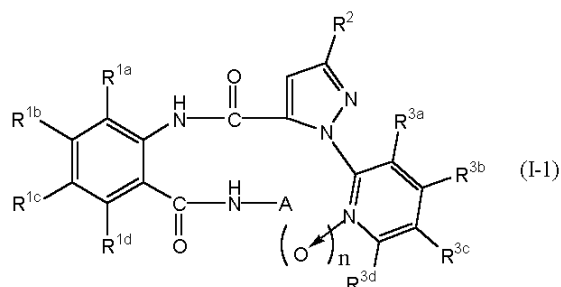
次に、前記式(1)で表される本発明化合物の代表例を第1表に挙げる。これら化合物は前記合成例或は前記した本発明化合物の種々の製造方法に基づいて合成することができる。

第1表中、No. は化合物No. を示す。また、第1表中、Me はメチル基を、Et はエチル基を、iPr はイソプロピル基を、CPr はシクロプロピル基を、CBu はシクロブチル基を、Ph はフェニル基を各々示す。また、第1表中、A1 は -CH₂ - [CPr] を、A2 は -CH(Me) - [CPr] を、A3 は -CH₂ - [2-Me-CPr] を、A4 は -CH₂ - [2,2-Cl₂ - 1-Me-CPr] を、A5 は -CH₂ - [1-Me-CPr] を、A6 は -CH(Me) - [CBu] を各々示す。また、第1表中、2-Me-CPr とあるのは、2 位にメチル基が置換したシクロプロピル基を示し、CO₂Ph(4-Cl) とあるのは、フェニル基の 4 位に塩素原子が置換したフェノキシカルボニル基を示し、他の同様の記載もこれに準じる。

尚、第1表中、特筆しない限り n は 0 である。

【0070】

【表 1】



第1表

No.	R ^{1a}	R ^{1b}	R ^{1c}	R ^{1d}	R ²	R ^{3a}	R ^{3b}	R ^{3c}	R ^{3d}	A	物性 (融点℃)
1	Me	H	H	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A1	199.4
2	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A1	216.4
3	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	210.0
4	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A3	
5	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A4	219.3
6	Me	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A1	
7	Me	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A1	
8	Me	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	186.7
9	Me	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	183.6
10	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A5	161.2
11	Br	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	158.2
12	I	H	Br	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	145.5
13	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	230.9
14	Cl	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	238.8
15	Cl	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	236.8
16	Br	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	260.6
17	I	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	251.4
18	Br	H	F	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	220.1
19	I	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	241.0
20	Cl	H	F	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	214.0
21	I	H	I	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	251.9
22	Br	H	F	H	Br	Cl	H	H	H	A2	219.2
23	Me	H	Cl	H	CF ₃	Br	H	H	H	A2	162-164
24	Me	H	Cl	H	Cl	CF ₃	H	H	H	A2	154-156
25	Me	H	Cl	H	Br	Br	H	H	H	A2	128-132
26	Cl	H	F	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
27	I	H	F	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
28	F	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
29	F	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
30	I	H	F	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
31	F	H	F	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
32	F	H	F	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
33	Me	H	F	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
34	Me	H	F	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
35	Me	H	CO ₂ Me	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
36	Me	H	CO ₂ -iPr	H	Br	Cl	H	H	H	A2	

【表 2】

第1表 (つづき)

No.	R ^{1a}	R ^{1b}	R ^{1c}	R ^{1d}	R ²	R ^{3a}	R ^{3b}	R ^{3c}	R ^{3d}	A	物性 (融点℃)
37	Me	H	CO ₂ Ph	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
38	Br	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	233.2
39	Br	H	F	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	179.1
40	Me	H	COCH ₃	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	143.4
41	Me	H	CHO	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	152.3
42	Me	H	CHF ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	212.9
43	Me	H	CHF ₂	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
44	Me	H	CHF ₂	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
45	Et	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	215.4
46	Et	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
47	Et	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
48	Me	H	NO ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	197.9
49	Me	H	NO ₂	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
50	Me	H	NO ₂	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
51	Me	H	CF ₃	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
52	Me	H	CF ₃	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
53	Me	H	CF ₃	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
54	CF ₃	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
55	Me	H	OMe	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
56	Me	H	OMe	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
57	Me	H	OMe	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
58	OCHF ₂	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
59	OCHF ₂	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
60	OCHF ₂	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
61	CHF ₂	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
62	CHF ₂	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
63	CHF ₂	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
64	Me	H	CH=CH ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
65	Me	H	C≡CH	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
66	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A6	
67	Me	H	COCF ₃	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
68	Me	H	CH=CCl ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
69	Me	H	C≡Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
70	Me	H	CO ₂ Ph(4-Cl)	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
71	Me	H	CO ₂ Ph(4-Me)	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
72	Me	H	CO ₂ Ph(4-NO ₂)	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
73	Me	H	CO ₂ Ph(4-CN)	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
74	Me	H	CO ₂ Ph(4-SMe)	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
75	Et	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
76	Me	H	NO ₂	H	OCH ₂ CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
77	Me	H	CHF ₂	H	CF ₃	H	H	Cl	H	A2	
78	Et	H	Cl	H	Br	H	H	F	H	A2	
79	I	H	Cl	H	Br	F	H	F	H	A2	

10

20

30

40

【表 3】

第1表 (つづき)

No.	R ^{1a}	R ^{1b}	R ^{1c}	R ^{1d}	R ²	R ^{3a}	R ^{3b}	R ^{3c}	R ^{3d}	A	物性 (融点℃)
80	I	H	Cl	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	220.6
81	Me	H	Cl	H	OCH ₂ CF ₃	Cl	H	H	H	A2	175.1
82	Br	H	CHF ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
83	Br	H	CHF ₂	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
84	Br	H	CHF ₂	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
85	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	Cl	H	A2	
86	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	F	H	A2	
87	Br	H	NO ₂	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
88	Br	H	NO ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
89	Br	H	NO ₂	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	
90	I	H	Br	H	Cl	Cl	H	H	H	A2	222.9
91	I	H	Br	H	Br	Cl	H	H	H	A2	221.0
92	Me	H	Me	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	172.3
93	Me	H	CO ₂ -iPr	H	Br	Cl	H	H	H	A2	176-179
94	Et	H	Br	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	175.2
95	Et	H	NO ₂	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	116.8
96	Me	H	CO ₂ Me	H	Br	Cl	H	H	H	A2	190-198
97	CF ₃	H	Cl	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
98	CF ₃	H	Br	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	234.8
99	CF ₃	H	Cl	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	230.0
100	Cl	H	CF ₃	H	Br	Cl	H	H	H	A2	
101	Br	H	CF ₃	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
102	Cl	H	CF ₃	H	CF ₃	Cl	H	H	H	A2	
103	化合物 No. 1 のN-オキサイド (n=1)										
104	化合物 No. 3 のN-オキサイド (n=1)										
105	化合物 No. 9 のN-オキサイド (n=1)										
106	化合物 No. 16 のN-オキサイド (n=1)										
107	化合物 No. 22 のN-オキサイド (n=1)										
108	化合物 No. 42 のN-オキサイド (n=1)										

【0073】

次に試験例を記載する。

試験例1 ハスモンヨトウに対する効果試験

本発明化合物の濃度が50ppm又は3.1ppmとなるよう調製した薬液に、キャベツの葉片を約10秒間浸漬処理し、風乾した。直径9cmのペトリ皿に湿った濾紙を敷き、その上に風乾したキャベツの葉片を置いた。そこへ、2~3令のハスモンヨトウ幼虫10頭を放ち、ふたをして25℃の照明付恒温室内に放置した。放虫後5日目に生死を判定し、下記計算式により死虫率を求めた。尚、異常虫も死亡とみなした。前記化合物No. 8、20~22、25、41、91~93及び96について50ppmで死虫率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示し、また、前記化合物No. 1~3、5、9~19、23、24、38~40、42、80、81及び90について3.1ppmで死虫率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示した。

$$\text{死虫率}(\%) = (\text{死虫数} / \text{放虫数}) \times 100$$

【0074】

試験例2 シルバーリーフコナジラミに対する効果試験

第一本葉を1枚残し、他の葉を切除したポット植えのキュウリに、シルバーリーフコナジラミの成虫を放して約8時間産卵させた。その後、25℃の照明付恒温室内に7~10日間放置した。孵化幼虫数を調査した後、本発明化合物の濃度が200ppm又は50ppm

p p mとなるよう調製した薬液に寄生葉を約 10 秒間浸漬処理し、風乾した。処理後 10 ~ 14 日間 25 の照明付恒温室内に放置した後、老齢幼虫数及び蛹数を調査し、下記計算式により防除価を求めた。前記化合物No. 11 及び 21 について 200 p p mで防除価を求めたところ、80 %以上の高い防除効果を示し、また、前記化合物No. 3、9、12、14 ~ 20、22、38 及び 39 について 50 p p mで防除価を求めたところ、全ての化合物が 80 %以上の高い防除効果を示した。

$$\text{防除価}(\%) = (1 - ((T a \times C b) / (T b \times C a))) \times 100$$

T a : 処理区における処理後の老齢幼虫数 + 蛹数

T b : 処理区における処理前の孵化幼虫数

C a : 無処理区における処理後の老齢幼虫数 + 蛹数

C b : 無処理区における処理前の孵化幼虫数

10

【0075】

試験例 3 モモアカアブラムシに対する効果試験

本葉 1 枚のみを残したポット植えナスの葉柄に粘着剤を塗布した後、その本葉にモモアカアブラムシの無翅胎生雌成虫 2 ~ 3 頭を放った。放虫 2 日後に成虫を除去し、幼虫数を調査した。この幼虫が寄生したナス葉を、本発明化合物の濃度が 800 p p mとなるように調製した薬液に約 10 秒間浸漬処理し、風乾後 25 の照明付恒温室内に放置した。処理 5 日後に生存虫数を調査し、下記計算式により死虫率を求めた。前記化合物No. 2、9、11、14 ~ 18、20、22、23、38、39、42 及び 90 について死虫率を求めたところ、全ての化合物が 90 %以上の高い防除効果を示した。

20

$$\text{死虫率}(\%) = (1 - (\text{生存虫数} / \text{処理虫数})) \times 100$$

【0076】

試験例 4 ワタアブラムシに対する効果試験

本葉 1 枚のみを残したポット植えナスの葉柄に粘着剤を塗布した後、その本葉にワタアブラムシの無翅胎生雌成虫 3 ~ 4 頭を放った。放虫 2 日後に成虫を除去し、幼虫数を調査した。この幼虫が寄生したナス葉を、本発明化合物の濃度が 50 p p mとなるように調製した薬液に約 10 秒間浸漬処理し、風乾後 25 の照明付恒温室内に放置した。処理 5 日後に生存虫数を調査し、前記試験例 3 と同様にして死虫率を求めた。前記化合物No. 16、18 及び 22 について死虫率を求めたところ、全ての化合物が 90 %以上の高い防除効果を示した。

30

【0077】

試験例 5 マメハモグリバエに対する効果試験

本発明化合物の濃度が 25 p p m又は 12.5 p p mとなるように調製した薬液に、マメハモグリバエの卵が均一に産みつけられたインゲンの葉片を約 10 秒間浸漬処理し、風乾した。直径 9 c m、高さ 4 c mのプラスチックカップに湿った濾紙を敷き、その上に風乾したインゲンの葉片を置いた。その後、ふたをして 25 の照明付恒温室内に放置した。処理 6 ~ 8 日後に老齢幼虫数及び蛹数を調査し、下記計算式により防除価を求めた。前記化合物No. 9、14 及び 23 について 25 p p mで防除価を求めたところ、全ての化合物が 90 %以上の高い防除効果を示し、また、前記化合物No. 2、3、11、12、15 ~ 18、20 及び 22 について 12.5 p p mで防除価を求めたところ、全ての化合物が 90 %以上の高い防除効果を示した。

40

$$\text{防除価}(\%) = (1 - ((\text{処理区の老齢幼虫数} + \text{蛹数}) / (\text{無処理区の老齢幼虫数} + \text{蛹数}))) \times 100$$

【0078】

試験例 6 ミナミキイロアザミウマに対する効果試験

ポット植えキュウリから第一本葉 1 枚のみを残し、その他の葉を切除した。残った葉部を本発明化合物の濃度が 50 p p mとなるよう調製した薬液に約 10 秒間浸漬処理し、風乾した。その後、1 齢幼虫が寄生したキュウリの葉片を、前記処理葉の上に置いた。翌日、キュウリの葉片を取り除き、処理葉に移った幼虫数を調査した。直径 9 c m、高さ 4 c mのプラスチックカップに湿った濾紙を敷き、その上に切り取った処理葉を置いた。その

50

後、ふたをして25の照明付恒温室内に放置した。処理12～15日後に生存虫数を調査し、前記試験例2と同様にして防除価を求めた。前記化合物No. 11、12、16、22、38及び39について防除価を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示した。

【0079】

試験例7 ニジウヤホシテントウに対する効果試験

本発明化合物の濃度が25ppm又は12.5ppmとなるよう調製した薬液に、ナスの葉片を約10秒間浸漬処理し、風乾した。直径9cm、高さ4cmのプラスチックカップに湿った濾紙を敷き、その上に風乾したナスの葉片を置いた。そこへ、1～2令のニジウヤホシテントウ幼虫5頭を放ち、ふたをして25の照明付恒温室内に放置した。放虫後4～6日目に生死を判定し、前記試験例1と同様にして死虫率を求めた。尚、異常虫も死亡とみなした。前記化合物No. 9及び11について25ppmで死虫率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示し、また、前記化合物No. 3、16、22、38及び39について12.5ppmで死虫率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示した。

10

【0080】

試験例8 イエバエに対する効果試験

餌培地10gを、直径6cm、高さ3cmのプラスチックカップに入れた後、本発明化合物の濃度が200ppmとなるよう調製した薬液10mlを加え、混合した。孵化4日齢幼虫を、20又は30頭放ち、ふたをして25の照明付恒温室内に15～16日間放置した。その後、成虫数を調査し、下記計算式により羽化阻害率を求めた。前記化合物No. 3、9、11、12及び14～20について羽化阻害率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示した。

20

$$\text{羽化阻害率(\%)} = (1 - (\text{成虫数} / \text{放虫数})) \times 100$$

【0081】

試験例9 イエシロアリに対する効果試験

直径9cmのガラスシャーレ内に濾紙を敷き、本発明化合物の濃度が500ppmとなるよう調製した薬液1mlを処理した。その後、イエシロアリの職蟻10頭及び兵蟻1頭を放ち、ふたをして25の照明付恒温室内に放置した。処理6日後に、職蟻の死亡数を調査し、下記計算式により死虫率を求めた。前記化合物No. 3、9、11、12、14～16及び22について死虫率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示した。

30

$$\text{死虫率(\%)} = (\text{職蟻の死虫数} / 10) \times 100$$

【0082】

試験10 ハスモンヨトウ浸透移行性試験

5～6葉期のポット植えキャベツの株元に、本発明化合物の濃度が800ppm又は200ppmとなるよう調製した薬液10mlを処理した。直径9cmのペトリ皿に湿った濾紙を敷き、処理10日後に切り取ったキャベツ葉片を置いた。そこへ、2～3令のハスモンヨトウ幼虫10頭を放ち、ふたをして25の照明付恒温室内に放置した。放虫後4～5日目に生死を判定し、前記試験例1と同様にして死虫率を求めた。尚、異常虫も死亡とみなした。前記化合物No. 8について800ppmで死虫率を求めたところ、90%以上の高い防除効果を示し、また、前記化合物No. 3、9、11、16、18及び22について200ppmで死虫率を求めたところ、全ての化合物が90%以上の高い防除効果を示した。

40

【0083】

試験例11 フタトゲチマダニに対する薬効試験

9cm径シャーレ内面に、供試化合物のアセトン溶液1ml(濃度: 10μg/ml)をマイクロピペットで滴下処理した。一方、対照区として、アセトン1mlを同様に滴下処理した。シャーレ内面が乾燥した後、約100匹の幼ダニを入れ、ポリエチレンシートで被い輪ゴムで密封した。その後観察時以外は、シャーレを25恒温、相対湿度100

50

%、恒暗条件下で静置した。観察は幼ダニをシャーレに入れてから一定時間経過後毎（5分、10分、15分、20分、30分、45分、1時間、2時間、4時間、6時間及び24時間後）に行い、薬剤接触後の横転（ノックダウン）ダニ数を記録した。以上の操作を2回繰り返した。

各観察時における横転率を下記アボットの補正式によって補正し、次いでプロビット・時間直線を引き、半数横転時間（ KT_{50} 値）を求めた。各供試化合物の KT_{50} 値は、前記化合物No. 3が9分と8分であり、前記化合物No. 9が7.5分と6分であったのに対し、下記比較化合物Aは80分と40分であり、下記比較化合物Bは120分と80分であった。

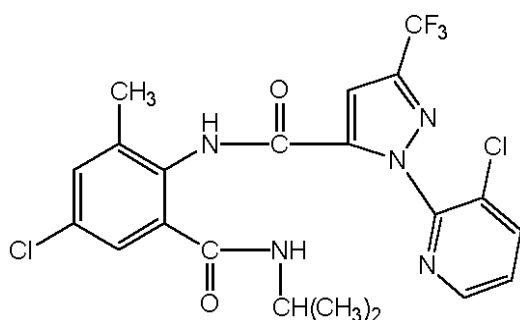
補正横転率(%) = [(対照区 of 非横転率 - 処理区 of 非横転率) / 対照区 of 非横転率] × 100

10

比較化合物Aは、WO 03 / 24222中の化合物484であり、WO 03 / 15518中の化合物497であり、且つWO 03 / 15519中の化合物2である下記化合物。

【0084】

【化6】



比較化合物A

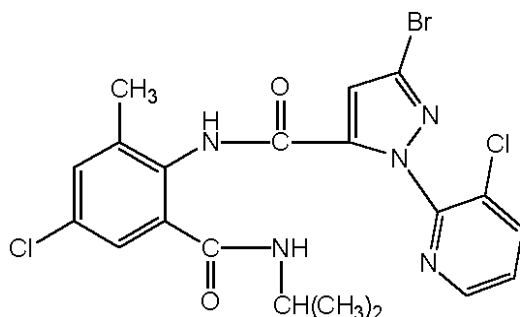
20

【0085】

比較化合物Bは、WO 03 / 24222中の化合物509であり、WO 03 / 15518中の化合物530であり、且つWO 03 / 15519中の化合物27である下記化合物。

【0086】

【化7】



比較化合物B

30

【0087】

試験例12 ネコノミに対する薬効試験

40

5.3 ppmに調製した本発明化合物のアセトン溶液0.5 mlを、底面が平滑なガラス管（内径2.6 cm、底面積5.3 cm²、高さ12 cm）に滴下処理した。室温下でアセトンを蒸散させ、底面に本発明化合物を含むドライフィルムを形成させた。そこへネコノミ（*Ctenocephalides felis*）の成虫（羽化後5日以内の未吸血成虫）10頭を入れ、本発明化合物を暴露させた。試験は3連制で行った。

暴露48時間後にノミの生死を判定し、前記試験例1と同様にして死虫率を求めた。前記化合物No. 16について死虫率を求めたところ、90%以上の高い防除効果を示した。

【0088】

次に製剤例を記載する。

製剤例1

50

(1) 本発明化合物	2 0 重量部
(2) クレー	7 2 重量部
(3) リグニンスルホン酸ソーダ	8 重量部

以上のものを均一に混合して水和剤とする。

製剤例 2

(1) 本発明化合物	5 重量部
(2) タルク	9 5 重量部

以上のものを均一に混合して粉剤とする。

【 0 0 8 9 】

製剤例 3

10

(1) 本発明化合物	2 0 重量部
(2) N , N - ジメチルアセトアミド	2 0 重量部
(3) ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル	1 0 重量部
(4) キシレン	5 0 重量部

以上のものを均一に混合、溶解して乳剤とする。

製剤例 4

(1) クレー	6 8 重量部
(2) リグニンスルホン酸ソーダ	2 重量部
(3) ポリオキシエチレンアルキルアリールサルフェート	5 重量部
(4) 微粉シリカ	2 5 重量部

20

以上の各成分の混合物と、本発明化合物とを 4 : 1 の重量割合で混合し、水和剤とする。

【 0 0 9 0 】

製剤例 5

(1) 本発明化合物	5 0 重量部
(2) オキシレーテッドポリアルキルフェニルフォスフェート - トリエタノールアミン	2 重量部
(3) シリコーン	0 . 2 重量部
(4) 水	4 7 . 8 重量部

以上のものを均一に混合、粉碎した原液に更に

(5) ポリカルボン酸ナトリウム	5 重量部
(6) 無水硫酸ナトリウム	4 2 . 8 重量部

30

を加え均一に混合、造粒、乾燥して顆粒水和剤とする。

【 0 0 9 1 】

製剤例 6

(1) 本発明化合物	5 重量部
(2) ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル	1 重量部
(3) ポリオキシエチレンの燐酸エステル	0 . 1 重量部
(4) 粒状炭酸カルシウム	9 3 . 9 重量部

(1) ~ (3) を予め均一に混合し、適量のアセトンで希釈した後、(4) に吹付け、アセトンを除去して粒剤とする。

40

製剤例 7

(1) 本発明化合物	2 . 5 重量部
(2) N - メチル - 2 - ピロリドン	2 . 5 重量部
(3) 大豆油	9 5 . 0 重量部

以上のものを均一に混合、溶解して微量散布剤(ultra low volume formulation)とする。

【 0 0 9 2 】

製剤例 8

(1) 本発明化合物	4 0 重量部
(2) オキシレーテッドポリアルキルフェニルフォスフェート - トリエタノールアミン	2 重量部

50

(3) シリコーン	0 . 2 重量部
(4) ザンサンガム	0 . 1 重量部
(5) エチレングリコール	5 重量部
(6) 水	5 2 . 7 重量部

以上のものを均一に混合、粉碎して水性懸濁剤とする。

製剤例 9

(1) 本発明化合物	1 0 重量部
(2) ジエチレングリコールモノエチルエーテル	9 0 重量部

以上の成分を均一に混合し、溶状剤とする。

フロントページの続き

(31)優先権主張番号 特願2004-295778(P2004-295778)

(32)優先日 平成16年10月8日(2004.10.8)

(33)優先権主張国 日本国(JP)

早期審査対象出願

(72)発明者 久松 彰弘

滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原産業株式会社 中央研究所内

審査官 荒木 英則

(56)参考文献 国際公開第03/024222(WO, A1)

特開平11-240857(JP, A)

米国特許第5516749(US, A)

特開昭52-59159(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C07D 401/00 - 421/14

A01N 43/00 - 43/56

A61K 31/00 - 31/80

A61P 33/00 - 33/14

C A p l u s (S T N)

R E G I S T R Y (S T N)

W P I (D I A L O G)