

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2012 年 2 月 9 日(09.02.2012)

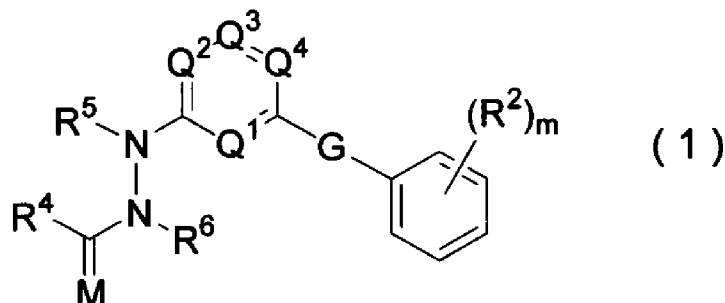
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/017973 A1

- (51) 国際特許分類:
A01N 43/80 (2006.01) A01P 7/02 (2006.01)
A01N 51/00 (2006.01) A01P 7/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/067568
- (22) 国際出願日: 2011 年 7 月 25 日(25.07.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-174936 2010 年 8 月 3 日(03.08.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 7 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 井狩 かおり (IKARI, Kaori) [JP/JP]; 〒6658555 兵庫県宝塚市高司四丁目 2 番 1 号 住友化学株式会社内 Hyogo (JP).
- (74) 代理人: 中山 亨, 外(NAKAYAMA, Tohru et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5 番 3 3 号住友化学知的財産センター株式会社内 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: PEST CONTROL COMPOSITION

(54) 発明の名称: 有害生物防除組成物



(57) Abstract: A pest control composition comprising a hydrazide compound represented by formula (1) [in the formula, G, M, Q¹, Q², Q³, Q⁴, R², R⁴, R⁵, R⁶ and m have the definitions given in the Specifications] and dinotefuran; as well as a pest control method of applying effective amounts of a hydrazide compound represented by formula (1) and dinotefuran to pests or pest habitats.

(57) 要約: 下記式 (1) で示されるヒドラジド化合物〔式中、G、M、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁴、R⁵、R⁶ 及び m は明細書に記載した意味を表す。〕とジノテフランとを含有する有害生物防除組成物; 並びに、下記式 (1) で示されるヒドラジド化合物とジノテフランとの有効量を有害生物又は有害生物の生息場所に施用する有害生物の防除方法。

WO 2012/017973 A1

明細書
有害生物防除組成物

技術分野

- 5 本発明は、有害生物防除組成物に関する。

背景技術

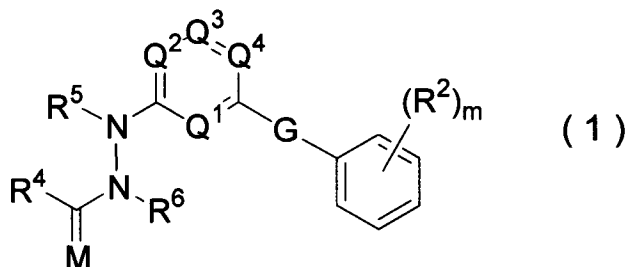
ジノテフランを含有する組成物が、ハエ類に対する防除効力を有することが知られている（例えば、特表 2001-302408 号公報参照）。

- 10 防除対象によっては、より優れた防除効力を必要とする場合がある。

発明の開示

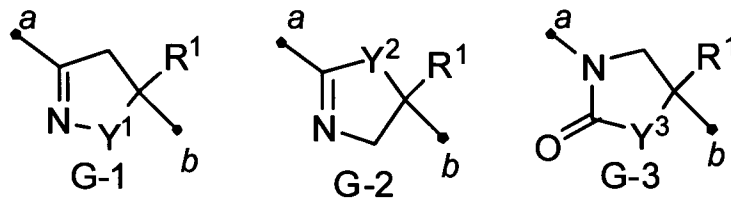
本発明は、有害生物の防除に適する、優れた防除効力を有する組成物を提供することを課題とする。

- 15 本発明者は、優れた防除効力を有する組成物を見出すべく鋭意検討した結果、下記式（1）



〔式中、

G は下記式 G-1 ~ G-3 のいずれかで示される基



20

（尚、点 a 及び点 b は結合手を表し、点 b はフェニル環との結合手を表す。）を表し、
R¹ は C 1 - C 4 ハロアルキル基を表し、

Y¹ は酸素原子、硫黄原子又は NR⁷ 基を表し、

Y² は酸素原子、硫黄原子、NR⁷ 基又はメチレン基を表し、

- 25 Y³ は酸素原子、硫黄原子、NR⁷ 基又はメチレン基を表し、

R⁷はC 1－C 6アルキル基、C 2－C 6アルケニル基、C 2－C 6アルキニル基、C 3－C 6シクロアルキル基、C 4－C 7シクロアルキルアルキル基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 2－C 6アルキルアミノカルボニル基、C 3－C 9ジアルキルアミノカルボニル基、フェニル基、シアノ基、ホルミル基又は水素原子を表し、

Mは酸素原子又は硫黄原子を表し、

Q¹、Q²、Q³及びQ⁴は同一又は相異なり、窒素原子又はC R³基を表し、

R³はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基、ニトロ基、シアノ基、ハロゲン原子又は水素原子を表し、

mは0から5の整数のいずれかを表し、

R²はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基、C 1－C 6アルキルチオ基、C 1－C 6アルキルスルフィニル基、C 1－C 6アルキルスルホニル基、ニトロ基、シアノ基又はハロゲン原子を表し（但し、mが2～5の整数のいずれかである場合、それぞれのR²は同一又は相異なる。）、

R⁵及びR⁶は同一又は相異なり、群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 3－C 1 2シクロアルキル基、ホルミル基又は水素原子を表し、

R⁴は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基、OR⁸基、N(R⁹)R¹⁰基又は水素原子を表し、

R⁸は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基又は群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基を表し、

R⁹は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基又は群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基を表し、

R¹⁰は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基又は水素原子を表すか、或いはR⁹とR¹⁰が末端で結合して、C 2－C 9アルカンジイル基を表し、

- 群E 1は群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいフェノキシ基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいフェニルアミノ基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 1－C 6アルコキシ基、C 1－C 6アルキルアミノ基、C 2－C 1 2ジアルキルアミノ基、ニトロ基、シアノ基、ホルミル基及びハロゲン原子からなる群を表し、群E 2はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 1－C 6アルキルアミノ基、C 2－C 1 2ジアルキルアミノ基、ニトロ基、シアノ基、ホルミル基及びハロゲン原子からなる群を表す。]
- 10 で示されるヒドラジド化合物と、

ジノテフランとを含有する組成物が、有害生物に対して優れた防除効力を有することを見出し、本発明に到った。

- 15 即ち、本発明は以下の発明を含む。

[発明 1]

式(1)で示されるヒドラジド化合物と、ジノテフランとを含有する有害生物防除組成物。

[発明 2]

- 20 式(1)において、GがG-1で示される基であり、Y¹が酸素原子であり、R¹がトリフルオロメチル基であり、Q¹、Q³及びQ⁴がCH基であり、Q²がCR³基であり、R³が上記定義した基であり、(R²)_mが3位および5位の置換基であり、mが2であり、R²が塩素原子である発明1に記載の有害生物防除組成物。

[発明 3]

- 25 式(1)において、R⁶が水素原子である発明1又は2に記載の有害生物防除組成物。

[発明 4]

式(1)において、R⁵が水素原子またはメチル基である発明1～3のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明 5]

- 30 式(1)において、R³がハロゲン原子である発明1～4のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明 6]

式(1)において、 R^3 が塩素原子である発明1～5のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明7]

式(1)において、 R^4 がC2-C6アルキル基、C1-C6ハロアルキル基、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基である発明1～6のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明8]

式(1)において、 R^4 がC2-C6アルキル基である発明1～7のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

10 [発明9]

式(1)において、 R^4 がC1-C6ハロアルキル基である発明1～7のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明10]

式(1)において、 R^4 がC3-C6シクロアルキル基である発明1～7のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明11]

式(1)において、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基である発明1～7のいずれかに記載の有害生物防除組成物。

[発明12]

20 発明1の式(1)で示されるヒドラジド化合物と、ジノテフランとの有効量を、有害生物又は有害生物の生息場所に施用する有害生物の防除方法。

[発明13]

有害生物を防除する為の、発明1の式(1)で示されるヒドラジド化合物と、ジノテフランとの組み合わせの使用。

25

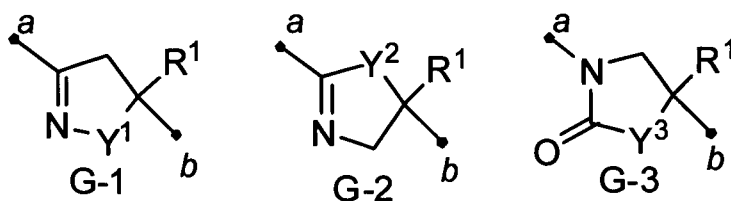
発明を実施するための形態

本発明の有害生物防除組成物において、式(1)で示されるヒドラジド化合物(以下、本ヒドラジド化合物と記す。)と、ジノテフランとの重量比は、好ましくは1000:1～1:1000、より好ましくは500:1～1:500、100:1～1:100、

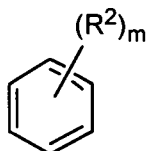
30

10:1～1:10の範囲内である。

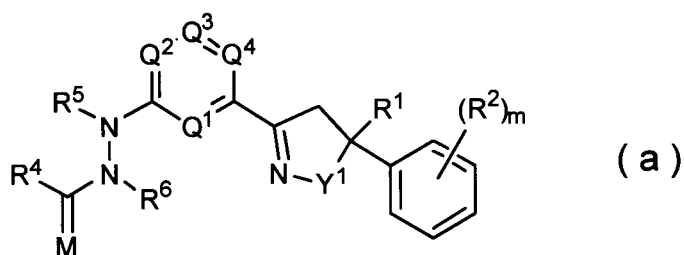
「Gが下記式G-1～G-3のいずれかで示される基



(尚、点 a 及び点 b は結合手を表し、点 b はフェニル環との結合手を表す。) を表す」におけるフェニル環とは、下記式



- 5 [式中、 R^2 及び m は前記と同じ意味を表す。] で示されるフェニル環を意味し、例えば「式 (1) において、 G が $G-1$ で示される基であるヒドラジド化合物」とは、下記式 (a)



- 10 [式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 、 Q^4 、 R^1 、 R^2 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 M 、 Y^1 及び m は前記と同じ意味を表す。] で示される化合物を意味する。

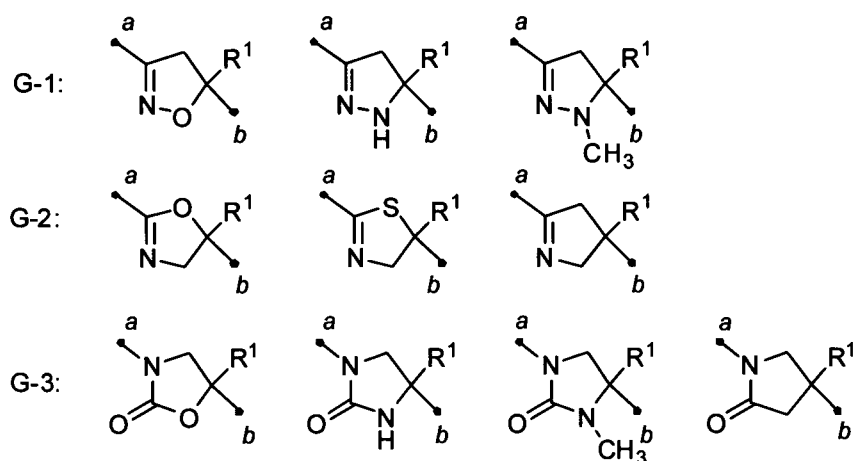
本発明において、「ハロゲン原子」はフッ素原子、塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子を意味する。

また、本明細書において、例えば「 $C2-C6$ アルキルアミノカルボニル基」で示される「 $C2-C6$ 」の部分の記載はアルキルアミノカルボニル基の全体を構成する炭素

- 15 原子数が 2～6 の範囲であることを意味する。

本ヒドラジド化合物の、各置換基の例を以下に示す。

$G-1 \sim G-3$ のいずれかで示される基としては、例えば以下の基が挙げられる。



本明細書中において、

- 「C 1－C 4ハロアルキル基」としては、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、ジクロロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロフルオロメチル基、ブromoフルオロメチル基、クロロジフルオロメチル基、ブromodijフルオロメチル基、1－フルオロエチル基、1, 1－ジフルオロエチル基、1, 1, 2, 2, 2－ペンタフルオロエチル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 3－ヘプタフルオロプロピル基及び1, 2, 2, 2－テトラフルオロ－1－（トリフルオロメチル）エチル基が挙げられる。

- 「C 1－C 6アルキル基」としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec－ブチル基、tert－ブチル基、ペンチル基、1－メチルブチル基、2－メチルブチル基、3－メチルブチル基、1－エチルプロピル基、1, 1－ジメチルプロピル基、1, 2－ジメチルプロピル基、2, 2－ジメチルプロピル基、ヘキシル基、1－メチルペンチル基、2－メチルペンチル基、1, 1－ジメチルブチル基及び1, 3－ジメチルブチル基が挙げられる。

- 「C 2－C 6アルケニル基」としては、例えばビニル基、1－プロペニル基、2－プロペニル基、1－メチル－2－プロペニル基、2－メチル－2－プロペニル基、1－ブテニル基、2－ブテニル基、3－ブテニル基、1－ペンテニル基、2－ペンテニル基、3－ペンテニル基、4－ペンテニル基、1－ヘキセニル基、2－ヘキセニル基、3－ヘキセニル基、4－ヘキセニル基及び5－ヘキセニル基が挙げられる。

- 「C 2－C 6アルキニル基」としては、例えばエチニル基、1－プロピニル基、2－プロピニル基、1－ブチニル基、2－ブチニル基、3－ブチニル基、1－ペンチニル基、2－ペンチニル基、3－ペンチニル基、4－ペンチニル基、1－ヘキシニル基、2－ヘキシニル基、3－ヘキシニル基、4－ヘキシニル基及び5－ヘキシニル基が挙げられる。

「C 3－C 6シクロアルキル基」としては、例えばシクロプロピル基、1－メチルシ

クロプロピル基、2-メチルシクロプロピル基、2, 2-ジメチルシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、1-メチルシクロペンチル基、2-メチルシクロペンチル基、3-メチルシクロペンチル基及びシクロヘキシル基が挙げられる。

- 「C4-C7シクロアルキルアルキル基」としては、例えばシクロプロピルメチル基、
 5 1-シクロプロピルエチル基、2-シクロプロピルエチル基、シクロブチルメチル基、シクロペンチルメチル基及びシクロヘキシルメチル基が挙げられる。

「C2-C6アルキルカルボニル基」としては、例えばアセチル基、プロピオニル基、ブチロイル基、イソブチロイル基及びピバロイル基が挙げられる。

- 「C2-C6アルコキシカルボニル基」としては、例えばメトキシカルボニル基、エ
 10 トキシカルボニル基、イソプロピルオキシカルボニル基、ブトキシカルボニル基、tert-ブトキシカルボニル基及びペンチルオキシカルボニル基が挙げられる。

「C2-C6アルキルアミノカルボニル基」としては、例えばN-メチルアミノカルボニル基、N-エチルアミノカルボニル基、N-プロピルアミノカルボニル基、N-ブチルアミノカルボニル基及びN-ペンチルアミノカルボニル基が挙げられる。

- 15 「C3-C9ジアルキルアミノカルボニル基」としては、例えばN, N-ジメチルアミノカルボニル基及びN, N-ジエチルアミノカルボニル基が挙げられる。

「C1-C6アルコキシ基」としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、ペンチルオキシ基及びヘキシルオキシ基が挙げられる。

- 20 「ハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基」としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、1-メチルブチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、1-エチルプロピル基、1, 1-ジメチルプロピル基、1, 2-ジメチルプロピル基、2, 2-ジメチルプロピル基、ヘキシル基、1-メチルペンチル基、2
 25 -メチルペンチル基、1, 1-ジメチルブチル基、1, 3-ジメチルブチル基等のC1-C6アルキル基、

- フルオロメチル基、ジフルオロメチル基、ジクロロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロフルオロメチル基、ブromoフルオロメチル基、クロロジフルオロメチル基、ブromoジフルオロメチル基、1-フルオロエチル基、1, 1-ジフルオロエチル基、1, 1,
 30 2, 2, 2-ペンタフルオロエチル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 3-ヘプタフルオロプロピル基及び1, 2, 2, 2-テトラフルオロ-1-（トリフルオロメチル）エチル基等のC1-C6ハロアルキル基が挙げられる。

「ハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基」としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基等のC 1－C 6アルコキシ基、ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、クロロジ
 5 フルオロメトキシ基、ブロモジフルオロメトキシ基、2-フルオロエトキシ基、2-クロロエトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 2-テトラフル
 10 1, 1-ジフルオロエトキシ基、2-ブロモ-1, 1, 2-トリフルオロエトキシ基、2-ブロモ-1, 1, 2-トリフルオロエトキシ基、1, 1, 2, 2, 2-ペンタフルオロエトキシ基、
 2, 2-ジクロロ-1, 1, 2-トリフルオロエトキシ基、2, 2, 2-トリクロロ-
 15 C 6ハロアルコキシ基が挙げられる。

「C 1－C 6アルキルチオ基」としては、例えばメチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチルチオ基、ペンチルチオ基及びヘキシルチオ基が挙げられる。

「C 1－C 6アルキルスルフィニル基」としては、例えばメタンスルフィニル基、エ
 20 チルスルフィニル基、プロピルスルフィニル基、イソプロピルスルフィニル基、ブチル
 スルフィニル基、ペンチルスルフィニル基及びヘキシルスルフィニル基が挙げられる。

「C 1－C 6アルキルスルホニル基」としては、例えばメタンスルホニル基、エチル
 スルホニル基、プロピルスルホニル基、イソプロピルスルホニル基、ブチルスルホニル
 25 基、ペンチルスルホニル基及びヘキシルスルホニル基が挙げられる。

「C 3－C 12シクロアルキル基」としては、例えばシクロプロピル基、1-メチル
 シクロプロピル基、2-メチルシクロプロピル基、2, 2-ジメチルシクロプロピル基、
 2, 2, 3, 3-テトラメチルシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、
 1-メチルシクロペンチル基、2-メチルシクロペンチル基、3-メチルシクロペンチ
 30 3-メチルシクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、シクロヘプチル基及びシ
 クロオクチル基が挙げられる。

「C 2－C 9アルカンジイル基」としては、1, 2-エチレン基、1, 4-テトラメ

チレン基及び1, 5-ペンタメチレン基が挙げられる。

「群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1-C 1 2鎖式炭化水素基」におけるC 1-C 1 2鎖式炭化水素基としては、C 1-C 1 2アルキル基、C 2-C 1 2アルケニル基及びC 2-C 1 2アルキニル基が挙げられ、

- 5 「群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1-C 1 2鎖式炭化水素基」としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、1-メチルブチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、1-エチルプロピル基、1, 1-ジメチルプロピル基、1, 2-ジメチルプロピル基、2, 2-ジメチルプロピル基、ヘキシル基、1-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1, 1-ジメチルブチル基、1, 3-ジメチルブチル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基及びドデシル基等のC 1-C 1 2アルキル基；

- 15 ビニル基、1-メチルビニル基、1-フェニルビニル基、1-プロペニル基、2-プロペニル基、2-ブテニル基、1-メチル-2-プロペニル基、2-メチル-2-プロペニル基、2-ペンテニル基、2-メチル-2-ブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基、2-エチル-2-プロペニル基、1, 1-ジメチル-2-プロペニル基、2-ヘキセニル基、2-メチル-2-ペンテニル基、2, 4-ジメチル-2, 6-ヘプタジエニル基、3, 7-ジメチル-2, 6-オクタジエニル基等のC 2-C 1 2アルケニル基；

- 20 2-プロピニル基、2-ブチニル基、1-メチル-2-プロピニル基、2-ペンチニル基、1-メチル-2-ブチニル基、1, 1-ジメチル-2-プロピニル基及び2-ヘキシニル基等のC 2-C 1 2アルキニル基；

- 25 フルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、ヨードメチル基、ジフルオロメチル基、クロロフルオロメチル基、ジクロロメチル基、ブロモフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロジフルオロメチル基、ジクロロフルオロメチル基、トリクロロメチル基、ブロモジフルオロメチル基、ブロモクロロフルオロメチル基、ジフルオロヨードメチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基、2-ブロモエチル基、2, 2-ジフルオロエチル基、2-クロロ-2-フルオロエチル基、2, 2-ジクロロエチル基、2-ブロモ-2-フルオロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2-クロロ-2, 2-ジフルオロエチル基、2, 2-ジクロロ-2-フルオロエチル基、2, 2, 2-トリクロロエチル基、2-ブロモ-2, 2-ジフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-ペンタフルオロエチル基、1-クロロ-1, 2, 2, 2-テトラフルオロエチル基、2-クロロ-1, 1, 2, 2-

テトラフルオロエチル基、1, 2-ジクロロ-1, 2, 2-トリフルオロエチル基、1-ブロモ-1, 2, 2-テトラフルオロエチル基、2-ブロモ-1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基、2-フルオロプロピル基、2-クロロプロピル基、2, 3-ジクロロプロピル基、3, 3, 3-トリフルオロプロピル基、3-ブロモ-3, 3-ジフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロプロピル基、1, 1, 2, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロピル基、1, 1, 2, 2, 3, 3, 3-ヘプタフルオロプロピル基、2, 3-ジクロロ-1, 1, 2, 3, 3-ペンタフルオロプロピル基、2-フルオロ-1-メチルエチル基、2-クロロ-1-メチルエチル基、2-ブロモ-1-メチルエチル基、2, 2, 2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル基、1, 2, 2, 2-テトラフルオロ-1-(トリフルオロメチル)エチル基及び1, 1, 2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ノナフルオロブチル基等のC1-C12ハロアルキル基；

2, 2-フルオロビニル基、2, 2-ジクロロビニル基、2-フルオロ-2-プロペニル基、2-クロロ-2-プロペニル基、3-クロロ-2-プロペニル基、2-ブロモ-2-プロペニル基、3-ブロモ-2-プロペニル基、3, 3-ジフルオロ-2-プロペニル基、2, 3-ジクロロ-2-プロペニル基、3, 3-ジクロロ-2-プロペニル基、2, 3-ジブロモ-2-プロペニル基、2, 3, 3-トリフルオロ-2-プロペニル基、2, 3, 3-トリクロロ-2-プロペニル基、3-クロロ-2-ブテニル基、3-ブロモ-2-ブテニル基、4, 4-ジフルオロ-3-ブテニル基、3, 4, 4-トリフルオロ-3-ブテニル基、3-クロロ-3, 4, 4-トリフルオロ-2-ブテニル基及び3-ブロモ-2-メチル-2-プロペニル基等のC2-C12ハロアルケニル基；

3-クロロ-2-プロピニル基、3-ブロモ-2-プロピニル基及び3-ヨード-2-プロピニル基等のC2-C12ハロアルキニル基；

シアノメチル基等のシアノ(C1-C12アルキル)基；

25 ニトロメチル基等のC1-C12ニトロアルキル基；

N, N-ジメチルアミノメチル基等の(C2-C12ジアルキルアミノ)C1-C12アルキル基；

N-エチルアミノメチル基等の(C1-C6アルキルアミノ)C1-C12アルキル基；

30 メトキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-プロポキシエチル基、2-イソプロポキシエチル基、2-ブトキシエチル基、2-イソブトキシエチル基、2-(1-メチルプロピルオキシ)エチル基及び2-(1, 1-ジメチルエト

キシ) エチル基等の (C 1 - C 6 アルコキシ) C 1 - C 1 2 アルキル基 ;

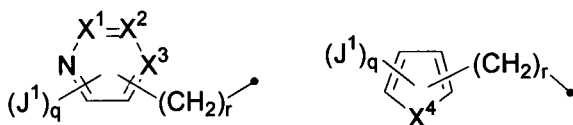
メトキシカルボニルメチル基、エトキシカルボニルメチル基、プロポキシカルボニルメチル基、イソプロポキシカルボニルメチル基及び tert-ブトキシカルボニルメチル基等の (C 2 - C 6 アルコキシカルボニル) C 1 - C 1 2 アルキル基 ;

- 5 アセチルメチル基、2-アセチルエチル基等の (C 2 - C 6 アルキルカルボニル) C 1 - C 1 2 アルキル基 ;

フェノキシメチル基、4-クロロフェノキシメチル基、フェノキシエチル基等の群 E 2 より選ばれる基で置換されていてもよいフェノキシ基で置換された C 1 - C 1 2 アルキル基 ;

- 10 フェニルアミノメチル基、4-クロロフェニルアミノメチル基、フェニルアミノエチル基等の群 E 2 より選ばれる基で置換されていてもよいフェニルアミノ基で置換された C 1 - C 1 2 アルキル基 ;

下記式



- 15 [式中、X¹、X²及びX³は、3つすべてがCH基を示す組み合わせを表すか、いずれか1つが窒素原子かつ他の2つがCH基を示す組み合わせを表し、X⁴は酸素原子、硫黄原子又はNH基を表し、rは1～12の整数を表し、qは0～3の整数を表し、J¹はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1 - C 6 アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC 1 - C 6 アルコキシ基、C 2 - C 6 アルキルカルボニル基、C 2 - C 6 アルコキシカルボニル基、C 1 - C 6 アルキルアミノ基、C 2 - C 1 2 ジアルキルアミノ基、ニトロ基、シアノ基、ホルミル基又はハロゲン原子を表す。]
- 20

等で示される基等の群 E 2 より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基で置換された C 1 - C 1 2 アルキル基 ;

- 25 ベンジル基、フェネチル基、4-メチルベンジル基、4-クロロベンジル基、2-(シクロプロピル)エチル基及びシクロプロピルメチル等の群 E 2 より選ばれる基で置換されていてもよいC 3 - C 1 2 環式炭化水素基で置換された C 1 - C 1 2 アルキル基が挙げられる。

- 30 「群 E 2 より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基」としては、例えばベンゾイル基、2-フルオロベンゾイル基、3-フルオロベンゾイル基、4-フルオロベンゾイル基、2-クロロベンゾイル基、3-クロロベンゾイル基、4-クロロベンゾイ

ル基、2-メトキシベンゾイル基、3-メトキシベンゾイル基、4-メトキシベンゾイル基、2-シアノベンゾイル基、3-シアノベンゾイル基、4-シアノベンゾイル基、2-ニトロベンゾイル基、3-ニトロベンゾイル基及び4-ニトロベンゾイル基が挙げられる。

5 本ヒドラジド化合物におけるC 3－C 1 2環式炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基及びC 3－C 1 2シクロアルキル基が挙げられ、

「群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3-C 1 2環式炭化水素基」としては、例えばフェニル基、2-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、4-メチルフェニル基、2-(トリフルオロメチル)フェニル基、3-(トリフルオロメチル)フ

10 エニル基、4-(トリフルオロメチル)フェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、2-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、4-クロロフェニル基、2-ブロモフェニル基、3-ブロモフェニル基、4-ブロモフェニル基、2-ヨードフェニル基、3-ヨードフェニル基、4-ヨードフェニル基、2-シアノフェニル基、3-シアノフェニル基、4-シアノフェニル基、2-ニ

15 トロフェニル基、3-ニトロフェニル基、4-ニトロフェニル基、2-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、2-(トリフルオロメトキシ)フェニル基、3-(トリフルオロメトキシ)フェニル基、4-(トリフルオロメトキシ)フェニル基、2, 3-ジクロロフェニル基、2, 4-ジクロロフェニル基、2, 5-ジクロロフェニル基、2, 6-ジクロロフェニル基、3, 4-ジクロロフェニル基、

20 3, 5-ジクロロフェニル基、2, 3, 4-トリクロロフェニル基、2, 3, 5-トリクロロフェニル基、3, 4, 5-トリクロロフェニル基、2, 4, 6-トリクロロフェニル基、2, 3-ジフルオロフェニル基、2, 4-ジフルオロフェニル基、2, 5-ジフルオロフェニル基、2, 6-ジフルオロフェニル基、3, 4-ジフルオロフェニル基、3, 5-ジフルオロフェニル基、3, 4, 5-トリフルオロフェニル基、2, 3, 5,

25 6-テトラフルオロフェニル基、2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロフェニル基、3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル基、2, 3-ジメトキシフェニル基、2, 4-ジメトキシフェニル基、2, 5-ジメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、3, 4-ジメトキシフェニル基、3, 5-ジメトキシフェニル基、4-メトキシカルボニルフェニル基及び4-エトキシカルボニルフェニル基等のフェニル基；

30 シクロプロピル基、1-メチルシクロプロピル基、2-メチルシクロプロピル基、2, 2-ジメチルシクロプロピル基、2, 2, 3, 3-テトラメチルシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、1-メチルシクロペンチル基、2-メチルシクロペ

ンチル基、3-メチルシクロペンチル基、シクロヘキシル基、1-メチルシクロヘキシル基、2-メチルシクロヘキシル基、3-メチルシクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、シクロヘプチル基及びシクロオクチル基等のC₃-C₁₂シクロアルキル基が挙げられる。

- 5 「群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基」における5～6員ヘテロ環基としては、テトラヒドロフラニル基、フラニル基、チエニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、イソチアゾリル基等の酸素原子、硫黄原子及び／又は窒素原子がヘテロ原子である5員ヘテロ環基；

- 10 ピペリジノ基、モルフォリノ基、ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジル基、ピラジニル基等の酸素原子、硫黄原子及び／又は窒素原子がヘテロ原子である6員ヘテロ環基が挙げられ、

- 「群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基」としては、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、2-フラニル基、3-フラニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、1-ピラゾリル基、3-ピラゾリル基、4-ピラゾリル基、3-イソオキサゾリル基、4-イソオキサゾリル基、5-イソオキサゾリル基、3-イソチアゾリル基、4-イソチアゾリル基、5-イソチアゾリル基、1-イミダゾリル基、2-イミダゾリル基、4-イミダゾリル等、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル等、2-チアゾリル基、4-チアゾリル基、5-チアゾリル基、1, 2, 4-トリアゾール-1-イル基、1, 2, 4-トリアゾール-3-イル基、1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル基、1, 3, 4-チアジアゾール-2-イル基、1, 2, 4-オキサジアゾール-3-イル基、1, 2, 4-オキサジアゾール-5-イル基、1, 2, 4-チアジアゾール-3-イル基、1, 2, 4-チアジアゾール-5-イル基、1-ピロリジニル基、2-ピロリジニル基、3-ピロリジニル基、2-テトラヒドロフラニル基、3-テトラヒドロフラニル基、1-ピペリジノ基、1-モルフォリノ基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基、3-ピリダジニル基、4-ピリダジニル基、2-ピリミジニル基、4-ピリミジニル基、5-ピリミジニル基、2-ピラジニル基、1, 2, 4-トリアジン-3-イル基、1, 2, 4-トリアジン-5-イル基及び1, 2, 4-トリアジン-6-イル基、1, 3, 5-トリアジン-2-イル基が挙げられる。

- 30 「C₁-C₆アルキルアミノ基」としては、N-メチルアミノ基、N-エチルアミノ基、N-プロピルアミノ基、N-ブチルアミノ基及びN-ペンチルアミノ基が挙げられる。

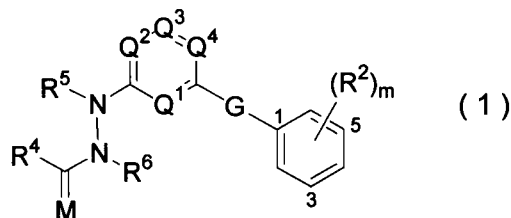
「C 2 - C 1 2 ジアルキルアミノ基」としては、例えばN, N-ジメチルアミノ基及びN, N-ジエチルアミノ基が挙げられる。

上記OR⁸基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、sec-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、ビニルオキシ基、アリルオキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、シアノメトキシ基、2- (N, N-ジメチルアミノ) エトキシ基、2- (N-メチルアミノ) エトキシ基、2-メトキシエトキシ基、メトキシカルボニルメトキシ基、アセチルメトキシ基、2-フェノキシエトキシ基、2- (フェニルアミノ) エトキシ基、2-ピリジルオキシ基、ベンジルオキシ基、フェノキシ基、シクロヘキシルオキシ基、フラン-2-オキシ基、ピリジン-2-オキシ基等が挙げられる。

上記N(R⁹)R¹⁰基としては、例えば、N-メチルアミノ基、N, N-ジメチルアミノ基、N-エチルアミノ基、N, N-ジエチルアミノ基、N-メチル-N-エチルアミノ基、N-アリルアミノ基、N- (2, 2, 2-トリフルオロエチル) アミノ基、N- (2- (N, N-ジメチルアミノ) エチル) アミノ基、N- (2- (N-メチルアミノ) エチル) アミノ基、N- (2-メトキシエチル) アミノ基、N- (メトキシカルボニルメチル) アミノ基、N- (2-フェノキシエチル) アミノ基、N- (2- (フェニルアミノ) エチル) アミノ基、N-ベンジルアミノ基、N-フェニルアミノ基、N-フェニル-N-メチルアミノ基、N-シクロヘキシルアミノ基、N-シクロヘキシル-N-メチルアミノ基、ピロリジン-1-イル基、ピペリジン-1-イル基等が挙げられる。

20

本ヒドラジド化合物の態様としては、例えば以下のヒドラジド化合物が挙げられる。



式 (1) において、G が G-1 で示される基であるヒドラジド化合物；

式 (1) において、G が G-1 で示される基であり、Y¹ が酸素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1) において、R¹ がトリフルオロメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1) において、Q¹、Q²、Q³ 及び Q⁴ が CH 基であるヒドラジド化合物；

式 (1) において、Q¹、Q³ 及び Q⁴ が CH 基であり、Q² が CR³ 基であり、R³ は上記定義したものであるヒドラジド化合物；

式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 がC1-C6アルキル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 5 式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 がエチル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 がハロゲン原子であるヒドラジド化合物；

- 10 式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 がフッ素原子であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 が塩素原子であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 が臭素原子であるヒドラジド化合物；

- 15 式(1)において、 m が2であり、 R^2 が各々ハロゲン原子であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 m が2であり、 R^2 が各々塩素原子であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 $(R^2)_m$ が3位および5位の置換基であり、 m が2であり、 R^2 が各々塩素原子であるヒドラジド化合物；

- 20 式(1)において、 R^4 が群E1より選ばれる基で置換されていてもよいC1-C12鎖式炭化水素基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^4 が群E2より選ばれる基で置換されていてもよいC3-C12環式炭化水素基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^4 が群E2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基であるヒドラジド化合物；

- 25 式(1)において、 R^4 が OR^8 基であり、 R^8 は上記定義したものであるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^4 が $N(R^9)R^{10}$ 基であり、 R^9 および R^{10} は上記定義したものであるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 30 式(1)において、 R^5 が群E1より選ばれる基で置換されていてもよいC1-C12鎖式炭化水素基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 がC2-C6アルコキシカルボニル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 がC2-C6アルキルカルボニル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 がアセチル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 が群E2より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基
5 であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^5 がベンゾイル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1)において、 R^6 が群E1より選ばれる基で置換されていてもよいC1-C12
鎖式炭化水素基であるヒドラジド化合物；

10 式(1)において、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

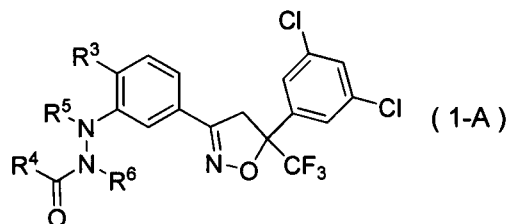
式(1)において、GがG-1で示される基であり、 Y^1 が酸素原子であり、 R^1 がトリフルオロメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、GがG-1で示される基であり、 Y^1 が酸素原子であり、 R^1 がトリフルオロメチル基であり、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であるヒドラジド化合物；

15 式(1)において、GがG-1で示される基であり、 Y^1 が酸素原子であり、 R^1 がトリフルオロメチル基であり、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3 が上記定義した基であるヒドラジド化合物；

式(1)において、GがG-1で示される基であり、 Y^1 が酸素原子であり、 R^1 がトリフルオロメチル基であり、 Q^1 、 Q^3 及び Q^4 がCH基であり、 Q^2 が CR^3 基であり、 R^3

20 が上記定義した基であり、 $(R^2)_m$ が3位および5位の置換基であり、mが2であり、 R^2 が塩素原子である下式(1-A)に示されるヒドラジド化合物；



式(1-A)において、 R^3 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がメチル基であるヒドラジド化合物；

25 式(1-A)において、 R^3 がエチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がフッ素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であるヒドラジド化合物；

- 式 (1-A)において、 R^3 が臭素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1) において、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1) において、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 5 式 (1-A)において、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 10 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 15 化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 20 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 が水素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 がメチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 25 であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 がエチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 30 式 (1-A)において、 R^3 がフッ素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；
- 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子

であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が臭素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

5 式 (1-A)において、 R^3 が水素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がメチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がエチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

10 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がフッ素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

15 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が臭素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が水素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

20 式 (1-A)において、 R^3 がメチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がエチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

25 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がフッ素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

30 式 (1-A)において、 R^3 が臭素原子であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が水素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基

であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がメチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がエチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がフッ素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

10 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が臭素原子であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 2-C 6アルキル、C 1-C 6ハロアルキル、C 3-C 6シクロアルキル基または (C 1-C 6アルコキシ) C 1-C 6アルキル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 2-C 6アルキル、C 1-C 6ハロアルキル、C 3-C 6シクロアルキル基または (C 1-C 6アルコキシ) C 1-C 6アルキル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

20 式 (1-A)において、 R^4 がC 2-C 6アルキル、C 1-C 6ハロアルキル、C 3-C 6シクロアルキル基または (C 1-C 6アルコキシ) C 1-C 6アルキル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 2-C 6アルキル、C 1-C 6ハロアルキル、C 3-C 6シクロアルキル基または (C 1-C 6アルコキシ) C 1-C 6アルキル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 2-C 6アルキル、C 1-C 6ハロアルキル、C 3-C 6シクロアルキル基または (C 1-C 6アルコキシ) C 1-C 6アルキル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 2-C 6アルキル、C 1-C 6ハロアルキル、C 3-C 6シクロアルキル基または (C 1-C 6アルコキシ) C 1-C 6アルキル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がC 1-C 6アルキル基、ハロゲン原子または水素原子であ

り、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がC1-C6アルキル基、ハロゲン原子または水素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がC1-C6アルキル基、ハロゲン原子または水素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がC1-C6アルキル基、ハロゲン原子または水素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がC1-C6アルキル基、ハロゲン原子または水素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がC1-C6アルキル基、ハロゲン原子または水素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6ハロアルキル、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル、C1-C6

ハロアルキル、C₃–C₆シクロアルキル基または(C₁–C₆アルコキシ)C₁–C₆アルキル基であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R³が塩素原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル、C₁–C₆ハロアルキル、C₃–C₆シクロアルキル基または(C₁–C₆アルコキシ)C₁–C₆アルキル基であり、R⁵が水素原子であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R³が塩素原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル、C₁–C₆ハロアルキル、C₃–C₆シクロアルキル基または(C₁–C₆アルコキシ)C₁–C₆アルキル基であり、R⁵がメチル基であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がC₁–C₆アルキル基であるヒドラジド化合物；

10 式(1-A)において、R⁴がC₂–C₆アルキル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がエチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がプロピル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がイソプロピル基であるヒドラジド化合物；

15 式(1-A)において、R⁴がブチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がt-ブチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴が2-メチルプロピル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R⁴がペンチル基であるヒドラジド化合物；

20 式(1-A)において、R³がハロゲン原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R³がハロゲン原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R³がハロゲン原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であり、R⁵が水素原子であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

25 式(1-A)において、R³がハロゲン原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であり、R⁵がメチル基であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R³が塩素原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であるヒドラジド化合物；

30 式(1-A)において、R³が塩素原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、R³が塩素原子であり、R⁴がC₂–C₆アルキル基であり、R⁵が水素原子であり、R⁶が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC2-C6アルキル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

5 式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

10 式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がメチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

15 式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

20 式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

25 式(1-A)において、 R^4 がエチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

30 式(1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 5 式 (1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 10 式 (1-A)において、 R^4 がプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 15 式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 20 式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 25 式 (1-A)において、 R^4 がイソプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 30 式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 5 式 (1-A)において、 R^4 がブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 10 式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 15 式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 20 式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がt-ブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 25 式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 30 式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 5 式 (1-A)において、 R^4 が2-メチルプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 10 式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 15 式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 20 式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がペンチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 1-C 6 ハロアルキル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC 1-C 6 フルオロアルキル基であるヒドラジド化合物；

- 25 式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であるヒドラジド化合物；

- 30 式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6 フルオロアルキル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であるヒドラジド化合物；

- 5 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 10 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 15 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 20 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であるヒドラジド化合物；

- 25 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 30 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 5 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がC 1-C 6フルオロアルキル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 10 式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 15 式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 20 式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が2, 2, 2-トリフルオロエチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 25 式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 30 式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 5 式 (1-A)において、 R^4 が3, 3, 3-トリフルオロプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 10 式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 15 式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

- 20 式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が4, 4, 4-トリフルオロブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がC3-C6シクロアルキル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であるヒドラジド化合物；

- 25 式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロプロピル基であるヒドラジド化合物；

- 30 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロブチル基であるヒドラ

ジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

5 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロペンチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロヘキシル基であるヒドラジド化合物；

10 式 (1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロプロピル基であるヒドラジド化合物；

15 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロブチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

20 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロペンチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

25 式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロヘキシル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

30 式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジ

ド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

5 式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

10 式 (1-A)において、 R^4 がシクロプロピル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

15 式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

20 式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

25 式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロブチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

30 式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジ

ド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

5 式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

10 式 (1-A)において、 R^4 がシクロペンチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

15 式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

20 式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

25 式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がシクロヘキシル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6 アルコキシ) C 1-C 6 アルキル基であるヒドラジド化合物；

30 式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6 アルコキシ) メチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がエトキシメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

5 式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

10 式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

15 式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 が (C 1-C 6アルコキシ) メチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

20 式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

25 式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

30 式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式 (1-A)において、 R^4 がメトキシメチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が

メチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

10 式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

15 式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 がハロゲン原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

20 式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 が水素原子であるヒドラジド化合物；

25 式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 がメチル基であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

30 式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式(1-A)において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が(C1-C6アルコキシ)メチル

基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 が水素原子であるヒドラジド化合物；

式（1-A）において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が（C1-C6アルコキシ）メチル基であり、 R^5 が水素原子であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物；

- 式（1-A）において、 R^3 が塩素原子であり、 R^4 が（C1-C6アルコキシ）メチル基であり、 R^5 がメチル基であり、 R^6 がメチル基であるヒドラジド化合物。

本発明の有害生物防除組成物の態様としては、例えば以下のものが挙げられる。

後述の製造例で示す本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物とジノテフランとを含有する組成物；

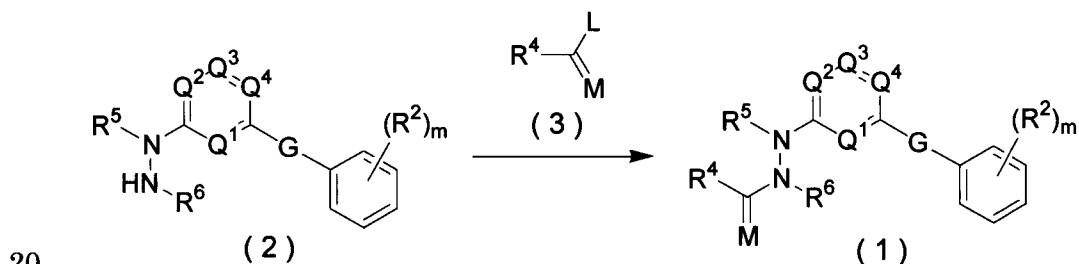
- 本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物とジノテフランとを、ヒドラジド化合物：ジノテフラン＝1000：1～1：1000の重量比で含有する組成物。

次に本ヒドラジド化合物の製造について、以下に説明する。

- 以下、式（ α ）で示される化合物を「化合物（ α ）」と表すことがある。

（製造法1）

本ヒドラジド化合物は、化合物（2）と化合物（3）とを反応させることにより製造することができる。



〔式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 、 Q^4 、 R^2 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 G 、 M 及び m は前記と同じ意味を表し、 L は水酸基又は塩素原子を表す。〕

該反応は、通常溶媒中で行われる。

- 反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1，4-ジオキサン等のエーテル類、N，N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類、アセトニトリル等のニトリル類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、スルホラン；1，2-ジクロロエタン、ク

ロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類及びそれらの混合物が挙げられる。

Lが塩素原子である場合、該反応は通常塩基の存在下で行われる。

該反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム *tert*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

Lが水酸基である場合、該反応は縮合剤の存在下で行われる。

該反応に用いられる縮合剤としては、例えばジシクロヘキシルカルボジイミド及び1-(3-ジメチルアミノプロピル)-3-エチルカルボジイミド塩酸塩が挙げられる。

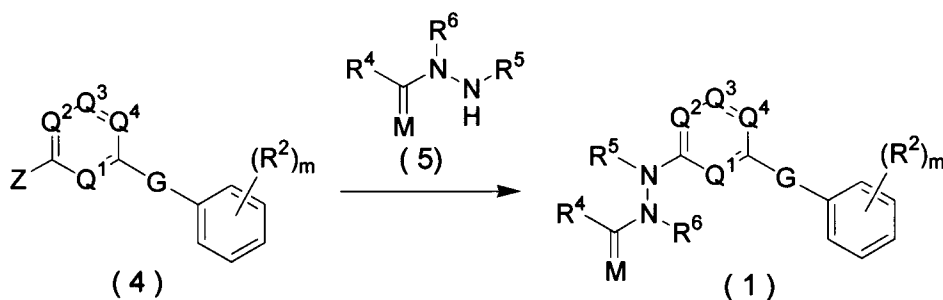
10 反応に用いられる試剤の量は、化合物(2) 1モルに対して、化合物(3)が通常1～10モルの割合であり、塩基又は縮合剤が通常1～10モルの割合である。

該反応の反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

15 反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本ヒドラジド化合物を単離することができる。単離された本ヒドラジド化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(製造法2)

20 本ヒドラジド化合物は、化合物(4)と化合物(5)とを反応させることにより製造することもできる。



25 [式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁴、R⁵、R⁶、G、M及びmは前記と同じ意味を表し、Zはフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、メタンスルホニルオキシ基、p-トルエンスルホニルオキシ基及びトリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表す。]

該反応は、通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、*tert*

ーブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル類、N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類、アセトニトリル等のニトリル類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、スルホラン；1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類及びそれらの混合物が挙げられる。

該反応は必要ならば塩基の存在下で行われる。

該反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、式(4)で示される化合物1モルに対して、式(5)で示される化合物が通常1～5モルの割合であり、塩基が通常1～5モルの割合である。

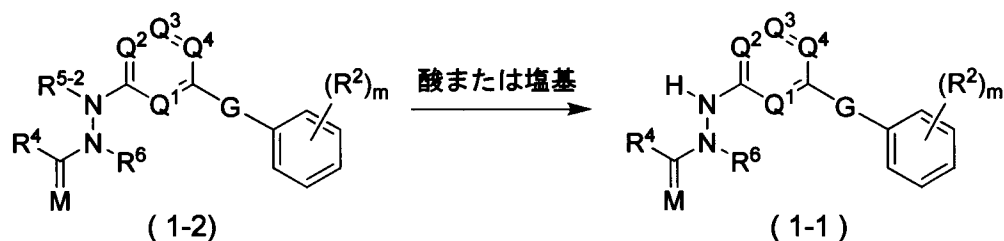
該反応の反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本ヒドラジド化合物を単離することができる。単離された本ヒドラジド化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

また、該反応は文献記載の一般的な遷移金属触媒を用いたカップリング反応、例えば Org. Lett., 3, 3803-3805 (2001)に記載の反応条件に準じて行うこともできる。

(製造法3)

本ヒドラジド化合物のうちR⁵が水素原子である化合物(1-1)は、本ヒドラジド化合物のうちR⁵がR⁵⁻²である化合物(1-2)を酸または塩基と反応させることにより製造することもできる。



〔式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁴、R⁶、G、M及びmは前記と同じ意味を表し、R⁵⁻²は、群E2より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基、C2-C6アルキルカルボニル基又はC2-C6アルコキシカルボニル基を表す。〕

該反応は、必要ならば溶媒を用いて行うこともできる。

該溶媒としては、例えば水、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル；、N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；アセトニトリル等のニトリル類、
5 トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；酢酸エチル等のエステル類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド；スルホラン；1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；メタノール、エタノール、n-プロパノールなどのアルコール類；及びそれらの混合物が挙げられる。

該酸としては、例えば、酢酸、トリフルオロ酢酸等の有機酸類；塩酸、臭化水素酸、
10 硫酸等の無機酸類が挙げられる。

該塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩；カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類及びトリエチアミン、ピリジン等の有機アミンが挙げられる。

上記酸は化合物（1-2）1モルに対して、通常1～100モルの量で用いられる。

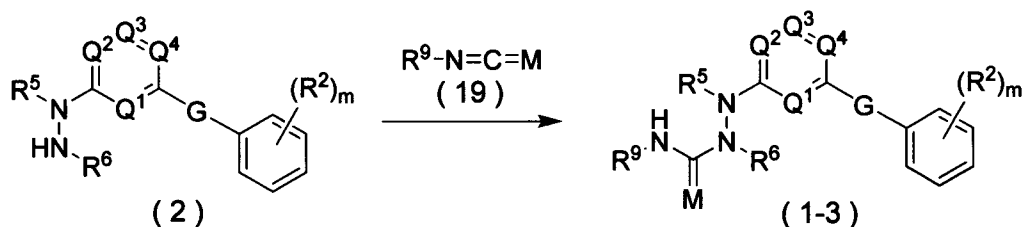
15 上記塩基は、化合物（1-2）1モルに対して、通常1～100モルの量で用いられる。

反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

20 反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本ヒドラジド化合物を単離することができる。単離された本ヒドラジド化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

（製造法4）

25 本ヒドラジド化合物のうち、R⁴がN(R⁹)R¹⁰基であり、R¹⁰が水素原子である化合物（1-3）は化合物（2）と化合物（19）とを反応させることにより製造することもできる。



〔式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁵、R⁶、R⁹、G、M及びmは前記と同じ意味を表す。〕

該反応は、通常溶媒中で行われる。必要ならば塩基存在下で反応させることもできる。

該溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、*tert*-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル；、
 N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；アセトニトリル等のニトリル類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；酢酸エチル等のエステル類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド；スルホラン；1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；及びそれらの混合物が挙げられる。

上記塩基としては、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム等の炭酸塩；トリエチアミン、ピリジン、4-(ジメチルアミノ)ピリジン、イミダゾール、1, 8-ジアザビシクロ[5, 4, 0]-7-ウンデセン等の有機アミンが挙げられる。

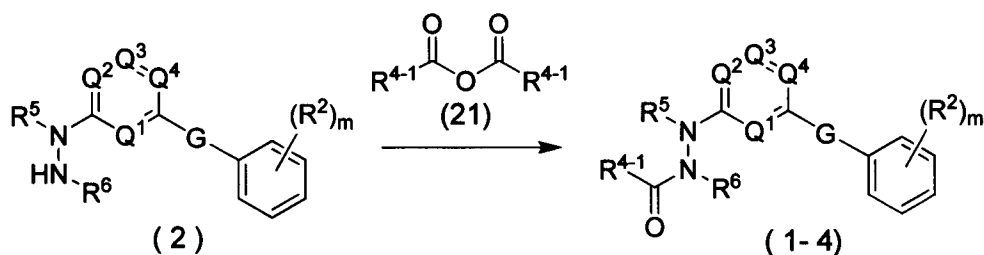
上記反応において、化合物(19)は、化合物(2) 1モルに対して、通常1～5モルの量で用いられる。上記塩基の添加が必要の場合は、化合物(2) 1モルに対して、通常1～5モルの量で用いられる。

反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本ヒドラジド化合物を単離することができる。単離された本ヒドラジド化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(製造法5)

本ヒドラジド化合物のうち、 R^4 が R^{4*1} であり、Mが酸素原子である化合物(1-4)は、化合物(2)と化合物(21)とを反応させることにより製造することができる。



[式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 、 Q^4 、 R^2 、 R^5 、 R^6 、G、及びmは前記と同じ意味を表し、 R^{4*1} は群E1より選ばれる基で置換されていてもよいC1-C12鎖式炭化水素基、群E2より選ばれる基で置換されていてもよいC3-C12環式炭化水素基、群E2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基又は OR^8 基を表し、 R^8 は前記と同じ意味を表す。]

該反応は、必要ならば溶媒を用いて行うこともできる。

該溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、*tert*-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル；
 5 N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；アセトニトリル等のニトリル；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；酢酸エチル等のエステル；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド；スルホラン；1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；及びそれらの混合物が挙げられる。

該反応は、必要ならば塩基の存在下で行うこともできる。

該塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物；炭酸カリウム
 10 等の炭酸塩；カリウム *tert*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド；及びトリエチルアミン、ピリジン、4-(ジメチルアミノ)ピリジン、イミダゾール等の有機塩基類が挙げられる。

上記反応において、化合物(21)は、化合物(2)1モルに対して、通常1~10モルの量で用いられ、必要であれば、溶媒として用いることもできる。上記塩基の添加
 15 が必要の場合は、化合物(2)1モルに対して、通常1~10モルの量で用いられる。

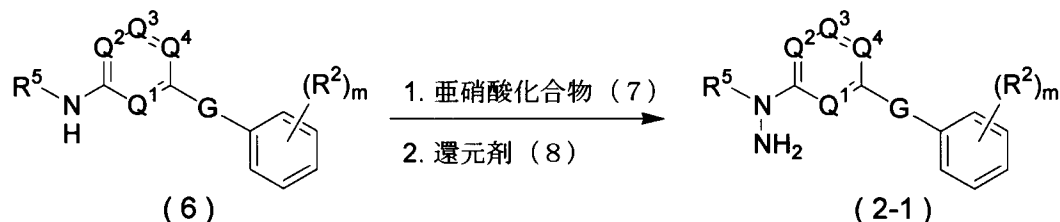
反応温度は、通常0~100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5~24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(1-4)を単離することもできる。単離された化合物(1-4)
 20 はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

次に本ヒドラジド化合物の製造に用いられる中間体の製造方法について説明する。

(参考製造法1)

化合物(2)のうち、R⁶が水素原子である化合物(2-1)は、化合物(6)と亜硝酸化合物(7)と反応させた後、次いで還元剤(8)と反応させることにより製造
 25 することができる。



[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁵、G及びmは前記と同じ意味を表す。]

該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えば水、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、

tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル類、N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、スルホラン；1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類及びそれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる亜硝酸化合物（7）としては、例えば亜硝酸ナトリウム等の亜硝酸塩、亜硝酸エチル等の亜硝酸エステル類が挙げられる。

反応に用いられる還元剤（8）としては、例えば亜硫酸ナトリウム等の亜硫酸塩、亜鉛等の金属、塩化スズ（II）等が挙げられる。

10 反応に用いられる試剤の量は、式（6）で示される化合物1モルに対して、亜硝酸化合物（7）が通常1～10モルの割合であり、還元剤（8）が通常1～10モルの割合である。

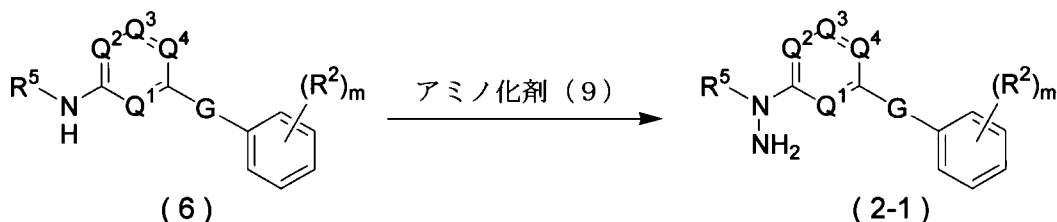
15 該反応の式（6）で示される化合物と亜硝酸化合物（7）を反応させる工程における反応温度は、通常-20～30℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

化合物（6）と亜硝酸化合物（7）を反応させる工程で得られる反応混合物は、そのまま還元剤（8）と反応させる工程に用いることができ、該工程における反応温度は、通常-20～50℃の範囲であり、反応時間は通常24時間までの範囲である。

20 反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（2-1）を単離することもできる。単離された化合物（2-1）はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

（参考製造法2）

化合物（2）のうち、R⁶が水素原子である化合物（2-1）は、化合物（6）とアミノ化剤（9）とを反応させることにより製造することもできる。



〔式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁵、G及びmは前記と同じ意味を表す。〕

該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えば水、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサ

ン等のエーテル類、N，N－ジメチルホルムアミド等の酸アミド類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、スルホラン；1，2－ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類及びそれらの混合物が挙げられる。

5 該反応は通常塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム tert－ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類、水酸化ナトリウム等の金属水酸化物及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

10 反応に用いられるアミノ化剤（9）としては、例えばクロラミン等のクロラミン類、O－メシトイルヒドロキシルアミン等のO－アシルヒドロキシルアミン類、O－スルホニルヒドロキシルアミン類、ヒドロキシルアミン－O－スルホン酸が挙げられる。

上記アミノ化剤（9）は該反応において、反応系中で発生させることもできる。例えば、上記アミノ化剤（9）としてクロラミンを用いる場合は、次亜塩素酸ナトリウムとアンモニアとを原料として用い、これらを反応系中で混合することによりクロラミンを発生させてもよい。

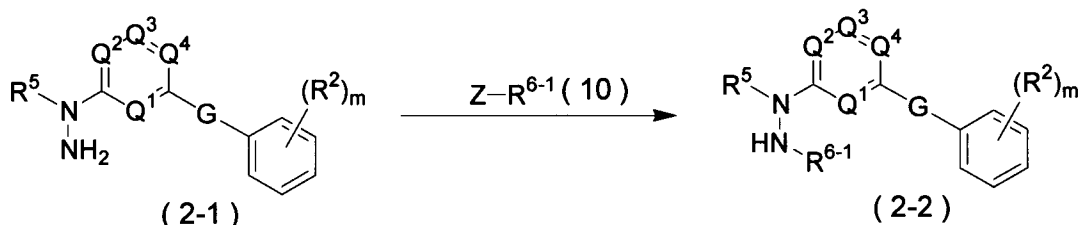
反応に用いられる試剤の量は、式（6）で示される化合物1モルに対して、アミノ化剤（9）が通常1～10モルの割合であり、塩基が通常1～10モルの割合である。

15 該反応の反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（2－1）を単離することもできる。単離された化合物（2－1）はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

（参考製造法3）

25 化合物（2）のうち、R⁶がR⁶⁻¹である化合物（2－2）は、化合物（2－1）と化合物（10）とを反応させることにより製造することができる。



〔式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁵、G、Z及びmは前記と同じ意味を表し、R⁶⁻¹は

群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 3－C 1 2シクロアルキル基又はホルミル基を表す。]

5 該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル類、N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類、アセトニトリル等のニトリル類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、スルホラン；1, 2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類及びそれらの混合物が挙げられる。

該反応は通常塩基の存在下で行われる。

15 反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

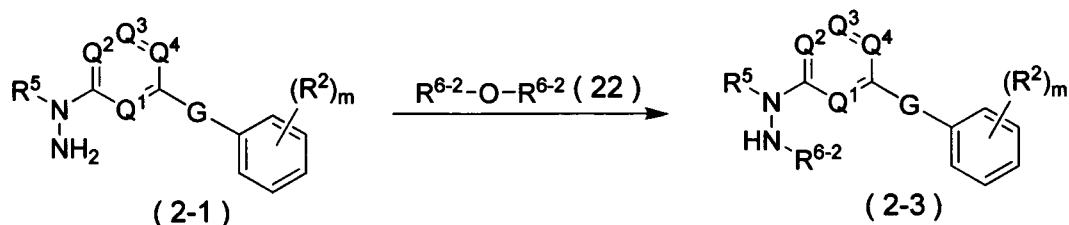
反応に用いられる試剤の量は、式(2-1)で示される化合物1モルに対して、化合物(10)が通常1～10モルの割合であり、塩基が通常1～10モルの割合である。

20 該反応の反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(2-2)を単離することもできる。単離された化合物(2-2)はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(参考製造法4)

25 化合物(2)のうち、R⁶がR⁶⁻²である化合物(2-3)は、化合物(2-1)と化合物(22)とを反応させることにより製造することができる。



[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、R⁵、G及びmは前記と同じ意味を表し、R⁶⁻²は群E

2より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基、C2-C6アルキルカルボニル基又はC2-C6アルコシカルボニル基を表す。]

該反応は、必要ならば溶媒を用いて行うこともできる。

該溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1,4-ジオキサン等のエーテル；N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；アセトニトリル等のニトリル；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；酢酸エチル等のエステル；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド；スルホラン；1,2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；及びそれらの混合物が挙げられる。

10 該反応は、必要ならば塩基の存在下で行うこともできる。

該塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物；炭酸カリウム等の炭酸塩；カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド；及びトリエチルアミン、ピリジン、4-(ジメチルアミノ)ピリジン、イミダゾール等の有機塩基類が挙げられる。

15 上記反応において、化合物(22)は、化合物(2-1)1モルに対して、通常1~10モルの量で用いられる。必要であれば、化合物(22)を溶媒として用いることもできる。

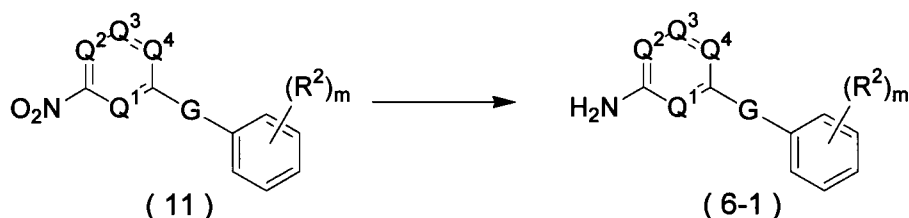
上記塩基の添加が必要な場合は、化合物(2-1)1モルに対して、通常1~10モルの量で用いられる。

20 反応温度は、通常0~100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5~24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(2-3)を単離することもできる。単離された化合物(2-3)はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

25 (参考製造法5)

化合物(6)のうち、R⁵が水素原子である化合物(6-1)は化合物(11)を以下の(i)~(iii)に示すいずれかの方法で還元することにより製造することができる。



[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R²、G及びmは前記と同じ意味を表す。]

(i) 遷移金属触媒の存在下、水素ガスと反応させる方法。

該反応は溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えば、酢酸エチル等のエステル類、エタノール、メタノール等のアルコール類、水、酢酸、塩酸及びこれらの混合物が挙げられる。

5 反応に用いられる遷移金属触媒としては、例えば、ラネーニッケル、パラジウム-炭素及び二酸化白金などが挙げられる。

反応に用いられる遷移金属触媒の量は、化合物(11) 1モルに対して、通常0.01～0.5モルの割合である。

10 上記水素ガスの量は、化合物(11) 1モルに対して、通常1～100モルの割合である。

該反応の反応時間は通常0～80℃の範囲であり、反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

15 反応終了後は、反応混合物を濾過し、必要に応じて有機溶媒抽出、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、式(6-1)で示される化合物を単離することができる。単離された式(6-1)で示される化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(ii) 塩基存在下、ヒドラジンと反応させる方法。

該反応は溶媒中で行われる。

20 反応に用いられる溶媒としては、例えば、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール等のエーテル類、水及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては、例えば、水酸化カリウム等のアルカリ金属水酸化物が挙げられる。

反応に用いられるヒドラジンとしては、例えばヒドラジン水和物が挙げられる。

25 反応に用いられる試剤の量は、化合物(11) 1モルに対して、塩基が通常1～10モルの割合であり、ヒドラジンが通常1～10モルの割合である。

該反応の反応時間は通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

30 反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、式(6-1)で示される化合物を単離することができる。単離された式(6-1)で示される化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(iii) 酸の存在下、金属と反応させる方法。

該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えば、エタノール等のアルコール類、水及びこれらの混合物が挙げられる。

5 反応に用いられる金属としては、例えば、鉄、スズ及び塩化スズ (I I) が挙げられる。

反応に用いられる酸としては、例えば、酢酸、塩酸及び硫酸が挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物 (1 1) 1 モルに対して、金属が通常 2 ~ 2 0 モルの割合であり、酸が通常 0. 1 ~ 1 0 モルの割合である。

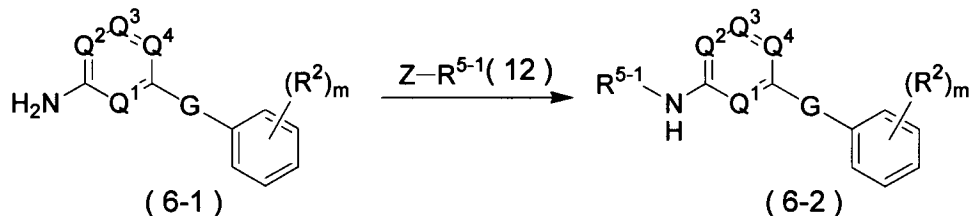
10 該反応の反応温度は通常 0 ~ 1 0 0 °C の範囲であり、反応時間は通常 0. 5 ~ 1 2 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を濾過し、必要に応じて有機溶媒抽出、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、式 (6-1) で示される化合物を単離することができる。単離された式 (6-1) で示される化合物はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

15

(参考製造法 6)

化合物 (6) のうち、 R^5 が R^{5-1} である化合物 (6-2) は、化合物 (6-1) と化合物 (1 2) とを反応させることにより製造することができる。



20 [式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 、 Q^4 、 R^2 、G、Z 及び m は前記と同じ意味を表し、 R^{5-1} は群 E 1 より選ばれる基で置換されていてもよい C 1 - C 1 2 鎖式炭化水素基、群 E 2 より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基、C 2 - C 6 アルキルカルボニル基、C 2 - C 6 アルコキシカルボニル基、C 3 - C 1 2 シクロアルキル基又はホルミル基を表す。]

25 該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1, 4-ジオキサン等のエーテル類；N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類；アセトニトリル等のニトリル類；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類；酢酸エチル等のエステル類；

ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類；スルホラン；1，2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類及びそれらの混合物が挙げられる。

該反応は通常塩基の存在下で行われる。

- 5 反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム *tert*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物(6-1) 1モルに対して、化合物(12)が通常1～10モルの割合であり、塩基が通常1～10モルの割合である。

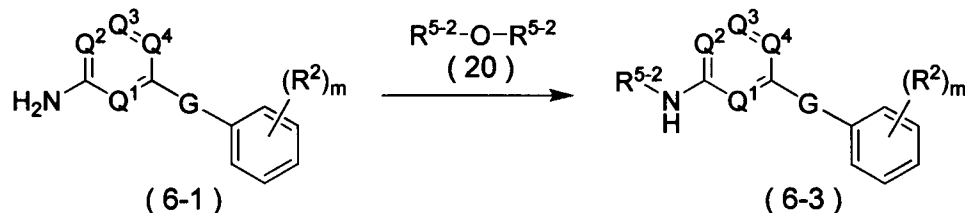
- 10 該反応の反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(6-2)を単離することもできる。単離された化合物(6-2)はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

15

(参考製造法7)

化合物(6)のうち、 R^5 が R^{5-2} である化合物(6-3)は、化合物(6-1)と化合物(20)とを反応させることにより製造することができる。



- 20 [式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 、 Q^4 、 R^2 、 R^{5-2} 、G及びmは前記と同じ意味を表す。]

該反応は、必要ならば溶媒を用いて行うこともできる。

- 該溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、*tert*-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1，4-ジオキサン等のエーテル；N，N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；アセトニトリル等のニトリル；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；酢酸エチル等のエステル；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド；スルホラン；1，2-ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素；及びそれらの混合物が挙げられる。
- 25

該反応は、必要ならば塩基の存在下で行うこともできる。

該塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物；炭酸カリウム

等の炭酸塩；カリウム *tert*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド；及びトリエチルアミン、ピリジン、4-（ジメチルアミノ）ピリジン、イミダゾール等の有機塩基類が挙げられる。

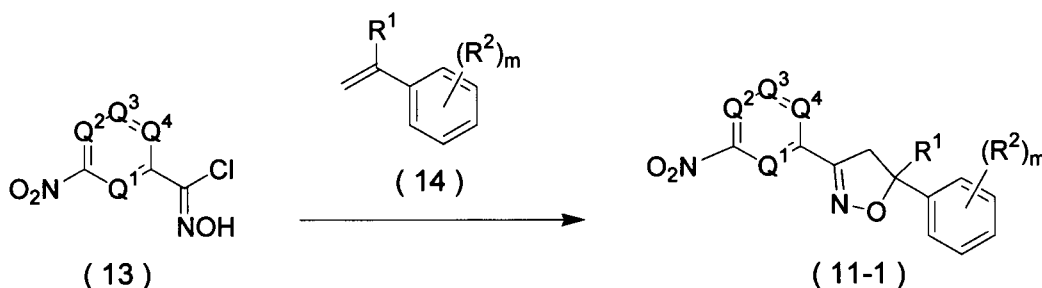
- 上記反応において、化合物（20）は、化合物（6-1）1モルに対して、通常1～10モルの量で用いられ、必要であれば、溶媒として用いることもできる。上記塩基の添加が必要の場合は、化合物（6-1）1モルに対して、通常1～10モルの量で用いられる。

反応温度は、通常0～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.5～24時間の範囲である。

- 10 反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（6-3）を単離することもできる。単離された化合物（6-3）はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

（参考製造法8）

- 15 化合物（11）のうち、GがG-1で示される基であり、Y¹が酸素原子である化合物（11-1）は、化合物（13）を塩基と反応させた後、次いで化合物（14）と反応させることにより製造することができる。



〔式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R¹、R²及びmは前記と同じ意味を表す。〕

- 20 該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、*tert*-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1,4-ジオキサン等のエーテル類；N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類；アセトニトリル等のニトリル類；トルエン等の炭化水素類；酢酸エチル等のエステル類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム *tert*-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキ

シド類、及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物（１３）１モルに対して、化合物（１４）が通常１～１０モルの割合であり、塩基が通常１～１０モルの割合である。

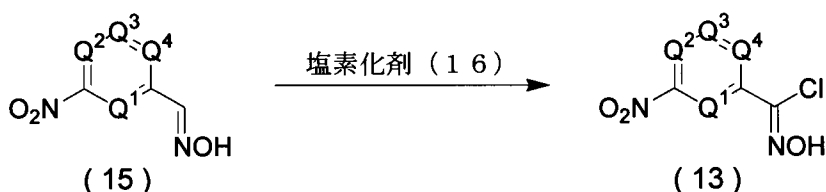
該反応の化合物（１３）と塩基とを反応させる工程における反応温度は、通常 0 ～ 80℃の範囲であり、反応時間は通常 0. 5 ～ 24 時間の範囲である。

化合物（１３）と塩基とを反応させる工程で得られる反応混合物は、そのまま化合物（１４）と反応させる工程に用いることができ、該工程における反応温度は、通常０～８０℃の範囲であり、反応時間は通常０．５～２４時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（１１－１）を単離することができる。単離された化合物（１１－１）はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(参考製造法 9)

化合物（１３）は、化合物（１５）を塩素化剤（１６）とを反応させることにより製造することができる。



[式中、 Q^1 、 Q^2 、 Q^3 及び Q^4 は前記と同じ意味を表す。]

該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert
20 ーブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1， 4－ジオキサン
等のエーテル類；トルエン等の炭化水素類；酢酸エチルなどのエステル類；N， N－ジ
メチルホルムアミド等の酸アミド類；アセトニトリル等のニトリル類；ジメチルスルホ
キシド等のスルホキシド類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩素化剤（16）としては、例えば塩素ガス及びN-クロロスクシ
25 ンイミドが挙げられる。

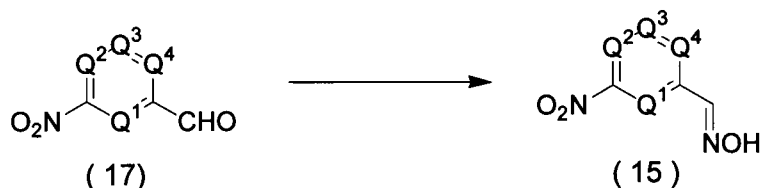
反応に用いられる試剤の量は、化合物（１５）１モルに対して、塩素化剤（１６）が通常１～１０モルの割合である。

該反応の反応温度は、通常 $-20\sim 80^{\circ}\text{C}$ の範囲であり。反応時間は通常 $0.5\sim 24$ 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（１３）を単離することもできる。単離された化合物（１３）はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

（参考製造法１０）

- 5 化合物（１５）は、化合物（１７）とヒドロキシルアミンとを反応させることにより製造することができる。



〔式中、Q¹、Q²、Q³及びQ⁴は前記と同じ意味を表す。〕

該反応は通常溶媒中で行われる。

- 10 反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1,4-ジオキサン等のエーテル類；トルエン等の炭化水素類；酢酸エチル等のエステル類；N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類；エタノール、メタノール等のアルコール類；アセトニトリル等のニトリル類；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類；水及びこれらの
- 15 混合物が挙げられる。

- 該反応に用いられるヒドロキシルアミンとしては、ヒドロキシルアミン塩酸塩及びヒドロキシルアミン硫酸塩等のヒドロキシルアミンと鉱酸との塩の形態で反応系内でヒドロキシルアミンを生成し得るものが挙げられるが、かかる場合には、該反応は塩基の存在下で行われる。かかる場合に用いられる塩基としては、例えばトリエチルアミン等の
- 20 有機アミン類、炭酸ナトリウム等の炭酸塩類及び水酸化ナトリウム等のアルカリ金属水酸化物類が挙げられる。

- 反応に用いられる試剤の量は、化合物（１７）１モルに対して、ヒドロキシルアミンが通常１～１０モルの割合であり、ヒドロキシルアミンと鉱酸との塩が用いられる場合に用いられる塩基の量は、ヒドロキシルアミンと鉱酸との塩１モルに対して通常１～
- 25 １０モルの割合である。

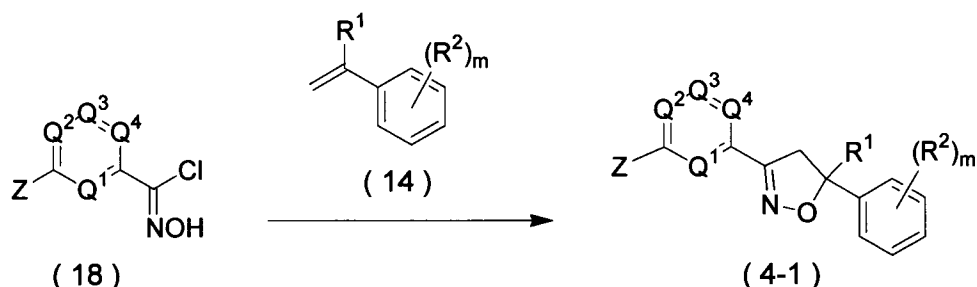
該反応の反応温度は、通常０～８０℃の範囲であり、反応時間は通常０．５～２４時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（１５）を単離することができる。単離された化合物（１５）はク

ロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(参考製造法 11)

化合物 (4) のうち、G が G-1 で示される基であり、Y¹ が酸素原子である化合物 (4-1) は、化合物 (18) を塩基と反応させた後、次いで化合物 (14) と反応させることにより製造することができる。



[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R¹、R²、Z 及び m は前記と同じ意味を表す。]

該反応は通常溶媒中で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、1,4-ジオキサン等のエーテル類；N,N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド類；アセトニトリル等のニトリル類、トルエン等の炭化水素類；酢酸エチル等のエステル類；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類、炭酸カリウム等の炭酸塩類、カリウム tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類、及びトリエチルアミン、ピリジン等の有機アミン類が挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物 (18) 1 モルに対して、化合物 (14) が通常 1～10 モルの割合であり、塩基が通常 1～10 モルの割合である。

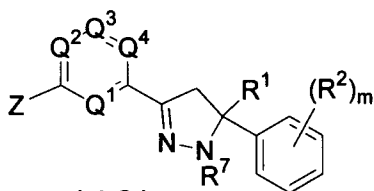
該反応の化合物 (18) と塩基とを反応させる工程における反応温度は、通常 0～80℃ の範囲であり、反応時間は通常 0.5～24 時間の範囲である。

化合物 (18) と塩基とを反応させる工程で得られる反応混合物は、そのまま化合物 (14) と反応させる工程に用いることができ、該工程における反応温度は、通常 0～80℃ の範囲であり、反応時間は通常 0.5～24 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒抽出し、乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物 (4-1) を単離することができる。単離された化合物 (4-1) はクロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

(参考製造法 1 2)

化合物 (4) のうち、G が G-1 で示される基であり、Y¹ が NR⁷ 基である式 (4-2) で示される化合物は、例えば国際特許出願 WO 2 0 0 7 / 1 2 3 8 5 5 パンフレットに記載の方法に準じて製造することができる。

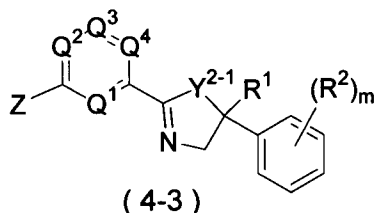


5 (4-2)

[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R¹、R²、R⁷、Z 及び m は前記と同じ意味を表す。]

(参考製造法 1 3)

化合物 (4) のうち、G が G-2 で示される基であり、Y² が Y²⁻¹ である式 (4-3) で示される化合物は、例えば特開 2 0 0 7 - 9 1 7 0 8 号公報に記載の方法に準じて製造することができる。



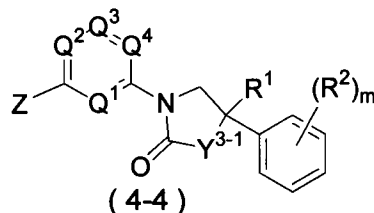
(4-3)

[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R¹、R²、Z 及び m は前記と同じ意味を表し、Y²⁻¹ は酸素原子、硫黄原子、メチレン基を表す。]

15

(参考製造法 1 4)

化合物 (4) のうち、G が G-3 で示される基であり、Y³ が Y³⁻¹ である式 (4-4) で示される化合物は、例えば国際特許出願 WO 2 0 0 7 / 1 2 3 8 5 3 パンフレットに記載の方法に準じて製造することができる。



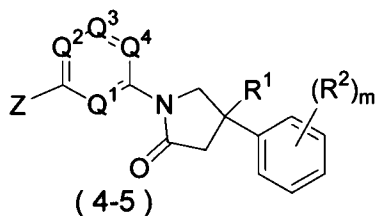
(4-4)

20

[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R¹、R²、Z 及び m は前記と同じ意味を表し、Y³⁻¹ は酸素原子、NR⁷ を表し、R⁷ は前記と同じ意味を表す。]

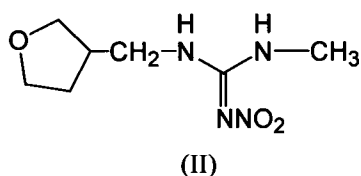
(参考製造法 15)

化合物(4)のうち、GがG-3で示される基であり、Y³がメチレン基である式(4-5)で示される化合物は、例えば特開2008-110971号公報に記載の方法に準じて製造することができる。



[式中、Q¹、Q²、Q³、Q⁴、R¹、R²、Z及びmは前記と同じ意味を表す。]

ジノテフランは、下記式(II)で示される化合物であり、例えば特開平7-179448号公報に記載された化合物(No.20)である。



ジノテフランは、例えば特開平7-179448号公報等に記載された方法にて製造することができる。また、市販の農薬製剤にて使用されている化合物も使用することができる。

15 本発明の有害生物防除組成物が効力を示す有害生物としては、例えば、有害昆虫類や有害ダニ類等の有害節足動物が挙げられる。より具体的には、下記のものが挙げられる。

半翅目害虫：ヒメトビウンカ(*Laodelphax striatellus*)、トビイロウンカ(*Nilaparvata lugens*)、セジロウンカ(*Sogatella furcifera*)等のウンカ類、ツマグロヨコバイ(*Nephotettix cincticeps*)、タイワンツマグロヨコバイ(*Nephotettix virescens*)、チャノミドリヒメヨコバイ(*Empoasca onukii*)等のヨコバイ類、ワタアブラムシ(*Aphis gossypii*)、モモアカアブラムシ(*Myzus persicae*)、ダイコンアブラムシ(*Brevicoryne brassicae*)、ユキヤナギアブラムシ(*Aphis spiraeicola*)、チューリップヒゲナガアブラムシ(*Macrosiphum euphorbiae*)、ジャガイモヒゲナガアブラムシ(*Aulacorthum solani*)、ムギクビレアブラムシ(*Rhopalosiphum padi*)、ミカンクロアブラムシ(*Toxoptera citricidus*)、モモコフキアブラムシ(*Hyalopterus pruni*)等のアブラムシ類、アオクサカメムシ(*Nezara antennata*)、ホソヘリカメムシ(*Riptortus clavatus*)、クモヘリカメムシ(*Leptocorisa chinensis*)、トゲ

20

25

シラホシカメムシ(*Eysarcoris parvus*), クサギカメムシ(*Halyomorpha mista*)等のカメムシ類, オオサシガメ (*Triatoma rubrofasciata*) 等のサシガメ類、オンシツコナジラミ (*Trialeurodes vaporariorum*), タバココナジラミ (*Bemisia tabaci*), ミカンコナジラミ (*Dialeurodes citri*), ミカントゲコナジラミ (*Aleurocanthus spiniferus*)等のコナジラミ類,
 5 アカマルカイガラムシ(*Aonidiella aurantii*), サンホーゼカイガラムシ(*Comstockaspis perniciosus*), シトラススノースケール(*Unaspis citri*), ルビーロウムシ(*Ceroplastes rubens*), イセリヤカイガラムシ(*Icerya purchasi*), フジコナカイガラムシ(*Planococcus kraunhiae*), ミカンコナカイガラムシ(*Planococcus citri*), クワコナカイガラムシ (*Pseudococcus longispinis*), クワシロカイガラムシ(*Pseudaulacaspis pentagona*)等のカイガラムシ類, グンバイムシ類, トコジラミ(*Cimex lectularius*), ネットイトコジラミ (*Cimex hemipterus*) 等のトコジラミ類, ナシキジラミ(*Cacopsylla pyricola*)等のキジラミ類等。

鱗翅目害虫：ニカメイガ(*Chilo suppressalis*), サンカメイガ(*Tryporyza incertulas*), コブノメイガ(*Cnaphalocrocis medinalis*), ワタノメイガ(*Notarcha derogata*), ノシメマ
 15 ダラメイガ(*Plodia interpunctella*), アワノメイガ(*Ostrinia furnacalis*), ハイマダラノメイガ(*Hellula undalis*), シバツトガ(*Pediasia teterrellus*)等のメイガ類, ハスモンヨトウ (*Spodoptera litura*), シロイチモジヨトウ(*Spodoptera exigua*), アワヨトウ(*Pseudaletia separata*), ヨトウガ(*Mamestra brassicae*), タマナヤガ(*Agrotis ipsilon*), タマナギンウワバ(*Autographa nigrisigna*), トリコプルシア属, ヘリオティス属, ヘリコベルパ属等
 20 のヤガ類, モンシロチョウ(*Pieris rapae*)等のシロチョウ類, アドキシフィエス属, ナシヒメシンクイ(*Grapholita molesta*), マメシンクイガ(*Leguminivora glycinivorella*), アズキサヤムシガ(*Matsumuraeses azukivora*), リンゴコカクモンハマキ(*Adoxophyes orana fasciata*), チャノコカクモンハマキ(*Adoxophyes honmai.*), チャハマキ(*Homona magnanima*), ミダレカクモンハマキ(*Archips fuscocupreanus*), コドリリング(*Cydia pomonella*)等のハマキガ類, チャノホソガ(*Caloptilia theivora*), キンモンホソガ (*Phyllonorycter ringoneella*)のホソガ類, モモシンクイガ(*Carposina niponensis*)等のシンクイガ類, トマトガ(*Tuta absoluta*), リオネティア属等のハモグリガ類, リマントリア属, ユープロクティス属等のドクガ類, コナガ(*Plutella xylostella*)等のスガ類, ワタアカミムシ(*Pectinophora gossypiella*)ジャガイモガ(*Phthorimaea operculella*)等のキバ
 25 ガ類, アメリカシロヒトリ(*Hyphantria cunea*)等のヒトリガ類, イガ(*Tinea translucens*), コイガ(*Tineola bisselliella*)等のヒロズコガ類等。

アザミウマ目害虫：ミカンキイロアザミウマ(*Frankliniella occidentalis*), ミナミキイ

ロアザミウマ(*Thrips parmi*), チャノキイロアザミウマ(*Scirtothrips dorsalis*), ネギアザミウマ(*Thrips tabaci*), ヒラズハナアザミウマ(*Frankliniella intonsa*)などのアザミウマ類等。

双翅目害虫：アカイエカ(*Culex pipiens pallens*), コガタアカイエカ(*Culex tritaeniorhynchus*), ネットアイエカ(*Culex quinquefasciatus*)等のイエカ類, ネットイシマカ(*Aedes aegypti*), ヒトスジシマカ(*Aedes albopictus*)等のエーデス属, シナハマダラカ(*Anopheles sinensis*), ガンビエハマダラカ (*Anopheles gambiae*), コガタハマダラカ (*Anopheles minimus*), ステフェンスハマダラカ (*Anopheles stephensi*), *Anopheles albimanus* 等のアノフェレス属, ユスリカ類, イエバエ(*Musca domestica*), オオイエバエ(*Muscina stabulans*)等のイエバエ類, クロバエ類, ニクバエ類, ヒメイエバエ類, ツエツエバエ(*Glossina palpalis*)等のシラミバエ類, タネバエ(*Delia platura*), タマネギバエ(*Delia antiqua*)等のハナバエ類, イネハモグリバエ(*Agromyza oryzae*), イネヒメハモグリバエ(*Hydrellia griseola*), トマトハモグリバエ, (*Liriomyza sativae*), マメハモグリバエ(*Liriomyza trifolii*), ナモグリバエ(*Chromatomyia horticola*)等のハモグリバエ類, イネキモグリバエ(*Chlorops oryzae*)等のキモグリバエ類, ウリミバエ(*Dacus cucurbitae*), チチュウカイミバエ(*Ceratitis capitata*)等のミバエ類, ショウジョウバエ類, オオキモンノミバエ (*Megaselia spiracularis*) 等のノミバエ類, オオチョウバエ (*Clogmia albipunctata*), ニッポンサシチョウバエ (*Phlebotomus squamirostris*), スナバエ (*Lutzomyia longipalpis*) 等のチョウバエ類, ブユ類, ウシアブ(*Tabanus trigonus*)等のアブ類, サシバエ類等。

鞘翅目害虫：ウエスタンコーンルートワーム(*Diabrotica virgifera virgifera*), サザンコーンルートワーム(*Diabrotica undecimpunctata howardi*)等のコーンルートワーム類, ドウガネブイブイ(*Anomala cuprea*), ヒメコガネ(*Anomala rufocuprea*), マメコガネ(*Popillia japonica*)等のコガネムシ類, メイズウィービル(*Sitophilus zeamais*), イネミズゾウムシ(*Lissorhoptrus oryzophilus*), アズキゾウムシ(*Callosobruchus chienensis*), イネゾウムシ(*Echinocnemus squameus*), ワタミゾウムシ(*Anthonomus grandis*), シバオサゾウムシ(*Sphenophorus venatus*), ヤシオオオサゾウムシ(*Rhynchophorus ferrugineus*)等のゾウムシ類, チャイロコメノゴミムシダマシ(*Tenebrio molitor*), コクヌストモドキ(*Tribolium castaneum*)等のゴミムシダマシ類, イネドロオイムシ(*Oulema oryzae*), ウリハムシ(*Aulacophora femoralis*), キスジノミハムシ(*Phyllotreta striolata*), コロラドハムシ(*Leptinotarsa decemlineata*)等のハムシ類, ヒメマルカツオブシムシ(*Anthrenus verbasci*), ハラジロカツオブシムシ(*Dermestes maculatus*)等のカツオブシ

ムシ類, タバコシバンムシ(*Lasioderma serricorne*)等のシバンムシ類, ニジュウヤホシ
 テントウ(*Epilachna vigintioctopunctata*)等のエピラクナ類, ヒラタキクイムシ(*Lyctus*
brunneus), マツノキクイムシ(*Tomicus piniperda*)等のキクイムシ類, ナガシクイム
 シ類, ヒョウホンムシ類, ゴマダラカミキリ(*Anoplophora malasiaca*)等のカミキリムシ
 5 類, コメツクムシ類(*Agriotes* spp.)アオバアリガタハネカクシ(*Paederus fuscipes*)等。

直翅目害虫: トノサマバッタ(*Locusta migratoria*), ケラ(*Gryllotalpa africana*), コバ
 ネイナゴ(*Oxya yezoensis*), ハネナガイナゴ(*Oxya japonica*), コオロギ類等。

隠翅目害虫: ヒトノミ (*Pulex irritans*), ネコノミ (*Ctenocephalides felis*), イヌノ
 ミ (*Ctenocephalides canis*), ケオプスネズミノミ (*Xenopsylla cheopis*), スナノミ (*Tunga*
 10 *penetrans*), ニワトリノミ (*Echidnophaga gallinacea*), ヨーロッパネズミノミ
 (*Nosopsyllus fasciatus*) 等。

シラミ目害虫: コロモジラミ(*Pediculus humanus corporis*), アタマジラミ (*Pediculus*
humanus humanus), ケジラミ (*Phthirus pubis*), ウシジラミ (*Haematopinus*
eurysternus), ヒツジジラミ(*Dalmanella ovis*), ブタジラミ(*Haematopinus suis*)等。

15 膜翅目害虫: イエヒメアリ(*Monomorium pharaonis*), クロヤマアリ(*Formica fusca*
japonica), ルリアリ(*Ochetellus glaber*), アミメアリ(*Pristomyrmex pungens*), オオズ
 アリ(*Pheidole noda*), ハキリアリ(*Acromyrmex* spp.), ファイヤーアント(*Solenopsis*
 spp.), アルゼンチンアリ (*Linepithema humile*) 等のアリ類, スズメバチ類, アリガタ
 バチ類, カブラハバチ(*Athalia rosae*), ニホンカブラバチ(*Athalia japonica*)等のハバチ
 20 類等。

ゴキブリ目害虫: チャバネゴキブリ(*Blattella germanica*), クロゴキブリ(*Periplaneta*
fuliginosa), ワモンゴキブリ(*Periplaneta americana*), トビイロゴキブリ(*Periplaneta*
brunnea), トウヨウゴキブリ(*Blatta orientalis*)等のゴキブリ類, ヤマトシロアリ
 (*Reticulitermes speratus*), イエシロアリ(*Coptotermes formosanus*), アメリカカンザイ
 25 シロアリ(*Incisitermes minor*), ダイコクシロアリ(*Cryptotermes domesticus*), タイワン
 シロアリ(*Odontotermes formosanus*), コウシュンシロアリ(*Neotermes koshunensis*),
 サツマシロアリ (*Glyptotermes satsumensis*), ナカジマシロアリ (*Glyptotermes*
nakajimai), カタンシロアリ(*Glyptotermes fuscus*), コダマシロアリ(*Glyptotermes*
kodamai), クシモトシロアリ (*Glyptotermes kushimensis*), オオシロアリ
 30 (*Hodotermopsis japonica*), コウシュウイエシロアリ(*Coptotermes guangzhouensis*), ア
 マミシロアリ(*Reticulitermes miyatakei*), キアシシロアリ(*Reticulitermes flaviceps*
amamianus), カンモンシロアリ(*Reticulitermes* sp.), タカサゴシロアリ(*Nasutitermes*

takasagoensis), ニトベシロアリ (*Pericapritermes nitobei*), ムシャシロアリ (*Sinocapritermes mushae*)等のシロアリ類等。

- ダニ目害虫：ナミハダニ(*Tetranychus urticae*), カンザワハダニ(*Tetranychus kanzawai*), ミカンハダニ(*Panonychus citri*)リンゴハダニ(*Panonychus ulmi*), オリゴニ
- 5 カス属等のハダニ類, ミカンサビダニ(*Aculops pelekassi*), リュウキュウミカンサビダニ (*Phyllocoptruta citri*), トマトサビダニ(*Aculops lycopersici*), チャノサビダニ(*Calacarus carinatus*), チャノナガサビダニ(*Acaphylla theavagrans*), ニセナシサビダニ(*Eriophyes chibaensis*), リンゴサビダニ(*Aculus schlechtendali*)等のフシダニ類, チャノホコリダニ (*Polyphagotarsonemus latus*), アカリンダニ (*Acarapis woodi*) 等のホコリダニ類, ミ
- 10 ナミヒメハダニ(*Brevipalpus phoenicis*)等のヒメハダニ類, ケナガハダニ類, ローンスター チック (*Amblyomma americanum*), アンブリオンマ・マクラタム (*Ambryomma maculatum*), ウシマダニ (*Boophilus microplus*), ブーフィラス・アンヌラタス (*Boophilus annulatus*), アメリカンドックチック (*Dermacentor variabilis*), タイワ ンカクマダニ (*Dermacentor taiwanicus*), デルマセントル・アンデルソニ (*Dermacentor andersoni*), フタトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*), ヤマトチマダニ
- 15 (*Haemaphysalis flava*), ツリガネチマダニ (*Haemaphysalis campanulata*), ヤマト マダニ (*Ixodes ovatus*), シュルツマダニ (*Ixodes persulcatus*), ブラックレグドチ ック (*Ixodes scapularis*), 西部クロアシマダニ (*Ixodes pacificus*), イキシデス・ホロ シクラス (*Ixodes holocyclus*), クリイロコイタマダニ (*Rhipicephalus sanguineus*),
- 20 リピセファラス・アペンディキュレイタス (*Rhipicephalus appendiculatus*) 等のマダ ニ類, ナガヒメダニ (*Argas persicus*) 等のヒメダニ類, ミミヒゼンダニ (*Octodectes cynotis*) 等のキュウセンゼンダニ類, ヒゼンダニ (*Sarcoptes scabiei*) 等のヒゼンダニ 類, ウサギズツキダニ(*Listrophorus gibbus*)等のズツキダニ類, イヌニキビダニ (*Demodex canis*) 等のニキビダニ類, ケナガコナダニ(*Tyrophagus putrescentiae*), ホ
- 25 ウレンソウケナガコナダニ(*Tyrophagus similis*)等のコナダニ類, コナヒョウヒダニ (*Dermatophagoides farinae*), ヤケヒョウヒダニ(*Dermatophagoides pteromyssus*)等の ヒョウヒダニ類, ホソツメダニ(*Cheyletus eruditus*), クワガタツメダニ(*Cheyletus malaccensis*), ミナミツメダニ(*Cheyletus moorei*)等のツメダニ類, イエダニ (*Ornithonyssus bacoti*), トリサシダニ(*Ornithonyssus sylvarum*), ミツバチヘギイタダ
- 30 ニ (*Varroa jacobsoni*) 等のトゲダニ類, ワクモ(*Dermanyssus gallinae*)等のワクモ類, アカツツガムシ(*Leptotrombidium akamushi*)等のツツガムシ類等, カバキコマチグモ (*Chiracanthium japonicum*), セアカゴケグモ(*Latrodectus hasseltii*)等のクモ類等。

唇脚綱類：ゲジ(*Thereuonema hilgendorfi*)、トビズムカデ(*Scolopendra subspinipes*)等。

倍脚綱類：ヤケヤスデ(*Oxidus gracilis*)、アカヤスデ(*Nedyopus tambanus*)等。

等脚目類：オカダンゴムシ(*Armadillidium vulgare*)等。

- 5 腹足綱類：チャコウラナメクジ(*Limax marginatus*)、キイロコウラナメクジ(*Limax flavus*)等。

本発明の有害生物防除組成物は、本ヒドラジド化合物及びジノテフランのみでもよいが、通常は固体担体、液体担体及び又はガス状担体と混合し、更に必要に応じて界面活性剤その他の製剤用補助剤を添加して、エマルジョン、油剤、油性液剤、水性液剤、溶解液、シャンプー、サスペンション等の液剤、粉剤、粒剤、ペースト状製剤、クリーム剤、軟膏剤、マイクロカプセル化製剤、泡沫剤、エアゾール製剤、炭酸ガス製剤、錠剤、チュアブル錠、ボーラス剤、カプセル剤、動物用飼料プレミックス、シロップ剤、シート製剤、フィルム状製剤、樹脂製剤、注射剤、埋め込み剤、坐剤等の形態に製剤化することができる。これらの製剤は、毒餌、蚊取り線香、電気蚊取りマット、燻煙剤、燻蒸剤、シートに加工されて、使用されることもある。

これらの製剤は、本ヒドラジド化合物及びジノテフランの合計量で通常0.1～95重量%含有する。

製剤化の際に用いられる固体担体としては、例えば粘土類（カオリンクレー、珪藻土、ベントナイト、フバサミクレー、酸性白土等）、合成含水酸化珪素、タルク、セラミック、その他の無機鉱物（セリサイト、石英、硫黄、活性炭、炭酸カルシウム、水和シリカ等）、化学肥料（硫安、磷安、硝安、塩安、尿素等）等の微粉末及び粒状物が挙げられる。

液体担体としては、例えば芳香族または脂肪族炭化水素類（キシレン、トルエン、アルキルナフタレン、フェニルキシリルエタン、ケロシン、軽油、ヘキサン、シクロヘキサン等）、ハロゲン化炭化水素類（クロロベンゼン、ジクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン等）、アルコール類（メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール、ヘキサノール、エチレングリコール等）、エーテル類（ジエチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等）、エステル類（酢酸エチル、酢酸ブチル等）、脂肪酸エステル類（アジピン酸ジイソプロピル、アジピン酸ジイソブチル、ミリスチン酸イソプロピル等）、ケトン類（アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、

シクロヘキサノン等)、ニトリル類 (アセトニトリル、イソブチロニトリル等)、スルホキシド類 (ジメチルスルホキシド等)、酸アミド類 (N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド等)、ピロリドン類 (N-メチル-2-ピロリドン、N-オクチル-2-ピロリドン等)、炭酸プロピレン、乳酸エチル、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、植物油 (大豆油、綿実油等)、植物精油 (オレンジ油、ヒソップ油、レモン油等) シリコーンオイル (ジメチルシリコーンオイル、高重合ジメチルシリコーンオイル、環状シリコーンオイル、ポリエーテル変性シリコーンオイル、アミノ変性シリコーンオイル、メチルフェニルシリコーンオイル等) および水などが挙げられる。

5 ガス状担体としては、例えばブタンガス、フロンガス、液化石油ガス (LPG)、ジメチルエーテル、炭酸ガス等を挙げることができる。

 界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、アルキルアリールエーテル類及びそのポリオキシエチレン化物、ポリエチレングリコールエーテル類、多価アルコールエステル類及び糖アルコール誘導体が挙げられる。

15 その他の製剤用補助剤としては、固着剤、分散剤及び安定剤等、具体的には例えばカゼイン、ゼラチン、多糖類 (澱粉、アラビアガム、セルロース誘導体、アルギン酸等)、リグニン誘導体、ベントナイト、糖類、合成水溶性高分子 (ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸類等)、PAP (酸性リン酸イソプロピル)、BHT (2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール)、BHA (2-tert-ブチル-4-メトキシフェノールと3-tert-ブチル-4-メトキシフェノールとの混合物)、植物油、
20 鉱物油、脂肪酸及び脂肪酸エステルが挙げられる。

 樹脂製剤の基材としては、例えば塩化ビニル系重合体、ポリウレタン等を挙げることができる。これらの基材には必要によりフタル酸エステル類 (フタル酸ジメチル、フタル酸ジオクチル等)、アジピン酸エステル類、ステアリン酸等の可塑剤が添加されていてもよい。樹脂製剤は該基材中に化合物を通常の混練装置を用いて混練した後、射出成型、
25 押出成型、プレス成型等により成型することにより得られ、必要により更に成型、裁断等の工程を経て、板状、フィルム状、テープ状、網状、ひも状等の樹脂製剤に加工できる。これらの樹脂製剤は、例えば動物用首輪、動物用イヤータグ、シート製剤、誘引ひも、園芸用支柱として加工される。

30 毒餌の基材としては、例えば穀物粉、植物油、糖、結晶セルロース等が挙げられ、更に必要に応じて、ジブチルヒドロキシトルエン、ノルジヒドログアイアレチン酸等の酸化防止剤、デヒドロ酢酸等の保存料、トウガラシ末等の子供やペットによる誤食防止剤、

チーズ香料、タマネギ香料ピーナッツオイル等の害虫誘引性香料等が添加される。

本発明の有害生物防除方法は、本ヒドラジド化合物とジノテフランとの有効量を有害生物に直接、及び／又は有害生物の生息場所（植物体、動物体、家屋内、土壌等）に施用することにより行われる。本ヒドラジド化合物及びジノテフランは同時期に別々に施用してもよいが、通常は施用時の簡便性の観点から、本発明の有害生物防除組成物として施用する。

本ヒドラジド化合物とジノテフランとを農林害虫の防除に用いる場合は、その施用量は本ヒドラジド化合物及びジノテフランの合計量で通常 $1 \sim 10000 \text{ g/h a}$ 、好ましくは $10 \sim 500 \text{ g/h a}$ である。乳剤、水和剤、フロアブル剤、マイクロカプセル製剤等は通常本ヒドラジド化合物及びジノテフランの合計が $1 \sim 1000 \text{ ppm}$ となるように水で希釈して使用し、粉剤、粒剤等は通常そのまま使用する。これらの製剤を有害生物から保護すべき植物に対して直接散布してもよい。これらの製剤を土壌に処理することにより土壌に棲息する有害生物を防除することもでき、またこれらの製剤を植物を植え付ける前の苗床に処理したり、植付時に植穴や株元に処理することもできる。さらに、本発明の有害生物防除剤のシート製剤を植物に巻き付けたり、植物の近傍に設置したり、株元の土壌表面に敷くなどの方法でも施用することができる。

本発明の有害生物防除剤は、下記「作物」が栽培されている農地で使用することができる。

農作物；トウモロコシ、イネ、コムギ、オオムギ、ライムギ、エンバク、ソルガム、ワタ、ダイズ、ピーナッツ、ソバ、テンサイ、ナタネ、ヒマワリ、サトウキビ、タバコ等、

野菜；ナス科野菜（ナス、トマト、ピーマン、トウガラシ、ジャガイモ等）、ウリ科野菜（キュウリ、カボチャ、ズッキーニ、スイカ、メロン等）、アブラナ科野菜（ダイコン、カブ、セイヨウワサビ、コールラビ、ハクサイ、キャベツ、カラシナ、ブロッコリー、カリフラワー等）、キク科野菜（ゴボウ、シュンギク、アーティチョーク、レタス等）、ユリ科野菜（ネギ、タマネギ、ニンニク、アスパラガス）、セリ科野菜（ニンジン、パセリ、セロリ、アメリカボウフウ等）、アカザ科野菜（ハウレンソウ、フダンソウ等）、シソ科野菜（シソ、ミント、バジル等）、イチゴ、サツマイモ、ヤマノイモ、サトイモ等、花卉、

観葉植物、

果樹；仁果類（リンゴ、セイヨウナシ、ニホンナシ、カリン、マルメロ等）、核果類（モモ、スモモ、ネクタリン、ウメ、オウトウ、アンズ、ブルーベリー等）、カンキツ類（ウンシ

ユウミカン、オレンジ、レモン、ライム、グレープフルーツ等)、堅果類(クリ、クルミ、ハシバミ、アーモンド、ピスタチオ、カシューナッツ、マカダミアナッツ等)、液果類(ブルーベリー、クランベリー、ブラックベリー、ラズベリー等)、ブドウ、カキ、オリーブ、ビワ、バナナ、コーヒー、ナツメヤシ、ココヤシ等、

- 5 果樹以外の樹；チャ、クワ、花木、街路樹(トネリコ、カバノキ、ハナミズキ、ユーカリ、イチョウ、ライラック、カエデ、カシ、ポプラ、ハナズオウ、フウ、プラタナス、ケヤキ、クロベ、モミノキ、ツガ、ネズ、マツ、トウヒ、イチイ)等。

「作物」には、遺伝子組換え作物も含まれる。

- 本ヒドラジド化合物とジノテフランとを防疫用として用いる場合は、その施用量は空間に適用するときは本ヒドラジド化合物及びジノテフランの合計で通常0.001~10mg/m³であり、平面に適用するときは0.001~100mg/m²である。乳剤、水和剤、フロアブル剤等は通常は本ヒドラジド化合物及びジノテフランの合計の濃度が0.01~10000ppmとなるように水で希釈して施用し、油剤、エアゾール、燻煙剤、毒餌等は通常そのまま施用する。

- 15 本ヒドラジド化合物とジノテフランとをウシ、ウマ、ブタ、ヒツジ、ヤギ、ニワトリ用の家畜、イヌ、ネコ、ラット、マウス等の小動物の外部寄生虫防除に用いる場合は、獣医学的に公知な経口的または非経口的な投与方法にて、動物に使用することができる。具体的な使用方法としては、全身抑制を目的にする場合には、例えば錠剤(丸剤、糖衣錠、フィルムコーティング錠を含む)、チュアブル錠、カプセル剤、粒剤(顆粒剤、細粒剤、散剤など)、液剤(乳剤、サスペンションなど)、フィルム状製剤等の経口剤；および注射剤(例、皮下注射剤、静脈内注射剤、筋肉内注射剤、腹腔内注射剤、点滴剤、徐放性注射剤)、坐剤(例、直腸坐剤、膣坐剤)、埋め込み剤(埋め込み錠、生体内分解性ポリマーを基材として成形されたもの、チタン等の生体適合性金属のカプセルに封入され、一定速度で有効成分を放出するものを含む)等の非経口剤等が挙げられる。なお、
- 20 経口投与の際には、上記の製剤を飼料に混入して用いることができる。

- また、非全身的抑制を目的とする場合には、例えば油剤若しくは水性液剤を噴霧する、クリーム剤、軟膏剤などの外用剤をぬる、液剤をポアオン処理若しくはスポットオン処理する、シャンプー製剤で動物を洗う又は樹脂製剤を首輪やイヤータグにして動物に付ける等の方法により用いられる。動物体に投与する場合の本ヒドラジド化合物及びジノテフランの合計量は、通常動物の体重1kgに対して、0.1~1000mgの範囲である。

上記の獣医学的な投与方法にて用いられる製剤剤形には、製剤素材として慣用の各種

有機あるいは無機担体物質が用いられ、固形製剤における賦形剤、滑沢剤、結合剤、崩壊剤；液状製剤における溶剤、溶解補助剤、懸濁化剤、等張化剤、緩衝剤、無痛化剤などとして配合される。また必要に応じて、防腐剤、抗酸化剤、着色剤、甘味剤などの製剤添加物を用いることもできる。賦形剤の好適な例としては、乳糖、白糖、D-マンニトール、D-ソルビトール、デンプン、 α 化デンプン、デキストリン、結晶セルロース、低置換度ヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロースナトリウム、アラビアゴム、デキストリン、プルラン、軽質無水ケイ酸、合成ケイ酸アルミニウム、メタケイ酸アルミン酸マグネシウムなどが挙げられる。滑沢剤の好適な例としては、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸カルシウム、タルク、コロイドシリカなどが挙げられる。結合剤の好適な例としては、 α 化デンプン、ショ糖、ゼラチン、アラビアゴム、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カルボキシメチルセルロースナトリウム、結晶セルロース、白糖、D-マンニトール、トレハロース、デキストリン、プルラン、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ポリビニルピロリドンなどが挙げられる。崩壊剤の好適な例としては、乳糖、白糖、デンプン、カルボキシメチルセルロース、カルボキシメチルセルロースカルシウム、クロスカルメロースナトリウム、カルボキシメチルスターチナトリウム、軽質無水ケイ酸、低置換度ヒドロキシプロピルセルロースなどが挙げられる。溶剤の好適な例としては、注射用水、生理的食塩水、リンゲル液、アルコール、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール、ゴマ油、トウモロコシ油、オリーブ油、綿実油などが挙げられる。溶解補助剤の好適な例としては、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、D-マンニトール、トレハロース、安息香酸ベンジル、エタノール、トリスアミノメタン、コレステロール、トリエタノールアミン、炭酸ナトリウム、クエン酸ナトリウム、サリチル酸ナトリウム、酢酸ナトリウムなどが挙げられる。懸濁化剤の好適な例としては、ステアリルトリエタノールアミン、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリルアミノプロピオン酸、レシチン、塩化ベンザルコニウム、塩化ベンゼトニウム、モノステアリン酸グリセリンなどの界面活性剤；例えばポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、カルボキシメチルセルロースナトリウム、メチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロースなどの親水性高分子；ポリソルベート類、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油などが挙げられる。等張化剤の好適な例としては、塩化ナトリウム、グリセリン、D-マンニトール、D-ソルビトール、ブドウ糖などが挙げられる。緩衝剤の好適な例としては、リン酸塩、酢酸塩、炭酸塩、クエン酸塩などの緩衝液などが挙げられる。無痛化剤の好適な例としては、ベンジルアルコール

などが挙げられる。防腐剤の好適な例としては、パラオキシ安息香酸エステル類、クロロブタノール、ベンジルアルコール、フェネチルアルコール、デヒドロ酢酸、ソルビン酸などが挙げられる。抗酸化剤の好適な例としては、亜硫酸塩、アスコルビン酸塩などが挙げられる。着色剤の好適な例としては、水溶性食用タール色素（例、食用赤色2号および3号、食用黄色4号および5号、食用青色1号および2号などの食用色素、水不溶性レーキ色素（例、前記水溶性食用タール色素のアルミニウム塩など）、天然色素（例、β-カロチン、クロロフィル、ベンガラなど）などが挙げられる。

また、注射剤は、有効成分を分散剤（例、ポリソルベート80、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油60など、ポリエチレングリコール、カルボキシメチルセルロース、アルギン酸ナトリウムなど）、保存剤（例、メチルパラベン、プロピルパラベン、ベンジルアルコール、クロロブタノール、フェノールなど）、等張化剤（例、塩化ナトリウム、グリセリン、D-マンニトール、D-ソルビトール、ブドウ糖など）などと共に水性溶剤（例、蒸留水、生理的食塩水、リンゲル液等）あるいは油性溶剤（例、オリーブ油、ゴマ油、綿実油、トウモロコシ油などの植物油、プロピレングリコール等）などに溶解、懸濁あるいは乳化することにより製造される。この際、所望により溶解補助剤（例、サリチル酸ナトリウム、酢酸ナトリウム等）、安定剤（例、ヒト血清アルブミン等）、無痛化剤（例、ベンジルアルコール等）等の添加物を用いてもよい。注射液は、通常、適当なアンプルに充填される。

本発明の有害生物防除組成物は徐放性製剤として用いることもできる。該徐放性製剤としては、例えば水中乾燥法（o/w法、w/o/w法等）、相分離法、噴霧乾燥法あるいはこれらに準ずる方法によって製造されたマイクロカプセル（例えば、マイクロスフェア・マイクロカプセル、マイクロパーティクル等）、生体適合性ポリマーで成形されたもの等がある。

本発明の有害生物防除組成物は他の殺虫剤、殺線虫剤、殺ダニ剤、殺菌剤、除草剤、植物生長調節剤、共力剤、肥料、土壌改良剤、動物用飼料等と混用又は併用することもできる。

実施例

以下、本発明を本ヒドラジド化合物及び本ヒドラジド化合物の製造中間体の製造例、本発明の有害生物防除組成物の製剤例及び試験例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの例に限定されるものではない。

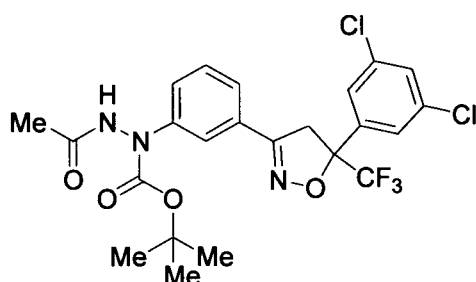
尚、本明細書において使用している略号は、以下の意味を有する。

Me : メチル基、Et : エチル基、Ph : フェニル基。

まず、本ヒドラジド化合物の製造例を以下に示す。

製造例 1

- 5 参考製造例 6 により得られた N- { 3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル- 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール- 3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 1. 39 g 及びトリエチルアミン 330 mg をテトラヒドロフラン 12 ml に溶かし、ここに 0℃ で塩化アセチル 257 mg を滴下して、0℃ で 1 時間攪拌後、室温で 13 時間静置した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-アセチル-N- { 3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル- 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール- 3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (1) と記す。) 1. 30 g を得た。
- 15 本ヒドラジド化合物 (1)



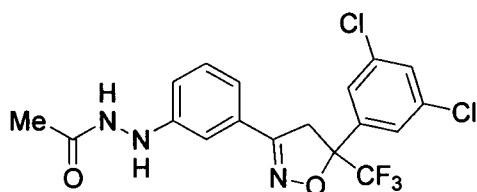
融点 : 111℃

製造例 2

- 20 製造例 1 により得られた N'-アセチル-N- { 3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル- 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール- 3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 250 mg をテトラヒドロフラン 1 ml に溶かし、ここに室温でトリフルオロ酢酸 1.5 mL を滴下して 1 時間攪拌した。反応混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'- { 3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル- 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール- 3-イル] フェニル} アセトヒドラジド (本明細書に
- 25

において、本ヒドラジド化合物（２）と記す。） 179mgを得た。

本ヒドラジド化合物（２）



融点：100℃

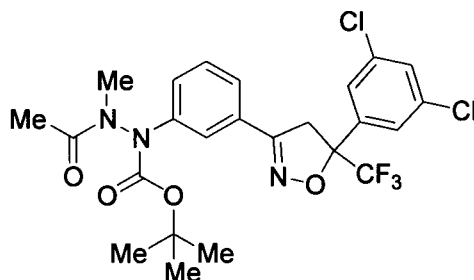
5

製造例 3

水素化ナトリウム（60%油性）78mgをテトラヒドロフラン4mLに懸濁させ、ここに室温で製造例1により得られたN'-アセチル-N-{3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル800mgをテトラヒドロフラン6mlに溶解した溶液を滴下した。同温で30分攪拌後、ここに室温でヨウ化メチル355mgを加え、同温で10時間攪拌した。混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-アセチル-N'-メチル-N-{3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル（本明細書において、本ヒドラジド化合物（3）と記す。）697mgを得た。

15

本ヒドラジド化合物（３）



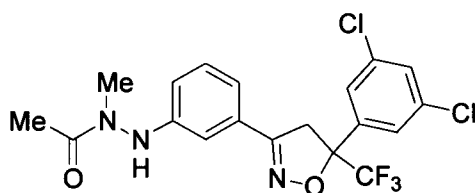
20 融点：79℃

製造例 4

製造例3により得られたN'-アセチル-N'-メチル-N-{3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール

- ー3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 3 2 4 mg に室温でトリフルオロ酢酸 5 mL を加え、同温で 3 0 分間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N-メチル-N'-{3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} アセトヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (4) と記す。) 2 9 0 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (4)

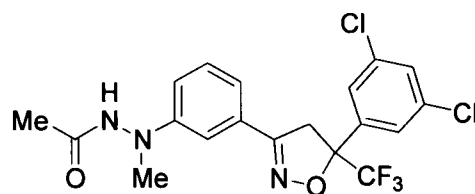


- 10 融点: 8 8 °C

製造例 5

- 参考製造例 1 0 により得られたクルードの N-メチル-N'-{3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} ヒドラジン 1. 0 0 g 及びトリエチルアミン 1 8 0 mg をテトラヒドロフラン 3 mL に溶かし、ここに 0 °C で塩化アセチル 1 3 9 mg を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-メチル-N'-{3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} アセトヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (5) と記す。) 4 9 8 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (5)

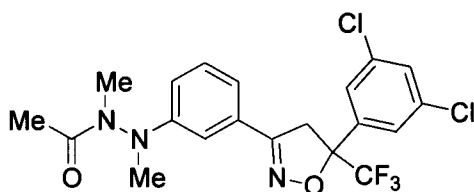


- 25 融点: 8 7 °C

製造例 6

- 製造例 5 により得られた N' - メチル - N' - { 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } アセトヒドラジド 248 mg を N, N - ジメチルホルムアミド 2 mL に溶かし、
 5 ここに室温で炭酸ナトリウム 92 mg、ヨウ化メチル 87 mg を加えた。同温で 5 時間
 攪拌後、tert - ブチルメチルエーテル 20 mL を加え、沈殿物をろ過した。ろ液を減圧下
 濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N - メチル - N' -
 - メチル - N' - { 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル -
 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } アセトヒドラジド (本
 10 明細書において、本ヒドラジド化合物 (6) と記す。) 140 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (6)

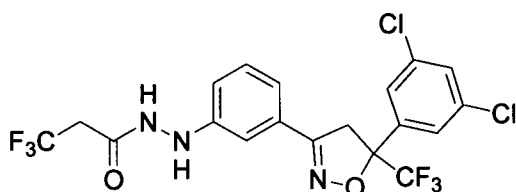


融点 : 151℃

15 製造例 7

- 参考製造例 3 により得られたクルードの 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニルヒ
 ドラジン 1.04 g 及びトリエチルアミン 269 mg をテトラヒドロフラン 5 mL に溶
 解し、ここに 0℃ で 3, 3, 3 - トリフルオロプロピオニルクロライド 391 mg を滴
 20 下して、室温で 4 時間攪拌した。反応混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加えて
 酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られ
 た残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - { 3 - [5 - (3, 5 -
 ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール -
 3 - イル] フェニル } - 3, 3, 3 - トリフルオロプロピオノヒドラジド (本明細書に
 25 において、本ヒドラジド化合物 (7) と記す。) 639 mg を得た。

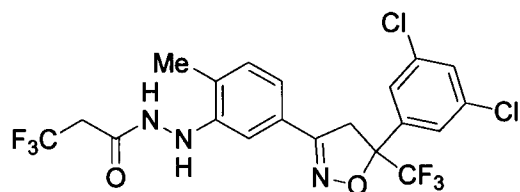
本ヒドラジド化合物 (7)



融点：75℃

製造例 8

- 5 参考製造例 14により得られたクルードの5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-メチルフェニルヒドラジン220mg及びピリジン43mgを酢酸エチル2mlに溶かし、ここに0℃で3,3,3-トリフルオロプロピオニルクロライド80mgを滴下して、室温で4時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸
- 10 酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-メチルフェニル}-3,3,3-トリフルオロプロピオノヒドラジド（本明細書において、本ヒドラジド化合物（8）と記す。）162mgを得た。
- 15 本ヒドラジド化合物（8）



¹H-NMR (CDCl₃) δ: 8.01-7.96 (1H, br m), 7.48-7.42 (3H, m), 7.15-7.04 (3H, m), 6.11-6.00 (1H, m), 4.04-4.00 (1H, m), 3.63 (1H, d, J = 17.1 Hz), 3.25-3.19 (2H, m), 2.26 (3H, s).

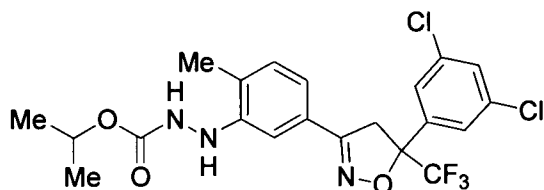
20

製造例 9

- 参考製造例 14により得られたクルードの5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-メチルフェニルヒドラジン220mg及びピリジン43mgを酢酸エチル2mlに溶解し、ここに0℃でクロロギ酸イソプロピル80mgを滴下して、室温で4時間攪拌した。反
- 25 応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減

圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - { 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - メチルフェニル } カルバジン酸イソプロピル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (9) と記す。) 127mg を得た。

5 本ヒドラジド化合物 (9)

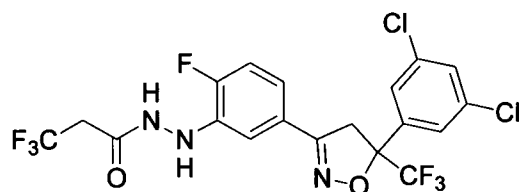


融点 : 71℃

製造例 10

- 10 参考製造例 18 により得られたクルードの 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - フルオロフェニルヒドラジン 412mg 及びトリエチルアミン 102mg をテトラヒドロフラン 6ml に溶かし、ここに 0℃ で 3, 3, 3 - トリフルオロプロピオニルクロライド 148mg を滴下して、室温で 4 時間攪拌した。反応混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - { 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - フルオロフェニル } - 3, 3, 3 - トリフルオロプロピオノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (10) と記す。) 167mg を得た。
- 20

本ヒドラジド化合物 (10)

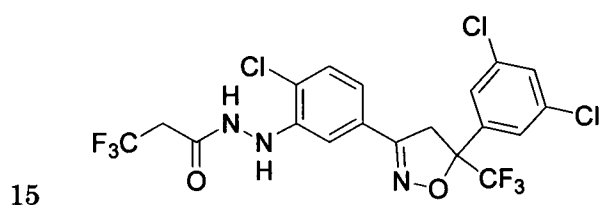


- ¹H-NMR (CDCl₃) δ : 7.89-7.55 (1H, m), 7.46-7.42 (3H, m), 7.28 (1H, dd, J = 7.9, 1.8 Hz), 7.18-7.00 (2H, m), 6.39-6.29 (1H, m), 4.03-3.98 (1H, m), 3.65-3.60 (1H, m), 3.21 (2H, q, J = 10.3 Hz).
- 25

製造例 1 1

参考製造例 2 1により得られたクルードの 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル)
 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - ク
 5 ロロフェニルヒドラジン 5 1 0 m g 及びトリエチルアミン 1 2 3 m g をテトラヒドロフ
 ラン 6 m l に溶かし、ここに 0 ° C で 3 , 3 , 3 - トリフルオロプロピオニルクロライド
 1 7 9 m g を滴下して、室温で 2 . 5 時間攪拌した。反応混合物に飽和炭酸水素ナトリ
 ウム水溶液を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧
 下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - { 5
 10 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロ
 イソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニル } - 3 , 3 , 3 - トリフルオロプロ
 ピオノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (1 1) と記す。) 1 7 5
 m g を得た。

本ヒドラジド化合物 (1 1)

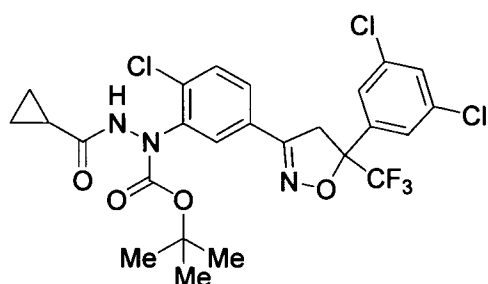


融点 8 9 ° C

製造例 1 2

参考製造例 2 3により得られた N - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェ
 20 ニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル]
 フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル 1 1 0 m g 及びトリエチルアミン 2 2 m g をテト
 ラヒドロフラン 2 m l に溶かし、ここに 0 ° C でシクロプロパンカルボニルクロライド 2
 3 m g を滴下して、室温で 1 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出
 し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲ
 25 ルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - シクロプロパンカルボニル - N - { 2 - ク
 ロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 -
 ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル (本明細
 書において、本ヒドラジド化合物 (1 2) と記す。) 1 0 1 m g を得た。

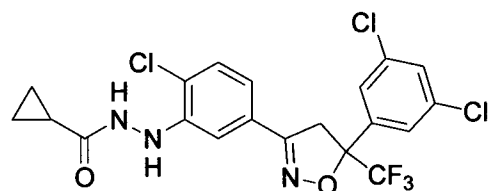
本ヒドラジド化合物 (1 2)



融点：180℃

製造例 13

- 5 製造例 12 により得られた N' - シクロプロパンカルボニル - N - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル 272 mg に室温でトリフルオロ酢酸 2 mL を加え、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィに付し、N' - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } シクロプロパンカルボヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (13) と記す。) 214 mg を得た。
- 15 本ヒドラジド化合物 (13)



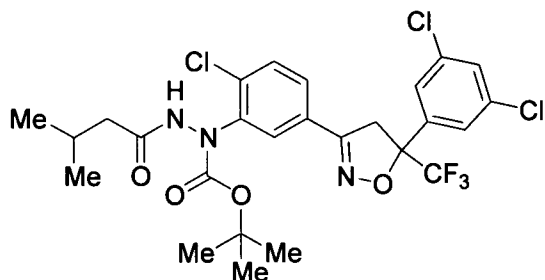
融点 100℃

製造例 14

- 20 参考製造例 23 により得られた N - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル 262 mg 及びトリエチルアミン 61 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに 0℃ でイソバレリルクロライド 72 mg を滴下して、室温で 9 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を

無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-イソバレリル-N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物(14)と記す。) 280 mgを得た。

本ヒドラジド化合物(14)



$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.82-7.70 (3H, m), 7.48-7.44 (4H, m), 4.08-4.04 (1H, m), 3.71-3.66 (1H, m), 2.18-2.10 (3H, m), 1.45 (9H, d, $J = 52.9$ Hz), 0.98 (6H, d, $J = 6.1$ Hz).

10

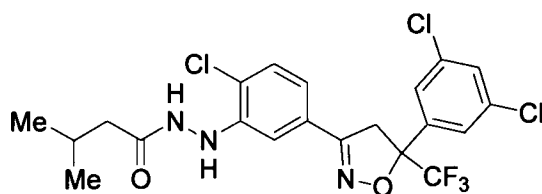
製造例 15

製造例 14 により得られた N'-イソバレリル-N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル 280 mg に室温でトリフルオロ酢酸 2 mL を加え、同温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}イソバレロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物(15)と記す。) 222 mg を得た。

15

20

本ヒドラジド化合物(15)

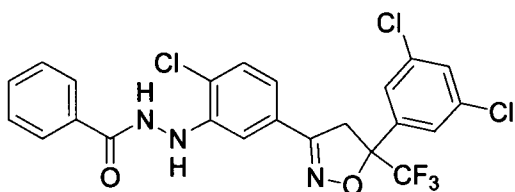


融点: 84°C

製造例 16

参考製造例 21 により得られたクルードの 5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 1.5 ml に溶かし、ここに 0℃ でベンゾイルクロライド 79 mg を滴下して、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'- {5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル} ベンゾヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (16) と記す。) 220 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (16)



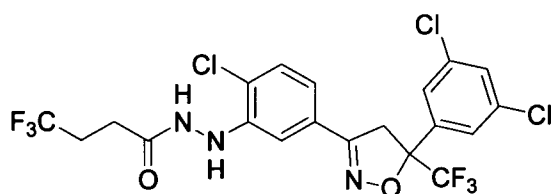
融点 105℃

15

製造例 17

参考製造例 21 により得られたクルードの 5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 2 ml に溶かし、ここに 0℃ で 4, 4, 4-トリフルオロブチリルクロライド 90 mg を滴下して、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'- {5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル} -4, 4, 4-トリフルオロブチロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (17) と記す。) 201 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (17)

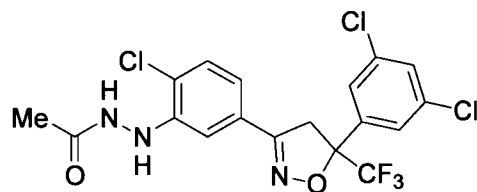


融点 82℃

製造例 18

- 5 参考製造例 21 により得られたクルードの 5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0℃ で塩化アセチル 44 mg を滴下して、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-クロロフェニル} アセトヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (18) と記す。) 168 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (18)

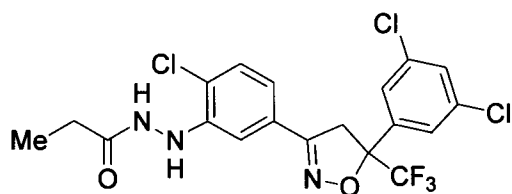


- 15 融点 : 94℃

製造例 19

- 参考製造例 21 により得られたクルードの 5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0℃ でプロピオニルクロライド 52 mg を滴下して、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-クロロフェニル} プロピオノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (19) と記す。) 195 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (19)

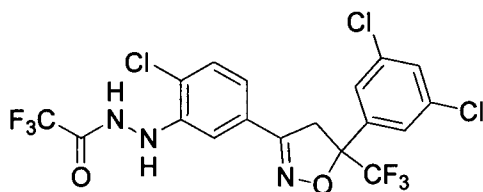


融点 92℃

5 製造例 20

参考製造例 21により得られたクルードの 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン 260mg 及びトリエチルアミン 60mg をテトラヒドロフラン 2ml に溶かし、ここに 0℃ でトリフルオロ酢酸無水物 150mg を滴下して、室温で 2 時間撹拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル}-2,2,2-トリフルオロアセトヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (20) と記す。) 175mg を得た。

15 本ヒドラジド化合物 (20)



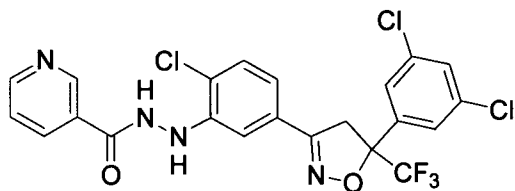
融点: 64℃

製造例 21

参考製造例 21により得られたクルードの 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン 200mg 及びトリエチルアミン 95mg をテトラヒドロフラン 4ml に溶かし、ここに 0℃ でニコチノイルクロライド塩酸塩 84mg を加え、室温で 2 時間撹拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル}

ル} ニコチノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (21) と記す。) 198 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (21)

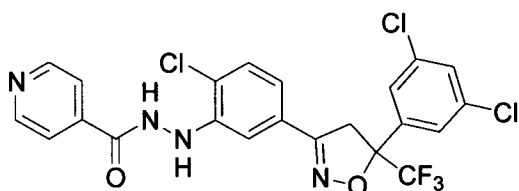


5 融点: 205°C

製造例 22

参考製造例 21 により得られたクルードの 5-[[5-[(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル]ヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 95 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0°C でイソニコチノイルクロライド塩酸塩 84 mg を加え、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{5-[[5-[(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル]イソニコチノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (22) と記す。) 169 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (22)



融点: 115°C

20

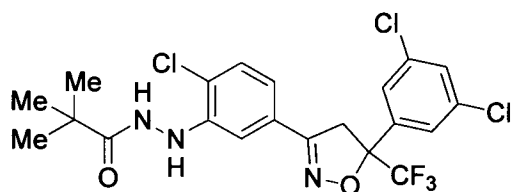
製造例 23

参考製造例 21 により得られたクルードの 5-[[5-[(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル]ヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 52 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0°C でピバロイルクロライド 62 mg を加え、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラ

25

フィーに付し、N' - {5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニル} ピパロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (23) と記す。) 198 mg を得た。

5 本ヒドラジド化合物 (23)

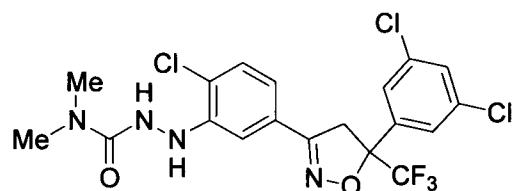


融点: 106°C

製造例 24

- 10 参考製造例 21 により得られたクルードの 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0°C でジメチルカルバモイルクロライド 67 mg を加え、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、4, 4 - ジメチル - 1 - {5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニル} セミカルバジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (24) と記す。) 70 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (24)



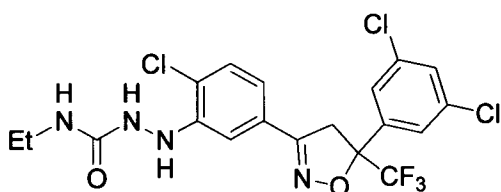
融点: 212°C

製造例 25

- 25 参考製造例 21 により得られたクルードの 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 51 mg をテトラヒドロフラ

- ン 4 m l に溶かし、ここに 0℃ でイソシアン酸エチル 37 m g を加え、室温で 2 間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、4-エチル-1-{5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル}セミカルバジド（本明細書において、本ヒドラジド化合物（25）と記す。）149 m g を得た。

本ヒドラジド化合物（25）



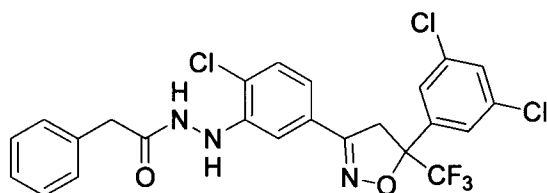
融点：102℃

10

製造例 26

- 参考製造例 21 により得られたクルードの 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン 200 m g 及びトリエチルアミン 57 m g をテトラヒドロフラン 15 ン 4 m l に溶かし、ここに 0℃ でフェニルアセチルクロライド 79 m g を加え、室温で 2 間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル}フェニルアセトヒドラジド（本明細書において、本ヒドラジド化合物（26）と記す。）20 211 m g を得た。

本ヒドラジド化合物（26）



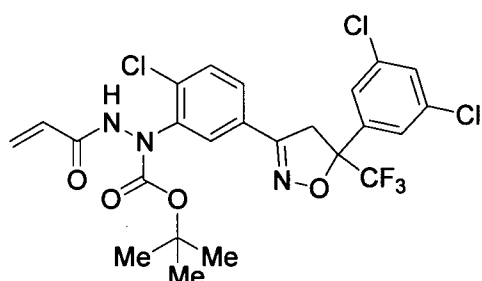
融点：173℃

25

製造例 27

参考製造例 23 により得られた N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロ

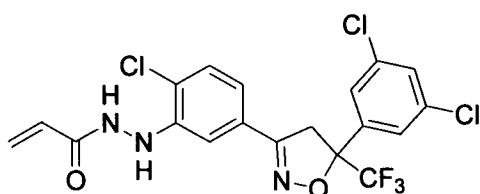
- エニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル} カルバジン酸 tert - ブチル 500 mg 及びアクリル酸 122 mg を N, N - ジメチルホルムアミド 2 ml に溶かし、ここに室温で 1 - エチル - 3 - (3 - ジメチルアミノプロピル) カルボジイミド塩酸塩 319 mg を加え、3 時間攪拌した。反応混合物
- 5 に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - アクリロイル - N - {2 - クロロ - 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル} カルバジン酸 tert - ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (27) と記す。) 384 mg を得た。
- 10 本ヒドラジド化合物 (27)



融点: 119°C

製造例 28

- 15 製造例 27 により得られた N' - アクリロイル - N - {2 - クロロ - 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル} カルバジン酸 tert - ブチル 309 mg に室温でトリフルオロ酢酸 2 mL を加え、同温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {2 - クロロ - 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル} アクリロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (28) と記す。) 238 mg を得た。
- 20
- 25 本ヒドラジド化合物 (28)

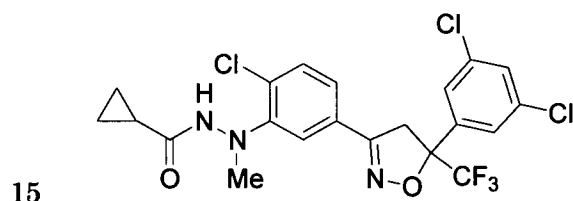


融点：90℃

製造例 29

- 5 参考製造例 28 により得られた N-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} ヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 2.0 mL に溶かし、ここに室温でシクロプロパンカルボニルクロライド 58 mg を滴下した。同温で 30 分間攪拌後、反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣
- 10 をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-メチル-N'- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} シクロプロパンカルボヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (29) と記す。) 225 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (29)



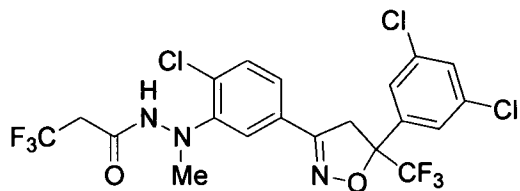
融点：176℃

製造例 30

- 参考製造例 28 により得られた N-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} ヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 2.0 mL に溶かし、ここに室温で 3, 3, 3-トリフルオロプロピオニルクロライド 81 mg を滴下した。同温で 30 分間攪拌後、反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-メチル-N'- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} -3, 3, 3-トリフルオロプロ
- 20
- 25

ロピオノヒドラジド（本明細書において、本ヒドラジド化合物（30）と記す。）241 mgを得た。

本ヒドラジド化合物（30）

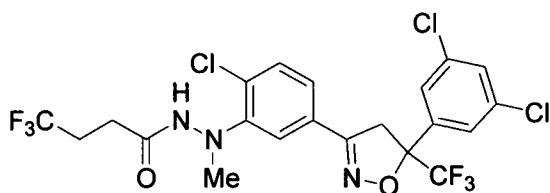


5 融点：81℃

製造例31

参考製造例28により得られたN-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} ヒドラジン200 mg 及びトリエチルアミン57 mgをテトラヒドロフラン2.0 mLに溶かし、ここに室温で4, 4, 4-トリフルオロブチリルクロ
10 ライド88 mgを滴下した。同温で1時間攪拌後、反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-メチル-N'- {2-クロ
15 ロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} -4, 4, 4-トリフルオロブチロ
ヒドラジド（本明細書において、本ヒドラジド化合物（31）と記す。）258 mgを得た。

本ヒドラジド化合物（31）



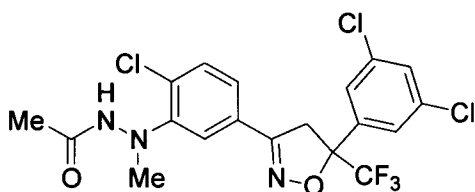
20 融点：77℃

製造例32

参考製造例28により得られたN-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} ヒドラジン200 mg 及びトリエチルアミン57 mgをテトラ
25 ヒドロフラン2.0 mLに溶かし、ここに室温で塩化アセチル43 mgを滴下した。同温

で1時間攪拌後、反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-メチル-N'-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}アセトヒドラジド(本明細書において、本ヒドラジド化合物(32)と記す。)204mgを得た。

本ヒドラジド化合物(32)



$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.88-7.24 (7H, m), 4.09-4.04 (1H, m), 3.70-3.66 (1H, m), 3.29-3.07 (3H, m), 2.17-1.91 (3H, m).

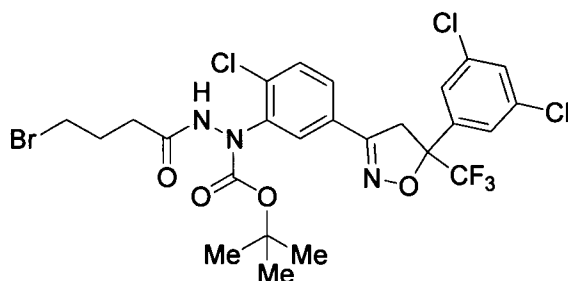
10

製造例33

参考製造例23により得られたN-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル 525mg 及びトリエチルアミン121mgをテトラヒドロフラン4mLに溶かし、ここに室温で4-ブロモブチリルクロライド223mgを滴下して、1時間攪拌した。反応混合物に水を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードのN'-(4-ブロモブチリル)-N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル(本明細書において、本ヒドラジド化合物(33)と記す。)699mgを得た。

15

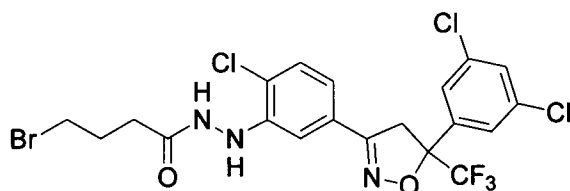
20 本ヒドラジド化合物(33)



製造例34

製造例 3 3 により得られた N' - (4 - ブロモブチリル) - N - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル 3 0 9 m g にトリフルオロ酢酸 2 mL を加え室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } - 4 - ブロモブチロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (3 4) と記す。) 5 7 3 m g を得た。

本ヒドラジド化合物 (3 4)

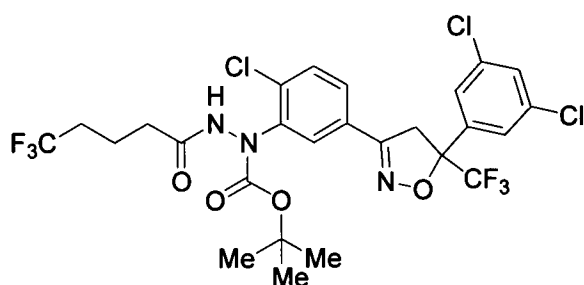


融点 : 5 9 °C

15 製造例 3 5

参考製造例 2 3 により得られた N - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル 3 5 0 m g 及び 5 , 5 , 5 - トリフルオロペンタン酸 1 8 7 m g を N , N - ジメチルホルムアミド 2 m l に溶かし、ここに室温で 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 1 5 3 m g を加え、3 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの N' - (5 , 5 , 5 - トリフルオロペンタノイル) - N - { 2 - クロロ - 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert - ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (3 5) と記す。) 3 5 0 m g を得た。

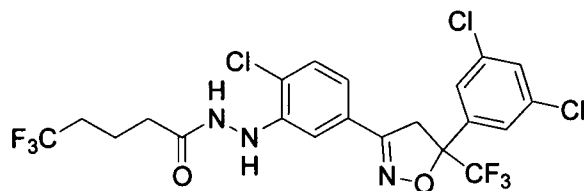
本ヒドラジド化合物 (3 5)



製造例 3 6

製造例 3 5 により得られたクルードの N' - (5, 5, 5-トリフルオロペンタノイル) - N - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 3 5 0 m g に室温でトリフルオロ酢酸 2 m L を加え、同温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} - 5, 5, 5-トリフルオロペンタノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (3 6) と記す。) 2 6 9 m g を得た。

本ヒドラジド化合物 (3 6)



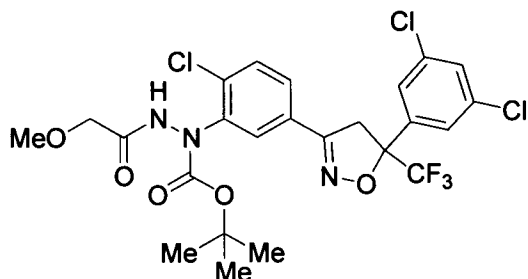
15 融点 : 1 6 3 °C

製造例 3 7

参考製造例 2 3 により得られた N - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 3 6 7 m g 及びトリエチルアミン 8 4 m g をテトラヒドロフラン 2 m L に溶かし、ここに室温でメトキシアセチルクロライド 9 1 m g を滴下して、1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの N' - メトキシアセチル-N - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロ

メチルー 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (37) と記す。) 377 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (37)

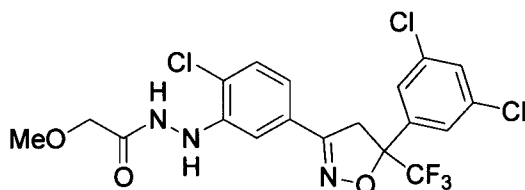


5 製造例 38

製造例 37 により得られたクルードの N'-メトキシアセチルー N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチルー 4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 309 mg に室温でトリフルオロ酢酸 2 mL を加え、同温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、

- 10 残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチルー 4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} メトキシアセトヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (38) と記す。) 276 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (38)



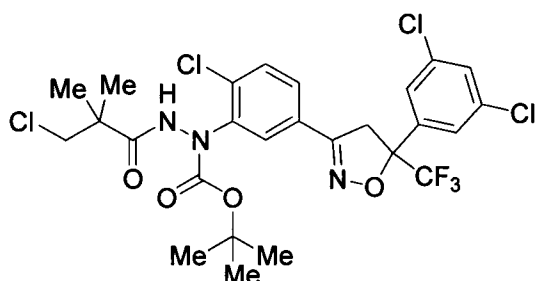
融点: 178°C

20 製造例 39

参考製造例 23 により得られた N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチルー 4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 524 mg 及びトリエチルアミン 121 mg をテトラヒドロフラン 4 mL に溶かし、ここに室温で 3-クロロピバロイルクロライド 186

- mg を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの N' - (3-クロロピバロイル) - N - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (39) と記す。) 643 mg を得た。

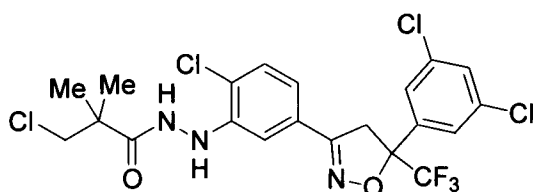
本ヒドラジド化合物 (39)



10 製造例 40

- 製造例 39 により得られたクルードの N' - (3-クロロピバロイル) - N - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 643 mg にトリフルオロ酢酸 5 mL を加え室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N' - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} - 3-クロロピバロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (40) と記す。) 520 mg を得た。

20 本ヒドラジド化合物 (40)



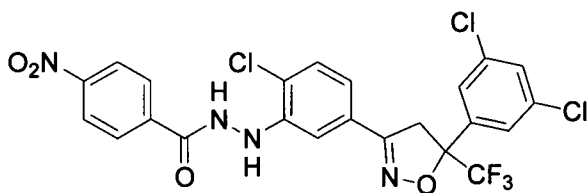
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.68 (1H, d, $J = 3.2$ Hz), 7.47 (2H, d, $J = 1.7$ Hz), 7.42 (1H, t, $J = 2.0$ Hz), 7.32 (1H, d, $J = 8.3$ Hz), 7.26 (1H, d, $J = 1.5$ Hz), 7.06 (1H, dd, $J = 8.2, 2.1$ Hz), 6.45 (1H, d, $J = 3.2$ Hz), 4.00 (1H, d, $J = 17.6$ Hz), 3.68 (2H, s), 3.63 (1H, d, $J = 17.6$ Hz)

Hz), 1.42 (3H, s), 1.41 (3H, s).

製造例 4 1

参考製造例 2 1 により得られたクルードの 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル)
5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロ
ロフェニルヒドラジン 2 0 0 m g 及びトリエチルアミン 5 6 m g をテトラヒドロフラン
4 m l に溶かし、ここに 0 ° C で 4 - ニトロベンゾイルクロライド 1 0 3 m g を加え、
室温で 1 0 分間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラ
ムクロマトグラフィーに付し、N' - { 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5
10 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロ
ロフェニル } - 4 - ニトロベンゾヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (4
1) と記す。) 1 6 6 m g を得た。

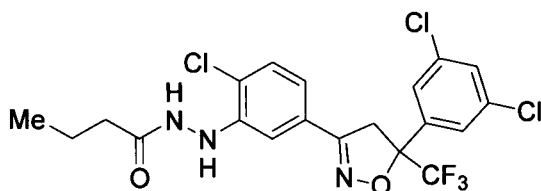
本ヒドラジド化合物 (41)

15 熔点: 231°C

製造例 4 2

参考製造例 2 1 により得られたクルードの 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル)
- 5 - トリフルオロメチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - ク
20 ロロフェニルヒドラジン 2 0 0 m g 及びトリエチルアミン 5 7 m g をテトラヒドロフラン
4 m l に溶かし、ここに 0 ° C でブチルクロライド 5 0 m g を加え、室温で 2 0 分間
攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラ
フイーに付し、N' - { 5 - [5 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロ
メチル - 4 , 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニル } ブチ
25 ロヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (4 2) と記す。) 1 2 1 m g を
得た。

本ヒドラジド化合物 (42)

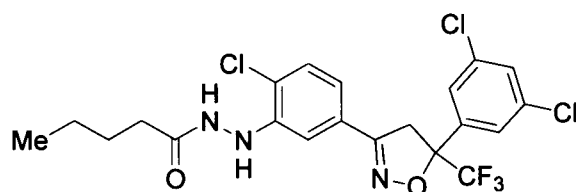


融点：82℃

製造例 4 3

- 5 参考製造例 2 1 により得られたクルードの 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0℃ でペンタノイルクロライド 57 mg を加え、室温で 2 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニル} ペンタノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (4 3) と記す。) 164 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (4 3)



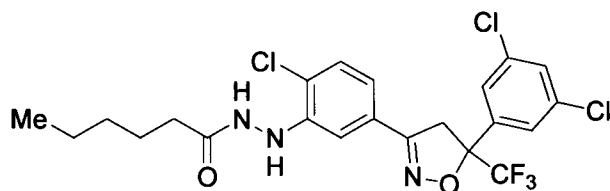
融点：89℃

製造例 4 4

- 20 参考製造例 2 1 により得られたクルードの 5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0℃ でヘキサノイルクロライド 63 mg を加え、室温で 20 分間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {5 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] - 2 - クロロフェニル} ヘキサノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (4 4) と記す。) 134

mgを得た。

本ヒドラジド化合物（44）



融点：80℃

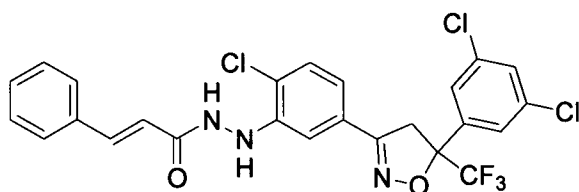
5

製造例 45

参考製造例 21により得られたクルードの 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン 200 mg 及びトリエチルアミン 57 mg をテトラヒドロフラン 4 ml に溶かし、ここに 0℃ でシンナモイルクロライド 78 mg を加え、室温で 20 分間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N'-{5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニル}-3-フェニルアクリロヒドラジド（本明細書において、本ヒドラジド化合物（45）と記す。） 161 mg を得た。

15

本ヒドラジド化合物（45）



融点：205℃

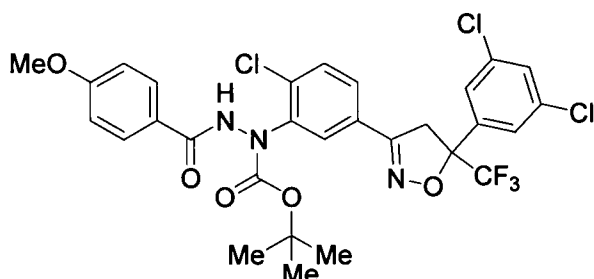
20 製造例 46

参考製造例 23により得られた N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル 247 mg 及びトリエチルアミン 56 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶解し、ここに室温で 4-メトキシベンゾイルクロライド 95 mg を加え、1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの N'-(4-メトキ

25

シベンゾイル) -N- {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (46) と記す。) 240 mg を得た。

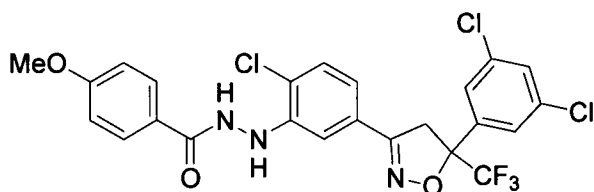
5 本ヒドラジド化合物 (46)



製造例 47

製造例 46 により得られたクルードの N' - (4-メトキシベンゾイル) -N- {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}カルバジン酸 tert-ブチル 240 mg にトリフルオロ酢酸 2 mL を加え室温で 1 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、残渣に酢酸エチルを加え、有機層を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N' - {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル} - 4-メトキシベンゾヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (47) と記す。) 221 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (47)



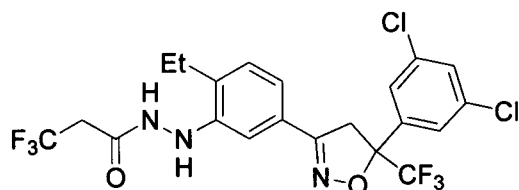
20 融点: 131°C

製造例 48

参考製造例 31 により得られた 5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-エチルフェニル

- ルヒドラジン 1.31 g 及びトリエチルアミン 200 mg をテトラヒドロフラン 4 mL に溶かし、ここに室温で 3, 3, 3-トリフルオロプロピオニルクロライド 290 mg を滴下した。同温で 1 時間攪拌後、反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N' - {5 - [5 - (3, 5-ジクロロフェニル) - 5-トリフルオロメチル - 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール - 3-イル] - 2-エチルフェニル} - 3, 3, 3-プロピオノヒドラジド (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (48) と記す。) 426 mg を得た。

本ヒドラジド化合物 (48)



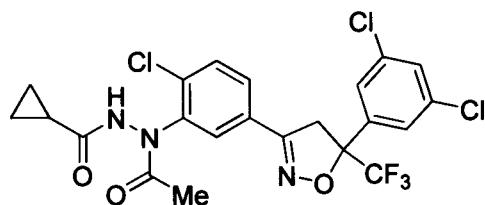
- 10 融点 138.7°C

製造例 49

- 参考製造例 33 により得られた化合物 200 mg 及びトリエチルアミン 65 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに室温でシクロプロパンカルボニルクロライド 54 mg を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を

水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物 (本明細書において、本ヒドラジド化合物 (49) と記す。) 216 mg を得た。

- 20 本ヒドラジド化合物 (49)



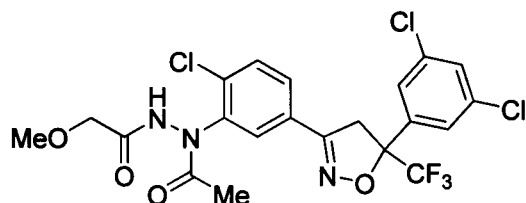
融点: 160°C

製造例 50

- 25 参考製造例 33 により得られた化合物 200 mg 及びトリエチルアミン 65 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに室温でメトキシアセチルクロライド 55 mg を

滴下して、同温で1時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（50）と記す。）130mgを得た。

5 本ヒドラジド化合物（50）

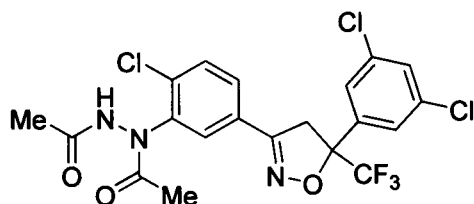


融点：164℃

製造例51

- 10 参考製造例33により得られた化合物200mg及びトリエチルアミン65mgをテトラヒドロフラン2mLに溶かし、ここに室温で塩化アセチル40mgを滴下して、同温で1時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（51）と記す。）140mgを得た。

本ヒドラジド化合物（51）

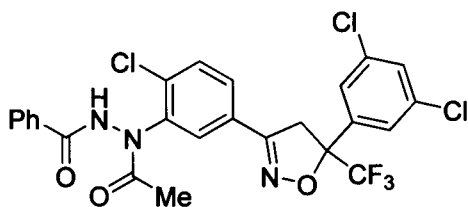


融点：108℃

20 製造例52

- 参考製造例33により得られた化合物200mg及びトリエチルアミン65mgをテトラヒドロフラン2mLに溶かし、ここに室温でベンゾイルクロライド72mgを滴下して、同温で1時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（52）と記す。）281mgを得た。

本ヒドラジド化合物（５２）

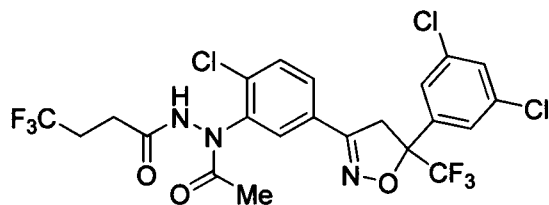


融点：１０７℃

5 製造例 5 3

参考製造例 3 3 により得られた化合物 2 0 0 m g 及びトリエチルアミン 6 5 m g をテトラヒドロフラン 2 m L に溶かし、ここに室温で 4, 4, 4-トリフルオロブチリルクロライド 9 0 m g を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（５３）と記す。） 2 0 7 m g を得た。

本ヒドラジド化合物（５３）



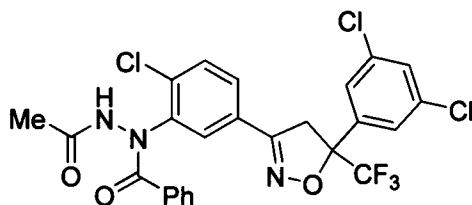
融点：１１７℃

15

製造例 5 4

参考製造例 3 5 により得られた化合物 2 0 0 m g 及びトリエチルアミン 5 8 m g をテトラヒドロフラン 2 m L に溶かし、ここに室温で塩化アセチル 3 8 m g を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（５４）と記す。） 1 5 6 m g を得た。

本ヒドラジド化合物（５４）

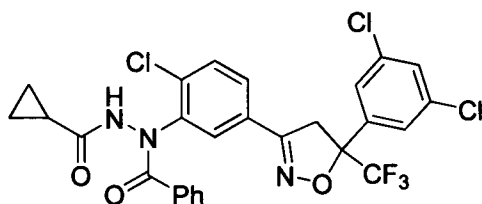


融点：142℃

製造例 55

- 5 参考製造例 35 により得られた化合物 200 mg 及びトリエチルアミン 51 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに室温でシクロプロパンカルボニルクロライド 54 mg を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書に
- 10 おいて、本ヒドラジド化合物（55）と記す。）103 mg を得た。

本ヒドラジド化合物（55）

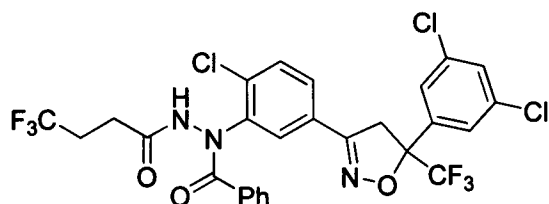


融点：172℃

15 製造例 56

- 参考製造例 35 により得られた化合物 200 mg 及びトリエチルアミン 65 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに室温で 4, 4, 4-トリフルオロブチルクロライド 78 mg を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得ら
- 20 れた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（56）と記す。）211 mg を得た。

本ヒドラジド化合物（56）

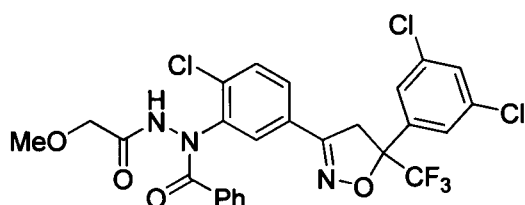


融点：157℃

製造例 57

- 参考製造例 35 により得られた化合物 300 mg 及びトリエチルアミン 85 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに室温でメトキシアセチルクロライド 79 mg を滴下して、同温で 1 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（57）と記す。）297 mg を得た。

- 10 本ヒドラジド化合物（57）

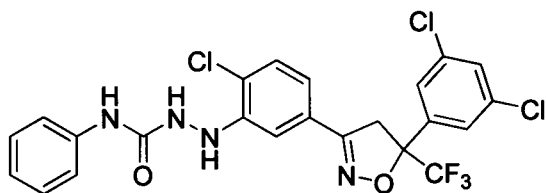


融点：92℃

製造例 58

- 15 参考製造例 21 により得られたクルードの化合物 241 mg をテトラヒドロフラン 2 mL に溶かし、ここに室温でフェニルイソシアナート 82 mg を滴下して、室温で 3 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（58）と記す。）187 mg を得た。

- 20 本ヒドラジド化合物（58）



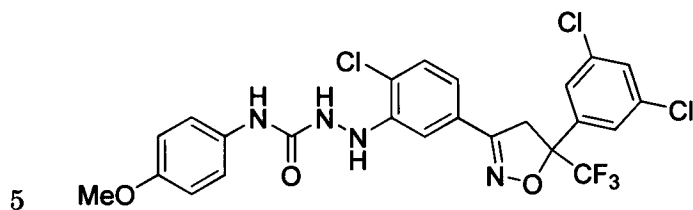
融点 131℃

製造例 59

- 25 参考製造例 21 により得られたクルードの化合物 200 をテトラヒドロフラン 6 mL に溶かし、ここに室温で 4-メトキシフェニルイソシアナート 85 mg を滴下して、室

温で3時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（59）と記す。）191mgを得た。

本ヒドラジド化合物（59）

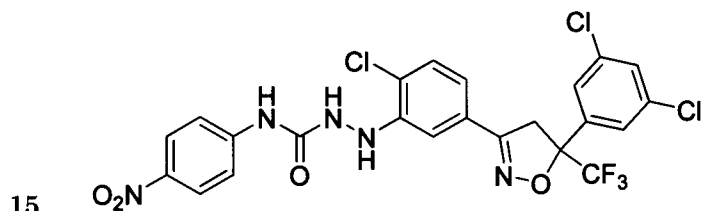


融点131℃

製造例60

参考製造例21により得られたクルードの化合物196mgをテトラヒドロフラン5
10 mlに溶かし、ここに室温で4-ニトロフェニルイソシアナート136mgを滴下して、室温で3時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（60）と記す。）110mgを得た。

本ヒドラジド化合物（60）

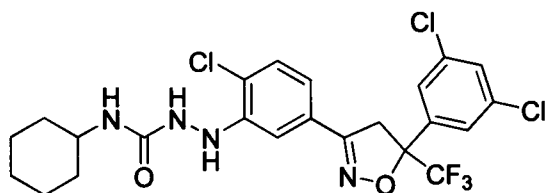


融点201℃

製造例61

参考製造例21により得られたクルードの化合物220mgをテトラヒドロフラン6
20 mlに溶かし、ここに室温でシクロヘキシルイソシアナート79mgを滴下して、室温で3時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（61）と記す。）100mgを得た。

本ヒドラジド化合物（61）

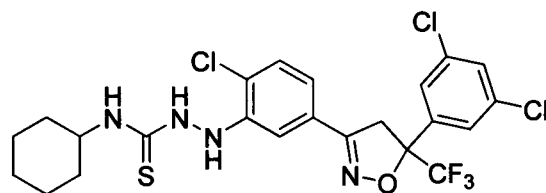


融点 101°C

製造例 6 2

- 5 参考製造例 2 1 により得られたクルードの化合物 340 mg をテトラヒドロフラン 6 ml に溶かし、ここに室温でシクロヘキシルイソチオシアナート 173 mg を滴下して、室温で 3 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（6 2）と記す。）135 mg を得た。

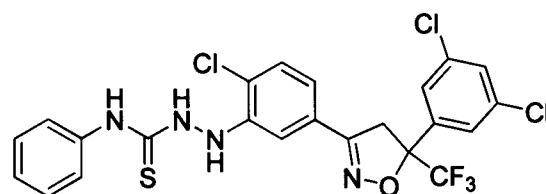
- 10 本ヒドラジド化合物（6 2）



融点 126°C

製造例 6 3

- 15 参考製造例 2 1 により得られたクルードの化合物 240 mg をテトラヒドロフラン 6 ml に溶かし、ここに室温でフェニルイソチオシアナート 114 mg を滴下して、室温で 3 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物（本明細書において、本ヒドラジド化合物（6 3）と記す。）200 mg を得た。
- 20 本ヒドラジド化合物（6 3）



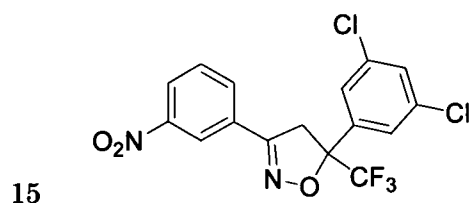
融点 213°C

次に、製造中間体の製造について参考製造例に示す。

参考製造例 1

3-ニトロベンズアルドキシム 249 mg を N, N-ジメチルホルムアミド 15 ml
 5 に溶かし、ここに室温で N-クロロスクシンイミド 201 mg を加え、60℃で 1 時間
 攪拌した。室温まで冷却した反応液に、2-(3, 5-ジクロロフェニル)-3, 3,
 3-トリフルオロ-1-プロペン 362 mg、次いでトリエチルアミン 152 mg を加
 え、室温で 6 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無
 水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマ
 10 トグラフィーに付し、3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメ
 チル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]ニトロベンゼン 232 mg を得
 た。

3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒ
 ドロイソキサゾール-3-イル]ニトロベンゼン

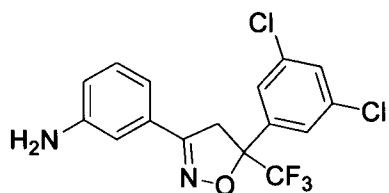


¹H-NMR (CDCl₃) δ: 8.43 (1H, br s), 8.34-8.32 (1H, m), 8.10 (1H, d, J = 8.0 Hz),
 7.67-7.65 (1H, m), 7.52 (2H, s), 7.45-7.45 (1H, m), 4.14 (1H, d, J = 17.3 Hz), 3.76 (1H, d,
 J = 17.3 Hz).

20 参考製造例 2

2. 5%酢酸水溶液 1 ml に鉄粉 (10~20メッシュ) 192 mg を加え、ここに
 75℃で参考製造例 1 で製造された 3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリ
 25 32 mg のエタノール 1.5 ml 懸濁液を加え、同温で 15 分間攪拌した後さらに鉄
 粉 300 mg 加え、室温で 1 時間攪拌した。室温まで冷却した反応混合物を濾過し、酢
 酸エチルで洗浄した。濾液に水と酢酸エチルを加えて抽出し、有機層を無水硫酸ナトリ
 ウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー
 に付し、3-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-
 ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン 198 mg を得た。

3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン

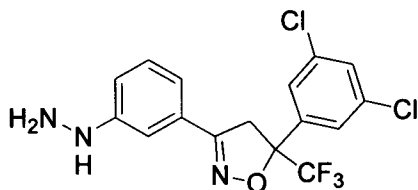


¹H-NMR (CDCl₃) δ: 7.51 (2H, br s), 7.42 (1H, t, J = 1.9 Hz), 7.20 (1H, t, J = 7.8 Hz),
 5 7.04 (1H, t, J = 1.9 Hz), 6.95-6.93 (1H, m), 6.77-6.75 (1H, m), 4.05 (1H, d, J = 17.1 Hz),
 3.77 (2H, br s), 3.66 (1H, d, J = 17.1 Hz).

参考製造例 3

3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒ
 10 ドロイソキサゾール-3-イル]アニリン 1.0 g を 1,4-ジオキサン 4 mL に溶
 かし、ここに室温で濃塩酸 7 mL を加えた。同温で 20 分攪拌後、この溶液を 0℃ に冷
 却し、亜硝酸ナトリウム 1.84 mg を水 4 mL に溶解した溶液を滴下した。同温で 15
 分攪拌後、この反応液に、塩化スズ (II) 1.11 g を濃塩酸 2 mL に溶かした溶液
 15 を滴下した。反応混合液に 2 N 水酸化ナトリウムを加え中和し、水層を酢酸エチルで抽
 出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの 3-[5-
 (3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサ
 ザゾール-3-イル]フェニルヒドラジン 1.0 g 得た。

3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒ
 ドロイソキサゾール-3-イル]フェニルヒドラジン



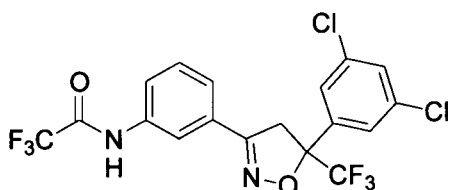
20

参考製造例 4

参考製造例 2 で製造された 3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフル
 オロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン 3.0 g とトリ
 25 エチルアミン 971 mg をテトラヒドロフラン 20 mL に溶かし、ここに 0℃ にてトリ
 フルオロ酢酸無水物 1.85 g を滴下した。同温で 15 分攪拌後、飽和炭酸水素ナトリ

ウム水溶液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N- {3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチルー4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド 3.84 g 得た。

- 5 N- {3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチルー4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド

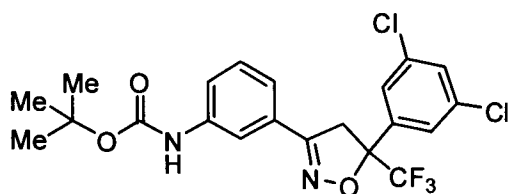


- 10 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.02 (1H, br s), 7.94 (1H, t, $J = 1.8$ Hz), 7.66-7.64 (1H, m), 7.57-7.55 (1H, m), 7.49-7.43 (4H, m), 4.09 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 3.71 (1H, d, $J = 17.3$ Hz).

参考製造例 5

- 15 参考製造例 4 で製造された N- {3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチルー4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド 3.84 g と二炭酸ジ-tert-ブチル 8.21 g をテトラヒドロフラン 20 mL に溶かし、ここに室温で 4-ジメチルピリジン 195 mg を加えた。同温で 1.5 時間攪拌後、反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を 2 N 塩酸、次いで
- 20 飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮して得られた残渣をメタノール 20 mL に溶かし、室温にて水 10 mL、炭酸ナトリウム 2.76 g を加えた。同温で 2 時間攪拌後、水を加え酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、{3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチルー4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバミン酸 tert-ブチル 3.5 g 得た。

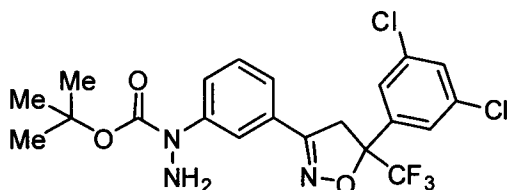
{3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチルー4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバミン酸 tert-ブチル



$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.81 (1H, s), 7.51 (2H, s), 7.42-7.39 (2H, m), 7.35-7.31 (2H, m), 6.55 (1H, br s), 4.11 (1H, d, $J = 16.9$ Hz), 3.70 (1H, d, $J = 16.9$ Hz), 1.53 (9H, s).

5 参考製造例 6

- 参考製造例 5 で製造された { 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバミン酸 tert-ブチル 3. 50 g を tert-ブチルメチルエーテル 22 mL に溶かし、28% 水酸化ナトリウム水溶液 23 mL、アンモニア水 7 mL、塩化アンモニウム 2.56 g、
- 10 トリオクチルメチルアンモニウムクロライド 100 mg を加えた。この混合液に室温にて 5% 次亜塩素酸ナトリウム水溶液 53 mL を 20 分間かけて滴下した。同温で 12 時間攪拌後、有機層を分離し、水層に tert-ブチルメチルエーテルを加え再度抽出した。合わせた有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N - { 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert-ブチル
- 15 1.52 g 得た。
- N - { 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } カルバジン酸 tert-ブチル



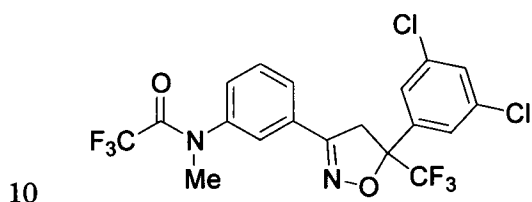
- 20 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.87 (1H, s), 7.72-7.29 (6H, m), 4.42 (2H, br s), 4.09 (1H, d, $J = 17.2$ Hz), 3.69 (1H, d, $J = 17.2$ Hz), 1.53 (9H, s).

参考製造例 7

- 参考製造例 4 で製造された N - { 3 - [5 - (3, 5 - ジクロロフェニル) - 5 - トリフルオロメチル - 4, 5 - ジヒドロイソオキサゾール - 3 - イル] フェニル } 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド 3. 71 g とヨウ化メチル 1.34 g を N, N-ジメチル
- 25

ホルムアミド 20 mL に溶かし、ここに室温にて炭酸ナトリウム 1.31 g を加えた。同温で 12 時間攪拌した。反応混合物に酢酸エチルを加え、2 N 塩酸及び飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N-メチル-N- {3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド 3.70 g 得た。

N-メチル-N- {3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド

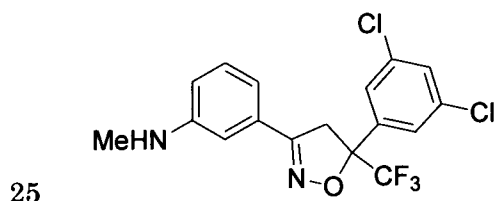


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.69-7.35 (7H, m), 4.09 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 3.71 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 3.46-3.43 (3H, m).

参考製造例 8

15 参考製造例 7 で製造された N-メチル-N- {3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロ酢酸アミド 3.52 g をメタノール 15 mL に溶かし、ここに室温にて炭酸ナトリウム 2.00 g、水 5 mL を加えた。同温で 2 時間攪拌後、酢酸エチルを加え、水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を 2% 塩酸及び飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N-メチル-3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] アニリン 2.80 g 得た。

N-メチル-3- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] アニリン



$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.51 (2H, d, $J = 1.2$ Hz), 7.41 (1H, t, $J = 1.8$ Hz), 7.21 (1H, t, $J =$

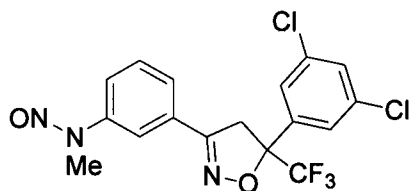
7.9 Hz), 6.95 (1H, t, J = 2.0 Hz), 6.87 (1H, ddd, J = 7.6, 1.5, 1.0 Hz), 6.69 (1H, ddd, J = 8.3, 2.4, 0.7 Hz), 4.07 (1H, d, J = 17.3 Hz), 3.85 (1H, br s), 3.67 (1H, d, J = 17.3 Hz), 2.86 (3H, s).

5 参考製造例 9

参考製造例 8 で製造された N-メチル-3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン 2.6 g をテトラヒドロフラン 4 mL に溶かし、ここに室温で濃塩酸 1.5 mL、水 3.0 mL を加えた。室温にて 15 分攪拌後、この混合液に、0℃にて亜硝酸ナトリウム 5.8

10 1 mg を水 5 mL に溶かした溶液を滴下した。同温で 1 時間攪拌後、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加え、水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N-メチル-N-ニトロソ-3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン 2.78 g 得た。

- 15 N-メチル-N-ニトロソ-3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン



¹H-NMR (CDCl₃) δ : 7.89-7.88 (1H, m), 7.67-7.64 (2H, m), 7.56-7.53 (3H, m), 7.43-7.43 (1H, m), 4.14 (1H, d, J = 17.4 Hz), 3.76 (1H, d, J = 17.4 Hz), 3.47 (3H, s).

20

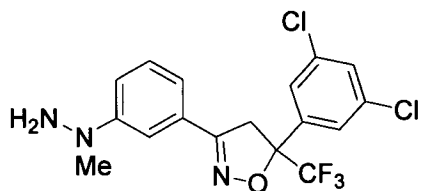
参考製造例 10

参考製造例 9 で製造された N-メチル-N-ニトロソ-3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]アニリン 1.00 g、エタノール 2 mL、水 2 mL 及び酢酸 2 mL の混合物に、室

25 温で亜鉛 695 mg を加えた。室温にて 5 時間攪拌後、この混合液をろ過し、ろ液に無水炭酸水素ナトリウムを加え、クロロホルムで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、クルードの N-メチル-N-{3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}ヒドラ

ジン 1. 1 g 得た。

N-メチル-N-{3-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}ヒドラジン



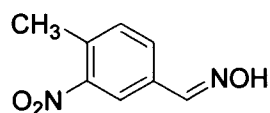
5

参考製造例 1 1

4-メチル-3-ニトロベンズアルデヒド 3.00 g、ヒドロキシルアミン塩酸塩 1.64 g、エタノール 30 ml 及び水 15 ml の混合物に酢酸ナトリウム 2.24 g を室温で加え、室温で 1 時間攪拌した。反応混合物を水に加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮して、5-ヒドロキシイミノメチル-2-メチルニトロベンゼン 2.77 g を得た。

10

5-ヒドロキシイミノメチル-2-メチルニトロベンゼン



¹H-NMR (DMSO-d₆) δ: 11.53 (1H, s), 8.24 (1H, s), 8.17 (1H, d, J = 1.7 Hz), 7.84 (1H, dd, J = 8.0, 1.7 Hz), 7.54 (1H, d, J = 8.0 Hz), 2.52 (3H, s).

15

参考製造例 1 2

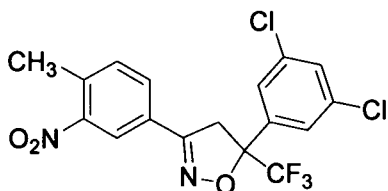
参考製造例 1 1 で得た 5-ヒドロキシイミノメチル-2-メチルニトロベンゼン 2.77 g 及び N-クロロスクシンイミド 2.06 g を 30 ml の N,N-ジメチルホルムアミドに溶かし、50℃で 1 時間攪拌した。室温まで冷却した反応液に 2-(3,5-ジクロロフェニル)-3,3,3-トリフルオロ-1-プロペン 3.71 g、次いでトリエチルアミン 1.56 g を加え、室温で 6 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-メチルニトロベンゼン 4.99 g を得た。

20

25

5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒ

ドロイソオキサゾールー 3-イル] - 2-メチルニトロベンゼン



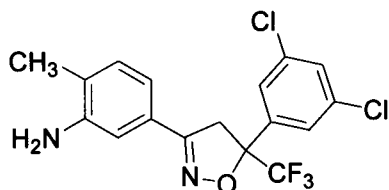
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.16 (1H, d, $J = 1.9$ Hz), 7.90 (1H, dd, $J = 8.1, 1.9$ Hz), 7.51 (2H, d, $J = 1.2$ Hz), 7.45-7.43 (2H, m), 4.11 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 3.73 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 2.66 (3H, s).

参考製造例 13

2. 5%酢酸水溶液 19 ml に鉄粉 (10~20メッシュ) 1.89 g を加え、ここに 75°C で参考製造例 12 で製造された 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾールー 3-イル] - 2-メチルニトロベンゼン 4.62 g のエタノール 29 ml 懸濁液を加え、同温で 15 分間攪拌した後さらに鉄粉を同温で 1.80 g 加え、同温で 1 時間攪拌した。室温まで冷却した反応混合物を濾過し、酢酸エチルで洗浄した。濾液に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液と酢酸エチルを加えて抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。

15 得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾールー 3-イル] - 2-メチルアニリン 3.18 g を得た。

5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾールー 3-イル] - 2-メチルアニリン



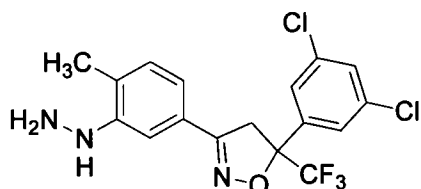
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.51 (2H, d, $J = 1.4$ Hz), 7.41 (1H, t, $J = 1.8$ Hz), 7.08 (1H, d, $J = 7.8$ Hz), 7.05 (1H, d, $J = 1.8$ Hz), 6.88 (1H, dd, $J = 7.8, 1.7$ Hz), 4.04 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 3.71 (2H, br s), 3.65 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 2.19 (3H, s).

25 参考製造例 14

参考製造例 13 で製造された 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフ

ルオロメチルー 4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-メチルアニリン
 420 mg に室温で濃塩酸 2 mL を加えた。同温で 20 分攪拌後、この溶液を 0℃ に冷
 却し、亜硝酸ナトリウム 82 mg を水 0.5 mL に溶かした溶液を滴下した。同温で 1
 0 分攪拌後、この反応液に、塩化スズ (II) 451 mg を濃塩酸 0.5 mL に溶かし
 5 た溶液を滴下した。次いで、反応混合液に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加え中和し、
 水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、
 クルードの 5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチルー 4,
 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-メチルフェニルヒドラジン 420 m
 g 得た。

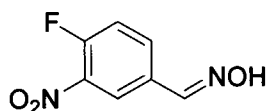
- 10 5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチルー 4, 5-ジヒ
 ドロイソオキサゾール-3-イル]-2-メチルフェニルヒドラジン



参考製造例 15

- 15 4-フルオロ-3-ニトロベンズアルデヒド 2 g、ヒドロキシルアミン塩酸塩 1.0
 7 g 及び酢酸ナトリウム 1.45 g を、エタノール 20 mL 及び水 10 mL の混合液に
 溶かし、室温で 6 時間攪拌した。反応混合物を水に加え、酢酸エチルで抽出し、有機層
 を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮することにより、2-フルオロ-5-ヒド
 ロキシイミノメチルニトロベンゼン 1.95 g を得た。

- 20 2-フルオロ-5-ヒドロキシイミノメチルニトロベンゼン



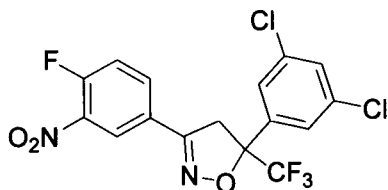
$^1\text{H-NMR}$ (DMSO- D_6) δ : 11.63 (1H, s), 8.34 (1H, dd, $J = 7.2, 2.2$ Hz), 8.28 (1H, s),
 8.04-8.02 (1H, m), 7.65-7.62 (1H, m).

- 25 参考製造例 16

参考製造例 15 で得られた 2-フルオロ-5-ヒドロキシイミノメチルニトロベンゼ
 ン 1.95 g 及び N-クロロスクシンイミド 1.42 g をジメチルホルムアミド 20 mL
 に溶解し、60℃ で 1 時間攪拌した。室温に冷却した反応混合液に 2-(3, 5-ジ

- クロロフェニル) - 3, 3, 3-トリフルオロ-1-プロペン2. 55 g、次いでトリ
エチルアミン1. 07 gを加え、同温で6時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸
エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残
5 渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、5-[5-(3, 5-ジクロロフェ
ニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-フルオロニトロベンゼン1. 40 gを得た。

5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒ
ドロイソオキサゾール-3-イル]-2-フルオロニトロベンゼン



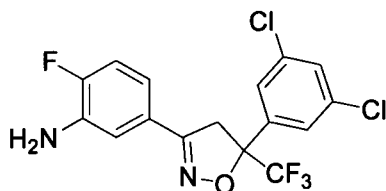
10

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.26 (1H, dd, $J = 6.9, 2.3$ Hz), 8.08-8.05 (1H, m), 7.51 (2H, d, $J = 1.2$ Hz), 7.45 (1H, t, $J = 1.9$ Hz), 7.41 (1H, dd, $J = 10.1, 8.7$ Hz), 4.11 (1H, d, $J = 17.4$

参考製造例 17

- 15 鉄粉1. 85 gを酢酸0. 2 g及び水7 mlの混合液に室温に加え、ここに75℃で
参考製造例16で得られた5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオ
ロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-フルオロニトロベン
ゼン1. 40 gのエタノール15 ml懸濁液を加え、75℃で20分間攪拌した。反応
混合物を濾過し、濾液を減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマト
20 グラフィーに付し、5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル
-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-フルオロニトロアニリン80
6 mgを得た。

5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒ
ドロイソオキサゾール-3-イル]-2-フルオロニトロアニリン



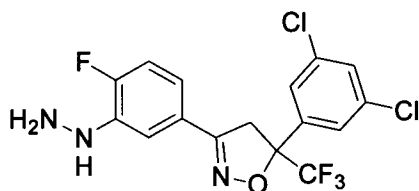
25

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.50 (2H, d, $J = 1.4$ Hz), 7.42 (1H, t, $J = 1.8$ Hz), 7.18 (1H, dd, $J =$

8.5, 2.2 Hz), 7.01 (1H, dd, J = 10.6, 8.5 Hz), 6.90-6.87 (1H, m), 4.03 (1H, d, J = 17.0 Hz), 3.85 (2H, br s), 3.64 (1H, d, J = 17.0 Hz).

参考製造例 18

- 5 参考製造例 17 で製造された 5-〔5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル〕-2-フルオロニトロアニリン 500 mg を 1, 4-ジオキサン 2 mL に溶かし、ここに室温で濃塩酸 4 mL を加えた。同温で 20 分間攪拌後、この溶液を 0℃ に冷却し、亜硝酸ナトリウム 96 mg を水 5 mL に溶解した溶液を滴下した。同温で 15 分間攪拌後、この反応液に、塩化
- 10 スズ (II) 528 mg を濃塩酸 1 mL に溶かした溶液を滴下した。次いで、反応混合液に 2 N 水酸化ナトリウムを加え中和した後、水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの 5-〔5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル〕-2-フルオロフェニルヒドラジン 412 mg 得た。
- 15 5-〔5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル〕-2-フルオロフェニルヒドラジン

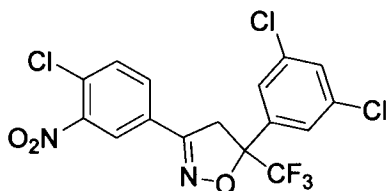


参考製造例 19

- 20 2-クロロ-5-ヒドロキシイミノメチルニトロベンゼン 2.92 g 及び N-クロロスクシンイミド 1.94 g をジメチルホルムアミド 30 mL に溶解し、60℃ で 1 時間攪拌した。室温まで冷却した混合液に、2-(3, 5-ジクロロフェニル)-3, 3, 3-トリフルオロ-1-プロペン 3.50 g、次いでトリエチルアミン 1.46 g を加え、6 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸
- 25 ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィに付し、5-〔5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル〕-2-クロロニトロベンゼン 4.42 g を得た。

5-〔5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒ

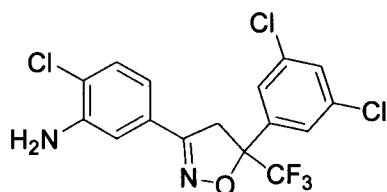
ドロイソオキサゾールー3-イル]ー2-クロロニトロベンゼン



¹H-NMR (CDCl₃) δ : 8.09 (1H, d, J = 2.1 Hz), 7.89 (1H, dd, J = 8.5, 2.1 Hz), 7.65 (1H, d, J = 8.5 Hz), 7.50 (2H, d, J = 1.6 Hz), 7.45 (1H, t, J = 1.6 Hz), 4.09 (1H, d, J = 17.3 Hz),
5 3.71 (1H, d, J = 17.3 Hz).

参考製造例 20

鉄粉 3.46 g を、酢酸 0.38 g、水 15 ml 及びエタノール 30 ml の混合液に
室温で加え、ここに 75℃ で参考製造例 19 で得られた 5-[5-(3,5-ジクロロ
10 フェニル)ー5-トリフルオロメチルー4,5-ジヒドロイソオキサゾールー3-イル]
ー2-クロロニトロベンゼン 2.73 g を加え、75℃ で 50 分間攪拌した。反応混合
物を濾過し、濾液を減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフ
ィーに付し、5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)ー5-トリフルオロメチルー4,
5-ジヒドロイソオキサゾールー3-イル]ー2-クロロアニリン 1.65 g を得た。
15 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)ー5-トリフルオロメチルー4,5-ジヒ
ドロイソオキサゾールー3-イル]ー2-クロロアニリン



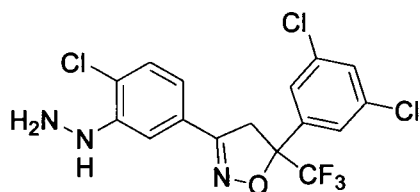
¹H-NMR (CDCl₃) δ : 7.49 (2H, d, J = 1.7 Hz), 7.42 (1H, t, J = 1.7 Hz), 7.29 (1H, d, J =
8.4 Hz), 7.13 (1H, d, J = 2.0 Hz), 6.89 (1H, dd, J = 8.4, 2.0 Hz), 4.18 (2H, br s), 4.03 (1H,
20 d, J = 17.1 Hz), 3.64 (1H, d, J = 16.4 Hz).

参考製造例 21

参考製造例 20 で製造された 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)ー5-トリフ
ルオロメチルー4,5-ジヒドロイソオキサゾールー3-イル]ー2-クロロアニリン
25 500 mg を 1,4-ジオキサン 2 mL に溶かし、室温で濃塩酸 6 mL を加えた。同温
で 20 分間攪拌後、この溶液を 0℃ に冷却し、亜硝酸ナトリウム 93 mg を水 3 mL に

溶解した溶液を滴下した。同温で15分間攪拌後、この反応液に、塩化スズ（I I）507mgを濃塩酸4mLに溶かした溶液を滴下した。次いで、反応混合液に2N水酸化ナトリウムを加え、中和した後、水層をtertブチルメチルエーテルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン510mg得た。

5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-クロロフェニルヒドラジン

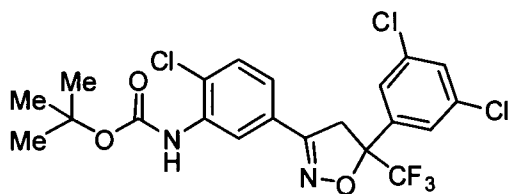


10

参考製造例 22

トリホスゲン6.3gをトルエン50mLに溶かし、ここに室温で参考製造例20で得られた5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]-2-クロロアニリン8.7gをトルエン50mL及びテトラヒドロフラン10mLに溶かした溶液を滴下した。反応溶液にトルエン50mLを追加し、80℃で1時間攪拌した。室温まで冷却した反応混合物を減圧下濃縮し、tertブタノール100mLを加えた。この溶液に室温にてトリエチルアミン14.6gを滴下し、同温で16時間攪拌した。反応混合物に飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加え、クロロホルムで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}カルバミン酸tertブチル9.81gを得た。

{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル]フェニル}カルバミン酸tertブチル

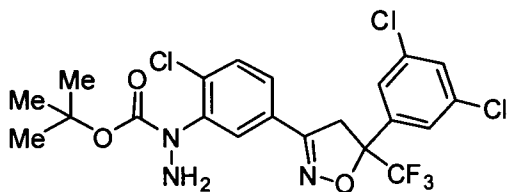


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.39 (1H, d, $J = 2.1$ Hz), 7.52 (2H, d, $J = 1.8$ Hz), 7.47 (1H, dd, $J = 8.5, 2.1$ Hz), 7.42 (1H, t, $J = 1.8$ Hz), 7.39 (1H, d, $J = 8.5$ Hz), 7.09 (1H, br s), 4.11 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 3.70 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 1.55 (9H, s).

5 参考製造例 2 3

水素化ナトリウム (60%油性) 760 mg をテトラヒドロフラン 200 mL に懸濁させ、ここに室温で参考製造例 2 2 で製造された {2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバミン酸 tert-ブチル 8.80 g のテトラヒドロフラン 50 mL 溶液を滴下した。同温で 20 分間攪拌後、室温にて O-(ジフェニルホスホリル) ヒドロキシルアミン 6.0 g 加えた。同温で 15 時間攪拌後、水と酢酸エチルを加え、水層を酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N-{2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル 6.58 g 得た。

N-{2-クロロ-5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} カルバジン酸 tert-ブチル



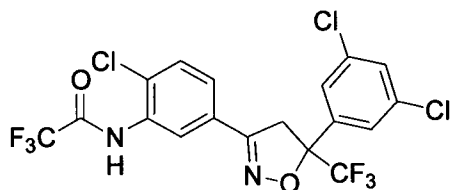
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.55-7.44 (6H, m), 4.07 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 3.68 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 1.41 (9H, br s).

参考製造例 2 4

参考製造例 2 0 で得られた {5-[5-(3, 5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-クロロアニリン 3.04 g 及びトリエチルアミン 772 mg をテトラヒドロフラン 20 mL に溶かし、ここに 0°C でトリフルオロ酢酸無水物 1.47 g を滴下した。同温で 30 分間攪拌後、反応混合物を tert-ブチルメチルエーテルで希釈した。反応混合物に酢酸エチルを加え、有機層を 2 N 塩酸及び飽和炭酸水素ナトリウム水溶液で順次洗浄した。有機層を無水硫

酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロアセトアミド 3. 63 gを得た。

N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロアセトアミド

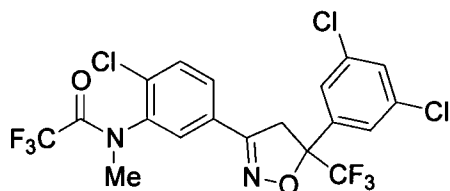


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.53 (1H, d, $J = 2.2$ Hz), 8.48 (1H, br s), 7.67 (1H, dd, $J = 8.5, 2.0$ Hz), 7.52 (1H, d, $J = 8.5$ Hz), 7.50 (2H, s), 7.43-7.42 (1H, m), 4.09 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 3.71 (1H, d, $J = 17.3$ Hz).

参考製造例 25

水素化ナトリウム (60%油性) を N, N-ジメチルホルムアミド 15 mL に懸濁させ、ここに室温で参考製造例 24 で得られた {N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} -2, 2, 2-トリフルオロアセトアミド 3. 6 g を N, N-ジメチルホルムアミド 15 mL に溶かした溶液を滴下した。同温で 20 分間攪拌後、ヨウ化メチル 1. 52 g を加え、さらに 1 時間攪拌した。反応混合液に 2N 塩酸を加え、tert-ブチルメチルエーテルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} -2, 2, 2-トリフルオロアセトアミド 3. 73 g を得た。

N-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] フェニル} -2, 2, 2-トリフルオロアセトアミド

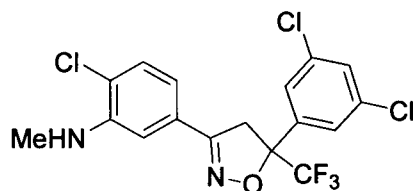


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.70-7.40 (6H, m), 4.06 (1H, dd, $J = 17.2, 13.0$ Hz), 3.73-3.64 (1H, m), 3.33-3.32 (3H, m).

参考製造例 2 6

- 5 参考製造例 2 5 で得られた N-メチル-N- {2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] フェニル} 2, 2, 2-トリフルオロアセトアミド 3. 6 g をメタノール 20 mL に溶かし、ここに室温で炭酸カリウム 1. 97 g を加え、同温で 3 時間攪拌した。沈殿物をろ過し、ろ液に水を加え、t-ブチルメチルエーテルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N-メチル-2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] アニリン 2. 20 g を得た。

N-メチル-2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] アニリン



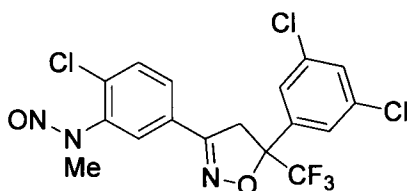
15

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.51 (2H, d, $J = 1.8$ Hz), 7.42 (1H, t, $J = 1.8$ Hz), 7.28 (1H, d, $J = 8.0$ Hz), 6.99 (1H, d, $J = 2.0$ Hz), 6.78 (1H, dd, $J = 8.0, 2.0$ Hz), 4.48 (1H, d, $J = 5.1$ Hz), 4.07 (1H, d, $J = 17.2$ Hz), 3.67 (1H, d, $J = 17.2$ Hz), 2.94 (3H, d, $J = 5.1$ Hz).

20 参考製造例 2 7

- 参考製造例 2 6 で製造された N-メチル-2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] アニリン 2. 55 g をテトラヒドロフラン 4 mL に溶かし、濃塩酸 4. 5 mL、次いで水 5. 0 mL を加えた。室温にて 10 分攪拌後、この混合液を 0°C に冷却し、亜硝酸ナトリウム 539 mg を水 5 mL に溶かした溶液を滴下した。同温で 1 時間攪拌後、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液を加え中和した後、酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、N-メチル-N-ニトロソ-2-クロロ-5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソキサゾール-3-イル] アニリン 2. 69 g を得た。

N-メチル-N-ニトロソ-2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]アニリン

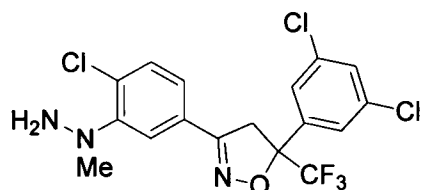


¹H-NMR (CDCl₃) δ: 7.84-7.31 (6H, m), 4.09 (1H, d, J = 17.3 Hz), 3.71 (1H, d, J = 17.3 Hz), 3.41 (3H, s).

参考製造例 28

参考製造例 27 で製造された N-メチル-N-ニトロソ-2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]アニリン 2.61 g をテトラヒドロフラン 4 mL に溶かし、ここに室温でエタノール 8 mL、水 8 mL、酢酸 8 mL を加え、この混合物に室温で亜鉛 695 mg を加えた。室温で 3 時間攪拌後、この混合液をろ過し、ろ液に無水炭酸水素ナトリウムを加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、N-メチル-N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}ヒドラジン 764 mg 得た。

N-メチル-N-{2-クロロ-5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]フェニル}ヒドラジン



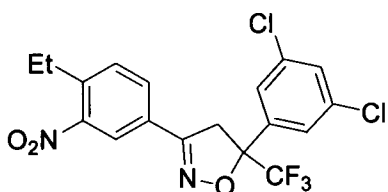
¹H-NMR (CDCl₃) δ: 7.68-7.67 (1H, m), 7.51 (2H, s), 7.42-7.40 (2H, m), 7.23-7.20 (1H, m), 4.08 (1H, d, J = 17.2 Hz), 3.85 (2H, br s), 3.69 (1H, d, J = 17.2 Hz), 3.06 (3H, s).

参考製造例 29

2-エチル-5-ヒドロキシイミノメチルニトロベンゼン 4.30 g 及び N-クロロスクシンイミド 2.97 g をジメチルホルムアミド 40 mL に溶かし、60℃で 1 時間

5 攪拌した。室温に冷却した反応液に、2-(3,5-ジクロロフェニル)-3,3,3-
 ートリフルオロ-1-プロペン 3.5 g、次いでトリエチルアミン 1.7 g を加え、6
 時間攪拌した。反応混合物に水を加えて酢酸エチルで抽出し、有機層を無水硫酸ナトリ
 ウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー
 10 に付し、5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジ
 ヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-エチルニトロベンゼン 5.74 g を得
 た。

5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジ
 ヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-エチルニトロベンゼン

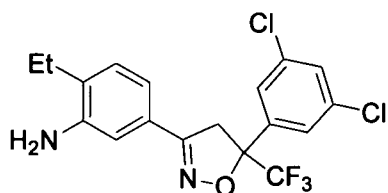


10 $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.07 (1H, d, $J = 1.9$ Hz), 7.91 (1H, dd, $J = 8.0, 1.9$ Hz), 7.51 (2H, d, $J = 1.6$ Hz), 7.46 (1H, d, $J = 8.0$ Hz), 7.44 (1H, t, $J = 1.6$ Hz), 4.10 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 3.72 (1H, d, $J = 17.3$ Hz), 2.96 (2H, q, $J = 7.5$ Hz), 1.30 (3H, t, $J = 7.5$ Hz).

15 参考製造例 30

鉄粉 4.33 g を、酢酸 0.5 ml、水 2.2 ml 及びエタノール 3.4 ml の混合液に
 室温で加え、ここに 75℃ で参考製造例 29 で得られた 5-[5-(3,5-ジクロロ
 フェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]
 -2-エチルニトロベンゼン 5.60 g を加え、同温で 3 時間攪拌した。室温まで冷却
 20 した反応混合物を濾過し、酢酸エチルで洗浄した。濾液に飽和炭酸水素ナトリウム水溶
 液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮
 することにより、5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-
 4,5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-エチルアニリン 5.20 g を
 得た。

25 5-[5-(3,5-ジクロロフェニル)-5-トリフルオロメチル-4,5-ジ
 ヒドロイソオキサゾール-3-イル]-2-エチルアニリン

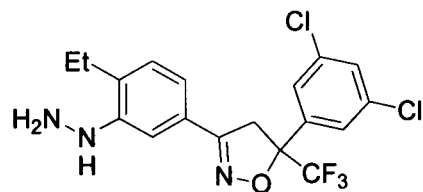


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.51 (2H, d, $J = 1.7$ Hz), 7.41 (1H, t, $J = 1.7$ Hz), 7.10 (1H, d, $J = 7.8$ Hz), 7.04 (1H, d, $J = 1.7$ Hz), 6.93 (1H, dd, $J = 7.8, 1.7$ Hz), 4.05 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 3.74 (2H, br s), 3.65 (1H, d, $J = 17.1$ Hz), 2.52 (2H, q, $J = 7.5$ Hz), 1.25 (3H, t, $J = 7.5$ Hz).

参考製造例 3 1

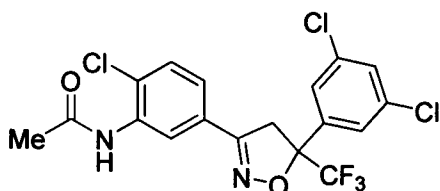
参考製造例 3 0 で製造された 5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-エチルアニリン 1.00 g を 1, 4-ジオキサン 2 mL に溶かし、ここに室温で濃塩酸 4 mL を加えた。同温で 20 分攪拌後、この溶液を 0°C に冷却し、亜硝酸ナトリウム 188 mg を水 1 mL に溶かした溶液を滴下した。同温で 15 分攪拌後、この反応液に、塩化スズ (II) 1.03 g を濃塩酸 2 mL に溶かした溶液を滴下した。反応混合液に 2 N 水酸化ナトリウムを加え中和し、水層をクロロホルムで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの 5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-エチルフェニルヒドラジン 1.31 g 得た。

5- [5- (3, 5-ジクロロフェニル) -5-トリフルオロメチル-4, 5-ジヒドロイソオキサゾール-3-イル] -2-エチルフェニルヒドラジン



参考製造例 3 2

参考製造例 2 0 で得られた化合物 2.0 g を無水酢酸 10 mL に溶かし、室温にて 0.5 時間攪拌した。反応混合物を減圧下濃縮し、濃縮物を酢酸エチルに溶かし、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、次いで飽和食塩水で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの下記式で示される化合物 3.0 g を得た。



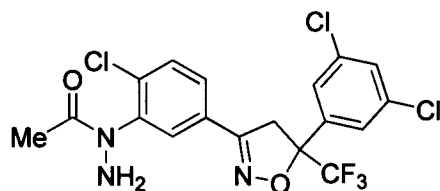
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.59 (1H, br s), 7.67 (1H, br s), 7.57 (1H, dd, $J = 8.4, 2.1$ Hz), 7.50 (2H, d, $J = 1.2$ Hz), 7.43-7.42 (2H, m), 4.09 (1H, d, $J = 17.4$ Hz), 3.70 (1H, d, $J = 17.4$ Hz), 2.28 (3H, s).

5

参考製造例 3 3

参考製造例 3 2 で得られた化合物 2. 2 g を *tert*-ブチルメチルエーテル 30 mL に溶かし、28%水酸化ナトリウム水溶液 14 mL、アンモニア水 4.5 mL、塩化アンモニウム 1.56 g、トリオクチルメチルアンモニウムクロライド 274 mg を加えた。

10 この混合液に室温にて5%次亜塩素酸ナトリウム水溶液 32 mL を20分間かけて滴下した。同温で2時間攪拌後、有機層を分離し、水層に *tert*-ブチルメチルエーテルを加え抽出した。合わせた有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物 2. 0 g を得た。

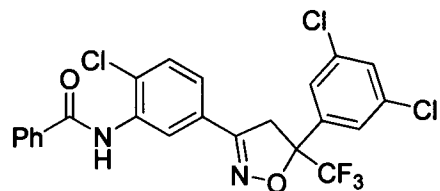


15

融点: 92°C

参考製造例 3 4

参考製造例 2 0 で得られた化合物 2. 0 g をピリジン 5 mL に溶かし、室温にてベンゾイルクロリド 1.4 g を加えた。同温にて0.5時間攪拌後、反応混合物に酢酸エチルを加え、3%塩酸で洗浄した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮し、クルードの下記式で示される化合物 2. 4 g を得た。

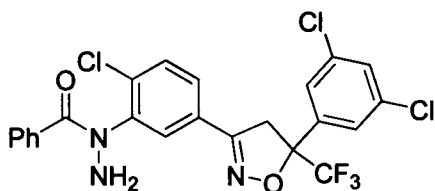


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 7.69-7.44 (1H, m), 7.68 (1H, dd, $J = 4.1, 2.0$ Hz), 7.63 (1H, dd, $J = 5.7, 2.1$ Hz), 7.58 (1H, d, $J = 7.8$ Hz), 7.49 (2H, d, $J = 7.6$ Hz), 7.44 (1H, t, $J = 2.0$ Hz), 4.74 (2H, s), 4.37 (0H, s), 4.07 (1H, dd, $J = 17.2, 6.7$ Hz), 2.42 (1H, s), 1.92 (2H, d, $J = 2.9$ Hz).

5

参考製造例 3 5

参考製造例 3 4 で得られた化合物 2. 4 g をテトラヒドロフラン 20 mL に溶かし、28%水酸化ナトリウム水溶液 14 mL、アンモニア水 4.5 mL、塩化アンモニウム 2.56 g、トリオクチルメチルアンモニウムクロライド 274 mg を加えた。この混合液に室温にて 5%次亜塩素酸ナトリウム水溶液 48 mL を 1 時間かけて滴下した。同温で 2 時間攪拌後、有機層を分離し、水層に *tert*-ブチルメチルエーテルを加え抽出した。合わせた有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥後、減圧下濃縮した。得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、下記式で示される化合物 1.8 g を得た。



15 融点: 87°C

次に、本発明の有害生物防除組成物の製剤例を示す。なお、部は重量部を示す。

製剤例 1

20 本ヒドラジド化合物 (1) ~ (63) からなる群より選ばれる 1 種のヒドラジド化合物 2 部、並びにジノテフラン 7 部を、キシレン 37.5 部および N, N-ジメチルホルムアミド 37.5 部に溶解し、これにポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル 10 部およびドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム 6 部を加え、よく攪拌混合して乳剤を得る。

25

製剤例 2

本ヒドラジド化合物 (1) ~ (63) からなる群より選ばれる 1 種のヒドラジド化合物 5 部、並びにジノテフラン 4 部を、キシレン 37.5 部および N, N-ジメチルホルムアミド 37.5 部に溶解し、これにポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル 1

0部およびドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム6部を加え、よく攪拌混合して乳剤を得る。

製剤例3

- 5 本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物20部、並びにジノテフラン20部の混合物に、ソルポール5060(東邦化学登録商標名)5部を加え、よく混合して、カープレックス#80(塩野義製薬登録商標名、合成含水酸化ケイ素微粉末)32部、300メッシュ珪藻土23部を加え、ジュースミキサーで混合して、水和剤を得る。

10

製剤例4

- 本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物1部、ジノテフラン2部、合成含水酸化珪素微粉末5部、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム5部、ベントナイト30部およびクレー57部を加え、よく攪拌混合し、
15 ついでこれらの混合物に適当量の水を加え、さらに攪拌し、増粒機で製粒し、通風乾燥して粒剤を得る。

製剤例5

- 本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物1.5部、ジノテフラン3部、合成含水酸化珪素微粉末1部、凝集剤としてドリレスB(三共社製)1部、クレー7部を乳鉢でよく混合した後にジュースミキサーで攪拌混合する。得られた混合物にカットクレー86.5部を加えて、充分攪拌混合し、粉剤を得る。

製剤例6

- 25 本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物5部；ジノテフラン5部；ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートアンモニウム塩50部を含むホワイトカーボン35部；並びに水55部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎することにより、製剤を得る。

30 製剤例7

本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物0.2部、並びにジノテフラン0.3部の混合物をジクロロメタン10部に溶解し、

これをアイソパーM（イソパラフィン：エクソン化学登録商標名）89.5部に混合して油剤を得る。

製剤例 8

- 5 本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物0.05部、ジノテフラン0.05部、並びにネオチオゾール（中央化成株式会社）49.9部をエアゾール缶に入れ、エアゾールバルブを装着した後、25部のジメチルエーテル及び25部のLPGを充填し、アクチュエータを装着することにより油性エアゾールを得る。

10

製剤例 9

- 15 本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物0.2部、ジノテフラン0.4部、BHT 0.01部、キシレン5部、脱臭灯油3.39部、並びに乳化剤 {アトモス300（アトモスケミカル社登録商標名）} 1部を混合溶解したものと、蒸留水50部とをエアゾール容器に充填し、バルブ部分を取り付け、該バルブを通じて噴射剤（LPG）40部を加圧充填して、水性エアゾールを得る。

製剤例 10

- 20 本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物2部、並びにジノテフラン3部をジエチレングリコールモノエチルエーテル80部に溶解し、これに炭酸プロピレン15部を混合して、スポットオン液剤を得る。

製剤例 11

- 25 本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物5部、並びにジノテフラン5部をジエチレングリコールモノエチルエーテル70部に溶解し、これに2-オクチルドデカノール20部を混合して、ポアオン液剤を得る。

製剤例 12

- 30 本ヒドラジド化合物（1）～（63）からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物0.25部、並びにジノテフラン0.25部の混合物に、ニッコール TEALS-42（日光ケミカルズ・ラウリル硫酸トリエタノールアミンの42%水溶液）60部、プロピレングリコール20部を添加し、均一溶液になるまで充分攪拌混合した後、水19.5部

を加えてさらに充分攪拌混合し、均一溶液のシャンプー剤を得る。

製剤例 13

5 本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物80mg、ジノテフラン20mg、ラクトース68.75mg、トウモロコシデンプン237.5mg、微結晶性セルロース43.75mg、ポリビニルピロリドン18.75mg、ナトリウムカルボキシメチルデンプン28.75mg、並びにステアリン酸マグネシウム2.5mgを完全に混合し、混合物を圧縮して適切な大きさの錠剤を得る。

10 製剤例 14

本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物100mg、ジノテフラン100mg、ラクトース148mg、並びにステアリン酸マグネシウム2mgを完全に混合し、ハードシェルゼラチンカプセル、または、ヒドロキシプロピルメチルセルロースカプセルに充填しカプセル剤を得る。

15

製剤例 15

本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物2.5部、ジノテフラン2.5部、をポリソルベート85 5部、ベンジルアルコール3部、プロピレングリコール30部に溶解し、リン酸塩緩衝液を用いてpH6.0～
20 6.5に調整した後、水で最終容量にし、経口投与用液剤を得る。

製剤例 16

本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物3.6部、ジノテフラン3.6部、並びにホスコS-55(丸石製薬株式会社製)9
25 2.8部を100℃下で溶解混和し、坐剤形に注いで、冷却固化して坐剤を得る。

製剤例 17

本ヒドラジド化合物(1)～(63)からなる群より選ばれる1種のヒドラジド化合物0.05g、並びにジノテフラン0.05gの混合物を、プロピレングリコール2ml
30 に溶解させ、4.0×4.0cm、厚さ1.2cmの多孔セラミック板に含浸させて、加熱式くん煙剤を得る。

製剤例 18

本ヒドラジド化合物 (1) ~ (63) からなる群より選ばれる 1 種のヒドラジド化合物 2.5 部と、ジノテフラン 2.5 部と、エチレンーメタクリル酸メチル共重合体 (共重合体中のメタクリル酸メチルの割合: 10 重量%、アクリフト WD301、住友化学製)

- 5 9.5 部とを密閉式加圧ニーダー (森山製作所製) で熔融混練し、得られた混練物を押出し成型機から成型ダイスを介して押出し、長さ 1.5 cm、直径 3 mm の棒状成型体を得る。

製剤例 19

本ヒドラジド化合物 (1) ~ (63) からなる群より選ばれる 1 種のヒドラジド化合物 2.5 部とジノテフラン 2.5 部と軟質塩化ビニル樹脂 9.5 部とを密閉式加圧ニーダー (森山製作所製) で熔融混練し、得られた混練物を押出し成型機から成型ダイスを介して押出し、長さ 1.5 cm、直径 3 mm の棒状成型体を得る。

10

次に、本発明の有害生物防除組成物が有害生物に対して優れた防除効力を有することを試験例として示す。

15

試験例 1

本ヒドラジド化合物およびジノテフランについて表 1 に示すような濃度 (w/v) のアセトン溶液を調製した。直径 5.5 cm のポリエチレンカップの底に同大の濾紙を敷き、上記試験用アセトン溶液 0.7 mL を濾紙上に滴下した。アセトンを蒸発させるため 1 時間室温で静置したあと、餌としてショ糖 30 mg と水 0.7 mL を入れた。該ポ

20

リエチレンカップ内にチャバネゴキブリ (*Blattella germanica*) 雄成虫 5 頭を放ち、蓋をした。7 日後にチャバネゴキブリの生死を調査し死虫率を求めた。

結果を、下記表 1 に記す。

25 表 1

本ヒドラジド化合物+ジノテフラン	濃度(ppm w/v)	死虫率(%)
本ヒドラジド化合物 (11) +ジノテフラン	2000+2000	100
本ヒドラジド化合物 (13) +ジノテフラン	2000+2000	100
本ヒドラジド化合物 (17) +ジノテフラン	2000+2000	100
本ヒドラジド化合物 (30) +ジノテフラン	2000+2000	100
本ヒドラジド化合物 (31) +ジノテフラン	2000+2000	100
本ヒドラジド化合物 (38) +ジノテフラン	2000+2000	100

その結果、本発明の有害生物防除組成物は、高い防除効果を示した。

試験例 2 フタトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*) に対するろ紙処理殺虫試験

本ヒドラジド化合物およびジノテフランについて、ろ紙に処理した際に表 2 に示すような薬量 (mg/m²) となるようにアセトン溶液を調製した。アセトン溶液 1 mL を、ろ紙 (TOYO No. 2 ; 5 × 10 cm) の片面に均一に塗布した。乾燥後、該ろ紙を 2 つ折りにした後、側辺をクリップで留めて袋状にし、この中に供試ダニ (フタトゲチマダニ、未吸血若ダニ、1 群 10 頭) を入れ、開放部をクリップで閉じて密封し、2 日後に致死数を調査し、以下の計算式で死虫率を算出した。

$$10 \quad \text{死虫率 (\%)} = 100 \times (\text{死亡マダニ数} / \text{供試マダニ数})$$

結果を、下記表 2 に記す。

表 2

本ヒドラジド化合物+ジノテフラン	薬量(mg/m ²)	死虫率(%)
本ヒドラジド化合物 (1 1) + ジノテフラン	500+2500	100
本ヒドラジド化合物 (1 3) + ジノテフラン	500+2500	100
本ヒドラジド化合物 (1 7) + ジノテフラン	500+2500	100
本ヒドラジド化合物 (3 0) + ジノテフラン	500+2500	100
本ヒドラジド化合物 (3 1) + ジノテフラン	500+2500	100
本ヒドラジド化合物 (3 8) + ジノテフラン	500+2500	100

15 その結果、本発明の有害生物防除組成物は、高い防除効果を示した。

試験例 3 フタトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*) に対するガラス面処理殺虫試験

本ヒドラジド化合物およびジノテフランについて、それぞれアセトン溶液を調製する。アセトン溶液 0.2 mL を、ガラス製スクリー管および蓋 (株式会社マルエム製 NO. 5) の内壁に均一に塗布する。乾燥後、該スクリー管内に供試ダニ (フタトゲチマダニ、未吸血若ダニ、1 群 10 頭) を入れ、蓋を閉じて密封し、2 日後に致死数を調査し、以下の計算式で死虫率を算出する。

$$\text{死虫率 (\%)} = 100 \times (\text{死亡マダニ数} / \text{供試マダニ数})$$

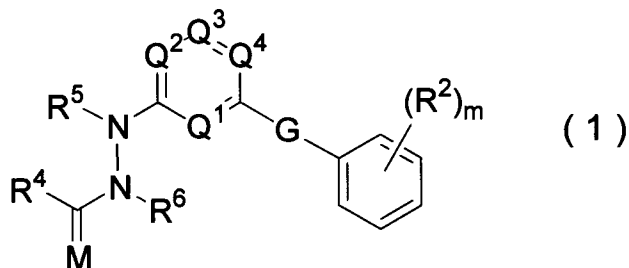
その結果、本発明の有害生物防除組成物が、高い防除効果を示すことが確認できる。

産業上の利用可能性

本発明の有害生物防除組成物は、有害生物に対し優れた防除効力を有しており、有用
5 である。

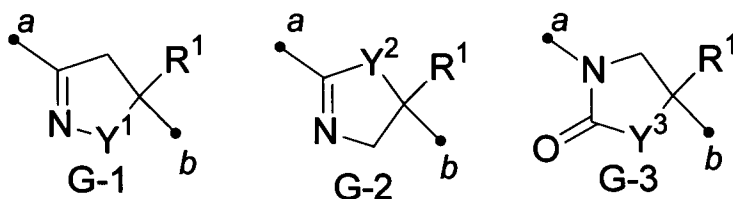
請求の範囲

1. 式 (1)



5 〔式中、

Gは下記式G-1～G-3のいずれかで示される基



(尚、点 a 及び点 b は結合手を表し、点 b はフェニル環との結合手を表す。) を表し、
R¹はC 1－C 4ハロアルキル基を表し、

10 Y¹は酸素原子、硫黄原子又はNR⁷基を表し、Y²は酸素原子、硫黄原子、NR⁷基又はメチレン基を表し、Y³は酸素原子、硫黄原子、NR⁷基又はメチレン基を表し、

R⁷はC 1－C 6アルキル基、C 2－C 6アルケニル基、C 2－C 6アルキニル基、C 3
－C 6シクロアルキル基、C 4－C 7シクロアルキルアルキル基、C 2－C 6アルキル
カルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 2－C 6アルキルアミノカルボ
ニル基、C 3－C 9ジアルキルアミノカルボニル基、フェニル基、シアノ基、ホルミル
基又は水素原子を表し、

Mは酸素原子又は硫黄原子を表し、

Q¹、Q²、Q³及びQ⁴は同一又は相異なり、窒素原子又はCR³基を表し、

20 R³はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルキル基、ハロゲン原子で置換
されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基、ニトロ基、シアノ基、ハロゲン原子又は水
素原子を表し、

mは0から5の整数のいずれかを表し、

R²はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルキル基、ハロゲン原子で置換
されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基、C 1－C 6アルキルチオ基、C 1－C 6ア

25

ルキルスルフィニル基、C 1－C 6アルキルスルホニル基、ニトロ基、シアノ基又はハロゲン原子を表し（但し、mが2～5の整数のいずれかである場合、それぞれのR²は同一又は相異なる。）、

R⁵及びR⁶は同一又は相異なり、群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいベンゾイル基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 3－C 1 2シクロアルキル基、ホルミル基又は水素原子を表し、

R⁴は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基、OR⁸基、N(R⁹)R¹⁰基又は水素原子を表し、

R⁸は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基又は群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基を表し、

R⁹は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基又は群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基を表し、

R¹⁰は群E 1より選ばれる基で置換されていてもよいC 1－C 1 2鎖式炭化水素基又は水素原子を表すか、或いはR⁹とR¹⁰が末端で結合して、C 2－C 9アルカンジイル基を表し、

群E 1は群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいC 3－C 1 2環式炭化水素基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよい5～6員ヘテロ環基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいフェノキシ基、群E 2より選ばれる基で置換されていてもよいフェニルアミノ基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 1－C 6アルコキシ基、C 1－C 6アルキルアミノ基、C 2－C 1 2ジアルキルアミノ基、ニトロ基、シアノ基、ホルミル基及びハロゲン原子からなる群を表し、群E 2はハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC 1－C 6アルコキシ基、C 2－C 6アルキルカルボニル基、C 2－C 6アルコキシカルボニル基、C 1－C 6アルキルアミノ基、C 2－C 1 2ジアルキルアミノ基、ニトロ基、シアノ基、ホルミル基及びハロゲン原子からなる群を表す。]

で示されるヒドラジド化合物と、

ジノテフランとを含有する有害生物防除組成物。

2. 式(1)において、GがG-1で示される基であり、Y¹が酸素原子であり、R¹がトリフルオロメチル基であり、Q¹、Q³及びQ⁴がCH基であり、Q²がCR³基であり、R³が上記定義した基であり、(R²)_mが3位および5位の置換基であり、mが2であり、R²が塩素原子である請求項1に記載の有害生物防除組成物。

5

3. 式(1)において、R⁶が水素原子である請求項1又は2に記載の有害生物防除組成物。

4. 式(1)において、R⁵が水素原子またはメチル基である請求項1～3のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

10

5. 式(1)において、R³がハロゲン原子である請求項1～4のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

6. 式(1)において、R³が塩素原子である請求項1～5のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

15

7. 式(1)において、R⁴がC2-C6アルキル基、C1-C6ハロアルキル基、C3-C6シクロアルキル基または(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基である請求項1～6のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

20

8. 式(1)において、R⁴がC2-C6アルキル基である請求項1～7のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

9. 式(1)において、R⁴がC1-C6ハロアルキル基である請求項1～7のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

25

10. 式(1)において、R⁴がC3-C6シクロアルキル基である請求項1～7のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

30

11. 式(1)において、R⁴が(C1-C6アルコキシ)C1-C6アルキル基である請求項1～7のいずれか一項に記載の有害生物防除組成物。

12. 請求項1の式(1)で示されるヒドラジド化合物と、ジノテフランとの有効量を、有害生物又は有害生物の生息場所に施用する有害生物の防除方法。
- 5 13. 有害生物を防除する為の、請求項1の式(1)で示されるヒドラジド化合物と、ジノテフランとの組み合わせの使用。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/067568

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A01N43/80(2006.01)i, A01N51/00(2006.01)i, A01P7/02(2006.01)i, A01P7/04(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

A01N43/80, A01N51/00, A01P7/02, A01P7/04

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-266293 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 06 November 2008 (06.11.2008), claims; paragraphs [0101] to [0103], [0108] & WO 2008/126665 A2 & EP 2139874 A2 & US 2010/137372 A1 & AR 065867 A1	1-13
P, X	WO 2010/090344 A1 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 12 August 2010 (12.08.2010), claims; page 84, lines 11 to 23; page 86, line 15 & JP 2010-202643 A & AR 075365 A1	1-13

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

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 September, 2011 (05.09.11)

Date of mailing of the international search report
13 September, 2011 (13.09.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. A01N43/80(2006.01)i, A01N51/00(2006.01)i, A01P7/02(2006.01)i, A01P7/04(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. A01N43/80, A01N51/00, A01P7/02, A01P7/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 年

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

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-266293 A（住友化学株式会社）2008.11.06, 特許請求の範囲、段落【0101】～【0103】、【0108】 & WO 2008/126665 A2 & EP 2139874 A2 & US 2010/137372 A1 & AR 065867 A1	1-13
P, X	WO 2010/090344 A1（住友化学株式会社）2010.08.12, 特許請求の範囲、第84頁第11～23行、第86頁第15行 & JP 2010-202643 A & AR 075365 A1	1-13

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

0 5 . 0 9 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

1 3 . 0 9 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

太田 千香子

4 H

3 7 6 1

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 1