

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6811000号  
(P6811000)

(45) 発行日 令和3年1月13日 (2021.1.13)

(24) 登録日 令和2年12月16日 (2020.12.16)

(51) Int.Cl.

F I

C O 7 C 257/12 (2006.01)

C O 7 C 257/12 C S P

A O 1 N 37/52 (2006.01)

A O 1 N 37/52

A O 1 P 3/00 (2006.01)

A O 1 P 3/00

C O 7 C 205/38 (2006.01)

C O 7 C 205/38

C O 7 C 217/90 (2006.01)

C O 7 C 217/90

請求項の数 15 (全 62 頁)

(21) 出願番号 特願2017-567803 (P2017-567803)  
 (86) (22) 出願日 平成28年7月5日 (2016.7.5)  
 (65) 公表番号 特表2018-524341 (P2018-524341A)  
 (43) 公表日 平成30年8月30日 (2018.8.30)  
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2016/065753  
 (87) 国際公開番号 W02017/005710  
 (87) 国際公開日 平成29年1月12日 (2017.1.12)  
 審査請求日 令和1年7月2日 (2019.7.2)  
 (31) 優先権主張番号 15175854.7  
 (32) 優先日 平成27年7月8日 (2015.7.8)  
 (33) 優先権主張国・地域又は機関  
 欧州特許庁 (EP)

(73) 特許権者 507203353  
 バイエル・クロップサイエンス・アクチェ  
 ンゲゼルシャフト  
 ドイツ国、4 0 7 8 9・モンハイム・アム  
 ・ライン、アルフレート・ノベル・シュト  
 ラーセ・5 0  
 (74) 代理人 100114188  
 弁理士 小野 誠  
 (74) 代理人 100119253  
 弁理士 金山 賢敦  
 (74) 代理人 100124855  
 弁理士 坪倉 道明  
 (74) 代理人 100129713  
 弁理士 重森 一輝

最終頁に続く

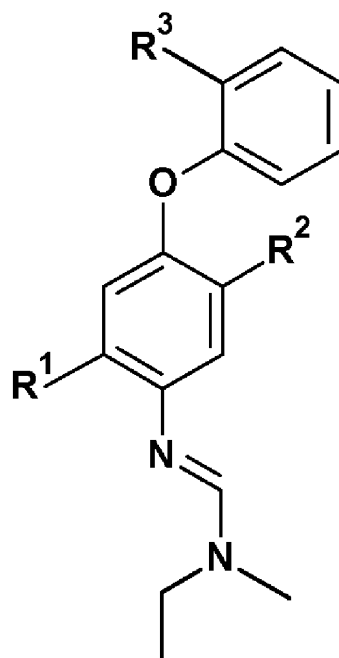
(54) 【発明の名称】 フェノキシハロゲンフェニルアミジン類及び殺菌剤としてのそれらの使用

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式 ( I )

## 【化 1】



10

(I)

20

〔式中、

R<sup>1</sup> は、ハロゲンからなる群から選択され；R<sup>2</sup> は、メチルであり；R<sup>3</sup> は、水素である〕

で表されるフェノキシフェニルアミジン又はそれらの塩、N - オキシド、金属錯体及びそれらの立体異性体。

## 【請求項 2】

R<sup>1</sup> は、フルオロ、クロロ及びブromoからなる群から選択され；

30

R<sup>2</sup> は、メチルであり；R<sup>3</sup> は、水素である；

請求項 1 に記載の化合物。

## 【請求項 3】

R<sup>1</sup> は、クロロ及びブromoからなる群から選択され；R<sup>2</sup> は、メチルであり；R<sup>3</sup> は、水素である；

請求項 1 又は 2 に記載の化合物。

## 【請求項 4】

N' - (2 - クロロ - 5 - メチル - 4 - フェノキシフェニル) - N - エチル - N - メチルイミドホルムアミド、N' - (2 - ブromo - 5 - メチル - 4 - フェノキシフェニル) - N - エチル - N - メチルイミドホルムアミド及びN - エチル - N' - (2 - フルオロ - 5 - メチル - 4 - フェノキシフェニル) - N - メチルイミドホルムアミドからなる群から選択される、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のフェノキシフェニルアミジン。

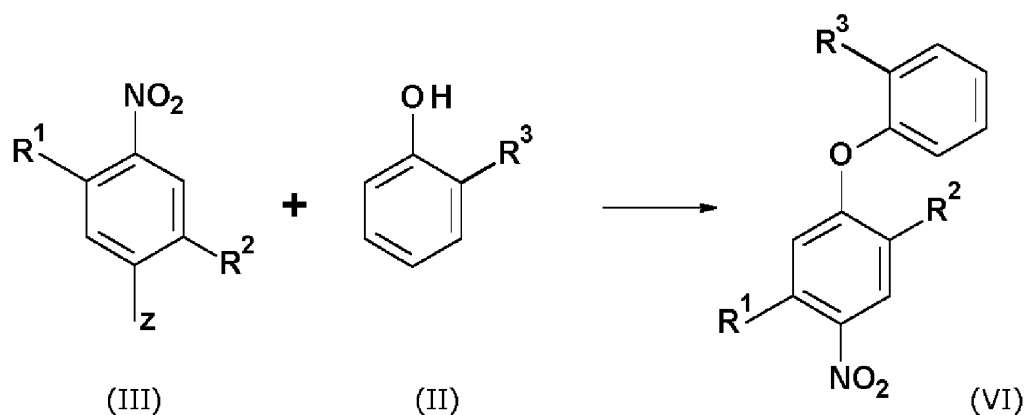
40

## 【請求項 5】

請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載のフェノキシフェニルアミジンを調製する方法であって、以下の段階 (a) ~ (j)：

(a) 下記反応スキーム：

## 【化 2】

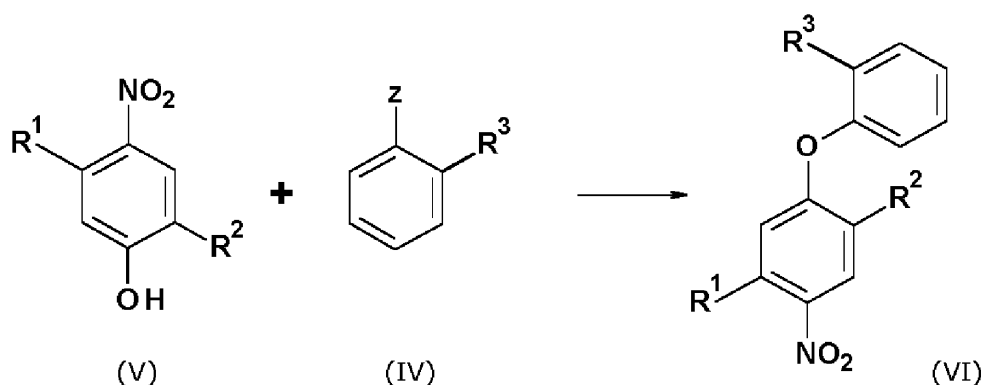


10

に従って、式 ( I I I ) で表されるニトロベンゼン誘導体を式 ( I I ) で表されるフェノール誘導体と反応させること；

( b ) 下記反応スキーム：

## 【化 3】



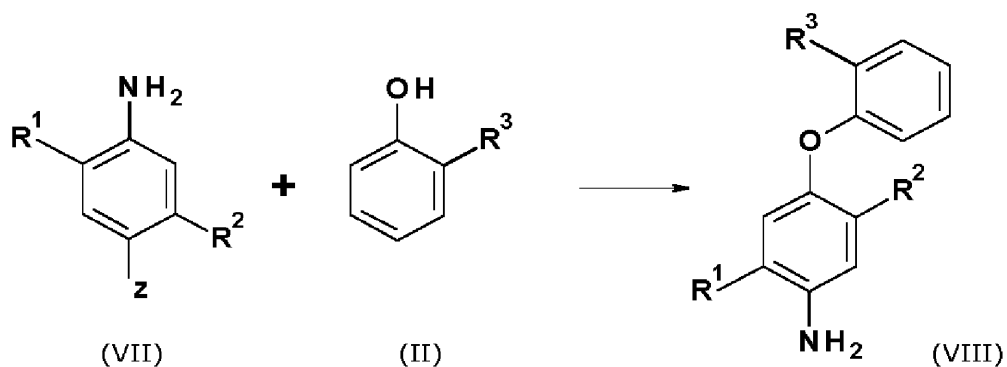
20

30

に従って、式 ( V ) で表されるニトロフェノール誘導体を式 ( I V ) で表されるフェニル誘導体と反応させること；

( c ) 下記反応スキーム：

## 【化 4】



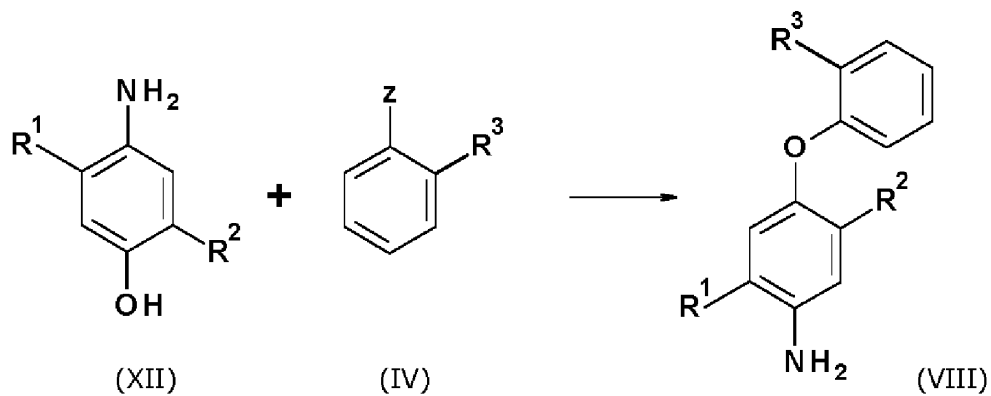
40

に従って、式 ( V I I ) で表されるアニリンを式 ( I I ) で表されるフェノール誘導体と反応させること；

( d ) 下記反応スキーム：

50

## 【化 5】

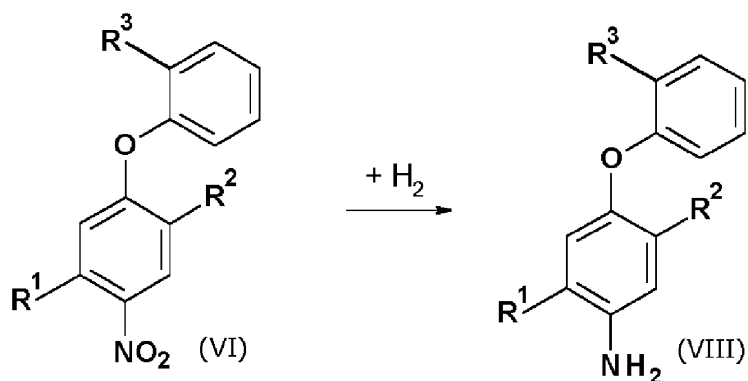


10

に従って、式 (XII) で表されるアミノフェノールを式 (IV) で表されるフェニル誘導体と反応させること；

(e) 下記反応スキーム：

## 【化 6】

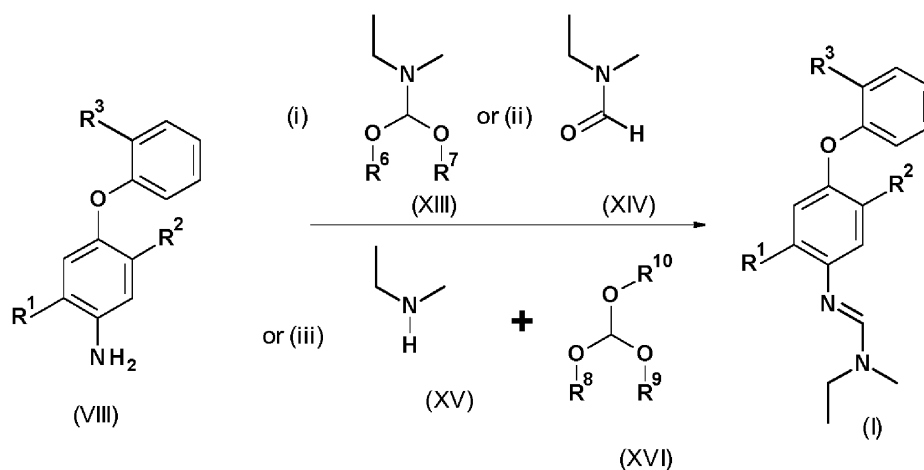


20

に従って、式 (VI) で表されるニトロフェニルエーテルを還元して式 (VIII) で表されるアミノフェニルエーテルとすること；

(f) 下記反応スキーム：

## 【化 7】

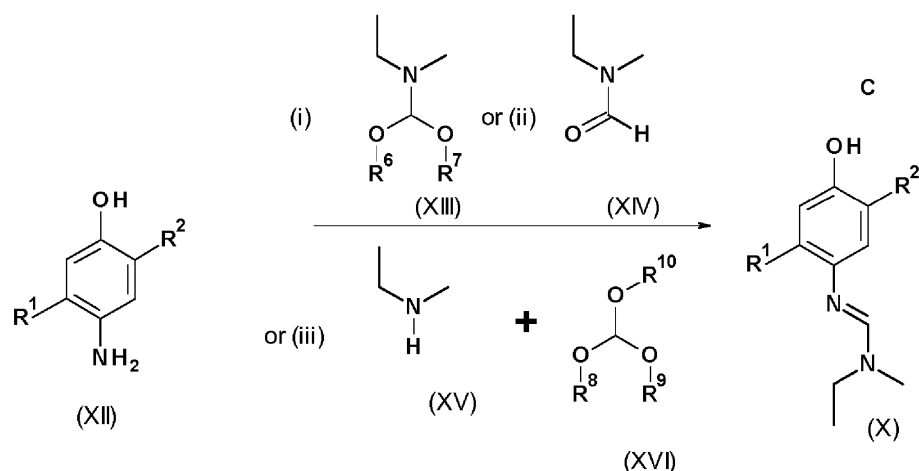


40

に従って、式 (VIII) で表されるアミノフェニルエーテルを

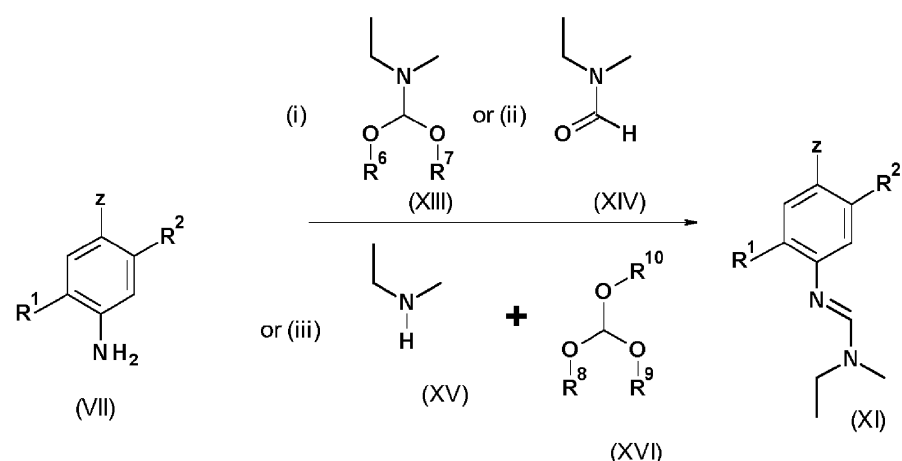
50

- (i) 式(XIII)で表されるアミノアセタールと反応させること；又は、  
 (ii) 式(XIV)で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミドと反応させること；又は、  
 (iii) 式(XV)で表されるオルトエステルの存在下で式(XV)で表されるN-メチルエタンアミンと反応させること；  
 (g) 下記反応スキーム：  
 【化8】



に従って、式(XIII)で表されるアミノフェノールを

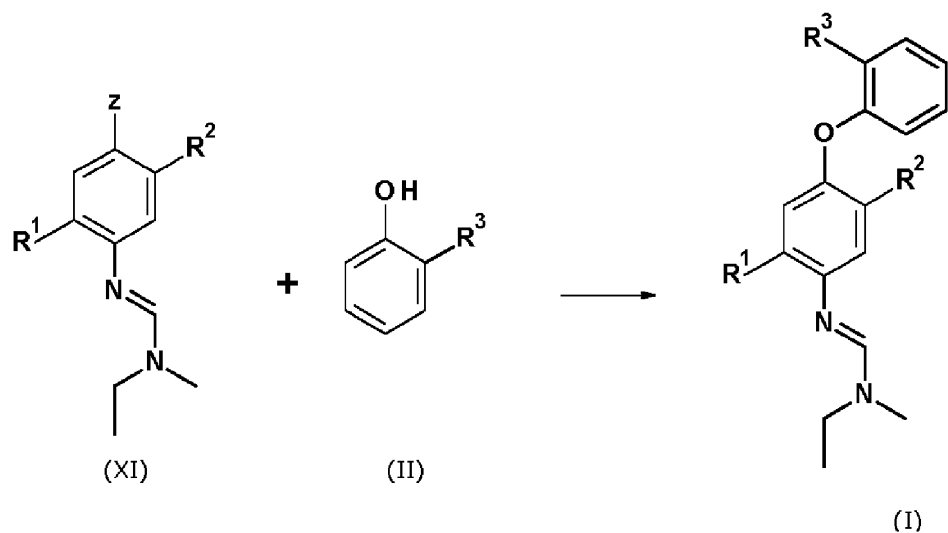
- (i) 式(XIII)で表されるアミノアセタールと反応させること；又は、  
 (ii) 式(XIV)で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミドと反応させること；又は、  
 (iii) 式(XV)で表されるオルトエステルの存在下で式(XV)で表されるN-メチルエタンアミンと反応させること；  
 (h) 下記反応スキーム：  
 【化9】



に従って、式(VII)で表されるアニリンを

- (i) 式(XIII)で表されるアミノアセタールと反応させること；又は、  
 (ii) 式(XIV)で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミドと反応させること；又は、  
 (iii) 式(XV)で表されるオルトエステルの存在下で式(XV)で表されるN-メチルエタンアミンと反応させること；  
 (i) 下記反応スキーム：

## 【化 10】



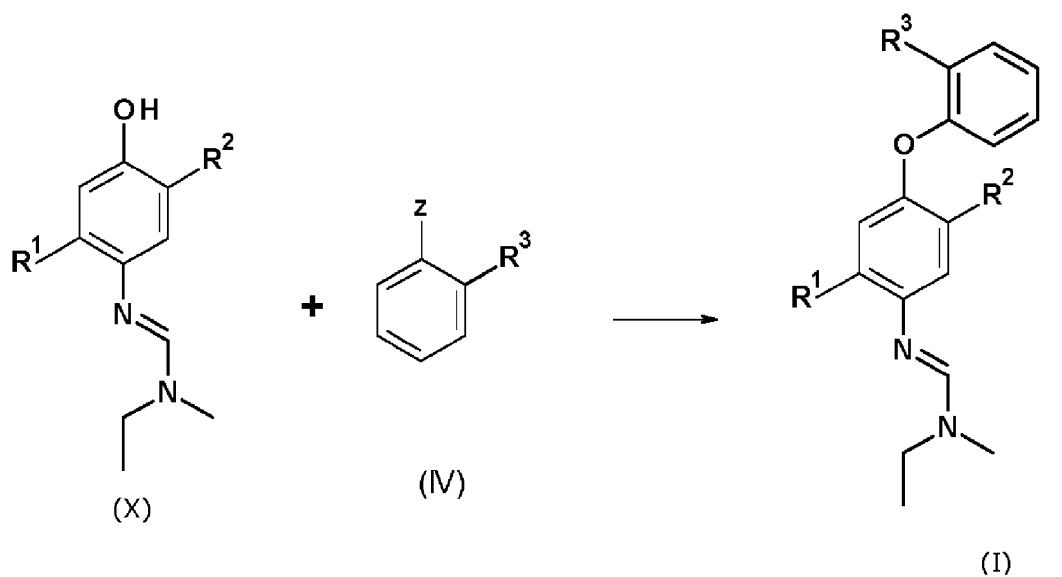
10

に従って、式 (XI) で表されるアミジンを式 (II) で表されるフェノール誘導体と反応させること；

(j) 下記反応スキーム；

20

## 【化 11】



30

に従って、式 (X) で表されるアミジンを式 (IV) で表されるフェニル誘導体と反応させること；

40

〔ここで、上記スキームにおいて、

Z は、脱離基であり；

R<sup>1</sup> ~ R<sup>3</sup> は、請求項 1 における意味を有し；

R<sup>6</sup> 及び R<sup>7</sup> は、互いに独立して、C<sub>1-12</sub>-アルキル、C<sub>2-12</sub>-アルケニル、C<sub>2-12</sub>-アルキニル又は C<sub>5-18</sub>-アリール若しくは C<sub>7-19</sub>-アリールアルキル基からなる群から選択され、及び、R<sup>6</sup> と R<sup>7</sup> は、それらが結合している原子と一緒に、5 員、6 員又は 7 員の環を形成することができ；

R<sup>8</sup> ~ R<sup>10</sup> は、互いに独立して、C<sub>1-12</sub>-アルキル、C<sub>2-12</sub>-アルケニル、C<sub>2-12</sub>-アルキニル又は C<sub>5-18</sub>-アリール若しくは C<sub>7-19</sub>-アリールアルキ

50

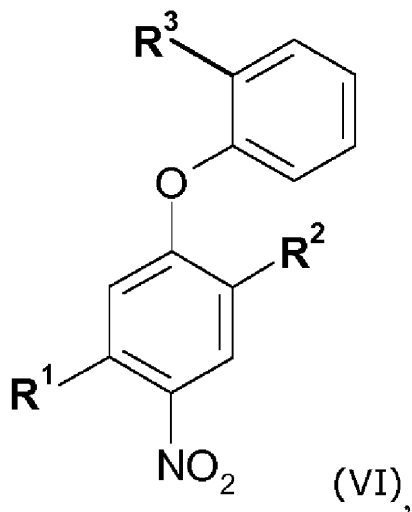
ル、 $C_{7-19}$ -アルキルアリール基からなる群から選択され、及び、いずれの場合にも、 $R^8$ と $R^9$ 、 $R^9$ と $R^{10}$ 又は $R^8$ と $R^{10}$ は、それらが結合している原子と一緒に、そして、適切な場合にはさらなる炭素、窒素、酸素又は硫黄原子と一緒に、5員、6員又は7員の環を形成することができる]

のうちの少なくとも1つを含んでいる、前記調製方法。

【請求項6】

式(VI)

【化12】



〔式中、

$R^1$  は、フルオロ、クロロ及びプロモからなる群から選択され；

$R^2$  は、メチルであり；

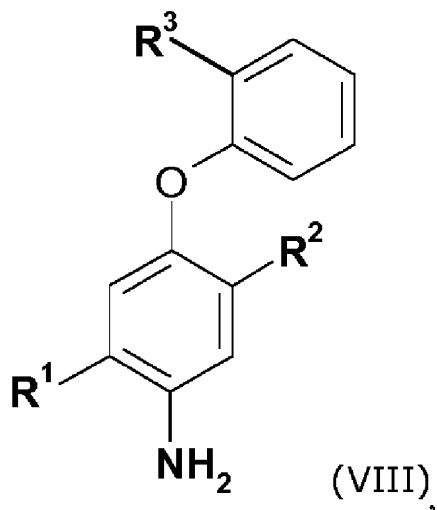
$R^3$  は、水素である〕

で表されるニトロフェニルエーテル。

【請求項7】

式(VIII)

【化13】



〔式中、

$R^1$  は、フルオロ及びプロモからなる群から選択され；

R<sup>2</sup> は、メチルであり；

R<sup>3</sup> は、水素である]

で表されるアミノフェニルエーテル。

【請求項 8】

請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されている少なくとも 1 種類のフェノキシフェニルアミジンを含んでいる、望ましくない微生物を防除するための農薬製剤。

【請求項 9】

望ましくない微生物を防除するための、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されているフェノキシフェニルアミジン又は請求項 8 に記載されている農薬製剤の使用。

【請求項 10】

望ましくない微生物を防除する方法であって、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されている置換フェノキシフェニルアミジン又は請求項 8 に記載されている農薬製剤を当該微生物及び/又はそれらの生息環境に施用することを特徴とする、前記方法。

【請求項 11】

請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されている少なくとも 1 種類のフェノキシフェニルアミジンで処理された種子。

【請求項 12】

種子を処理するための、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されているフェノキシフェニルアミジンの使用。

【請求項 13】

トランスジェニック植物を処理するための、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されているフェノキシフェニルアミジンの使用。

【請求項 14】

トランスジェニック植物の種子を処理するための、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されているフェノキシフェニルアミジンの使用。

【請求項 15】

請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載されている少なくとも 1 種類のフェノキシフェニルアミジンで処理された種子を使用することによる、望ましくない微生物に対して種子を保護する方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、一般式 (I) で表されるフェノキシハロゲンフェニルアミジン類、それらを調製する方法、望ましくない微生物を防除するための本発明によるアミジン類の使用に関し、及び、さらに、本発明によるフェノキシハロゲンフェニルアミジン類を含んでいる上記目的のための組成物にも関する。さらに、本発明は、望ましくない微生物を防除する方法にも関し、ここで、該方法は、式 (I) で表される化合物をその微生物及び/又はそれらの生息環境に施用することを特徴とする。

【背景技術】

【0002】

WO2000/046184 には、N - メチル - N - メチル - N' - [(4 - フェノキシ) - 2, 5 - キシリル] - ホルムアミジンを包含するアミジン類の殺菌剤としての使用が開示されている。

【0003】

WO2003/093224、WO2007/031512、WO2007/031513、WO2007/031523、WO2007/031524、WO2007/031526、WO2007/031527、WO2007/061966、WO2008/101682、WO2008/110279、WO2008/110280、WO2008/110281、WO2008/110312、WO2008/110313、WO2008/110314、WO2008/110315、WO2008/128639、W

10

20

30

40

50



WO 2009/156098、WO 2009/156074、WO 2010/086118、WO 2012/025450、WO 2012/090969 及び WO 2014/157596 には、アリールアミジン誘導体の、殺菌剤としての使用が開示されている。

【0004】

WO 2007/031508 及び WO 2007/093227 には、アリールアミジン誘導体の、殺菌剤及び殺虫剤としての使用が開示されている。

【0005】

WO 2003/024219 には、少なくとも1種類のN2-フェニルアミジン誘導体を選択されたさらなる既知活性化合物と組み合わせて含んでいる殺菌剤組成物が開示されている。

【0006】

WO 2004/037239 には、N2-フェニルアミジン誘導体の基づく抗殺菌性薬物 (antifungal medicament) が開示されている。

【0007】

WO 2005/089547、WO 2005/120234、WO 2012/146125、WO 2013/136275 及び WO 2014/037314 には、少なくとも1種類のアリールアミジン誘導体と選択されたさらなる既知殺菌剤を含んでいる殺菌剤混合物が開示されている。

【0008】

WO 2007/031507 には、少なくとも1種類のアリールアミジン誘導体と選択された2種類の別の既知殺菌剤を含んでいる殺菌剤混合物が開示されている。

【0009】

WO 2008/110278 から、さまざまなフェニルアミジン誘導体が殺菌特性を示すことが知られている。WO 2008/110278 に開示されている式 (I) で表される化合物が優れた除草特性を有することについても言及されている。除草剤は、望ましくない植物 (雑草) を防除又は排除するために使用される物質である。即ち、除草剤は、概して、作物生産圃場内の雑草を排除するために農業において使用される植物破壊特性を有している。選択的除草剤と非選択的除草剤は、区別され得る。選択的除草剤には、特定の標的雑草を排除することが可能でありながら、同時に、望ましい作物に対しては比較的損傷を与えない化合物が包含される。それに反して、非選択的除草剤のクラスの化合物は、いったん施用されれば、生存している全ての植物性物質を殺す。WO 2008/110278 は、WO 2008/110278 の式 (I) で表される化合物が雑草に対して選択的な除草活性を有しているが、コムギ、オオムギ、ライムギ、トウモロコシ、テンサイ、ワタ及びダイズなどの作物に対しては比較的損傷を与えないことを示している。しかしながら、WO 2008/110278 に開示されている生物学の実施例は、むしろ、処理された作物に対して損傷を与えない除草的選択性を証明するために作物植物 (例えば、上記で記載されているもの) を使用したということを示すことなく、WO 2008/110278 の式 (I) で表される特定の化合物が、数種類の雑草に対してある程度までの除草特性 (処理された植物の損傷を視覚的に評価して少なくとも80%の除草特性) を有しているということを示している。さらに、試験された (特定はされていない) 作物の損傷の割合は示されていない。さらに、特定の作物の異なった品種が特定の除草活性化合物に対して異なる感受性レベルを示すということも知られている。特に、この事実を鑑みて、WO 2008/110278 に記載されている、上記作物がWO 2008/110278 の式 (I) で表される化合物で処理された後で損傷を受けないか又はほんの僅かにしか損傷を受けないということは、どちらかと言えば、極めて概括的である。

【0010】

結論として、WO 2008/110278 に開示されている化合物の除草的選択性は疑わしい。従って、WO 2008/110278 の化合物に起因する作物の潜在的な損傷は、予測不可能である。

【0011】

10

20

30

40

50

従来技術において記載されているアミジン類の殺菌剤としての効果は良好であるが、多くの場合、未だ物足りない点が残っている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0012】

【特許文献1】国際特許出願公開第2000/046184号

【特許文献2】国際特許出願公開第2003/093224号

【特許文献3】国際特許出願公開第2007/031512号

【特許文献4】国際特許出願公開第2007/031513号

【特許文献5】国際特許出願公開第2007/031523号

10

【特許文献6】国際特許出願公開第2007/031524号

【特許文献7】国際特許出願公開第2007/031526号

【特許文献8】国際特許出願公開第2007/031527号

【特許文献9】国際特許出願公開第2007/061966号

【特許文献10】国際特許出願公開第2008/101682号

【特許文献11】国際特許出願公開第2008/110279号

【特許文献12】国際特許出願公開第2008/110280号

【特許文献13】国際特許出願公開第2008/110281号

【特許文献14】国際特許出願公開第2008/110312号

【特許文献15】国際特許出願公開第2008/110313号

20

【特許文献16】国際特許出願公開第2008/110314号

【特許文献17】国際特許出願公開第2008/110315号

【特許文献18】国際特許出願公開第2008/128639号

【特許文献19】国際特許出願公開第2009/156098号

【特許文献20】国際特許出願公開第2009/156074号

【特許文献21】国際特許出願公開第2010/086118号

【特許文献22】国際特許出願公開第2012/025450号

【特許文献23】国際特許出願公開第2012/090969号

【特許文献24】国際特許出願公開第2014/157596号

【特許文献25】国際特許出願公開第2007/031508号

30

【特許文献26】国際特許出願公開第2007/093227号

【特許文献27】国際特許出願公開第2003/024219号

【特許文献28】国際特許出願公開第2004/037239号

【特許文献29】国際特許出願公開第2005/089547号

【特許文献30】国際特許出願公開第2005/120234号

【特許文献31】国際特許出願公開第2012/146125号

【特許文献32】国際特許出願公開第2013/136275号

【特許文献33】国際特許出願公開第2014/037314号

【特許文献34】国際特許出願公開第2007/031507号

【特許文献35】国際特許出願公開第2008/110278号

40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

従って、本発明の目的は、改善された殺菌効果を有するアミジン類を提供すること及び植物との適合性を改善することである。

【0014】

殺菌剤としての改善された新規フェニルアミジン類を開発する場合に考慮すべきさらなる問題は、そのような化合物の既知アミジン類と比較して改善された化学的安定性、例えば、加水分解及び/又は光分解に対する強化された安定性である。

【0015】

50

概して、加水分解は、水との反応を意味する。それは、分子内の1以上の化学結合が水を添加することによって開裂される化学的プロセスである。水を添加することによって、場合により、当該分子が2つの部分に分割される。結果として、分子の加水分解は、当該分子の構造に重大な変化を引き起こし、それによって、当該分子と酵素又別のタンパク質との異なる相互作用の可能性がもたらされる。結果として、加水分解プロセスは、通常、物質の生物学的活性（これは、殺菌活性を包含する）に対して重大な影響をもたらし、それによって、典型的には、それぞれ、生物学的活性及び殺菌活性は、失われる。

【0016】

従来技術において記載されているアミジン類の加水分解に対する化学的安定性は、良好であるが、改善された安定性は、大規模での調製プロセス及び製剤プロセスに際して有利であり得る。

10

【0017】

従って、本発明のもう1つの目的は、加水分解に対して改善された化学的安定性を示すアミジン類を提供することである。

【0018】

光分解 (photodegradation)、光解離 (photodissociation) 又は光分解 (photodecomposition) としても知られている光分解 (photolysis) は、化学分子が光（即ち、光子）を吸収することによってより小さな単位に分解される化学的プロセスである。結果として、分子が光分解されるとその分子の構造が著しく変化し、それによって、当該分子と酵素又別のタンパク質との異なる相互作用の可能性がもたらされる。結果として、光分解プロセスは、通常、物質の生物学的活性（これは、殺菌活性を包含する）に対して重大な影響をもたらし、それによって、典型的には、それぞれ、生物学的活性及び殺菌活性は、失われる。光分解は殺菌剤を包含する殺有害生物剤 (pesticide) に対する重要な非生物的消失経路であるということが知られている（以下のものを参照されたい：Tsao and Eto, Agric. Biol. Chem., 55(3), 763-768, 1991）。

20

【0019】

従来技術において記載されているアミジン類の光分解に対する安定性は、良好であるが、改善された安定性は、茎葉施用によって植物に施用された場合に、より長期間にわたって効力を持続させ得るので、有利であり得る。

30

【0020】

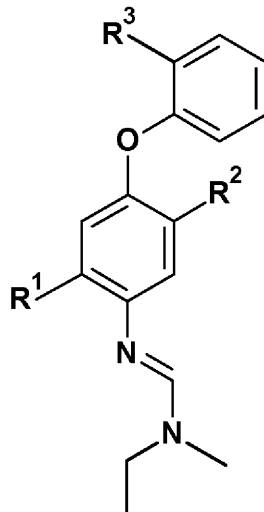
従って、本発明のもう1つの目的は、光分解に対して改善された安定性を示すアミジン類を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0021】

驚くべきことに、これらの目的は、式(I)

## 【化 1】



(I)

## 【 0 0 2 2 】

〔式中、

 $\text{R}^1$  は、ハロゲンからなる群から選択され； $\text{R}^2$  は、メチルであり； $\text{R}^3$  は、水素である〕

で表されるフェノキシハロゲンフェニルアミジンによって達成された。

## 【 0 0 2 3 】

上記で特定されているラジカルの定義は、必要に応じて互いに組み合わせることができる。

## 【 0 0 2 4 】

上記で定義した置換基のタイプに応じて、式 (I) で表される化合物は、塩基性特性を有しており、そして、無機酸若しくは有機酸との、又は、金属イオンとの、塩を形成することが可能であり、場合により、内部塩又は付加体も形成することが可能である。式 (I) で表される化合物は、塩基性特性を誘導するアミジン基を有している。かくして、これらの化合物は、酸と反応させて塩を生成させることが可能であり、又は、これらの化合物は、合成によって直接的に塩として得られる。

## 【 0 0 2 5 】

このようにして得ることができる塩も、同様に、殺菌特性を有している。

## 【 0 0 2 6 】

無機酸の例は、ハロゲン化水素酸（例えば、フッ化水素、塩化水素、臭化水素及びヨウ化水素）、硫酸、リン酸及び硝酸、並びに、酸性塩（例えば、 $\text{NaHSO}_4$  及び  $\text{KHSO}_4$ ）である。有機酸としては、例えば、ギ酸、炭酸及びアルカン酸（例えば、酢酸、トリフルオロ酢酸、トリクロロ酢酸及びプロピオン酸）、並びに、さらに、グリコール酸、チオシアン酸、乳酸、コハク酸、クエン酸、安息香酸、ケイ皮酸、シュウ酸、飽和又は一不飽和又は二不飽和の  $\text{C}_6 - \text{C}_{20}$  の脂肪酸、アルキルスルホン酸（1 ~ 20 個の炭素原子を有する直鎖又は分枝鎖のアルキルラジカルを有しているスルホン酸）、アリールスルホン酸又はアリールジスルホン酸（1 又は 2 のスルホン酸基を有している、フェニル及びナフチルなどの芳香族ラジカル）、アルキルホスホン酸（1 ~ 20 個の炭素原子を有する直鎖又は分枝鎖のアルキルラジカルを有しているホスホン酸）、アリールホスホン酸又はアリールジホスホン酸（1 又は 2 のホスホン酸ラジカルを有している、フェニル及びナフチルなどの芳香族ラジカル）などがあり、ここで、前記アルキルラジカル及びアリールラジカルは、さらなる置換基も有することができる（例えば、p - トルエンスルホン酸、サリチル酸、p - アミノサリチル酸、2 - フェノキシ安息香酸、2 - アセトキシ安息香酸など）。

## 【 0 0 2 7 】

有用な金属イオンは、特に、第 2 主族の元素（特に、カルシウム及びマグネシウム）のイオン、第 3 及び第 4 主族の元素（特に、アルミニウム及びスズ）のイオン、並びに、さらに、第 1 ～ 第 8 遷移族の元素（特に、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛など）のイオンである。特に好ましいのは、第 4 周期の元素の金属イオンである。ここで、該金属は、可能なさまざまな原子価で存在することができる。

## 【 0 0 2 8 】

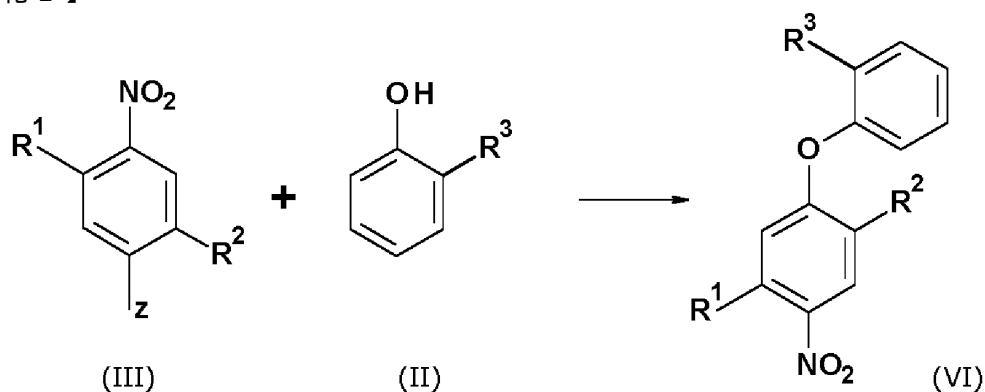
場合により置換されていてもよい基は、1 置換又は多置換されることが可能であり、多置換の場合における当該置換基は、同一であっても又は異なってもよい。

## 【 0 0 2 9 】

本発明は、さらに、本発明によるフェノキシフェニルアミジン類を調製するための調製方法も提供し、ここで、該調製方法は、以下の段階（a）～（j）のうちの少なくとも 1 つを含んでいる：

（a） 下記反応スキーム：

## 【 化 2 】

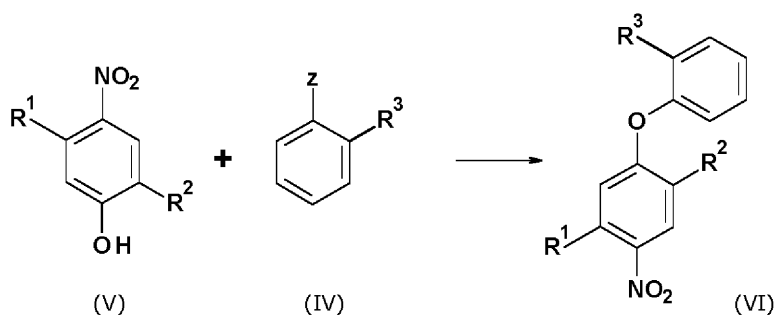


## 【 0 0 3 0 】

に従って、式（III）で表されるニトロベンゼン誘導体をフェノール（II）と反応させること；

（b） 下記反応スキーム：

## 【 化 3 】

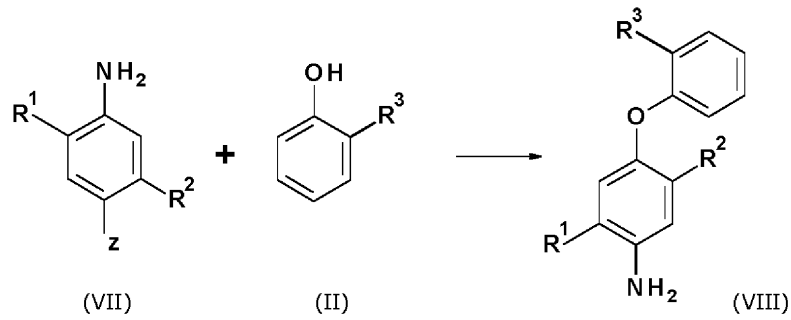


## 【 0 0 3 1 】

に従って、式（V）で表されるニトロフェノール誘導体を式（IV）で表されるフェニル誘導体と反応させること；

（c） 下記反応スキーム：

## 【化 4】



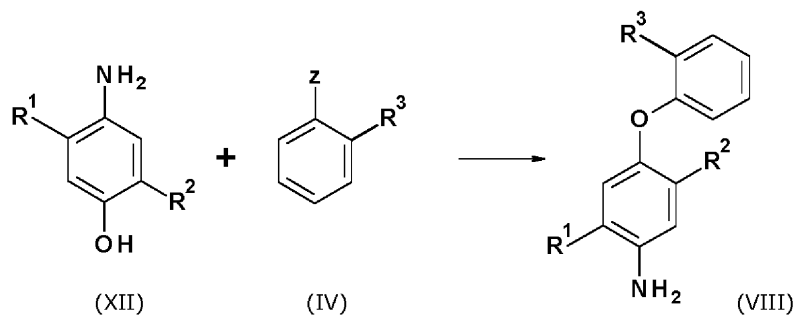
10

## 【 0 0 3 2 】

に従って、式 ( V I I ) で表されるアニリンをフェノール ( I I ) と反応させること；

( d ) 下記反応スキーム：

## 【化 5】



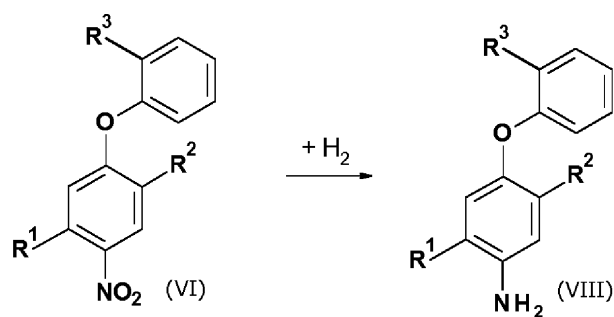
20

## 【 0 0 3 3 】

に従って、式 ( X I I ) で表されるアミノフェノールを式 ( I V ) で表されるフェニル誘導体と反応させること；

( e ) 下記反応スキーム：

## 【化 6】



30

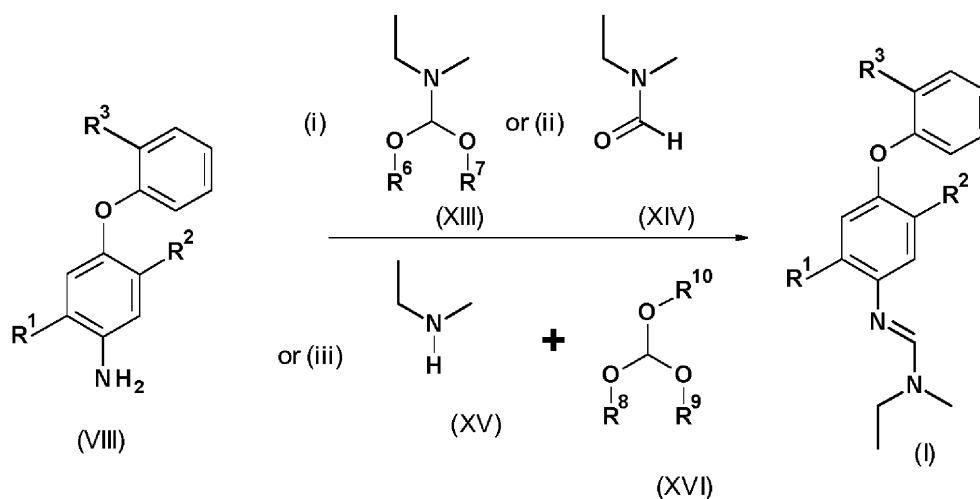
40

## 【 0 0 3 4 】

に従って、式 ( V I ) で表されるニトロフェニルエーテルを還元して式 ( V I I I ) で表されるアミノフェニルエーテルとすること；

( f ) 下記反応スキーム：

## 【化 7】



10

## 【 0 0 3 5 】

に従って、式 ( V I I I ) で表されるアミノフェニルエーテルを

( i ) 式 ( X I I I ) で表されるアミノアセタールと反応させること；又は、

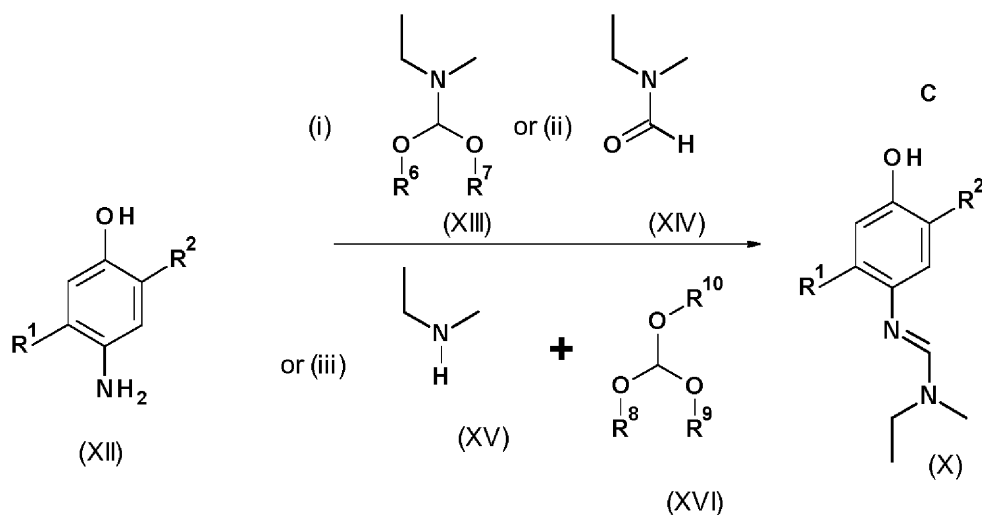
( i i ) 式 ( X I V ) で表される N - エチル - N - メチルホルムアミドと反応させること；又は、

20

( i i i ) 式 ( X V I ) で表されるオルトエステルの存在下で式 ( X V ) で表される N - メチルエタンアミンと反応させること；

( g ) 下記反応スキーム：

## 【化 8】



30

## 【 0 0 3 6 】

に従って、式 ( X I I ) で表されるアミノフェノールを

( i ) 式 ( X I I I ) で表されるアミノアセタールと反応させること；又は、

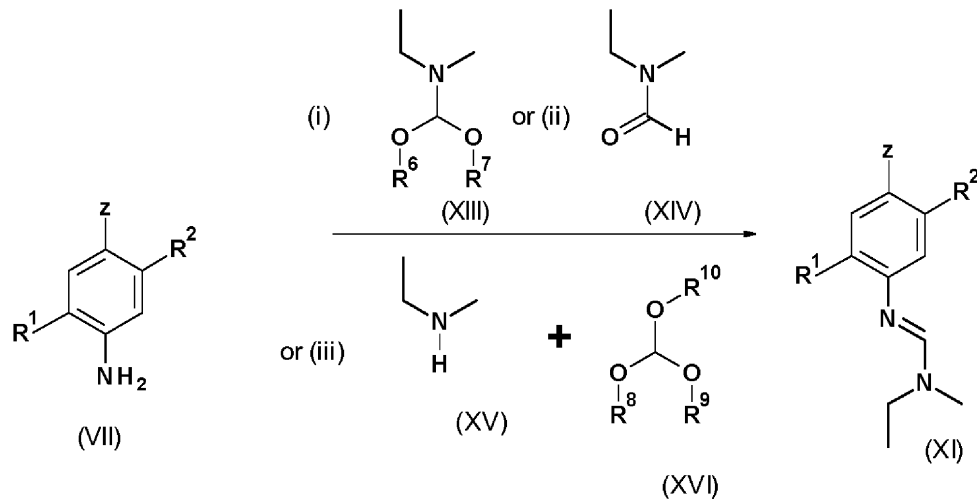
( i i ) 式 ( X I V ) で表される N - エチル - N - メチルホルムアミドと反応させること；又は、

40

( i i i ) 式 ( X V I ) で表されるオルトエステルの存在下で式 ( X V ) で表される N - メチルエタンアミンと反応させること；

( h ) 下記反応スキーム：

## 【化 9】



10

## 【 0 0 3 7 】

に従って、式 (VII) で表されるアニリンを

(i) 式 (XIII) で表されるアミノアセタールと反応させること；又は、

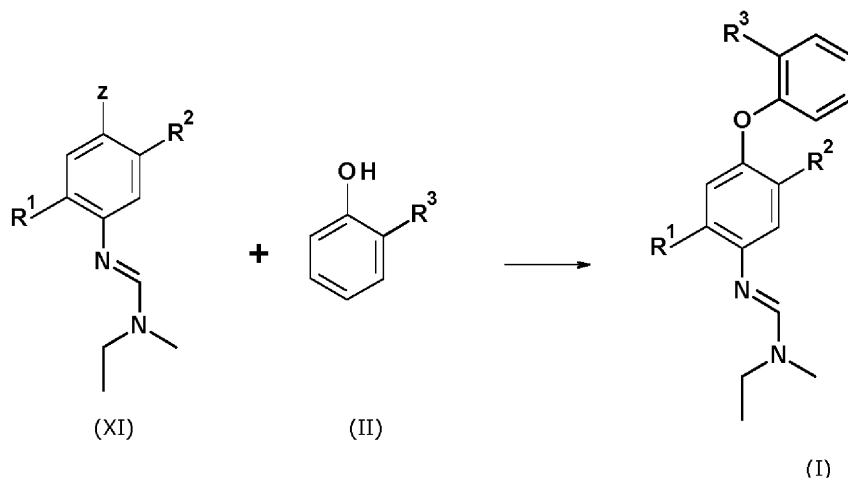
(ii) 式 (XIV) で表される N - エチル - N - メチルホルムアミドと反応させること；又は、

20

(iii) 式 (XVI) で表されるオルトエステルの存在下で式 (XV) で表される N - メチルエタンアミンと反応させること；

(i) 下記反応スキーム：

## 【化 10】



30

## 【 0 0 3 8 】

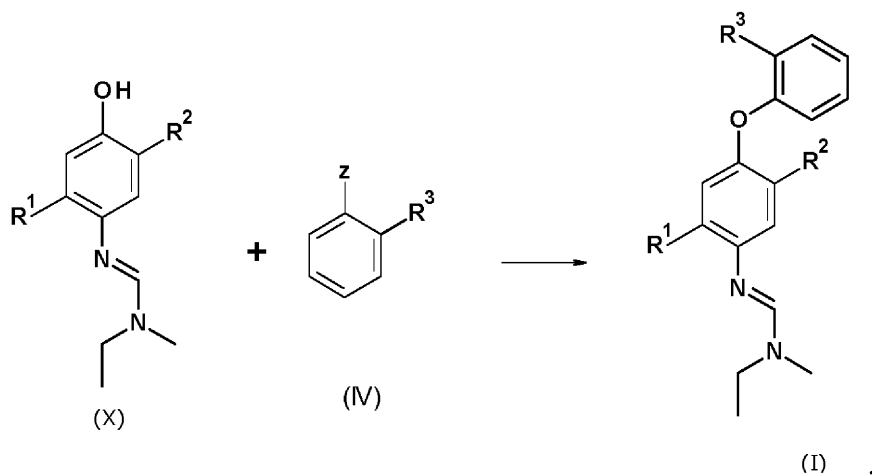
に従って、式 (XI) で表されるアミジンをフェノール (II) と反応させること；

(j) 下記反応スキーム：

40



## 【化 1 1】



10

## 【0039】

に従って、式 (X) で表されるアミジンを式 (I V) で表されるフェニル誘導体と反応させること；

ここで、上記スキームにおいて、

Z は、脱離基であり；

R<sup>1</sup> ~ R<sup>3</sup> は、上記意味を有し；

R<sup>6</sup> 及び R<sup>7</sup> は、互いに独立して、C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub> - アルキル、C<sub>2</sub> - C<sub>12</sub> - アルケニル、C<sub>2</sub> - C<sub>12</sub> - アルキニル又は C<sub>5</sub> - C<sub>18</sub> - アリール若しくは C<sub>7</sub> - C<sub>19</sub> - アリールアルキル基からなる群から選択され、及び、R<sup>6</sup> と R<sup>7</sup> は、それらが結合している原子と一緒に、5 員、6 員又は 7 員の環を形成することができ；

R<sup>8</sup> ~ R<sup>10</sup> は、互いに独立して、C<sub>1</sub> - C<sub>12</sub> - アルキル、C<sub>2</sub> - C<sub>12</sub> - アルケニル、C<sub>2</sub> - C<sub>12</sub> - アルキニル又は C<sub>5</sub> - C<sub>18</sub> - アリール若しくは C<sub>7</sub> - C<sub>19</sub> - アリールアルキル、C<sub>7</sub> - C<sub>19</sub> - アルキルアリール基からなる群から選択され、及び、いずれの場合にも、R<sup>8</sup> と R<sup>9</sup>、R<sup>9</sup> と R<sup>10</sup> 又は R<sup>8</sup> と R<sup>10</sup> は、それらが結合している原子と一緒に、そして、適切な場合にはさらなる炭素、窒素、酸素又は硫黄原子と一緒に、5 員、6 員又は 7 員の環を形成することができる。

20

30

## 【0040】

本発明の第 3 の対象は、望ましくない微生物を防除するための、本発明によるフェノキシハロゲンフェニルアミジン類又はそれらを含んでいる農薬製剤の使用である。望ましくない微生物を防除するための請求項 8 に記載の農薬製剤の。

## 【0041】

本発明の第 4 の対象は、本発明による少なくとも 1 種類のフェノキシハロゲンフェニルアミジンを含んでいる、望ましくない微生物を防除するための農薬製剤である。

## 【0042】

本発明のさらなる対象は、望ましくない微生物を防除する方法に関し、ここで、該方法は、本発明によるフェノキシハロゲンフェニルアミジン類又はそれらを含んでいる農薬製剤を当該微生物及び / 又はそれらの生息環境に施用することの特徴とする。

40

## 【0043】

さらに、本発明は、式 (I) で表される少なくとも 1 種類の化合物で処理された種子にも関する。

## 【0044】

本発明は、最後に、式 (I) で表される少なくとも 1 種類の化合物で処理された種子を使用することによる、望ましくない微生物に対して種子を保護する方法も提供する。

## 【0045】

一般的な定義

50

本発明に関連して、用語「ハロゲン(X)」は、別途定義されていない限り、フッ素、塩素、臭素及びヨウ素からなる群から選択される元素を包含し、ここで、好ましくは、フッ素、塩素及び臭素を使用し、特に好ましくは、フッ素及び塩素を使用する。

【0046】

置換されていてもよい基は、1置換又は多置換されることができ、多置換の場合には、その置換基は、同一であっても又は異なってもよい。

【0047】

上記式中に記載されている記号の定義においては、概して以下の置換基を代表する集合語を使用した。

【0048】

ハロゲン： フッ素、塩素、臭素及びヨウ素、並びに、好ましくは、フッ素、塩素、臭素、並びに、さらに好ましくは、フッ素、塩素。

【0049】

自然法則に反し、従って、当業者が自身の専門知識に基づいて除外するであろう組合せは含まれない。

【0050】

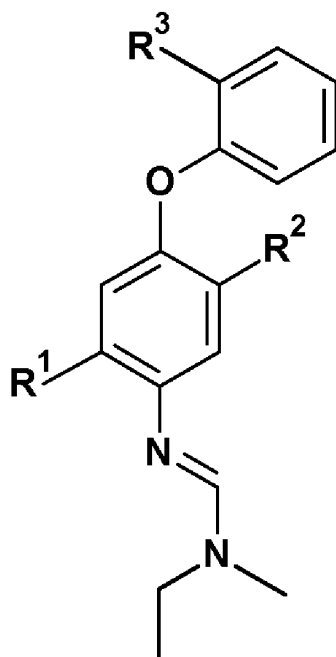
式(I)で表される化合物は、その置換基の種類に応じて、幾何異性体の形態でも、及び/若しくは、光学活性異性体の形態でも、又は、種々の組成における対応する異性体混合物の形態でも、存在し得る。これらの立体異性体は、例えば、ジアステレオマー、アトロプ異性体又は幾何異性体である。従って、本発明は、純粋な立体異性体とそれら異性体の任意の混合物の両方を包含する。

【発明を実施するための形態】

【0051】

本発明によるフェノキシハロゲンフェニルアミジン類は、式(I)

【化12】



(I)

【0052】

で表される化合物又はそれらの塩、N-オキシド、金属錯体及びそれらの立体異性体である。

【0053】

式(I)において、当該基は、下記で定義されている意味を有する。与えられている当

該定義は、全ての中間体にも当てはまる：

$R^1$  は、ハロゲンからなる群から選択され；

$R^2$  は、メチルであり；

$R^3$  は、水素である。

【0054】

式（I）において、当該基は、下記で定義されている好ましい意味を有する。好ましいものとして与えられている当該定義は、全ての中間体にも当てはまる：

$R^1$  は、好ましくは、フルオロ、クロロ及びブロモからなる群から選択され；

$R^2$  は、好ましくは、メチルであり；

$R^3$  は、好ましくは、水素である。

10

【0055】

式（I）において、当該基は、下記で定義されている特に好ましい意味を有する。特に好ましいものとして与えられている当該定義は、全ての中間体にも当てはまる：

$R^1$  は、特に好ましくは、クロロ及びブロモからなる群から選択され；

$R^2$  は、特に好ましくは、メチルであり；

$R^3$  は、特に好ましくは、水素である。

【0056】

本発明との関連において好ましいフェノキシフェニルアミジン類は、以下のものからなる群から選択される：（I-01） $N'-(2-クロロ-5-メチル-4-フェノキシフェニル)-N-エチル-N-メチルイミドホルムアミド$ 、（I-02） $N'-(2-ブロモ-5-メチル-4-フェノキシフェニル)-N-エチル-N-メチルイミドホルムアミド$ 、（I-03） $N-エチル-N'-(2-フルオロ-5-メチル-4-フェノキシフェニル)-N-メチルイミドホルムアミド$ 。

20

【0057】

式（I）で表される化合物は、塩基性特性を誘導するアミジン基を有している。かくして、これらの化合物は、酸と反応させて塩を生成させることが可能である。

【0058】

無機酸の例は、ハロゲン化水素酸（例えば、フッ化水素、塩化水素、臭化水素及びヨウ化水素）、硫酸、リン酸及び硝酸、並びに、酸性塩（例えば、 $NaHSO_4$  及び  $KHSO_4$ ）である。

30

【0059】

適切な有機酸は、例えば、ギ酸、炭酸及びアルカン酸（例えば、酢酸、トリフルオロ酢酸、トリクロロ酢酸及びプロピオン酸）、並びに、さらに、グリコール酸、チオシアン酸、乳酸、コハク酸、クエン酸、安息香酸、ケイ皮酸、シュウ酸、アルキルスルホン酸（1～20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝鎖のアルキル基を有しているスルホン酸）、アリールスルホン酸又はアリールジスルホン酸（1又は2のスルホン酸基を有している、フェニル及びナフチルなどの芳香族ラジカル）、アルキルホスホン酸（1～20個の炭素原子を有する直鎖又は分枝鎖のアルキル基を有しているホスホン酸）、アリールホスホン酸又はアリールジホスホン酸（1又は2のホスホン酸ラジカルを有している、フェニル及びナフチルなどの芳香族ラジカル）などであり、ここで、前記アルキル基及びアリール基は、さらなる置換基も有することができる（例えば、p-トルエンスルホン酸、サリチル酸、p-アミノサリチル酸、2-フェノキシ安息香酸、2-アセトキシ安息香酸など）。

40

【0060】

このようにして得ることができる塩も、同様に、殺菌特性を有している。

【0061】

本発明によるアミジン類の調製

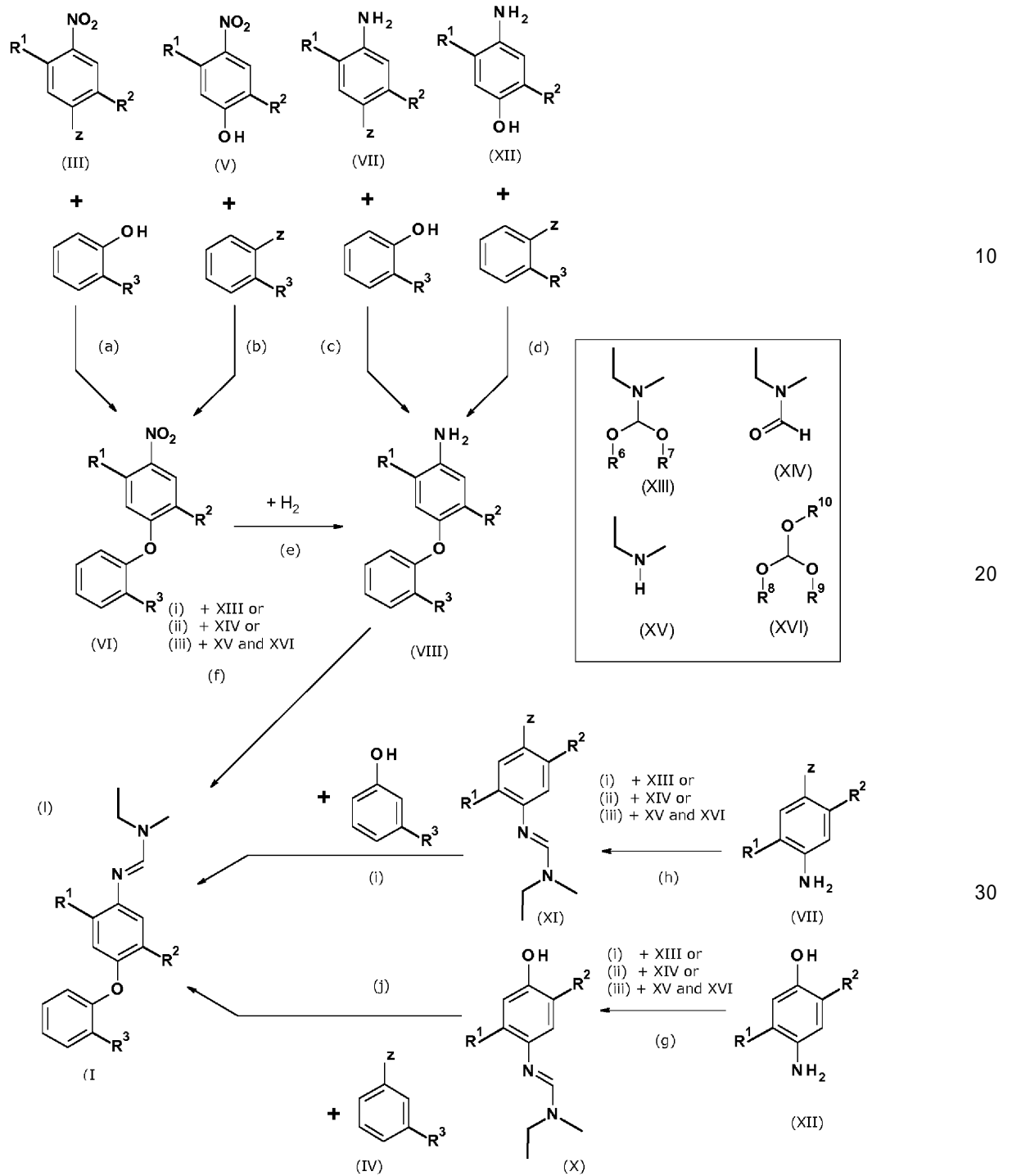
本発明によるアミジン類は、下記スキーム（I）に示されている調製方法によって得ることができる。

【0062】

スキーム（I）

50

## 【化 1 3】

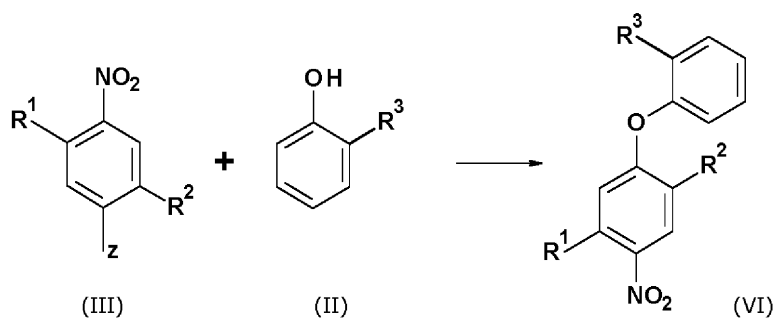


## 【 0 0 6 3 】

## 段階 ( a )

本発明による 1 実施形態では、下記反応スキームに従って、式 ( I I I ) で表されるニトロベンゼン誘導体を式 ( I I ) で表される誘導体又はそれから形成されるフェノキシドと反応させて、式 ( V I ) で表されるニトロ芳香族化合物を生成させる：

## 【化 1 4】



10

## 【0064】

適切な脱離基（Z）は、一般的な反応条件下において充分な離核性（nucleofugicity）を示す全ての物質である。挙げるべき適切な脱離基の例は、ハロゲン、トリフラート、メシラート、トシラート又は  $\text{SO}_2\text{Me}$  である。

## 【0065】

式（VI）〔式中、記号  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$  及び  $\text{R}^3$  は、上記で特定されている一般的な定義、好ましい定義又は特に好ましい定義を有する〕で表される化合物は、新規化合物である。

## 【0066】

本発明に関連して、表 I に記載されている  $\text{R}^1$  と  $\text{R}^2$  と  $\text{R}^3$  の下記組み合わせを有して

20

いる式（VI）で表されるニトロフェニルエーテルは、特に好ましい。

## 【表 1】

表 I			
No.	$\text{R}^1$	$\text{R}^2$	$\text{R}^3$
(VI-01)	Cl	Me	H
(VI-02)	Br	Me	H
(VI-03)	F	Me	H

30

## 【0067】

上記反応は、好ましくは、塩基の存在下で実施する。

## 【0068】

適切な塩基は、そのような反応において一般に使用される有機塩基及び無機塩基である。好ましくは、例えば、アルカリ土類金属又はアルカリ金属の水素化物、水酸化物、アミド、アルコキシド、酢酸塩、フッ化物、リン酸塩、炭酸塩及び重炭酸塩からなる群から選択される塩基を使用する。ここで、特に好ましいのは、ナトリウムアミド、水素化ナトリウム、リチウムジイソプロピルアミド、ナトリウムメトキシド、カリウム *tert*-ブトキシド、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、酢酸ナトリウム、リン酸ナトリウム、リン酸カリウム、フッ化カリウム、フッ化セシウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、重炭酸カリウム、重炭酸ナトリウム及び炭酸アンモニウムである。さらに、第 3 級アミン類、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリブチルアミン、N, N - ジメチルアニリン、N, N - ジメチルベンジルアミン、ピリジン、N - メチルピペリジン、N - メチルピロリドン、N, N - ジメチルアミノピリジン、ジアザビシクロオクタン（DABCO）、ジアザビシクロノネン（DBN）及びジアザビシクロウンデセン（DBU）。

40

## 【0069】

適切な場合には、パラジウム、銅及びそれらの塩又は錯体からなる群から選択される触媒を使用することができる。

50

## 【 0 0 7 0 】

ニトロベンゼン誘導体とフェノールの上記反応は、何も加えずに実施することが可能であるか、又は、溶媒中で実施することが可能である；好ましくは、該反応は、一般的な反応条件下において不活性である標準的な溶媒から選択される溶媒の中で実施する。

## 【 0 0 7 1 】

好ましいのは、以下のものである： 脂肪族、脂環式又は芳香族の炭化水素類、例えば、石油エーテル、ヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン又はデカリン；ハロゲン化炭化水素類、例えば、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン又はトリクロロエタン；エーテル類、例えば、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、メチル *tert*-ブチルエーテル (MTBE)、メチル *tert*-アミルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン又はアニソール；ニトリル類、例えば、アセトニトリル、プロピオニトリル、*n*-ブチロニトリル、イソブチロニトリル又はベンゾニトリル；アミド類、例えば、*N,N*-ジメチルホルムアミド (DMF)、*N,N*-ジメチルアセトアミド、*N*-メチルホルムアニリド、*N*-メチルピロリドン (NMP) 又はヘキサメチレンリン酸トリアミド；又は、それらと水の混合物、及び、さらに、純粋な水。

## 【 0 0 7 2 】

該反応は、減圧下、大気圧下又は加圧かにおいて、 $-20 \sim 200$  の温度で実施することができる；好ましくは、該反応は、大気圧下において、 $50 \sim 150$  の温度で実施する。

## 【 0 0 7 3 】

式 (III) で表されるニトロベンゼン誘導体は、市販されているか、又は、文献（例えば、WO 2008 / 110314）に記載されている方法によって、若しくは、該方法と同様にして、市販されている前駆物質から調製することができる。

## 【 0 0 7 4 】

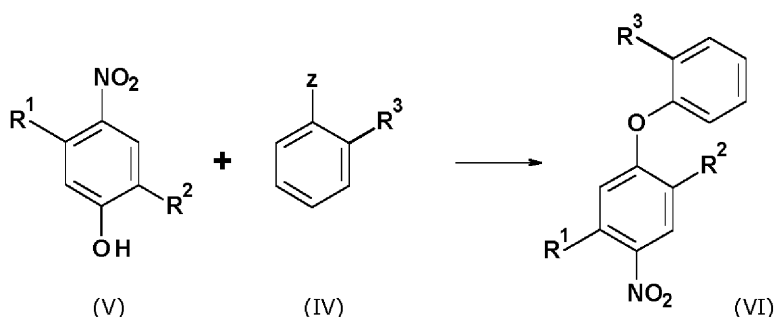
式 (II) で表されるフェノールは、市販されている。

## 【 0 0 7 5 】

## 段階 (b)

本発明の代替的な実施形態では、下記反応スキームに従って、式 (V) で表されるニトロフェノール誘導体又はそれから形成されるフェノキシドを式 (IV) で表されるフェニル誘導体と反応させて、式 (VI) で表されるニトロフェニルエーテルを生成させる：

## 【 化 1 5 】



## 【 0 0 7 6 】

その反応条件、溶媒、触媒、ニトロフェニルエーテル (VI) の置換パターン及び適切な脱離基に関しては、段階 (a) を参照することができる。

## 【 0 0 7 7 】

式 (V) で表されるニトロフェノール誘導体は、市販されているか、又は、文献に記載されている方法（例えば、対応するニトロフェノール誘導体から、ハロゲン化反応による：WO 2009 / 140624）によって、市販されている前駆物質から調製することが

できる。

【 0 0 7 8 】

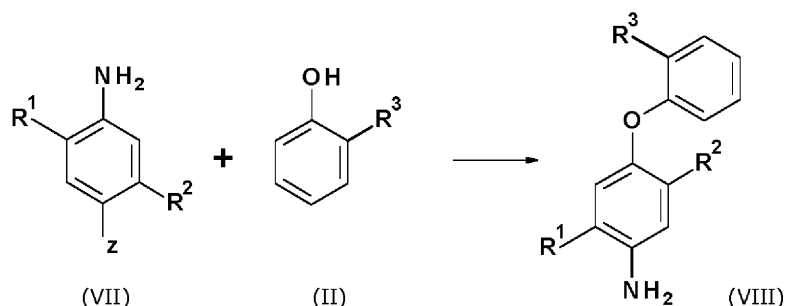
式 ( I V ) で表されるフェニル誘導体は、市販されている。

【 0 0 7 9 】

段階 ( c )

本発明のさらなる代替的な実施形態では、下記反応スキームに従って、式 ( V I I ) で表されるアニリン誘導体をフェノール ( I I ) 又はそれから形成されるフェノキシドと反応させて、式 ( V I I I ) で表されるアミノフェニルエーテルを生成させる：

【 化 1 6 】



【 0 0 8 0 】

その反応条件、溶媒、触媒及び適切な脱離基に関しては、段階 ( a ) を参照することができる。

【 0 0 8 1 】

式 ( V I I I ) ( 式中、記号  $R^2$  及び  $R^3$  は、上記で特定されている一般的な定義、好ましい定義又は特に好ましい定義を有し、 $R^1$  は、フルオロ、プロモ及びヨードからなる群から選択される ) で表される化合物も、新規化合物である。

【 0 0 8 2 】

本発明に関連して、表 I I に記載されている  $R^1$  と  $R^2$  と  $R^3$  の下記組み合わせを有している式 ( V I I I ) で表されるアミノフェニルエーテルは、特に好ましい。

【 表 2 】

表 II			
No.	$R^1$	$R^2$	$R^3$
(VIII-01)	Cl	Me	H
(VIII-02)	Br	Me	H
(VIII-03)	F	Me	H

【 0 0 8 3 】

段階 ( d )

本発明のさらなる代替的な実施形態では、下記反応スキームに従って、式 ( X I I ) で表されるアミノフェノールを式 ( I V ) で表されるフェニル誘導体と反応させて、式 ( V I I I ) で表されるアミノフェニルエーテルを生成させる：

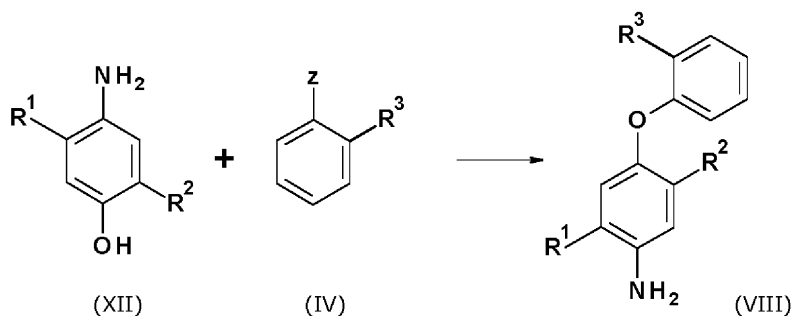
10

20

30

40

## 【化 17】



10

## 【0084】

その反応条件、溶媒、触媒、アミノフェニルエーテル（VII）の置換パターン及び適切な脱離基に関しては、段階（a）及び段階（c）を参照することができる。

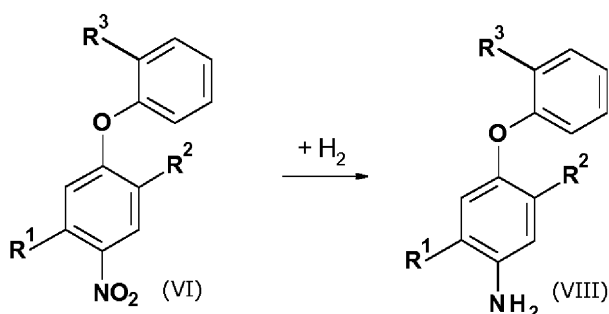
## 【0085】

## 段階（e）

下記反応スキームに従って、段階（a）及び段階（b）で得られた式（VI）で表されるニトロフェニルエーテルを還元して、式（VIII）で表されるアミノフェニルエーテルを生成させることができる：

20

## 【化 18】



30

## 【0086】

段階（e）による還元は、従来技術において記載されているニトロ基を還元するための任意の方法で実施することができる。

## 【0087】

好ましくは、該還元は、WO 2000 / 46184に記載されているように、濃塩酸の中で塩化スズを用いて実施する。しかしながら、代替的に、該還元を、塩酸又は水素ガスの存在下、適切な場合には適切な水素化触媒（例えば、ラネーニッケル又はPd / C）の存在下で、鉄を用いて実施することも可能である。その反応条件に関しては、従来技術においてすでに記載されており、当業者にはよく知られている。

40

## 【0088】

当該還元を液相中で実施する場合、その反応は、一般的な反応条件に対して不活性である溶媒の中で実施すべきである。そのような1種類の溶媒は、例えば、トルエン、メタノール又はエタノールである。

## 【0089】

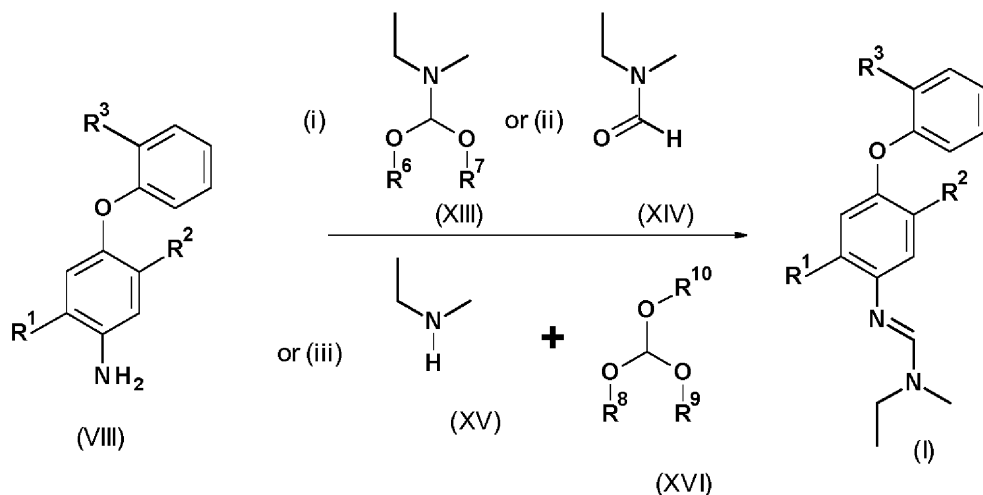
## 段階（f）

段階（f）による、式（VIII）で表されるアニリンの本発明による式（I）で表されるアミジンへの変換は、スキーム（I）において上記で示されているように、下記反応スキームに従って、以下のものを用いる種々の代替的な方法を使用して実施することができる：

50



- (i) 式(XIII)で表されるアミノアセタール；又は、  
 (ii) 式(XIV)で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミド；又は、  
 (iii) 式(XV)で表されるオルトエステルの存在下における、式(XV)で表されるN-メチルエタンアミン；  
 【化19】



10

## 【0090】

20

本発明による調製方法の代替的な個々の実施形態(i)~(iii)について、以下で簡潔に説明する。

## 【0091】

(i) スキーム(I)において段階(i)として示されている本発明の1実施形態によれば、式(VIII)で表されるアミノフェニルエーテルを式(XIII)で表されるアミノアセタールと反応させ(ここで、 $R^6$ 及び $R^7$ は、 $C_{1-8}$ -アルキル基からなる群から選択され、好ましくは、 $C_{1-6}$ -アルキル基から選択され、特に好ましくは、 $C_{1-4}$ -アルキル基から選択され、及び、 $R^6$ と $R^7$ は、それらが結合している酸素原子と一緒に、5員又は6員の環を形成することができる)、それによって、本発明による式(I)で表されるハロゲン置換フェノキシフェニルアミジンを生成させる。

30

## 【0092】

式(XIII)で表されるアミノアセタールは、「JACS, 65, 1566 (1943)」に記載されているN-エチル-N-メチルホルムアミドから、アルキル化剤(例えば、硫酸ジメチル)との反応によって得ることができる。

## 【0093】

段階(i)による反応は、好ましくは、塩基又は酸の非存在下で実施する。

## 【0094】

(ii) スキーム(I)において段階(ii)として示されている本発明の代替的な実施形態では、式(VIII)で表されるアミノフェニルエーテルを式(XIV)で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミドと反応させて、本発明によるハロゲン置換フェノキシフェニルアミジンを生成させる。

40

## 【0095】

段階(ii)による反応は、適切な場合には、ハロゲン化剤の存在下で実施する。適切なハロゲン化剤は、例えば、 $PCl_5$ 、 $PCl_3$ 、 $POCl_3$ 又は $SOCl_2$ からなる群から選択される。

## 【0096】

さらに、該反応は、代替的に、縮合剤の存在下で実施することもできる。

## 【0097】

適切な縮合剤は、アミド結合を形成させるために通常使用される縮合剤である；例として、酸ハロゲン化物形成物質、例えば、ホスゲン、三臭化リン、三塩化リン、五塩化リン

50

、オキシ塩化リン又は塩化チオニル；無水物形成物質、例えば、クロロホルメート、クロロギ酸メチル、クロロギ酸イソプロピル、クロロギ酸イソブチル又はメタンスルホニルクロリド；カルボジイミド類、例えば、N, N' - ジシクロヘキシルカルボジイミド (DCC)；又は、別の慣習的な縮合剤、例えば、五酸化リン、ポリリン酸、N, N' - カルボジイミダゾール、2 - エトキシ - N - エトキシカルボニル - 1, 2 - ジヒドロキノリン (EEDQ)、トリフェニルホスフィン / 四塩化炭素又はプロモトリピロリジノホスホニウムヘキサフルオロホスフェートを挙げることができる。

#### 【0098】

段階 (i i) による反応は、好ましくは、一般的な反応条件下において不活性である標準的な溶媒から選択される溶媒の中で実施する。好ましいのは、以下のものである： 脂肪族、脂環式又は芳香族の炭化水素類、例えば、石油エーテル、ヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン又はデカリン；ハロゲン化炭化水素類、例えば、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン又はトリクロロエタン；エーテル類、例えば、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、メチル tert - ブチルエーテル (MTBE)、メチル tert - アミルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、1, 2 - ジメトキシエタン、1, 2 - ジエトキシエタン又はアニソール；ニトリル類、例えば、アセトニトリル、プロピオニトリル、n - ブチロニトリル、イソブチロニトリル又はベンゾニトリル；アミド類、例えば、N, N - ジメチルホルムアミド (DMF)、N, N - ジメチルアセトアミド、N - メチルホルムアニリド、N - メチルピロリドン (NMP) 又はヘキサメチレンリン酸トリアミド；エステル類、例えば、酢酸メチル又は酢酸エチル；スルホキシド類、例えば、ジメチルスルホキシド (DMSO)；スルホン類、例えば、スルホラン；アルコール類、例えば、メタノール、エタノール、n - プロパノール、イソプロパノール、n - ブタノール、イソブタノール、sec - ブタノール、tert - ブタノール、エタングリオール、プロパン - 1, 2 -ジオール、エトキシエタノール、メトキシエタノール、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、又は、それらの混合物。

#### 【0099】

(i i i) スキーム (I) において段階 (i i i) として示されている本発明のさらなる代替的な実施形態によれば、式 (V I I I) で表されるアミノフェニルエーテルを、式 (X V I) で表されるオルトエステルの存在下で、式 (X V) で表される N - メチルエタンアミンと反応させ (ここで、 $R^8 \sim R^{10}$  は、互いに独立して、 $C_1 \sim C_8$  - アルキル基からなる群から選択され、好ましくは、 $C_2 \sim C_6$  - アルキル基から選択され、特に好ましくは、 $C_3 \sim C_5$  - アルキル基から選択され、及び、 $R^8 \sim R^{10}$  は、それらが結合している酸素原子と一緒に、5 員又は 6 員の環を形成することができる)、それによって、本発明によるハロゲン置換フェノキシフェニルアミジンを生成させる。

#### 【0100】

段階 (i i i) による反応は、好ましくは、一般的な反応条件下において不活性である標準的な溶媒から選択される溶媒の中で実施する。好ましいのは、以下のものである： 脂肪族、脂環式又は芳香族の炭化水素類、例えば、石油エーテル、ヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン又はデカリン；ハロゲン化炭化水素類、例えば、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン又はトリクロロエタン；エーテル類、例えば、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、メチル tert - ブチルエーテル (MTBE)、メチル tert - アミルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、1, 2 - ジメトキシエタン、1, 2 - ジエトキシエタン又はアニソール；ニトリル類、例えば、アセトニトリル、プロピオニトリル、n - ブチロニトリル、イソブチロニトリル又はベンゾニトリル；アミド類、例えば、N, N - ジメチルホルムアミド (DMF)、N, N - ジメチルアセトアミド、N - メチルホルムアニリド、N - メチルピロリドン (NMP) 又はヘキサメチレンリン酸トリアミド；エステル類、例えば、酢酸メチル又は酢酸エチル；スル

ホキシド類、例えば、ジメチルスルホキシド（DMSO）；スルホン類、例えば、スルホラン；アルコール類、例えば、メタノール、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、イソブタノール、sec-ブタノール、tert-ブタノール、エタンジオール、プロパン-1,2-ジオール、エトキシエタノール、メトキシエタノール、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；又は、それらと水の混合物、又は、さらに、純粋な水。

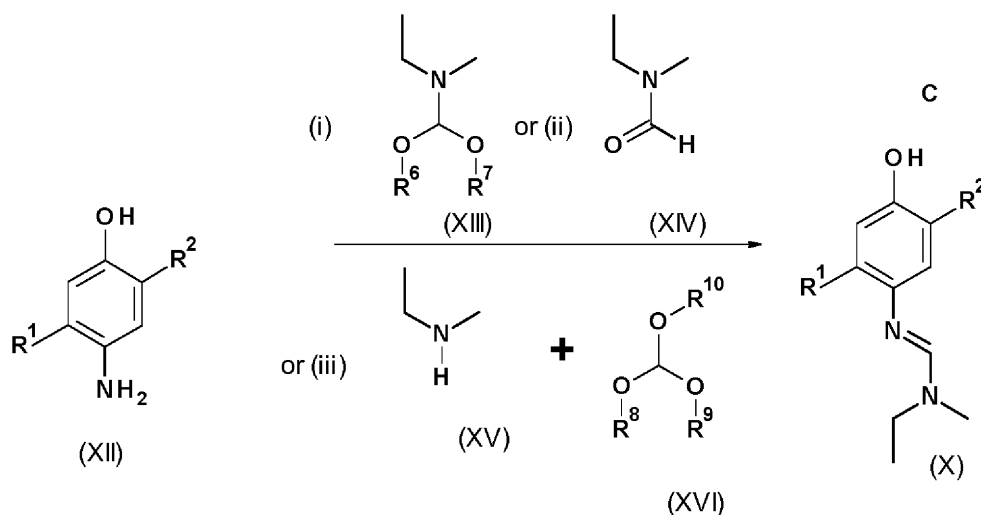
【0101】

段階（g）

本発明の代替的な実施形態では、下記反応スキームに従って、式（XII）で表されるアミノフェノールを、以下のものと反応させて、式（X）で表されるアミジンを生産させることが可能である：

- （i） 式（XIII）で表されるアミノアセタール；又は、
- （ii） 式（XIV）で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミド；又は、
- （iii） 式（XV）で表されるオルトエステルの存在下における、式（XVI）で表されるN-メチルエタンアミン；

【化20】



【0102】

その反応条件、溶媒、触媒及びアミジン（X）の置換パターンに関しては、段階（f）並びに表I及び表IIを参照することができる。

【0103】

式（X）で表されるアミジンの本発明による式（I）で表される目標分子へのさらなる変換は、例えば、段階（j）に記載されているようにして、実施することができる。

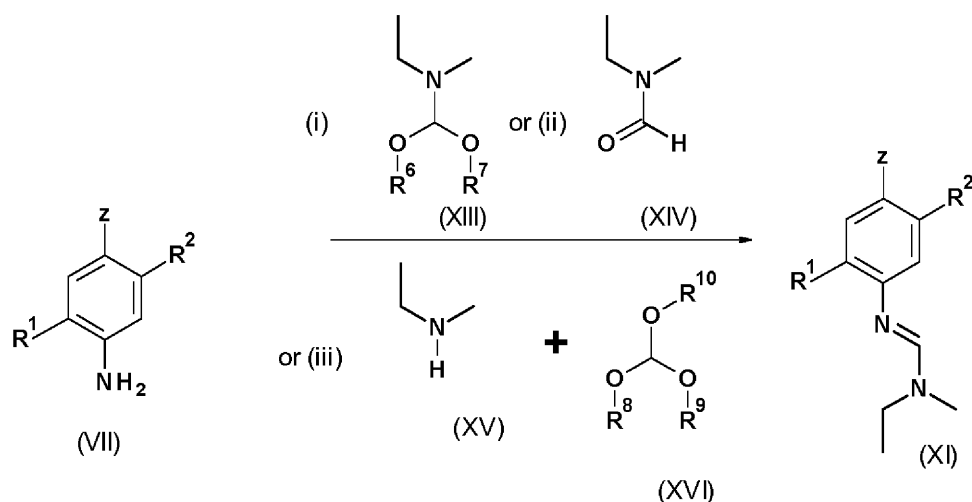
【0104】

段階（h）

本発明の代替的な実施形態では、下記反応スキームに従って、式（VII）で表されるアニリン誘導体を、以下のものと反応させて、式（XI）で表されるアミジンを生産させることが可能である：

- （i） 式（XIII）で表されるアミノアセタール；又は、
- （ii） 式（XIV）で表されるN-エチル-N-メチルホルムアミド；又は、
- （iii） 式（XVI）で表されるオルトエステルの存在下における、式（XV）で表されるN-メチルエタンアミン；

## 【化 2 1】



10

## 【0105】

その反応条件、溶媒、触媒及びアミジン（XI）の置換パターンに関しては、段階（f）並びに表 I 及び表 II を参照することができる。

## 【0106】

式（XI）で表されるアミジンの本発明による式（I）で表される目標分子へのさらなる変換は、例えば、段階（i）に記載されているようにして、実施することができる。

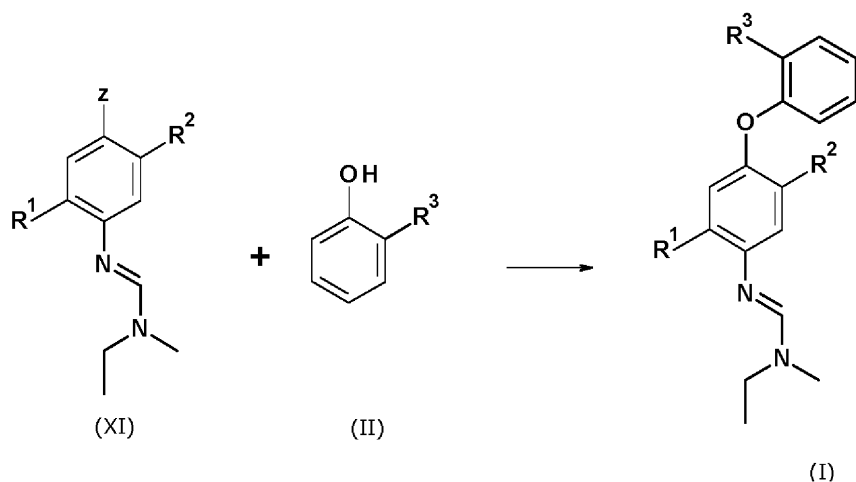
20

## 【0107】

## 段階（i）

本発明のさらなる実施形態によれば、段階（h）から得ることができる式（XI）で表されるアミジンを、下記反応スキームに従って、フェノール又はそれから形成されるフェノキシドと反応させて、本発明による式（I）で表される目標分子を生成させることができる：

## 【化 2 2】



30

40

## 【0108】

その反応条件、溶媒、触媒、アミジン（I）の置換パターンに関しては、段階（a）及び段階（c）並びに表 I 及び表 II を参照することができる。

## 【0109】

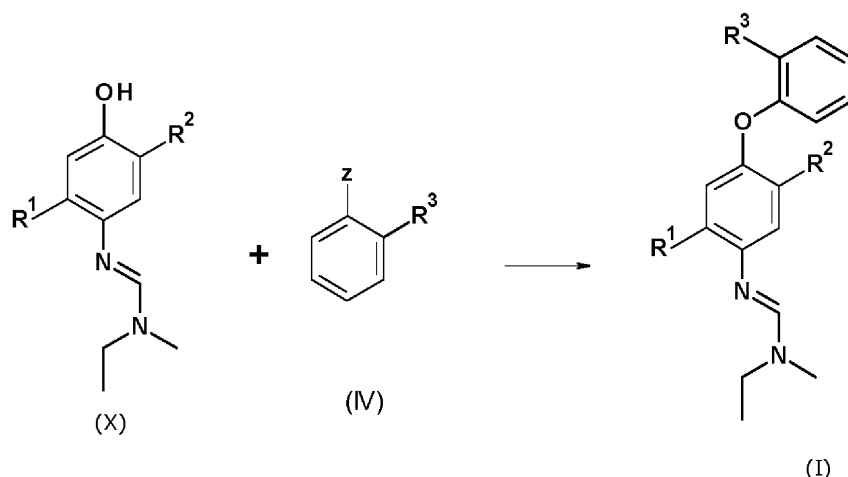
## 段階（j）

本発明のさらなる実施形態によれば、段階（g）から得ることができる式（X）で表されるアミジンを、下記反応スキームに従って、式（IV）で表されるフェニル誘導体と反

50

応させて、本発明による式 (I) で表される目標分子を生成させることができる：

【化 2 3】



10

【0110】

その反応条件、溶媒、触媒及びアミジン (I) の置換パターンに関しては、段階 (a) 及び段階 (c) 並びに表 I 及び表 II を参照することができる。

【0111】

式 (I) で表されるアミジンを調製するための本発明による調製方法に関連して、反応段階の下記組合せが有利であると考えられる：段階 (a)、(e) 及び (f)；段階 (b)、(e) 及び (f)；段階 (c) 及び (f)；段階 (d) 及び (f)；段階 (h) 及び (i)、及び/又は、段階 (g) 及び (j)。

20

【0112】

本発明によるフェノキシハロゲンフェニルアミジンの上記調製は、適切な場合には、中間体を中間的に単離することなく実施する。

【0113】

当該フェノキシハロゲンフェニルアミジン類の最終的な精製は、適切な場合には、慣習的な精製方法を用いて実施することができる。好ましくは、精製は、結晶化によって実施する。

30

【0114】

#### 望ましくない微生物の防除

式 (I) で表される化合物は、強力な殺微生物活性 (microbicidal activity) を有しており、作物保護、材料物質 (materials) の保護並びに医薬用途及び非医薬用途において、望ましくない微生物 (例えば、菌類及び細菌類) を防除するために使用することができる。

【0115】

#### 植物保護

式 (I) で表される化合物は、極めて良好な殺菌特性を有しており、作物保護において、例えば、ネコブカビ類 (Plasmodiophoromycetes)、卵菌類 (Oomycetes)、ツボカビ類 (Chytridiomycetes)、接合菌類 (Zygomycetes)、子囊菌類 (Ascomycetes)、担子菌類 (Basidiomycetes) 及び不完全菌類 (Deuteromycetes) などを防除するために、使用することができる。

40

【0116】

殺細菌剤 (bactericide) は、作物保護において、シュードモナス科 (Pseudomonadaceae)、キサントモナス (Xanthomonas)、リゾビウム科 (Rhizobiaceae)、腸内細菌科 (Enterobacteriaceae)、コリネバクテリウム科 (Corynebacteriaceae) 及びストレプトミセス科 (Streptomycetaceae) を防除するために、使用することが

50

できる。

【0117】

式(I)で表される化合物は、植物病原性菌類を治療的又は保護的に防除するために使用することができる。従って、本発明は、本発明による活性成分又は組成物を使用して植物病原性菌類を防除するための治療的方法及び保護的方法にも関し、ここで、該活性成分又は組成物は、種子、植物若しくは植物の部分、果実又は植物がそこで生育している土壤に施用される。

【0118】

上記において挙げられている総称に分類される菌類病及び細菌病の一部の病原体として、限定的なものではないが、例えば、以下のものを挙げることができる：

・ 例えば以下のような、うどんこ病病原体に起因する病害： ブルメリア属各種 (*Blumeria species*)、例えば、ブルメリア・グラミニス (*Blumeria graminis*)； ポドスファエラ属各種 (*Podosphaera species*)、例えば、ポドスファエラ・レウコトリカ (*Podosphaera leucotricha*)； スファエロテカ属各種 (*Sphaerotheca species*)、例えば、スファエロテカ・フリギネア (*Sphaerotheca fuliginea*)； ウンシヌラ属各種 (*Uncinula species*)、例えば、ウンシヌラ・ネカトル (*Uncinula necator*)；

・ 例えば以下のような、さび病病原体に起因する病害： ギムノスポランギウム属各種 (*Gymnosporangium species*)、例えば、ギムノスポランギウム・サビナエ (*Gymnosporangium sabinae*)； ヘミレイア属各種 (*Hemileia species*)、例えば、ヘミレイア・バスタトリクス (*Hemileia vastatrix*)； ファコプソラ属各種 (*Phakopsora species*)、例えば、ファコプソラ・パキリジ (*Phakopsora pachyrhizi*) 又は ファコプソラ・メイボミアエ (*Phakopsora meibomia*)； プッシニア属各種 (*Puccinia species*)、例えば、プッシニア・レコンジタ (*Puccinia recondita*)、プッシニア・グラミニス (*Puccinia graminis*) 又は プッシニア・ストリイホルミス (*Puccinia striiformis*)； ウロミセス属各種 (*Uromyces species*)、例えば、ウロミセス・アペンジクラツス (*Uromyces appendiculatus*)；

・ 例えば以下のような、卵菌類 (*Oomycetes*) の群の病原体に起因する病害： アルブゴ属各種 (*Albugo species*)、例えば、アルブゴ・カンジダ (*Albugo candida*)； ブレミア属各種 (*Bremia species*)、例えば、ブレミア・ラクツカエ (*Bremia lactucae*)； ペロノスポラ属各種 (*Peronospora species*)、例えば、ペロノスポラ・ピシ (*Peronospora pisi*) 又は ペロノスポラ・ブラシカエ (*P. brassicae*)； フィトフトラ属各種 (*Phytophthora species*)、例えば、フィトフトラ・インフェスタンス (*Phytophthora infestans*)； プラスモパラ属各種 (*Plasmopara species*)、例えば、プラスモパラ・ビチコラ (*Plasmopara viticola*)； プセウドペロノスポラ属各種 (*Pseudoperonospora species*)、例えば、プセウドペロノスポラ・フムリ (*Pseudoperonospora humuli*) 又は プセウドペロノスポラ・クベンシス (*Pseudoperonospora cubensis*)； ピシウム属各種 (*Pythium species*)、例えば、ピシウム・ウルチムム (*Pythium ultimum*)；

・ 例えば以下のものに起因する、斑点病 (*leaf blotch disease*) 及び萎凋病 (*leaf wilt disease*)： アルテルナリア属各種 (*Alternaria species*)、例えば、アルテルナリア・ソラニ (*Alternaria solani*)； セルコスボラ属各種 (*Cercospora speci*

10

20

30

40

50

es)、例えば、セルコスボラ・ベチコラ(*Cercospora beticola*) ; クラジオスポリウム属各種(*Cladiosporium species*)、例えば、クラジオスポリウム・ククメリナム(*Cladiosporium cucumerinum*) ; コクリオボルス属各種(*Cochliobolus species*)、例えば、コクリオボルス・サチブス(*Cochliobolus sativus*) (分生子形態: *Drechslera*, 同義語: *Helminthosporium*) 又はコクリオボルス・ミヤベアヌス(*Cochliobolus miyabeanus*) ; コレトトリクム属各種(*Colletotrichum species*)、例えば、コレトトリクム・リンデムタニウム(*Colletotrichum lindemuthianum*) ; シクロコニウム属各種(*Cycloconium species*)、例えば、シクロコニウム・オレアギナム(*Cycloconium oleaginum*) ; ジアポルテ属各種(*Diaporthe species*)、例えば、ジアポルテ・シトリ(*Diaporthe citri*) ; エルシノエ属各種(*Elsinoe species*)、例えば、エルシノエ・ファウセツチイ(*Elsinoe fawcettii*) ; グロエオスポリウム属各種(*Gloeosporium species*)、例えば、グロエオスポリウム・ラエチコロール(*Gloeosporium laeticolor*) ; グロメラ属各種(*Glomerella species*)、例えば、グロメラ・シングラタ(*Glomerella cingulata*) ; グイグナルジア属各種(*Guignardia species*)、例えば、グイグナルジア・ビドウェリ(*Guignardia bidwelli*) ; レプトスファエリア属各種(*Leptosphaeria species*)、例えば、レプトスファエリア・マクランズ(*Leptosphaeria maculans*) ; マグナポルテ属各種(*Magnaporthe species*)、例えば、マグナポルテ・グリセア(*Magnaporthe grisea*) ; ミクロドキウム属各種(*Microdochium species*)、例えば、ミクロドキウム・ニバレ(*Microdochium nivale*) ; ミコスファエレラ属各種(*Mycosphaerella species*)、例えば、ミコスファエレラ・グラミニコラ(*Mycosphaerella graminicola*)、ミコスファエレラ・アラキジコラ(*Mycosphaerella arachidicola*) 又はミコスファエレラ・フィジエンシス(*Mycosphaerella fijiensis*) ; ファエオスファエリア属各種(*Phaeosphaeria species*)、例えば、ファエオスファエリア・ノドルム(*Phaeosphaeria nodorum*) ; ピレノホラ属各種(*Pyrenophora species*)、例えば、ピレノホラ・テレス(*Pyrenophora teres*) 又はピレノホラ・トリチシ・レペンチス(*Pyrenophora tritici repentis*) ; ラムラリア属各種(*Ramularia species*)、例えば、ラムラリア・コロ・シグニ(*Ramularia collo-cygni*) 又はラムラリア・アレオラ(*Ramularia areola*) ; リンコスボリウム属各種(*Rhynchosporium species*)、例えば、リンコスボリウム・セカリス(*Rhynchosporium secalis*) ; セプトリア属各種(*Septoria species*)、例えば、セプトリア・アピイ(*Septoria api*) 又はセプトリア・リコベルシシ(*Septoria lycopersici*) ; スタゴノスポラ属各種(*Stagonospora species*)、例えば、スタゴノスポラ・ノドルム(*Stagonospora nodorum*) ; チフラ属各種(*Typhula species*)、例えば、チフラ・インカルナタ(*Typhula incarnata*) ; ベンツリア属各種(*Venturia species*)、例えば、ベンツリア・イナエクアリス(*Venturia inaequalis*) ;

・ 例えば以下のものに起因する、根及び茎の病害: コルチシウム属各種(*Corticium species*)、例えば、コルチシウム・グラミネアルム(*Corticium graminearum*) ; フサリウム属各種(*Fusarium spec*

10

20

30

40

50

ies)、例えば、フサリウム・オキシスポルム(*Fusarium oxysporum*); ガエウマンノミセス属各種(*Gaeumannomyces species*)、例えば、ガエウマンノミセス・グラミニス(*Gaeumannomyces graminis*); プラスモジオホラ属各種(*Plasmodiophora species*)、例えば、プラスモジオホラ・ブラシカエ(*Plasmodiophora brassicae*); リゾクトニア属各種(*Rhizoctonia species*)、例えば、リゾクトニア・ソラニ(*Rhizoctonia solani*); サロクラジウム属各種(*Sarocladium species*)、例えば、サロクラジウム・オリザエ(*Sarocladium oryzae*); スクレロチウム属各種(*Sclerotium species*)、例えば、スクレロチウム・オリザエ(*Sclerotium oryzae*); タペシア属各種(*Tapesia species*)、例えば、タペシア・アクホルミス(*Tapesia acuformis*); チエラビオプシス属各種(*Thielaviopsis species*)、例えば、チエラビオプシス・バシコラ(*Thielaviopsis basicola*);

10

・ 例えば以下のものに起因する、穂の病害(ear and panicle disease)(トウモロコシの穂軸を包含する): アルテルナリア属各種(*Alternaria species*)、例えば、アルテルナリア属種(*Alternaria spp.*); アスペルギルス属各種(*Aspergillus species*)、例えば、アスペルギルス・フラブス(*Aspergillus flavus*); クラドスポリウム属各種(*Cladosporium species*)、例えば、クラドスポリウム・クラドスポリオイデス(*Cladosporium cladosporioides*); クラビセプス属各種(*Claviceps species*)、例えば、クラビセプス・プルプレア(*Claviceps purpurea*); フサリウム属各種(*Fusarium species*)、例えば、フサリウム・クルモルム(*Fusarium culmorum*); ジベレラ属各種(*Gibberella species*)、例えば、ジベレラ・ゼアエ(*Gibberella zeae*); モノグラフェラ属各種(*Monographella species*)、例えば、モノグラフェラ・ニバリス(*Monographella nivalis*); スタグノスポラ属各種(*Stagnospora species*)、例えば、スタグノスポラ・ノドルム(*Stagnospora nodorum*);

20

30

・ 例えば以下のものなどの、黒穂病菌類(smut fungi)に起因する病害: スファセロテカ属各種(*Sphacelotheca species*)、例えば、スファセロテカ・レイリアナ(*Sphacelotheca reiliana*); チレチア属各種(*Tilletia species*)、例えば、チレチア・カリエス(*Tilletia caries*)又はチレチア・コントロベルサ(*Tilletia controversa*); ウロシスチス属各種(*Urocystis species*)、例えば、ウロシスチス・オクルタ(*Urocystis occulta*); ウスチラゴ属各種(*Ustilago species*)、例えば、ウスチラゴ・ヌダ(*Ustilago nuda*);

・ 例えば以下のものに起因する、果実の腐敗(fruit rot): アスペルギルス属各種(*Aspergillus species*)、例えば、アスペルギルス・フラブス(*Aspergillus flavus*); ボトリチス属各種(*Botrytis species*)、例えば、ボトリチス・シネレア(*Botrytis cinerea*); ペニシリウム属各種(*Penicillium species*)、例えば、ペニシリウム・エキスパンスム(*Penicillium expansum*)又はペニシリウム・プルプロゲナム(*Penicillium purpurogenum*); リゾプス属各種(*Rhizopus species*)、例えば、リゾプス・ストロニフェル(*Rhizopus stolonifer*); スクレロチニア属各種(*Sclerotinia species*)、例えば、スクレロチニア・スクレロチオルム(*Sclerotinia sclerotiorum*); ベルチシリウム属各種(*Ver*

40

50



*verticillium* species)、例えば、ベルチシリウム・アルボアトルム (*Verticillium albo-atrum*) ;

・ 例えば以下のものに起因する、種子及び土壌によって媒介される腐敗病及び萎凋病 (seed- and soil-borne rot and wilt disease) 並びに実生の病害: アルテルナリア属各種 (*Alternaria* species)、例えば、アルテルナリア・ブラシシコラ (*Alternaria brassicicola*) ; アファノミセス属各種 (*Aphanomyces* species)、例えば、アファノミセス・エウテイケス (*Aphanomyces euteiches*) ; アスコキタ属各種 (*Ascochyta* species)、例えば、アスコキタ・レンチス (*Ascochyta lentis*) ; アスペルギルス属各種 (*Aspergillus* species)、例えば、アスペルギルス・フラブス (*Aspergillus flavus*) ; クラドスポリウム属各種 (*Cladosporium* species)、例えば、クラドスポリウム・ヘルバルム (*Cladosporium herbarum*) ; コクリオボルス属各種 (*Cochliobolus* species)、例えば、コクリオボルス・サチブス (*Cochliobolus sativus*) (分生子形態: *Drechslera*、*Bipolaris* 異名: *Helminthosporium*) ; コレトトリクム属各種 (*Colletotrichum* species)、例えば、コレトトリクム・ココデス (*Colletotrichum coccodes*) ; フサリウム属各種 (*Fusarium* species)、例えば、フサリウム・クルモルム (*Fusarium culmorum*) ; ジベレラ属各種 (*Gibberella* species)、例えば、ジベレラ・ゼアエ (*Gibberella zeae*) ; マクロホミナ属各種 (*Macrophomina* species)、例えば、マクロホミナ・ファセオリナ (*Macrophomina phaseolina*) ; ミクロドキウム属各種 (*Microdochium* species)、例えば、ミクロドキウム・ニバレ (*Microdochium nivale*) ;

モノグラフェラ属各種 (*Monographella* species)、例えば、モノグラフェラ・ニバリス (*Monographella nivalis*) ; ペニシリウム属各種 (*Penicillium* species)、例えば、ペニシリウム・エキスパンスム (*Penicillium expansum*) ; ホマ属各種 (*Phoma* species)、例えば、ホマ・リンガム (*Phoma lingam*) ; ホモブシス属各種 (*Phomopsis* species)、例えば、ホモブシス・ソジャエ (*Phomopsis sojae*) ; フィトフトラ属各種 (*Phytophthora* species)、例えば、フィトフトラ・カクトルム (*Phytophthora cactorum*) ; ピレノホラ属各種 (*Pyrenophora* species)、例えば、ピレノホラ・グラミネア (*Pyrenophora graminea*) ; ピリクラリア属各種 (*Pyricularia* species)、例えば、ピリクラリア・オリザエ (*Pyricularia oryzae*) ; ピシウム属各種 (*Pythium* species)、例えば、ピシウム・ウルチムム (*Pythium ultimum*) ; リゾクトニア属各種 (*Rhizoctonia* species)、例えば、リゾクトニア・ソラニ (*Rhizoctonia solani*) ; リゾプス属各種 (*Rhizopus* species)、例えば、リゾプス・オリザエ (*Rhizopus oryzae*) ; スクレロチウム属各種 (*Sclerotium* species)、例えば、スクレロチウム・ロルフシイ (*Sclerotium rolfsii*) ;

セプトリア属各種 (*Septoria* species)、例えば、セプトリア・ノドルム (*Septoria nodorum*) ; チフラ属各種 (*Typhula* species)、例えば、チフラ・インカルナタ (*Typhula incarnata*) ; ベルチシリウム属各種 (*Verticillium* species)、例えば、ベルチシリウム・ダーリアエ (*Verticillium dahliae*) ;

・ 例えば以下のものに起因する、癌性病害 (cancer)、こぶ (gall) 及び天狗巢病 (witches' broom) : ネクトリア属各種 (*Nectria* species)、例えば、ネクトリア・ノドリス (*Nectria nodulis*) ;

・ 例えば以下のものに起因する、癌性病害 (cancer)、こぶ (gall) 及び天狗巢病 (witches' broom) : ネクトリア属各種 (*Nectria* species)、例えば、ネクトリア・ノドリス (*Nectria nodulis*) ;

・ 例えば以下のものに起因する、癌性病害 (cancer)、こぶ (gall) 及び天狗巢病 (witches' broom) : ネクトリア属各種 (*Nectria* species)、例えば、ネクトリア・ノドリス (*Nectria nodulis*) ;

10

20

30

40

50

species)、例えば、ネクトリア・ガリゲナ(*Nectria galligena*) ;

- ・ 例えば以下のものに起因する、萎凋病(wilt disease) : モニリニア属各種(*Monilinia species*)、例えば、モニリニア・ラキサ(*Monilinia laxa*) ;

- ・ 例えば以下のものに起因する、葉、花及び果実の奇形 : エキソバシジウム属各種(*Exobasidium species*)、例えば、エキソバシジウム・ベキサンス(*Exobasidium vexans*) ; タフリナ属各種(*Taphrina species*)、例えば、タフリナ・デホルマンズ(*Taphrina deformans*) ;

10

- ・ 例えば以下のものに起因する、木本植物の衰退性病害(degenerative disease) : エスカ属各種(*Esca species*)、例えば、ファエオモニエラ・クラミドスポラ(*Phaeomonieella chlamydospora*)、ファエオアカレモニウム・アレオフィルム(*Phaeoacremonium aleophilum*)又はフォミチポリア・メジテラネア(*Fomitiporia mediterranea*) ; ガノデルマ属各種(*Ganoderma species*)、例えば、ガノデルマ・ボニネンセ(*Ganoderma boninense*) ;

- ・ 例えば以下のものに起因する、花及び種子の病害 : ボトリチス属各種(*Botrytis species*)、例えば、ボトリチス・シネレア(*Botrytis cinerea*) ;

20

- ・ 例えば以下のものに起因する、植物塊茎の病害 : リゾクトニア属各種(*Rhizoctonia species*)、例えば、リゾクトニア・ソラニ(*Rhizoctonia solani*) ; ヘルミントスポリウム属各種(*Helminthosporium species*)、例えば、ヘルミントスポリウム・ソラニ(*Helminthosporium solani*) ;

- ・ 例えば以下のものなどの、細菌性病原体に起因する病害 : キサントモナス属各種(*Xanthomonas species*)、例えば、キサントモナス・カムベストリス pv. オリザエ(*Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*) ; シュードモナス属各種(*Pseudomonas species*)、例えば、シュードモナス・シリングアエ pv. ラクリマンズ(*Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*) ; エルウィニア属各種(*Erwinia species*)、例えば、エルウィニア・アミロボラ(*Erwinia amylovora*)。

30

#### 【0119】

好ましくは、ダイズの以下の病害を防除する :

- ・ 例えば以下のものに起因する、葉、茎、鞘及び種子の菌類病 : アルテルナリア斑点病(*alternaria leaf spot*)(*Alternaria spec. atrans tenuissima*)、炭疽病(*Colletotrichum gloeosporoides dematium* var. *truncatum*)、褐紋病(*brown spot*)(*Septoria glycines*)、紫斑病(*cercospora leaf spot and blight*)(*Cercospora kikuchii*)、コアナホラ葉枯病(*choanephora leaf blight*)(*Choanephora infundibulifera trispora*(Syn.))、ダクツリオホラ斑点病(*dactuliophora leaf spot*)(*Dactuliophora glycines*)、べと病(*Peronospora manshurica*)、ドレクスレラ胴枯病(*drechslera blight*)(*Drechslera glycinii*)、斑点病(*frogeye leaf spot*)(*Cercospora soja*)、そばかす病(*leptosphaerulina leaf spot*)(*Leptosphaerulina trifolii*)、灰星病(*phyllostica leaf*

40

50

spot) (*Phyllosticta sojaecola*)、黒点病 (pod and stem blight) (*Phomopsis sojae*)、うどんこ病 (*Microsphaera diffusa*)、ピレノカエタ斑点病 (*pyrenochaeta leaf spot*) (*Pyrenochaeta glycines*)、葉腐病 (*rhizoctonia aerial, foliage, and web blight*) (*Rhizoctonia solani*)、さび病 (*Phakopsora pachyrhizi, Phakopsora meibomiaae*)、黒とう病 (*Sphaceloma glycines*)、ステムフィリウム葉枯病 (*stemphylium leaf blight*) (*Stemphylium botryosum*)、褐色輪紋病 (*Corynespora cassiicola*) ;

10

・ 例えば以下のものに起因する、根及び茎基部の菌類病 :

黒根腐病 (*Calonectria crotalariae*)、炭腐病 (*Macrophomina phaseolina*)、赤かび病 (*fusarium blight or wilt, root rot, and pod and collar rot*) (*Fusarium oxysporum, Fusarium orthoceras, Fusarium semitectum, Fusarium equiseti*)、ミコレプトジスキス根腐病 (*mycoleptodiscus root rot*) (*Mycoleptodiscus terrestris*)、根腐病 (*neocosmospora*) (*Neocosmospora vasinfecta*)、黒点病 (*Diaporthe phaseolorum*)、茎腐爛病 (*stem canker*) (*Diaporthe phaseolorum var. caulivora*)、茎疫病 (*phytophthora rot*) (*Phytophthora megasperma*)、落葉病 (*brown stem rot*) (*Phialophora gregata*)、根茎腐敗病 (*pythium rot*) (*Pythium aphanidermatum, Pythium irregulare, Pythium debaryanum, Pythium myriotylum, Pythium ultimum*)、リゾクトニア根腐病 (*rhizoctonia root rot, stem decay, and damping-off*) (*Rhizoctonia solani*)、菌核病 (*sclerotinia stem decay*) (*Sclerotinia sclerotiorum*)、スクレロチニアサウザンブライト病 (*sclerotinia southern blight*) (*Sclerotinia rolfsii*)、チエラビオプシス根腐病 (*thielaviopsis root rot*) (*Thielaviopsis basicola*)。

20

30

#### 【0120】

好ましくは、ダイズの以下の病害を駆除 (combat) する :

・ 例えば以下のものに起因する、葉、茎 (stalk)、鞘及び種子の菌類病 :

アルテルナリア斑点病 (*alternaria leaf spot*) (*Alternaria spec. atrans tenuissima*)、炭疽病 (*Colletotrichum gloeosporoides dematium var. truncatum*)、褐紋病 (*brown spot*) (*Septoria glycines*)、紫斑病 (*cercospora leaf spot and blight*) (*Cercospora kikuchii*)、コアナホラ葉枯病 (*choanephora leaf blight*) (*Choanephora infundibulifera trispora* (Syn.))、ダクツリオホラ斑点病 (*dactuliophora leaf spot*) (*Dactuliophora glycines*)、べと病 (*Peronospora manshurica*)、ドレクスレラ胴枯病 (*drechslera blight*) (*Drechslera glycinii*)、斑点病 (*frogeye leaf spot*) (*Cercospora sojae*)、そばかす病 (*leptosphaerulina leaf spot*) (*Leptosphaerulina trifolii*)、灰星病 (*phyllosticta leaf*

40

50

spot) (*Phyllosticta sojaecola*)、黒点病 (pod and stem blight) (*Phomopsis sojae*)、うどんこ病 (*Microsphaera diffusa*)、ピレノカエタ斑点病 (*pyrenochaeta leaf spot*) (*Pyrenochaeta glycines*)、葉腐病 (*rhizoctonia aerial, foliage, and web blight*) (*Rhizoctonia solani*)、さび病 (*Phakopsora pachyrhizi*)、黒とう病 (*Sphaceloma glycines*)、ステムフィリウム葉枯病 (*stemphylium leaf blight*) (*Stemphylium botryosum*)、褐色輪紋病 (*Corynespora cassiicola*) ;

10

・ 例えば以下のものに起因する、根及び茎 (stem) 基部の菌類病 :  
 黒根腐病 (*Calonectria crotalariae*)、炭腐病 (*Macrophomina phaseolina*)、赤かび病 (*fusarium blight or wilt, root rot, and pod and collar rot*) (*Fusarium oxysporum, Fusarium orthoceras, Fusarium semitectum, Fusarium equiseti*)、ミコレプトジスキス根腐病 (*mycoleptodiscus root rot*) (*Mycoleptodiscus terrestris*)、根腐病 (*neocosmospora*) (*Neocosmopspora vasinfecta*)、黒点病 (*Diaporthe phaseolorum*)、茎腐爛病 (*stem canker*) (*Diaporthe phaseolorum var. caulivora*)、茎疫病 (*phytophthora rot*) (*Phytophthora megasperma*)、落葉病 (*brown stem rot*) (*Phialophora gregata*)、根茎腐敗病 (*pythium rot*) (*Pythium aphanidermatum, Pythium irregulare, Pythium debaryanum, Pythium myriotylum, Pythium ultimum*)、リゾクトニア根腐病 (*rhizoctonia root rot, stem decay, and damping-off*) (*Rhizoctonia solani*)、菌核病 (*sclerotinia stem decay*) (*Sclerotinia sclerotiorum*)、スクレロチニアサウザンブライト病 (*sclerotinia southern blight*) (*Sclerotinia rolfii*)、チエラビオプシス根腐病 (*thielaviopsis root rot*) (*Thielaviopsis basicola*)。

20

30

#### 【0121】

式 (I) で表される化合物は、さらにまた、植物において強力な強化効果 (strengthening effect) も示し得る。従って、それらは、望ましくない微生物による攻撃に対して植物の防御を動員させるために使用することができる。

#### 【0122】

本発明に関連して、植物を強化する (抵抗性を誘発する) 物質は、処理された植物が、その後で望ましくない微生物を接種されたときに、それらの微生物に対して高度な抵抗性を発揮するように、植物の防御システムを刺激することができる物質である。

40

#### 【0123】

さらに、本発明に関連して、植物の生理学的効果には、以下のものが包含される。

#### 【0124】

高温又は低温に対する耐性、渇水耐性及び渇水ストレス後の回復、水の利用効率 (これは、低減された水の消費に関連する)、浸水耐性、オゾンストレス及び紫外線に対する耐性、化学物質 (例えば、重金属、塩類、農薬など) に対する耐性を包含する、非生物学的ストレス耐性。

#### 【0125】

増強された菌類抵抗性、並びに、線虫類、ウイルス類及び細菌類に対する増強された抵

50

抗性を包含する、生物的ストレス耐性。本発明に関連して、生物的ストレス耐性は、好ましくは、増強された菌類抵抗性及び線虫類に対する増強された抵抗性を包含する。

【0126】

植物の健康/植物の質及び種子の活力、低減された立毛不良 (stand failure)、改善された外観、ストレス期間後の増強された回復、改善された着色 (例えば、葉緑素含有量、緑色維持効果 (stay-green effects) など) 及び改善された光合成効率を包含する、植物の強化された活力。

【0127】

この場合、望ましくない微生物は、植物病原性の菌類、細菌類及びウイルス類を意味するものと理解される。本発明による物質は、かくして、処理後ある一定の期間、上記有害な病原体による攻撃から植物を保護するために用いることができる。保護がもたらされる期間は、植物が該活性化化合物で処理されてから、一般に、1~10日間、好ましくは、1~7日間に及ぶ。

10

【0128】

植物病害を防除するために必要な濃度における該活性化化合物に対して植物が十分な耐性を示すという事実により、植物の地上部の処理、植物の繁殖器官 (propagation material) 及び種子の処理、並びに、土壌の処理が可能である。

【0129】

これに関連して、本発明による活性化化合物は、穀類の病害を防除するために、例えば、ブッシュア属各種に対して使用して、並びに、ブドウ栽培及び果実栽培及び野菜栽培における病害を防除するために、例えば、ボトリチス属各種 (Botrytis species)、ペントリリア属各種 (Venturia species) 又はアルテルナリア属各種 (Alternaria species) に対して使用して、特に良好な結果を得ることができる。

20

【0130】

本発明による活性化化合物は、作物の収量を増加させるのにも適している。さらに、それらは、毒性が低く、植物も十分な耐性を示す。

【0131】

本発明に従って、全ての植物及び植物の部分を処理することができる。ここで、植物というのは、望ましい及び望ましくない野生植物又は作物植物 (自然発生した作物植物を包含する) のような全ての植物及び植物個体群を意味するものと理解される。作物植物は、慣習的な育種法と最適化法によって、又は、生物工学的的方法と遺伝子工学的的方法によって、又は、それら方法を組み合わせたものによって得ることが可能な植物であることができる。そのような作物植物には、トランスジェニック植物も包含され、また、植物育種家の権利によって保護され得る植物品種も及び保護され得ない植物品種も包含される。植物の部分は、枝条、葉、花及び根などの、植物の地上及び地下の全ての部分及び全ての器官を意味するものと理解され、その例としては、葉、針状葉、茎、幹、花、子実体、果実及び種子、並びに、さらに、根、塊茎及び根茎などを挙げることができる。植物の部分には、さらに、収穫物、並びに、栄養繁殖器官及び生殖繁殖器官 (vegetative and generative propagation material)、例えば、挿木 (cutting)、塊茎、根茎、接ぎ穂 (slip) 及び種子なども包含される。

30

40

【0132】

本発明に従って処理することが可能な植物としては、以下のものを挙げることができる：  
ワタ、アマ、ブドウの木、果実、野菜、例えば、バラ科各種 (Rosaceae sp.) (例えば、仁果、例えば、リンゴ及びナシ、さらに、核果、例えば、アンズ、サクラの木、アーモンド及びモモ、並びに、小果樹、例えば、イチゴ)、リベシオイダエ科各種 (Ribesioideae sp.)、クルミ科各種 (Juglandaceae sp.)、カバノキ科各種 (Betulaceae sp.)、ウルシ科各種 (Anacardiaceae sp.)、ブナ科各種 (Fagaceae sp.)、クワ科各種 (Moraceae sp.)、モクセイ科各種 (Oleaceae sp.)、マタタビ

50

科各種 (Actinidaceae sp.)、クスノキ科各種 (Lauraceae sp.)、バショウ科各種 (Musaceae sp.) (例えば、バナナの木及びプランテーション)、アカネ科各種 (Rubiaceae sp.) (例えば、コーヒー)、ツバキ科各種 (Theaceae sp.)、アオギリ科各種 (Sterculiaceae sp.)、ミカン科各種 (Rutaceae sp.) (例えば、レモン、オレンジ及びグレープフルーツ)、ナス科各種 (Solanaceae sp.) (例えば、トマト)、ユリ科各種 (Liliaceae sp.)、キク科各種 (Asteraceae sp.) (例えば、レタス)、セリ科各種 (Umbelliferae sp.)、アブラナ科各種 (Cruciferae sp.)、アカザ科各種 (Chenopodiaceae sp.)、ウリ科各種 (Cucurbitaceae sp.) (例えば、キュウリ)、ネギ科各種 (Alliaceae sp.) (例えば、リーキ、タマネギ)、マメ科各種 (Papilionaceae sp.) (例えば、エンドウ); 主要作物植物、例えば、イネ科各種 (Gramineae sp.) (例えば、トウモロコシ、芝、禾穀類、例えば、コムギ、ライムギ、イネ、オオムギ、エンバク、アワ及びライコムギ)、キク科各種 (Asteraceae sp.) (例えば、ヒマワリ)、アブラナ科各種 (Brassicaceae sp.) (例えば、白キャベツ、赤キャベツ、ブロッコリー、カリフラワー、芽キャベツ、タイサイ、コールラビ、ラディッシュ、ナタネ、カラシナ、セイヨウワサビ、及び、コショウソウ)、マメ科各種 (Fabaceae sp.) (例えば、インゲンマメ、ピーナッツ)、マメ科各種 (Papilionaceae sp.) (例えば、ダイズ)、ナス科各種 (Solanaceae sp.) (例えば、ジャガイモ)、アカザ科各種 (Chenopodiaceae sp.) (例えば、テンサイ、飼料ビート、フダンソウ、ビートルート); 庭園及び樹木の茂った地域に関して有用な植物及び観賞植物; 及び、これら植物のそれぞれの遺伝子組み換えが行われた品種。

#### 【0133】

##### 抗真菌活性

さらに、本発明の式 (I) で表される化合物は、極めて優れた抗真菌効果も有している。それらは、極めて広い抗真菌活性スペクトルを有しており、特に、皮膚糸状菌、並びに、酵母菌、カビ及び二相性真菌類に対して (例えば、カンジダ属各種 (Candida species)、例えば、カンジダ・アルビカンス (Candida albicans)、カンジダ・グラブラタ (Candida glabrata) に対して)、並びに、エピデルモフィトン・フロコスム (Epidermophyton floccosum)、アスペルギルス属各種 (Aspergillus species)、例えば、アスペルギルス・ニゲル (Aspergillus niger) 及びアスペルギルス・フミガツス (Aspergillus fumigatus)、トリコフィトン属各種 (Trichophyton species)、例えば、トリコフィトン・メンタグロフィテス (Trichophyton mentagrophytes)、ミクロスポロン属各種 (Microsporon species)、例えば、ミクロスポロン・カニス (Microsporon canis) 及びミクロスポロン・アウドウイニイ (M. audouinii) などに対して、極めて広い抗真菌活性スペクトルを有している。これら菌類のリストは、包含される真菌スペクトルを決して限定するものではなく、単に例示的な性質のものである。

#### 【0134】

従って、本発明の式 (I) で表される活性成分は、医薬用途と非医薬用途の両方で使用することができる。

#### 【0135】

##### マイコトキシン

さらに、式 (I) で表される化合物は、収穫物並びにその収穫作物から作られる食料及び飼料におけるマイコトキシンの含有量を低減させることが可能である。マイコトキシンとしては、限定するものではないが、特に、以下のものを挙げることができる: デオキシニバレノール (DON)、ニバレノール、15-Ac-DON、3-Ac-DON、T2

- トキシン、HT2 - トキシン、フモニシン類、ゼアラレノン、モニリホルミン、フザリ  
ン、ジアセトキシシルベノール (DAS)、ベアウベリシン (beauvericin)、  
エンニアチン、フサロプロリフェリン (fusaroproliferin)、フサレ  
ノール (fusarenol)、オクラトキシン類、パツリン、エルゴットアルカロイド  
類及びアフラトキシン類〔これらは、例えば、以下の菌類によって産生され得る：とりわ  
け、フサリウム属各種 (Fusarium spec.)、例えば、フサリウム・アクミ  
ナツム (F. acuminatum)、フサリウム・アシアチクム (F. asiaticum)、フサリウム・アベナセウム (F. avenaceum)、フサリウム・ク  
ロオクウェレンセ (F. crookwellense)、フサリウム・クルモルム (F.  
culmorum)、フサリウム・グラミネアルム (F. graminearum) (ジベレラ・ゼアエ (Gibberella zeae))、フサリウム・エクイセチ  
(F. equiseti)、フサリウム・フジコロイ (F. fujikoroii)、  
フサリウム・ムサルム (F. musarum)、フサリウム・オキシスポルム (F.  
oxysporum)、フサリウム・プロリフェラツム (F. proliferatum)、フサリウム・ポアエ (F. poae)、フサリウム・プセウドグラミネアルム (F.  
pseudograminearum)、フサリウム・サムブシヌム (F. sambucinum)、フサリウム・シルピ (F. scirpi)、フサリウム・セミテ  
クツム (F. semitectum)、フサリウム・ソラニ (F. solani)、  
フサリウム・スポロトリコイデス (F. sporotrichoides)、フサリ  
ウム・ラングセチアエ (F. langsethiae)、フサリウム・スブグルチナンス  
(F. subglutinans)、フサリウム・トリシンクツム (F. tricin  
nctum)、フサリウム・ベルチシリオイデス (F. verticillioide  
s) など、及び、さらに、アスペルギルス属各種 (Aspergillus spec.  
)、例えば、アスペルギルス・フラブス (A. flavus)、アスペルギルス・バラ  
シチクス (A. parasiticus)、アスペルギルス・ノミウス (A. nom  
ius)、アスペルギルス・オクラセウス (A. ochraceus)、アスペルギル  
ス・クラバツス (A. clavatus)、アスペルギルス・テレウス (A. ter  
reus)、アスペルギルス・ベルシコロル (A. versicolor)、ペニシリ  
ウム属各種 (Penicillium spec.)、例えば、ペニシリウム・ベルコス  
ム (P. verrucosum)、ペニシリウム・ビリジカツム (P. viridi  
catum)、ペニシリウム・シトリヌム (P. citrinum)、ペニシリウム・  
エキスパンスム (P. expansum)、ペニシリウム・クラビホルメ (P. cl  
aviforme)、ペニシリウム・ロクエホルチ (P. roqueforti)、ク  
ラビセプス属各種 (Claviceps spec.)、例えば、クラビセプス・ブルプ  
レア (C. purpurea)、クラビセプス・フシホルミス (C. fusiform  
is)、クラビセプス・パスパリ (C. paspali)、クラビセプス・アフリカ  
ナ (C. africana)、スタキボトリス属各種 (Stachybotrys s  
pec.) など〕。

#### 【0136】

##### 材料物質の保護

式 (I) で表される化合物は、材料物質の保護において、植物病原性菌類による攻撃及  
び破壊に対して工業材料を保護するするために用いることもできる。

#### 【0137】

さらに、式 (I) で表される化合物は、単独で、又は、別の活性成分と組み合わせて、  
汚れ止め組成物として用いることもできる。

#### 【0138】

本発明に関連して、工業材料とは、工業において使用するために準備された無生物材料  
を意味するものと理解される。例えば、本発明の組成物で微生物による変性又は破壊から  
保護することが意図されている工業材料は、接着剤、膠、紙、壁紙及び厚紙/板紙、織物  
、カーペット、皮革、木材、繊維及び薄織物、塗料及びプラスチック製品、冷却用潤滑油

10

20

30

40

50

、並びに、微生物によって感染又は破壊され得る別の材料などであり得る。微生物の増殖により損なわれ得る建造物及び製造プラントの部品、例えば、冷却水循環路、冷却装置及び暖房装置、並びに、換気装置及び空調設備なども、保護すべき材料の範囲内のものとして挙げることができる。本発明の範囲内における工業材料としては、好ましくは、接着剤、サイズ、紙及び厚紙、皮革、木材、塗料、冷却用潤滑油及び熱媒液などを挙げることができる、さらに好ましくは、木材を挙げることができる。

【0139】

式(I)で表される化合物は、腐朽、腐敗、変色、脱色又は黴発生などの、悪影響を防止することができる。

【0140】

木材を処理する場合、式(I)で表される化合物は、材木の表面又は内部で増殖するであろう菌類病に対しても使用することができる。用語「材木(timber)」は、全ての種類の木材、そのような木材を建築用に加工した全てのタイプのもの、例えば、ソリッドウッド、高密度木材、積層木材及び合板などを意味する。本発明による材木の処理方法は、主に、本発明の本発明の組成物を接触させることにより行う。これには、例えば、直接的な塗布、噴霧、浸漬、注入、又は、別の適切な任意の方法が包含される。

【0141】

さらにまた、式(I)で表される化合物は、海水又は淡海水と接触するもの(特に、船体、障壁(screen)、網、建造物、係船設備及び信号システム)を付着物に対して保護するために使用することもできる。

【0142】

式(I)で表される化合物は、貯蔵品を保護するために使用することもできる。貯蔵品は、長期間の保護が望まれる、植物若しくは動物起源の天然物質又は自然起源のそれら天然物質の加工製品を意味するものと理解される。植物起源の貯蔵品、例えば、植物若しくは植物の分部、例えば、茎、葉、塊茎、種子、果実、穀粒などは、新たに収穫された状態で保護することができるか、又は、(予備)乾燥、加湿、粉碎、摩砕、加圧成形又は焙焼によって加工された後で保護することができる。貯蔵品には、さらに、未加工の木材(例えば、建築用木材、電柱及び柵)又は完成品の形態にある木材(例えば、家具)の両方とも包含される。動物起源の貯蔵品は、例えば、皮革、革製品、毛皮及び獣毛などである。本発明の組成物は、腐朽、腐敗、変色、脱色又は黴発生などの、不利な効果を防止することができる。

【0143】

工業材料を劣化又は変性させることができる微生物としては、例えば、細菌類、菌類、酵母類、藻類及び粘菌類(slime organisms)などを挙げることができる。式(I)で表される化合物は、好ましくは、菌類、特に、カビ類、材木を変色させる菌類及び材木を破壊する菌類(子囊菌類(Ascomycetes)、担子菌類(Basidiomycetes)、不完全菌類(Deuteromycetes)及び接合菌類(Zygomycetes)、並びに、粘菌類(slime organisms)及び藻類に対して作用する。以下の属の微生物を例として挙げることができる: アルテルナリア(Alternaria)、例えば、アルテルナリア・テヌイス(Alternaria tenuis); アスペルギルス(Aspergillus)、例えば、アスペルギルス・ニゲル(Aspergillus niger); カエトミウム(Chaetomium)、例えば、カエトミウム・グロボスム(Chaetomium globosum); コニオホラ(Coniophora)、例えば、コニオホラ・プエタナ(Coniophora puetana); レンチヌス(Lentinus)、例えば、レンチヌス・チグリヌス(Lentinus tigrinus); ペニシリウム(Penicillium)、例えば、ペニシリウム・グラウクム(Penicillium glaucum); ポリポルス(Polyporus)、例えば、ポリポルス・ベルシコロル(Polyporus versicolor); アウレオバシジウム(Aureobasidium)、例えば、アウレオバシジウム・ブルランス(Aureob

10

20

30

40

50



asidium pullulans); スクレロホマ (Sclerophoma)、例えば、スクレロホマ・ピチオフィラ (Sclerophoma pityophila); トリコデルマ (Trichoderma)、例えば、トリコデルマ・ビリデ (Trichoderma viride); オフィオストマ属種 (Ophiostoma spp.)、セラトシスチス属種 (Ceratocystis spp.)、フミコラ属種 (Humicola spp.)、ペトリエラ属種 (Petriella spp.)、トリクルス属種 (Trichurus spp.)、コリオルス属種 (Coriolus spp.)、グロエオフィルム属種 (Gloeophyllum spp.)、プレウロツス属種 (Pleurotus spp.)、ポリア属種 (Poria spp.)、セルブラ属種 (Serpula spp.) 及びチロミセス属種 (Tyromyces spp.)、クラドスポリウム属種 (Cladosporium spp.)、パエシロミセス属種 (Paecilomyces spp.)、ムコル属種 (Mucor spp.)、エシェリキア (Escherichia)、例えば、エシェリキア・コリ (Escherichia coli); シュードモナス (Pseudomonas)、例えば、シュードモナス・アエルギノサ (Pseudomonas aeruginosa); スタフィロコッカス (Staphylococcus)、例えば、スタフィロコッカス・アウレウス (Staphylococcus aureus)、カンジダ属種 (Candida spp.) 及びサッカロミセス属種 (Saccharomyces spp.)、例えば、サッカロミセス・セレビスエ (Saccharomyces cerevisiae)。

10

20

#### 【0144】

##### 製剤

本発明は、さらに、式 (I) で表される化合物のうちの少なくとも1種類を含んでいる、望ましくない微生物を防除するための組成物にも関する。該組成物は、好ましくは、農業上適切な補助剤、溶媒、担体、界面活性剤又は増量剤を含んでいる殺菌剤組成物である。用語「組成物」は、農薬製剤を包含する。

#### 【0145】

本発明によれば、担体は、特に植物又は植物の部分又は種子への施用に関して、適用性を良好にするために、当該活性成分と混合させるか又は組み合わせる天然又は合成の有機物質又は無機物質である。このような担体は、固体又は液体であり得るが、一般に、不活性であり、そして、農業において使用するのに適しているべきである。

30

#### 【0146】

有用な固体担体としては、例えば、アンモニウム塩、及び、天然岩粉、例えば、カオリン、クレー、タルク、チョーク、石英、アタパルジャイト、モンモリロナイト又はケイ藻土、及び、合成岩粉、例えば、微粉化シリカ、アルミナ及びシリケートなどがあり; 粒剤に対して有用な固体担体としては、例えば、粉碎して分別した天然岩石、例えば、方解石、大理石、軽石、海泡石及び苦灰岩、並びに、さらに、無機及び有機の粉末からなる合成顆粒や、有機材料、例えば、紙、おがくず、ココナッツ殻、トウモロコシ穂軸及びタバコの葉柄などからなる顆粒などがあり; 有用な乳化剤及び/又は泡形成剤としては、例えば、非イオン性及びアニオン性の乳化剤、例えば、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレン脂肪アルコールエーテル類、例えば、アルキルアリールポリグリコールエーテル類、アルキルスルホネート類、アルキルスルフェート類、アリールスルホネート類、及び、さらに、タンパク質加水分解物などがあり; 適切な分散剤は、非イオン性及び/又はイオン性の物質、例えば、アルコール - POE 及び/又は - POP エーテル類、酸及び/又は POP - POE エステル類、アルキルアリール及び/又は POP - POE エーテル類、脂肪及び/又は POP - POE 付加体、POE - 及び/又は POP - ポリオール誘導体、POE - 及び/又は POP - ソルビタン若しくは糖付加体、アルキル若しくはアリールのスルフェート類、アルキル若しくはアリールのスルホネート類及びアルキル若しくはアリールのホスフェート類又はそれらの対応する PO - エーテル付加体の類から選ばれたものである。さらにまた、適しているものは、オリゴマー又はポリマー、例

40

50

えば、ビニルモノマーから誘導されたもの、アクリル酸から誘導されたもの、EO及び／又はPOの単独又は例えば（ポリ）アルコール類若しくは（ポリ）アミン類と組み合わせたものから誘導されたものである。さらに、リグニン及びそのスルホン酸誘導体、未変性セルロース及び変性セルロース、芳香族及び／又は脂肪族スルホン酸並びにそれらのホルムアルデヒドとの付加体なども使用することができる。

#### 【0147】

上記活性成分は、溶液剤、エマルジョン剤、水和剤、水性懸濁液剤、油性懸濁液剤、粉末剤（powders）、粉剤（dusts）、ペースト剤、可溶性粉末剤、可溶性顆粒剤、ばらまき用顆粒剤、サスポエマルジョン製剤、活性成分を含浸させた天然産物、活性成分を含浸させた合成物質、肥料、及び、さらに、ポリマー物質中にマイクロカプセル化したもののような、慣習的な製剤に変換することができる。

10

#### 【0148】

本発明の活性成分は、それだけでも施用することが可能であり、また、その製剤の形態又はその製剤の形態から調製された使用形態、例えば、即時使用可能な（ready-to-use）溶液剤、エマルジョン剤、水性懸濁液剤、油性懸濁液剤、粉末剤（powders）、水和剤、ペースト剤、可溶性粉末剤、粉剤（dusts）、可溶性顆粒剤、ばらまき用顆粒剤、サスポエマルジョン製剤、活性成分を含浸させた天然産物、活性成分を含浸させた合成物質、肥料、及び、さらに、ポリマー物質中にマイクロカプセル化したものなどの形態でも施用することができる。施用は、慣習的な方法で、例えば、灌水、散布、噴霧、ばらまき、散粉、泡状散布（foaming）、塗布（spreading-on）などにより行う。さらに、本発明の活性成分は、微量散布法により施用することも可能であり、又は、該活性成分の調製物／活性成分自体を土壌に注入することも可能である。植物の種子を処理することも可能である。

20

#### 【0149】

上記製剤は、自体公知の方法で、例えば、該活性成分を少なくとも１種類の慣習的な増量剤、溶媒若しくは希釈剤、乳化剤、分散剤、及び／又は、結合剤若しくは固定剤、湿潤剤、撥水剤と混合させ、適切な場合には、さらに、乾燥剤及び紫外線安定剤と混合させ、適切な場合には、さらに、染料及び顔料、消泡剤、防腐剤、第２の増粘剤、固着剤、ジベレリン類、並びに、さらに、別の加工助剤と混合させることにより、調製することができる。

30

#### 【0150】

本発明は、適切な装置を用いて植物又は種子に対して使用（deploy）可能で且つ既に使用できる状態にある製剤のみではなく、使用前に水で希釈することが必要な商業的な濃厚物も包含する。

#### 【0151】

式（I）で表される化合物は、それだけで、又は、その（商業用）製剤中に、及び、そのような製剤から調製された使用形態中に、殺虫剤、誘引剤、不妊剤、殺細菌剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、成長調節剤、除草剤、肥料、薬害軽減剤及び／又は情報化学物質などの別の（既知）活性成分との混合物として、存在させることができる。

#### 【0152】

使用する補助剤は、当該組成物自体及び／又はそれから誘導された調製物（例えば、散布液、種子粉衣）に、特定の特性、例えば、特定の技術的特性及び／又は特定の生物学的特性などを付与するのに適している物質であり得る。典型的な補助剤としては、増量剤、溶媒及び担体などがある。

40

#### 【0153】

適切な増量剤は、例えば、水、並びに、極性及び非極性の有機化学的液体、例えば、以下の種類から選択されるものである：芳香族及び非芳香族の炭化水素類（例えば、パラフィン類、アルキルベンゼン類、アルキルナフタレン類、クロロベンゼン類）、アルコール類及びポリオール類（これらは、場合により、置換されていてもよく、エーテル化されていてもよく、及び／又は、エステル化されていてもよい）、ケトン類（例えば、アセトン

50

、シクロヘキサノン）、エステル類（これは、脂肪類及び油類を包含する）及び（ポリ）エーテル類、置換されていない及び置換されているアミン類、アミド類、ラクタム類（例えば、N-アルキルピロリドン類）及びラクトン類、スルホン類及びスルホキシド類（例えば、ジメチルスルホキシド）。

【0154】

液化ガス増量剤又は担体は、標準温度及び標準圧下では気体である液体、例えば、エーロゾル噴射剤、例えば、ハロ炭化水素類、又は、ブタン、プロパン、窒素及び二酸化炭素などであることを意味するものと理解される。

【0155】

上記製剤において、粘着性付与剤、例えば、カルボキシメチルセルロース、並びに、粉末又は顆粒又はラテックスの形態にある天然ポリマー及び合成ポリマー、例えば、アラビアゴム、ポリビニルアルコール及びポリ酢酸ビニル、又は、天然のリン脂質、例えば、セファリン及びレシチン、及び、合成リン脂質などを使用することができる。さらなる添加剤は、鉱油及び植物油であり得る。

【0156】

使用する増量剤が水である場合、例えば有機溶媒を補助溶媒として使用することもできる。有用な液体溶媒は、本質的に、芳香族化合物、例えば、キシレン、トルエン又はアルキルナフタレン類、塩素化芳香族化合物又は塩素化脂肪族炭化水素、例えば、クロロベンゼン類、クロロエチレン類又は塩化メチレン、脂肪族炭化水素、例えば、シクロヘキサノン又はパラフィン類、例えば、石油留分、アルコール類、例えば、ブタノール又はグリコールとそれらのエーテル及びエステル、ケトン類、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン又はシクロヘキサノン、強極性溶媒、例えば、ジメチルホルムアミド及びジメチルスルホキシドなどであり、又は、水も適している。

【0157】

式（I）で表される化合物を含んでいる組成物には、さらに、例えば界面活性剤などの、さらなる成分も含有させることができる。適切な界面活性剤は、イオン特性若しくは非イオン特性を有する乳化剤及び／若しくは泡形成剤、分散剤又は湿潤剤であるか、又は、そのような界面活性剤の混合物である。それらの例は、以下のものである：ポリアクリル酸の塩、リグノスルホン酸の塩、フェノールスルホン酸若しくはナフタレンスルホン酸の塩、エチレンオキシドと脂肪アルコールの重縮合物若しくはエチレンオキシドと脂肪酸の重縮合物若しくはエチレンオキシドと脂肪アミンの重縮合物、置換されているフェノール（好ましくは、アルキルフェノール又はアリールフェノール）、スルホコハク酸エステルの塩、タウリン誘導体（好ましくは、アルキルタウレート）、ポリエトキシ化アルコールのリン酸エステル若しくはポリエトキシ化フェノールのリン酸エステル、ポリオール脂肪酸エステル、並びに、硫酸アニオン、スルホン酸アニオン及びリン酸アニオンを含んでいる該化合物の誘導体、例えば、アルキルアリールポリグリコールエーテル類、アルキルスルホネート類、アルキルスルフェート類、アリールスルホネート類、タンパク質加水分解物、リグノスルファイト廃液及びメチルセルロースなど。該活性成分のうちの1種類及び／又は該不活性担体のうちの1種類が水不溶性であり且つ施用が水で行われる場合は、界面活性剤を存在させることが必要である。界面活性剤の割合は、本発明組成物の5重量％～40重量％である。

【0158】

着色剤、例えば、無機顔料、例えば、酸化鉄、酸化チタン及びプルシアンブルー（Prussian Blue）、並びに、有機染料、例えば、アリザリン染料、アゾ染料及び金属フタロシアニン染料、並びに、微量栄養素、例えば、鉄塩、マンガン塩、ホウ素塩、銅塩、コバルト塩、モリブデン塩及び亜鉛塩などを使用することができる。

【0159】

さらなる添加剤は、芳香物質、場合により改質されていてもよい鉱油又は植物油、蝋、並びに、栄養素（微量栄養素を包含する）、例えば、鉄塩、マンガン塩、ホウ素塩、銅塩、コバルト塩、モリブデン塩及び亜鉛塩などである。

## 【0160】

さらなる成分は、安定剤（例えば、低温安定剤）、防腐剤、酸化防止剤、光安定剤、又は、化学的及び／若しくは物理的安定性を向上させる別の作用剤であり得る。

## 【0161】

適切な場合には、付加的な別の成分、例えば、保護コロイド、結合剤、粘着剤、増粘剤、揺変性物質、浸透剤、安定化剤、金属イオン封鎖剤、錯体形成物質（complex former）なども存在させることができる。一般的に、該活性成分は、製剤目的で通常使用される固体又は液体の任意の添加剤と組み合わせることが可能である。

## 【0162】

該製剤は、一般に、0.05～99重量％、0.01～98重量％、好ましくは、0.1～95重量％、さらに好ましくは、0.5～90重量％の活性成分を含有し、最も好ましくは、10～70重量％の活性成分を含有する。

10

## 【0163】

上記製剤は、望ましくない微生物を防除するために使用することが可能であり、その際、式（I）で表される化合物を含んでいる組成物は、当該微生物及び／又はそれらの生息環境に施用される。

## 【0164】

種子処理

本発明は、さらに、種子を処理する方法も包含する。

## 【0165】

20

本発明のさらなる態様は、特に、式（I）で表される化合物のうちの少なくとも1種類で処理された種子（休眠状態にあるか、プライミングされているか、催芽されている（pregerminated）か、又は、根及び葉が出現していてもよい）に関する。本発明による種子は、有害な植物病原性菌類から種子及びその種子から発生する植物を保護するための方法において使用される。これらの方法においては、本発明による少なくとも1種類の活性成分で処理された種子を使用する。

## 【0166】

式（I）で表される化合物は、種子及び幼植物を処理するのに適している。有害な生物に起因する作物植物に対する被害の大部分は、播種前又は植物の発芽後において、種子が感染することによって起こる。この相は特に危険である。それは、生長している植物の根及び苗条は特に感受性が高く、少量の損傷であってもその植物が死に至り得るからである。従って、適切な組成物を用いて種子及び発芽中の植物を保護することに、大きな関心が持たれている。

30

## 【0167】

さらに、使用する活性成分によって植物自体に損傷を与えることなく、植物病原性菌類による攻撃から種子、発芽中の植物及び発生した幼植物が最良に保護され得るように、使用する活性成分の量を最適化することも望ましい。特に、種子を処理する方法では、最少量の作物保護組成物を使用して種子及び発芽中の植物の最適な保護を達成するために、トランスジェニック植物の内因性の表現型も考慮に入れるべきである。

## 【0168】

40

従って、本発明は、害虫及び／又は有害な植物病原性微生物による攻撃に対して種子、発芽中の植物及び発生した幼植物を保護する方法にも関し、ここで、該方法は、当該種子を本発明の組成物で処理することによる。本発明は、さらに、種子、発芽中の植物及び発生した幼植物を害虫及び／又は植物病原性微生物から保護するために種子を処理するための本発明の組成物の使用にも関する。本発明は、さらに、害虫及び／又は植物病原性微生物から保護するために、本発明の組成物で処理された種子にも関する。

## 【0169】

本発明の有利な点の1つは、そのような組成物で種子を処理することにより、害虫及び／又は有害な植物病原性微生物から、その種子自体が保護されるのみではなく、出芽後に生じる植物も保護されるということである。このようにして、播種時又は播種後間もなく

50

の作物の即時的な処理及び播種前の種子処理によって、植物が保護される。さらにまた、本発明の活性成分又は組成物が、特に、トランスジェニック種子に対しても使用可能である（その場合、当該種子から生長した植物は、害虫、除草剤による損傷又は非生物的ストレスに対して作用するタンパク質を発現することができる）ということも、有利な点として見なされる。そのような種子を本発明の活性成分又は組成物で処理することによって（例えば、殺虫性タンパク質）、特定の害虫を防除することが可能である。驚くべきことに、この場合、さらなる相乗効果が観察され得る。そのような相乗効果は、害虫による攻撃、雑草又は非生物的ストレスに対する保護の有効性をさらに増大させる。

#### 【0170】

式（I）で表される化合物は、農業において、温室内で、森林で又は園芸において使用される全ての植物品種の種子を保護するのに適している。特に、該種子は、禾穀類（例えば、コムギ、オオムギ、ライムギ、アワ及びエンバク）、ナタネ、トウモロコシ、ワタ、ダイズ、イネ、ジャガイモ、ヒマワリ、インゲンマメ、コーヒー、ビート（例えば、テンサイ及び飼料用ビート）、ラッカセイ、野菜（例えば、トマト、キュウリ、タマネギ及びレタス）、芝及び観賞植物の種子である。特に重要なのは、コムギ、ダイズ、ナタネ、トウモロコシ及びイネの種子を処理することである。

#### 【0171】

以下でも記載されているように、本発明の活性成分又は組成物によるトランスジェニック種子の処理は、特に重要である。これは、例えば殺虫特性を有する、ポリペプチド又はタンパク質の発現を可能とする少なくとも1種類の異種遺伝子を含んでいる植物の種子に関する。トランスジェニック種子内のそのような異種遺伝子は、例えば、バシルス（*Bacillus*）種、リゾビウム（*Rhizobium*）種、シュードモナス（*Pseudomonas*）種、セラチア（*Serratia*）種、トリコデルマ（*Trichoderma*）種、クラビバクテル（*Clavibacter*）種、グロムス（*Glomus*）種又はグリオクラジウム（*Gliocladium*）種の微生物に由来し得る。これらの異種遺伝子は、好ましくは、バシルス属種（*Bacillus* sp.）に由来し、この場合、その遺伝子産物は、アワノメイガ（European corn borer）及び／又はウェスタンコーンルートワーム（Western corn rootworm）に対して有効である。該異種遺伝子は、特に好ましくは、バシルス・ツリングエンシス（*Bacillus thuringiensis*）に由来する。

#### 【0172】

本発明に関連して、本発明の組成物は、種子に対して、単独で施用するか、又は、適切な製剤中に含ませて施用する。好ましくは、種子は、処理中に損傷が生じないように十分なほど安定な状態で処理する。一般に、種子は、収穫と播種の間の任意の時点で処理することができる。慣習的に、植物から分離されていて、穂軸、殻、葉柄、外皮、被毛又は果肉を伴っていない種子を処理する。例えば、収穫され、不純物が取り除かれ、及び、含水量が15重量%未満となるまで乾燥された種子を使用することができる。あるいは、乾燥後に、例えば水で処理され、その後再度乾燥された種子、又は、ブライミングをされた直後の種子、又は、ブライミング状態で貯蔵された種子、又は、催芽された種子、又は、苗床トレイ若しくは苗床テープ若しくは苗床紙に播種された種子を、使用することも可能である。

#### 【0173】

種子を処理する場合、種子の発芽が悪影響を受けないように、又は、種子から生じた植物が損傷を受けないように、一般に、種子に施用する本発明組成物の量及び／又はさらなる添加剤の量を確実に選択しなくてはならない。このことは、とりわけ、特定の施用量で薬害作用を示し得る活性成分の場合には、保証しなくてはならない。

#### 【0174】

式（I）で表される化合物は、直接的に施用することが、即ち、別の成分を含ませることなく、また、希釈することなく、施用することが可能である。一般に、該組成物は、適切な製剤の形態で種子に施用するのが好ましい。種子を処理するための適切な製剤及び方

法は、当業者には知られている。式(I)で表される化合物は、種子施用(on-seed application)に関連した慣習的な製剤、例えば、溶液剤、エマルジョン剤、懸濁液剤、粉末剤、泡剤、スラリー剤、又は、種子用の別のコーティング組成物(例えば、フィルム形成性材料、ペレット化材料、微細鉄粉(fine iron)若しくは別の金属粉、顆粒、不活性化種子用のコーティング材料)と組み合わせられたもの、及び、さらに、ULV製剤などに変換することができる。

【0175】

これらの製剤は、既知方法で、活性成分又は活性成分組合せを、慣習的な添加剤、例えば、慣習的な増量剤、及び、溶媒又は希釈剤、着色剤、湿潤剤、分散剤、乳化剤、消泡剤、防腐剤、第2の増粘剤、粘着剤、ジベレリン類などと混合させ、及び、さらに、水と混合させることによって、調製する。

10

【0176】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる有用な着色剤は、そのような目的に関して慣習的な全ての着色剤である。水中であまり溶解しない顔料と水中で溶解する染料のいずれも使用することができる。その例としては、「Rhodamin B」、「C.I. Pigment Red 112」及び「C.I. Solvent Red 1」の名称で知られている着色剤などを挙げることができる。

【0177】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる有用な湿潤剤は、農薬活性成分の製剤に関して慣習的に使用される、湿潤を促進する全ての物質である。好ましくは、アルキルナフタレンスルホネート類、例えば、ジイソプロピルナフタレンスルホネート又はジイソブチルナフタレンスルホネートなどを使用することができる。

20

【0178】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる有用な分散剤及び/又は乳化剤は、農薬活性成分の製剤に関して慣習的に使用される非イオン性、アニオン性及びカチオン性の全ての分散剤である。好ましくは、非イオン性若しくはアニオン性の分散剤又は非イオン性若しくはアニオン性の分散剤の混合物を使用することができる。有用な非イオン性分散剤としては、特に、エチレンオキシド/プロピレンオキシドブロックコポリマー類、アルキルフェノールポリグリコールエーテル類及びトリスチリルフェノールポリグリコールエーテル類、並びに、それらのリン酸化誘導体又は硫酸化誘導体などを挙げることができる。適しているアニオン性分散剤は、特に、リグノスルホネート類、ポリアクリル酸塩類及びアリアルスルホネート/ホルムアルデヒド縮合物である。

30

【0179】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる消泡剤は、農薬活性成分の製剤に関して慣習的に使用される全ての泡抑制物質である。好ましくは、シリコーン消泡剤及びステアリン酸マグネシウムを使用することができる。

【0180】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる防腐剤は、農薬組成物中で当該目的のために使用することが可能な全ての物質である。例として、ジクロロフェン及びベンジルアルコールヘミホルマルなどを挙げることができる。

40

【0181】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる第2の増粘剤は、農薬組成物中で当該目的のために使用することが可能な全ての物質である。好ましい例としては、セルロース誘導体、アクリル酸誘導体、キサンタン、変性クレー及び微粉化シリカなどを挙げることができる。

【0182】

本発明に従って使用することが可能な種子粉衣製剤中に存在させることができる粘着剤は、種子粉衣製品中で使用可能な全ての慣習的な結合剤である。好ましい例としては、ポ

50

リビニルピロリドン、ポリ酢酸ビニル、ポリビニルアルコール及びチロースなどを挙げる  
ことができる。

【0183】

本発明に従って使用することが可能な種子施用用製剤は、広い範囲のさまざまな種類の  
種子を処理するために、直接的に使用することができるか、又は、予め水で希釈したあと  
で使用することができる。例えば、濃厚製剤 (concentrate) 又は水で希釈す  
ることによって濃厚製剤から得ることができる調製物は、禾穀類、例えば、コムギ、オオ  
ムギ、ライムギ、エンバク及びライコムギなどの種子を粉衣するのに使用可能であり、並  
びに、さらに、トウモロコシ、ダイズ、イネ、ナタネ、エンドウマメ、インゲンマメ、ワ  
タ、ヒマワリ及びビートの種子を粉衣するのに使用可能であり、又は、広い範囲のさまざ  
10 まな野菜の種子を粉衣するのに使用可能である。本発明に従って使用することが可能な該  
製剤又はそれらの希釈された調製物は、トランスジェニック植物の種子に対しても使用す  
ることが可能である。この場合、発現により形成された物質との相互作用において、付加  
的な相乗効果が生じることもあり得る。

【0184】

本発明に従って使用することが可能な該製剤又は水を添加することによってその製剤か  
ら調製された調製物を用いて種子を処理する場合、種子施用に関して慣習的に使用可能な  
全ての混合装置が有用である。具体的には、種子施用における手順は、種子を混合機の中  
に入れること、所望される特定量の該製剤を、そのまま添加するか又は予め水で希釈し  
たあとで添加すること、及び、施用された全ての製剤が当該種子の表面に均質に分配され  
20 るまで全てを混合させることである。適切な場合には、続いて乾燥工程を行う。

【0185】

本発明に従って使用することが可能な該製剤の施用量は、比較的広い範囲内で変えるこ  
とができる。それは、当該製剤中の活性成分の特定の含有量及び種子に左右される。それ  
ぞれの単独の活性成分の施用量は、一般に、種子 1 kg 当たり 0.001 ~ 15 g であり  
、好ましくは、種子 1 kg 当たり 0.01 ~ 5 g である。

【0186】

G M O s

上記で既に述べたように、本発明に従って、全ての植物及びそれらの部分を処理するこ  
とができる。好ましい実施形態では、野生の植物種及び植物品種、又は、交雑若しくはプ  
30 ロトプラスト融合のような慣習的な生物学的育種法により得られた植物種及び植物品種、  
並びに、それらの部分を処理する。好ましいさらなる実施形態では、適切な場合には慣習  
的な方法と組み合わせた遺伝子工学的的方法により得られたトランスジェニック植物及び植  
物品種 (遺伝子組換え生物) 及びそれらの部分を処理する。用語「部分 (parts)」  
又は「植物の部分 (parts of plants)」又は「植物の部分 (plant  
parts)」については、既に上記で説明した。さらに好ましくは、市販されている  
か又は使用されている植物品種の植物を、本発明に従って処理する。植物品種は、慣習  
的な育種又は突然変異誘発又は組換え DNA 技術によって得られた、新しい特性 (「形質」  
) を有する植物を意味するものと理解される。これらは、品種、変種、生物型又は遺伝子  
40 型であることができる。

【0187】

本発明による処理方法は、遺伝子組換え生物 (GMO) (例えば、植物又は種子) の処  
理において使用することができる。遺伝子組換え植物 (又は、トランスジェニック植物)  
は、異種遺伝子がゲノムに安定的に組み込まれている植物である。表現「異種遺伝子」は  
、本質的に、供給されたか又は当該植物の外部で構築された遺伝子であって、核のゲノム  
、葉緑体のゲノム又はミトコンドリアのゲノムの中に導入されたときに、興味深いタンパ  
ク質若しくはポリペプチドを発現することにより、又は、その植物内に存在している別の  
1つ若しくは複数の遺伝子をダウンレギュレート若しくはサイレンシングすることにより  
、当該形質転換された植物に新しい又は改善された作物学的特性又は別の特性を付与する  
50 遺伝子を意味する (例えば、アンチセンス技術、コサプレッション技術、RNA干渉 (R

NAi) 技術又はミクロRNA (miRNA) 技術などを使用する)。ゲノム内に位置している異種遺伝子は、導入遺伝子とも称される。植物ゲノム内におけるその特異的な位置によって定義される導入遺伝子は、形質転換又は遺伝子導入イベントと称される。

【0188】

本発明に従って処理するのが好ましい植物及び植物品種は、特に有利で有益な形質を植物に付与する遺伝物質を有している全ての植物（育種によって得られたものであろうと、及び/又は、生物工学的な方法によって得られたものであろうと）を包含する。

【0189】

本発明に従って処理するのが同様に好ましい植物及び植物品種は、1以上の生物学的ストレスに対して抵抗性を示す。即ち、そのような植物は、害虫及び有害微生物に対して、例えば、線虫類、昆虫類、ダニ類、植物病原性の菌類、細菌類、ウイルス類及び/又はウイロイド類などに対して、良好な防御を示す。

10

【0190】

本発明に従って同様に処理し得る植物及び植物品種は、1以上の非生物学的ストレスに対して抵抗性を示す植物である。非生物学的なストレス状態としては、例えば、渇水、低温に晒されること、熱に晒されること、浸透ストレス、湛水、土壌中の塩分濃度の上昇、より多くの鉱物に晒されること、オゾンに晒されること、強い光に晒されること、利用可能な窒素養分が限られていること、利用可能なリン養分が限られていること、日陰回避などを挙げることができる。

【0191】

20

本発明に従って同様に処理し得る植物及び植物品種は、増大した収量特性を特徴とする植物である。そのような植物における増大した収量は、例えば、改善された植物の生理機能、生長及び発育、例えば、水の利用効率、水の保持効率、改善された窒素の利用性、強化された炭素同化作用、改善された光合成、上昇した発芽効率及び促進された成熟などの結果であり得る。収量は、さらに、改善された植物の構成 (architecture) によっても影響され得る（ストレス条件下及び非ストレス条件下）。そのような改善された植物の構成としては、限定するものではないが、早咲き、ハイブリッド種子産生のための開花制御、実生の活力、植物の寸法、節間の数及び距離、根の成長、種子の寸法、果実の寸法、莢の寸法、莢又は穂の数、1つの莢又は穂当たりの種子の数、種子の体積、強化された種子充填、低減された種子分散、低減された莢の裂開及び耐倒伏性などがある。収量についてのさらなる形質としては、種子の組成、例えば、炭水化物の含有量及び組成（例えば、ワタ）、又は、デンプン、タンパク質含有量、油の含有量及び組成、栄養価、抗栄養化合物の低減、改善された加工性並びに向上した貯蔵安定性などがある。

30

【0192】

本発明に従って処理し得る植物は、雑種強勢（これは、結果として、一般に、増加した収量、向上した活力、向上した健康状態並びに生物学的及び非生物学的ストレスに対する向上した抵抗性をもたらす）の特性を既に呈しているハイブリッド植物である。

【0193】

本発明に従って処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、除草剤耐性植物、即ち、1種類以上の所与の除草剤に対して耐性にされた植物である。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、当該除草剤耐性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。

40

【0194】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、昆虫抵抗性トランスジェニック植物、即ち、特定の標的昆虫による攻撃に対して抵抗性にされた植物である。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような昆虫抵抗性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。

【0195】

50



本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、非生物学的ストレスに対して耐性を示す。そのような植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのようなストレス抵抗性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。

【0196】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得られたもの）は、収穫された生産物の改変された量、品質及び／若しくは貯蔵安定性、並びに／又は、収穫された生産物の特定の成分の改変された特性を示す。

【0197】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得ることができるもの）は、改変された繊維特性を有する植物（例えば、ワタ植物）である。そのよう植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような改変された繊維特性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。

【0198】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得ることができるもの）は、改変されたオイルプロファイル特性を有する植物（例えば、ナタネ植物又は関連するアブラナ属植物）である。そのよう植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような改変されたオイルプロファイル特性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。

【0199】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得ることができるもの）は、改変された種子脱粒特性を有する植物（例えば、ナタネ植物又は関連するアブラナ属植物）である。そのよう植物は、遺伝的形質転換によって得ることができるか、又は、そのような改変された種子脱粒特性を付与する突然変異を含んでいる植物を選抜することによって得ることができる。そのような植物としては、種子の脱粒が遅延されているか又は低減されている植物（例えば、ナタネ植物）などがある。

【0200】

本発明に従って同様に処理し得る植物又は植物品種（遺伝子工学などの植物バイオテクノロジー法によって得ることができるもの）は、翻訳後タンパク質修飾パターンが改変されている植物（例えば、タバコ植物）である。

【0201】

施用量

式（I）で表される化合物を殺菌剤として使用する場合、その施用量は、施用の種類に応じて、比較的広い範囲内で変えることができる。本発明の活性成分の施用量は、以下のとおりである：

・ 植物の部分、例えば、葉を処理する場合： 0.1～10000 g / ha、好ましくは、10～1000 g / ha、さらに好ましくは、20～200 g / ha（灌水又は滴下によって施用する場合、特に、ロックウール又はパーライトなどの不活性底土を用いる場合には、上記施用量はさらに低減させることができる）；

・ 種子を処理する場合： 種子100 kg 当たり0.1～200 g、好ましくは、種子100 kg 当たり1～150 g、さらに好ましくは、種子100 kg 当たり2.5～25 g、さらに一層好ましくは、種子100 kg 当たり2.5～12.5 g；

・ 土壌を処理する場合： 0.1～10000 g / ha、好ましくは、1～5000 g / ha。

【0202】

上記施用量は、単に例としてのものであり、本発明の目的に関して限定するものではない

10

20

30

40

50

い。

### 【0203】

上記で挙げられている植物は、一般式(I)で表される化合物及び/又は本発明による活性化化合物混合物を用いて、本発明に従って特に有利に処理することができる。該活性化化合物又は混合物に関して上記で示されている好ましい範囲は、これら植物の処理にも当てはまる。特に重要なのは、本明細書中において具体的に挙げられている化合物又は混合物を用いた植物の処理である。

### 【0204】

本発明による活性化化合物の調製及び使用に関して、下記実施例によってさらに十分に説明するが、本発明は、それらに限定されるものではない。

### 【実施例】

### 【0205】

#### 調製実施例

下記実施例によって、式(I)で表される本発明の活性成分の調製及び使用について例証する。しかしながら、本発明は、それら実施例に限定されるものではない。

### 【0206】

一般注意事項： 別途示されていない限り、クロマトグラフィーによる全ての精製段階及び分離段階は、0:100の酢酸エチル/シクロヘキサンから100:0の酢酸エチル/シクロヘキサンまでの溶媒の勾配を使用してシリカゲル上で実施する。

### 【0207】

#### 式(I-02)で表される化合物の調製

#### 段階1

#### 1-ブロモ-4-メチル-2-ニトロ-5-フェノキシベンゼン(VI-02)

500mg(2.14mmol)の1-ブロモ-5-フルオロ-4-メチル-2-ニトロベンゼンと591mg(4.27mmol)の炭酸カリウムを10mLの乾燥DMFに懸濁させ、90℃に加熱した。この溶液に、200mg(2.14mmol)のフェノールを10mLの乾燥DMFに溶解させた溶液を1時間かけて滴下して加えた。その反応は、2.5時間後に終了した。その混合物を減圧下で濃縮し、その後、水を添加し、生成物を濾過して、565mgの1-ブロモ-4-メチル-2-ニトロ-5-フェノキシベンゼンが得られた。

### 【0208】

#### 段階2

#### 2-ブロモ-5-メチル-4-フェノキシアニリン(VIII-02)

500mg(1.62mmol)の1-ブロモ-4-メチル-2-ニトロ-5-フェノキシベンゼンを5mLのEtOHに溶解させ、その後、1.8g(8.11mmol)の二塩化スズニ水和物( $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )を添加した。その混合物を1時間環流し、室温まで冷却し、その後、氷を添加し、そして、炭酸ナトリウムをゆっくりと添加することによってpHを10に調節した。その水相を酢酸エチルで抽出し、その有機相を $\text{MgSO}_4$ で脱水し、次いで、減圧下で濃縮し、その粗製生成物をCombiflash(40gシリカゲル、勾配 シクロヘキサン/酢酸エチル)によるクロマトグラフィーに付した。350mgの2-ブロモ-5-メチル-4-フェノキシアニリンが得られた。

### 【0209】

#### 段階3

#### N'-(2-ブロモ-5-メチル-4-フェノキシフェニル)-N-エチル-N-メチルイミドホルムアミド(I-02)

350mg(1.26mmol)の2-ブロモ-5-メチル-4-フェノキシアニリンと218mg(1.64mmol)のN-(ジメトキシメチル)-N-メチルエタンアミンを10mLの乾燥トルエンに溶解させ、12時間80℃で加熱した。その混合物を室温まで冷却し、減圧下で濃縮し、Combiflash(40gシリカゲル、溶媒：勾配 シクロヘキサン/酢酸エチル)によるクロマトグラフィーで精製して、280mgのN

10

20

30

40

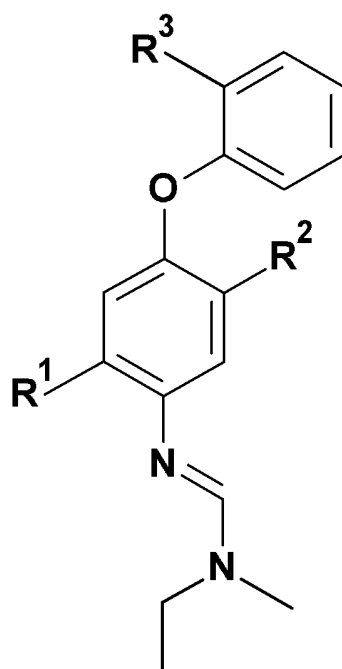
50

' - ( 2 - ブロモ - 5 - メチル - 4 - フェノキシフェニル ) - N - エチル - N - メチルイミドホルムアミドが得られた。

【 0 2 1 0 】

実施例

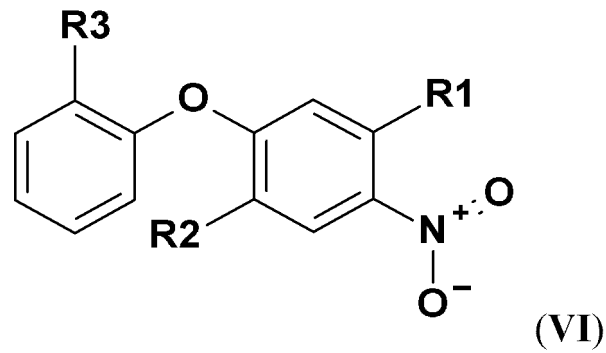
【 表 3 】



(I)

Ex N°	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	LogP
I-01	Cl	Me	H	1,60 <sup>[a]</sup>
I-02	Br	Me	H	1,61 <sup>[a]</sup> ; 4,67 <sup>[b]</sup>
I-03	F	Me	H	1,55 <sup>[a]</sup> ; 3,97 <sup>[b]</sup>

【表 4】

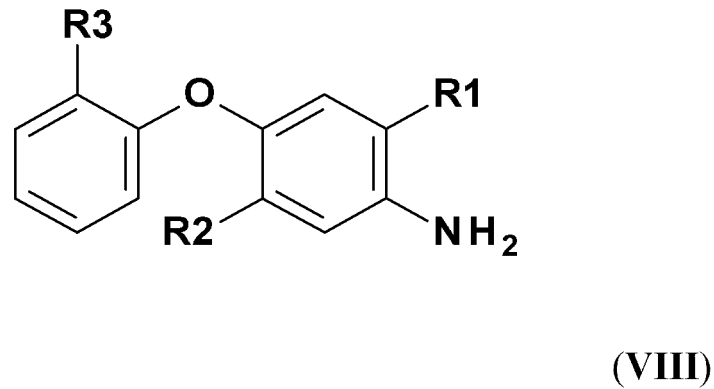


10

Ex N°	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	LogP
VI-01	Cl	Me	H	4,38 <sup>[a]</sup> ; 4,33 <sup>[b]</sup>
VI-02	Br	Me	H	4,51 <sup>[a]</sup>

20

【表 5】



30

Ex N°	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	LogP
VIII-01	Cl	Me	H	3,51 <sup>[a]</sup> ; 3,51 <sup>[b]</sup>
VIII-02	Br	Me	H	3,66 <sup>[a]</sup> ; 3,65 <sup>[b]</sup>

40

## 【 0 2 1 1 】

Log P 値の測定は、「EEC directive 79/831 Annex V . A 8」に従い、下記方法を用いて、逆相カラムでの HPLC（高性能液体クロマトグラフィー）によって実施した：

[ a ] Log P 値は、水中の 0 . 1 % ギ酸及びアセトニトリルを溶離液として用いて（

50

10 % アセトニトリルから 95 % アセトニトリルまでの直線勾配)、酸性範囲内において、LC - UV を測定することによって求める。

【0212】

[b] Log P 値は、0.001 モル酢酸アンモニウム水溶液及びアセトニトリルを溶離液として用いて (10 % アセトニトリルから 95 % アセトニトリルまでの直線勾配)、中性範囲内において、LC - UV を測定することによって求める。

【0213】

較正は、Log P 値が知られている直鎖アルカン - 2 - オン (3 個 ~ 16 個の炭素原子を有している) を用いて実施した (Log P 値は、連続するアルカノンの間の線形補間によって、保持時間を用いて測定する)。ラムダマックス値は、200 nm ~ 400 nm の紫外線スペクトル及びクロマトグラフシグナルのピーク値を用いて決定した。

10

【0214】

NMR - ピークリスト

選択された実施例の  $^1\text{H}$  - NMR データは、 $^1\text{H}$  - NMR ピークリストの形態で記載されている。各シグナルピークに対して、値 (ppm) 及びシグナル強度 (丸括弧内) が記載されている。値 - シグナル強度の対の間には、区切り符号としてセミコロンが存在している。

【0215】

従って、1 つの例のピークリストは、以下の形態をとる：

$1$  (強度<sub>1</sub>) ;  $2$  (強度<sub>2</sub>) ; . . . ;  $i$  (強度<sub>i</sub>) ; . . . ;  $n$  (強度<sub>n</sub>) 。

20

【0216】

先鋭なシグナルの強度は、NMR スペクトルの印刷された例におけるシグナルの高さ (cm) と相関し、シグナル強度の真の関係を示している。幅が広いシグナルからは、数種類のピーク又は該シグナルの中央及び当該スペクトルの中の最も強いシグナルと比較したそれらの相対的強度が示され得る。

【0217】

$^1\text{H}$  スペクトルの化学シフトを較正するために、特にスペクトルが DMSO 中で測定される場合には、テトラメチルシランを使用するか及び / 又は用いられる溶媒の化学シフトを使用する。従って、NMR ピークリストでは、テトラメチルシランのピークは存在し得るが、必ずしも存在するわけではない。

30

【0218】

$^1\text{H}$  - NMR ピークリストは、古典的な  $^1\text{H}$  - NMR のプリントと類似しており、従って、通常、NMR の古典的な解釈で記載される全てのピークを含んでいる。

【0219】

さらに、それらは、古典的な  $^1\text{H}$  - NMR のプリントのように、溶媒のシグナル、目標化合物の立体異性体 (これも、本発明の対象である) のシグナル及び / 又は不純物のピークのシグナルも示し得る。

【0220】

溶媒及び / 又は水のデルタ - 範囲内における化合物シグナルを示すために、溶媒の通常のピーク (例えば、DMSO -  $\text{D}_6$  中の DMSO のピーク) 及び水のピークは、本発明者らの  $^1\text{H}$  - NMR ピークリストの中に示されており、そして、通常、平均して高い強度を有している。

40

【0221】

目標化合物の立体異性体のピーク及び / 又は不純物のピークは、通常、平均して、目標化合物 (例えば、純度 > 90 %) のピークよりも低い強度を有している。

【0222】

そのような立体異性体及び / 又は不純物は、特定の調製方法に対して特有であり得る。従って、それらのピークは、本発明者らの調製方法の再現性を「副産物の指紋 (side-product-fingerprints)」によって認識するのに役立ち得る。

【0223】

50

目標化合物のピークを既知方法（Mestrec、ACD - シミュレーション、さらに、経験的に評価された期待値の使用）で計算する専門家は、必用に応じて、場合により付加的な強度フィルターを使用して、目標化合物のピークを分離することができる。この分離は、 $^1\text{H}$ -NMRの古典的な解釈での関連するピークのピーキングに類似しているであろう。

#### 【0224】

ピークリストによるNMRデータの記載のさらなる詳細については、「Research Disclosure Database Number 564025」の刊行物「Citation of NMR Peaklist Data within Patent Applications」の中に見いだすことができる。

10

#### 【表6】

実施例 I-01: $^1\text{H}$ -NMR (600.1 MHz, $\text{d}_6$ -DMSO): $\delta$ = 7.755 (1.1); 7.642 (0.4); 7.357 (0.4); 7.353 (3.0); 7.350 (1.1); 7.345 (0.6); 7.341 (4.2); 7.339 (4.2); 7.335 (0.7); 7.330 (1.3); 7.326 (3.4); 7.322 (0.5); 7.068 (1.5); 7.066 (1.0); 7.055 (2.8); 7.045 (0.8); 7.043 (1.3); 7.042 (0.8); 6.954 (1.2); 6.931 (7.5); 6.869 (3.6); 6.867 (4.4); 6.854 (4.1); 6.853 (3.5); 3.454 (0.4); 3.443 (0.5); 3.368 (0.5); 3.357 (1.0); 3.346 (1.0); 3.335 (12.8); 3.001 (1.3); 2.935 (3.5); 2.512 (1.4); 2.509 (3.2); 2.506 (4.4); 2.503 (3.2); 2.500 (1.6); 2.075 (16.0); 1.158 (1.5); 1.146 (3.3); 1.136 (2.2)	
実施例 I-02: $^1\text{H}$ -NMR (400.0 MHz, $\text{d}_6$ -DMSO): $\delta$ = 7.740 (1.1); 7.623 (0.5); 7.362 (2.6); 7.357 (1.0); 7.343 (4.0); 7.340 (4.0); 7.326 (1.3); 7.322 (3.2); 7.074 (1.8); 7.068 (6.8); 7.056 (2.7); 7.038 (1.2); 6.949 (1.4); 6.926 (0.7); 6.866 (4.3); 6.847 (3.9); 3.450 (0.5); 3.435 (0.6); 3.379 (0.5); 3.362 (1.1); 3.344 (1.1); 3.319 (44.1); 3.001 (1.6); 2.935 (3.7); 2.524 (0.8); 2.510 (17.3); 2.506 (34.2); 2.502 (44.6); 2.497 (33.1); 2.493 (16.6); 2.061 (16.0); 1.166 (4.0); 1.148 (8.4); 1.130 (3.9); 0.008 (0.9); 0.000 (24.7); -0.008 (1.1)	20
実施例 I-03: $^1\text{H}$ -NMR (400.0 MHz, $\text{d}_6$ -DMSO): $\delta$ = 7.794 (1.2); 7.704 (0.4); 7.359 (0.4); 7.354 (2.8); 7.335 (4.5); 7.333 (4.4); 7.314 (3.5); 7.065 (1.7); 7.047 (2.9); 7.028 (1.3); 6.952 (1.4); 6.927 (1.4); 6.860 (5.1); 6.841 (4.7); 6.756 (3.2); 6.727 (3.2); 3.429 (0.5); 3.348 (1.4); 3.318 (75.7); 2.984 (1.1); 2.910 (4.0); 2.675 (0.4); 2.671 (0.6); 2.666 (0.4); 2.524 (1.7); 2.510 (37.3); 2.506 (74.8); 2.502 (98.1); 2.497 (71.5); 2.333 (0.4); 2.328 (0.6); 2.324 (0.4); 2.044 (16.0); 1.234 (0.4); 1.150 (1.5); 1.133 (3.2); 1.116 (2.4); 0.000 (7.7)	

#### 【表7】

30

実施例 VI-02: $^1\text{H}$ -NMR (400.0 MHz, $\text{d}_6$ -DMSO): $\delta$ = 8.129 (4.8); 7.506 (2.1); 7.485 (4.0); 7.466 (3.0); 7.298 (1.4); 7.280 (2.4); 7.261 (1.0); 7.154 (4.4); 7.134 (3.7); 7.023 (6.2); 3.323 (11.2); 2.892 (0.4); 2.733 (0.4); 2.508 (18.0); 2.503 (23.7); 2.499 (17.8); 2.299 (16.0); 2.278 (0.7); 2.273 (0.7); 0.000 (11.5); -0.008 (0.5)
--

【表 8】

実施例 VIII-01: $^1\text{H-NMR}$ (400.0 MHz, $\text{d}_6\text{-DMSO}$ ): $\delta = 7.322$ (2.4); $7.317$ (1.0); $7.304$ (3.6); $7.301$ (3.8); $7.287$ (1.1); $7.282$ (3.0); $7.023$ (1.4); $7.005$ (2.4); $6.986$ (1.1); $6.864$ (5.6); $6.812$ (3.2); $6.809$ (4.2); $6.790$ (3.7); $6.788$ (3.3); $6.725$ (4.8); $5.186$ (4.5); $3.328$ (27.7); $2.525$ (0.9); $2.511$ (17.8); $2.507$ (35.8); $2.502$ (47.6); $2.498$ (36.7); $1.975$ (16.0); $0.008$ $(1.8)$ ; $0.000$ (46.7)
実施例 VIII-02: $^1\text{H-NMR}$ (400.0 MHz, $\text{d}_6\text{-DMSO}$ ): $\delta = 8.805$ (0.3); $7.330$ (0.6); $7.324$ (2.7); $7.318$ (1.1); $7.312$ (0.9); $7.305$ (3.8); $7.302$ (3.9); $7.296$ (1.0); $7.288$ (1.9); $7.284$ (3.5); $7.277$ (0.9); $7.270$ (1.0); $7.266$ (1.0); $7.256$ (0.5); $7.253$ (0.4); $7.248$ (0.8); $7.025$ (1.7); $7.023$ (1.1); $7.007$ (2.6); $6.988$ (7.3); $6.971$ (0.4); $6.969$ (0.4); $6.967$ (0.4); $6.953$ (0.7); $6.935$ (0.4); $6.926$ (0.4); $6.923$ (0.5); $6.904$ (0.4); $6.902$ (0.4); $6.826$ (0.3); $6.814$ (3.4); $6.812$ (4.4); $6.806$ (1.5); $6.797$ (1.5); $6.795$ (2.2); $6.792$ (3.9); $6.790$ (3.4); $6.783$ (0.7); $6.781$ (0.7); $6.778$ (0.5); $6.770$ (0.9); $6.767$ (1.1); $6.762$ (0.4); $6.758$ (0.4); $6.751$ (0.8); $6.748$ (1.2); $6.745$ (1.2); $6.739$ (4.9); $6.680$ (0.7); $6.659$ (0.9); $6.646$ (0.4); $6.488$ (0.5); $6.481$ (0.7); $6.438$ (0.9); $6.429$ (0.4); $6.415$ (0.4); $5.143$ (4.5); $4.912$ (1.0); $4.788$ (0.6); $4.038$ (0.8); $4.021$ (0.8); $3.318$ (27.1); $2.524$ (0.8); $2.520$ (1.1); $2.511$ (17.0); $2.506$ (35.3); $2.502$ (47.2); $2.497$ (34.8); $2.493$ (17.1); $2.077$ (0.8); $2.000$ (1.9); $1.988$ $(3.9)$ ; $1.980$ (0.4); $1.966$ (16.0); $1.957$ (4.3); $1.398$ (0.6); $1.298$ (0.6); $1.193$ (1.0); $1.175$ (1.9); $1.158$ $(1.0)$ ; $0.008$ (1.3); $0.000$ (43.1); $-0.009$ (1.6)

10

## 【0225】

## 安定性データ実施例

## 均質な水溶液の中における加水分解に対する安定性 - 加水部分安定性試験

20

従来技術において記載されているフェニルアミジン類の加水分解に対する化学的安定性は良好であるが、改善された安定性は、大規模での調製プロセス及び製剤プロセスに際して有利であり得る。加水分解に対するそのような改善された安定性が、以下に記載されている加水分解安定性試験によって立証された。

## 【0226】

加水分解安定性試験のための活性化合物の適切な調製物を製造するために、アセトニトリル中の活性化合物の  $1000 \text{ ppm}$  原液 ( $1 \text{ mg/mL}$ ) を調製する。  $100 \mu\text{L}$  の3つのアリコートを手ピペットで量って HPLC バイアルの中に移し、  $750 \mu\text{L}$  のアセトニトリルで希釈する。各バイアルの中に、  $850 \mu\text{L}$  の適切な緩衝液 ( $\text{pH } 4$ 、 $\text{pH } 7$ 、及び、 $\text{pH } 9$ ; CertiPUR, Fa. Merck) を添加する。その緩衝液を含んでいる HPLC バイアルを、加熱されたサンプルトレイの中で、  $50^\circ\text{C}$  で 24 時間インキュベートする。当該活性化合物の量 A について、以下の 8 つの時点 t において、HPLC ( $210 \text{ nm}$  における UV - ピーク面積) で分析する: 0 分、140 分、350 分、560 分、770 分、980 分、1190 分、1400 分。各活性化合物の半減時間 ( $T_{1/2}$ ) を下記式を用いて直線回帰によって計算する (一次分解を仮定する):

30

## 【数 1】

$$\ln[A(t)] = -kt + \ln[A(0)]$$

40

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{k}$$

## 【0227】

表 III の中に、さまざまな pH 値における化合物 (I - 01)、化合物 (I - 02) 及び化合物 (I - 03) に対して、加水分解安定性試験の結果が示されている。従来技術から知られているフェニルアミジン類に鑑みて、加水分解に対する改善された安定性を実証するために、当該結果を、WO2008/110313 から知られている化合物 No. 1 及び WO2008/110278 から知られている化合物 No. 337 と比較した。そのデータは、本発明による化合物が加水分解に対して向上した安定性を実際に示すという

50

ことを実証している。この向上した安定性は、既知アミジン類と比較して、大規模での調製プロセス及び製剤プロセスに際して有利である。該データは、単に例として理解されるべきであり、本発明の目的に関して限定するものではない。

【表 9】

表 III		
Ex N°	T <sub>1/2</sub> (pH 7)	T <sub>1/2</sub> (pH 9)
I-01	45 時間	40 時間
WO2008/110313 から知られている 化合物 No. 1	24 時間	16 時間
WO2008/110278 から知られている 化合物 No. 337	25 時間	17 時間

【0228】

光分解に対する安定性 - 光分解安定性試験

従来技術において記載されているフェニルアミジン類の光分解に対する安定性は、良好であるが、光分解に対する改善された安定性は、茎葉施用によって植物に施用された場合に、より長期間にわたって効力を持続させ得るので、有利であり得る。光分解に対するそのような改善された安定性が、以下に記載されている加水分解安定性試験によって立証された： 光分解安定性試験のための活性化合物の適切な調製物を製造するために、アセトニトリル中の活性化合物の 1000 ppm 原液 (1 mg / mL) を調製する。この原液の 25 µL のアリコートを一ピペットで量って「Bio-one microtiter plate (MTP) UV Star 96」(Fa. Greiner, Art. No. 655801) の 3 つのウェルの中に移す。その MTP を暗所で一晩乾燥させ、次いで、UV 照射装置「SUNTEST XLS+」又は「SUNTEST CPS」(Fa. Atlas) を用いて、30、480 W / m<sup>2</sup> で照射する。当該活性化合物の量 A について、下記方法を用いて、5 つの時点 t (0 時間、2 時間、4 時間、6 時間、24 時間) において、HPLC (210 nm における UV - ピーク面積) で分析する： MTP のそれぞれのウェルに 200 µL のアセトニトリルを添加し、その MTP を「Bio-one sealing foil, viewseal 80 / 140 mm」(Fa. Greiner, Art. No. 676070) で密閉する。その MTP を 3 分間超音波処理に付し、そして、HPLC で分析する。各活性化合物の半減時間 (T<sub>1/2</sub>) を下記式を用いて直線回帰によって計算する (一次分解を仮定する)：

【数 2】

$$\ln[A(t)] = -kt + \ln[A(0)]$$

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{k}$$



## 【 0 2 2 9 】

表Ⅳの中に、化合物（Ⅰ - 0 1 ）、化合物（Ⅰ - 0 2 ）及び化合物（Ⅰ - 0 3 ）に対して、光分解安定性試験の結果が示されている。従来技術から知られているフェニルアミジン類に鑑みて、光分解に対する改善された安定性を実証するために、当該結果を、WO 2 0 0 8 / 1 1 0 3 1 3 から知られている化合物 No. 1 と比較した。そのデータは、本発明による化合物が光分解に対して向上した安定性を実際に示すということを実証している。光分解に対するこの向上した安定性は、茎葉施用によって植物に施用された場合に、既知アミジン類と比較して、より長期間にわたって効力を持続させ得るので、有利である。該データは、単に例として理解されるべきであり、本発明の目的に関して限定するものではない。

10

## 【表 1 0 】

表Ⅳ	
Ex N°	T <sub>½</sub>
I-01	> 200 時間
WO2008/110313 から知られている 化合物 No. 1	10 時間

20

## 【 0 2 3 0 】

ダイズ植物を使用する植物適合性試験

溶媒： 2 4 . 5 重量部のアセトン

2 4 . 5 重量部のジメチルアセトアミド

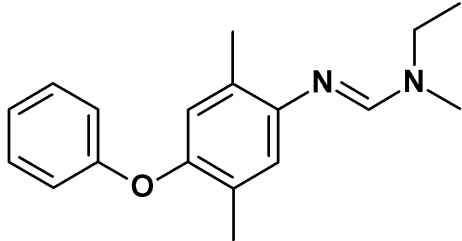
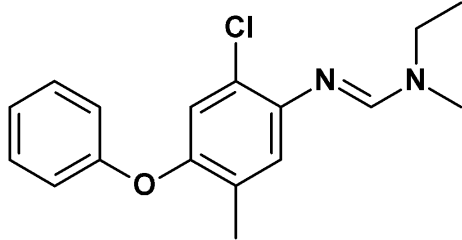
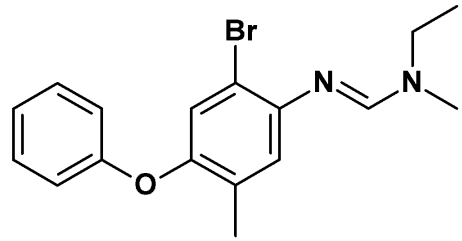
乳化剤： 1 重量部のアルキルアリールポリグリコールエーテル

活性化合物の適切な調製物を製造するために、1 重量部の活性化合物を上記量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を水で希釈して、所望の濃度とする。幼植物に、活性化合物の該調製物を記載されている施用量で噴霧する。次いで、その植物を、約 2 1 で  
 相対大気湿度約 8 0 % の温室の中に置く。当該試験（これは、葉の奇形、クロロシス、壊死、苗条の損傷又は萎縮などの植物の損傷を含んでいる）について、施用の 6 日後に評価する。「0 %」は、損傷が観察されないことを意味し、「1 0 0 %」は、当該植物が完全に損傷を受けていることを意味する。

30

## 【表 1 1】

表 V : 植物適合性 ダイズ

	活性化合物	活性化合物の 施用量 (ppm)	壊死 (%)
	WO2008/110313から既知 :		
Ex. 1		500	90
	本発明 :		
Ex. I-01		500	50
Ex. I-02		500	10

## 【0231】

## 使用実施例

実施例： セプトリア・トリチシ (*Septoria tritici*) (コムギの葉枯病 (leaf spot)) に対するインビボ予防試験

溶媒： 5体積%のジメチルスルホキシド  
10体積%のアセトン

乳化剤： 活性成分1mg当たり1μLのTween (登録商標) 80

活性成分を、ジメチルスルホキシド/アセトン/Tween (登録商標) 80の混合物の中で、可溶化及び均質化し、次いで、水で希釈して所望の濃度とする。

## 【0232】

コムギの幼植物を、上記のように調製された活性成分を噴霧することによって処理する。対照植物は、アセトン/ジメチルスルホキシド/Tween (登録商標) 80の水溶液のみで処理する。

## 【0233】

24時間経過した後、セプトリア・トリチシ (*Septoria tritici*) の

10

20

30

40

50

胞子の水性懸濁液を葉に噴霧することにより、該植物を汚染する。その汚染されたコムギ植物を、18、相対湿度100%で72時間インキュベートし、次いで、20、相対湿度90%で21日間インキュベートする。

【0234】

当該試験について、上記接種の24日後に評価する。0%は、対照植物の効力に相当する効力を意味し、100%の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0235】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度500ppmで、少なくとも70%の効力を示した：I-01；I-02。

【0236】

実施例：スファエロテカ・フリギネア (Sphaerotheca fuliginea) (ウリ科植物のうどんこ病) に対するインビボ予防試験

溶媒：5体積%のジメチルスルホキシド

10体積%のアセトン

乳化剤：活性成分1mg当たり1μLのTween (登録商標) 80

活性成分を、ジメチルスルホキシド/アセトン/Tween (登録商標) 80の混合物の中で、可溶化及び均質化し、次いで、水で希釈して所望の濃度とする。

【0237】

ガーキンの幼植物を、上記のように調製された活性成分を噴霧することによって処理する。対照植物は、アセトン/ジメチルスルホキシド/Tween (登録商標) 80の水溶液のみで処理する。

【0238】

24時間経過した後、スファエロテカ・フリギネア (Sphaerotheca fuliginea) の胞子の水性懸濁液を葉に噴霧することにより、該植物を汚染する。その汚染されたガーキン植物を、18、相対湿度100%で72時間インキュベートし、次いで、20、相対湿度70~80%で12日間インキュベートする。

【0239】

当該試験について、上記接種の15日後に評価する。0%は、対照植物の効力に相当する効力を意味し、100%の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0240】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度500ppmで、少なくとも70%の効力を示した：I-01；I-02。

【0241】

実施例：ウロミセス・アペンジクラツス (Uromyces appendiculatus) (インゲンマメのさび病) に対するインビボ予防試験

溶媒：5体積%のジメチルスルホキシド

10体積%のアセトン

乳化剤：活性成分1mg当たり1μLのTween (登録商標) 80

活性成分を、ジメチルスルホキシド/アセトン/Tween (登録商標) 80の混合物の中で、可溶化及び均質化し、次いで、水で希釈して所望の濃度とする。

【0242】

インゲンマメの幼植物を、上記のように調製された活性成分を噴霧することによって処理する。対照植物は、アセトン/ジメチルスルホキシド/Tween (登録商標) 80の水溶液のみで処理する。

【0243】

24時間経過した後、ウロミセス・アペンジクラツス (Uromyces appendiculatus) の胞子の水性懸濁液を葉に噴霧することにより、該植物を汚染する。その汚染されたインゲンマメ植物を、20、相対湿度100%で24時間インキュベートし、次いで、20、相対湿度70~80%で10日間インキュベートする。

【0244】

10

20

30

40

50

当該試験について、上記接種の 11 日後に評価する。0 % は、対照植物の効力に相当する効力を意味し、100 % の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0245】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度 500 ppm で、少なくとも 70 % の効力を示した： I - 01 ; I - 02。

【0246】

実施例： ファコプソラ (Phakopsora) 試験 (ダイズ) に対するインビボ予防試験

溶媒： 24.5 重量部のアセトン

24.5 重量部のジメチルアセトアミド

乳化剤： 1 重量部のアルキルアリールポリグリコールエーテル

活性化合物の適切な調製物を製造するために、1 重量部の活性化合物を上記量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を水で希釈して、所望の濃度とする。

【0247】

予防活性について試験するために、幼植物に、活性化合物の該調製物を記載されている施用量で噴霧する。その噴霧による被膜が乾燥した後、該植物に、ダイズさび病の病原であるファコプソラ・パキリジ (Phakopsora pachyrhizi) の胞子の水性懸濁液を用いて接種し、その植物を、約 24 で相対大気湿度 95 % のインキュベーション室の中に光無しで 24 時間置く。

【0248】

その植物を、約 24 、相対大気湿度約 80 % で、昼 / 夜の間隔 12 時間のインキュベーション室の中に置く。

【0249】

当該試験について、上記接種の 7 日後に評価する。0 % は、処理されていない対照の効力に相当する効力を意味し、100 % の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0250】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度 10 ppm で、少なくとも 70 % の効力を示した： I - 01 ; I - 02。

【0251】

実施例： レプトスファエリア・ノドルム (Leptosphaeria nodorum) インビボ予防試験 (コムギ)

溶媒： 49 重量部の N, N - ジメチルアセトアミド

乳化剤： 1 重量部のアルキルアリールポリグリコールエーテル

活性化合物の適切な調製物を製造するために、1 重量部の活性化合物又は活性化合物組合せを上記量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を水で希釈して、所望の濃度とする。

【0252】

予防活性について試験するために、幼植物に、活性化合物又は活性化合物組合せの該調製物を記載されている施用量で噴霧する。

【0253】

その噴霧による被膜が乾燥した後、該植物に、レプトスファエリア・ノドルム (Leptosphaeria nodorum) の胞子の懸濁液を噴霧する。その植物を、約 20 で相対大気湿度約 100 % のインキュベーション室の中に 48 時間維持する。

【0254】

その植物を、温度約 25 で相対大気湿度約 80 % の温室の中に置く。

【0255】

当該試験について、上記接種の 8 日後に評価する。0 % は、処理されていない対照の効力に相当する効力を意味し、100 % の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0256】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度 500 ppm で、少

10

20

30

40

50

なくとも70%の効力を示した： I - 01 ; I - 02。

【0257】

実施例： プッシニア・トリチシナ (Puccinia tritici-na) インビボ予防試験 (コムギ)

溶媒： 49重量部のN,N-ジメチルアセトアミド

乳化剤： 1重量部のアルキルアリールポリグリコールエーテル

活性化合物の適切な調製物を製造するために、1重量部の活性化合物又は活性化合物組合せを上記量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を水で希釈して、所望の濃度とする。

【0258】

予防活性について試験するために、幼植物に、活性化合物又は活性化合物組合せの該調製物を記載されている施用量で噴霧する。

【0259】

その噴霧による被膜が乾燥した後、該植物に、プッシニア・トリチシナ (Puccinia tritici-na) の胞子の懸濁液を噴霧する。その植物を、約20℃で相対大気湿度約100%のインキュベーション室の中に48時間維持する。

【0260】

その植物を、温度約20℃で相対大気湿度約80%の温室の中に置く。

【0261】

当該試験について、上記接種の8日後に評価する。0%は、処理されていない対照の効力に相当する効力を意味し、100%の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0262】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度500ppmで、少なくとも70%の効力を示した： I - 01 ; I - 02。

【0263】

実施例： ピレノホラ・テレス (Pyrenophora teres) インビボ予防試験 (オオムギ)

溶媒： 49重量部のN,N-ジメチルアセトアミド

乳化剤： 1重量部のアルキルアリールポリグリコールエーテル

活性化合物の適切な調製物を製造するために、1重量部の活性化合物又は活性化合物組合せを上記量の溶媒及び乳化剤と混合し、得られた濃厚物を水で希釈して、所望の濃度とする。

【0264】

予防活性について試験するために、幼植物に、活性化合物又は活性化合物組合せの該調製物を記載されている施用量で噴霧する。

【0265】

その噴霧による被膜が乾燥した後、該植物に、ピレノホラ・テレス (Pyrenophora teres) の胞子の懸濁液を噴霧する。その植物を、約20℃で相対大気湿度約100%のインキュベーション室の中に48時間維持する。

【0266】

その植物を、温度約20℃で相対大気湿度約80%の温室の中に置く。

【0267】

当該試験について、上記接種の8日後に評価する。0%は、処理されていない対照の効力に相当する効力を意味し、100%の効力は、病害が観察されないことを意味する。

【0268】

この試験において、本発明による以下の化合物は、活性成分の濃度500ppmで、少なくとも70%の効力を示した： I - 01 ; I - 02。

10

20

30

40

---

 フロントページの続き

- (74)代理人 100137213  
弁理士 安藤 健司
- (74)代理人 100143823  
弁理士 市川 英彦
- (74)代理人 100151448  
弁理士 青木 孝博
- (74)代理人 100196483  
弁理士 川崎 洋祐
- (74)代理人 100203035  
弁理士 五味淵 琢也
- (74)代理人 100185959  
弁理士 今藤 敏和
- (74)代理人 100160749  
弁理士 飯野 陽一
- (74)代理人 100160255  
弁理士 市川 祐輔
- (74)代理人 100202267  
弁理士 森山 正浩
- (74)代理人 100146318  
弁理士 岩瀬 吉和
- (74)代理人 100127812  
弁理士 城山 康文
- (72)発明者 ヒルブランド, ステファン  
ドイツ国、4 1 4 6 2 ・ ノイス、ロートリンガー・シュトラッセ・2 2
- (72)発明者 エス・サイド, マーゼン  
ドイツ国、4 0 7 6 4 ・ ランゲンフェルト、リカルダ・フッフ・シュトラッセ・3 6
- (72)発明者 ダーメン, ペーター  
ドイツ国、4 1 4 7 0 ・ ノイス、アルテブリュッカー・シュトラッセ・6 1
- (72)発明者 ヴァッヒェンドルフ・ノイマン, ウルリーケ  
ドイツ国、5 6 5 6 6 ・ ノイヴィート、オーベラー・マルケンヴェーク・8 5
- (72)発明者 ブリュネ, ステファン  
フランス国、0 1 3 9 0 ・ サン・タンドレ・ドゥ・コルシー、リュ・デ・ドンブ・4 4

審査官 池上 佳菜子

- (56)参考文献 国際公開第01/056990 (WO, A1)  
特表2010-520904 (JP, A)  
特表2010-520900 (JP, A)  
特表2010-520898 (JP, A)  
特表2009-507812 (JP, A)  
特表2002-536354 (JP, A)  
特表2015-531343 (JP, A)  
RN 1437304-97-6, DATABASE REGISTRY [ONLINE] Retrieved from STN, 2013年 6月12日, [検索日 2020.07.09]

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C 0 7 C  
C A p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )