

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4819048号
(P4819048)

(45) 発行日 平成23年11月16日(2011.11.16)

(24) 登録日 平成23年9月9日(2011.9.9)

(51) Int.Cl.

F I

A O 1 N 43/713 (2006.01)

A O 1 N 43/713

A O 1 P 3/00 (2006.01)

A O 1 P 3/00

請求項の数 5 (全 37 頁)

(21) 出願番号 特願2007-522973 (P2007-522973)
 (86) (22) 出願日 平成17年7月19日(2005.7.19)
 (65) 公表番号 特表2008-507572 (P2008-507572A)
 (43) 公表日 平成20年3月13日(2008.3.13)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2005/007824
 (87) 国際公開番号 W02006/012996
 (87) 国際公開日 平成18年2月9日(2006.2.9)
 審査請求日 平成19年1月26日(2007.1.26)
 (31) 優先権主張番号 102004037366.3
 (32) 優先日 平成16年7月30日(2004.7.30)
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(73) 特許権者 505422707
 ランクセス・ドイチュランド・ゲーエムベ
 ーハー
 ドイツ・5 1 3 6 9・レーフェルクーゼン
 (番地なし)
 (74) 代理人 100064908
 弁理士 志賀 正武
 (74) 代理人 100089037
 弁理士 渡邊 隆
 (74) 代理人 100108453
 弁理士 村山 靖彦
 (74) 代理人 100110364
 弁理士 実広 信哉

最終頁に続く

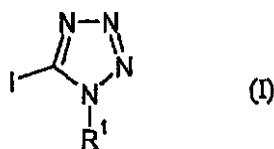
(54) 【発明の名称】 5-ヨードテトラゾール

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

植物および材料を保護するための、式(I)

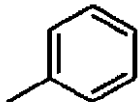
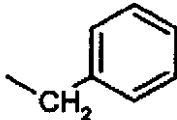
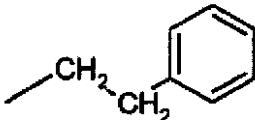
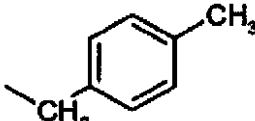
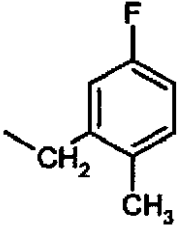
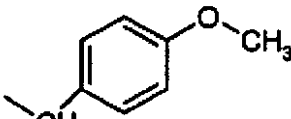
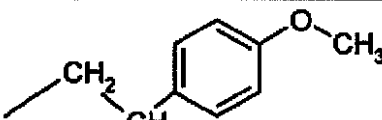
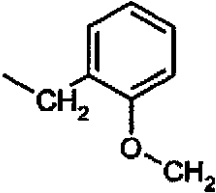
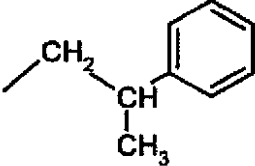
【化 1】



(式中、

R¹ は、下記表：

【表 1 A】

実施例番号	R ¹
1	$-n-C_4H_9$
2	
3	
4	
5	
6	
7	
8	
9	
10	

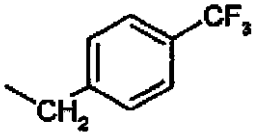
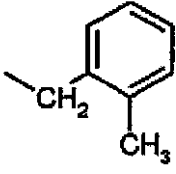
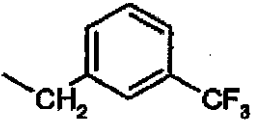
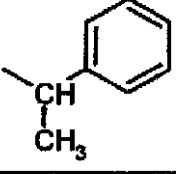
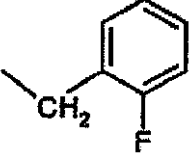
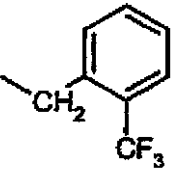
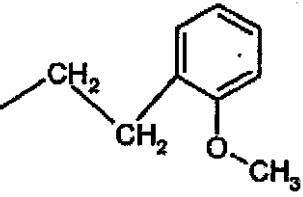
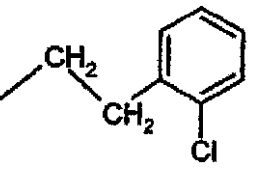
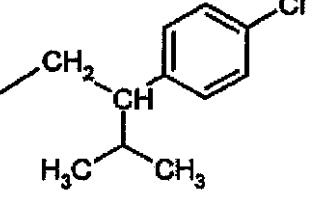
10

20

30

40

【表 1 B】

1 1	
1 2	
1 3	
1 4	
1 5	
1 6	
1 7	
1 8	
1 9	

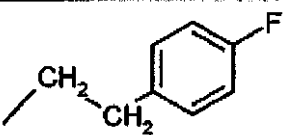
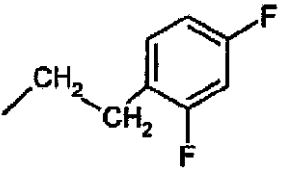
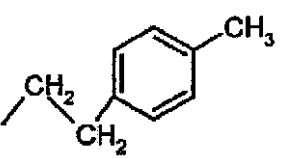
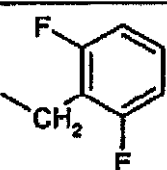
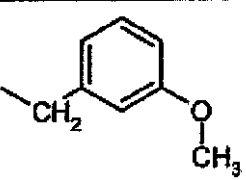
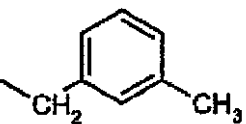
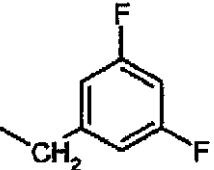
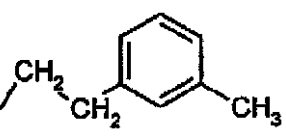
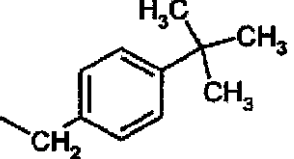
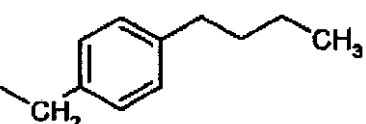
10

20

30

40

【表 1 C】

2 0	
2 1	
2 2	
2 3	
2 4	
2 5	
2 6	
2 7	
2 8	
2 9	

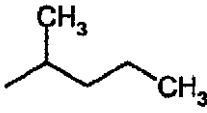
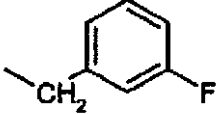
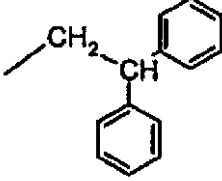
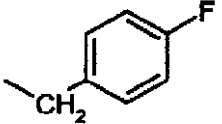
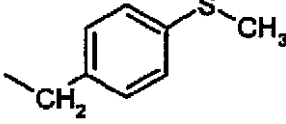
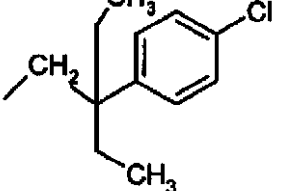
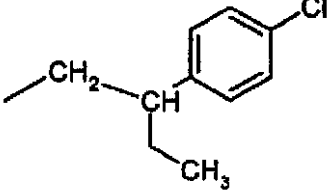
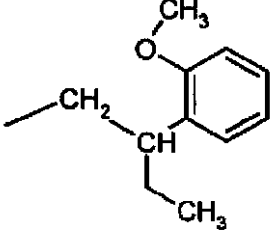
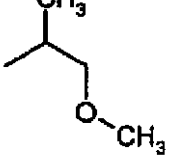
10

20

30

40

【表 1 D】

3 0	
3 1	
3 2	
3 3	
3 4	
3 5	
3 5	
3 6	
3 7	

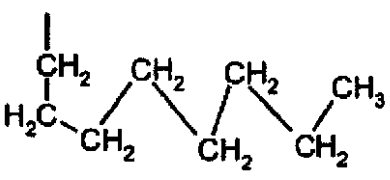
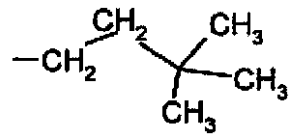
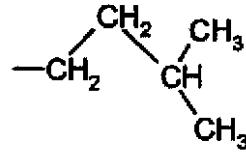
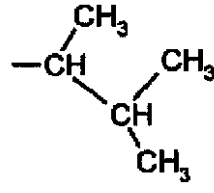
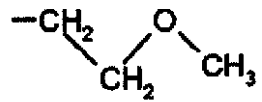
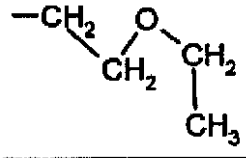
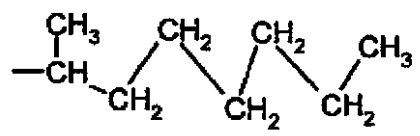
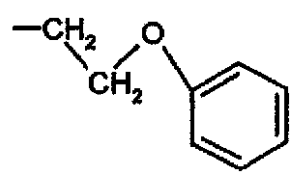
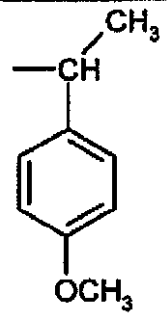
10

20

30

40

【表 1 E】

3 8	
3 9	
4 0	
4 1	
4 2	
4 3	
4 4	
4 5	
4 6	

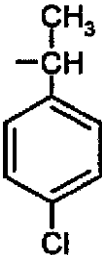
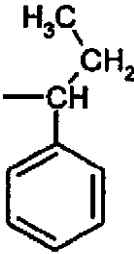
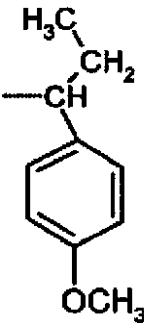
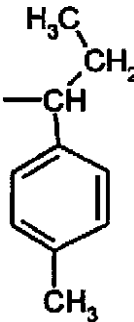
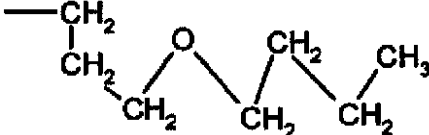
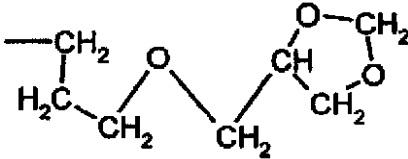
10

20

30

40

【表 1 F】

4 7	
4 8	
4 9	
5 0	
5 1	
5 2	

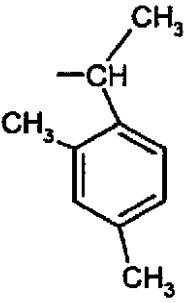
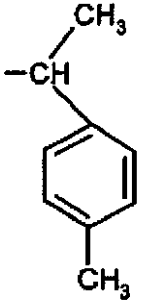
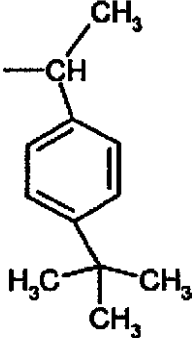
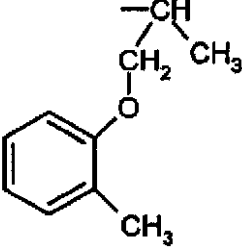
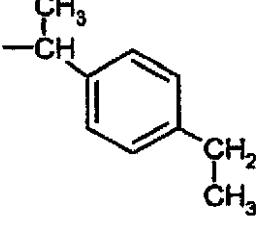
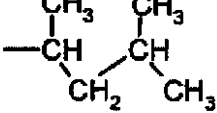
10

20

30

40

【表 1 G】

5 3	 <chem>CC(C)C1=CC=C(C)C=C1C</chem>
5 4	 <chem>CC(C)Cc1ccc(C)cc1</chem>
5 5	 <chem>CC(C)Cc1ccc(C(C)(C)C)cc1</chem>
5 6	 <chem>CC(C)COC1=CC=C(C)C=C1</chem>
5 7	 <chem>CC(C)Cc1ccc(CC(C)C)cc1</chem>
5 8	 <chem>CC(C)C(C)C</chem>

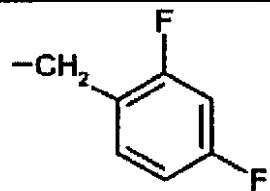
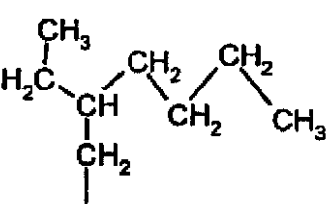
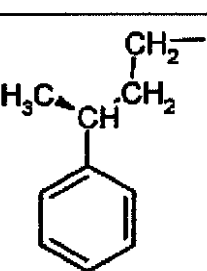
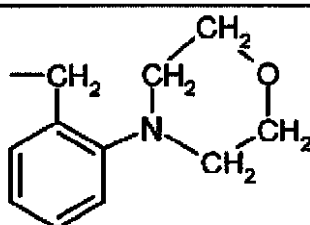
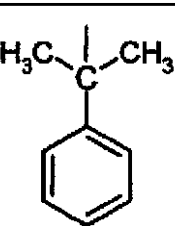
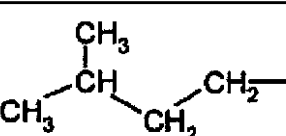
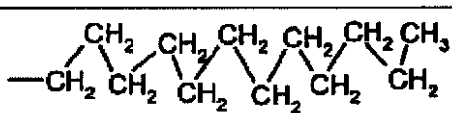
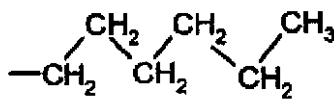
10

20

30

40

【表 1 H】

5 9	
6 0	
6 1	
6 2	
6 3	
6 4	
6 5	
6 6	

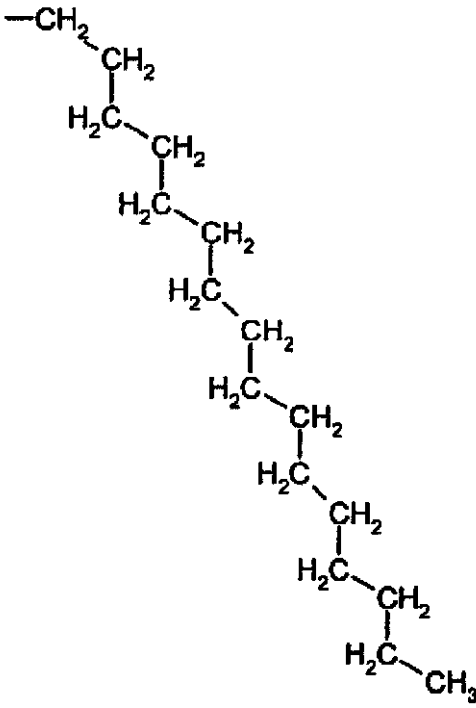
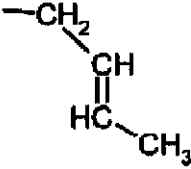
10

20

30

40

【表 1 I】

6 7	
6 8	

10

20

の置換基のいずれかを表す)の殺菌剤。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の少なくとも 1 種の殺菌剤と、少なくとも 1 種の溶剤または希釈剤に加えて、適切であれば加工助剤と、適切であればさらなる抗菌活性化合物とを含む殺菌組成物。

30

【請求項 3】

請求項 1 に記載の少なくとも 1 種の殺菌剤と、少なくとも 1 種の溶剤または希釈剤に加えて、適切であれば加工助剤と、適切であればさらなる抗菌活性化合物とを互いに混合する工程を含む、請求項 2 に記載の殺菌組成物の調製方法。

【請求項 4】

植物および材料を微生物による攻撃および/または破壊から保護する方法であって、請求項 1 に記載の少なくとも 1 種の殺菌剤または請求項 2 に記載の殺菌組成物を前記微生物またはその生息環境に作用させることを特徴とする、方法。

40

【請求項 5】

請求項 1 に記載の少なくとも 1 種の殺菌剤を含む工業材料。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規および既知の 5 - ヨードテトラゾールの植物および工業材料を保護するための殺生物剤としての使用と、新規な 5 - ヨードテトラゾールと、その調製方法とに関する。

【背景技術】

【0002】

50

幾つかのヨードテトラゾールおよびその調製経路が文献により既に知られている。生物学的作用については、どの先行技術の実施例にも記載されていない。

【0003】

5 - アセチル - 1 - フェニルテトラゾールと次亜ヨウ素酸ナトリウムとから 5 - ヨード - 1 - フェニルテトラゾールを調製することは周知である（（非特許文献 1）参照）。

【0004】

フェニルイソニトリルと IN_3 とから 5 - ヨード - 1 - フェニルテトラゾールを調製する別の方法が記載されている（（非特許文献 2）、（非特許文献 3）参照）。

【0005】

5 - ヨードテトラゾールは、1 - 置換 5 - テトラゾリルリチウム化合物を低温でヨウ素と反応させることによって得ることもできる（（非特許文献 4）、（非特許文献 5）、（非特許文献 6）参照）。

【0006】

1 - アルキル - 5 - ヨードテトラゾールを調製する別の方法は、1 - アルキルテトラゾールを出発物質として使用し、これを KMnO_4 および H_2SO_4 を含む氷酢酸中でヨウ素処理するというものである（（非特許文献 7））。

【非特許文献 1】C・A・ジェイコブソン（C・A・Jacobson）ら、J・Org・Chem・、1954年、第19巻、p・1652

【非特許文献 2】F・W・ファウラー（F・W・Fowler）ら、J・Am・Chem・Soc・、1967年、第89巻、p・2077

【非特許文献 3】W・L・コリビー（W・L・Collibee）ら、J・Org・Chem・、1995年、第60巻、p・468

【非特許文献 4】R・ラープ（R・Raap）、Can・J・Chem・、1971年、第49巻、p・2139

【非特許文献 5】サトウ・ヨシタカ（Sato, Yoshitaka）、Tetrahedron Lett・、1995年、第36巻、p・1759

【非特許文献 6】サトウ・ヨシタカ、Synlett・、1998年、p・528

【非特許文献 7】P・N・ガポニック（P・N・Gaponik）、複素環式化合物の化学（Khimiya Geterotsiklicheskikh Soedinenii）、1988年、p・1699

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

1 位が置換された特定の 5 - ヨードテトラゾールが、植物および材料を保護するための殺菌剤として非常に好適であることがここに見出された。

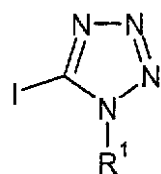
【課題を解決するための手段】

【0008】

したがって、本発明は、式（I）、

【0009】

【化 1】



(I)

（式中、

R^1 は、水素またはそれぞれ場合により置換されたアルキル、アルケニル、アルキニル、もしくはフェニルを表す）

の化合物の、植物および材料を保護するための殺菌剤としての使用を提供する。

【 0 0 1 0 】

好ましくは、一般式 (I) 中、

R^1 が、水素を表すか；非置換であるかまたは同一もしくは異なる置換基で 1 もしくは多置換された、直鎖または分岐の $C_1 \sim C_8$ アルキルを表すか；非置換であるかまたは同一もしくは異なる置換基で 1 もしくは多置換された、直鎖または分岐の $C_2 \sim C_8$ アルケニルを表すか；または非置換であるかまたは同一もしくは異なる置換基で 1 もしくは多置換された、直鎖または分岐の $C_2 \sim C_8$ アルキニルを表す

(ここで、同一または異なる置換基で 1 または多置換された該アルキル、アルケニル、およびアルキニル基の該置換基は、ハロゲン；ニトロ；シアノ；ヒドロキシル；非置換の $C_1 \sim C_6$ アルコキシ；同一または異なるハロゲン置換基で 1 ~ 9 置換された $C_1 \sim C_6$ アルコキシ；非置換の $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ；同一または異なるハロゲン置換基で 1 ~ 9 置換された $C_1 \sim C_6$ アルキルチオ；アミノ；直鎖または分岐の $C_1 \sim C_6$ アルキル基を有するモノアルキルアミノ；同一または異なる直鎖または分岐の $C_1 \sim C_6$ アルキル基を有するジアルキルアミノ；非置換のフェニル；ハロゲン、ニトロ、シアノ、アルキル、ハロアルキル、アルコキシ、ハロアルコキシ、アルキルチオ、ハロアルキルチオ、アシル、アシルオキシ、アルコキシカルボニル、カルボキシル、アミノ、モノアルキルアミノ、およびジアルキルアミノ、からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 5 置換されたフェニル；からなる群から選択される) か、

または、

R^1 が、非置換のフェニルを表すか、または、ハロゲン、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、アルキル、ハロアルキル、アルコキシ、ハロアルコキシ、アルキルチオ、ハロアルキルチオ、アシル、アシルオキシ、アルコキシカルボニル、カルボキシル、アミノ、モノアルキルアミノ、およびジアルキルアミノからなる群からの同一もしくは異なる置換基で 1 ~ 5 置換されたフェニルを表す、化合物が使用される。

【 0 0 1 1 】

特に、一般式 (I) 中、

R^1 が、水素を表すか；非置換であるかまたは同一もしくは異なる置換基で 1 ~ 4 置換された、直鎖または分岐の $C_1 \sim C_8$ アルキルを表すか；非置換であるかまたは同一もしくは異なる置換基で 1 ~ 4 置換された $C_2 \sim C_6$ アルケニルを表すか；または非置換であるかまたは同一もしくは異なる置換基で 1 ~ 4 置換された $C_2 \sim C_6$ アルキニルを表す

(ここで、同一または異なる置換基で 1 ~ 4 置換された該 $C_1 \sim C_8$ アルキル、 $C_2 \sim C_6$ アルケニル、および $C_2 \sim C_6$ アルキニル基の該置換基は、フッ素；塩素；臭素；ニトロ；シアノ；ヒドロキシル；非置換の $C_1 \sim C_4$ アルコキシ；フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 5 置換された $C_1 \sim C_4$ アルコキシ；非置換の $C_1 \sim C_4$ アルキルチオ；フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 5 置換された $C_1 \sim C_4$ アルキルチオ；アミノ；直鎖または分岐の $C_1 \sim C_4$ アルキル基を有するモノアルキルアミノ；同一または異なる直鎖または分岐の $C_1 \sim C_4$ アルキル基を有するジアルキルアミノ；非置換のフェニル；フッ素、塩素、臭素、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、 $C_1 \sim C_4$ アルキル、フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 5 置換された $C_1 \sim C_4$ ハロアルキル、 $C_1 \sim C_4$ アルコキシ、フッ素、塩素、および、臭素からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 5 置換された $C_1 \sim C_4$ ハロアルコキシ、 $C_1 \sim C_4$ アルキルチオ、フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 5 置換された $C_1 \sim C_4$ ハロアルキルチオ、 $C_1 \sim C_6$ アシル、 $C_1 \sim C_6$ アシルオキシ、 $C_1 \sim C_6$ アルコキシカルボニル、カルボキシル、アミノ、直鎖または分岐の $C_1 \sim C_4$ アルキル基を有するモノアルキルアミノ、同一または異なる直鎖または分岐の $C_1 \sim C_4$ アルキル基を有するジアルキルアミノ、からなる群からの同一または異なる置換基で 1 ~ 4 置換されたフェニル；からなる群から選択される) か、

または、

R^1 が、置換されたフェニルを表すか、または、フッ素；塩素；臭素；ニトロ；シアノ；

ヒドロキシル； $C_1 \sim C_4$ アルキル；フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一もしくは異なる置換基で1～5置換された $C_1 \sim C_4$ ハロアルキル； $C_1 \sim C_4$ アルコキシ；フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一もしくは異なる置換基で1～5置換された $C_1 \sim C_4$ ハロアルコキシ； $C_1 \sim C_4$ アルキルチオ；フッ素、塩素、および臭素からなる群からの同一もしくは異なる置換基で1～5置換された $C_1 \sim C_4$ ハロアルキルチオ； $C_1 \sim C_4$ アシル； $C_1 \sim C_4$ アシルオキシ； $C_1 \sim C_4$ アルコキシカルボニル；カルボキシル；アミノ；直鎖もしくは分岐の $C_1 \sim C_4$ アルキル基を有するモノアルキルアミノ；同一もしくは異なる直鎖もしくは分岐の $C_1 \sim C_4$ アルキル基を有するジアルキルアミノ；からなる群からの同一もしくは異なる置換基で1～4置換されたフェニルを表す、化合物を使用することが好ましい。

10

【0012】

特に、式(I)中、

R^1 が、水素、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*sec*-ブチル、*tert*-ブチル、*n*-ペンチル、*n*-ヘキシル、*n*-ヘプチル、*n*-オクチル、アリル、ビニル、プロパギルを表す(ここで、上述したアルキル基は、それぞれ、場合により、フッ素；塩素；臭素；ニトロ；シアノ；ヒドロキシル；メトキシ；エトキシ；*n*-プロポキシ；イソプロポキシ；*n*-ブトキシ；イソブトキシ；*sec*-ブトキシ；*tert*-ブトキシ；トリフルオロメトキシ；メチルチオ；エチルチオ；*n*-プロピルチオ；イソプロピルチオ；トリフルオロメチルチオ；アミノ；メチルアミノ；エチルアミノ；*n*-プロピルアミノ；イソプロピルアミノ；ジメチルアミノ；ジエチルアミノ；メチルエチルアミノ；ジ-*n*-プロピルアミノ；ジイソプロピルアミノ；非置換のフェニル；フッ素、塩素、臭素、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*tert*-ブチル、トリフルオロメチル、メトキシ、エトキシ、*n*-プロポキシ、イソプロポキシ、*n*-ブトキシ、イソブトキシ、*sec*-ブトキシ、*tert*-ブトキシ、トリフルオロメトキシ、メチルチオ、エチルチオ、*n*-プロピルチオ、イソプロピルチオ、トリフルオロメチルチオ、ホルミル、アセチル、アセチルオキシ、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、カルボキシル、アミノ、メチルアミノ、エチルアミノ、*n*-プロピルアミノ、イソプロピルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、メチルエチルアミノ、ジ-*n*-プロピルアミノ、ジイソプロピルアミノで1～3置換されたフェニル；からなる群からの同一または異なる置換基で1～4置換されている)か、

20

30

または、

R^1 が、非置換のフェニルを表すか、または、フッ素、塩素、臭素、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*s*-ブチル、*tert*-ブチル、トリフルオロメチル、メトキシ、エトキシ、*n*-プロポキシ、イソプロポキシ、*n*-ブトキシ、イソブトキシ、*sec*-ブトキシ、*tert*-ブトキシ、トリフルオロメトキシ、メチルチオ、エチルチオ、*n*-プロピルチオ、イソプロピルチオ、トリフルオロメチルチオ、ホルミル、アセチル、アセチルオキシ、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、カルボキシル、アミノ、メチルアミノ、エチルアミノ、*n*-プロピルアミノ、イソプロピルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、メチルエチルアミノ、ジ-*n*-プロピルアミノ、ジイソプロピルアミノで1～3置換されたフェニルを表す、化合物を使用することが非常に好ましい。

40

【0013】

各定義および好ましい定義および特に好ましい定義に示した基は、所与の特定の組合せとは無関係に、他の組合せの定義の任意の基と置き換えることができる。さらに、好ましい範囲からの基の定義が適用されない場合もある。

【0014】

式(I)中、 R^1 が上述した一般のおよび好ましい意味を有する化合物は、

5 - ヨード - 1 - [(フェニルメトキシ)メチル]テトラゾール(CAS RN: 208122-86-5)

50

5 - ヨード - 1 - ビニルトetraゾール (CAS RN : 1 4 1 6 5 1 - 2 0 - 9)
 1 - アリル - 5 - ヨードテトラゾール (CAS RN : 1 4 1 6 5 1 - 1 9 - 6)
 1 - t e r t - ブチル - 5 - ヨードテトラゾール (CAS RN : 1 4 1 6 5 1 - 1 8 - 5)
 1 - エチル - 5 - ヨードテトラゾール (CAS RN : 1 2 3 3 6 6 - 5 0 - 7)
 5 - ヨードテトラゾール (CAS RN : 6 6 9 2 4 - 1 5 - 0)
 1 - メチル - 5 - ヨードテトラゾール (CAS RN : 3 3 4 5 2 - 1 8 - 5)
 5 - ヨード - 1 - フェニルトetraゾール (CAS RN : 1 6 4 8 4 - 1 6 - 5)
 の化合物を除いて新規なものである。

【 0 0 1 5 】

10

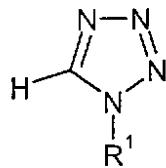
したがって、本発明は、式 (I) の新規な化合物およびその調製方法も提供する。

【 0 0 1 6 】

一般式 (I) の化合物は、一般式 (I I) 、

【 0 0 1 7 】

【 化 2 】



(II)

20

(式中、

R¹ は上記の一般的または好ましい意味を有する)

のテトラゾールを、適切であれば塩基または希釈剤の存在下にヨウ素で処理することによって調製することができる。

【 0 0 1 8 】

通常、本方法における温度は広範囲に変化させてもよい。原則として、反応は、30 ~ - 100、好ましくは0 ~ - 90 で実施され、特に非常に好ましくは、この操作は、- 20 ~ - 80 の範囲内で実施される。

【 0 0 1 9 】

30

塩基は、原則としてあらゆる慣用の塩基が好適である。アルカリ金属アミドやアルカリ金属アルキル化合物等の強塩基が特に有利であることが見出された。以下に述べるものが特に非常に好ましいものであると言えよう：リチウムジイソプロピルアミド、メチルリチウム、エチルリチウム、プロピルリチウム、n - ブチルリチウム、t e r t - ブチルリチウム、ナトリウム、リチウムヘキサメチルジシラジド。

【 0 0 2 0 】

希釈剤としては、ヨウ素とも添加される塩基 (適切な場合) とも反応しないあらゆる溶剤が好ましく使用される。好ましくは、このような溶剤としては、トルエン、キシレン、またはヘキサン等の炭化水素、クロロベンゼン、塩化メチレン、クロロホルム等の塩素化された炭化水素、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、メチル t e r t - ブチルエーテル、ジオキサン等のエーテル、アセトニトリル等のニトリルに加えて、DMSO、DMF、およびNMPが挙げられる。

40

【 0 0 2 1 】

別法として、式 (I) の化合物は、式 (I I I) 、



(式中、

R¹ は上記と同義である)

のイソシアニドを、適切であれば相間移動触媒の存在下に、アジドおよびN - ヨードコハク酸イミドと反応させることによって得ることもできる。

【 0 0 2 2 】

50

通常、本方法における温度は広範囲に変化させてもよく、通常、この反応は、 $-20 \sim -60$ 、好ましくは $-10 \sim -40$ で実施される。

【0023】

相間移動触媒としては、あらゆる慣用の相間移動触媒が好適に使用され、テトラアルキルアンモニウム化合物またはクラウンエーテルが好ましい。ヨウ化テトラブチルアンモニウムが特に好適であることが見出された。

【0024】

溶媒としては、水と混和せず、その一方で使用される出発物質とも反応しないあらゆる慣用の溶媒が好適に使用される。塩素化された炭化水素を使用することが好ましく、クロロベンゼン、塩化メチレン、またはクロロホルムが特に好ましい。

10

【0025】

さらに、一般式(I)の化合物は、一般式(II)(式中、 R^1 は上記と同義である)のテトラゾールを、適切であれば酸の存在下に、かつ適切であれば酸化剤の存在下に、ヨウ素と反応させることによって得ることができる。

【0026】

通常、この反応は、 $0 \sim 150$ 、好ましくは $20 \sim 130$ 、特に好ましくは $80 \sim 110$ で実施される。

【0027】

酸としては、慣用のあらゆる酸が好適に使用される。酢酸または硫酸を使用することが好ましい。

20

【0028】

酸化剤としては、慣用のあらゆる酸化剤が好適に使用される。 $KMnO_4$ 、 HNO_3 、 H_2O_2 、または過酢酸を使用することが好ましく、 $KMnO_4$ を使用することが特に好ましい。

【0029】

式(I)の化合物は強力な殺菌作用を示し、望ましくない微生物、例えば、細菌、真菌、藻類等の微生物を防除するために使用することができる。好ましくは、式(I)の化合物は、材料の保護において望ましくない微生物を防除するために使用される。

【0030】

材料の保護において、本発明による化合物を望ましくない微生物による攻撃および破壊から工業材料を保護するために使用することができる。

30

【0031】

本文脈における工業材料とは、工業的に使用するために調製された生物以外の材料を意味するものと理解される。工業材料とは、例えば、接着剤、サイズ剤、紙および厚紙、繊維製品、皮革、木材、木工製品、塗料およびプラスチック、冷却潤滑剤、ならびに微生物によって攻撃または破壊され得る他の材料である。微生物の繁殖によって損傷を受ける可能性のある生産工場の部品、例えば冷却水路も、本発明の文脈における工業材料と言えよう。保護するのに好ましい工業材料は、接着剤、サイズ剤、紙および厚紙、皮革、木材、塗料、プラスチック、冷却潤滑剤、および熱媒液である。

【0032】

本発明による式(I)の化合物は、木材、プラスチック、冷却潤滑剤、有機または無機水性分散液、および塗料、ニス、プラスター等の塗装系を微生物による攻撃から保護するのに特に好適である。

40

【0033】

工業材料を劣化または変化させる力がある微生物の例としては、細菌、真菌、酵母、藻類、および粘性生物(slime organism)が挙げられるであろう。好ましくは、本発明による式(I)の活性化合物は、真菌、特にカビ、木材変色菌および木材腐朽菌(担子菌類)に加えて、粘性生物および細菌に対しても作用する。

【0034】

一例として、以下に示す属の微生物が挙げられるであろう：

50

アルテルナリア (*Alternaria*) 属、例えば、アルテルナリア・テヌイス (*Alternaria tenuis*)、
アスペルギルス (*Aspergillus*) 属、例えば、アスペルギルス・ニガー (黒コウジ菌) (*Aspergillus niger*)、
ケトミウム (*Chaetomium*) 属、例えば、ケトミウム・グロボスム (*Chaetomium globosum*)、
コニオフォラ (*Coniophora*) 属、例えば、コニオフォラ・プエタナ (*Coniophora puetana*)、
レンチナス (*Lentinus*) 属、例えば、レンチナス・チグリナス (*Lentinus tigrinus*)、
ペニシリウム (*Penicillium*) 属、例えば、ペニシリウム・グラウカム (*Penicillium glaucum*)、
ポリポラス (*Polyporus*) 属、例えば、ポリポラス・ベルシコロール (*Polyporus versicolor*)、
オーレオバシジウム (*Aureobasidium*) 属、例えば、オーレオバシジウム・プルランス (*Aureobasidium pullulans*)、
スクレロフォーマ (*Sclerophoma*) 属、例えば、スクレロフォーマ・ピティオフィラ (*Sclerophoma pityophila*)、
トリコデルマ (*Trichoderma*) 属、例えば、トリコデルマ・ビリデ (*Trichoderma viride*)、
エシェリキア (*Escherichia*) 属、例えば、大腸菌 (*Escherichia coli*)、
シュードモナス (*Pseudomonas*) 属、例えば、緑膿菌 (*Pseudomonas aeruginosa*)、
スタフィロコッカス (*Staphylococcus*) 属、例えば、黄色ブドウ球菌 (*Staphylococcus aureus*)。

【0035】

本発明による式 (I) の化合物は、個々に、または任意の互いの混合物で、工業材料の保護に使用することができる。

【0036】

活性化合物またはその混合物は、それぞれの物理的および/または化学的性質に応じて、さらに、慣用の製剤、例えば、溶液剤、エマルジョン剤、懸濁剤、粉剤、泡沫剤、ペースト剤、粒剤、エアゾール剤、および高分子材料に覆われたマイクロカプセル剤等に変換することができる。

【0037】

これらの製剤および組成物は、周知の方法により、例えば、適切であれば界面活性剤すなわち乳化剤および/または分散剤および/または泡沫形成剤 (foam former) を使用し、活性化合物を増量剤すなわち液体溶剤、加圧された液化ガス、および/または固体担体と一緒に混合することによって調製される。使用される増量剤が水である場合は、例えば、有機溶剤を補助溶剤として使用することも可能である。基本的に、好適な液体溶剤は、キシレン、トルエン、アルキルナフタレン等の芳香族化合物、クロロベンゼン、クロロエチレン、塩化メチレン等の塩素化された芳香族化合物または塩素化された炭化水素、シクロヘキサン、パラフィン類 (例えば鉱油留分) 等の脂肪族炭化水素、ブタノール、グリコール等のアルコールおよびそのエーテルおよびエステル、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のケトン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の高極性溶剤、ならびに水である。液化ガスの増量剤または担体とは、周囲温度および大気圧下で気体である液体、例えば、ハロゲン化炭化水素、ブタン、プロパン、窒素、二酸化炭素等のエアゾール噴射剤を意味する。好適な固体担体は、例えば、カオリン、白土、タルク、胡粉、石英、アタパルジャイト、モンモリロナイト、珪藻土等の天然鉱物の粉碎物、および微粉シリカ、アルミナ、ケイ酸塩等の合成無機化

10

20

30

40

50

合物の粉碎物である。粒剤に好適な固体担体は、例えば、方解石、大理石、軽石、海泡石、苦灰石等の天然石の破碎および分画物、ならびに有機および無機粗砕粉からなる合成顆粒、ならびに鋸屑、ヤシ殻、トウモロコシの穂軸、タバコ茎等の有機材料の顆粒である。好適な乳化剤および/または泡沫形成剤は、例えば、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪族アルコールエーテル等の非イオン性および陰イオン性乳化剤、例えば、アルキルアリールポリグリコールエーテル、アルキルスルホン酸エステル、アルキル硫酸エステル、アリールスルホン酸エステル、ならびにタンパク質加水分解物である。好適な分散剤は、例えば、リグノ亜硫酸塩廃液およびメチルセルロースである。

【0038】

カルボキシメチルセルロース等の粘着付与剤、ならびに粉末、顆粒、またはラテックス形態にあるアラビアゴム、ポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル等の天然および合成ポリマー、ならびにセファリン、レシチン等の天然のリン脂質、ならびに合成のリン脂質を製剤中に使用してもよい。他に可能な添加剤は、鉱油および植物油である。

【0039】

無機顔料、例えば、酸化鉄、酸化チタン、およびプルシアンブルー、ならびにアリザリン染料、アゾ染料、金属フタロシアニン染料等の有機染料等の着色剤、ならびに鉄、マンガン、ホウ素、銅、コバルト、モリブデン、および亜鉛の塩等の微量栄養素を使用することも可能である。

【0040】

この製剤は、通常、活性化合物を0.1~95重量%、好ましくは2~75重量%含有する。

【0041】

本発明は、さらに、本発明による化合物をベースとし、少なくとも1種の溶剤または希釈剤に加えて、適切であれば加工助剤 (processing auxiliary) と、適切であればさらなる抗菌活性化合物とを含む殺菌組成物に関する。この場合、活性化合物は、溶解された形態かまたは懸濁液もしくは乳濁液としてのいずれかでこの中に存在してもよい。溶剤または希釈剤は、水またはあらゆる慣用の有機溶剤のいずれであってもよい。

【0042】

一般に、活性スペクトルを広げるかまたは特定の効果 (例えば昆虫からのさらなる保護等) が得られるように、適切であればさらなる抗菌化合物、殺真菌剤、殺細菌剤、除草剤、殺虫剤、または他の活性化合物を添加することによって、式(I)の活性化合物およびそれから調製可能な組成物、前駆体、または製剤の効力および活性スペクトルを高めることができる。このような混合物は、本発明の化合物よりも広い活性スペクトルを有するであろう。

【0043】

多くの場合は相乗効果が得られる、すなわち、混合物の活性が個々の成分の活性よりも高くなる。以下に示す共成分 (co-component) が特に好ましいことが見出された：

トリアゾール類、例えば、

アザコナゾール、アゾシクロチン、ピテルタノール、ブロムコナゾール、シプロコナゾール、ジクロブトラゾール、ジフェノコナゾール、ジニコナゾール、エポキシコナゾール、エタコナゾール、フェンブコナゾール、フェンクロラゾール、フェネサニル、フルキンコナゾール、フルシラゾール、フルトリアフォル、フルコナゾール、ヘキサコナゾール、イミベンコナゾール、イブコナゾール、イソゾフォス (isozofos)、ミクロブタニル、メトコナゾール、パクロブトラゾール、ペンコナゾール、プロピオコナゾール (propioconazole)、プロチオコナゾール、シメオコナゾール (simeconazole)、(+)-cis-1-(4-クロロフェニル)-2-(1H-1,2,4-トリアゾール-1-イル)シクロヘプタノール、2-(1-tert-ブチル)-1-(2-クロロフェニル)-3-(1,2,4-トリアゾール-1-イル)プロパン-2

10

20

30

40

50

- オール、テブコナゾール、テトラコナゾール、トリアジメホン、トリアジメノール、トリアペンテノール、トリフルミゾール、トリチコナゾール、ウニコナゾール、ならびにこれらの金属塩および酸付加物；

イミダゾール類、例えば、

クロトリマゾール、ピホナゾール、クリンバゾール、エコナゾール、フェナパミル (fenapamil)、イマザリル、イソコナゾール、ケトコナゾール、ロンバゾール、ミコナゾール、ペフラゾエート、ブクロラズ、トリフルミゾール、チアゾールカル (thiazolcar)、1 - イミダゾリル - 1 - (4' - クロロフェノキシ) - 3, 3 - ジメチルブタン - 2 - オン、ならびにこれらの金属塩および酸付加物；

ピリジンおよびピリミジン類、例えば、

アンシミドール、ブチオベート、フェナリモル、メパニピリン (mepanipyridine)、ヌアリモル、ピボキシフル (pyvoxifyl)、トリアミロール (triaminol)；

コハク酸デヒドロゲナーゼ阻害剤、例えば、

ベノダニル、カルボキシム (carboxim)、カルボキシムスルホキシド (carboxim sulfonoxide)、シクラフルアミド、フェンフラム、フルタニル (flutamide)、フルカルバニル、フルメシクロックス、メベニル、メプロニル、メトロキサム、メトスルフォパックス、ニコピフェン、ピロカルボリド (pyrocarridin)、オキシカルボキシン、シルラン (Shirlan)、シードバックス (Seedvax)；

ナフタレン誘導体、例えば、

テルピナフィン、ナフチフィン、ブテナフィン、3 - クロロ - 7 - (2 - アザ - 2, 7, 7 - トリメチルオクト - 3 - エン - 5 - イン)；

スルフェンアミド類、例えば、

ジクロフルアニド、トリルフルアニド、フォルペット、フルオロフォルペット、キャプタン、カプトホル (captofol)；

ベンズイミダゾール類、例えば、

カルベンダジム、ベノミル、フベリダゾール、チアベンダゾール、またはこれらの塩；

モルホリン誘導体、例えば、

アルジモルフ、ジメトモルフ、ドデモルフ、ファリモルフ (falimorph)、フェンプロビジン、フェンプロビモルフ、トリデモルフ、トリモルファミド (trimorphamide)、およびこれらのアリアルスルホン酸、例えば、p - トルエンスルホン酸や p - ドデシルフェニルスルホン酸等の塩；

ベンゾチアゾール類、例えば、

2 - メルカプトベンゾチアゾール；

ベンゾチオフェンジオキシド、例えば、

N - シクロヘキシル - ベンゾ [b] チオフェンカルボキサミド S、S - ジオキシド；

ベンズアミド類、例えば、

2, 6 - ジクロロ - N - (4 - トリフルオロメチルベンジル) ベンズアミド、テクロフタラム；

ホウ素化合物、例えば、

ホウ酸、ホウ酸エステル、ホウ砂；

ホルムアルデヒドおよびホルムアルデヒド放出化合物、例えば、

ベンジルアルコールモノ (ポリ) ヘミホルマール、1, 3 - ビス (ヒドロキシメチル) - 5, 5 - ジメチルイミダゾリジン - 2, 4 - ジオン (DMDMH)、ビスオキサゾリジン、n - ブタノールヘミホルマール、cis - 1 - (3 - クロロアリル) - 3, 5, 7 - トリアザ - 1 - アゾニアアダマンタンクロリド、1 - [1, 3 - ビス (ヒドロキシメチル) - 2, 5 - ジオキソイミダゾリジン - 4 - イル] - 1, 3 - ビス (ヒドロキシメチル) 尿素、ダゾメット、ジメチロール尿素、4, 4 - ジメチルオキサゾリジン、エチレングリコールヘミホルマール、7 - エチルピシクロオキサゾリジン、ヘキサヒドロ - S - トリアジン

10

20

30

40

50

、ヘキサメチレンテトラミン、N - ヒドロキシメチル - N' - メチルチオ尿素、メチレンビスモルホリン、N - (ヒドロキシメチル)グリシン酸ナトリウム、N - メチロールクロロアセトアミド、オキサゾリジン、パラホルムアルデヒド、タウロリン (t a u r o l i n)、テトラヒドロ - 1 , 3 - オキサジン、N - (2 - ヒドロキシプロピル) アミンメタノール、テトラメチロールアセチレンジ尿素 (T M A D) ;

イソチアゾリノン類、例えば、

N - メチルイソチアゾリン - 3 - オン、5 - クロロ - N - メチルイソチアゾリン - 3 - オン、4 , 5 - ジクロロ - N - オクチルイソチアゾリン - 3 - オン、5 - クロロ - N - オクチルイソチアゾリノン、N - オクチルイソチアゾリン - 3 - オン、4 , 5 - トリメチレンイソチアゾリノン、4 , 5 - ベンゾイソチアゾリノン ;

10

アルデヒド類、例えば、

シンナムアルデヒド、ホルムアルデヒド、グルタルジアルデヒド、 β - ブロモシンナムアルデヒド、o - フタルジアルデヒド ;

チオシアン酸エステル、例えば、

チオシアナトメチルチオベンゾチアゾール、メチレンビスチオシアネート ;

第4級アンモニウム化合物およびグアニジン類、例えば、

塩化ベンズアルコニウム、塩化ベンジルジメチルテトラデシルアンモニウム、塩化ベンジルジメチルドデシルアンモニウム、塩化ジクロロベンジルジメチルアルキルアンモニウム、塩化ジデシルジメチルアンモニウム、塩化ジオクチルジメチルアンモニウム、塩化N - ヘキサデシルトリメチルアンモニウム、塩化1 - ヘキサデシルピリジニウム、イミノクタジン三アルベシル酸塩 ;

20

ヨウ素誘導体、例えば、

ジヨードメチル p - トリルスルホン、3 - ヨード - 2 - プロピニルアルコール、4 - クロロフェニル - 3 - ヨードプロパギルホルマール、3 - ブロモ - 2 , 3 - ジヨード - 2 - プロペニルカルバミン酸エチル、2 , 3 , 3 - トリヨードアリルアルコール、3 - ブロモ - 2 , 3 - ジヨード - 2 - プロペニルアルコール、3 - ヨード - 2 - プロピニルカルバミン酸 n - ブチル、3 - ヨード - 2 - プロピニルカルバミン酸 n - ヘキシル、3 - ヨード - 2 - プロピニルカルバミン酸シクロヘキシル、3 - ヨード - 2 - プロピニルカルバミン酸フェニル ;

フェノール類、例えば、

30

トリプロモフェノール、テトラクロロフェノール、3 - メチル - 4 - クロロフェノール、3 , 5 - ジメチル - 4 - クロロフェノール、ジクロロフェン、2 - ベンジル - 4 - クロロフェノール、トリクロサン、ダイクロサン、ヘキサクロロフェン、p - ヒドロキシ安息香酸メチル、p - ヒドロキシ安息香酸エチル、p - ヒドロキシ安息香酸プロピル、p - ヒドロキシ安息香酸ブチル、p - ヒドロキシ安息香酸オクチル、o - フェニルフェノール、m - フェニルフェノール、p - フェニルフェノール、4 - (2 - t e r t - ブチル - 4 - メチルフェノキシ) フェノール、4 - (2 - イソプロピル - 4 - メチルフェノキシ) フェノール、4 - (2 , 4 - ジメチルフェノキシ) フェノール、ならびにこれらのアルカリ金属塩およびアルカリ土類金属塩 ;

活性化されたハロゲン基を有する殺菌剤、例えば、

40

プロノボル、プロニドクス (b r o n i d o x)、2 - ブロモ - 2 - ニトロ - 1 , 3 - プロパンジオール、2 - ブロモ - 4' - ヒドロキシアセトフェノン、1 - ブロモ - 3 - クロロ - 4 , 4 , 5 , 5 - テトラメチル - 2 - イミダゾリジノン、 β - ブロモ - β - ニトロスチレン、クロロアセトアミド、クロラミンT、1 , 3 - ジプロモ - 4 , 4 , 5 , 5 - テトラメチル - 2 - イミダゾリジノン、ジクロラミンT、3 , 4 - ジクロロ (3 H) - 1 , 2 - ジチオール - 3 - オン、2 , 2 - ジプロモ - 3 - ニトリルプロピオンアミド、1 , 2 - ジプロモ - 2 , 4 - ジシアノブタン、ハラン (h a l a n e)、ハラゾン、ムコクロル酸、フェニル (2 - クロロシアノビニル) スルホン、フェニル (1 , 2 - ジクロロ - 2 - シアノビニル) スルホン、トリクロロイソシアヌル酸 ;

ピリジン類、例えば、

50

1 - ヒドロキシ - 2 - ピリジンチオン (およびこれらの Cu、Na、Fe、Mn、Zn 塩)、テトラクロロ - 4 - メチルスルホニルピリジン、ピリメタノール (pyrimethanol)、メパニピリム、ジピリチオン、1 - ヒドロキシ - 4 - メチル - 6 - (2, 4, 4 - トリメチルペンチル) - 2 (1 H) - ピリジン ;

メトキシアクリレートまたはその類似体、例えば、

アゾキシストロビン、ジモキシストロビン、フルオキサストロビン、クレソキシム - メチル、メトミノストロビン、オリサストロビン、ピコキシストロビン、ピラクロストロビン、トリフロキシストロビン、2, 4 - ジヒドロ - 5 - メトキシ - 2 - メチル - 4 - [2 - [[[1 - [3 - (トリフルオロメチル) フェニル] エチリデン] アミノ] オキシ] メチル] フェニル] - 3 H - 1, 2, 4 - トリアゾール - 3 - オン (CAS - No. 185 336 - 79 - 2) ;

10

金属石鹸、例えば、

高級脂肪酸、樹脂酸、ナフテン酸、およびリン酸の金属スズ、銅、および亜鉛の塩、例えば、ナフテン酸スズ、オクタン酸スズ、2 - エチルヘキサン酸スズ、オレイン酸スズ、リン酸スズ、安息香酸スズ、ナフテン酸銅、オクタン酸銅、2 - エチルヘキサン酸銅、オレイン酸銅、リン酸銅、安息香酸銅、ナフテン酸亜鉛、オクタン酸亜鉛、2 - エチルヘキサン酸亜鉛、オレイン酸亜鉛、リン酸亜鉛、安息香酸亜鉛 ;

金属塩、例えば、

金属スズ、銅、および亜鉛の塩に加えて、クロム酸塩およびニクロム酸塩、例えば、ヒドロキシ炭酸銅、ニクロム酸ナトリウム、ニクロム酸カリウム、クロム酸カリウム、硫酸銅、塩化銅、ホウ酸銅、フルオロケイ酸亜鉛、フルオロケイ酸銅等 ;

20

酸化物、例えば、

金属スズ、銅、および亜鉛の酸化物、例えば、トリブチルスズオキシド、Cu₂O、CuO、ZnO 等 ;

酸化剤、例えば、

過酸化水素、過酢酸、過硫酸カリウム ;

ジチオカルバメート類、例えば、

クフラネブ、フェルバン、カリウム N - ヒドロキシメチル - N' - メチルジチオバルバメート (methyl dithiobarbamate)、ジメチルジチオカルバミン酸ナトリウム、ジメチルジチオカルバミン酸カリウム、マコゼブ (macozeb)、マンネブ、メタム、メチラム、チラム、ジネブ、ジラム ;

30

ニトリル類、例えば、

2, 4, 5, 6 - テトラクロロイソフタロニトリル、シアノジチオイミドカルバミン酸ナトリウム ;

キノリン類、例えば、

8 - ヒドロキシキノリン類およびその銅塩 ;

それ以外の殺真菌剤および殺細菌剤、例えば、

ベソザキシム (bethoxazin)、5 - ヒドロキシ - 2 (5 H) - フラノン、4, 5 - ベンゾジチアゾリノン、4, 5 - トリメチレンジチアゾリノン、N - (2 - p - クロロベンゾイルエチル) ヘキサミニウムクロリド、2 - オキソ - 2 - (4 - ヒドロキシフェニル) アセトヒドロキシシンナモイルクロリド、トリス - N - (シクロヘキシルジアゼニウムジオキシ) - アルミニウム、N - (シクロ - ヘキシルジアゼニウムジオキシ) - トリブチルスズまたはそのカリウム塩、ビス - N - (シクロヘキシルジアゼニウムジオキシ) - 銅、イプロバリカルブ、フェンヘキサミド、スピロキサミン、カルプロパミド、ジフルメトリン (diflumeronin)、キノキシフェン、ファモキサドン、ポリオキシリム (polyoxorim)、アシベンゾラル - S - メチル、フラメトピル、チフルザミド、メタラキシ - M (methalaxy - M)、ベンチアパリカルブ、メトラフェノン (metrafenon)、シフルフェナミド、チアジニル、ティーツリーオイル、フェノキシエタノール ;

40

Ag、Zn または Cu 含有ゼオライトを単独とするかまたは高分子材料に組み込んだもの

50

。

【 0 0 4 4 】

なかでも、

アザコナゾール、ブロムコナゾール、シプロコナゾール、ジクロブトラゾール、ジニコナゾール、ジウロン、ヘキサコナゾール、メタコナゾール (metaconazole)、ペンコナゾール、プロピコナゾール、テブコナゾール、ジクロフルアニド、トリルフルアニド、フルオロフォルベット、メスフロキサム、カルボキシシン、ベンゾ [b] チオフェン - S、S - ジオキシド、シクロヘキシルカルボキサミド、フェンピクロニル、4 - (2, 2 - ジフルオロ - 1, 3 - ベンゾジオキソール - 4 - イル) - 1H - ピロール - 3 - カルボニトリル、プテナフィン、イマザリル、N - メチル - イソチアゾリン - 3 - オン、5 - クロロ - N - メチルイソチアゾリン - 3 - オン、N - オクチルイソチアゾリン - 3 - オン、ジクロロ - N - オクチルイソチアゾリノン、メルカプトベンチアゾール (mercaptobenthiazole)、チオシアナトメチルチオベンゾチアゾール、チアベンダゾール、ベンゾイソチアゾリノン、N - (2 - ヒドロキシプロピル) アミノメタノール、ベンジルアルコール (ヘミ) ホルマール、N - メチロールクロロアセトアミド、N - (2 - ヒドロキシプロピル) アミンメタノール、グルタルアルデヒド、オマジン、Zn - オマジン、二炭酸ジメチル、2 - ブロモ - 2 - ニトロ - 1, 3 - プロバンジオール、3 - ヨード - 2 - プロピニル n - プチルカルバメート、ベトキサジン、o - フタルジアルデヒド、2, 2 - ジブromo - 3 - ニトリル - プロピオンアミド、1, 2 - ジブromo - 2, 4 - ジシアノブタン、1, 3 - ビス (ヒドロキシメチル) - 5, 5 - ジメチルイミダゾリジン - 2, 4 - ジオン (DMDMH)、テトラメチロールアセチレンジ尿素 (TMAD)、エチレングリコールヘミホルマール、p - ヒドロキシ安息香酸、カルベンダジム、クロロフェン、3 - メチル - 4 - クロロフェノール、o - フェニルフェノールとの混合物が非常に好ましい。

【 0 0 4 5 】

さらに、上述の殺真菌剤および殺細菌剤を用いることとは別に、他の活性化化合物と一緒に用いても、優れた効力を有する混合物が調製される：

殺虫剤 / 殺ダニ剤 / 殺線虫剤：

アバメクチン、アセフェート、アセタミプリド、アセトプロール、アクリナトリン、アラニカルブ、アルジカルブ、アルドキシカルブ、アルドリノ、アレスリン、アルファ - シベルメトリン、アミドフルメト、アミトラズ、エバーメクチン、アザジラクチン、アジンホス A、アジンホス M、アゾシクロチン、

バチルス・チューリンゲンシス、バルスリン、4 - ブロモ - 2 (4 - クロロフェニル) - 1 - (エトキシメチル) - 5 - (トリフルオロメチル) - 1H - ピロール - 3 - カルボニトリル、ベンダイオカルブ、ベンフラカルブ、ベンスルタップ、ベータ - シフルトリン、ピフェントリン、ピオレスメトリン、バイオアレスリン、ピストリフルロン、プロモホス A、プロモホス M、ブフェンカルブ (bufencarb)、ブプロフェジン、ブタチオホス (butathios)、ブトカルボキシム、ブトキシカルボキシム、

カズサホス、カルバリル、カルボフラン、カルボフェノチオン、カルボスルファン、カルタップ、キノメチオネート、クロエトカルブ、4 - クロロ - 2 - (2 - クロロ - 2 - メチルプロピル) - 5 - [(6 - ヨード - 3 - ピリジニル) メトキシ] - 3 (2H) - ピリダジノン (CAS - RN: 120955 - 77 - 3)、クロルデン、クロルエトキシホス、クロルフェナピル、クロルフェンピンホス、クロルフルアズロン、クロルメホス、N - [(6 - クロロ - 3 - ピリジニル) メチル] - N' - シアノ - N - メチルエタンイミドアミド、クロロピクリン、クロルピリホス A、クロルピリホス M、シス - レスメトリン、クロシスリン (clopythrin)、クロチアゾベン (clothiazoben)、シポフェノスリン (cypophenothrin)、クロフェンテジン、クマホス、シアノホス、シクロプロトリン、シフルトリン、シハロトリン、シヘキサチン、シベルメトリン、シロマジン、

デカメスリン、デルタメトリン、ジメトン M、ジメトン S、ジメトン - S - メチル、ジア

10

20

30

40

50

フェンチウロン、ジアリホス (dialiphos)、ダイアジノン、1,2-ジベンゾ
 イル-1 (1,1-ジメチル)ヒドラジン、DNOC、ジクロロフェンチオン、ジクロル
 ボス、ジクリホス (dicliphos)、ジクロトホス、ジフェチアロン、ジフルベン
 ズロン、ジメトエート、メチルカルバミン酸 3,5-ジメチルフェニル、ジメチル (フェ
 ニル)シリルメチル-3-フェノキシベンジルエーテル、ジメチル (4-エトキシフェニ
 ル)シリルメチル-3-フェノキシベンジルエーテル、ジメチルピンホス、ジオキサチオ
 ン、ジスルホトン、

エフルシラネート (eflusilanate)、エマメクチン、エムペントリン、エン
 ドスルファン、EPN、エスフェンバレレート、エチオフェンカルブ、エチオン、エトフ
 ェンブロックス、エトリムホス、エトキサゾール、エトベンザニド、

10

フェナミホス、フェナザキン、酸化フェンブタスズ、フェンフルスリン、フェニトロチオ
 ン、フェノブカルブ、フェノチオカルブ、フェノキシカルブ、フェンブロパトリン、フェ
 ンピラド、フェンピロキシメート、フェンスルホチオン、フェンチオン、フェンバレレ
 ト、フィプロニル、フロニカミド、フルアクリピリム、フルアズロン、フルシクロクスロ
 ン、フルシトリネート、フルフェネリム、フルフェノクスロン、フルピラゾホス、フルフ
 ェンジン (flufenzine)、フルメトリン、フルフェンブロックス、フルバリネ
 ート、ホノホス、ホルメタネート (formethanate)、ホルモチオン、フォス
 メチラン (fosmethilan)、ホスチアゼート、ファブフェンブロクス (fub
 fenprox)、フラチオカルブ、

ハロフェノシド (halofenocid)、HCH、(CAS RN: 58-89-9)、ヘプテノホス、ヘキサフルムロン、ヘキシチアゾクス、ヒドラメチルノン、ヒドロブ
 レン、

20

イミダクロプリド、イミプロトリン、インドキシカルブ (indoxycarb)、ヨ
 ドフェンフォス (iodfenfos)、イプリノメクチン (iprinomectin)、イ
 プロベンホス、イサゾホス、イソアミドホス (isoamidophos)、イソ
 フェンホス、イソプロカルブ、イソプロチオラン、イソキサチオン、イベルメクチン、
 カデドリン (kadedrin)

ラムダ-シハロトリン、ルフエヌロン、

マラチオン、メカルバム、メルビンホス (mervinphos)、メスルフェンホス (mesulfenphos)、メタルデヒド、メタクリホス、メタミドホス、メチダチオ
 ン、メチオカルブ、メソミル、メタルカルブ (metalcarb)、ミルベメクチン、
 モノクロトホス、モキシエクチン (moxiectin)、

30

ナレド、NI 125、ニコチン、ニテンピラム、ノピフルムロン、

オメトエート、オキサミル、オキシデメトンM、オキシデプロホス、

パラチオンA、パラチオンM、ペンフルロン (penfluron)、ペルメトリン、エ
 チルカルバミン酸 2-(4-フェノキシフェノキシ)エチル、フェントエート、ホレート
 、ホサロン、ホスメット、ホスファミドン、ホキシム、ピリミカーブ、ピリミホスM、ピ
 リミホスA、ブラレスリン (prallethrin)、プロフェノホス、プロメカルブ
 、プロパホス、プロボキスル、プロチオホス、プロトエート、ピメトロジン (pymet
 rozin)、ピラクロホス (pyrachlrophos)、ピリダフェンチオン、ピレ
 スメトリン、ピレスラム、ピリダベン、ピリダリル、ピリミジフェン、ピリプロキシフェ
 ン (pyriproxifen)、ピリチオバックナトリウム、

40

キナルホス、

レスメトリン、ロテノン、

サリチオン、セブフォス、シラフルオフエン、スピノサド、スピロジクロフェン、スピロ
 メシフェン、スルホテップ、スルプロホス、

タウ-フルバリネート、タロリス (taroil)、テブフェノジド、テブフェンピラ
 ド、テブピリムホス、テフルベンズロン、テフルトリン、テメホス、ターバム、テルブホ
 ス、テトラクロルピンホス、テトラメトリン、テトラメタカルブ (tetrametha
 carb)、チアクロプリド、チアフェノックス (thiafenox)、チアメトキサ

50

ム、チアプロニル (thiapronil)、チオジカルブ、チオフアノックス、チアゾ
 ホス (thiazophos)、チオシクラム、チオメソン (thiomethon)、
 チオナジン、スリンギエンシン、トラロメトリン、トランスフルトリン、トリアラテン (triarathen)、トリアゾホス、トリアザメート、トリアズロン トリクロロホ
 ン、トリフルムロン、トリメタカルブ、

バミドチオン、キシリルカルブ、ゼーターメスリン；

殺軟体動物剤：

フェンチンアセテート、メトアルデヒド、メチオカルブ、ニクロサミド；

除草剤および殺藻剤：

アセトクロール、アシフルオルフェン、アクロニフェン、アクロレイン、アラクロール、
 アロキシジム、アメトリン、アミドスルフロン、アミトロール、スルファミン酸アンモニ
 ウム、アニロホス、アシュラム、アトラジン、アザフェニジン、アジプトロトリン (az
 iptrotryne)、アジムスルフロン、

ベナゾリン、ベンフルラリン、ベンフレセート、ベンスルフロン、ベンスルフィド (be
 nsulfide)、ベンタゾン、ベンゾフェンキャップ (benzofencap)、
 ベンズチアズロン、ピフェノックス、ビスピリバック、ビスピリバック - ナトリウム、ホ
 ウ砂、プロマシル、プロモブチド、プロモフェノキシム、プロモキシニル、ブタクロール
 、ブタミホス、ブトラリン、ブチレート、ピアラホス、ベンゾイルプロップ、プロモブチ
 ド、ブトロキシジム、

カルベタミド、カルフェントラゾン - エチル、カルフェンストロール (carfenst
 role)、クロメトキシフェン、クロラムベン、クロルブロムロン、クロルフルレノー
 ル、クロリダゾン、クロリムロン、クロルニトロフェン、塩化酢酸、クロランスラム (c
 hlora nsulam) - メチル、シニドン - エチル、クロロトルロン、クロロクスロ
 ン、クロルプロファム、クロルスフロン、クロルタール、クロルチアミド、シンメチリン
 、シノフルスロン (cino fulsuron)、クレフォキシジム (clefoxyd
 im)、クレトジム、クロマゾン、クロメプロップ、クロピラリド、シアナミド、シアナ
 ジン、シクロエート、シクロキシジム、クロロキシニル (chloroxy nil)、ク
 ロジナホップ - プロパギル、クミルロン、クロメトキシフェン、シハロホップ、シハロホ
 ップ - ブチル、クロピラスルロン (clopyrasuluron)、シクロスルフアム
 ロン、

ジクロスラム、ジクロルプロップ、ジクロルプロップ - P、ジクロホップ、ジエタチル、
 ジフェノクスロン、ジフェンゾコート、ジフルフェニカン、ジフルフェンゾピル、ジメフ
 ロン、ジメピペレート (dimepiperate)、ジメタクロル、ジメチピン、ジニ
 トラミン、ジノセブ、酢酸ジノセブ、ジノテルブ、ジフェナミド、ジプロペトリン、ジク
 ワット、ジチオピル、ジズロン (diduron)、DNOC、DSMA、2, 4 - D、
 ダイムロン、ダラボン、ダゾメット、2, 4 - DB、デスメディファム、デスメトリン、
 ジカンバ、ジクロベニル、ジメタミド (dimethamid)、ジチオピル、ジメタメ
 トリン、

エグリナジン、エンドタール、EPTC、エスプロカルブ、エタルフルラリン、エチジム
 ロン、エトフメセート、エトベンザニド (ethobenzanid)、エトキシフェン
 、エタメツルフロン、エトキシスルフロン、

フェノキサプロップ、フェノキサプロップ - P、フェヌロン、フラムプロップ、フラムプ
 ロップ - M、フラザスルフロン、フルアジホップ、フルアジホップ - P、フェナクロール
 (fuenachlor)、フルクロラリン、フルフェナセート、フルメツロン (flu
 meturon)、フルオロクグリコフェン (fluorocglycofen)、フル
 オロニトロフェン (fluoronitrofen)、フルプロパネート、フルレノール
 、フルリドン、フルロクロリドン、フルロキシピル、フォメサフェン、ホサミン、フォサ
 メチン (fosametine)、フラムプロップ - イソプロピル、フラムプロップ - イ
 ソプロピル - L、フルフェンピル、フルミルクロラック - ペンチル、フルミプロピン、フ
 ルミオキシジム (flumioxzim)、フルタモン、フルミオキサジン、フルピルス

10

20

30

40

50

ルフロン - メチル、フルチアセット - メチル、
 グリホサート、グルホシネート - アンモニウム、
 ハロキシホップ、ヘキサジノン、
 イマザメタベンズ、イソプロツロン、イソキサベン、イソキサピリホップ (i s o x a p y r i f o p)、イマザビル、イマザキン、イマゼタビル、アイオキシニル、イソプロバリ
 リン、イマゾスルフロン、イマゾモックス (i m a z o m o x)、イソキサフルトール、
 イマザビック、
 ケトスピラドックス (k e t o s p i r a d o x)、
 ラクトフェン、レナシル、リニユロン、
 MCPA、MCPA - ヒドラジド、MCPA - チオエチル、MCPB、メコプロップ、メ
 コプロップ - P、メフェナセット、メフルイジド、メソスルフロン、メタム、メタミホッ
 プ、メタミトロン、メタザクロール、メタベンズチアズロン、メタゾール、メトロブトリ
 ン (m e t h o r o p t r y n e)、メチルダイムロン、イソチオシアン酸メチル、メト
 プロムロン、メトクスロン、メトリブジン、メトスルフロン、モリネート、マロリド (m a n o l i d e)、モノリニユロン、MSMA、メトラクロール、メトスラム、メトベン
 ズロン、
 ナプロアニリド、ナプロパミド、ナブタラム、ネブロン、ニコスルフロン、ノルフラゾン
 、塩素酸ナトリウム、
 オキサジアゾン、オキシフルオロフェン、オキシスルフロン (o x y s u l f u r o n)
 、オルベンカルブ、オリザリン、オキサジアルギル、
 プロピザミド、プロスルホカルブ、ピラゾレート、ピラゾールスルフロン (p y r a z o l s u l f u r o n)、ピラゾキシフェン、ピリベンゾキシム、ピリブチカルブ、ピリデ
 ート、パラコート、ペブレート、ペンディメタリン、ペンタクロロフェノール、ペントキ
 サゾン、ペンタノクロール、石油、フェンメディファム、ピクロラム、ピペロホス、プレチ
 ラクロール、プリミスルフロン、プロジアミン、プロホキシジム、プロメトリン、プロパ
 クロール、プロパニル、プロバキザフォブ (p r o p a q u i z a f o b)、プロバジン
 、プロファム、プロピソクロール、ピリミノバック - メチル、ペラルゴン酸、ピリチオバ
 ック、ピラフルフェン - エチル、
 キンメラック、キノクロアミン (q u i n o c l o a m i n e)、キザロホップ、キザロ
 ホップ - P、キンクロラック、
 リムスルフロン、
 セトキシジム、シフロン (s i f u r o n)、シマジン、シメトリン、スルホスルフロン
 、スルホメツロン、スルフェントラゾン、スルコトリオン、スルホサート、
 タール油、TCA、TCA - ナトリウム、テブタム、テブチウロン、ターバシル、テルブ
 メトン、テルブチラジン、テルブトリン、チアザフルオロン (t h i a z a f l u o r o n)、チフェンスルフロン、チオベンカルブ、チオカルバジル (t h i o c a r b a z i l)、トラルコキシジム、トリアレート、トリアスルフロン、トリベヌロン、トリクロピ
 ル、トリジファン、トリエタジン、トリフルオラリン (t r i f l u o r a l i n)、タ
 イコール (t y c o r)、スダジミン (t h d i a z i m i n)、チアゾビル、トリスル
 フロン、
 バーノレート (v e r n o l a t e)。

【0046】

好ましくは、このような活性化合物の組合せにおける活性化合物の重量比は、比較的広範囲に変化させることができる。

【0047】

好ましくは、この活性化合物の組合せは、0.1 ~ 99.9%、特に1 ~ 75%、特に好ましくは5 ~ 50%の量の活性化合物を含み、100%の残余分は、1種またはそれ以上の上述した共成分である。

【0048】

工業材料を保護するために使用される殺菌組成物または濃縮物は、活性化合物または活

10

20

30

40

50

性化合物の組合せを、0.01～95重量%、特に0.1～60重量%の濃度で含む。

【0049】

使用される活性化合物または活性化合物の組合せの使用濃度は、防除すべき微生物の性質および発生頻度ならびに保護すべき材料の組成に依存する。最適な適用比率は一連の試験によって決定することができる。使用濃度は、一般に、保護すべき材料を基準として0.001～5重量%、好ましくは0.05～2.0重量%の範囲である。

【0050】

本発明による活性化合物または組成物を用いると、有利には、現在利用可能な殺菌組成物をより有効な組成物に置き換えることが可能となる。これらは安定性に優れ、有利には、広い活性スペクトルを有する。

10

【0051】

この活性化合物の施用は、そのまま使用できる溶液剤、エマルジョン剤、懸濁剤、水和剤、ペースト剤、水溶液剤、飛散性粉剤 (dustable product)、粒剤等の製剤の形態またはそれから調製された使用形態のような状態で行ってもよい。施用は、慣用の方法、例えば、灌水施用 (watering)、噴霧、アトマイジング、ばら撒き散布 (broadcasting)、散粉、泡散布、散布 (spreading) 等によって実施される。

【0052】

以下に示す実施例は、本発明を何ら限定することなく例示するものである。

[実施例]

20

【0053】

実施例1 (経路A)

5 - ヨード - 1 - ブチルテトラゾール

不活性ガス雰囲気中、1 - ブチルテトラゾール 0.03 mol (3.78 g) の無水テトラヒドロフラン 40 ml 溶液を -78 に冷却し、ブチルリチウム (ヘキサン中、1.6 M) 0.032 mol (20 ml) を、反応混合物の温度が -70 を超えないように滴下する。この混合物を同温度で30分間攪拌した後、ヨウ素 0.03 mol (7.61 g) を含む無水テトラヒドロフラン 10 ml を滴下する。同温度で30分間攪拌した後、反応混合物を -30 に加温し、水 1 ml を慎重に加える。溶媒を減圧下で留去し、残渣に酢酸エチル/水を加える。水相を酢酸エチルで抽出し、有機層を合一してチオ硫酸ナトリウム溶液および飽和塩化ナトリウム溶液で洗浄した後、硫酸ナトリウムで乾燥する。溶媒を減圧留去した後に得られた残渣をクロマトグラフィー (移動相: クロロホルム) で精製する。これにより、融点 31～37 の5 - ヨード - 1 - ブチルテトラゾール 2.2 g (30%) を得る。

30

【0054】

実施例2 (調製経路B)

5 - ヨード - 1 - フェニルテトラゾール

N - ヨードコハク酸イミド 9.7 mmol (2.18 g) を含むクロロホルム 10 ml の混合物を 0 に冷却し、激しく攪拌しながら、アジ化ナトリウム 9.7 mmol (0.63 g) の水 10 ml 溶液およびテトラメチルアンモニウムヨード 0.1 g を加える。5分間攪拌した後、フェニルイソシアニド 9.7 mmol (1 g) のクロロホルム溶液を滴下し、反応混合物を 0 で45分間攪拌する。反応混合物を室温に戻し、さらにクロロホルム 10 ml を加える。相を分離し、有機層を水で3回、飽和チオ硫酸ナトリウムで1回、再び水で、次いで飽和塩化ナトリウム溶液で洗浄する。硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を減圧留去し、残渣をエタノールまたは石油系油 (沸点 80～110) / 酢酸エチルから再結晶させる。これにより、融点 123～129 の5 - ヨード - フェニルテトラゾール 0.2 g (8%) を得る。

40

【0055】

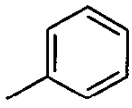
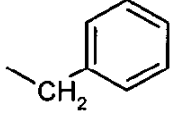
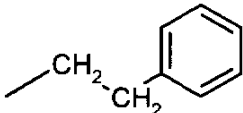
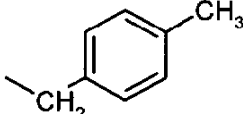
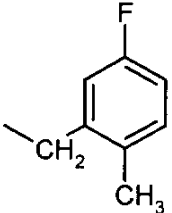
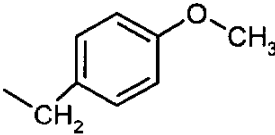
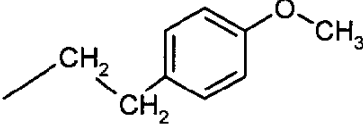
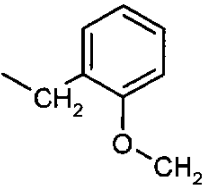
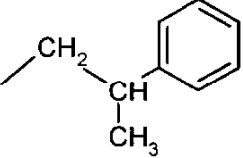
表1に記載した化合物は、実施例1および2と同様にして調製したものである。

【0056】

50

【表 1】

表 1 (式 1 の代表的な化合物)

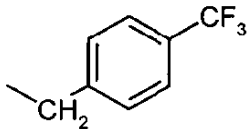
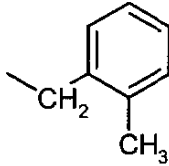
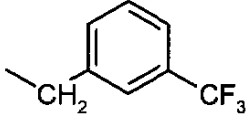
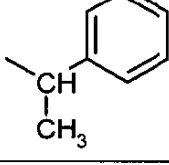
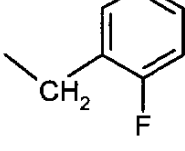
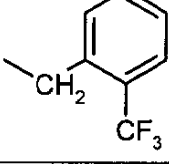
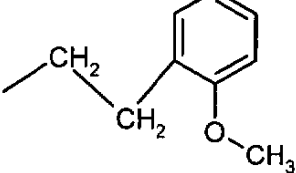
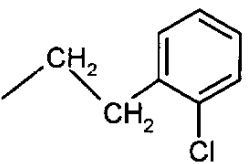
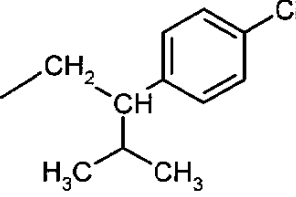
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
1	$-n-C_4H_9$	A	m. p. = 31 ~ 37°C
2		B	m. p. = 123 ~ 129°C
3		A	m. p. = 99 ~ 102°C
4		A	m. p. = 118 ~ 120°C
5		A	TLC : R _f = 0.29 (EA/ヘキサン = 1 : 1)
6		A	TLC : R _f = 0.41 (EA/ヘキサン = 1 : 2)
7		A	TLC : R _f = 0.45 (EA/ヘキサン = 1 : 1)
8		A	TLC : R _f = 0.43 (EA/ヘキサン = 1 : 1)
9		A	TLC : R _f = 0.45 (EA/ヘキサン = 1 : 1)
10		A	TLC : R _f = 0.56 (EA/ヘキサン = 1 : 1)

10

20

30

40

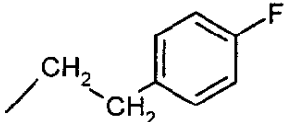
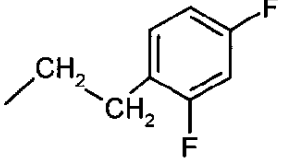
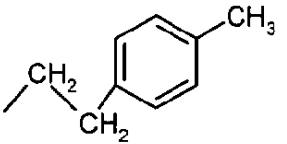
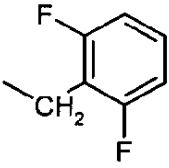
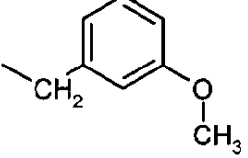
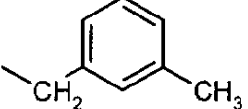
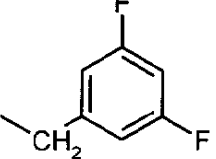
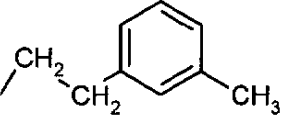
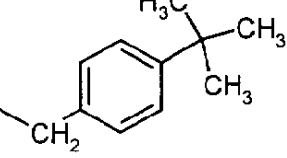
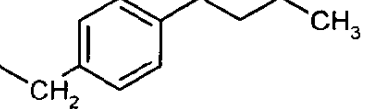
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
1 1		A	TLC : R _f = 0.43 (EA/ヘキサン = 1 : 1)
1 2		A	TLC : R _f = 0.39 (EA/ヘキサン = 1 : 2)
1 3		A	TLC : R _f = 0.41 (EA/ヘキサン = 1 : 2)
1 4		A	TLC : R _f = 0.3 (EA/ヘキサン = 1 : 2)
1 5		A	m. p = 91°C
1 6		A	m. p = 103°C
1 7		A	m. p = 80°C
1 8		A	m. p = 96°C
1 9		A	m. p = 111°C

10

20

30

40

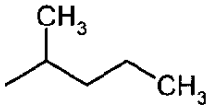
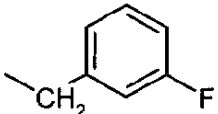
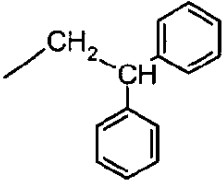
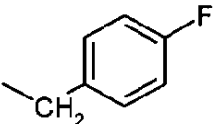
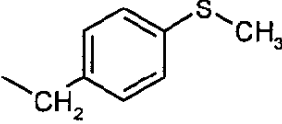
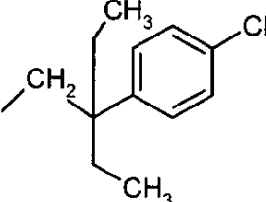
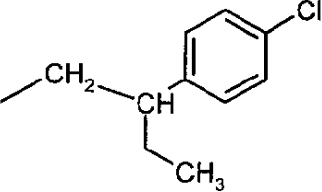
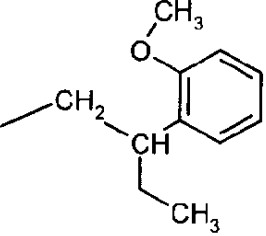
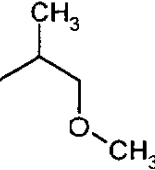
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
20		A	m. p = 137 °C
21		A	m. p = 107 °C
22		A	TLC : R _f = 0.41 (EA/ヘキサン)
23		A	m. p = 102 °C
24		A	TLC : R _f = 0.40 (EA/ヘキサン)
25		A	m. p = 85 °C
26		A	m. p = 135 °C
27		A	m. p < 50 °C
28		A	m. p = 120 °C
29		A	m. p = 79 °C

10

20

30

40

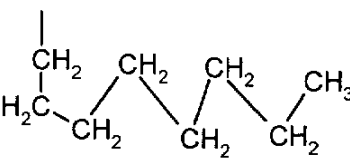
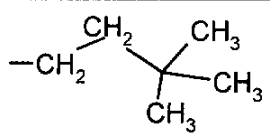
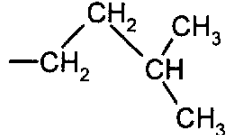
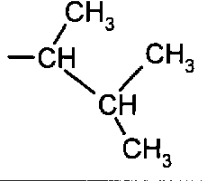
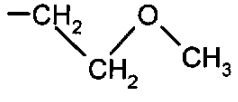
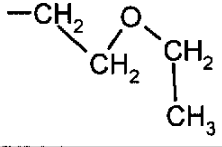
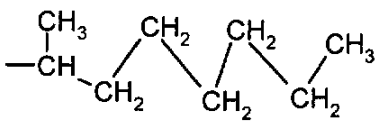
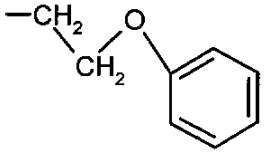
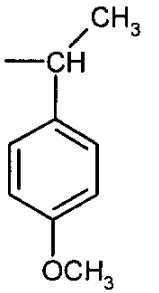
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
30		A	m. p > 260 °C
31		A	m. p = 45 °C
32		A	TLC : R _f = 0.49 (EA/ヘキサン)
33		A	m. p = 109 °C
34		A	TLC : R _f = 0.23 (EA/ヘキサン)
35		A	TLC : R _f = 0.67 (EA/ヘキサン)
35		A	TLC : R _f = 0.34 (EA/ヘキサン)
36		A	m. p = 123 °C
37		A	n _D = 1.5323

10

20

30

40

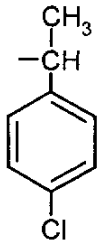
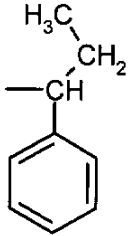
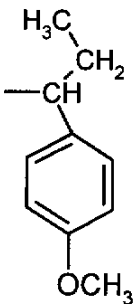
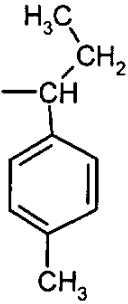
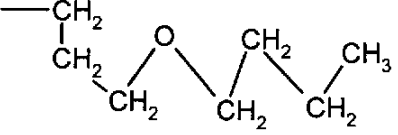
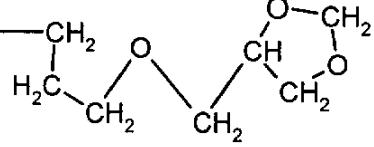
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
38		A	m. p. = 40 °C
39		A	m. p. = 125 °C
40		A	m. p. = 63 °C
41		A	TLC : R _f = 0.6 (tol / EA 5 : 2)
42		A	m. p. = 94 °C
43		A	TLC : R _f = 0.6 (tol / EA 5 : 2)
44		A	TLC : R _F = 0.7 (tol / EA 5 : 2)
45		A	m. p. = 106 °C
46		A	TLC : R _f = 0.55 (tol / EA 5 : 3)

10

20

30

40

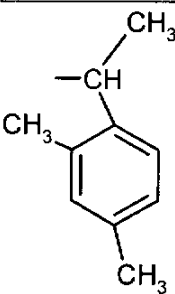
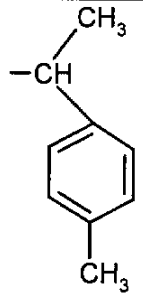
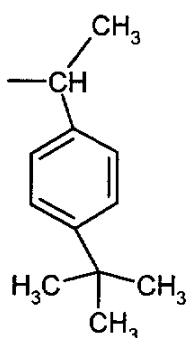
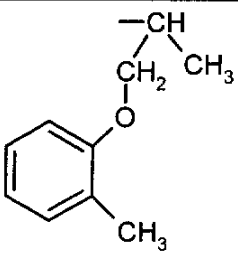
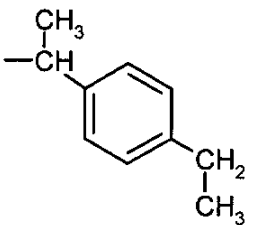
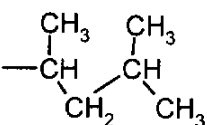
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
47		A	m. p. = 77°C
48		A	m. p. = 67°C
49		A	TLC: R _f = 0.75 (tol/EA 5:3)
50		A	TLC: R _f = 0.8 (tol/EA 5:3)
51		A	TLC: R _f = 0.6 (tol/EA 5:3)
52		A	TLC: R _f = 0.25 (tol/EA 5:3)

10

20

30

40

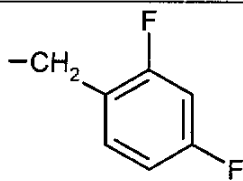
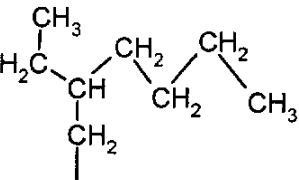
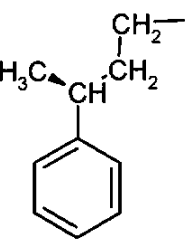
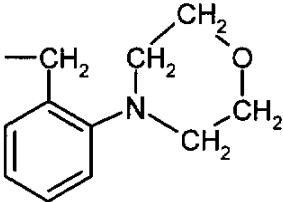
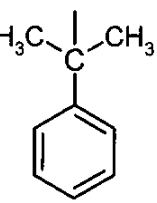
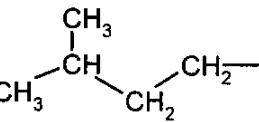
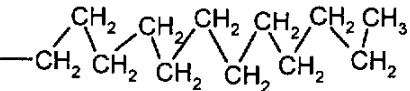
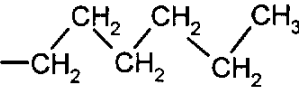
実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
5 3		A	m. p. = 100 °C
5 4		A	m. p. = 95 °C
5 5		A	TLC : R _f = 0.75 (tol / EA 5 : 3)
5 6		A	m. p. = 134 °C
5 7		A	m. p. = 50 °C
5 8		A	m. p. = 60 °C

10

20

30

40

実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
5 9		A	m. p. = 8 8 °C
6 0		A	T L C : R f = I
6 1		A	T L C : R f = 0 . 3 2 (E A / ヘキサン = 1 : 1)
6 2		A	m. p. = 1 4 8 °C
6 3		A	m. p. = 1 3 0 °C
6 4		A	m. p. = 5 8 °C
6 5		A	m. p. = 5 2 °C
6 6		A	m. p. = 3 2 °C

10

20

30

40

実施例番号	R ¹	調製経路	物理データ
67		A	TLC : Rf = 0.19 (EA / ヘキサン = 1 : 1)
68		A	TLC : Rf = 0.50 (EA / ヘキサン 1 : 1)

TLC=薄層クロマトグラム

EA=酢酸エチル

【 0 0 5 7 】

使用实施例 A

真菌に対する活性を実証することを目的として、本発明による薬剤の最小発育阻止濃度（MIC）を決定した。

各場合において、本発明による活性化合物を麦芽エキスをを用いて調製した寒天に 0.1 mg / l ~ 5000 mg / l の濃度で添加した。寒天が固化した後、表 2 に列挙した供試微生物の純培養物を混入させた。28℃、相対大気湿度 60 ~ 70 % で 2 週間保管した後に MIC を決定した。MIC とは、使用した微生物種がコロニーを形成しない活性化合物の最小濃度である。MIC 値を以下の表 3 に示す。

【 0 0 5 8 】

10

20

30

【表 2】

表 2 本発明による式 (I) の化合物の最小発育阻止濃度 (ppm)

実施例 番号	ペニシリウム・ブレビカウ レ (Penicillium brevicaule)	ケトミウム・グロボスム (Chaetomium globosum)	アスペルギルス・ニガー (Aspergillus niger)
1	< 1	5	5
2	< 40	< 40	< 40
3	5	20	20
4	5	20	20
5	< 40	< 40	< 40

10

【0059】

使用例 B

分散塗膜のカビに対する耐性を試験するため、以下に示す手順を採用した。

【0060】

試験に供する塗料を好適な基材の両面に塗布した。実使用に近い結果を得るため、幾つかの供試体については抗カビ試験を実施する前に流水で濯ぎ (24 時間、20)、他は温かいきれいな空気流で処理した (7 日間、40)。

20

【0061】

次いで、このようにして準備した試料を栄養寒天培地上に載置し、試料および栄養培地の両方に菌類孢子を接種 (contaminate) した。2 ~ 3 週間保管 (29 ± 1、相対大気湿度 80 ~ 90 %) した後の試料を比較した。

【0062】

塗膜が真菌を含まないままであるかあるいはせいぜい辺縁部にわずかな侵入が認められる程度である場合、永久的に抗カビ性を示すものと見なされる。

【0063】

この接種には、塗料を破壊するかあるいは塗膜表面に接触する機会が多いことが知られている以下に示す糸状菌の菌類孢子を用いた。

30

アルテルナリア・テヌイス

アスペルギルス・フラバス (Aspergillus flavus)

アスペルギルス・ニガー

アスペルギルス・ウスタス (Aspergillus ustus)

シンドスポラム・ヘルバウム (Cindosporum herbarum)

パエシロミセス・バリオッティ (Paecilomyces variotii)

ペニシリウム・シトリウム (Penicillium citrium)

オーレオバシジウム・プルランス

スタキボトリス・チャルタルム (Stachybotrys chartarum)

【0064】

40

配合 A に準ずる塗膜は、例えば、実施例 2、3、4、または 5 の化合物を 1.0 % (固形分基準) 含有する場合に抗カビ性を (濯ぎまたは風洞曝露の後でさえも) 示す。

【0065】

【表 3】

配合A：アクロラル（Acroal）290D（スチレンアクリレート）をベースとする外装用分散塗

商品名	重量部	化学名
バイエル・タイタン（Bayer Titan）RKB2	40	二酸化チタン
タルカムV58ニュー（Talkum V58 new）	10	含水ケイ酸マグネシウム
ダーカル（Durcal）5	45	方解石 CaCO_3
バルスロデル（Walsroder）MC3000S 2%	30	メチルセルロース
H_2O	6.5	蒸留水
カルゴン（Calgon）N 10%	3	ポリリン酸塩
ピグメントフェルタイラー（Pigmentverteiler）A 10%	1	ポリアクリル酸塩
アジタン（Agitan）281、Texanol（テキサノール）中（1：1）	1	
ホワイトスピリット	5	脂肪族炭化水素の混合物
ブチルグリコール酢酸エステル	1.5	ブチルグリコール酢酸エステル
アクロナール（Acronal）290D（バインダー）	71	ポリアクリル酸エステル
合計	219	

固形分 135.5 = 61.6%.

10

20

フロントページの続き

- (72)発明者 ヘルマン・ウール
ドイツ・51373・レーフェルクーゼン・クリスティアン・ヘス・シュトラッセ・81
- (72)発明者 ライナー・ブルーンス
ドイツ・51373・レーフェルクーゼン・ヴァルター・フレックス・シュトラッセ・9
- (72)発明者 エラスマス・ヴォグル
ドイツ・51373・レーフェルクーゼン・ハーデンベルクシュトラッセ・43
- (72)発明者 マルティン・クグラ
ドイツ・42799・ライヒリンゲン・アム・クロステール・47
- (72)発明者 オリヴァー・クレチク
ドイツ・51063・レーフェルクーゼン・アダムスシュトラッセ・40
- (72)発明者 ベルンハルト・ノイマン
ドイツ・06110・ハレ/S・ベルナルディシュトラッセ・4

審査官 服部 英美

- (56)参考文献 特開昭58-183672(JP,A)
特開昭59-080667(JP,A)
特開2000-302780(JP,A)
特開2000-302601(JP,A)
SATO, Y. et al, Application of 5-lithiotetrazoles in organic synthesis, Tetrahedron Letters, 1995年, Vol.36, No.11, p.1759-62
GRIGOR'EV, Y.V. et al, Synthesis of 5-iodotetrazoles, Vestsi Akademii Navuk Belarusi, Seryya Khimichnykh Navuk, 1992年, No.1, p.73-7
NEDEL'KO, V.V. et al, Thermal decomposition of C-iodotetrazoles, Izvestiya Akademii Nauk, Seriya Khimicheskaya, 1996年, No.1, p.68-71
GAPONIK, P.N. et al, Direct iodination of 1-alkyltetrazoles - a simple route to 1-alkyl-5-iodotetrazoles, Khimiya Geterotsiklicheskikh Soedinenii, 1988年, No.12, p.1699
JACOBSON, C.R. et al, Tetrazole chemistry. II. The synthesis and reactions of 1-phenyl-5-acetyltetrazole, Journal of Organic Chemistry, 1954年, Vol.19, 1652-61, p.19, 1652-61
NEDEL'KO, V.V. et al, Thermal decomposition of 1-ethyl-5-iodotetrazole, Izvestiya Akademii Nauk, Seriya Khimicheskaya, 1994年, No.11, p.1923-6
SATO, Y. et al, Homologation of 1-(benzyloxymethyl)-1H-tetrazole via lithiation, Synlett, 1998年, No.5, p.528-530

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A01N 43/713
A01P 3/00
C07D 257/04
CA/REGISTRY(STN)