

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5034142号
(P5034142)

(45) 発行日 平成24年9月26日(2012.9.26)

(24) 登録日 平成24年7月13日(2012.7.13)

(51) Int.Cl.

F 1

A O 1 N 43/56 (2006.01)

A O 1 N 43/56

C

A O 1 P 3/00 (2006.01)

A O 1 N 43/56

F

A O 1 P 3/00

請求項の数 1 (全 26 頁)

(21) 出願番号 特願2001-122377 (P2001-122377)
 (22) 出願日 平成13年4月20日 (2001.4.20)
 (65) 公開番号 特開2002-316902 (P2002-316902A)
 (43) 公開日 平成14年10月31日 (2002.10.31)
 審査請求日 平成20年2月7日 (2008.2.7)

前置審査

(73) 特許権者 000002093
 住友化学株式会社
 東京都中央区新川二丁目27番1号
 (74) 代理人 100113000
 弁理士 中山 亨
 (74) 代理人 100151909
 弁理士 坂元 徹
 (72) 発明者 木村 敦男
 兵庫県宝塚市高司4丁目2番1号 住友化
 学工業株式会社内

審査官 坂崎 恵美子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 植物病害防除剤組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

N - [2 - (1 , 3 - ジメチルブチル) - 3 - チエニル] - 3 - トリフルオロメチル - 1
 - メチルピラゾール - 4 - カルボキサミドと、 1 - [(2 - プロペニルチオ) カルボニル
] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフエニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラ
 ザール - 3 - オンとを有効成分として含有することを特徴とする植物病害防除組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、植物病害防除剤組成物に関する。

【0002】

【従来の技術および発明が解決しようとする課題】

ある種のピラゾリノン誘導体が植物病害防除効力を有することが知られている（特開平8-208621号公報、特開2000-226374号公報、特開2001-11053号公報等）。一方、同時期に複数の病害が発生する場合や市販剤の耐性菌問題など、1種の有効成分だけではその防除効果が不十分となる為、2種以上の植物病害防除剤を同時期に植物に施用することも実際に行われている。本発明は、2種以上の有効成分を含有する高活性な植物病害防除剤組成物を提供することを課題とする。

【0003】

【課題を解決するための手段】

10

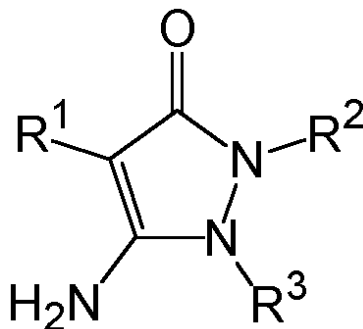
20

かかる状況下、本発明者は植物病害防除効力について鋭意検討した結果、ある種のピラゾリノン誘導体と特定の化合物とを併用することにより、植物病害防除において、高い効果が見出されることを見出し、本発明に至った。

即ち本発明は、3 - クロロ - N - (3 - クロロ - 5 - トリフルオロメチル - 2 - ピリジル) - , , - トリフルオロ - 2 , 6 - ジニトロ - p - トルイジン〔以下、化合物 A と記す〕、4 - (2 , 2 - ジフルオロ - 1 , 3 - ベンゾジオキソール - 4 - イル) - 1 H - ピロール - 3 - カルボニトリル〔以下、化合物 B と記す〕、N - (4 , 6 - ジメチルピリミジン - 2 - イル) アニリン〔以下、化合物 C と記す〕、4 - シクロプロピル - 6 - メチル - N - フェニル - 2 - ピリミジンアミン〔以下、化合物 D と記す〕、N - (4 - メチル - 6 - プロブ - 1 - イニルピリミジン - 2 - イル) アニリン〔以下、化合物 E と記す〕、1 - メチルエチル = (3 , 4 - ジエトキシフェニル) カーバメート〔以下、化合物 F と記す〕、N - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 1 , 2 - ジメチルシクロプロパン - 1 , 2 - ジカルボキシイミド〔以下、化合物 G と記す〕、3 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - N - (1 - メチルエチル) - 2 , 4 - ジオキソ - 1 - イミダゾリジンカルボキサミド〔以下、化合物 H と記す〕、3 - (3 , 5 - ジクロロフェニル) - 5 - エテニル - 5 - メチル - 1 , 3 - オキサゾリジン - 2 , 4 - ジオン〔以下、化合物 I と記す〕、N - [2 - (1 , 3 - ジメチルブチル) - 3 - チエニル] - 2 , 4 - ジメチルチアゾール - 5 - カルボキサミド〔以下、化合物 J と記す〕、N - [2 - (1 , 3 - ジメチルブチル) - 3 - チエニル] - 3 - トリフルオロメチル - 1 - メチルピラゾール - 4 - カルボキサミド〔以下、化合物 K と記す〕および 2 - クロロ - N - [4 ' - クロロ - (1 , 1 ' - ビフェニル) - 2 - イル] - 3 - ピリジンカルボキサミド〔以下、化合物 L と記す〕から選ばれる少なくとも 1 種と、

一般式 化 2

【化 2】



〔式中、R¹は2 - クロロフェニル基、2 - メチルフェニル基または2 , 6 - ジクロロフェニル基を表し、R²は1 - メチルエチル基、1 , 1 - ジメチルエチル基、1 - メチルプロピル基、1 - エチルプロピル基または1 - メチルブチル基を表し、R³はメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、(2 - プロペニルオキシ) カルボニル基、(2 - プロピニルオキシ) カルボニル基、ブトキシカルボニル基、(3 - ブテニルオキシ) カルボニル基、(2 - ブチニルオキシ) カルボニル基、(3 - ブチニルオキシ) カルボニル基、(メチルチオ) カルボニル基、(エチルチオ) カルボニル基、(プロピルチオ) カルボニル基、(2 - プロペニルチオ) カルボニル基、(2 - プロピニルチオ) カルボニル基、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基またはプロピルスルホニル基を表す。〕

で示されるピラゾリノン誘導体〔以下、化合物 と記す〕とを有効成分として含有する植物病害防除組成物〔以下、本発明組成物と記す〕を提供する。

更に、植物の茎葉部、植物が生育する土壌または植物の種子に、化合物 A、化合物 B、化合物 C、化合物 D、化合物 E、化合物 F、化合物 G、化合物 H、化合物 I、化合物 J、化合物 K および化合物 L から選ばれる少なくとも 1 種と化合物 とを施用する植物病害の防除方法〔以下、本発明方法と記す〕も提供する。

【 0 0 0 4 】

【発明の実施の形態】

化合物Aは一般名 *flua z i n a m* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Bは一般名 *fl u d i o x o n i l* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Cは一般名 *py r i m e t h a n i l* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Dは一般名 *c y p r o d i n i l* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Eは一般名 *m e p a n i p y r i m* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Fは一般名 *d i e t h o f e n c a r b* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Gは *p r o c y m i d o n e* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Hは *i p r o d i o n e* として知られている殺菌剤の有効成分である。化合物Iは *v i n c l o z o l i n* として知られている殺菌剤の有効成分である。これらの化合物は、いず

10

れも市販（例えば、和光純薬工業株式会社）されている。化合物Jおよび化合物Kは、特開平9-235282号公報に記載の化合物である。化合物Lは、特開平5-221994号公報に記載の化合物である。

化合物 は、特開2000-226374号公報または特開2001-11053号公報に記載の方法により、製造することができる。

【0005】

化合物 の具体例を以下に示す。

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 1 と記す〕

20

、
1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 2 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 と記す〕、

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 5 と記す〕、

30

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 6 と記す〕、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 7 と記す〕、

1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 8 と記す〕

、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 9 と記す〕、

40

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 10 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 11 と記す〕

、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 12 と記す〕、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 13 と記す〕、

50

1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 14 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 15 と記す]、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 16 と記す]、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 17 と記す]、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 18 と記す]、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 19 と記す]、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 20 と記す]、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 21 と記す]、

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 22 と記す]、

1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 23 と記す]、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 24 と記す]、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 25 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 26 と記す]、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 27 と記す]、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 28 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 29 と記す]、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 30 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 31 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 32 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン [以下、化合物 - 33 と記す]、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2

10

20

30

40

50

- メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 4 と記す〕、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 5 と記す〕、

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 6 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 7 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 8 と記す〕

10

、
1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 3 9 と記す〕、

1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 0 と記す〕、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 1 と記す〕、

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 2 と記す〕、

20

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 3 と記す〕、

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 4 と記す〕

、
1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 5 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 6 と記す〕、

30

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 7 と記す〕、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1, 1 - ジメチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 8 と記す〕、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 4 9 と記す〕、

1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 5 0 と記す〕、

40

1 - (プロボキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 5 1 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1, 1 - ジメチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 5 2 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 5 3 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 -

50

クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 54 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 55 と記す〕、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1, 1 - ジメチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 56 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 57 と記す〕、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 58 と記す〕、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 59 と記す〕、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 60 と記す〕、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 61 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 62 と記す〕、

1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 63 と記す〕、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 64 と記す〕、

1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 65 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1, 1 - ジメチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 66 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 67 と記す〕、

1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 68 と記す〕、

1 - [(プロピルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 69 と記す〕、

1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 70 と記す〕、

1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 71 と記す〕、

1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 72 と記す〕、

1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 73 と記す〕、

1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 74 と記す〕、

1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) -

10

20

30

40

50

- 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 75 と記す〕、
 1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル)
) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 76 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) -
 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 77 と記す〕、
 1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 78 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 79 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) 10
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 80 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 81 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 82 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) -
 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 83 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) -
 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 84 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ 20
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 85 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) -
 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 86 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 87 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 88 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) -
 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 89 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ 30
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 90 と記す〕、
 1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフ
 ェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 91 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 92 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 93 と記す〕、
 1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 94 と記す〕、
 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ 40
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 95 と記す〕、
 1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェ
 ニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 96 と記す〕、
 1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - エチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル)
) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 97 と記す〕、
 1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル)
 - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン〔以下、化合物 - 98 と記す〕。

【0006】

本発明組成物において、化合物 A、化合物 B、化合物 C、化合物 D、化合物 E、化合物 F
 、化合物 G、化合物 H、化合物 I、化合物 J、化合物 K および化合物 L から選ばれる少な

くとも１種と化合物との比率は、化合物を１として重量比で通常０．２５～２０、好ましくは０．５～２である。

【０００７】

本発明組成物は、化合物Ａ、化合物Ｂ、化合物Ｃ、化合物Ｄ、化合物Ｅ、化合物Ｆ、化合物Ｇ、化合物Ｈ、化合物Ｉ、化合物Ｊ、化合物Ｋおよび化合物Ｌから選ばれる少なくとも１種および化合物〔以下、本発明有効成分と記す〕のみであっても良いが、通常はこれらの本発明有効成分の他に、担体、界面活性剤、製剤用補助剤、希釈溶剤等を含有させてもよく、水和剤、フロアブル剤、粉剤、粒剤、ドライフロアブル剤、乳剤、水性液剤、油剤、マイクロカプセル剤等の形態に製剤化される。

【０００８】

かかる製剤化の際に用いられる、固体担体としては、例えばカオリンクレ－、アッタパールジャイトクレ－、ベントナイト、酸性白土、パイロフィライト、タルク、珪藻土、方解石、トウモロコシ穂軸粉、クルミ殻粉、尿素、硫酸アンモニウム、合成含水酸化珪素等の微粉末あるいは粒状物があげられ、液体担体としては、例えばキシレン、メチルナフタレン等の芳香族炭化水素類、イソプロパノール、エチレングリコール、セロソルブ等のアルコール類、アセトン、シクロヘキサノン、イソホロン等のケトン類、ダイズ油、綿実油等の植物油、ジメチルスルホキシド、アセトニトリルがあげられる。

【０００９】

界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、アルキル（アリ－ル）スルホン酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリ－ルエ－テルリン酸エステル塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物等の陰イオン界面活性剤、ポリオキシエチレンアルキルエ－テル、ポリオキシエチレンアルキルポリオキシプロピレンブロックコポリマ－、ソルピタン脂肪酸エステル等の非イオン界面活性剤があげられる。

製剤用補助剤としては、例えばリグニンスルホン酸塩、アルギン酸塩、ポリビニルアルコール、アラビアガム、ＣＭＣ（カルボキシメチルセルロース）、ＰＡＰ（酸性リン酸イソプロピル）があげられる。

希釈溶剤としては、例えば水があげられる。

【００１０】

水和剤、フロアブル剤、乳剤等は通常水で希釈して施用され、製剤中における本発明有効成分の濃度は通常０．０００５～２重量％、好ましくは０．００５～１重量％である。粉剤、粒剤等は通常希釈することなくそのまま施用され、製剤中における本発明有効成分の濃度は、通常０．１～９９重量％、好ましくは１～９０重量％である。

【００１１】

本発明方法は、通常は本発明組成物を、植物の茎葉部、植物が生育する土壌または植物の種子に施用することにより行う。具体的には、液状または粉状の本発明組成物を植物の茎葉部への散布するか、液状の本発明組成物を植物が生育している土壌へ注加するか、粉状の本発明組成物を植物が生育する前の土壌へ混和するか、あるいは、液状の本発明組成物に植物の種子を浸漬すること等により行われる。

また、本発明方法には、植物の茎葉部、植物が生育する土壌または植物の種子に対して、化合物Ａ、化合物Ｂ、化合物Ｃ、化合物Ｄ、化合物Ｅ、化合物Ｆ、化合物Ｇ、化合物Ｈ、化合物Ｉ、化合物Ｊ、化合物Ｋおよび化合物Ｌから選ばれる少なくとも１種を有効成分とする組成物と、化合物を有効成分とする組成物とを、実質的に同時期に施用する形態をも含むものである。

【００１２】

本発明方法において、本発明有効成分の施用量は、対象植物の種類、対象病害の種類、病害の発生程度、製剤形態、施用方法、施用時期、気象条件等によって変化し得るが、植物の茎葉部への散布においては、１アールあたり通常０．１～５０ｇ、好ましくは１～１０ｇであり、種子への処理においては、種子１０００重量部に対して本発明有効成分は通常０．００１～１００重量部、好ましくは０．０１～５０重量部の範囲である。

【００１３】

本発明方法により、畑地、水田、果樹園、茶園、牧草地、芝生地等における植物病害を防除することができる。防除することができる植物病害としては、例えば以下の病害をあげることができる。

イネのいもち病 (*Pyricularia oryzae*)、ごま葉枯病 (*Cochliobolus miyabeanus*)、紋枯病 (*Rhizoctonia solani*)、ムギ類のうどんこ病 (*Erysiphe graminis*)、赤かび病 (*Gibberella zeae*)、さび病 (*Puccinia striiformis*, *P. graminis*, *P. recondita*, *P. hordei*)、雪腐病 (*Typhula* sp., *Micronectriella nivalis*)、裸黒穂病 (*Ustilago tritici*, *U. nuda*)、なまぐさ黒穂病 (*Tilletia caries*)、眼紋病 (*Pseudocercospora herpotrichoides*)、雲形病 (*Rhynchosporium secalis*)、葉枯病 (*Septoria tritici*)、ふ枯病 (*Leptosphaeria nodorum*)、

10

カンキツ類の黒点病 (*Diaporthe citri*)、そうか病 (*Elsinoe fawcetti*)、果実腐敗病 (*Penicillium digitatum*, *P. italicum*)、

リンゴのモニリア病 (*Monilinia fructigena*)、腐らん病 (*Valsa mali*)、うどんこ病 (*Podosphaera leucotricha*)、斑点落葉病 (*Alternaria mali*)、黒星病 (*Venturia inaequalis*)、

ナシの黒星病 (*Venturia nashicola*, *V. pirina*)、黒斑病 (*Alternaria kikuchiana*)、赤星病 (*Gymnosporangium haraeanae*)、

モモの灰星病 (*Monilinia fructicola*, *Sclerotinia cinerea*)、黒星病 (*Cladosporium carpophilum*)、フオモプシス腐敗病 (*Phomopsis* sp.)、ブドウの黒とう病 (*Elsinoe ampelina*)、晩腐病 (*Glomerella cingulata*)、うどんこ病 (*Uncinula necator*)、さび病 (*Phakopsora ampelopsidis*)、ブラックロット病 (*Guignardia bidwellii*)、べと病 (*Plasmopara viticola*)、

20

カキの炭そ病 (*Gloeosporium kaki*)、落葉病 (*Cercospora kaki*, *Mycosphaerella nawae*)、

ウリ類の炭そ病 (*Colletotrichum lagenarium*)、うどんこ病 (*Sphaerotheca fuliginea*)、つる枯病 (*Mycosphaerella melonis*)、つる割病 (*Fusarium oxysporum*)、べと病 (*Pseudoperonospora cubensis*)、疫病 (*Phytophthora* sp.)、苗立枯病 (*Pythium* sp.)、

トマトの輪紋病 (*Alternaria solani*)、葉かび病 (*Cladosporium fulvum*)、疫病 (*Phytophthora infestans*)、

30

ナスの褐紋病 (*Phomopsis vexans*)、うどんこ病 (*Erysiphe cichoracearum*)、アブラナ科野菜の黒斑病 (*Alternaria japonica*)、白斑病 (*Cercospora brassicae*)、

ネギのさび病 (*Puccinia allii*)、

ダイズの紫斑病 (*Cercospora kikuchii*)、黒とう病 (*Elsinoe glycines*)、黒点病 (*Diaporthe phaseolorum* var. *sojae*)、

インゲンの炭そ病 (*Colletotrichum lindemthianum*)、

ラッカセイの黒渋病 (*Cercospora personata*)、褐斑病 (*Cercospora arachidicola*)、

エンドウのうどんこ病 (*Erysiphe pisi*)、

ジャガイモの夏疫病 (*Alternaria solani*)、疫病 (*Phytophthora infestans*)、

イチゴのうどんこ病 (*Sphaerotheca humuli*)、

40

チャの網もち病 (*Exobasidium reticulatum*)、白星病 (*Elsinoe leucospila*)、

タバコの赤星病 (*Alternaria longipes*)、うどんこ病 (*Erysiphe cichoracearum*)、炭そ病 (*Colletotrichum tabacum*)、べと病 (*Peronospora tabacina*)、疫病 (*Phytophthora nicotianae*)、

テンサイの褐斑病 (*Cercospora beticola*)、

バラの黒星病 (*Diplocarpon rosae*)、うどんこ病 (*Sphaerotheca pannosa*)、キクの褐斑病 (*Septoria chrysanthemi* - *indici*)、白さび病 (*Puccinia horiana*)、

種々の作物の灰色かび病 (*Botrytis cinerea*)、菌核病 (*Sclerotinia sclerotiorum*)等。

【 0 0 1 4 】

【 実施例 】

50

以下、本発明を製造例、試験例等によりさらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例のみに限定されない。

まず、本発明組成物の製造法を以下に記載する。

製造例 1

化合物 - 1、化合物 - 2、化合物 - 3、化合物 - 4、化合物 - 5、化合物 - 6、化合物 - 7、化合物 - 8、化合物 - 9、化合物 - 10、化合物 - 11、化合物 - 12、化合物 - 13、化合物 - 14、化合物 - 15、化合物 - 16、化合物 - 17、化合物 - 18、化合物 - 19および化合物 - 20の各々2.5部、化合物Aの2.5部、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテルの1.4部、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウムの6部及びキシレンの7.5部をよく混合することにより各乳剤を得る。

10

【0015】

製造例 2

化合物 - 21、化合物 - 22、化合物 - 23、化合物 - 24、化合物 - 25、化合物 - 26、化合物 - 27、化合物 - 28、化合物 - 29、化合物 - 30、化合物 - 31、化合物 - 32、化合物 - 33、化合物 - 34、化合物 - 35、化合物 - 36、化合物 - 37、化合物 - 38、化合物 - 39および化合物 - 40の各々2.5部、化合物Bの2.5部、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテルの1.4部、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウムの6部及びキシレンの7.5部をよく混合することにより各乳剤を得る。

20

【0016】

製剤例 3

化合物 - 41、化合物 - 42、化合物 - 43、化合物 - 44、化合物 - 45、化合物 - 46、化合物 - 47、化合物 - 48、化合物 - 49、化合物 - 50、化合物 - 51、化合物 - 52、化合物 - 53、化合物 - 54、化合物 - 55、化合物 - 56、化合物 - 57、化合物 - 58、化合物 - 59および化合物 - 60の各々5部、化合物Cの5部、ホワイトカーボンとポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートアンモニウム塩との混合物（重量割合1：1）の3.5部及び水の5.5部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎することにより各フロアブル製剤を得る。

30

【0017】

製剤例 4

化合物 - 61、化合物 - 62、化合物 - 63、化合物 - 64、化合物 - 65、化合物 - 66、化合物 - 67、化合物 - 68、化合物 - 69、化合物 - 70、化合物 - 71、化合物 - 72、化合物 - 73、化合物 - 74、化合物 - 75、化合物 - 76、化合物 - 77、化合物 - 78、化合物 - 79および化合物 - 80の各々5部、化合物Dの5部、ホワイトカーボンとポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートアンモニウム塩との混合物（重量割合1：1）の3.5部及び水の5.5部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎することにより各フロアブル製剤を得る。

【0018】

製剤例 5

化合物 - 81、化合物 - 82、化合物 - 83、化合物 - 84、化合物 - 85、化合物 - 86、化合物 - 87、化合物 - 88、化合物 - 89、化合物 - 90、化合物 - 91、化合物 - 92、化合物 - 93、化合物 - 94、化合物 - 95、化合物 - 96、化合物 - 97および化合物 - 98の各々5部、化合物Eの1.0部、ソルビタントリオレート1.5部及びポリビニルアルコールの2部を含む水溶液28.5部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎した後、この中にキサンタンガムの0.05部及びアルミニウムマグネシウムシリケートの0.1部を含む水溶液の4.5部を加え、さらにプロピレングリコールの1.0部を加えて攪拌混合し各フロアブル製剤を得る。

40

【0019】

製剤例 6

50

化合物 - 1、化合物 - 2、化合物 - 3、化合物 - 4、化合物 - 5、化合物 - 6、化合物 - 7、化合物 - 8、化合物 - 9、化合物 - 10、化合物 - 11、化合物 - 12、化合物 - 13、化合物 - 14、化合物 - 15、化合物 - 16、化合物 - 17、化合物 - 18、化合物 - 19および化合物 - 20の各々5部、化合物Fの10部、ソルビタントリオレエ - トの1.5部及びポリビニルアルコールの2部を含む水溶液28.5部を混合し、湿式粉碎法で微粉碎した後、この中にキサンタンガムの0.05部及びアルミニウムマグネシウムシリケートの0.1部を含む水溶液の4.5部を加え、さらにプロピレングリコールの10部を加えて攪拌混合し各フロアブル製剤を得る。

【0020】

10

製剤例7

化合物 - 21、化合物 - 22、化合物 - 23、化合物 - 24、化合物 - 25、化合物 - 26、化合物 - 27、化合物 - 28、化合物 - 29、化合物 - 30、化合物 - 31、化合物 - 32、化合物 - 33、化合物 - 34、化合物 - 35、化合物 - 36、化合物 - 37、化合物 - 38、化合物 - 39および化合物 - 40の各々1部、化合物Gの2.5部、合成含水酸化珪素の1部、リグニンスルホン酸カルシウムの2部、ベントナイトの30部及びカオリンクレーの63.5部をよく粉碎混合し、水を加えてよく練り合せた後、造粒乾燥することにより各粒剤を得る。

【0021】

20

製剤例8

化合物 - 41、化合物 - 42、化合物 - 43、化合物 - 44、化合物 - 45、化合物 - 46、化合物 - 47、化合物 - 48、化合物 - 49、化合物 - 50、化合物 - 51、化合物 - 52、化合物 - 53、化合物 - 54、化合物 - 55、化合物 - 56、化合物 - 57、化合物 - 58、化合物 - 59および化合物 - 60の各々1部、化合物Hの2.5部、合成含水酸化珪素の1部、リグニンスルホン酸カルシウムの2部、ベントナイトの30部及びカオリンクレーの63.5部をよく粉碎混合し、水を加えてよく練り合せた後、造粒乾燥することにより各粒剤を得る。

【0022】

製剤例9

化合物 - 61、化合物 - 62、化合物 - 63、化合物 - 64、化合物 - 65、化合物 - 66、化合物 - 67、化合物 - 68、化合物 - 69、化合物 - 70、化合物 - 71、化合物 - 72、化合物 - 73、化合物 - 74、化合物 - 75、化合物 - 76、化合物 - 77、化合物 - 78、化合物 - 79および化合物 - 80の各々1.2.5部、化合物Iの37.5部、リグニンスルホン酸カルシウムの3部、ラウリル硫酸ナトリウムの2部及び合成含水酸化珪素の4.5部をよく粉碎混合することにより各水和剤を得る。

30

【0023】

製剤例10

化合物 - 81、化合物 - 82、化合物 - 83、化合物 - 84、化合物 - 85、化合物 - 86、化合物 - 87、化合物 - 88、化合物 - 89、化合物 - 90、化合物 - 91、化合物 - 92、化合物 - 93、化合物 - 94、化合物 - 95、化合物 - 96、化合物 - 97および化合物 - 98の各々1.2.5部、化合物Jの37.5部、リグニンスルホン酸カルシウムの3部、ラウリル硫酸ナトリウムの2部及び合成含水酸化珪素の4.5部をよく粉碎混合することにより各水和剤を得る。

40

【0024】

製剤例11

化合物 - 1、化合物 - 2、化合物 - 3、化合物 - 4、化合物 - 5、化合物 - 6、化合物 - 7、化合物 - 8、化合物 - 9、化合物 - 10、化合物 - 11、化合物 - 12、化合物 - 13、化合物 - 14、化合物 - 15、化合物 - 16、化合物 - 17、化合物 - 18、化合物 - 19および化合物 - 20の各々1部、化合

50

物 K の 2 部、カオリンクレーの 85 部及びタルクの 10 部をよく粉碎混合することにより各粉剤を得る。

【0025】

製剤例 12

化合物 - 21、化合物 - 22、化合物 - 23、化合物 - 24、化合物 - 25、化合物 - 26、化合物 - 27、化合物 - 28、化合物 - 29、化合物 - 30、化合物 - 31、化合物 - 32、化合物 - 33、化合物 - 34、化合物 - 35、化合物 - 36、化合物 - 37、化合物 - 38、化合物 - 39 の化合物 - 40 の各々 1 部、化合物 L の 2 部、カオリンクレーの 85 部及びタルクの 10 部をよく粉碎混合することにより各粉剤を得る。

10

【0026】

次に、化合物 の合成例を、以下に示す。

合成例 1

[1] 1 - (1, 1 - ジメチルエチル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 107 g (313 mmol) に 3 規定塩酸 300 ml とエタノール 100 ml を加え、還流条件下で 4 時間攪拌した。その後、エタノールを減圧留去し、水層を希水酸化ナトリウム水溶液で中和し、析出した固体を濾取した。固体を水、および酢酸エチルで洗浄し、減圧乾燥して 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 88.4 g (309 mmol) を得た。

20

¹H - NMR (CD₃OD, TMS)

(ppm): 7.47 (1H), 7.33 ~ 7.36 (2H), 4.93 (2H), 4.41 (1H), 1.30 (6H)

[2] 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 1.57 g (5.5 mmol) を 1, 4 - ジオキサン 20 ml に懸濁させ、60% 油性水素化ナトリウム 0.30 g (7.5 mmol) を加えて 90 に加熱した。続いて、メチル = クロロホルメート 0.72 g (7.6 mmol) を滴下した。同温度でさらに 1 時間攪拌した後、反応液を水に注加し、これを酢酸エチルにて抽出した。有機層を水洗し、溶媒を減圧留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ - に付し、得られた白色固体を酢酸エチルとヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1 - (メトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 0.13 mg (0.38 mmol) を得た。

30

¹H - NMR (CDCl₃, TMS)

(ppm): 7.33 (1H), 7.15 ~ 7.21 (2H), 5.74 (2H), 4.02 (1H), 3.96 (3H), 1.37 (6H)

【0027】

合成例 2

2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 5.00 g (17.5 mmol)、水酸化リチウム一水和物 1.47 g (35.0 mmol) および 2 - プロペニル = クロロホルメート 4.22 g (35.0 mmol) から、1 - [(2 - プロペニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 2.67 g (7.22 mmol) を得た。

40

融点: 173.8

【0028】

合成例 3

2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1H - ピラゾール - 3 - オン 1.57 g (5.5 mmol)、60% 油性水素化ナトリウム 0.30 g (7.5 mmol) およびエチル = クロロホルメート 0.65 g (5.99 mmol) から、1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジク

50

ロクロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.61 g (1.76 mmol) を得た。

^1H - NMR (CDCl₃, TMS)

(ppm): 7.37 (1H), 7.18 ~ 7.23 (2H), 5.71 (2H), 4.42 (2H), 4.05 (1H), 1.40 ~ 1.47 (9H)

【0029】

合成例 4

ビス(トリクロロメチル) = カーボネート 1.41 g (4.73 mmol) を 1, 4 - ジオキサン 10 mmol に溶解させ、水冷下、ピリジン 1.12 g (14.2 mmol) を滴下した。室温で 15 分間攪拌した後、2 - プロピン - 1 - オール 0.79 g (14.1 mmol) を滴下し、さらに 35 分間室温で攪拌した後反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液 A」と記す〕

2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.02 g (7.06 mmol) と水酸化リチウム一水和物 0.59 g (14.0 mmol) との混合物にトルエン 20 ml を加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30 分間還流させた。トルエンを減圧留去し、1, 4 - ジオキサン 15 ml を加え、還流条件下、上記の「濾液 A」を滴下した。還流条件下でさらに 5 分間攪拌した後、1, 4 - ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で 2 回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1 - [(2 - プロピニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.53 g (1.44 mmol) を得た。

融点: 137.4

【0030】

合成例 5

ビス(トリクロロメチル) = カーボネート 1.40 g (4.67 mmol) を 1, 4 - ジオキサン 10 mmol に溶解させ、水冷下、ピリジン 1.1 g (14 mmol) を滴下した。室温で 15 分間攪拌した後、3 - プテン - 1 - オール 1.03 g (14 mmol) を滴下し、さらに 15 分間室温で攪拌した後、反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液 D」と記す〕

2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.0 g (7.00 mmol) と水酸化リチウム一水和物 0.59 g (14.0 mmol) との混合物にトルエン 20 ml を加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、1 時間還流させた。トルエンを減圧留去し、1, 4 - ジオキサン 10 ml を加えた。還流下、上記の「濾液 D」を滴下し、還流条件下でさらに 10 分間攪拌した後、1, 4 - ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で 2 回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣を酢酸エチルとヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1 - [(3 - プテニルオキシ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.65 g (1.84 mmol) を得た。

融点: 133.1

【0031】

合成例 6

ビス(トリクロロメチル) = カーボネート 1.40 g (4.67 mmol) を 1, 4 - ジオキサン 10 mmol に溶解させ、水冷下、ピリジン 1.1 g (14 mmol) を滴下した。室温で 30 分間攪拌した後、2 - プチン - 1 - オール 0.98 g (14 mmol) を滴下し、さらに 15 分間室温で攪拌した後、反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液 E」と記す〕

2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.0 g (7.00 mmol) と水酸化リチウム一水和物 0.59 g

(14.0 mmol)との混合物にトルエン20 mlを加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、1時間還流させた。トルエンを減圧留去し、1,4-ジオキサン10 mlを加えた。還流下、上記の「濾液E」を滴下し、還流条件下でさらに10分間攪拌した後、1,4-ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で2回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ-に付し、1-[(2-ブチニルオキシ)カルボニル]-2-(1-メチルエチル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン1.0 g(2.84 mmol)を得た。

融点: 152.0

【0032】

10

合成例7

ビス(トリクロロメチル)=カーボネート1.41 g(4.67 mmol)を1,4-ジオキサン10 mmolに溶解させ、水冷下、ピリジン1.1 g(14 mmol)を滴下した。室温で15分攪拌した後、3-ブチン-1-オール0.98 g(14 mmol)を滴下し、さらに1時間室温で攪拌した後、反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液F」と記す〕

2-(1-メチルエチル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン2.0 g(7.00 mmol)と水酸化リチウム一水和物0.59 g(14.0 mmol)との混合物にトルエン20 mlを加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、1時間還流させた。トルエンを減圧留去し、1,4-ジオキサン10 mlを加えた。還流下、上記の「濾液F」を滴下し、還流条件下でさらに10分間攪拌した後、1,4-ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で2回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ-に付し、1-[(3-ブチニルオキシ)カルボニル]-2-(1-メチルエチル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン0.58 g(1.65 mmol)を得た。

20

融点: 160.3

【0033】

合成例8

2-(1-メチルエチル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン1.43 g(5.0 mmol)と水酸化リチウム一水和物0.42 g(10.0 mmol)との混合物にトルエン20 mlを加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30分間還流させた。トルエンを減圧留去し、1,4-ジオキサン20 mlを加え、還流下、S-エチル=クロロチオホルメート1.1 ml(9.1 mmol)を滴下した。還流条件下でさらに10分間攪拌した後、1,4-ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で2回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣を分取薄層クロマトグラフィ-に付し、1-[(エチルチオ)カルボニル]-2-(1-メチルエチル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン0.24 g(0.64 mmol)を得た。

30

融点: 177.5

40

【0034】

合成例8

ビス(トリクロロメチル)=カーボネート0.98 g(3.29 mmol)を1,4-ジオキサン10 mmolに溶解させ、水冷下、ピリジン0.79 g(10.0 mmol)を滴下した。室温で30分攪拌した後、55%2-プロペン-1-チオール1.35 g(10.0 mmol)を滴下し、さらに30分間室温で攪拌した後、反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液H」と記す〕2-(1-メチルエチル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン1.41 g(4.93 mmol)と水酸化リチウム一水和物0.42 g(10.0 mmol)との混合物にトルエン20 mlを加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30分間還流させた。トルエ

50

ンを減圧留去し、1, 4 - ジオキサン 10 ml を加えた。還流下、上記の「濾液 H」を滴下し、還流条件下でさらに 10 分間攪拌した後、1, 4 - ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で 2 回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ - に付し、1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.14 g (0.36 mmol) を得た。

融点: 170.8

【0035】

合成例 10

[1] 1 - (1, 1 - ジメチルエチル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 54.6 g (181 mmol) に 3 規定塩酸 300 ml とエタノール 100 ml を加え、還流条件下で 4 時間攪拌した。その後、エタノールを減圧留去し、水層を炭酸水素ナトリウム水溶液で中和し、析出した固体を濾取した。固体を水、および酢酸エチルで洗浄し、減圧乾燥して 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 35.3 g (144 mmol) を得た。

^1H - NMR (CD_3OD , TMS)

(ppm): 7.17 (4H), 4.83 (2H), 4.1 (1H), 2.25 (3H), 1.5 ~ 1.9 (2H), 1.21 (3H), 0.94 (3H)

[2] 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.45 g (10.0 mmol) と水酸化リチウム一水和物 0.84 g (20.0 mmol) との混合物にトルエン 20 ml を加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30 分間還流させた。トルエンを減圧留去し、1, 4 - ジオキサン 20 ml を加え、還流下、2 - プロペニル = クロロホルメート 2.41 g (20.0 mmol) を滴下した。還流条件下でさらに 10 分間攪拌した後、1, 4 - ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で 2 回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ - に付し、1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.53 g (1.88 mmol) を得た。

融点: 102.1

【0036】

合成例 11

2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.22 g (5.0 mmol) と水酸化リチウム一水和物 0.42 g (10.0 mmol) との混合物にトルエン 10 ml を加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30 分間還流させた。トルエンを減圧留去し、1, 4 - ジオキサン 10 ml を加え、還流下、S - エチル = クロロチオホルメート 1.25 g (10.0 mmol) を滴下した。還流条件下でさらに 30 分間攪拌した後、1, 4 - ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ - に付し、1 - [(エチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.14 g (0.42 mmol) を得た。

融点: 137.8

【0037】

合成例 12

2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.20 g (4.9 mmol) と水酸化リチウム一水和物 0.41 g (9.8 mmol) との混合物にトルエン 10 ml を加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30 分間還流させた。トルエンを減圧留去し、1, 4 - ジオキサン 10 ml を加え、還流下、S - (2 - プロペニル) = クロロチオホルメート 1.0 g (7.3 mmol) を

10

20

30

40

50

滴下した。還流条件下でさらに15分間攪拌した後、1,4-ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を塩水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ-に付し、1-[(2-プロベニルチオ)カルボニル]-2-(1-メチルプロピル)-4-(2-メチルフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン0.09g(0.26mmol)を得た。

融点：146.6

【0038】

合成例13

ビス(トリクロロメチル)=カーボネート0.98g(3.29mmol)を1,4-ジオキサン10mmolに溶解させ、水冷下、ピリジン0.79g(10.0mmol)を滴下した。室温で15分間攪拌した後、2-プロピン-1-オール0.56g(10.0mmol)を滴下し、さらに15分間室温で攪拌した後、反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液B」と記す〕

2-(1-メチルプロピル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン1.50g(5.00mmol)と水酸化リチウム-水和物0.42g(10.0mmol)との混合物にトルエン20mlを加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、30分間還流させた。トルエンを減圧留去し、1,4-ジオキサン10mlを加えた。還流下、上記の「濾液B」を滴下し、還流条件下でさらに1時間攪拌した後、1,4-ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で2回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ-に付し、1-[(2-プロベニルオキシ)カルボニル]-2-(1-メチルプロピル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン0.33g(0.86mmol)を得た。

融点：132.7

【0039】

合成例14

ビス(トリクロロメチル)=カーボネート0.98g(3.29mmol)を1,4-ジオキサン10mmolに溶解させ、水冷下、ピリジン0.79g(10.0mmol)を滴下した。室温で25分間攪拌した後、3-ブテン-1-オール0.72g(10.0mmol)を滴下し、さらに15分間室温で攪拌した後、反応液を濾過し、濾液を得た。〔以下、この濾液を「濾液G」と記す〕

2-(1-メチルプロピル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン1.5g(5.0mmol)と水酸化リチウム-水和物0.42g(10.0mmol)との混合物にトルエン10mlを加えて共沸脱水操作により水分を除去しつつ、1時間還流させた。トルエンを減圧留去し、1,4-ジオキサン10mlを加えた。還流下、上記の「濾液G」を滴下し、還流条件下でさらに10分間攪拌した後、1,4-ジオキサンを減圧留去した。残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で2回洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィ-に付し、1-[(3-ブテニルオキシ)カルボニル]-2-(1-メチルプロピル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン0.47g(1.18mmol)を得た。

融点：127.7

【0040】

合成例15

[1]4-(2-メチルフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン20.0g(0.106mol)、S-エチル=クロロチオホルメート13.84g(0.111mol)およびトルエン100.00gの混合物に、25℃にて10%水酸化ナトリウム水溶液50.79g(0.127mol)をゆっくりと滴下した。滴下終了後、同温度にて1時間攪拌した。その後、5%塩酸水を加えて反応混合物の液性を酸性とし、これを酢酸エチル40.00gにて2回抽出した。該有機層を併せ、これを硫酸マグネシウムで

乾燥、溶媒を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、濃縮後、残渣を酢酸エチル/ n - ヘキサン = 1 / 9 の混合液 200 ml にて洗浄、乾燥し、1 - [(エチルチオ) カルボニル] - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.439 g (LC 面百値 98.5%) を得た。

融点: 172.5

[2] 1 - [(エチルチオ) カルボニル] - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.39 g (5 mmol) の 1, 4 - ジオキサン溶液に水素化リチウム 60 mg (7.5 mmol) を加えて 10 分間還流させた。1 - メチルエチル = メタンスルホネート 1.0 g (7.2 mmol) を加えて 30 分間還流させた。1, 4 - ジオキサンを減圧留去し、残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1 - [(エチルチオ) カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.14 g (3.57 mmol) を得た。

10

^1H - NMR (CDCl₃, TMS)

(ppm): 7.17 ~ 7.24 (4H), 5.5 (2H), 3.91 (1H), 2.95 (2H), 2.26 (3H), 1.43 (6H), 1.36 (3H)

【0041】

合成例 16

[1] 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 5.0 g (26 mmol)、S - (2 - プロペニル) = クロロチオホルメート 3.7 g (27 mmol)、トルエン 40 g およびメタノール 10 g の混合物に、25 にて 5% 水酸化ナトリウム水溶液 25 g (32 mmol) を約 1 時間掛けて滴下した。滴下終了後、同温度にて 5 時間攪拌した。その後、5% 塩酸水を加えて反応混合物の液性を酸性とした。これにノルマルヘキサン 25 ml を加え、約 1 時間攪拌後、結晶をろ過した。ろ上物をメタノール水、水、ノルマルヘキサンで洗浄後、乾燥して、1 - [(2 - プロペニルチオ) カルボニル] - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 6.1 g を得た。

20

^1H - NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.20 ~ 7.28 (4H)、5.80 ~ 5.97 (1H)、5.49 (2H)、5.14 ~ 5.49 (2H)、3.61 (2H)、2.31 (3H)。

30

[2] 1 - [(2 - プロペニルチオ) カルボニル] - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 6.0 g (20 mmol)、モレキュラーシーブス 3A 3.0 g、1 - メチルエチル = メタンスルホネート 3.9 g (28 mmol) およびジオキサン 30 ml の混合物を 90 まで昇温した。同温度にて水酸化リチウム - 水和物 1.3 g (23 mmol) を 2 時間で 3 分割して投入した。投入後、同温度にて 5 時間攪拌した。その後、冷却して 5% 塩酸水 97 g を加え、酢酸エチルにて抽出し、有機層を硫酸マグネシウムにて乾燥後、溶媒を留去した。残渣に n - ヘキサンを加えることにより結晶化させ、ろ取、n - ヘキサン洗浄、乾燥し、1 - [(2 - プロペニルチオ) カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 3.8 g を得た。

40

融点: 118.3

^1H - NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.18 ~ 7.26 (4H)、5.82 ~ 5.99 (1H)、5.60 (2H)、5.19 ~ 5.37 (2H)、3.84 ~ 3.96 (1H)、3.60 (2H)、2.27 (3H)、1.43 (6H)。

【0042】

合成例 17

[1] 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.89 g (10.0 mmol)、S - メチル = クロロチオホルメート 1.30 g (11.8 mmol)

50

o 1) およびトルエン 30 ml の混合物に 25 にて 6.45% 水酸化ナトリウム水溶液 7.1 g (11.4 mmol) をゆっくりと滴下した。滴下終了後、同温度にて 3 時間攪拌した。その後、5% 塩酸水を加えて反応混合物の液性を酸性とし、これをトルエンおよび tert-ブチルメチルエーテルにて抽出した。該有機層を濃縮し、残渣を酢酸エチルとヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1-[(メチルチオ)カルボニル]-4-(2-メチルフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 2.0 g を得た。

¹H-NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.21~7.30 (4H)、5.49 (2H)、2.39 (3H)、2.32 (3H)

[2] 1-[(メチルチオ)カルボニル]-4-(2-メチルフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 0.34 g (1.27 mmol) の 1,4-ジオキサン溶液 10 ml に水素化リチウム 15 mg (1.9 mmol) を加えて 10 分間還流させた。1-メチルエチル=メタンスルホネート 0.21 g (1.52 mmol) を加えて 1 時間還流させた。1,4-ジオキサンを減圧留去し、残渣に 5% 塩酸水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1-[(メチルチオ)カルボニル]-2-(1-メチルエチル)-4-(2-メチルフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 0.14 g を得た。

¹H-NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.16~7.25 (4H)、5.52 (2H)、3.86~3.95 (1H)、2.40 (3H)、2.26 (3H)、2.14 (3H)、1.42~1.50 (6H)

【0043】

合成例 18

[1] 4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 20.00 g (81.97 mmol)、S-エチル=クロロチオホルメート 10.72 g (86.07 mmol) およびトルエン 100.00 g の混合物に、25 にて 10% 水酸化ナトリウム水溶液 39.34 g (98.36 mmol) をゆっくりと滴下した。滴下終了後、同温度にて 2 時間攪拌した。その後、5% 塩酸水を加えて反応混合物の液性を酸性とし、これをトルエンおよびメチル tert-ブチルエーテルにて抽出した。該有機層を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1-[(エチルチオ)カルボニル]-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 19.16 g (LC 面百値 98.4%) を得た。

融点: 198.5

[2] 1-[(エチルチオ)カルボニル]-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 2.07 g (6.23 mmol) の 1,4-ジオキサン溶液に水素化リチウム 85 mg (10.6 mmol) を加えて 10 分間還流させた。1-メチルプロピル=メタンスルホネート 1.6 g (10.5 mmol) を加えて 1 時間還流させた。1,4-ジオキサンを減圧留去し、残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣を酢酸エチルとヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1-[(エチルチオ)カルボニル]-2-(1-メチルプロピル)-4-(2,6-ジクロロフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 1.25 g (3.22 mmol) を得た。

¹H-NMR (CDCl₃, TMS)

(ppm): 7.37 (1H), 7.18~7.26 (2H), 5.63 (2H), 3.63 (1H), 2.97 (2H), 1.88~2.09 (2H), 1.35~1.41 (6H), 1.00 (3H)

【0044】

合成例 19

[1] 4-(2-メチルフェニル)-5-アミノ-1H-ピラゾール-3-オン 2.00

10

20

30

40

50

g (1 0 . 6 m m o l)、エチル＝クロロホルメート 1 . 2 1 g (1 1 . 1 m m o l) およびトルエン 1 0 . 0 0 g の混合物に、2 5 にて 1 0 % 水酸化ナトリウム水溶液 5 . 0 8 g (1 2 . 7 m m o l) をゆっくりと滴下した。滴下終了後、同温度にて 1 時間攪拌した。その後、5 % 塩酸水を加えて反応混合物の液性を酸性とし、これを酢酸エチル 1 0 . 0 0 g にて 2 回抽出した。該有機層を併せ、硫酸マグネシウムで乾燥、溶媒を濃縮し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1 - (エトキシカルボニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2 . 1 0 g (L C 面百値 9 8 . 9 %) を得た。

融点：1 6 1 . 5

[2] 水素化リチウム 0 . 0 3 0 5 g (3 . 8 0 m m o l) および 1 , 4 - ジオキサン 1 0 . 0 0 g の混合物に室温にて、1 - (エトキシカルボニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0 . 5 0 g (1 . 9 0 m m o l) を加えて、同温度にて 3 0 分攪拌した。その後、1 - メチルプロピル＝メタンスルホネート 0 . 5 8 g (3 . 8 0 m m o l) をゆっくり滴下して、滴下終了後、1 0 0 まで昇温し同温度にて 4 時間攪拌した。その後、冷却して 5 % 塩酸水 1 0 . 0 0 g を加えて、トルエン 2 0 . 0 0 g にて 2 回抽出した。該有機層を併せ、これを硫酸マグネシウムにて乾燥後、溶媒を留去した。残渣に n - ヘキサンを加えることにより結晶化させ、濾過、n - ヘキサン洗浄、乾燥し、1 - (エトキシカルボニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0 . 2 5 g (L C 面百値 9 5 . 2 %) を得た。

融点：7 0 . 0

【 0 0 4 5 】

合成例 2 0

[1] 4 - (2 , 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2 . 4 2 g (9 . 9 2 m m o l)、S - メチル＝クロロチオホルメート 1 . 3 0 g (1 1 . 8 m m o l) およびトルエン 2 0 m l の混合物に 2 5 にて 7 . 4 6 % 水酸化ナトリウム水溶液 6 . 4 g (1 1 . 9 m m o l) をゆっくりと滴下した。滴下終了後、同温度にて 3 時間攪拌した。その後、5 % 塩酸水を加えて反応混合物の液性を酸性とし、これをトルエンおよび t e r t - ブチルメチルエーテルにて抽出した。該有機層を濃縮し、残渣を酢酸エチルとヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1 - [(メチルチオ) カルボニル] - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2 . 4 g を得た。

¹H - NMR (D M S O)

(p p m) : 1 1 . 0 (1 H)、7 . 4 8 ~ 7 . 5 1 (2 H)、7 . 3 4 ~ 7 . 3 9 (1 H)、6 . 6 0 (2 H)、3 . 3 2 (3 H)、2 . 3 3 (3 H)

[2] 1 - [(メチルチオ) カルボニル] - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0 . 7 2 g (2 . 2 5 m m o l) の 1 , 4 - ジオキサン溶液 1 0 m l に水素化リチウム 3 0 m g (3 . 7 5 m m o l) を加えて 1 0 分間還流させた。1 - メチルエチル＝メタンスルホネート 0 . 4 3 g (3 . 1 1 m m o l) を加えて 1 時間還流させた。1 , 4 - ジオキサンを減圧留去し、残渣に 5 % 塩酸水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣を酢酸エチルとヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1 - [(メチルチオ) カルボニル] - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0 . 4 6 g を得た。

¹H - NMR (C D C l ₃)

(p p m) : 7 . 3 5 ~ 7 . 3 9 (2 H)、7 . 1 8 ~ 7 . 2 7 (1 H)、5 . 6 7 (2 H)、3 . 8 5 ~ 3 . 9 5 (1 H)、2 . 4 0 (3 H)、1 . 4 3 ~ 1 . 4 6 (6 H)

。

【 0 0 4 6 】

合成例 2 1

1 - [(メチルチオ) カルボニル] - 4 - (2 , 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ -

10

20

30

40

50

1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.80 g (2.52 mmol) の 1, 4 - ジオキサン溶液 10 ml に水素化リチウム 30 mg (3.75 mmol) を加えて 10 分間還流させた。1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 0.50 g (3.29 mmol) を加えて 1 時間還流させた。1, 4 - ジオキサンを減圧留去し、残渣に 5 % 塩酸水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.33 g を得た。

^1H - NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.35 ~ 7.39 (2H), 7.18 ~ 7.27 (1H), 5.66 (2H), 3.55 ~ 3.66 (1H), 2.41 (3H), 1.82 ~ 2.13 (2H), 1.38 ~ 1.41 (3H), 0.97 ~ 1.03 (3H)。

【0047】

合成例 2 2

1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.0 g (6.46 mmol)、モレキュラーシーブス 3A 1.0 g、1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 1.33 g (8.72 mmol) およびジオキサン 10 g の混合物を 90 °C まで昇温した。同温度にて水酸化リチウム - 水和物 0.31 g (7.43 mmol) を 2 時間で 3 分割して投入した。投入後、同温度にて 5 時間攪拌した。その後、冷却して 5 % 塩酸水 8 g を加えて、酢酸エチル (4 g × 2) にて抽出した。該有機層を併せ、これを硫酸マグネシウムにて乾燥後、溶媒を留去した。残渣に n - ヘキサンを加えることにより結晶化させ、ろ取、n - ヘキサン洗浄、乾燥し、1 - [(2 - プロペニルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.75 g を得た。

^1H - NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.21 ~ 7.44 (4H), 5.83 ~ 5.94 (1H), 5.76 (2H), 5.09 ~ 5.36 (2H), 3.60 ~ 3.66 (3H), 1.81 ~ 2.11 (2H), 1.38 (3H), 1.00 (3H)。

【0048】

合成例 2 3

1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.80 g (3.06 mmol) の 1, 4 - ジオキサン溶液 15 ml に水素化リチウム 37 mg (4.63 mmol) を加えて 10 分間還流させた。1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 0.65 g (4.28 mmol) を加えて 1 時間還流させた。1, 4 - ジオキサンを減圧留去し、残渣に 5 % 塩酸水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、有機層を水で洗浄した。溶媒を減圧留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、1 - [(メチルチオ)カルボニル] - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.42 g を得た。

^1H - NMR (CDCl₃)

(ppm): 7.18 ~ 7.25 (4H), 5.51 (2H), 3.68 ~ 3.77 (1H), 2.40 (3H), 2.27 (3H), 1.78 ~ 1.97 (2H), 1.37 ~ 1.39 (3H), 0.92 ~ 0.97 (3H)。

【0049】

合成例 2 4

[1] 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 4.60 g (24.3 mmol) とトリエチルアミン 9.8 g (97 mmol) をテトラヒドロフランに加え、氷冷下にクロロトリメチルシラン 2.2 g (27.0 mmol) を滴下し、室温にて 3 時間攪拌した。混合物に、氷冷下にてメタンスルホンニル = クロリド 3.1 g (27.0 mmol) を滴下し、室温にて 1 時間攪拌した。反応混合物中に生じた沈殿を

10

20

30

40

50

ろ過により除去し、該ろ液に水 1 ml および酢酸 1 ml を加えて、加熱還流条件下に 1 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却した後、反応液に水を加え、酢酸エチルにて抽出し、該有機層を水で洗浄し、減圧条件下に濃縮した。残渣を酢酸エチルで洗浄し、1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.2 g (5.1 mmol) を得た。

^1H - NMR (DMSO - d^6)

(ppm) : 7.17 ~ 7.24 (4H), 6.35 (2H), 3.10 (3H), 2.19 (3H)

[2] 1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 900 mg (3.4 mmol) を 10 ml の 1, 4 - ジオキサンに溶解させ、水素化リチウム 40 mg (5.0 mmol) を加え、加熱還流条件下に 10 分間攪拌した。その後 1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 770 mg (5.1 mmol) を加え、更に同条件で 30 分間攪拌した。該反応液を減圧条件下に濃縮し、残渣に水を加え、これを酢酸エチルにて抽出し、該有機層を水で洗浄し、減圧条件下に濃縮した。残渣を酢酸エチルと n - ヘキサンの混合溶媒にて洗浄し、1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.1 g (3.0 mmol) を得た。

融点 : 154.1

【0050】

合成例 25

1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.5 g (5.6 mmol)、水素化リチウム 40 mg (5.0 mmol) および 1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 1.5 g (8.2 mmol) から、1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.2 g (0.59 mmol) を得た。

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm) : 7.12 ~ 7.29 (4H), 5.14 (2H), 4.03 ~ 4.10 (1H), 2.99 (3H), 2.25 (3H), 2.04 ~ 2.13 (1H), 1.65 ~ 1.75 (1H), 1.34 ~ 1.54 (5H), 0.92 ~ 0.97 (3H)

【0051】

合成例 26

1 - (エチルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 2.0 g (7.1 mmol)、水素化リチウム 85 mg (10.6 mmol) および 1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 1.6 g (10.5 mmol) から、1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.48 g (1.42 mmol) を得た。

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm) : 7.12 ~ 7.30 (4H), 5.17 (2H), 3.98 ~ 4.05 (1H), 3.23 ~ 3.30 (2H), 2.26 (3H), 2.11 ~ 2.18 (1H), 1.67 ~ 1.82 (1H), 1.47 ~ 1.52 (3H), 1.33 (3H), 0.97 ~ 1.02 (3H)

【0052】

合成例 27

1 - (プロピルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.6 g (5.2 mmol)、水素化リチウム 63 mg (7.9 mmol) および 1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 1.2 g (7.9 mmol) から、1 - (プロピルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.42 g (1.19 mmol) を得た。

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm) : 7.12 ~ 7.29 (4H), 5.19 (2H), 3.96 ~ 4.03 (

1 H), 3.11 ~ 3.22 (2 H), 2.25 (3 H), 2.07 ~ 2.20 (1 H),
 , 1.90 ~ 2.02 (1 H), 1.33 ~ 1.35 (3 H), 1.08 ~ 1.13 (3
 H), 0.97 ~ 1.02 (3 H)

【0053】

合成例 28

1 - (エチルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.56 g (5.5 mmol)、水素化リチウム 66 mg (8.3 mmol) および 1 - メチルブチル = メタンスルホネート 1.5 g (8.2 mmol) から、1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.45 g (1.25 mmol) を得た。

10

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm): 7.11 ~ 7.29 (4 H), 5.19 (2 H), 4.04 ~ 4.13 (1 H), 3.21 ~ 3.30 (2 H), 2.25 (3 H), 2.0 ~ 2.2 (1 H), 1.64 ~ 1.70 (1 H), 1.33 ~ 1.52 (8 H), 0.91 ~ 0.97 (3 H)

【0054】

合成例 29

1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.5 g (5.6 mmol)、水素化リチウム 65 mg (8.1 mmol) および 1 - メチルエチル = メタンスルホネート 1.2 g (8.7 mmol) から、1 - (エチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルエチル) - 4 - (2 - メチルフェニル) - 5 - ア

20

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm): 7.13 ~ 7.30 (4 H), 5.17 (2 H), 4.17 ~ 4.26 (1 H), 3.00 (3 H), 2.26 (3 H), 1.42 ~ 1.47 (6 H)

【0055】

合成例 30

1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.27 g (4.4 mmol)、水素化リチウム 53 mg (6.6 mmol) および 1 - メチルブチル = メタンスルホネート 1.1 g (6.6 mmol) から、1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェ

30

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm): 7.24 ~ 7.41 (3 H), 5.21 (2 H), 4.02 ~ 4.09 (1 H), 3.05 (3 H), 2.06 ~ 2.18 (1 H), 1.64 ~ 1.74 (1 H), 1.36 ~ 1.50 (5 H), 0.91 ~ 0.96 (3 H)

【0056】

合成例 31

1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 1.2 g (4.1 mmol)、水素化リチウム 50 mg (6.3 mmol) および 1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 0.93 g (6.1 mmol) から、1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2, 6 - ジクロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.38 g (1.10 mmol) を得た。

40

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm): 7.24 ~ 7.41 (3 H), 5.20 (2 H), 3.91 ~ 4.00 (1 H), 3.06 (3 H), 2.11 ~ 2.20 (1 H), 1.68 ~ 1.82 (1 H), 1.36 ~ 1.38 (3 H), 0.99 ~ 1.04 (3 H)

【0057】

合成例 32

50

1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.84 g (3.1 mmol)、水素化リチウム 37 mg (4.6 mmol) および 1 - メチルブチル = メタンスルホネート 0.77 g (4.6 mmol) から 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルブチル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.16 g (0.47 mmol) を得た。

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm): 7.26 ~ 7.46 (4H), 5.30 (2H), 4.02 ~ 4.12 (1H), 3.02 (3H), 2.04 ~ 2.16 (1H), 1.66 ~ 1.76 (1H), 1.36 ~ 1.49 (5H), 0.92 ~ 1.03 (3H)

【0058】

合成例 33

1 - (メチルスルホニル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.99 g (3.6 mmol)、水素化リチウム 44 mg (5.5 mmol) および 1 - メチルプロピル = メタンスルホネート 0.82 g (5.4 mmol) から 1 - (メチルスルホニル) - 2 - (1 - メチルプロピル) - 4 - (2 - クロロフェニル) - 5 - アミノ - 1 H - ピラゾール - 3 - オン 0.20 g (0.61 mmol) を得た。

^1H - NMR (CDCl₃ / TMS)

(ppm): 7.29 ~ 7.47 (4H), 5.31 (2H), 3.03 (3H), 2.11 ~ 2.19 (1H), 1.70 ~ 1.81 (1H), 1.36 ~ 1.38 (3H), 0.97 ~ 1.03 (3H)

【0059】

試験例 1

プラスチックポットに砂壤土を詰め、キュウリ (相模半白) を播種し、温室内で 12 日間生育させた。化合物 - 1、化合物 - 2、化合物 - 7、化合物 - 25、化合物 - 28、化合物 - 72、化合物 - 77、化合物 - 81 および化合物 - 83 の各々の水和剤と化合物 A の水和剤をそれぞれ水で希釈した後、タンクミックスし、化合物 の濃度が 2.5 ppm、化合物 A の濃度が 10 ppm の液組成物を得た。該液組成物を、前記キュウリ葉面に充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾した後、フルアジナム耐性キュウリ灰色かび病菌の胞子含有 PDA 培地をキュウリ葉面上に置いた。接種後 10

、多湿下に 6 日間置いた後、防除効果を調査した。
その結果、本発明組成物処理区は、化合物 あるいは化合物 A の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【0060】

以下、試験例 1 に準じて試験を行った。供試したキュウリ灰色かび病菌に関しては、特に断りのない限り通常の感受性菌を使用した。

試験例 2

化合物 - 1、化合物 - 3、化合物 - 14、化合物 - 23、化合物 - 77、化合物 - 83、化合物 - 85 および化合物 - 86 の各々の水和剤と化合物 B の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物 の濃度が 2.5 ppm、化合物 B の濃度が 1.25 ppm の液組成物にて、試験例 1 と同様の試験を行った。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 B の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【0061】

試験例 3

化合物 - 1、化合物 - 2、化合物 - 3、化合物 - 4、化合物 - 5、化合物 - 6、化合物 - 7、化合物 - 8、化合物 - 9、化合物 - 10、化合物 - 11、化合物 - 12、化合物 - 13、化合物 - 14、化合物 - 15、化合物 - 16、化合物 - 17、化合物 - 18、化合物 - 19 および化合物 - 20 の各々の水和剤と化合物 C の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物 の濃度が 2.5 ppm、化合物 C の濃度が 10 ppm の液組成物にて、試験例 1 と同様の試験を行った。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 C の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【 0 0 6 2 】

試験例 4

化合物 - 7、化合物 - 9、化合物 - 23、化合物 - 72、化合物 - 80 および化合物 - 81 の各々の水和剤と化合物 D の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 D の濃度が 5 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 D の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

10

【 0 0 6 3 】

試験例 5

化合物 - 1、化合物 - 3、化合物 - 19、化合物 - 18、化合物 - 72 および化合物 - 80 の各々の水和剤と化合物 E の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 E の濃度が 5 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 E の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【 0 0 6 4 】

試験例 6

化合物 - 2、化合物 - 20、化合物 - 34、化合物 - 41、化合物 - 79 および化合物 - 86 の各々の水和剤と化合物 F の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 F の濃度が 5 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 F の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

20

【 0 0 6 5 】

試験例 7

化合物 - 7、化合物 - 15、化合物 - 23、化合物 - 25、化合物 - 26、化合物 - 29、化合物 - 38、化合物 - 40、化合物 - 77、化合物 - 79、化合物 - 83 および化合物 - 87 の各々の水和剤と化合物 G の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 G の濃度が 40 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。但し、供試菌は、ジカルボキシイミド系薬剤耐性菌を用いた。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 G の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

30

【 0 0 6 6 】

試験例 8

化合物 - 1、化合物 - 3、化合物 - 14、化合物 - 79 および化合物 - 86 の各々の水和剤と化合物 H の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物の濃度が 5 p p m、化合物 H の濃度が 40 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。

但し、供試菌はジカルボキシイミド系薬剤耐性菌を用いた。その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 H の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

40

【 0 0 6 7 】

試験例 9

化合物 - 3、化合物 - 25、化合物 - 34、化合物 - 41、化合物 - 77、化合物 - 81、化合物 - 83 および化合物 - 86 の各々の水和剤と化合物 I の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物の濃度が 10 p p m、化合物 I の濃度が 40 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。但し、供試菌はジカルボキシイミド系薬剤耐性菌を用いた。

50

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 I の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【 0 0 6 8 】

試験例 1 0

化合物 - 7、化合物 - 1 4、化合物 - 3 1、化合物 - 4 1 および化合物 - 7 9 の各々の水和剤と化合物 J の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物 の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 J の濃度が 5 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 J の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【 0 0 6 9 】

10

試験例 1 1

化合物 - 9、化合物 - 2 0、化合物 - 2 6、化合物 - 2 8、化合物 - 8 1 および化合物 - 8 3 の各々の水和剤と化合物 K の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物 の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 K の濃度が 2 . 5 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 K の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【 0 0 7 0 】

試験例 1 2

化合物 - 1 9、化合物 - 2 3、化合物 - 2 5、化合物 - 7 2、化合物 - 8 5 および化合物 - 8 7 の各々の水和剤と化合物 L の水和剤を用い、タンクミックス後の化合物 の濃度が 2 . 5 p p m、化合物 L の濃度が 2 . 5 p p m の液組成物にて、試験例 1 と同様の実験を行った。

20

その結果、本発明組成物処理区は化合物 あるいは化合物 L の単独処理区に比較して、高い防除効果を示した。

【 0 0 7 1 】

【発明の効果】

本発明組成物は、優れた植物病害防除効力を有する。

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開2000-226374(JP,A)
特開2001-011053(JP,A)
特開平09-235282(JP,A)
特開平05-221994(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
A01N 43/56
CA/REGISTRY(STN)