

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年3月16日(16.03.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/043385 A1

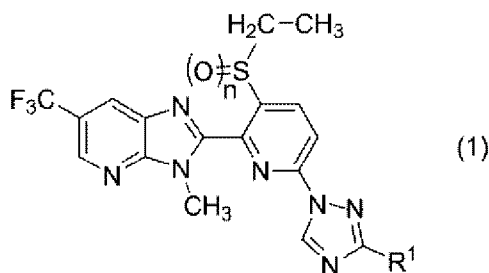
- (51) 国際特許分類:
A01N 43/90 (2006.01) A01P 7/04 (2006.01)
A01N 25/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/075447
- (22) 国際出願日: 2016年8月31日(31.08.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-175478 2015年9月7日(07.09.2015) JP
- (71) 出願人: 住友化学株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目2番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 西口 直延(NISHIGUCHI, Naonobu); 〒6658555 兵庫県宝塚市高司四丁目2番1号住友化学株式会社内 Hyogo (JP). 砂村 栄力(SUNAMURA, Eiriki); 〒1048260 東京都中央区新川二丁目2番1号住友化学株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 中山 亨, 外(NAKAYAMA, Tohru et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号住友化学株式会社内 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: PEST CONTROL COMPOSITION

(54) 発明の名称: 有害生物防除組成物



(57) Abstract: [Problem] To provide a composition that exhibits an excellent control effect against pests. [Solution] A pest control composition containing a condensed heterocyclic compound represented by formula (1) (in the formula, R¹ represents a hydrogen atom, a C1-C3 alkyl group that may comprise one or more halogen atoms, a C1-C3 alkoxy group, a C2-C4 alkoxy-carbonyl group, S(O)_mR², NR³R⁴, a nitro group, or a cyano group, R² represents a C1-C3 alkyl group, R³ and R⁴ are the same or different and each represents a hydrogen atom or a C1-C3 alkyl group, n represents 0, 1, or 2, and m represents 0, 1, or 2) and an isoparaffin that is a liquid under atmospheric pressure at 25 °C.

(57) 要約: 【課題】有害生物に対する優れた防除効果を示す組成物を提供すること。

[続葉有]

WO 2017/043385 A1



【解決手段】式（１）〔式中、 R^1 は、水素原子、１個以上のハロゲン原子を有していてもよい C_1-C_3 アルキル基、ハロゲン原子、 C_1-C_3 アルコキシ基、 C_2-C_4 アルコシカルボニル基、 $S(O)_mR^2$ 、 NR^3R^4 、ニトロ基又はシアノ基を表し、 R^2 は、 C_1-C_3 アルキル基を表し、 R^3 および R^4 は同一または相異なり、水素原子又は C_1-C_3 アルキル基を表し、 n は０、１又は２を表し、 m は０、１又は２を表す。〕で示される縮合複素環化合物と、 $25^{\circ}C$ 大気圧条件下で液体のイソパラフィンとを含む有害生物防除組成物。

明 細 書

発明の名称：有害生物防除組成物

技術分野

[0001] 本発明は有害生物防除組成物および防除方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、殺虫活性化合物が処理された害虫駆除剤が知られている（例えば、非特許文献 1 参照。）。しかしながら、必ずしも十分な防除効力を示さない場合もあるため、有害生物に対する優れた防除効力を有する組成物の開発が望まれていた。

先行技術文献

非特許文献

[0003] 非特許文献 1：Insects 2014, 5, 832-848; doi:10.3390/insects5040832

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本発明は、優れた効力を有する有害生物防除組成物を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

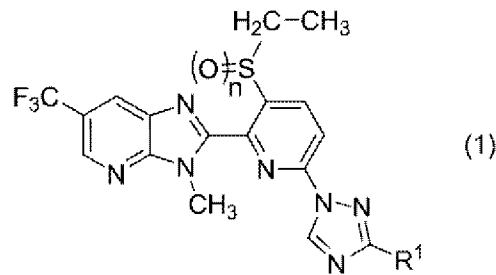
[0005] 本発明者らは、鋭意検討した結果、下記式（1）で示される縮合複素環化合物と 25℃大気圧条件下で液体のイソパラフィンとを含む組成物が、有害生物に対して優れた防除効力を有することを見出し、本発明に至った。

[0006] 即ち、本発明は以下のとおりである。

[1] 式（1）

[0007]

[化1]



[式中、

R^1 は、水素原子、1個以上のハロゲン原子を有していてもよいC1-C3アルキル基、ハロゲン原子、C1-C3アルコキシ基、C2-C4アルコキシカルボニル基、 $S(O)_m R^2$ 、 $NR^3 R^4$ 、ニトロ基又はシアノ基を表し、

R^2 は、C1-C3アルキル基を表し、

R^3 および R^4 は同一または相異なり、水素原子又はC1-C3アルキル基を表し、

n は0、1又は2を表し、

m は0、1又は2を表す。]

で示される縮合複素環化合物と、25℃大気圧条件下で液体のイソパラフィンとを含む有害生物防除組成物。

[2] 式(1)で示される縮合複素環化合物において、

R^1 が、水素原子、塩素原子、臭素原子、メチル基、トリフルオロメチル基、メトキシ基、メチルスルファニル基、メチルスルフィニル基、又はメチルスルホニル基であり、

n が2である、[1]に記載の有害生物防除組成物。

[3] [1]または[2]に記載の有害生物防除組成物を、有害生物または有害生物の生息場所に施用する、有害生物の防除方法。

発明の効果

[0008] 本発明により、有害生物を防除することができる。

図面の簡単な説明

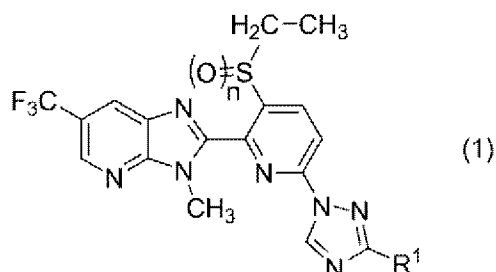
[0009] [図1]紙含浸剤への偶然接触による殺虫試験における、コンテナ内の営業場所

、固形飼料、水及び紙含浸剤の位置関係を示した図である（試験例 3）。

発明を実施するための形態

[0010] 本発明組成物は、式（1）で示される縮合複素環化合物（以下、本化合物と記す。）を含む。

[0011] [化2]



[式中、

R^1 は、水素原子、1個以上のハロゲン原子を有していてもよいC1－C3アルキル基、ハロゲン原子、C1－C3アルコキシ基、C2－C4アルコキシカルボニル基、 $S(O)_m R^2$ 、 $NR^3 R^4$ 、ニトロ基又はシアノ基を表し、

R^2 は、C1－C3アルキル基を表し、

R^3 および R^4 は同一または相異なり、水素原子又はC1－C3アルキル基を表し、

n は0、1又は2を表し、

m は0、1又は2を表す。]

[0012] 式（1）において、「ハロゲン原子」とはフッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子を意味する。

[0013] 本化合物において「C1－C3アルキル基」としては、メチル基、エチル基、プロピル基、及びイソプロピル基が挙げられる。

本化合物において「1個以上のハロゲン原子を有していてもよいC1－C3アルキル基」とは、C1－C3アルキル基の少なくとも1の水素原子がハロゲン原子で置換されていてもよいC1－C3アルキル基を表し、例えばフルオロメチル基、クロロメチル基、ブロモメチル基、ヨードメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、トリクロロメチル基、2－フルオ

ロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、ペンタフルオロエチル基及びヘプタフルオロイソプロピル基が挙げられる。

[0014] 本化合物において「C 1-C 3アルコキシ基」としては、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、及びイソプロピルオキシ基が挙げられる。

[0015] 本化合物において「C 2-C 4アルコシカルボニル基」とは、C 1-C 3アルコキシ基とカルボニル基とが結合した基を表し、メトシカルボニル基、エトシカルボニル基、プロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基を表す。

[0016] 本化合物において「S (O)_mR²」とは、mが0であるC 1-C 3アルキルスルファニル基、mが1であるアルキルスルフィニル基及びmが2であるアルキルスルホニル基を表す。

C 1-C 3アルキルスルファニル基とは、メチルスルファニル基、エチルスルファニル基、プロピルスルファニル基、及びイソプロピルスルファニル基を表す。

C 1-C 3アルキルスルフィニル基とは、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、プロピルスルフィニル基、及びイソプロピルスルフィニル基を表す。

C 1-C 3アルキルスルホニル基とは、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、プロピルスルホニル基、及びイソプロピルスルホニル基を表す。

[0017] 本化合物としては、式(1)において、R¹が水素原子、塩素原子、臭素原子、トリフルオロメチル基、メトキシ基、メチルスルファニル基、メチルスルフィニル基、又はメチルスルホニル基であり、nが2である化合物が好ましく、R¹が水素原子であり、nが2である化合物がより好ましい。

[0018] 次に、本化合物の製造法について説明する。

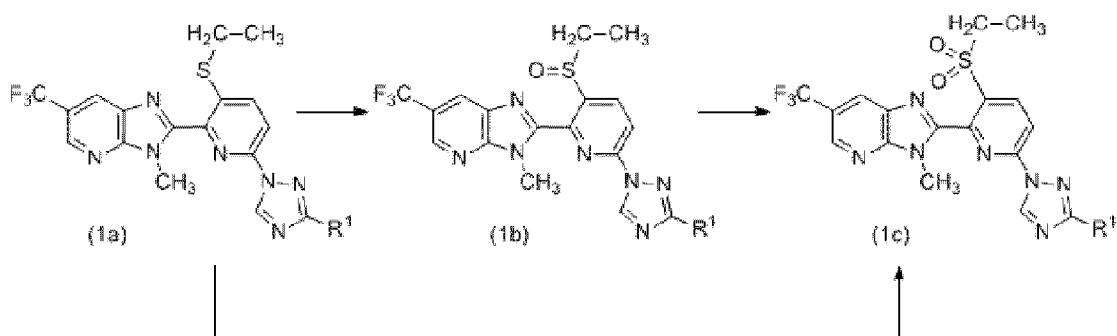
[0019] 本化合物、及び、その製造中間体化合物は、例えば、以下の方法で製造することができる。

[0020] 製造法 1

式(1)において、nが1である化合物(1b)およびnが2である化合

物（１c）は、式（１）においてnが0である化合物（１a）と酸化剤とを反応させることにより製造することができる。

[0021] [化3]



[式中、記号は式（１）と同じ意味を表す。]

[0022] まず、化合物（１a）から化合物（１b）を製造する方法について記載する。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばジクロロメタン、クロロホルム等の脂肪族ハロゲン化炭化水素類、アセトニトリル等のニトリル類、メタノール、エタノール等のアルコール類、酢酸、水及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる酸化剤としては、例えば過ヨウ素酸ナトリウム、m-クロロ過安息香酸、及び過酸化水素が挙げられる。

酸化剤として過酸化水素水を用いる場合は、必要に応じて塩基、又は触媒の存在下で行うこともできる。

反応に用いられる塩基としては、炭酸ナトリウム等が挙げられる。

反応に用いられる触媒としては、例えばタングステン酸、タングステン酸ナトリウムが挙げられる。

該反応には、化合物（１a）１モルに対して、酸化剤が通常１～１．２モルの割合で用いられる。

該反応に過酸化水素水を用い、且つ塩基を用いる場合は、化合物（１a）１モルに対して、過酸化水素水が通常１～１．２モルの割合、塩基が通常０

、0.1～1モルの割合で用いる。

該反応に過酸化水素水を用い、且つ触媒を用いる場合は、化合物（1 a）1モルに対して、過酸化水素水が通常1～1.2モルの割合、触媒が通常0.01～0.5モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常－20～80℃の範囲である。該反応の反応時間は通常0.1～12時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒で抽出し、有機層を必要に応じて還元剤（例えば亜硫酸ナトリウム、チオ硫酸ナトリウム）の水溶液、及び塩基（例えば炭酸水素ナトリウム）の水溶液で洗浄する。洗浄した有機層を乾燥、濃縮を行うことにより、化合物（1 b）を単離することができる。単離された化合物（1 b）は、クロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

[0023] つぎに、化合物（1 b）から化合物（1 c）を製造する方法について記載する。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばジクロロメタン、クロロホルム等の脂肪族ハロゲン化炭化水素類、アセトニトリル等のニトリル類、メタノール、エタノール等のアルコール類、酢酸、水及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる酸化剤としては、例えばm-クロロ過安息香酸又は過酸化水素水が挙げられる。

該反応は必要に応じて塩基、又は触媒の存在下で行うこともできる。

反応に用いられる塩基としては、炭酸ナトリウム等が挙げられる。

反応に用いられる触媒としては、例えばタングステン酸ナトリウムが挙げられる。

該反応には、化合物（1 b）1モルに対して、酸化剤が通常1～4モルの割合で用いられる。好ましくは、化合物（1 b）1モルに対して、酸化剤が1～2モルの割合で用いられる。

該反応に過酸化水素水を用い、且つ塩基を用いる場合は、化合物（１ｂ）１モルに対して、過酸化水素水が通常１～４モルの割合、塩基が通常０．０１～１モルの割合で用いる。

該反応に過酸化水素水を用い、且つ触媒を用いる場合は、化合物（１ｂ）１モルに対して、過酸化水素水が通常１～４モルの割合、触媒が通常０．０１～０．５モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常－２０～１２０℃の範囲である。該反応の反応時間は通常０．１～１２時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒で抽出し、有機層を必要に応じて還元剤（例えば亜硫酸ナトリウム、チオ硫酸ナトリウム）の水溶液、及び塩基（例えば炭酸水素ナトリウム）の水溶液で洗浄する。この有機層を乾燥、濃縮を行うことにより、化合物（１ｃ）を単離することができる。化合物（１ｃ）は、クロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

[0024] また、化合物（１ｃ）は、化合物（１ａ）と酸化剤とを反応させることで、一段階反応（ワンポット）で製造することができる。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばジクロロメタン、クロロホルム等の脂肪族ハロゲン化炭化水素類、アセトニトリル等のニトリル類、メタノール、エタノール等のアルコール類、酢酸、水及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる酸化剤としては、例えばｍ－クロロ過安息香酸又は過酸化水素水が挙げられる。

該反応の酸化剤として過酸化水素水を用いる場合は、必要に応じて塩基、又は触媒の存在下で行う。

反応に用いられる塩基としては、炭酸ナトリウム等が挙げられる。

反応に用いられる触媒としては、例えばタングステン酸、タングステン酸ナトリウムが挙げられる。

該反応には、化合物（１ a）１モルに対して、酸化剤が通常２～５モルの割合で用いられる。

該反応に過酸化水素水を用い、且つ塩基を用いる場合は、化合物（１ a）１モルに対して、過酸化水素水が通常２～５モルの割合、塩基が通常０．０１～１モルの割合で用いる。

該反応に過酸化水素水を用い、且つ触媒を用いる場合は、化合物（１ a）１モルに対して、過酸化水素水が通常２～５モルの割合、触媒が通常０．０１～０．５モルの割合で用いられる。

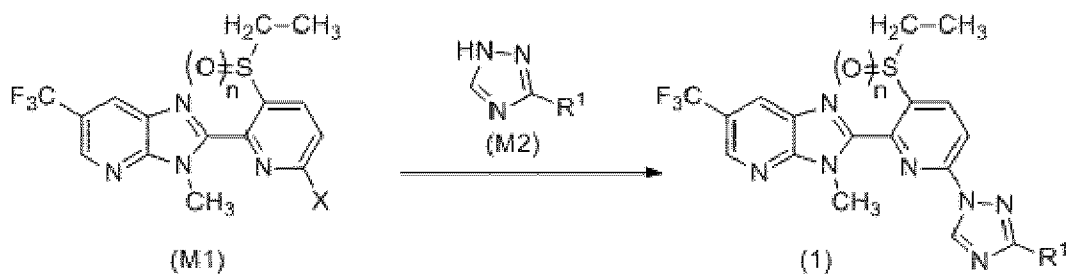
該反応の反応温度は、通常０～１２０℃の範囲である。該反応の反応時間は通常０．１～１２時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒で抽出し、有機層を必要に応じて還元剤（例えば亜硫酸ナトリウム、チオ硫酸ナトリウム）の水溶液、及び塩基（例えば炭酸水素ナトリウム）の水溶液で洗浄する。この有機層を、乾燥、濃縮を行うことにより、化合物（１ c）を単離することができる。単離された化合物（１ c）は、クロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

[0025] 製造法２

本化合物は、式（M１）で示される化合物（以下、化合物（M１）と記載する。）と式（M２）で示される化合物（以下、化合物（M２）と記載する。）とを反応させることにより製造することができる。

[0026] [化4]



[式中、Xはハロゲン原子を表し、その他の記号は式（１）と同じ意味を表す。]

化合物（M2）は公知であるか、公知の方法に準じて製造することができる。

化合物（1a）は、化合物（M1）においてnが0である化合物（M1a）と化合物（M2）とを反応させることにより製造することができる。

化合物（1b）は、化合物（M1）においてnが1である化合物（M1b）と化合物（M2）とを反応させることにより製造することができる。

化合物（1c）は、化合物（M1）においてnが2である化合物（M1c）と化合物（M2）とを反応させることにより製造することができる。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えば1,4-ジオキサン、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、tert-ブチルメチルエーテル等のエーテル類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、ベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、アセトニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒、ピリジン、キノリン等の含窒素芳香族化合物類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては、例えば水素化ナトリウム、水素化カリウム等のアルカリ金属の水素化物類、水素化カルシウム等のアルカリ土類金属の水素化物類、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属の炭酸塩類、又はトリエチルアミン、ジイソピロピルエチルアミン、ピリジン、4-ジメチルアミノピリジン等の有機塩基が挙げられる。

該反応には、化合物（M1）1モルに対して、化合物（M2）が通常1～2モルの割合、塩基が通常1～5モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常、0～120℃の範囲である。該反応の反応時間は、通常、0.1～24時間の範囲である。

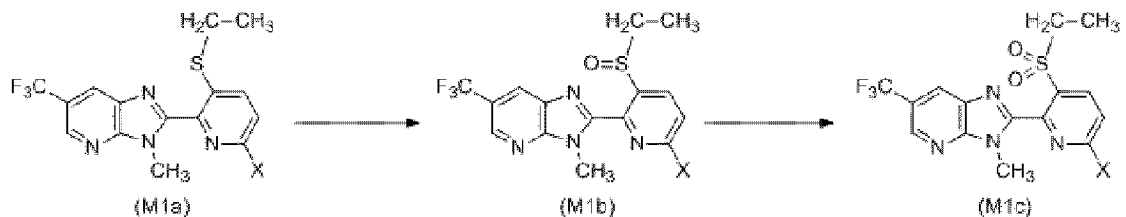
反応終了後は、反応混合物を水に注加してから有機溶媒抽出し、有機層を

濃縮する；反応混合物を水に注加して生じた固体を濾過により集める；又は、反応混合物中に生成した固体を濾過により集めることにより化合物を単離することができる。単離された化合物は、再結晶、クロマトグラフィー等により更に精製することもできる。

[0027] 製造法 3

化合物 (M 1) において n が 1 である化合物 (M 1 b)、および化合物 (M 1) において n が 2 である化合物 (M 1 c) は、化合物 (M 1) において n が 0 である化合物 (M 1 a) と酸化剤とを反応させることにより製造することができる。

[0028] [化5]



[式中、Xはハロゲン原子を表す。]

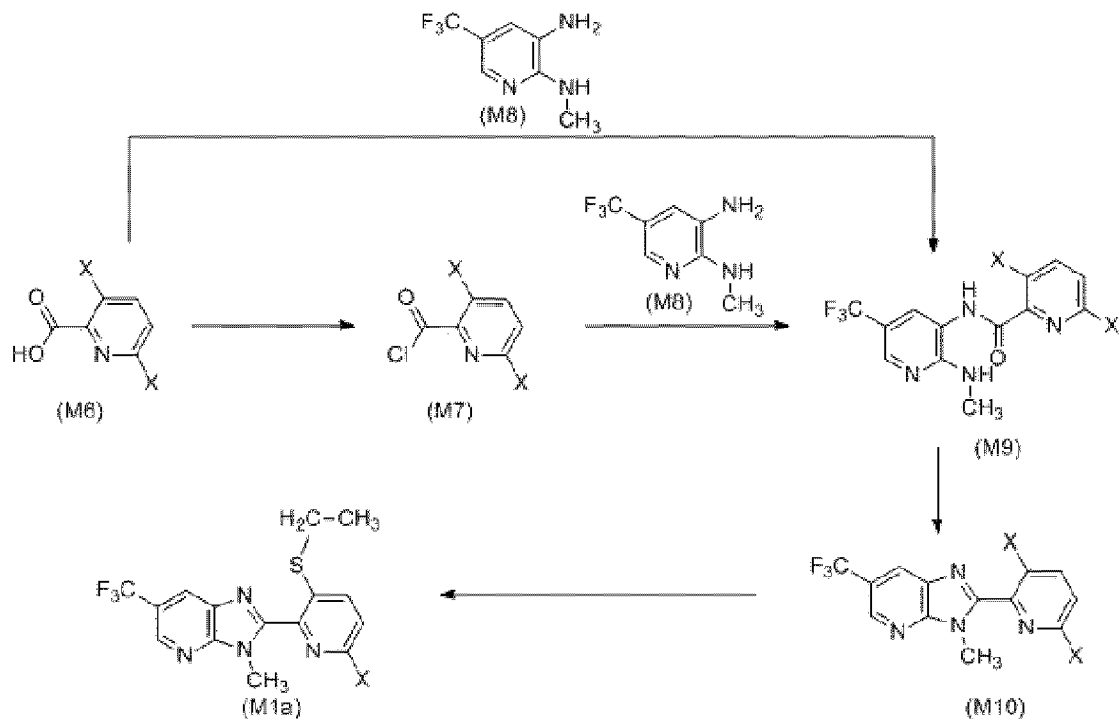
該反応は、製造法 1 における、化合物 (1 a)、化合物 (1 b) および化合物 (1 c) を、それぞれ化合物 (M 1 a)、化合物 (M 1 b)、および化合物 (M 1 c) に代えることにより、製造法 1 に記載の反応に準じて行うことができる。

[0029] 製造法 4

化合物 (M 1) において n が 0 である化合物 (M 1 a) は、例えば下記のスキームに従って製造することができる。

[0030]

[化6]



[式中、Xはハロゲン原子を表す。]

[0031] 式 (M 7) で示される化合物 (以下、化合物 (M 7) と記す。) は、式 (M 6) で示される化合物 (以下、化合物 (M 6) と記す。) と塩素化剤とを反応させることにより製造することができる。

化合物 (M 6) としては、例えば 3, 6-ジフルオロピリジン-2-カルボン酸、3, 6-ジクロロピリジン-2-カルボン酸が挙げられ、いずれも市販の化合物である。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばトルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ジクロロメタン、クロロホルム等の脂肪族ハロゲン化炭化水素類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩素化剤としては、塩化チオニル、二塩化オキサリル、オキシ塩化リン等が挙げられる。

該反応には、化合物 (M 6) 1 モルに対して、塩素化剤が通常 1 ~ 15 モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常0～150℃の範囲である。該反応の反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、溶媒を留去することにより、化合物(M7)を単離することができる。

[0032] 式(M9)で示される化合物(以下、化合物(M9)と記す。)は、化合物(M7)と式(M8)で示される化合物(以下、化合物(M8)と記す。)とを反応させることにより製造することができる。

化合物(M8)で示されるN2-メチル-5-(トリフルオロメチル)ピリジン-2,3-ジアミンは国際公開2010/125985号明細書に記載の方法で製造することができる。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、1,4-ジオキサン等のエーテル類、ヘキサン、ヘプタン、オクタン等の脂肪族炭化水素類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、アセトニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒及びこれらの混合物が挙げられる。

該反応は、必要に応じて塩基を加えてもよい。

反応に用いられる塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属炭酸塩類、トリエチルアミン、N,N-ジイソプロピルエチルアミン等の第3級アミン類及びピリジン、4-ジメチルアミノピリジン等の含窒素芳香族化合物類等が挙げられる。

該反応には、化合物(M8)1モルに対して、化合物(M7)が通常1～3モルの割合、塩基が通常1～10モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常-20～100℃の範囲である。該反応の反応時間は通常0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物に水を注加した後、有機溶媒で抽出し、有機層を乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物（M9）を単離することができる。単離された化合物（M9）は、クロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

[0033] また、化合物（M9）は、化合物（M6）と化合物（M8）とを縮合剤の存在下で反応させることにより製造することもできる。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては、例えば、1,4-ジオキサン、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、tert-ブチルメチルエーテル等のエーテル類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、ベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、アセトニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒、ピリジン、キノリン等の含窒素芳香族化合物類及びこれらの混合物が挙げられる。

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

該反応は、必要に応じて触媒を加えてもよい。

反応に用いられる触媒としては、例えば1-ヒドロキシベンゾトリアゾールが挙げられる。

該反応には、化合物（M8）1モルに対して、化合物（M6）が通常1～2モルの割合、縮合剤が通常1～5モルの割合、触媒が通常0.01～1モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常、0～120℃の範囲である。該反応の反応時間は、通常、0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加してから有機溶媒抽出し、有機層を

濃縮する；反応混合物を水に注加して生じた固体を濾過により集める；又は、反応混合物中に生成した固体を濾過により集めることにより化合物（M9）を単離することができる。単離された化合物（M9）は、再結晶、クロマトグラフィー等により更に精製することもできる。

[0034] 式（M10）で示される化合物（以下、化合物（M10）と記す。）は、化合物（M9）を分子内縮合させることにより製造することができる。

該反応は、通常、溶媒の存在下で行われる。反応に用いられる溶媒としては、例えば1,4-ジオキサン、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、tert-ブチルメチルエーテル等のエーテル類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、ベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、アセトニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒、ピリジン、キノリン等の含窒素芳香族化合物類及びこれらの混合物が挙げられる。

該反応は必要に応じて、縮合剤、酸、塩基又は塩素化剤を加えてもよい。

反応に用いられる縮合剤としては、例えば無水酢酸、トリフルオロ酢酸無水物、1-エチル-3-(3-ジメチルアミノプロピル)カルボジイミド塩酸塩、トリフェニルホスフィンと塩基と四塩化炭素もしくは四臭化炭素との混合物、及びトリフェニルホスフィンとアゾジエステル類（例えばアゾジカルボン酸ジエチル）との混合物が挙げられる。

反応に用いられる酸としては、例えばパラトルエンスルホン酸等のスルホン酸類、酢酸等のカルボン酸類、及びポリリン酸が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては、例えばピリジン、ピコリン、2,6-ルチジン、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]-7-ウンデセン（以下、DBUと記す。）、1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]-5-ノネン等の含窒素複素環化合物、トリエチルアミン、N,N-ジイソプロピルエチル

アミン等の第3級アミン類、リン酸三カリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基が挙げられる。

反応に用いられる塩素化剤としては、例えばオキシ塩化リンが挙げられる。

該反応には、化合物（M9）1モルに対して、縮合剤を用いる場合には縮合剤が通常1～5モルの割合、酸を用いる場合には酸が通常0.1モル～5モルの割合、塩基を用いる場合には塩基が通常1モル～5モルの割合、塩素化剤を用いる場合には塩素化剤が通常1モル～5モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常、0～200℃の範囲である。該反応の反応時間は、通常、0.1～24時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加してから有機溶媒抽出し、有機層を濃縮する；反応混合物を水に注加して生じた固体を濾過により集める；又は、反応混合物中に生成した固体を濾過により集めることにより化合物（M10）を単離することができる。単離された化合物（M10）は、再結晶、クロマトグラフィー等により更に精製することもできる。

[0035] 式（M1a）で示される化合物（以下、化合物（M1a）と記す。）は、化合物（M10）とエチルメルカプタンとを塩基の存在下で反応させることにより製造することができる。

該反応は、通常溶媒の存在下で行われる。反応に用いられる溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテル、tert-ブチルメチルエーテル、1,4-ジオキサン等のエーテル類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、アセトニトリル等のニトリル類、N,N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、ジメチルスルホキシド等の非プロトン性極性溶媒、水及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては、例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属炭酸塩類、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物類が挙げられる。

該反応には、化合物（M10）1モルに対して、エチルメルカプタンが通

常 1 ～ 10 モルの割合、塩基が通常 1 ～ 10 モルの割合で用いられる。好ましくは、化合物 (M10) 1 モルに対して、エチルメルカプタンが 1.0 ～ 1.1 モルの割合、塩基が 1 ～ 2 モルの割合で用いられる。

該反応の反応温度は、通常 -20°C ～ 150°C の範囲である。該反応の反応時間は通常 0.5 ～ 24 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を有機溶媒で抽出し、有機層を乾燥、濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物 (M1a) を単離することができる。単離された化合物 (M1a) は、クロマトグラフィー、再結晶等によりさらに精製することもできる。

[0036] 本発明組成物は、 25°C 大気圧条件下で液体のイソパラフィン（以下、本イソパラフィンと記す。）を含む。イソパラフィンとは、炭化水素化合物の中でも分子式 $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$ の飽和鎖状化合物で、枝分かれ構造を有する。同じく分子式 $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$ で表される飽和鎖状化合物でも分枝のないノルマルパラフィンや、オレフィン系、ナフテン系および芳香族系の炭化水素とは区別される。

本イソパラフィンとしては、市販品または公知の方法により製造したいずれのものも用いることができる。例えば、エクソンモービル社製の *Isopar* シリーズ (*IsoparE* (炭素数: $\text{C}8-10$)、*IsoparG* (炭素数: $\text{C}9-11$)、*IsoparH* (炭素数: $\text{C}10-12$)、*IsoparL* (炭素数: $\text{C}10-14$)、*IsoparM* (炭素数: $\text{C}11-17$))、及び、出光興産社製の *IP* シリーズ (*IP* ソルベント 1016 (炭素数: $\text{C}6-9$)、*IP* ソルベント 1620 (炭素数: $\text{C}9-12$)、*IP* クリーン *LX* (炭素数: $\text{C}8-13$)、*IP* ソルベント 2028 (炭素数: $\text{C}12-16$)、*IP* ソルベント 2835 (炭素数: $\text{C}16-24$)) 等が挙げられる。

[0037] 本発明組成物は、本化合物と本イソパラフィンを、混合することにより得ることができる。

本発明組成物は、本化合物が、本イソパラフィンに完全に溶解した状態、

及び、溶解せず分散した状態のいずれをも含む。

- [0038] 本発明組成物中の本化合物の含有量は、0.001～60重量%であり、好ましくは0.01～40重量%である。
- [0039] 本発明組成物中の本イソパラフィンの含有量は、40～99.999重量%であり、好ましくは60～99.99重量%である。
- [0040] 本発明組成物中に、ノルマルパラフィン、オレフィン系、ナフテン系および芳香族系の炭化水素溶剤を加えてもよいが、該炭化水素溶剤と本イソパラフィンの合計量のうち本イソパラフィンの含有量は、25～100重量%であり、好ましくは50～100重量%で、より好ましくは60～100重量%である。
- [0041] 本発明組成物が効力を有する有害生物としては、例えば、有害昆虫類や有害ダニ類等の有害節足動物が挙げられる。かかる有害生物としては、具体的には、以下のものが挙げられる。
- [0042] 半翅目：クサギカメムシ (*Halyomorpha mista*) 等のカメムシ類、トコジラミ (*Cimex lectularius*) 等のトコジラミ類、及びキジラミ類。
- [0043] 鱗翅目：ノシメマダラメイガ (*Plodia interpunctella*) 等のメイガ類、イガ (*Tinea translucens*)、コイガ (*Tineola bisselliella*) 等のヒロズコガ類。
- [0044] 双翅目：アカイエカ (*Culex pipiens pallens*)、コガタアカイエカ (*Culex tritaeniorhynchus*)、ネッタイエカ (*Culex quinquefasciatus*) 等のイエカ類、ネッタイシマカ (*Aedes aegypti*)、ヒトスジシマカ (*Aedes albopictus*) 等のエーデス属、シナハマダラカ (*Anopheles sinensis*) 等のアノフェレス属、ユスリカ類、イエバエ (*Musca domestica*)、オオイエバエ (*Muscina stabulans*) 等のイエバエ類、クロバエ類、ニクバエ類、ヒメイエバエ類、タネバエ (*Delia platura*)、タマネギバエ

(*Delia antiqua*) 等のハナバエ類、ショウジョウバエ類、オオキモンノミバエ (*Megaselia spiracularis*) 等のノミバエ類、オオチョウバエ (*Clogmia albipunctata*) 等のチョウバエ類、クロバネキノコバエ類、ブユ類、ウシアブ (*Tabanus trigonus*) 等のアブ類、シラミバエ類及びサシバエ類。

[0045] 鞘翅目：アズキゾウムシ (*Callosobruchus chiensis*) 等のゾウムシ類、コクヌストモドキ (*Tribolium castaneum*) 等のゴミムシダマシ類、ヒメマルカツオブシムシ (*Anthrenus verbasci*)、ハラジロカツオブシムシ (*Derestes maculatus*) 等のカツオブシムシ類、タバコシバンムシ (*Lasioderma serricorne*) 等のシバンムシ類、ヒラタキクイムシ (*Lyctus brunneus*) 等のクイムシ類。

[0046] 隠翅目：ネコノミ (*Ctenocephalides felis*)、イヌノミ (*Ctenocephalides canis*)、ヒトノミ (*Pulex irritans*)、ケオプスネズミノミ (*Xenopsylla cheopis*) 等。

[0047] シラミ目：コロモジラミ (*Pediculus humanus corporis*)、アタマジラミ (*Pediculus humanus humanus*)、ケジラミ (*Phthirus pubis*)、ウシジラミ (*Haematopinus eurysternus*)、ヒツジジラミ (*Dalmanella ovis*)、ブタジラミ (*Haematopinus suis*)、イヌジラミ (*Linognathus setosus*) 等。

[0048] 膜翅目：イエヒメアリ (*Monomorium pharaonis*)、クロヤマアリ (*Formica fusca japonica*)、ルリアリ (*Ochetellus glaber*)、アミメアリ (*Pristomyrmex pungens*)、オオズアリ (*Pheidole noda*)、ハキリアリ (*Acromyrmex* spp.)、ファイヤーアント (

Solenopsis spp.)、アルゼンチンアリ (*Linepithema humile*) 等のアリ類、スズメバチ類。

[0049] ゴキブリ目：チャバネゴキブリ (*Blattella germanica*)、クロゴキブリ (*Periplaneta fuliginosa*)、ワモンゴキブリ (*Periplaneta americana*)、トビイロゴキブリ (*Periplaneta brunnea*)、トウヨウゴキブリ (*Blatta orientalis*)。

[0050] シロアリ目：ヤマトシロアリ (*Reticulitermes speratus*)、イエシロアリ (*Coptotermes formosanus*)、アメリカカンザイシロアリ (*Incisitermes minor*)、ダイコクシロアリ (*Cryptotermes domesticus*)、タイワンシロアリ (*Odontotermes formosanus*)、コウシュンシロアリ (*Neotermes koshunensis*)、サツマシロアリ (*Glyptotermes satsumensis*)、ナカジマシロアリ (*Glyptotermes nakajimai*)、カタンシロアリ (*Glyptotermes fuscus*)、コダマシロアリ (*Glyptotermes kodamai*)、クシモトシロアリ (*Glyptotermes kushimensis*)、オオシロアリ (*Hodotermopsis japonica*)、コウシュウイエシロアリ (*Coptotermes guangzhoensis*)、アマミシロアリ (*Reticulitermes amamianus*)、ミヤタケシロアリ (*Reticulitermes miyatakei*)、カンモンシロアリ (*Reticulitermes kanmonensis*)、タカサゴシロアリ (*Nasutitermes takasagoensis*)、ニトベシロアリ (*Pericapritermes nitobei*)、ムシャシロアリ (*Sinocapritermes mushae*) 等。

[0051] フタトゲチマダニ (*Haemaphysalis longicornis*)、ヤマトチマダニ (*Haemaphysalis flava*)、タイ

ワンカクマダニ (*Dermacentor taiwanicus*)、アメリカンイヌカクマダニ (*Dermacentor variabilis*)、ヤマトマダニ (*Ixodes ovatus*)、シュルツマダニ (*Ixodes persulcatus*)、ブラックレグドチック (*Ixodes scapularis*)、アメリカキララマダニ (*Amblyomma americanum*)、オウシマダニ (*Boophilus microplus*)、クリイロコイタマダニ (*Rhipicephalus sanguineus*) 等のマダニ類、ケナガコナダニ (*Tyrophagus putrescentiae*) 等のコナダニ類、コナヒョウヒダニ (*Dermatophagoides farinae*)、ヤケヒョウヒダニ (*Dermatophagoides pteronyssinus*) 等のヒョウヒダニ類、ホソツメダニ (*Cheyletus eruditus*)、クワガタツメダニ (*Cheyletus malaccensis*)、ミナミツメダニ (*Cheyletus moorei*)、イヌツメダニ (*Cheyletiella yasguri*) 等のツメダニ類、ミミヒゼンダニ (*Octodectes cynotis*)、ヒゼンダニ (*Sarcoptes scabiei*) 等のヒゼンダニ類、イヌニキビダニ (*Demodex canis*) 等のニキビダニ類、ズツキダニ類、ササラダニ類、イエダニ (*Ornithonyssus bacoti*)、トリサシダニ (*Ornithonyssus sylvarum*)、ワクモ (*Dermanyssus gallinae*) 等のワクモ類、アオツツガムシ (*Leptotrombidium akamushi*) 等のツツガムシ類。

クモ目：カバキコマチグモ (*Chiracanthium japonicum*)、セアカゴケグモ (*Latrodectus hasseltii*) 等のクモ類。

[0052] 本発明の有害生物の防除方法は、散布、噴霧、浸漬、塗布などの方法により、本発明組成物を有害生物に直接施用するか、あるいは、または有害生物の生息場所に施用することにより、防除対象である有害生物を防除する方法

である（以下、本発明防除方法と記す。

）。本発明組成物を希釈したり、本発明組成物と固体担体、液体担体、ガス状担体等の不活性担体とを混合し、必要に応じて界面活性剤、その他の製剤用補助剤等を添加することによって製剤化したものを、有害生物または有害生物の生息場所に施用してもよい。

本明細書において、有害生物の生息場所とは有害生物が活動する生活圏全般を意味しており、例えば、有害生物の巣、餌場、通り道等を含む場所を意味する。

[0053] 本発明組成物を含む製剤としては、例えば、液剤、油剤、乳剤、水和剤、フロアブル剤（水中懸濁剤、油中懸濁剤、マイクロカプセル剤等）、エアゾール剤、炭酸ガス製剤、ピエゾ式殺虫製剤、樹脂練り込み剤、セルロース練り込み剤、紙含浸剤、不織布含浸剤、編織物含浸剤、樹脂含浸剤、セルロース含浸剤、ULV（Ultra Low Volume、高濃度微量散布）剤、及び毒餌が挙げられる。より好ましくは、液剤、油剤、フロアブル剤、エアゾール剤、樹脂練り込み剤、セルロース練り込み剤、紙含浸剤、不織布含浸剤、編織物含浸剤、樹脂含浸剤、セルロース含浸剤が挙げられる。

[0054] 本発明組成物を含む製剤に用いられる固体担体としては、例えば、粘土類（カオリンクレー、珪藻土、ベントナイト、フバサミクレー、酸性白土等）、合成含水酸化珪素、タルク、セラミック、その他の無機鉱物（セリサイト、石英、硫黄、活性炭、炭酸カルシウム、水和シリカ等）、化学肥料（硫安、磷安、硝安、尿素、塩安等）等の微粉末及び粒状物等、樹脂（天然樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアクリロニトリル、ポリメタクリル酸メチル、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ナイロンー6、ナイロンー11、ナイロンー66等のナイロン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、塩化ビニループロピレン共重合体、ポリウレタン等）、セルロース類、紙、布（綿、麻、絹等）、不織布があげられる。

樹脂練り込み剤、セルロース練り込み剤、紙含浸剤、不織布含浸剤、編織

物含浸剤、樹脂含浸剤、セルロース含浸剤等に用いる基材としては、樹脂（天然樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアクリロニトリル、ポリメタクリル酸メチル、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂、ナイロンー6、ナイロンー11、ナイロンー66等のナイロン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、塩化ビニループロピレン共重合体、ポリウレタン等）、セルロース類、紙、布（綿、麻、絹等）、不織布等が好ましい。

[0055] 液体担体としては、例えば水、ケトン類（アセトン、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等）、ニトリル類（アセトニトリル、イソブチロニトリル等）、酸アミド類（N，Nージメチルホルムアミド、N，Nージメチルアセトアミド等）、ハロゲン化炭化水素類（ジクロロメタン、トリクロロエタン、四塩化炭素等）、スルホキシド類（ジメチルスルホキシド等）、炭酸プロピレン、植物油等が挙げられる。

[0056] ガス状担体としては、例えばフルオロカーボン、ブタンガス、LPG（液化石油ガス）、ジメチルエーテル及び炭酸ガスがあげられる。

[0057] 界面活性剤としては、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル等の非イオン界面活性剤、及びアルキルスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキル硫酸塩等の陰イオン界面活性剤が挙げられる。

[0058] その他の製剤用補助剤としては、固着剤、分散剤、着色剤、不凍剤及び安定剤等、具体的には例えばカゼイン、ゼラチン、糖類（でんぷん、アラビアガム、セルロース誘導体、アルギン酸等）、穀物粉、リグニン誘導体、ベントナイト、合成水溶性高分子（ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸類等）、グリセリン、PAP（酸性りん酸イソプロピル）、ノルジヒドログアイアレチン酸、BHT（2，6ージーtertーブチルー4ーメチルフェノール）、BHA（2ーtertーブチルー4ーメトキシフェノールと3ーtertーブチルー4ーメトキシフェノールとの混合物

）、デヒドロ酢酸等、トウガラシ末等の子供やペットによる誤食防止剤、チーズ香料、タマネギ香料ピーナッツオイル等の害虫誘引性香料等が挙げられる。

[0059] 本発明防除方法の好ましい態様としては、本発明組成物または本発明組成物を含む製剤を、有害生物の通り道にあらかじめ処理する方法が挙げられる。当該場所を通過する際に本発明組成物が有害生物の体表に接触することにより、有害生物を防除することができる。

この態様に適した有害生物としては、ゴキブリ、アリ、クモ等の匍匐性の有害節足動物が挙げられる。

この態様に適した製剤としては、液剤、油剤、乳剤、水和剤、フロアブル剤（水中懸濁剤、油中懸濁剤、マイクロカプセル剤等）、エアゾール剤などが挙げられる。

液剤や油剤は、本発明組成物とジメチルスルホキシド等とを混合することによって、乳剤は、本発明組成物とポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテルやドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム等の界面活性剤とを混合することによって調製することができる。

水和剤は、本発明組成物と、合成含水酸化珪素微粉末や珪藻土等の固体単体、ラウリル硫酸ナトリウムやリグニンスルホン酸カルシウム等の界面活性剤とを混合し、微粉状にすることによって調製することができる。フロアブル剤は、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等の界面活性剤を含む水溶液中に本発明組成物を乳化機や湿式粉碎機を用いて分散させることによって調製することができる。エアゾール剤は、本発明組成物をそのまま、または、本発明組成物と補助溶剤とを混合したものをエアゾール缶に入れ、エアゾールバルブを装着した後、ガス状担体を充填し、アクチュエータを装着することによって調製することができる。

[0060] また、本発明防除方法の別の好ましい態様としては、樹脂練り込み剤、セルロース練り込み剤、紙含浸剤、不織布含浸剤、編織物含浸剤、樹脂含浸剤、セルロース含浸剤等の製剤を、そのまま、または、有害生物が入り込める

ステーション（以下、本駆除具と記す。

）内に格納して、有害生物の生息場所、例えば有害生物の巣の近傍や通り道に配置する方法も挙げられる。本駆除具の具体例としては、有害生物の巣、餌場等に模した構造の構造体であり、例えば特開2001-61395や特開2004-313076等に関示された構造体等を使用することができる。

この態様に適した有害生物としては、ゴキブリ、アリ、クモ等の匍匐性の有害節足動物が挙げられる。

樹脂練り込み剤、セルロース練り込み剤は、樹脂やセルロース等の基材に本発明組成物または本発明組成物を含む製剤（液剤、油剤等）を通常の混練装置を用いて混練する工程を経て、射出成型、押出成型、プレス成型等により成型することにより製造することができる。紙含浸剤、不織布含浸剤、編織物含浸剤、樹脂含浸剤、セルロース含浸剤は、本発明組成物または本発明組成物を含む製剤（液剤、油剤、フロアブル剤等）を紙、不織布、樹脂、セルロース類等の基材に担持（含浸、塗布）させる工程、成型や裁断等の工程を経て、板状、フィルム状、テープ状、シート状、ネット状、ひも状等に加工することにより製造することができる。また、これらの製剤には、対象となる有害生物の誘因成分が含まれていてもよい。

[0061] 本発明防除方法に使用可能な本駆除具の具体的な態様としては、有害生物の巣の近傍や通り道に配置できる程度の大きさで有害生物が通過できる出入口を有する構造体であって、該構造体の内表面に本発明組成物を処理した駆除具が挙げられる。本駆除具の外形状としては、直方体、半球、三角錐、四角錐、三角柱等が挙げられ、本駆除具の大きさは、直方体であれば、縦1～20cm、横1～30cm、高さ0.5～5cmであり、好ましくは縦3～10cm、横3～20cm、高さ0.5～3cmである。出入口の大きさ、数は対象の有害生物により異なるが、対象の有害生物がゴキブリで、本駆除具の外形状が直方体の場合、本駆除具の長手方向の2ヶ所および1つの側面が完全にまたは一部開放された形状とすることがより好ましい。本駆除具の材質は特に限定されないが、経済性や加工性の観点から、紙や樹脂が好まし

い。

本駆除具を通過することで、有害生物は本発明組成物と接触する。本発明組成物は優れた効力を有する為、有害生物の身体の1以上の部位（例えば、触角、足、口器など）が本発明組成物に短時間接触することにより、有害生物を防除することができる。

本発明組成物は、建物の内部及び外部の有害生物が頻繁に出現する表面に使用できる。

本発明防除方法は、建物の内部、周辺及び屋外において有害生物、特に匍匐性の有害節足動物を防除するのに適している。具体的には、有害生物の隠れ場所（例えば、引き出し、管、割れ目などの内部）、有害生物の通路となる箇所（例えば、片隅、縁部、かぶせ板など）に適用し得る。さらに別の使用領域として、建物への入り口点、例えば、ドアや窓が挙げられる。

本発明防除方法は、本発明組成物を、好ましくは線状又はスポット状に分散させて施用する。本発明防除方法においては、本発明組成物を子供やペットが触れない場所に限定して、施用することが好ましい。本発明防除方法においては、1箇所にのみに施用するのではなく、処理対象となる空間内の異なった複数箇所に施用するのが好ましい。

[0062] 本発明組成物及び本発明組成物を含む製剤の処理量は、対象となる有害生物によっても変わり得るが、通常本化合物に換算して1～5000mg/m²、好ましくは10～5000mg/m²であり、より好ましくは20～1000mg/m²である。

[0063] 本発明組成物は、本化合物と、25℃大気圧条件下で液体のイソパラフィンの他に、公知な殺虫剤、及び共力剤と混用又は併用することができる。かかる殺虫剤、及び共力剤の有効成分の例を以下に示す。

[0064] 殺虫剤の有効成分

(1) 有機リン化合物

アセフェート (acephate)、ジクロルボス (dichlorvos : DDVP)、フェニトロチオン (fenitrothion : MEP)

(2) カーバメート化合物

ベンダイオカルブ (bendiocarb)、フェノブカルブ (fenobucarb)、フェノキシカルブ (fenoxycarb)、プロポキスル (propoxur:PHC)

[0065] (3) ピレスロイド化合物

アクリナトリン (acrinathrin)、アレスリン (allethrin)、ベンフルスリン (benfluthrin)、ベーターシフルトリン (beta-cyfluthrin)、ビフェントリン (bifenthrin)、シクロプロトリン (cycloprothrin)、シフルトリン (cyfluthrin)、シハロトリン (cyhalothrin)、シペルメトリン (cypermethrin)、デルタメトリン (deltamethrin)、エスフェンバレレート (esfenvalerate)、エトフェンプロックス (ethofenprox)、フェンプロパトリン (fenpropathrin)、フェンバレレート (fenvalerate)、フルシトリネート (flucythrinate)、フルフェンプロックス (flufenoprox)、フルメスリン (flumethrin)、フルバリネート (fluvalinate)、ハルフェンプロックス (halfenprox)、イミプロトリン (imiprothrin)、ペルメトリン (permethrin)、プラレトリン (prallethrin)、ピレトリン (pyrethrins)、レスメトリン (resmethrin)、シグマーサイパーメスリン (sigma-cypermethrin)、シラフルオフエン (silaflofen)、テフルトリン (tefluthrin)、トラロメトリン (tralomethrin)、トランスフルトリン (transfluthrin)、テトラメトリン (tetramethrin)、フェノトリン (phenothrin)、シフェノトリン (cyphenothrin)、アルファシペルメトリン (alpha-cypermethrin)、ゼータシペルメトリン (zeta-cypermethrin)、ラムダシハロトリン (lambda

-cyhalothrin)、ガンマシハロトリン (gamma-cyhalothrin)、フラメトリン (furamethrin)、タウフルバリネート (tau-fluvalinate)、メトフルトリン (metofluthrin)、プロフルトリン (profluthrin)、ジメフルトリン (dimefluthrin)、2, 3, 5, 6-テトラフルオロ-4-(メトキシメチル) ベンジル (E Z) -(1RS, 3RS; 1RS, 3SR)-2, 2-ジメチル-3-プロプ-1-エニルシクロプロパンカルボキシレート、2, 3, 5, 6-テトラフルオロ-4-メチルベンジル (E Z) -(1RS, 3RS; 1RS, 3SR)-2, 2-ジメチル-3-プロプ-1-エニルシクロプロパンカルボキシレート、及び2, 3, 5, 6-テトラフルオロ-4-(メトキシメチル) ベンジル (1RS, 3RS; 1RS, 3SR)-2, 2-ジメチル-3-(2-メチル-1-プロペニル) シクロプロパンカルボキシレート、2, 3, 5, 6-テトラフルオロ-4-(メトキシメチル) ベンジル (E Z) -(1RS, 3RS; 1RS, 3SR)-2, 2-ジメチル-3-(2-シアノ-1-プロペニル) シクロプロパンカルボキシレート。

(4) ネライストキシン化合物

カルタップ (cartap)、ベンスルタップ (bensultap)、チオシクラム (thiocyclam)、モノスルタップ (monosultap)、及びビスルタップ (bisultap)。

[0066] (5) ネオニコチノイド化合物

イミダクロプリド (imidacloprid)、ニテンピラム (nitenpyram)、アセタミプリド (acetamiprid)、チアメトキサム (thiamethoxam)、チアクロプリド (thiacloprid)、ジノテフラン (dinotefuran)、及びクロチアニジン (clothianidin)。

(6) ベンゾイル尿素化合物

クロルフルアズロン (chlorfluazuron)、ビストリフルロ

ン (b i s t r i f l u r o n)、ジアフェンチウロン (d i a f e n t h i u r o n)、ジフルベンズロン (d i f l u b e n z u r o n)、フルアズロン (f l u a z u r o n)、フルシクロクスロン (f l u c y c l o x u r o n)、フルフェノクスロン (f l u f e n o x u r o n)、ヘキサフルムロン (h e x a f l u m u r o n)、ルフエヌロン (l u f e n u r o n)、ノバルロン (n o v a l u r o n)、ノビフルムロン (n o v i f l u m u r o n)、テフルベンズロン (t e f l u b e n z u r o n)、トリフルムロン (t r i f l u m u r o n)、及びトリアズロン (t r i a z u r o n)。

(7) フェニルピラゾール化合物

アセトプロール (a c e t o p r o l e)、エチプロール (e t h i p r o l e)、バニリプロール (v a n i l i p r o l e)、ピリプロール (p y r i p r o l e)、及びピラフルプロール (p y r a f l u p r o l e)。

(8) B t トキシン

バチルス・チューリンゲンシス菌由来の生芽胞及び産生結晶毒素、及びそれらの混合物 (9) その他の殺虫剤有効成分

クロルフェナピル (c h l o r p h e n a p y r)、シアントラニリプロール (c y a n t r a n i l i p r o l e)、シロマジン (c y r o m a z i n e)、ハイドロプレネ (h y d r o p r e n e)、メトプレネ (m e t h o p r e n e)、インドキサカルブ (i n d o x a c a r b)、メトキサジアゾン (m e t o x a d i a z o n e)、ピリプロキシフェン (p y r i p r o x y f e n)、スピノサッド (s p i n o s a d)、クロラントラニリプロール (c h l o r a n t r a n i l i p r o l e)、シアントラニリプロール (c y a n t r a n i l i p r o l e)。

[0067] 共力剤の有効成分

ピペロニルブトキサイド (p i p e r o n y l b u t o x i d e)、N-(2-エチルヘキシル)-8, 9, 10-トリノルボルン-5-エン-2

， 3-ジカルボキシイミド（MGK 264）。

実施例

[0068] 以下、製剤例および試験例等により、本発明をさらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例に限定されるものではない。なお、特記しない限り、部とは重量部を示す。

[0069] 製造例 1

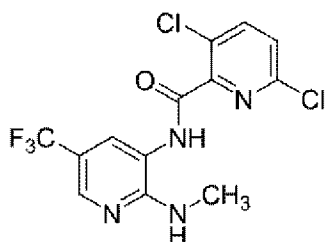
(1)

3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-カルボン酸 50 g、N, N-ジメチルホルムアミド 1 mL、及びトルエン 130 mL の混合物に、室温で塩化チオニル 49 mL を加えた。5 時間加熱還流下撹拌をした後、反応混合物を室温まで放冷した。この反応混合物を減圧下濃縮し、3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-カルボニルクロライドを得た。

(2)

N²-メチル-5-トリフルオロメチル-ピリジン-2, 3-ジアミン（国際公開 2010/125985 号に記載の方法で合成した。）50 g、及びテトラヒドロフラン 90 mL の混合物に、上記で得られた 3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-カルボニルクロライドの全量及びテトラヒドロフラン 90 mL の混合物を、氷冷下で滴下した。室温で 5 時間撹拌した後、この反応混合物にヘキサン 200 mL を注加した。析出した固体を濾取し、飽和炭酸ナトリウム水溶液に入れ、酢酸エチルで抽出した。有機層を無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、減圧下で濃縮することにより、以下に記す、3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-カルボン酸（2-メチルアミノ-5-トリフルオロメチル-ピリジン-3-イル）-アミド 105 g を得た。

[0070] [化7]

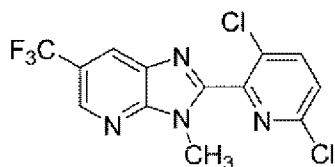


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 9.17 (1H, s), 8.38 (1H, d), 7.88 (1H, d), 7.82 (1H, d), 7.50 (1H, d), 5.06 (1H, d), 3.08 (3H, d).

(3)

3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-カルボン酸 (2-メチルアミノ-5-トリフルオロメチル-ピリジン-3-イル) -アミド 105 g 及び酢酸 350 mL の混合物を、加熱還流下 4 時間攪拌した。この混合物を室温まで放冷した後、水を注加した。析出した固体を濾取し、減圧下乾燥することにより、以下に記す、2-(3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-イル) -3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジン 84 g を得た。

[0071] [化8]



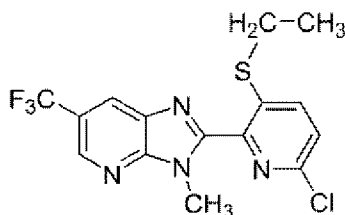
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.77 (1H, s), 8.40 (1H, d), 7.92 (1H, d), 7.49 (1H, d), 4.02 (3H, s).

(4)

2-(3, 6-ジクロロ-ピリジン-2-イル) -3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジン 54 g、水素化ナトリウム (油状) 6.9 g 及びテトラヒドロフラン 800 mL の混合物に、氷冷下エチルメルカプタン 12 mL を滴下した。この反応混合物を氷冷下 3 時間攪拌した後、水を注加した。析出した固体を、水およびヘキサンで洗浄し、得られた固体を減圧下乾燥することにより、以下に記す、2-(6-クロロ-3-エチルスルファニル-ピリジン-2-イル) -3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジンの粗生成物 51 g を得た。

[0072]

[化9]

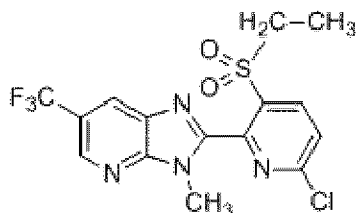


$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.74 (1H, s), 8.40 (1H, s), 7.75 (1H, d), 7.42 (1H, d), 4.11 (3H, s), 2.97 (2H, q), 1.36 (3H, t).

(5)

2-(6-クロロ-3-エチルスルファニルピリジン-2-イル)-3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジンの粗生成物50gおよびクロロホルム450mLの混合物に、氷冷下75% m-クロロ過安息香酸66gを加えた。氷冷下5時間攪拌した後、この反応混合物を飽和重層水溶液に加え、クロロホルムで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。得られた有機層を減圧下乾燥し、得られた残渣をクロロホルムおよびヘキサンから再結晶を行い、以下に記す2-(6-クロロ-3-エタンスルホニルピリジン-2-イル)-3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン50gを得た。

[0073] [化10]



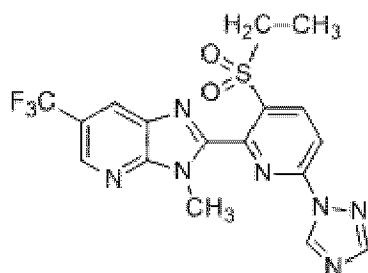
$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3) δ : 8.78 (1H, d), 8.48 (1H, d), 8.32 (1H, d), 7.73 (1H, d), 3.93 (3H, s), 3.86 (2H, q), 1.36 (3H, t).

[0074] (6)

2-(6-クロロ-3-エタンスルホニルピリジン-2-イル)-3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン

400 mg、およびピリジン 3 mL の混合物に、室温で 1 H-1, 2, 4-
 トリアゾール 101 mg を加えた。90℃に昇温し 10 時間攪拌した後、反
 応混合物に水を注加し、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、および飽和食
 塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。得られた有機層を減圧下乾
 燥した。得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィーに付し、以下に記す
 本化合物 1 を 160 mg 得た。

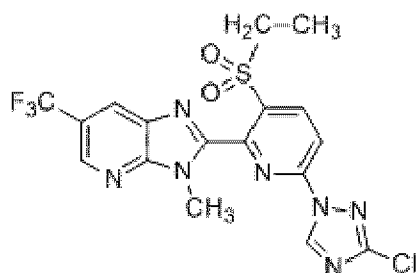
[0075] [化11]



[0076] 製造例 2

2- (6-クロロ-3-エタンスルホニル-ピリジン-2-イル) -3-
 メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ [4, 5-b] ピリジン
 500 mg、60%水素化ナトリウム (油状) 60 mg、及び N,N-ジ
 メチルホルムアミド 2.5 mL の混合物に、氷冷下で 3-クロロ-1H-1,
 2, 4-トリアゾール 141 mg を加えた。氷冷下 2.5 時間攪拌した後
 、反応混合物に飽和重層水溶液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水
 、および飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。得られた有
 機層を減圧下乾燥した。得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィーに付
 し、以下に記す本化合物 2 を 435 mg 得た。

[0077] [化12]

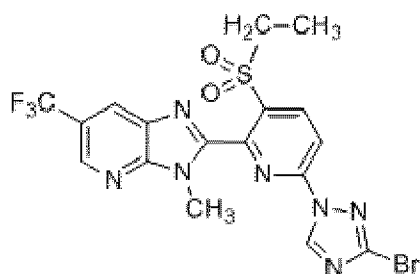


[0078] 製造例 3

2-（6-クロロ-3-エタンスルホニル-ピリジン-2-イル）-3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン 300 mg、炭酸カリウム 133 mg、及びN,N-ジメチルホルムアミド 3 mL の混合物に、氷冷下にて3-ブロモ-1H-1,2,4-トリアゾール 132 mg を加えた。氷冷下2.5時間攪拌した後、反応混合物に飽和重層水溶液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、および飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。得られた有機層を減圧下乾燥した。

得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィーに付し、以下に記す本化合物 3 を 370 mg 得た。

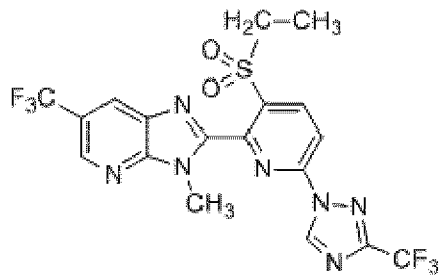
[0079] [化13]



[0080] 製造例 4

2-（6-クロロ-3-エタンスルホニル-ピリジン-2-イル）-3-メチル-6-トリフルオロメチル-3H-イミダゾ[4,5-b]ピリジン 300 mg、60%水素化ナトリウム（油状）36 mg、及びN,N-ジメチルホルムアミド 1.5 mL の混合物に、氷冷下で3-トリフルオロメチル-1H-1,2,4-トリアゾール（米国特許出願公開2010/0063063号明細書に記載の方法で合成した。） 112 mg を加えた。氷冷下2.5時間攪拌した後、反応混合物に飽和重層水溶液を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、および飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した。得られた有機層を減圧下乾燥した。得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィーに付し、以下に記す本化合物 4 を 326 mg 得た。

[0081] [化14]



[0082] 前記の製造例に記載の本化合物の物性値を表 1 に示す。

[0083] [表1]

本化合物	物性値
1	¹ H-NMR (CDCl ₃) δ: 9.16 (1H, s), 8.81 (1H, br s), 8.72 (1H, d), 8.36 (1H, br s), 8.31 (1H, d), 8.21 (1H, s), 3.93 (3H, s), 3.82 (2H, q), 1.39 (3H, t).
2	¹ H-NMR (DMSO-D ₆) δ: 9.67 (1H, s), 8.95 (1H, br s), 8.77 (1H, d), 8.75 (1H, br s), 8.29 (1H, d), 3.96-3.89 (5H, m), 1.26 (3H, t).
3	¹ H-NMR (CDCl ₃) δ: 9.04 (1H, s), 8.81 (1H, br s), 8.73 (1H, d), 8.35 (1H, br s), 8.26 (1H, d), 3.92 (3H, s), 3.81 (2H, q), 1.39 (3H, t).
4	¹ H-NMR (CDCl ₃) δ: 9.03 (1H, s), 8.80 (1H, br s), 8.68 (1H, d), 8.35 (1H, br s), 8.22 (1H, d), 3.92 (3H, s), 3.81 (2H, q), 2.54 (3H, s), 1.39 (3H, t).

[0084] 製剤例 1

本化合物 1 44 mg と、Isopare E [エクソンモービル製、炭素数 : C8-10] 10 mL とを混合し、本発明組成物 A を得た。

[0085] 製剤例 2

本化合物 1 44 mg と、Isopar G [エクソンモービル製、炭素数 : C9-11] 10 mL とを混合し、本発明組成物 B を得た。

[0086] 製剤例 3

本化合物 1 44 mg と、Isopar H [エクソンモービル製、炭素数 : C10-12] 10 mL とを混合し、本発明組成物 C を得た。

[0087] 製剤例 4

本化合物 1 44 mg と、Isopar L [エクソンモービル製、炭素数

: C 1 0 - 1 4] 1 0 m L とを混合し、本発明組成物 D を得た。

[0088] 製剤例 5

本化合物 1 4 4 m g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 1 1 - 1 7] 1 0 m L とを混合し、本発明組成物 E を得た。

[0089] 製剤例 6

本化合物 1 4 4 m g と、I P ソルベント 2 8 3 5 [出光興産製、炭素数 : C 1 6 - 2 4] 1 0 m L とを混合し、本発明組成物 F を得た。

[0090] 製剤例 7

本化合物 1 4 4 m g と、アセトン [ナカライテスク製] 1 0 m L とを混合し、比較組成物 A を得た。

[0091] 製剤例 8

インドキサカルブ 4 4 m g と、アセトン [ナカライテスク製] 1 0 m L とを混合し、本比較組成物 B を得た。

[0092] 製剤例 9

インドキサカルブ 4 4 m g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 1 1 - 1 7] 1 0 m L とを混合し、比較組成物 C を得た。

[0093] 製剤例 1 0

本化合物 2 4 4 m g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 1 1 - 1 7] 1 0 m L とを混合し、本発明組成物 G を得る。

[0094] 製剤例 1 1

本化合物 3 4 4 m g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 1 1 - 1 7] 1 0 m L とを混合し、本発明組成物 H を得る。

[0095] 製剤例 1 2

本化合物 4 4 4 m g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 1 1 - 1 7] 1 0 m L とを混合し、本発明組成物 I を得る。

[0096] 製剤例 1 3

本化合物 1 ~ 4 のいずれか 5 g を、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 1 1 - 1 7] 4 0 g と N, N - ジメチルホルムアミド 3 5 g と混

合し、そこにポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル 14 g 及びドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム 6 g を加え、混合して乳剤を得る。

[0097] 製剤例 14

イソプロピルアルコール [ナカライテスク製] と I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 11 - 17] とを重量比 1 : 9 の割合で混合した溶液 7 mL に対して、本化合物 1 を 27 mg 混合した。該混合液 0.7 mL を 6 × 9 cm のボール紙に滴下処理した。該ボール紙を三つ折りにして断面が三角形の筒状 (三角形の 1 辺 2 cm、長さ 9 cm) に成型し、外側をビニールテープで覆い、紙含浸剤を得た。

[0098] 製剤例 15

イソプロピルアルコール [ナカライテスク製] と I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 11 - 17] とを重量比 1 : 9 の割合で混合した溶液 0.7 mL を 6 × 9 cm のボール紙に滴下処理した。該ボール紙を三つ折りにして断面が三角形の筒状 (三角形の 1 辺 2 cm、長さ 9 cm) に成型し、外側をビニールテープで覆い、比較紙含浸剤を得た。

[0099] 製剤例 16

本化合物 1 1 g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 11 - 17] 35 g との混合液を、ゴーセノール GH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 3.1 重量%水溶液 64 g に加えて、T. K. ロボミックス [プライミックス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約 30 μm となるように乳化させて、本発明組成物 J を得た。

[0100] 製剤例 17

本化合物 1 1 g と、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数 : C 11 - 17] 30 g との混合液を、ゴーセノール GH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2.9 重量%水溶液 69 g に加えて、T. K. ロボミックス [プライミックス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約 30 μm となるように乳化させて、本発明組成物 K を得た。

[0101] 製剤例 18

本化合物1 1 gと、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数：C 1 1 - 1 7] 2 5 gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2. 7 重量%水溶液 7 4 gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約3 0 μ mとなるように乳化させて、本発明組成物Lを得た。

[0102] 製剤例 1 9

本化合物1 1 gと、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数：C 1 1 - 1 7] 2 0 gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2. 5 重量%水溶液 7 9 gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約3 0 μ mとなるように乳化させて、本発明組成物Mを得た。

[0103] 製剤例 2 0

本化合物1 1 gと、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数：C 1 1 - 1 7] 1 5 gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2. 3 重量%水溶液 8 4 gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約3 0 μ mとなるように乳化させて、本発明組成物Nを得た。

[0104] 製剤例 2 1

本化合物1 1 gと、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数：C 1 1 - 1 7] 1 0 gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2. 2 重量%水溶液 8 9 gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約3 0 μ mとなるように乳化させて、本発明組成物Oを得た。

[0105] 製剤例 2 2

本化合物1 1 gと、I s o p a r M [エクソンモービル製、炭素数：C 1 1 - 1 7] 5 gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2. 1 重量%水溶液 9 4 gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積

中位径が約 $30\mu\text{m}$ となるように乳化させて、本発明組成物Pを得た。

[0106] 製剤例 2 3

本化合物1 1gと、Isopar M [エクソンモービル製、炭素数：C₁₁－C₁₇] 1gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2.0重量%水溶液 98gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約 $30\mu\text{m}$ となるように乳化させて、本発明組成物Qを得た。

[0107] 製剤例 2 4

本化合物1 1gと、Isopar M [エクソンモービル製、炭素数：C₁₁－C₁₇] 0.67gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2.0重量%水溶液 98.33gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約 $30\mu\text{m}$ となるように乳化させて、本発明組成物Rを得た。

[0108] 製剤例 2 5

本化合物1 1gと、Isopar M [エクソンモービル製、炭素数：C₁₁－C₁₇] 0.25gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 2.0重量%水溶液 98.75gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約 $30\mu\text{m}$ となるように乳化させて、本発明組成物Sを得た。

[0109] 製剤例 2 6

本化合物1 1gと、Isopar M [エクソンモービル製、炭素数：C₁₁－C₁₇] 39gとの混合液を、ゴーセノールGH-17 [日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール] 3.3重量%水溶液 60gに加えて、T. K. ロボミックス [プライミクス製、乳化混合機] を用いて、液滴の体積中位径が約 $30\mu\text{m}$ となるように乳化させて、本発明組成物Tを得た。

[0110] 製剤例 2 7

本化合物 1 1 g と、ネオチオゾール〔三光化学工業製；ノルマルパラフィン〕 39 g との混合液を、ゴーセノール GH-17〔日本合成化学工業製、ポリビニルアルコール〕 3.3 重量%水溶液 60 g に加えて、T. K. ロボミックス〔プライミクス製、乳化混合機〕を用いて、液滴の体積中位径が約 30 μ m となるように乳化させて、比較組成物 D を得た。

[0111] 製剤例 28

本化合物 1 0.02 部と Isopar M〔エクソンモービル製、炭素数：C11-17〕 30 部とをエアゾール缶（AE290WN、東洋製罐製）に入れ、缶にバルブ部分（孔径が 0.33 mm のステムを備えたプッシュダウン式のバルブ、日本プリシジョンバルブ製）を取付け、該バルブ部分を通じて噴射剤（液化石油ガス） 10 部を充填してエアゾール製剤 A を得た。

[0112] 製剤例 29

本化合物 1 0.02 部とアセトン 30 部とをエアゾール缶（AE290WN、東洋製罐製）に入れ、缶にバルブ部分（孔径が 0.33 mm のステムを備えたプッシュダウン式のバルブ、日本プリシジョンバルブ製）を取付け、該バルブ部分を通じて噴射剤（液化石油ガス） 10 部を充填して比較エアゾール製剤 1 を得た。

[0113] 製剤例 30

本化合物 1 0.02 部とエタノール 30 部とをエアゾール缶（AE290WN、東洋製罐製）に入れ、缶にバルブ部分（孔径が 0.33 mm のステムを備えたプッシュダウン式のバルブ、日本プリシジョンバルブ製）を取付け、該バルブ部分を通じて噴射剤（液化石油ガス） 10 部を充填して比較エアゾール製剤 2 を得た。

[0114] 製剤例 31

本化合物 1 0.02 部とニッコール IPM-EX（日光ケミカルズ製；ミリスチン酸イソプロピル） 30 部とをエアゾール缶（AE290WN、東洋製罐製）に入れ、缶にバルブ部分（孔径が 0.33 mm のステムを備えたプッシュダウン式のバルブ、日本プリシジョンバルブ製）を取付け、該バルブ

部分を通じて噴射剤（液化石油ガス）１０部を充填して比較エアゾール製剤３を得た。

[0115] 以下、試験例等により、本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの例に限定されるものではない。

[0116] 試験例１ チャバネゴキブリ（*Blattella germanica*）に対する接触試験。

[試験法]

製剤例記載の本発明組成物、比較組成物、または、IsoparM [エクソンモービル製] １ｍＬを、直径約１０ｃｍの円形濾紙に万遍なく滴下処理した。約１時間室内（約２５℃、相対湿度約６０％）においた後、底面の直径が約１０ｃｍ、高さが約７ｃｍのプラスチックカップの底部に該濾紙を敷いた。チャバネゴキブリ（*Blattella germanica*）成虫１０頭（雄５頭、雌５頭）をカップ内に放ち、１分間濾紙に接触させた後、チャバネゴキブリを新しいカップに回収して、餌と水を与えて室内（約２５℃、相対湿度約６０％）で保管した。試験から７日後にチャバネゴキブリの状態を観察し、以下の計算式を用いて算出した防除率を表２に示した。

[0117] 防除率（％）＝（７日目の死亡虫および瀕死虫数／供試数）×１００

[0118] [表２]

	防除率（％）
本発明組成物A	100
本発明組成物B	100
本発明組成物C	100
本発明組成物D	100
本発明組成物E	100
本発明組成物F	100
比較組成物A	10
比較組成物B	20
比較組成物C	20
IsoparM	0

[0119] 試験例２ 噴霧処理試験。

製剤例１３記載の乳剤を所定濃度に水で希釈する。化粧板やベニヤ板等の

処理面（ $15 \times 15 \text{ cm}$ ）に対して、該水希釈液を $10 \sim 100 \text{ cm}$ の距離からスプレーヤーで噴霧し、処理板への希釈液の付着量は $10 \sim 500 \text{ mg/m}^2$ となるように調整する。室内条件で24時間保管した処理板の上に、プラスチック板で作製したリング（直径約 14 cm 、高さ約 5 cm ）を置き、リング内にチャバネゴキブリ1群10頭（雄5頭、雌5頭）を放つ。リング内面には這い上がり防止のためマーガリンを塗り、チャバネゴキブリを処理板に強制的に接触させる状態にする。1時間接触させた後、チャバネゴキブリを清浄なカップに回収して餌と水を与えて保管する。7日後にチャバネゴキブリの状態を観察し、死亡個体の割合から下記式を用いて防除率を算出する。その結果、製剤例13記載の乳剤が、優れた防除効果を示すことが確認できる。

[0120] 防除率（％）＝（死亡個体数＋瀕死個体数）／供試個体数×100

[0121] 試験例3 紙含浸剤への偶然接触による殺虫試験

大型の金属製コンテナ（底面が約 $180 \times 120 \text{ cm}$ 、高さが約 15 cm ）内にマウス用固形飼料、水、および営巣場所として $18 \text{ cm} \times 32 \text{ cm}$ のボール紙の 32 cm の辺を 2 cm 毎に折って作成した波板を図1のように設置した。その後、チャバネゴキブリ、クロゴキブリ、ワモンゴキブリのいずれか1種類のみを放った。放ったゴキブリの頭数は、チャバネゴキブリの場合50頭（雄25頭、雌25頭）、クロゴキブリの場合20頭（雄10頭、雌10頭）、ワモンゴキブリの場合20頭（雄10頭、雌10頭）とした。1日以上放置し、当該試験環境に供試虫を馴化させた後、該コンテナ内に製剤例14で得た紙含浸剤、または、製剤例15で得た比較紙含浸剤を1個、図1のように設置した。該条件下では、供試虫は波板付近で生存に必要なもののすべてを得ることができる為、試験期間中の大半は波板付近で活動していた。紙含浸剤を設置して7日後にゴキブリの状態を観察し、下記式により防除率を算出した。結果を表3に示す。

[0122] 防除率（％）＝（死亡個体数＋瀕死個体数）／供試個体数×100

[0123] [表3]

供試化合物	各種ゴキブリの防除率（％）		
	チャバネゴキブリ	クロゴキブリ	ワモンゴキブリ
含浸製剤	98	100	100
比較含浸製剤	7	0	0

[0124] 試験例4 イエヒメアリ（*Monomorium pharaonis*）に対する接触試験。

製剤例記載の本発明組成物または比較組成物を表4記載の希釈倍率となるように純水で希釈した希釈液1.4mLを直径約10cmの円形濾紙に万遍なく滴下処理した後、底面の直径が約10cm、高さが約7cmのプラスチックカップの底部に該濾紙を敷いた。イエヒメアリ（*Monomorium pharaonis*）10頭をカップ内に放ち、1時間濾紙に接触させた後、イエヒメアリを新しいカップに回収して、餌と水を与えて室内（約25℃、相対湿度約60％）で保管した。試験から7日後にイエヒメアリの状態を観察し、以下の計算式を用いて算出した防除率を表4に示した。

[0125] 防除率（％）＝（7日目の死亡虫および瀕死虫数／供試数）×100

[0126] [表4]

	希釈倍率	防除率（％）
本発明組成物J	10	100
本発明組成物K	10	100
本発明組成物L	10	100
本発明組成物M	10	100
本発明組成物N	10	100
本発明組成物O	10	100
本発明組成物P	10	100
本発明組成物Q	10	90
本発明組成物R	10	100
本発明組成物S	10	40
本発明組成物T	20	95
比較組成物D	20	25

[0127] 試験例5 イエヒメアリ（*Monomorium pharaonis*）に対するエアゾール噴霧試験。

内壁にポリテトラフルオロエチレンからなる逃走防止面を有する直径約4.5cm、高さ約3.5cmのプラスチックカップ底面にイエヒメアリ（M

onomorium pharaonis) 10頭を入れた。該プラスチックカップを内径16cm、高さ95cmのガラスとプラスチックから成る円筒の底部に設置した。エアゾール製剤A、または、比較エアゾール製剤1～3を表5記載の噴霧量となるようにエアゾール微量噴霧装置を用いて円筒上部から円筒内部に噴射した。噴射後すぐに該プラスチックカップを円筒底部から取り出して、イエヒメアリを新しいカップに移し、餌と水を与えて室内（約25℃、相対湿度約60%）で保管した。3日後にイエヒメアリの状態を観察し、以下の計算式を用いて算出した防除率を表5に示した。

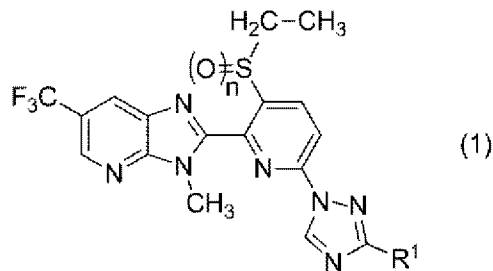
[0128] 防除率（%）＝（3日目の死亡虫および瀕死虫数／供試数）×100

[0129] [表5]

	噴霧量（mg）	防除率（%）
エアゾール製剤A	400	90
比較エアゾール製剤1	400	40
比較エアゾール製剤2	400	40
比較エアゾール製剤3	400	40

請求の範囲

[請求項1] 式(1)



[式中、

R^1 は、水素原子、1個以上のハロゲン原子を有していてもよいC1-C3アルキル基、ハロゲン原子、C1-C3アルコキシ基、C2-C4アルコキシカルボニル基、 $\text{S}(\text{O})_m\text{R}^2$ 、 NR^3R^4 、ニトロ基又はシアノ基を表し、

R^2 は、C1-C3アルキル基を表し、

R^3 および R^4 は同一または相異なり、水素原子又はC1-C3アルキル基を表し、

n は0、1又は2を表し、

m は0、1又は2を表す。]

で示される縮合複素環化合物と、25℃大気圧条件下で液体のイソパラフィンとを含む有害生物防除組成物。

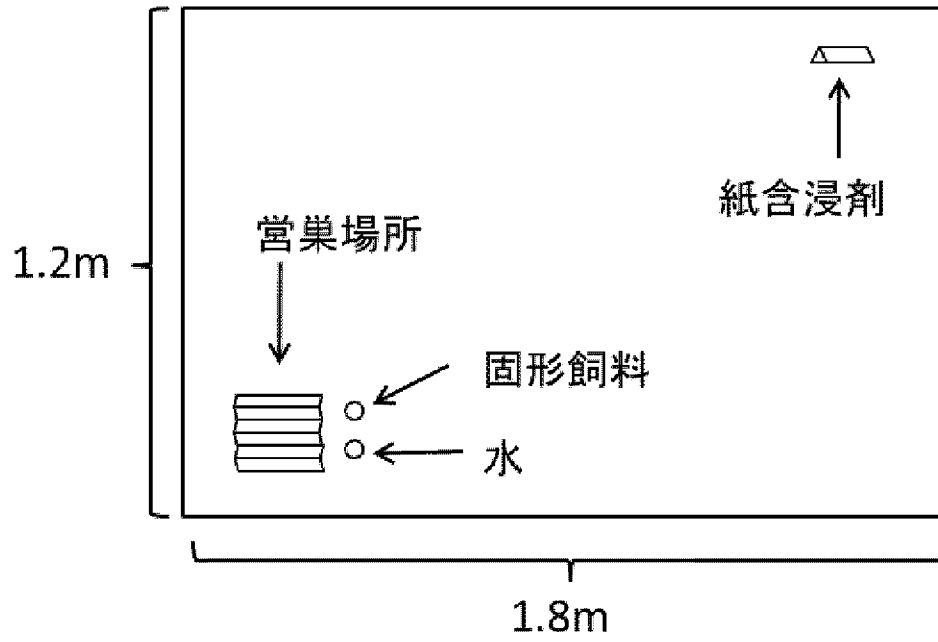
[請求項2] 式(1)で示される縮合複素環化合物において、

R^1 が、水素原子、塩素原子、臭素原子、メチル基、トリフルオロメチル基、メトキシ基、メチルスルファニル基、メチルスルフィニル基、又はメチルスルホニル基であり、

n が2である、請求項1に記載の有害生物防除組成物。

[請求項3] 請求項1または2に記載の有害生物防除組成物を、有害生物または有害生物の生息場所に施用する、有害生物の防除方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/075447

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A01N43/90(2006.01)i, A01N25/02(2006.01)i, A01P7/04(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

A01N1/00-65/48, A01P1/00-23/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2015/133603 A1 (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 11 September 2015 (11.09.2015), claims; paragraphs [0071], [0073]; examples & AU 2015224876 A claims; paragraphs [0071], [0073]; examples & CA 2941452 A1 & TW 201623299 A	1-3
P, X	JP 2016-102104 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 02 June 2016 (02.06.2016), claims; paragraphs [0127], [0130]; examples (Family: none)	1-3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
10 November 2016 (10.11.16)

Date of mailing of the international search report
22 November 2016 (22.11.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/075447

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2014-5263 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 16 January 2014 (16.01.2014), claims; paragraphs [0277], [0279]; examples & AR 87467 A1 & AU 2012290923 A & CA 2844241 A1 & CN 103717598 A & EP 2739624 A1 & ES 2571488 T3 & IL 229835 A & IL 243374 A & KR 10-2014-0068920 A & MX 2014000556 A & RU 2014108038 A & TW 201321363 A & US 2016/0159743 A1 & US 2014/0194290 A1 & US 2015/0197532 A1 & US 2016/0009715 A1 & WO 2013/018928 A1 claims; paragraphs [0285], [0287]; examples & ZA 201309160 B	1-3

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. A01N43/90(2006.01)i, A01N25/02(2006.01)i, A01P7/04(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. A01N1/00-65/48, A01P1/00-23/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, X	WO 2015/133603 A1（住友化学株式会社） 2015.09.11, 請求の範囲, [0071], [0073], 実施例 & AU 2015224876 A, Claims, [0071], [0073], Examples & CA 2941452 A1 & TW 201623299 A	1-3
P, X	JP 2016-102104 A（住友化学株式会社） 2016.06.02, 特許請求の範囲, [0127], [0130], 実施例 （ファミリーなし）	1-3

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

10.11.2016

国際調査報告の発送日

22.11.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

山本 昌広

4H

9280

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2014-5263 A (住友化学株式会社) 2014.01.16, 特許請求の範囲, [0277], [0279], 実施例 & AR 87467 A1 & AU 2012290923 A & CA 2844241 A1 & CN 103717598 A & EP 2739624 A1 & ES 2571488 T3 & IL 229835 A & IL 243374 A & KR 10-2014-0068920 A & MX 2014000556 A & RU 2014108038 A & TW 201321363 A & US 2016/0159743 A1 & US 2014/0194290 A1 & US 2015/0197532 A1 & US 2016/0009715 A1 & WO 2013/018928 A1, Claims, [0285], [0287], Examples & ZA 201309160 B	1 — 3