

PCT

世界知的所有権機関

国際事務局

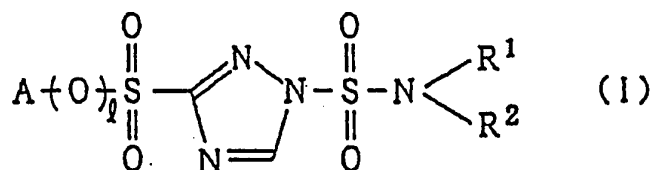


特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類 5 C07D 249/12, A01N 43/653</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO 94/01419</p> <p>(43) 国際公開日 1994年1月20日 (20.01.1994)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP93/00939 (22) 国際出願日 1993年7月8日 (08. 07. 93)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平4/186869 1992年7月14日 (14. 07. 92) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 三菱油化株式会社 (MITSUBISHI PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP] 〒100 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 白井義浩 (USUI, Yoshihiro) [JP/JP] 堤 佳美 (TSUTSUMI, Yoshimi) [JP/JP] 郷 敦 (GOH, Atsushi) [JP/JP] 山田誠一郎 (YAMADA, Seiichiro) [JP/JP] 山中昌子 (YAMANAKA, Masako) [JP/JP] 高山義博 (TAKAYAMA, Yoshihiro) [JP/JP] 桐尾佳恵 (KIRIO, Yoshie) [JP/JP] 〒300-03 茨城県稲敷郡阿見町中央8丁目3番1号 三菱油化株式会社 筑波総合研究所内 Ibaraki, (JP)</p> <p>(74) 代理人 弁理士 曾我道照, 外 (SOGA, Michiteru et al.) 〒100 東京都千代田区丸の内3丁目1番1号 国際ビルディング8階 曾我特許事務所 Tokyo, (JP)</p>	<p>(81) 指定国 AT (欧州特許), AU, BE (欧州特許), BG, CA, CH (欧州特許), DE (欧州特許), DK (欧州特許), ES (欧州特許), FR (欧州特許), GB (欧州特許), GR (欧州特許), IE (欧州特許), IT (欧州特許), LU (欧州特許), MC (欧州特許), NL (欧州特許), PT (欧州特許), RU, SE (欧州特許), UA, US.</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>	
<p>(54) Title : SULFAMOYLTRIAZOLE DERIVATIVE AND BACTERICIDE CONTAINING THE SAME AS ACTIVE INGREDIENT</p> <p>(54) 発明の名称 スルファモイルトリアゾール誘導体及びそれを有効成分とする殺菌剤</p> <div style="text-align: center;"> <p>(1)</p> </div> <p>(57) Abstract</p> <p>A sulfamoyltriazole derivative represented by general formula (I) and a bactericide containing the same as the active ingredient, wherein R¹ and R² may be the same or different from each other and each represents lower alkyl, or alternatively R¹ and R² may be combined together to represent C₃-C₆ alkylene which may be substituted by lower alkyl; A represents substituted aryl; and l represents an integer of 0 to 1. The bactericide has prophylactic and therapeutic effects against various disease damages even in an extremely low dose without inflicting any chemical injury to agrohorticultural crops.</p>		

(57) 要約

本発明は、一般式 (I) :



[式中、R¹ および R² は同一若しくは異なって低級アルキル基を表すか、R¹ および R² が一緒になって、低級アルキル基で置換されてもよい炭素数3～6のアルキレン鎖を表し、pは0または1の整数を表わし、Aは置換アリアル基を表す]で示されるスルファモイルトリアゾール誘導体、およびそれを有効成分とする殺菌剤に関する。

該殺菌剤は、農園芸作物に薬害を及ぼさず、種々の病害に対して極めて低薬量で予防効果および治療効果を発揮するものである。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第1頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AT	オーストリア	CS	チェッコスロヴァキア	KR	大韓民国	PL	ポーランド
AU	オーストラリア	CZ	チェッコ共和国	KZ	カザフスタン	PT	ポルトガル
BB	バルバドス	DE	ドイツ	LI	リヒテンシュタイン	RO	ルーマニア
BE	ベルギー	DK	デンマーク	LK	スリランカ	RU	ロシア連邦
BF	ブルキナ・ファソ	ES	スペイン	LU	ルクセンブルグ	SD	スーダン
BG	ブルガリア	FI	フィンランド	LV	ラトヴィア	SE	スウェーデン
BJ	ベナン	FR	フランス	MC	モナコ	SI	スロヴェニア
BR	ブラジル	GA	ガボン	MG	マダガスカル	SK	スロヴァキア共和国
BY	ベラルーシ	GB	イギリス	ML	マリ	SN	セネガル
CA	カナダ	GN	ギニア	MN	モンゴル	TD	チャード
CF	中央アフリカ共和国	GR	ギリシャ	MR	モーリタニア	TG	トーゴ
CG	コンゴ	HU	ハンガリー	MW	マラウイ	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	NE	ニジェール	US	米国
CI	コート・ジボアール	IT	イタリア	NL	オランダ	UZ	ウズベキスタン共和国
CM	カメルーン	JP	日本	NO	ノルウェー	VN	ヴェトナム
CN	中国	KP	朝鮮民主主義人民共和国	NZ	ニュージーランド		

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
428	Me	Me	3-Me-4-Cl
429	Et	Et	3-Me-4-Cl
430	Me	Me	2-Me-4-F
431	Et	Et	2-Me-4-F
432	Me	Mer	2,4-F ₂
433	Et	Etr	2,4-F ₂
434	Me	Me	2,6-F ₂
435	Et	Et	2,6-F ₂
436	Me	Me	2,3-Cl ₂
437	Et	Et	2,3-Cl ₂
438	Me	Me	2,4-Cl ₂
439	Et	Et	2,4-Cl ₂
440	Me	Me	2,5-Cl ₂
441	Et	Et	2,5-Cl ₂
442	Me	Me	2,6-Cl ₂
443	Et	Et	2,6-Cl ₂
444	Me	Me	2-Cl-4-F
445	Et	Et	2-Cl-4-F
446	Me	Me	2-Cl-6-F
447	Et	Et	2-Cl-6-F
448	Me	Me	4-Cl-2-F
449	Et	Et	4-Cl-2-F
450	Me	Me	2-OMe-4-Me
451	Et	Et	2-OMe-4-Me
452	Me	Me	2,6-(OMe) ₂
453	Et	Et	2,6-(OMe) ₂

第6表(続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
454	Me	Me	2-F-6-OMe
455	Et	Et	2-F-6-OMe
456	Me	Me	3-Cl-5-OMe
457	Et	Et	3-Cl-5-OMe
458	Me	Me	2-OMe-4-CH=CHCH ₃
459	Et	Et	2-OMe-4-CH=CHCH ₃
460	Me	Me	2-OMe-4-CH ₂ CH=CH ₂
461	Et	Et	2-OMe-4-CH ₂ CH=CH ₂
462	Me	Me	3,5-(CF ₃) ₂
463	Et	Et	3,5-(CF ₃) ₂
464	Me	Me	2-Cl-4-CF ₃
465	Et	Et	2-Cl-4-CF ₃
466	Me	Me	2-Cl-5-CF ₃
467	Et	Et	2-Cl-5-CF ₃
468	Me	Me	2-Me-6-COOMe
469	Et	Et	2-Me-6-COOMe
470	Me	Me	2-OMe-6-COOMe
471	Et	Et	2-OMe-6-COOMe
472	Me	Me	2-Cl-6-COOMe
473	Et	Et	2-Cl-6-COOMe
474	Me	Me	2-NO ₂ -3-Me
475	Et	Et	2-NO ₂ -3-Me
476	Me	Me	2-CN-4-F
477	Et	Et	2-CN-4-F
478	Me	Me	2-CN-4-Cl
479	Et	Et	2-CN-4-Cl

-1-

明 細 書

スルファモイルトリアゾール誘導体及びそれを有効成分とする殺菌剤

技術分野

本発明は、文献未記載の新規なスルファモイルトリアゾール誘導体及びそれを有効成分とする殺菌剤に関するものである。

背景技術

特開昭63-255269号公報には、特定構造のスルファモイルトリアゾール誘導体が、抗真菌剤の有効成分として用いことが記載されている。

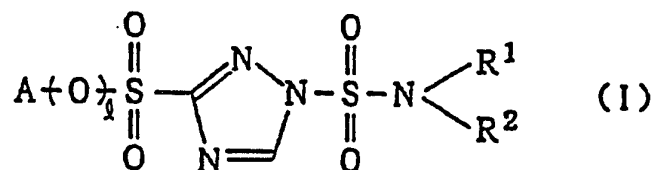
しかしながら、これら公知の化合物の殺菌活性は必ずしも満足すべきものとは言い難い。

発明の開示

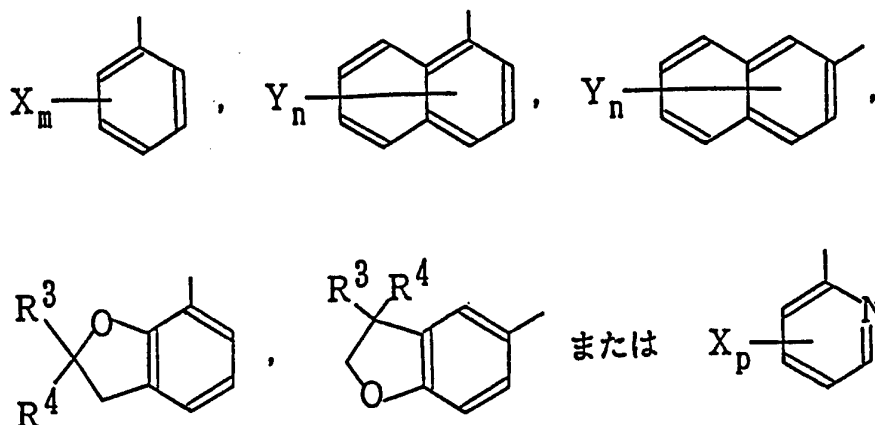
本発明者らは、種々の置換スルファモイルトリアゾール系化合物について、殺菌活性が高く安全性の優れた農業用殺菌剤を開発すべく、鋭意研究の結果、トリアゾール環の3位の炭素原子がある特定のアリールスルホニル基またはアリールオキシスルホニル基で置換されているスルファモイルトリアゾール誘導体は新規であり、農園芸作物に薬害を及ぼすことなく種々の病害に対して極めて低薬量で予防効果及び治療効果を発揮することを見だし本発明を完成した。

(発明の要旨)

斯くして本発明によれば、一般式 (I) :



[式中、 R^1 および R^2 は同一若しくは異なって低級アルキル基を表すか、 R^1 および R^2 が一緒になって、低級アルキル基で置換されてもよい炭素数3～6のアルキレン鎖を表し、 l は0または1の整数を表し、 A は、



(ここで X は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジルオキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； m は1、2、3、4または5の整数を表し； Y は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表わし； n は1、2、3、4または5の整数を表し； R^3 および R^4 は同一若しくは異なって、水素原子または低級アルキル基を表し、 p は1、2、3または4の整数を表す)を表す]で示されるスルファモイルトリアゾール誘導体、およびそれを有効成分として含有する殺菌剤が提供される。

(発明の具体的説明)

[I] スルファモイルトリアゾール誘導体

本発明の上記一般式(I)で表されるスルファモイルトリアゾール誘導体につ

いて詳細に説明する。

前記一般式 (I) の化合物において、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、XおよびYの定義におけるそれぞれの原子および基の具体例を以下に示す。

低級アルキル基：

例えば、メチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、イソブチル、第2ブチル基等の如き炭素数1～4の低級アルキル基、

ハロゲン原子：

例えば、フッ素、塩素、臭素、

低級アルケニル基：

例えば、アリル、2-メチル-2-プロペニル、2-ブテニル、3-ブテニル基等の如き炭素数2～4の低級アルケニル基、

低級アルコキシ基：

例えば、メトキシ、エトキシ、n-プロポキシ、イソプロポキシ、n-ブトキシ、イソブトキシ、第2ブトキシ、第3ブトキシ基等の如き炭素数1～4の低級アルコキシ基、

低級ハロアルキル基：

例えば、ジクロロメチル、トリクロロメチル、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル、2-クロロエチル、2-フルオロエチル基等の如き炭素数1～3の低級ハロアルキル基、

低級ハロアルコキシ基：

例えば、ジフルオロメトキシ、トリフルオロメトキシ、2-クロロエトキシ、2, 2-ジクロロエトキシ、2, 2, 2-トリクロロエトキシ、2-フルオロエトキシ、3-ブromoプロポキシ基等の如き炭素数1～3の低級ハロアルコキシ基

低級アルキルカルボニル基：

例えば、メチルカルボニル、エチルカルボニル、n-プロピルカルボニル、イソプロピルカルボニル基等の如き炭素数2～4の低級アルキルカルボニル基、

低級アルコキシカルボニル基：

例えば、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、n-プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル基等の如き炭素数2～4の低級アルコキシカルボ

ニル基、

等が挙げられる。

上記に具体的に例示されていない基は、上記原子および基から任意に組み合わせて、あるいは一般的に知られた常識に従って選択することができる。

前記一般式 (I) 中、 R^1 および R^2 における低級アルキル基としては、メチル、エチル、 n -プロピルおよびイソプロピル基等が好ましい。

R^3 および R^4 における低級アルキル基としては、メチル、エチルおよび n -プロピル基等が好ましい。

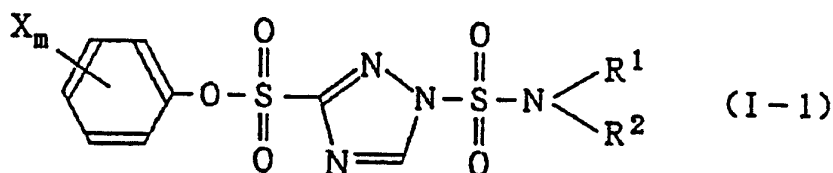
X および Y におけるハロゲン原子としてはフッ素および塩素原子が好ましく、低級アルキル基としてはメチル、エチル、 n -プロピル、イソプロピル基等が好ましく、低級ハロアルキル基としてはトリクロロメチル、トリフルオロメチル基等が好ましく、低級ハロアルコキシ基としては、ジフルオロメトキシ、トリフルオロエトキシおよびテトラフルオロエトキシ基等が好ましい。 m は 1, 2, 3 または 4 であるのが好ましく、 n は 1, 2 または 3 であるのが好ましく、 p は 1, 2 または 3 が好ましい。

A としては、特に上記置換基で置換されたフェニル基が好ましく、具体的には 2, 4-ジクロロ-3-メチルフェニル基、4-トリフルオロメチルフェニル基、3-クロロフェニル基、2, 3-ジクロロフェニル基、2-クロロ-4-トリフルオロメチルフェニル基、4-クロロフェニル基および 3-トリフルオロメチルフェニル基等が好ましい。

本発明の前記一般式 (I) で表される化合物の具体的構造を以下に例示する。

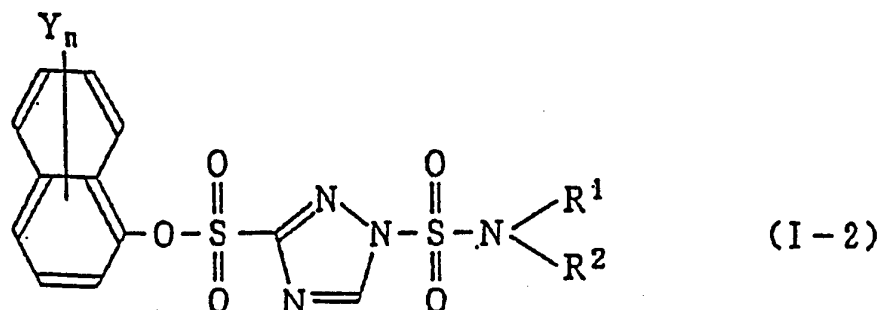
(1) 前記一般式 (I) において、 l が 1 である場合：

(i) 下記一般式 (I-1)



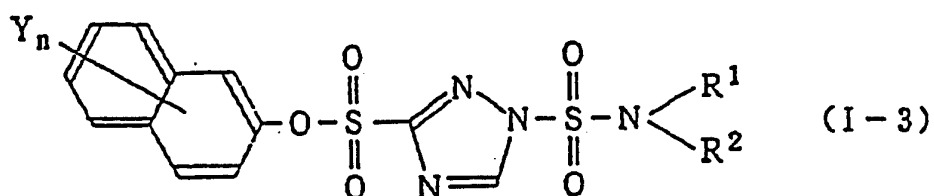
[式中、 R^1 、 R^2 、 X および m は前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

(ii) 下記一般式(I-2)



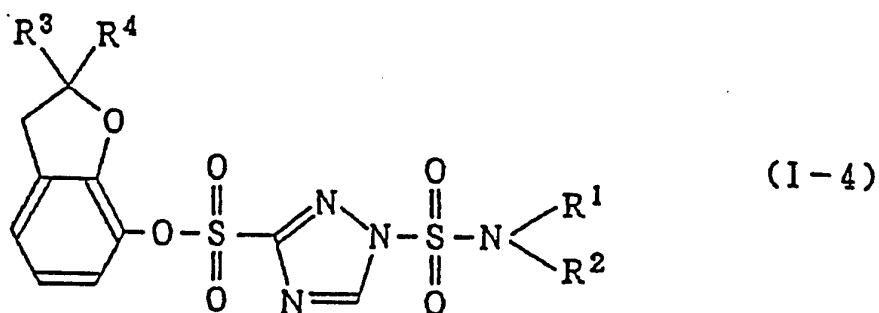
[式中、 R^1 、 R^2 、 Y および n は前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

(iii) 下記一般式(I-3)



[式中、 R^1 、 R^2 、 Y および n は前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

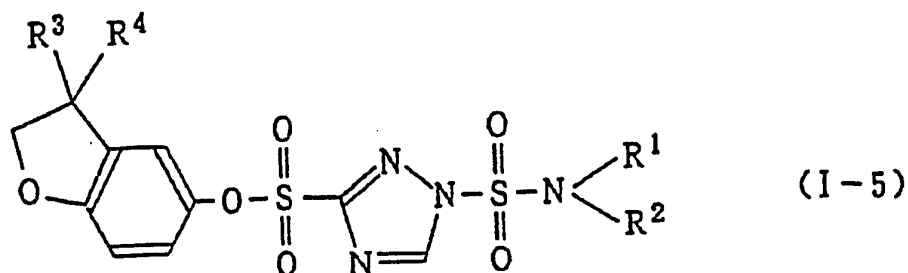
(iv) 下記一般式(I-4)



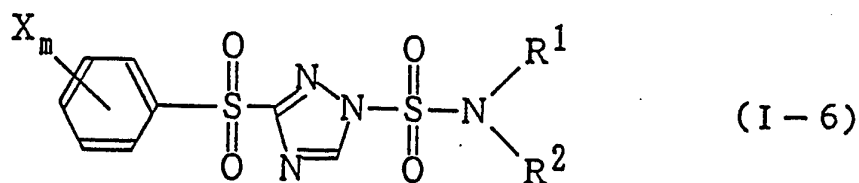
[式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

-6-

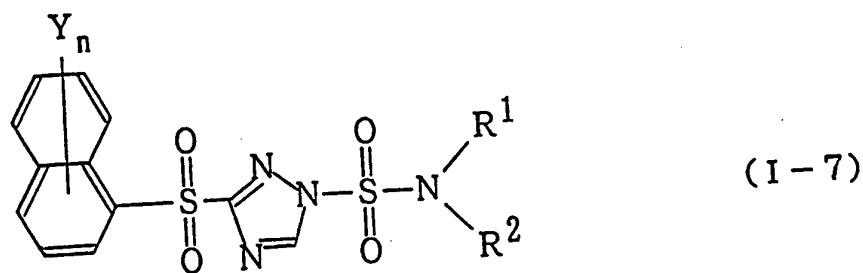
(v) 下記一般式 (I-5)

[式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は前記一般式 (I) と同じ意味を示す。](2) 前記一般式 (I) において、 l が 0 である場合：

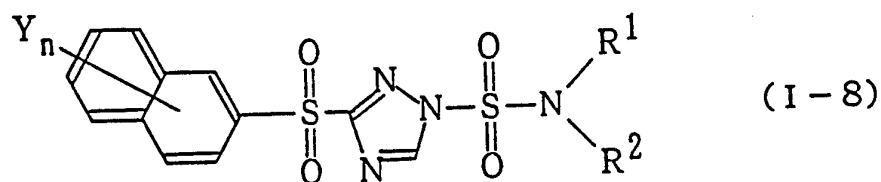
(vi) 下記一般式 (I-6)

[式中、 R^1 、 R^2 、 X および m は前記一般式 (I) と同じ意味を示す。]

(vii) 下記一般式 (I-7)

[式中、 R^1 、 R^2 、 Y および n は前記一般式 (I) と同じ意味を示す。]

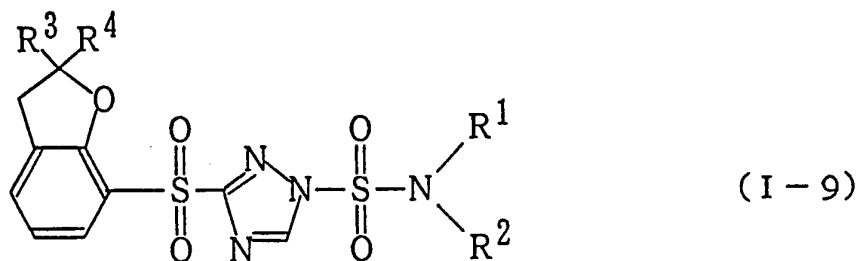
(viii) 下記一般式 (I-8)



-7-

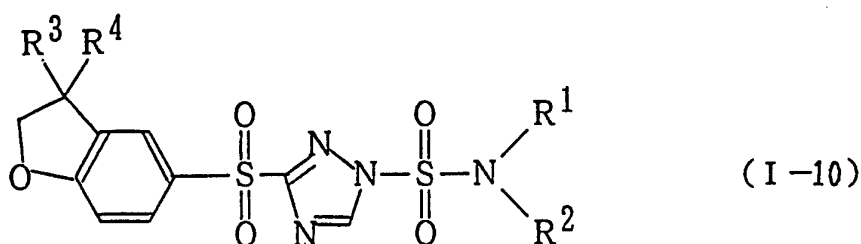
[式中、 R^1 、 R^2 、Yおよびnは前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

(ix) 下記一般式(I-9)

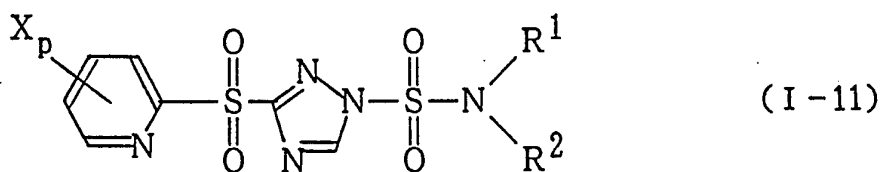


[式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

(x) 下記一般式(I-10)



(xi) 下記一般式(I-11)



[式中、X、 R^1 、 R^2 およびpは前記一般式(I)と同じ意味を示す。]

前記一般式(I)で表される本発明の化合物のうち、式(I-1)に属する化合物の具体例を第1表に、式(I-2)に属する化合物の具体例を第2表に、式(I-3)に属する化合物の具体例を第3表に、式(I-4)に属する化合物の具体例を第4表に、式(I-5)に属する化合物の具体例を第5表に、式(I-6)に属する化合物の具体例を第6表に、式(I-7)に属する化合物の具体例を第7表に、式(I-8)に属する化合物の具体例を第8表に、式(I-9)に

属する化合物の具体例を第9表に、式(I-10)に属する化合物の具体例を第10表に、式(I-11)に属する化合物の具体例を第11表に、それぞれ示す。

なお第1表～第11表中で用いられている略号の意味は下記の通りである。

Me=メチル基, Et=エチル基, nPr=n-プロピル基, iPr=イソプロピル基,
tBu=tert-ブチル基

第1表

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
1	Me	Me	H
2	Me	Et	H
3	Et	Et	H
4	Et	nPr	H
5	Et	iPr	H
6	nPr	nPr	H
7	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		H
8	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH(Me)-		H
9	-CH(Et)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		H
10	Me	Me	2-Me
11	Et	Et	2-Me
12	Me	Me	3-Me
13	Et	Et	3-Me
14	Me	Me	4-Me
15	Et	Et	4-Me
16	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		4-Me
17	Me	Me	2-Et
18	Et	Et	2-Et
19	Me	Me	3-Et
20	Et	Et	3-Et
21	Me	Me	4-Et
22	Et	Et	4-Et
23	Me	Me	2-iPr
24	Et	Et	2-iPr
25	Me	Me	3-iPr
26	Et	Et	3-iPr

-10-

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
27	Me	Me	4-iPr
28	Et	Et	4-iPr
29	Me	Me	4-tBu
30	Et	Et	4-tBu
31	Me	Me	2-F
32	Et	Et	2-F
33	Me	Me	3-F
34	Et	Et	3-F
35	Me	Me	4-F
36	Et	Et	4-F
37	Me	Me	2-Cl
38	Et	Et	2-Cl
39	Me	Me	3-Cl
40	Et	Et	3-Cl
41	Me	Me	4-Cl
42	Et	Et	4-Cl
43	Me	Me	2-Br
44	Et	Et	2-Br
45	Me	Me	2-CH ₂ CH=CH ₂
46	Et	Et	2-CH ₂ CH=CH ₂
47	Me	Me	2-OMe
48	Et	Et	2-OMe
49	Me	Me	3-OMe
50	Et	Et	3-OMe
51	Me	Me	4-OMe
52	Et	Et	4-OMe
53	Me	Me	3-OEt

-11-

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
54	Et	Et	3-OEt
55	Me	Me	4-OEt
56	Et	Et	4-OEt
57	Me	Me	2-CF ₃
58	Et	Et	2-CF ₃
59	Me	Me	3-CF ₃
60	Et	Et	3-CF ₃
61	Me	Me	4-CF ₃
62	Et	Et	4-CF ₃
63	Me	Me	2-OCHF ₂
64	Et	Et	2-OCHF ₂
65	Me	Me	4-OCHF ₂
66	Et	Et	4-OCHF ₂
67	Me	Me	2-OCH ₂ CF ₃
68	Et	Et	2-OCH ₂ CF ₃
69	Me	Me	4-OCH ₂ CF ₃
70	Et	Et	4-OCH ₂ CF ₃
71	Me	Me	2-OCF ₂ CFC1H
72	Et	Et	2-OCF ₂ CFC1H
73	Me	Me	2-C ₆ H ₅
74	Et	Et	2-C ₆ H ₅
75	Me	Me	2-CH ₂ C ₆ H ₅
76	Et	Et	2-CH ₂ C ₆ H ₅
77	Me	Me	2-OCH ₂ C ₆ H ₅

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
78	Et	Et	2-OCH ₂ C ₆ H ₅
79	Me	Me	2-COCH ₃
80	Et	Et	2-COCH ₃
81	Me	Me	2-COOMe
82	Et	Et	2-COOMe
83	Me	Me	4-COOMe
84	Et	Et	4-COOMe
85	Me	Me	2-CHO
86	Et	Et	2-CHO
87	Me	Me	2-NO ₂
88	Et	Et	2-NO ₂
89	Me	Me	4-NO ₂
90	Et	Et	4-NO ₂
91	Me	Me	2-CN
92	Et	Et	2-CN
93	Me	Me	3-CN
94	Et	Et	3-CN
95	Me	Me	4-CN
96	Et	Et	4-CN
97	Me	Me	2-NHCOCH ₃
98	Et	Et	2-NHCOCH ₃
99	Me	Me	4-NHCOCH ₃
100	Et	Et	4-NHCOCH ₃
101	Me	Me	2,6-(Me) ₂
102	Me	Et	2,6-(Me) ₂

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
103	Et	Et	2,6-(Me) ₂
104	Et	nPr	2,6-(Me) ₂
105	Et	iPr	2,6-(Me) ₂
106	nPr	nPr	2,6-(Me) ₂
107	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		2,6-(Me) ₂
108	Me	Me	2,4-(Me) ₂
109	Et	Et	2,4-(Me) ₂
110	Me	Me	3,4-(Me) ₂
111	Et	Et	3,4-(Me) ₂
112	Me	Me	3,5-(Me) ₂
113	Et	Et	3,5-(Me) ₂
114	Me	Me	2,3-(Me) ₂
115	Et	Et	2,3-(Me) ₂
116	Me	Me	2,6-(Et) ₂
117	Et	Et	2,6-(Et) ₂
118	Me	Me	2-Me-6-Et
119	Et	Et	2-Me-6-Et
120	Me	Me	2-Me-5-iPr
121	Et	Et	2-Me-5-iPr
122	Me	Me	2-iPr-5-Me
123	Et	Et	2-iPr-5-Me
124	Me	Me	2-Me-4-Cl
125	Et	Et	2-Me-4-Cl
126	Me	Me	2-Me-6-Cl
127	Et	Et	2-Me-6-Cl

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
128	Me	Me	3-Me-4-Cl
129	Et	Et	3-Me-4-Cl
130	Me	Me	2-Me-4-F
131	Et	Et	2-Me-4-F
132	Me	Mer	2,4-F ₂
133	Et	Etr	2,4-F ₂
134	Me	Me	2,6-F ₂
135	Et	Et	2,6-F ₂
136	Me	Me	2,3-Cl ₂
137	Et	Et	2,3-Cl ₂
138	Me	Me	2,4-Cl ₂
139	Et	Et	2,4-Cl ₂
140	Me	Me	2,5-Cl ₂
141	Et	Et	2,5-Cl ₂
142	Me	Me	2,6-Cl ₂
143	Et	Et	2,6-Cl ₂
144	Me	Me	2-Cl-4-F
145	Et	Et	2-Cl-4-F
146	Me	Me	2-Cl-6-F
147	Et	Et	2-Cl-6-F
148	Me	Me	4-Cl-2-F
149	Et	Et	4-Cl-2-F
150	Me	Me	2-OMe-4-Me
151	Et	Et	2-OMe-4-Me
152	Me	Me	2,6-(OMe) ₂
153	Et	Et	2,6-(OMe) ₂

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
154	Me	Me	2-F-6-OMe
155	Et	Et	2-F-6-OMe
156	Me	Me	3-Cl-5-OMe
157	Et	Et	3-Cl-5-OMe
158	Me	Me	2-OMe-4-CH=CHCH ₃
159	Et	Et	2-OMe-4-CH=CHCH ₃
160	Me	Me	2-OMe-4-CH ₂ CH=CH ₂
161	Et	Et	2-OMe-4-CH ₂ CH=CH ₂
162	Me	Me	3,5-(CF ₃) ₂
163	Et	Et	3,5-(CF ₃) ₂
164	Me	Me	2-Cl-4-CF ₃
165	Et	Et	2-Cl-4-CF ₃
166	Me	Me	2-Cl-5-CF ₃
167	Et	Et	2-Cl-5-CF ₃
168	Me	Me	2-Me-6-COOMe
169	Et	Et	2-Me-6-COOMe
170	Me	Me	2-OMe-6-COOMe
171	Et	Et	2-OMe-6-COOMe
172	Me	Me	2-Cl-6-COOMe
173	Et	Et	2-Cl-6-COOMe
174	Me	Me	2-NO ₂ -3-Me
175	Et	Et	2-NO ₂ -3-Me
176	Me	Me	2-CN-4-F
177	Et	Et	2-CN-4-F
178	Me	Me	2-CN-4-Cl
179	Et	Et	2-CN-4-Cl

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
180	Me	Me	2-CN-4-Br
181	Et	Et	2-CN-4-Br
182	Me	Me	4-CN-2-F
183	Et	Et	4-CN-2-F
184	Me	Me	4-CN-2-Cl
185	Et	Et	4-CN-2-Cl
186	Me	Me	4-CN-2-Br
187	Et	Et	4-CN-2-Br
188	Me	Me	2,3,5-(Me) ₃
189	Et	Et	2,3,5-(Me) ₃
190	Me	Me	2,3,6-(Me) ₃
191	Et	Et	2,3,6-(Me) ₃
192	Me	Me	2,4,6-(Me) ₃
193	Me	Et	2,4,6-(Me) ₃
194	Et	Et	2,4,6-(Me) ₃
195	Et	nPr	2,4,6-(Me) ₃
196	Et	iPr	2,4,6-(Me) ₃
197	nPr	nPr	2,4,6-(Me) ₃
198	Me	Me	2,4-(Me) ₂ -6-Cl
199	Et	Et	2,4-(Me) ₂ -6-Cl
200	Me	Me	2,6-(Me) ₂ -4-Cl
201	Et	Et	2,6-(Me) ₂ -4-Cl
202	Me	Me	2,4-Cl ₂ -6-Me
203	Et	Et	2,4-Cl ₂ -6-Me

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
204	Me	Me	2,6-Cl ₂ -4-Me
205	Et	Et	2,6-Cl ₂ -4-Me
206	Me	Me	2,4-Cl ₂ -3-Me
207	Et	Et	2,4-Cl ₂ -3-Me
208	Me	Me	2,6-Cl ₂ -4-CF ₃
209	Et	Et	2,6-Cl ₂ -4-CF ₃
210	Me	Me	2,3,4-Cl ₃
211	Et	Et	2,3,4-Cl ₃
212	Me	Me	2,3,6-Cl ₃
213	Et	Et	2,3,6-Cl ₃
214	Me	Me	2,4,5-Cl ₃
215	Et	Et	2,4,5-Cl ₃
216	Me	Me	2,4,6-Cl ₃
217	Me	Et	2,4,6-Cl ₃
218	Et	Et	2,4,6-Cl ₃
219	Et	nPr	2,4,6-Cl ₃
220	Et	iPr	2,4,6-Cl ₃
221	nPr	nPr	2,4,6-Cl ₃
222	Me	Me	3,4,5-(OMe) ₃
223	Et	Et	3,4,5-(OMe) ₃
224	Me	Me	2,4-Cl ₂ -6-COOMe
225	Et	Et	2,4-Cl ₂ -6-COOMe
226	Me	Me	2-NO ₂ -3,5-(Me) ₂
227	Et	Et	2-NO ₂ -3,5-(Me) ₂

-18-

第1表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
228	Me	Me	2,3,5,6-F ₄
229	Et	Et	2,3,5,6-F ₄
230	Me	Me	2,3,4,5,6-F ₅
231	Et	Et	2,3,4,5,6-F ₅
232	Me	Me	2,3,4,5,6-Cl ₅
233	Et	Et	2,3,4,5,6-Cl ₅
234	Me	Me	2,3,4,5,6-(Me) ₅
235	Et	Et	2,3,4,5,6-(Me) ₅

第2表

化合物 No.	R ¹	R ²	Y _n
236	Me	Me	H
237	Et	Et	H
238	Me	Me	4-Cl
239	Et	Et	4-Cl
240	Me	Me	2-Me
241	Et	Et	2-Me
242	Me	Me	2-OMe
243	Et	Et	2-OMe
244	Me	Me	4-CF ₃
245	Et	Et	4-CF ₃
246	Me	Me	2-OCH ₂ CF ₃
247	Et	Et	2-OCH ₂ CF ₃
248	Me	Me	2-COCH ₃
249	Et	Et	2-COCH ₃
250	Me	Me	2-CHO
251	Et	Et	2-CHO
252	Me	Me	2-COOMe
253	Et	Et	2-COOMe
254	Me	Me	2-NO ₂
255	Et	Et	2-NO ₂
256	Me	Me	4-NHCOCH ₃
257	Et	Et	4-NHCOCH ₃

第3表

化合物 No.	R ¹	R ²	Y _n
258	Me	Me	H
259	Et	Et	H
260	Me	Me	1-Br
261	Et	Et	1-Br
262	Me	Me	1-Me
263	Et	Et	1-Me
264	Me	Me	1-OMe
265	Et	Et	1-OMe
266	Me	Me	1-CF ₃
267	Et	Et	1-CF ₃
268	Me	Me	1-OCH ₂ CF ₃
269	Et	Et	1-OCH ₂ CF ₃
270	Me	Me	1-COCH ₃
271	Et	Et	1-COCH ₃
272	Me	Me	1-CHO
273	Et	Et	1-CHO
274	Me	Me	3-COOMe
275	Et	Et	3-COOMe
276	Me	Me	1-NO ₂
277	Et	Et	1-NO ₂
278	Me	Me	3-NHCOCH ₃
279	Et	Et	3-NHCOCH ₃

-21-

第4表

化合物 No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
280	Me	Me	H	H
281	Et	Et	H	H
282	Me	Me	Me	H
283	Et	Et	Me	H
284	Me	Me	Me	Me
285	Me	Et	Me	Me
286	Et	Et	Me	Me
287	Et	nPr	Me	Me
288	Et	iPr	Me	Me
289	nPr	nPr	Me	Me

第5表

化合物 No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
290	Me	Me	H	H
291	Et	Et	H	H
292	Me	Me	Me	H
293	Et	Et	Me	H
294	Me	Me	Me	Me
295	Me	Et	Me	Me
296	Et	Et	Me	Me
297	Et	nPr	Me	Me
298	Et	iPr	Me	Me
299	nPr	nPr	Me	Me

第6表

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
301	Me	Me	H
302	Me	Et	H
303	Et	Et	H
304	Et	nPr	H
305	Et	iPr	H
306	nPr	nPr	H
307	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		H
308	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH(Me)-		H
309	-CH(Et)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		H
310	Me	Me	2-Me
311	Et	Et	2-Me
312	Me	Me	3-Me
313	Et	Et	3-Me
314	Me	Me	4-Me
315	Et	Et	4-Me
316	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		4-Me
317	Me	Me	2-Et
318	Et	Et	2-Et
319	Me	Me	3-Et
320	Et	Et	3-Et
321	Me	Me	4-Et
322	Et	Et	4-Et
323	Me	Me	2-iPr
324	Et	Et	2-iPr
325	Me	Me	3-iPr
326	Et	Et	3-iPr

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
327	Me	Me	4-iPr
328	Et	Et	4-iPr
329	Me	Me	4-tBu
330	Et	Et	4-tBu
331	Me	Me	2-F
332	Et	Et	2-F
333	Me	Me	3-F
334	Et	Et	3-F
335	Me	Me	4-F
336	Et	Et	4-F
337	Me	Me	2-Cl
338	Et	Et	2-Cl
339	Me	Me	3-Cl
340	Et	Et	3-Cl
341	Me	Me	4-Cl
342	Et	Et	4-Cl
343	Me	Me	2-Br
344	Et	Et	2-Br
345	Me	Me	2-CH ₂ CH=CH ₂
346	Et	Et	2-CH ₂ CH=CH ₂
347	Me	Me	2-OMe
348	Et	Et	2-OMe
349	Me	Me	3-OMe
350	Et	Et	3-OMe
351	Me	Me	4-OMe
352	Et	Et	4-OMe
353	Me	Me	3-OEt

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
354	Et	Et	3-OEt
355	Me	Me	4-OEt
356	Et	Et	4-OEt
357	Me	Me	2-CF ₃
358	Et	Et	2-CF ₃
359	Me	Me	3-CF ₃
360	Et	Et	3-CF ₃
361	Me	Me	4-CF ₃
362	Et	Et	4-CF ₃
363	Me	Me	2-OCHF ₂
364	Et	Et	2-OCHF ₂
365	Me	Me	4-OCHF ₂
366	Et	Et	4-OCHF ₂
367	Me	Me	2-OCH ₂ CF ₃
368	Et	Et	2-OCH ₂ CF ₃
369	Me	Me	4-OCH ₂ CF ₃
370	Et	Et	4-OCH ₂ CF ₃
371	Me	Me	2-OCF ₂ CFC1H
372	Et	Et	2-OCF ₂ CFC1H
373	Me	Me	2-C ₆ H ₅
374	Et	Et	2-C ₆ H ₅
375	Me	Me	2-CH ₂ C ₆ H ₅
376	Et	Et	2-CH ₂ C ₆ H ₅
377	Me	Me	2-OCH ₂ C ₆ H ₅

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
378	Et	Et	2-OCH ₂ C ₆ H ₅
379	Me	Me	2-COCH ₃
380	Et	Et	2-COCH ₃
381	Me	Me	2-COOMe
382	Et	Et	2-COOMe
383	Me	Me	4-COOMe
384	Et	Et	4-COOMe
385	Me	Me	2-CHO
386	Et	Et	2-CHO
387	Me	Me	2-NO ₂
388	Et	Et	2-NO ₂
389	Me	Me	4-NO ₂
390	Et	Et	4-NO ₂
391	Me	Me	2-CN
392	Et	Et	2-CN
393	Me	Me	3-CN
394	Et	Et	3-CN
395	Me	Me	4-CN
396	Et	Et	4-CN
397	Me	Me	2-NHCOCH ₃
398	Et	Et	2-NHCOCH ₃
399	Me	Me	4-NHCOCH ₃
400	Et	Et	4-NHCOCH ₃
401	Me	Me	2,6-(Me) ₂
402	Me	Et	2,6-(Me) ₂

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
403	Et	Et	2,6-(Me) ₂
404	Et	nPr	2,6-(Me) ₂
405	Et	iPr	2,6-(Me) ₂
406	nPr	nPr	2,6-(Me) ₂
407	-CH(Me)-(CH ₂) ₃ -CH ₂ -		2,6-(Me) ₂
408	Me	Me	2,4-(Me) ₂
409	Et	Et	2,4-(Me) ₂
410	Me	Me	3,4-(Me) ₂
411	Et	Et	3,4-(Me) ₂
412	Me	Me	3,5-(Me) ₂
413	Et	Et	3,5-(Me) ₂
414	Me	Me	2,3-(Me) ₂
415	Et	Et	2,3-(Me) ₂
416	Me	Me	2,6-(Et) ₂
417	Et	Et	2,6-(Et) ₂
418	Me	Me	2-Me-6-Et
419	Et	Et	2-Me-6-Et
420	Me	Me	2-Me-5-iPr
421	Et	Et	2-Me-5-iPr
422	Me	Me	2-iPr-5-Me
423	Et	Et	2-iPr-5-Me
424	Me	Me	2-Me-4-Cl
425	Et	Et	2-Me-4-Cl
426	Me	Me	2-Me-6-Cl
427	Et	Et	2-Me-6-Cl

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
480	Me	Me	2-CN-4-Br
481	Et	Et	2-CN-4-Br
482	Me	Me	4-CN-2-F
483	Et	Et	4-CN-2-F
484	Me	Me	4-CN-2-Cl
485	Et	Et	4-CN-2-Cl
486	Me	Me	4-CN-2-Br
487	Et	Et	4-CN-2-Br
488	Me	Me	2,3,5-(Me) ₃
489	Et	Et	2,3,5-(Me) ₃
490	Me	Me	2,3,6-(Me) ₃
491	Et	Et	2,3,6-(Me) ₃
492	Me	Me	2,4,6-(Me) ₃
493	Me	Et	2,4,6-(Me) ₃
494	Et	Et	2,4,6-(Me) ₃
495	Et	nPr	2,4,6-(Me) ₃
496	Et	iPr	2,4,6-(Me) ₃
497	nPr	nPr	2,4,6-(Me) ₃
498	Me	Me	2,4-(Me) ₂ -6-Cl
499	Et	Et	2,4-(Me) ₂ -6-Cl
500	Me	Me	2,6-(Me) ₂ -4-Cl
501	Et	Et	2,6-(Me) ₂ -4-Cl
502	Me	Me	2,4-Cl ₂ -6-Me
503	Et	Et	2,4-Cl ₂ -6-Me

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
504	Me	Me	2,6-Cl ₂ -4-Me
505	Et	Et	2,6-Cl ₂ -4-Me
506	Me	Me	2,4-Cl ₂ -3-Me
507	Et	Et	2,4-Cl ₂ -3-Me
508	Me	Me	2,6-Cl ₂ -4-CF ₃
509	Et	Et	2,6-Cl ₂ -4-CF ₃
510	Me	Me	2,3,4-Cl ₃
511	Et	Et	2,3,4-Cl ₃
512	Me	Me	2,3,6-Cl ₃
513	Et	Et	2,3,6-Cl ₃
514	Me	Me	2,4,5-Cl ₃
515	Et	Et	2,4,5-Cl ₃
516	Me	Me	2,4,6-Cl ₃
517	Me	Et	2,4,6-Cl ₃
518	Et	Et	2,4,6-Cl ₃
519	Et	nPr	2,4,6-Cl ₃
520	Et	iPr	2,4,6-Cl ₃
521	nPr	nPr	2,4,6-Cl ₃
522	Me	Me	3,4,5-(OMe) ₃
523	Et	Et	3,4,5-(OMe) ₃
524	Me	Me	2,4-Cl ₂ -6-COOMe
525	Et	Et	2,4-Cl ₂ -6-COOMe
526	Me	Me	2-NO ₂ -3,5-(Me) ₂
527	Et	Et	2-NO ₂ -3,5-(Me) ₂

-31-

第6表 (続き)

化合物 No.	R ¹	R ²	X _m
528	Me	Me	2,3,5,6-F ₄
529	Et	Et	2,3,5,6-F ₄
530	Me	Me	2,3,4,5,6-F ₅
531	Et	Et	2,3,4,5,6-F ₅
532	Me	Me	2,3,4,5,6-Cl ₅
533	Et	Et	2,3,4,5,6-Cl ₅
534	Me	Me	2,3,4,5,6-(Me) ₅
535	Et	Et	2,3,4,5,6-(Me) ₅

第7表

化合物 No.	R ¹	R ²	Y _n
536	Me	Me	H
537	Et	Et	H
538	Me	Me	4-Cl
539	Et	Et	4-Cl
540	Me	Me	2-Me
541	Et	Et	2-Me
542	Me	Me	2-OMe
543	Et	Et	2-OMe
544	Me	Me	4-CF ₃
545	Et	Et	4-CF ₃
546	Me	Me	2-OCH ₂ CF ₃
547	Et	Et	2-OCH ₂ CF ₃
548	Me	Me	2-COCH ₃
549	Et	Et	2-COCH ₃
550	Me	Me	2-CHO
551	Et	Et	2-CHO
552	Me	Me	2-COOMe
553	Et	Et	2-COOMe
554	Me	Me	2-NO ₂
555	Et	Et	2-NO ₂
556	Me	Me	4-NHCOCH ₃
557	Et	Et	4-NHCOCH ₃

第8表

化合物 No.	R ¹	R ²	Y _n
558	Me	Me	H
559	Et	Et	H
560	Me	Me	1-Br
561	Et	Et	1-Br
562	Me	Me	1-Me
563	Et	Et	1-Me
564	Me	Me	1-OMe
565	Et	Et	1-OMe
566	Me	Me	1-CF ₃
567	Et	Et	1-CF ₃
568	Me	Me	1-OCH ₂ CF ₃
569	Et	Et	1-OCH ₂ CF ₃
570	Me	Me	1-COCH ₃
571	Et	Et	1-COCH ₃
572	Me	Me	1-CHO
573	Et	Et	1-CHO
574	Me	Me	3-COOMe
575	Et	Et	3-COOMe
576	Me	Me	1-NO ₂
577	Et	Et	1-NO ₂
578	Me	Me	3-NHCOCH ₃
579	Et	Et	3-NHCOCH ₃

-34-

第9表

化合物 No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
580	Me	Me	H	H
581	Et	Et	H	H
582	Me	Me	Me	H
583	Et	Et	Me	H
584	Me	Me	Me	Me
585	Me	Et	Me	Me
586	Et	Et	Me	Me
587	Et	nPr	Me	Me
588	Et	iPr	Me	Me
589	nPr	nPr	Me	Me

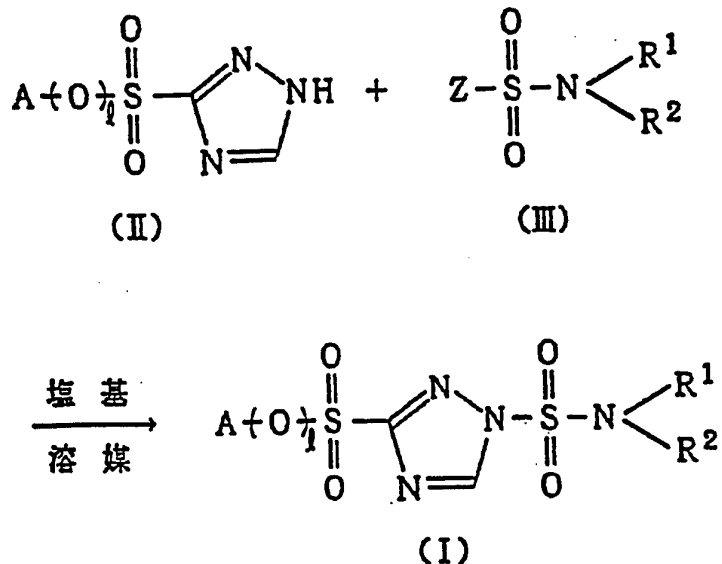
第10表

化合物 No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
590	Me	Me	H	H
591	Et	Et	H	H
592	Me	Me	Me	H
593	Et	Et	Me	H
594	Me	Me	Me	Me
595	Me	Et	Me	Me
596	Et	Et	Me	Me
597	Et	nPr	Me	Me
598	Et	iPr	Me	Me
599	nPr	nPr	Me	Me

第11表

化合物 No.	R ¹	R ²	X _p
600	Me	Me	3-CF ₃
601	Et	Et	3-CF ₃
602	Me	Me	4-CF ₃
603	Et	Et	4-CF ₃
604	Me	Me	5-CF ₃
605	Et	Et	5-CF ₃
606	Me	Me	6-CF ₃
607	Et	Et	6-CF ₃
608	Me	Me	3-Cl-4-CF ₃
609	Et	Et	3-Cl-4-CF ₃
610	Me	Me	3-Cl-5-CF ₃
611	Et	Et	3-Cl-5-CF ₃
612	Me	Me	3-Cl-6-CF ₃
613	Et	Et	3-Cl-6-CF ₃

次に本発明における前記一般式 (I) の化合物の製造方法について説明する。
但し、本発明化合物はこれらの方法によって製造されたものに限定されない。



[式中、Zはハロゲン原子、A、 ℓ 、 R^1 および R^2 は前記一般式 (I) における定義と同じ意味を示す。]

本発明化合物 (I) は、一般式 (II) で示されるトリアゾール誘導体と、一般式 (III) で示されるスルファモイルハライドとを塩基の存在下、好ましくは溶媒中で反応させることにより得ることができる。その際、反応に供される試剤の量は、特に制限はないが、好ましくはトリアゾール誘導体 (II) 1 当量に対してスルファモイルハライド (III) は 1～1.5 当量、塩基は 1～5 当量である。

反応温度は、氷冷下ないし溶媒の沸点の温度範囲で任意に設定できる。

反応時間は、設定条件によって変化するが、通常、10分～24時間で終了させることができる。

溶媒としては、例えば、ヘキサン、ヘプタン、リグロイン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類；クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類；ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、イソホロン、シクロヘキサノン等のケトン類；ニトロエタン、ニトロベンゼン等のニトロ化合

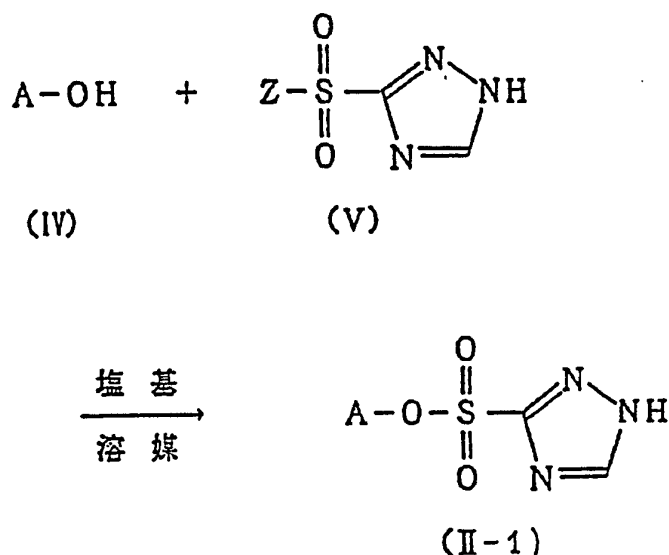
物；アセトニトリル、イソブチロニトリル等のニトリル類；ピリジン、トリエチルアミン、N，N-ジエチルアニリン、トリブチルアミン、N-メチルモルホリン等の第三級アミン；N，N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；ジメチルスルホキシド、スルホラン等の硫黄化合物等、あるいはそれらの混合物が挙げられる。

塩基としては、例えば、ピリジン、トリエチルアミン、N，N-ジエチルアニリン等の有機塩基；水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等が挙げられる。

反応終了後の反応液は、水を加えて、有機溶媒抽出および浸漬等の通常の後処理を行ない、必要ならば、再結晶、シリカゲルカラムクロマトグラフィー、中圧液体クロマトグラフィー等により精製することもできる。

また、一般式(Ⅱ)で示されるトリアゾール誘導体は、下記(1)および(2)の方法に従って製造することができるが、これらの方法によって製造されたものに限定されない。

(1) 前記一般式において、 l が1である場合：



[式中、Zはハロゲン原子、Aは前記一般式(Ⅰ)における定義と同じ意味を示す。]

一般式(Ⅱ-1)で示される化合物は、一般式(Ⅳ)で示される化合物と、一般式(Ⅴ)で示される化合物とを塩基性物質の存在下に適当な溶媒中で反応させることにより得ることができる。その際、反応に供される試剤の量は、特に制限はないが、好ましくは化合物(Ⅳ) 1当量に対して化合物(Ⅴ)は1~1.2当量である。

反応温度は、氷冷下ないし溶媒の沸点の温度範囲で任意に設定できる。

反応時間は、設定条件によって変化するが、通常、1~24時間で終了させることができる。

溶媒としては、例えば、ヘキサン、ヘプタン、リグロイン、石油エーテル等の脂肪族炭化水素類；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類；クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類；ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチレングリコールジメチルエーテル等のエーテル類；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、イソホロン、シクロヘキサノン等のケトン類；ニトロエタン、ニトロベンゼン等のニトロ化合物；アセトニトリル、イソブチロニトリル等のニトリル類；ピリジン、トリエチルアミン、N, N-ジエチルアニリン、トリブチルアミン、N-メチルモルホリン等の第三級アミン；N, N-ジメチルホルムアミド等の酸アミド；ジメチルスルホキシド、スルホラン等の硫黄化合物等、あるいはそれらの混合物が挙げられる。

塩基としては、例えば、ピリジン、トリエチルアミン、N, N-ジエチルアニリン等の有機塩基；水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等が挙げられる。

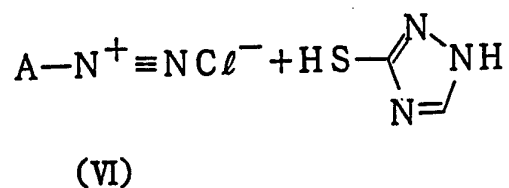
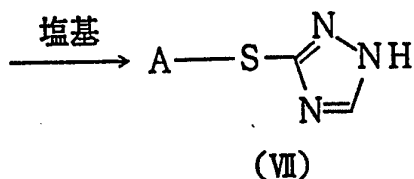
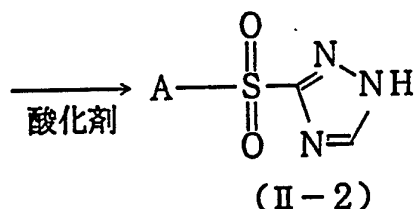
生成物(Ⅱ-1)は常法によって反応混合物から単離でき、再結晶、カラムクロマトグラフィーなどにより容易に精製することができる。

(2) 前記一般式において、 l が0である場合：

下記のA法またはB法により、一般式(Ⅱ-2)で示されるトリアゾール誘導体を製造することができる。

-39-

A法



[式中、Aは前記一般式(I)における定義と同じ意味を示す。]

一般式(VII)で示される化合物は、一般式(VI)で示される化合物と、3-メルカプト-1, 2, 4-トリアゾールとを塩基性物質の存在下に適当な溶媒中で反応させることにより得ることができる。その際、反応に供される試剤の量は、特に制限はないが、好ましくは化合物(VI) 1当量に対して3-メルカプト-1, 2, 4-トリアゾールは1~1.2当量である。

反応温度は、-20~100℃の温度範囲で任意に設定できる。

反応時間は、設定条件によって変化するが、通常、1~24時間で終了させることができる。

塩基性物質としては、例えば、炭酸アルカリ、苛性アルカリなどの無機物質を使用することができる。塩基性物質の使用量は、特に制限はないが、好ましくは化合物(VI)に対し、通常1~1.5当量が適当である。

生成物(VII)は常法によって反応混合物から単離でき、再結晶、カラムクロマトグラフィーなどにより容易に精製することができる。

一般式(Ⅱ-2)で示される化合物は、一般式(Ⅶ)で示される化合物を酸化剤存在下に適当な溶媒中で反応させることにより得ることができる。その際、反応に供される試剤の量は、特に制限はないが、好ましくは化合物(Ⅶ) 1当量に対して酸化剤は2～5当量である。

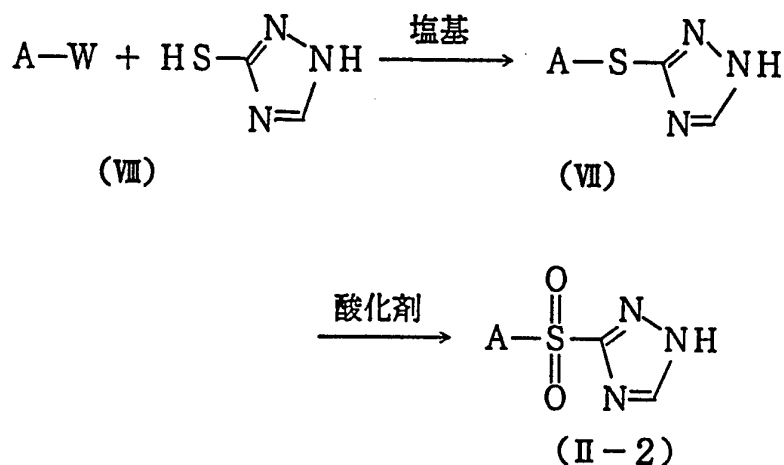
反応温度は、通常室温から100℃の温度範囲で任意に設定できる。反応時間は設定条件によって変化するが、通常30分間～24時間で終了させることができる。

溶媒としては、例えば、アセトン等のケトン類；テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジエチルエーテル等のエーテル類；酢酸エチル等のエステル類；ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類；ベンゼン、クロロベンゼン等の芳香族炭化水素類；N，N-ジメチルホルムアミド、酢酸等の極性溶媒などを単独または混合して使用することができる。更に水と前記溶媒類との混合系も実施可能である。溶媒の使用量には特別な制限はないが、通常、化合物(Ⅶ)の量の5～20重量倍が適当である。

酸化剤としては、メタクロロ過安息香酸等の芳香族過酸、過酢酸、過トリフルオロ酢酸等の脂肪族過酸、過酸化水素等が挙げられる。

生成物(Ⅱ-2)は常法により反応混合物から単離でき、再結晶、カラムクロマトグラフィーなどのより容易に精製することができる。

B法



[式中、Wはハロゲン原子、Aは前記一般式(Ⅰ)における定義と同じ意味を示す。]

一般式 (Ⅶ) で示される化合物は、一般式 (Ⅵ) に示される化合物と、3-メルカプト-1,2,4-トリアゾールとを塩基性物質の存在下に適当な溶媒中で反応させることにより得ることができる。その際、反応に供される試剤の量は、特に制限はないが、好ましくは化合物 (Ⅵ) に対して3-メルカプト-1,2,4-トリアゾールは1~1.2当量である。

反応温度は、氷冷下ないし溶媒の沸点の温度範囲で任意に設定できる。反応時間は設定条件によって変化するが、通常、1~24時間で終了させることができる。

溶媒としては、例えば、アセトン等のケトン類；テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジエチルエーテル等のエーテル類；酢酸エチル等のエステル類、ジクロロメタン等のハロゲン化炭化水素類；ベンゼン、クロロベンゼン等の芳香族炭化水素類；N, N-ジメチルホルムアミド等の極性溶媒などを単独または混合して使用することができる。溶媒の使用量には特別な制限はないが、通常、化合物 (Ⅳ) の量の5~20重量倍が適当である。

塩基性物質としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水素化ナトリウム等の無機塩基；ピリジン、トリエチルアミン、N, N-ジエチルアニリン等の有機塩基；ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等が挙げられる。

生成物 (Ⅶ) は常法によって反応混合物から単離でき、再結晶、カラムクロマトグラフィーなどにより容易に精製することができる。

一般式 (Ⅱ-2) に示される化合物は、一般式 (Ⅶ) で示される化合物より、A法と同様の方法を用いて製造することができる。

[Ⅱ] 殺菌剤

本発明の殺菌剤は、前記一般式 (Ⅰ) で示されるスルファモイルトリアゾール誘導体を有効成分として含有するものである。

本発明の前記一般式 (Ⅰ) で示される化合物を殺菌剤として用いる場合には、担体もしくは希釈剤、添加剤、及び補助剤等と公知の手法で混合して、通常農薬として用いられる製剤形態、例えば粉剤、粒剤、水和剤、乳剤、水溶剤、フロア

ブル剤等に調製して使用される。また他の農薬、例えば殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、植物生長調節剤、肥料及び土壌改良剤等と混合又は併用して使用することができる。

特に他の殺菌剤と混合使用することにより、使用薬量を減少させ、また省力化をもたらすのみならず、両薬剤の共力作用による殺菌スペクトラムの拡大及び相乗作用による一層高い効果も期待できる。

製剤に際して用いられる担体もしくは希釈剤としては、一般に使用される固体ないしは液体の担体が挙げられる。

固体担体としては、例えば、カオリナイト群、モンモリロナイト群、イライト群あるいはボリグロスカイト群等で代表されるクレー類、詳しくはパイロフィライト、アタパルジャイト、セピオライト、カオリナイト、ベントナイト、バーミキュライト、雲母、タルク等の無機物質；石膏、炭酸カルシウム、ドロマイト、けいそう土、マグネシウム石灰、りん灰石、ゼオライト、無水ケイ酸、合成ケイ酸カルシウム等のその他無機物質；大豆粉、タバコ粉、クルミ粉、小麦粉、木粉、でんぷん、結晶セルロース等の植物性有機物質；クマロン樹脂、石油樹脂、アルキッド樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリアルキレングリコール、ケトン樹脂、エステルガム、コーバルガム、ダンマルガム等の合成又は天然の高分子化合物；カルナウバロウ、蜜ロウ等のワックス類あるいは尿素等が例示できる。

適当な液体担体としては、例えば、ケロシン、鉱油、スピンドル油、ホワイトオイル等のパラフィン系又はナフテン系炭化水素；キシレン、エチルベンゼン、クメン、メチルナフタリン等の芳香族炭化水素；トリクロルエチレン、モノクロルベンゼン、オルトクロルトルエン等の塩素化炭化水素；ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類；アセトン、メチルエチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン、アセトフェノン、イソホロン等のケトン類；酢酸エチル、酢酸アミル、エチレングリコールアセテート、ジエチレングリコールアセテート、マレイン酸ジブチル、コハク酸ジエチル等のエステル類；メタノール、n-ヘキサノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、シクロヘキサノール、ベンジルアルコール等のアルコール類；エチレングリコールエチルエーテル、ジエチレングリコールブチルエーテル等のエーテルアルコール類；ジメチルホ

ルムアミド、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒あるいは水等が挙げられる。

その他に本発明の化合物の乳化、分散、湿潤、展着、拡張、結合、崩壊性調節、有効成分安定化、流動性改良、防錆、凍結防止等の目的で界面活性剤その他の補助剤を使用することもできる。

使用される界面活性剤としては、例えば、非イオン性、陰イオン性、陽イオン性及び両性イオン性のいずれの化合物も使用しうるが、通常は非イオン性及び（又は）陰イオン性の化合物が使用される。

適当な非イオン性界面活性剤としては、例えば、ラウリルアルコール、ステアリルアルコール、オレイルアルコール、等の高級アルコールにエチレンオキシドを重合付加させた化合物；ブチルナフトール、オクチルナフトール等のアルキルナフトールにエチレンオキシドを重合付加させた化合物；パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸等の高級脂肪酸にエチレンオキシドを重合付加させた化合物；ソルビタン等の多価アルコールの高級脂肪酸エステル及びそれにエチレンオキシドを重合付加させた化合物、エチレンオキシドとプロピレンオキシドをブロック重合付加させた化合物等が挙げられる。

適当な陰イオン性界面活性剤としては、例えば、ラウリル硫酸ナトリウム、オレイルアルコール硫酸エステルアミン塩等のアルキル硫酸エステル塩、スルホコハク酸ジオクチルエステルナトリウム、2-エチルヘキセンスルホン酸ナトリウム等のアルキルスルホン酸塩、イソプロピルナフタレンスルホン酸ナトリウム、メチレンビスナフタレンスルホン酸ナトリウム、リグニンスルホン酸ナトリウム、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム等のアリアルスルホン酸塩等が挙げられる。

更に、本発明の殺菌剤には、製剤の性状を改善し、効果を高める目的で、カゼイン、ゼラチン、アルブミン、ニカワ、アルギン酸ソーダ、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリビニルアルコール等の高分子化合物や他の補助剤を併用することもできる。

上記の担体及び種々の補助剤は製剤の剤系、適用場面等を考慮して、目的に応じてそれぞれ単独あるいは組み合わせて適宜使用される。

このようにして得られた各種製剤形における本発明化合物有効成分含有率は製

剤形により種々変化するものであるが、通常0.1～99重量%が適当であり、好ましくは1～80重量%が最も適当である。

水和剤の場合は、例えば有効成分化合物を通常5～90%含有し、残部は固体担体及び分散湿潤剤であって、必要に応じて保護コロイド剤、消泡剤等が加えられる。

粒剤の場合は、例えば有効成分化合物を通常1～35重量%含有し、残部は固体担体及び界面活性剤である。有効成分化合物は固体担体と均一に混合されているか、あるいは固体担体の表面に均一に固着又は吸着されており、粒の径は約0.2ないし1.5mmである。

乳剤の場合は、例えば有効成分化合物を通常5～80重量%含有しており、これに約5ないし20重量%の乳化剤が含まれ、残部は液体担体であり、必要に応じて展着剤及び防錆剤等が加えられる。

フロアブル剤の場合は、例えば有効成分化合物を通常5～50重量%含有しており、これに3ないし10重量%の分散湿潤剤が含まれ、残部は水であり必要に応じて保護コロイド剤、防腐剤、消泡剤等が加えられる。

本発明のスルファモイルトリアゾール誘導体は、前記一般式(I)の化合物そのまま、あるいは上述した様な任意の製剤形態で殺菌剤として使用することができる。

本発明化合物の使用濃度は、対象作物、使用方法、製剤形態、施用量などの違いによって異なり、一概に規定できないが、一般式(I)で表される化合物量(有効成分量)として、茎葉処理の場合0.1～10,000ppm、好ましくは1～500ppmであり、土壌処理の場合には10～100,000g/ha、好ましくは200～20,000g/haである。

〔実施例〕

次に、実施例を挙げて、本発明を更に具体的に説明する。

(1) 前駆体の合成

参考例1

3-(2,4,6-トリメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾールの製造

2,4,6-トリメチルフェノール 4.1 gをジクロロメタン15 mlに溶解し、攪拌しながらトリエチルアミン4.2 mlを加えた。さらに氷冷下、攪拌しながら3-クロロスルホニル-1,2,4-トリアゾール4.6 gを徐々に加え、室温で14時間攪拌した。2N塩酸を加えて分液し、有機層を水洗し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これをn-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物3.0 gを得た。

参考例2

3-(3,3-ジメチル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-5-イル-オキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾールの製造

3,3-ジメチル-5-ヒドロキシ-2,3-ジヒドロベンゾフラン5.4 gをテトラヒドロフラン30 mlに溶解し、攪拌しながらトリエチルアミン4.6 mlを加えた。さらに氷冷下、攪拌しながら3-クロロスルホニル-1,2,4-トリアゾール5.0 gを徐々に加え、室温で14時間攪拌した。テトラヒドロフランを減圧下で留去し、2N塩酸を加えて酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これをn-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物2.7 gを得た。

参考例3

3-(2,4-ジクロロ-3-メチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾールの製造

2,4-ジクロロ-3-メチルフェノール2.33 gをテトラヒドロフラン15 mlに溶解し、攪拌しながらトリエチルアミン1.84 mlを加えた。さらに

氷冷下、攪拌しながら3-クロロスルホニル-1,2,4-トリアゾール2.0 gを徐々に加え、室温で14時間攪拌した。テトラヒドロフランを減圧下で留去し、2N塩酸を加えて酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これをn-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物2.25gを得た。

参考例4

3-(4-トリフルオロメチルフェニルチオ)-1,2,4-トリアゾールの製造

A) 濃塩酸62.4 mlを水45 mlに溶解し、p-アミノベンゾトリフルオライド60 gを加えた。これに水60 mlに溶解した亜硝酸ナトリウム28.2 gを5℃にてゆっくり滴下した後30分間攪拌した。

B) 水酸化カリウム25.1 gを水100 mlに溶解し3-メルカプト-1,2,4-トリアゾール41.4 gを加えた。

B)の反応液を55℃まで加温し、これにA)の反応液を徐々に加えた後40分間攪拌した。この反応液にクロロホルムを加え20分間攪拌した後、不純物をろ過しクロロホルム層を水および飽和食塩水で洗浄した。無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下留去して得られた残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにて精製し、標題化合物47.2 g (収率52%)を得た。

参考例5

3-(4-ニトロフェニルチオ)-1,2,4-トリアゾールの製造

3-メルカプト-1,2,4-トリアゾール5 gをN,N-ジメチルホルムアミド40 mlに溶解し、水素化ナトリウム(鉍物油中60%懸濁物)2.17 gを0℃にて加えた。同温にて1時間攪拌した後、1-クロロ-4-ニトロベンゼン7.78 gを加えた。1時間室温で攪拌した後、2時間加熱還流を行った。反応液に10%塩酸を加え酢酸エチル抽出し有機層を飽和食塩水で洗浄した。無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下留去して粗結晶を得た。これをn-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物7.72 g (収率66%)を得た。

得た。

参考例 6

3-(4-トリフルオロメチルフェニルスルホニル)-1,2,4-トリアゾールの製造

上記前駆体合成例 4 に記載の方法に準じて合成した 3-(4-トリフルオロメチルフェニルチオ)-1,2,4-トリアゾール 76.4 g を酢酸 400 ml に溶解し、70℃にて 30%過酸化水素水 140 g を加えた後、徐々に昇温し、100℃にて 3 時間攪拌した。反応液を室温まで冷却しチオ硫酸ナトリウム水溶液を加え、析出した結晶を濾過することにより、標題化合物 66.4 g (収率 77%) を得た。

(2) スルファモイルトリアゾール誘導体の製造

実施例 1

1-ジメチルスルファモイル-3-(3-トリフルオロメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4 (化合物 No. 59) の製造

上記前駆体合成例 1 に記載の方法に準じて合成した 3-(3-トリフルオロメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール 1.0 g を、アセトニトリル 10 ml に溶解し、無水炭酸カリウム 0.57 g を加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイルクロライド 0.59 g を徐々に加えた。1 時間加熱還流した後、反応液を水にあげ、酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、シリカゲルクロマトグラフィーで精製し、標題化合物 1.33 g を得た。

実施例 2

1-ジメチルスルファモイル-3-(4-トリフルオロメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール (化合物 No. 61) の製造

上記前駆体合成例 3 に記載の方法に準じて合成した 3-(4-トリフルオロメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール 1.0 g を、アセト

-48-

ニトリル 10 ml に溶解し、無水炭酸カリウム 0.57 g を加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイクロライド 0.59 g を徐々に加えた。1 時間加熱還流した後、反応液を水にあけ、酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、シリカゲルクロマトグラフィーで精製し、標題化合物 1.18 g を得た。

実施例 3

1-ジメチルスルファモイル-3-(4-クロロ-2-メチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール (化合物 No. 124) の製造

上記前駆体合成例 1 に記載の方法に準じて合成した 3-(4-クロロ-2-メチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール 0.57 g を、アセトニトリル 10 ml に溶解し、無水炭酸カリウム 0.35 g を加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイクロライド 0.36 g を徐々に加えた。1 時間加熱還流した後、反応液を水にあけ、酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これを n-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物 0.65 g を得た。

実施例 4

1-ジメチルスルファモイル-3-(2,4,6-トリメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール (化合物 No. 192) の製造

上記前駆体合成例 1 に記載の方法に準じて合成した 3-(2,4,6-トリメチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール 24.2 g をアセトニトリル 200 ml に溶解し、無水炭酸カリウム 15.0 g を加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイクロライド 15.6 g を徐々に加えた。1 時間加熱還流した後、反応液を水にあけ、酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これを n-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物 30.94 g を得た。

実施例 5

1-ジメチルスルファモイル-3-(2,4-ジクロロ-3-メチルフェニル
オキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール-3-イル)スルホネート(化
合物No.206)の製造

上記前駆体合成例3に記載の方法に準じて合成した3-(2,4-ジクロロ-3-メチルフェニルオキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール1.0gをアセトニトリル15mlに溶解し、無水炭酸カリウム0.54gを加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイルクロライド0.56gを徐々に加えた。1時間加熱還流した後、反応液を水にあげ、酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これをn-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物1.05gを得た。

実施例6

1-ジメチルスルファモイル-3-(3,3-ジメチル-2,3-ジヒドロベン
ゾフラン-5-イル-オキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール(化合物
No.294)の製造

上記前駆体合成例2に記載の方法に準じて合成した3-(3,3-ジメチル-2,3-ジヒドロベンゾフラン-5-イル-オキシスルホニル)-1,2,4-トリアゾール1.00gをアセトニトリル10mlに溶解し、無水炭酸カリウム0.56gを加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイルクロライド0.58gを徐々に加えた。1時間加熱還流した後、反応液を水にあげ、酢酸エチルにて抽出した。有機層は飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去して、粗結晶を得た。これをn-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して、標題化合物1.13gを得た。

実施例7

1-ジメチルスルファモイル-3-(4-トリフルオロメチルフェニルスル
ホニル)-1,2,4-トリアゾール(化合物No.361)の製造

上記前駆体合成例6に記載の方法に準じて合成した3-(4-トリフルオロメ

-50-

チルフェニルスルホニル) - 1,2,4-トリアゾール 66.4 g をアセトニトリル 500 ml に溶解し、無水炭酸カリウム 75.0 g を加え、攪拌下室温にてジメチルスルファモイクロライド 50.6 g を徐々に加えた。2 時間加熱還流した後、反応液を水にあげ酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄した。無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧下留去して粗結晶を得た。これを n-ヘキサン/酢酸エチルから再結晶して標題化合物 42.7 g (収率 47%) を得た。

上記の実施例によって製造された物質、および同様の方法を用いて製造された物質の $^1\text{H-NMR}$ ピーク値および融点を第 12 表に示す。

-51-

第12表

化合物 No.	NMR δ (ppm) 溶媒 CDCl_3	融点 ($^{\circ}\text{C}$)
1	2.99(s,6H)、7.1~7.4(m,3H)、	117.0~118.4
23	1.18(s,3H)、1.20(s,3H)、3.05(s,6H)、 3.32(sep,1H)、7.1~7.4(m,4H)、8.71(s,1H)	77.4~80.6
37	3.05(s,6H)、7.2~7.6(m,4H)、8.69(s,1H)	117.8~119.6
39	3.03(s,6H)、7.1~7.4(m,4H)、8.65(s,1H)、 8.01(d,2H)、8.75(s,1H)	101.1~102.9
41	3.03(s,6H)、7.1~7.5(m,4H)、8.63(s,1H)、	139.6~141.6
47	3.02(s,6H)、3.67(s,3H)、6.7~7.5(m,4H)、 8.77(s,1H)、	148.5~151.0
49	2.99(s,6H)、3.74(s,3H)、6.6~7.1(m,4H)、 8.59(s,1H)	74.5~76.1
59	3.01(s,6H)、7.3~7.6(m,4H)、8.59(s,1H)	油状物
61	3.01(s,6H)、7.38,7.61(ABq,1H)、8.63(s,1H)	125.8~127.5
81	3.04(s,6H)、3.85(s,3H)、7.26~7.96(m,4H)、 8.67(s,1H)	131.3~132.8
83	3.00(s,6H)、3.87(s,3H)、7.27,7.99(ABq,4H)、 8.60(s,1H)	127.7~130.0
89	3.06(s,6H)、7.47,8.20(ABq,4H)、8.63(s,1H)	139.4~141.7
91	3.11(s,6H)、7.44~7.79(m,4H)、8.63(s,1H)	135.2~137.6
93	3.08(s,6H)、7.50~7.68(m,4H)、8.72(s,1H)	136.9~139.6
95	3.07(s,6H)、7.43,7.72(ABq,4H)、8.70(s,1H)、	184.9~188.3
101	2.25(s,6H)、3.05(s,6H)、7.03(s,3H)、 8.63(s,1H)	100.1~101.4
124	2.23(s,3H)、3.00(s,6H)、7.12(s,2H) 8.55(s,1H)	96.0~97.3

第12表(続き)

化合物 No.	NMR δ (ppm) 溶媒 CDCl_3	融点 ($^{\circ}\text{C}$)
136	3.02(s,6H)、7.1~7.6(m,3H)、8.63(s,1H)	116.7~119.3
140	3.06(s,6H)、7.2~7.6(m,3H)、8.65(s,1H)、	128.5~130.8
152	3.03(s,6H)、3.67(s,6H)、6.3~7.2(m,3H)、 8.61(s,1H)	156.2~159.5
164	3.07(s,6H)、7.5~7.8(m,3H)、8.71(s,1H)、	109.3~110.8
166	3.08(s,6H)、7.5~7.65(m,2H)、7.80(s,1H)、 8.72(s,1H)	117.6~120.0
192	2.22(s,6H)、2.26(s,3H)、3.08(s,6H)、 6.86(bs,2H)、8.68(s,1H)	113.4~115.7
198	2.24(s,3H)、2.34(s,3H)、3.04(s,6H)、 8.59(s,1H)	131.5~133.5
206	2.44(s,3H)、3.05(s,6H)、7.28(s,2H)、 8.63(s,1H)	149.2~151.6
210	3.06(s,6H)、7.42(s,2H)、8.66(s,1H)	153.6~156.4
212	3.06(s,6H)、7.28(s,2H)、8.64(s,1H)	140.5~142.8
216	3.03(s,6H)、7.33(s,2H)、8.62(s,1H)	149.3~151.2
284	1.34(s,6H)、3.00(s,2H)、3.03(s,6H) 6.5~7.2(m,3H)、8.59(s,1H)	136.7~138.7
294	1.27(s,6H)、3.00(s,6H)、4.19(s,2H) 6.5~7.2(m,3H)、8.58(s,1H)	108.4~111.0

第12表(続き)

化合物 No.	NMR δ (ppm) 溶媒 CDCl_3	融点 ($^{\circ}\text{C}$)
301	3.05(s, 6H)、7.55~7.75(m, 3H)、 8.09~8.17(m, 2H)、8.58(s, 1H)	126.1~128.5
310	2.68(s, 3H)、3.07(s, 6H)、7.34(d, 1H)、7.44(t, 1H)、 7.58(dt, 1H)、8.25(dd, 1H)、8.60(s, 1H)	113.6~114.0
312	2.45(s, 3H)、3.05(s, 6H)、7.42~7.55(m, 2H)、 7.88~7.98(m, 2H)、8.58(s, 1H)	102.1~102.4
314	2.46(s, 3H)、3.06(s, 6H)、7.39(d, 2H)、 8.01(d, 2H)、8.75(s, 1H)	137.6~139.6
337	3.04(s, 6H)、7.48~7.70(m, 3H)、8.38(dd, 1H)、 8.62(s, 1H)	133.0~134.8
339	3.07(s, 6H)、7.54(t, 1H)、7.61~7.70(m, 1H)、 7.97~8.06(m, 1H)、8.07~8.15(m, 1H)、8.61(s, 1H)	
341	3.05(s, 6H)、7.57(d, 2H)、8.06(d, 2H)、8.60(s, 1H)	122.5~124.2
357	3.03(s, 6H)、7.82~7.97(m, 3H)、8.55~8.64(m, 1H)、 8.56(s, 1H)	122.8~124.9
359	3.07(s, 6H)、7.77(t, 1H)、7.96(d, 1H)、 8.34(d, 1H)、8.40(s, 1H)、8.61(s, 1H)	122.5~123.7
361	3.07(s, 6H)、7.87(d, 2H)、8.28(d, 2H)、8.61(s, 1H)	153.6~155.6
363	3.04(s, 6H)、6.50(t, 1H)、7.13~7.90(m, 3H)、 8.25(dd, 1H)、8.56(s, 1H)	105.8~108.0
389	2.95(s, 6H)、8.31(d, 2H)、8.48(d, 2H)、9.46(s, 1H)、 溶媒DMSO	189.5~192.0
492	2.28(s, 3H)、2.68(s, 6H)、3.02(s, 6H)、6.90(s, 2H)、 8.47(s, 1H)	181.0~185.7
506	2.51(s, 3H)、3.05(s, 6H)、7.50(d, 1H)、8.11(d, 1H)、 8.53(s, 1H)	148.0~152.5
540	3.06(s, 6H)、8.07~8.53(m, 2H)、8.55(s, 1H)、 8.88(bs, 1H)	139.4~142.7
610	3.05(s, 6H)、8.09(bs, 1H)、8.57(bs, 1H)、 8.61(s, 1H)	137.5~139.5

次に、本発明の化合物を用いた製剤例の数様態を示す。なお、下記製剤中の「部」は重量基準である。

製剤例 1 (乳剤)

化合物 N o .192	10 部
キシレン	45 部
ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム	7 部
ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル	13 部
ジメチルホルムアミド	25 部

以上を均一に混合溶解して乳剤 100 部を得た。

製剤例 2 (水和剤)

化合物 N o .361	20 部
ケイソウ土	70 部
リグニンスルホン酸カルシウム	5 部
ナフタリンスルホン酸ホルマリン縮合物	5 部

以上を混合粉碎して水和剤 100 部を得た。

製剤例 3 (粒剤)

化合物 N o .192	5 部
ベントナイト	50 部
タルク	42 部
リグニンスルホン酸ソーダ	2 部
ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル	1 部

以上を十分に混合した後、適量の水を加えて混練し、押し出し造粒機を用いて粒剤 100 部を得た。

製剤例 4 (フロアブル剤)

化合物 N o .361	30 部
スルホコハク酸ジ-2-エチルヘキシルエステルナトリウム塩	2 部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル	3 部
消泡剤	1 部
プロピレングリコール	5 部

水

59部

以上を湿式ボールミルで均一に粉碎混合し、フロアブル剤100部を得た。

上述の製剤例に準じて本発明の化合物を用いた殺菌剤がそれぞれ製剤できる。

〔殺菌剤の試験例〕

次に試験例により、本発明殺菌剤による、各種植物病防除効果を具体的に説明する。

本発明の化合物及び殺菌剤は、ブドウのべと病(Plasmopara viticola)、ウリ類のべと病(Pseudoperonospora cubensis)、立枯れ性疫病(Phytophthora melonis)、トマトの灰色疫病(Phytophthora capsici)、疫病(Phytophthora infestans)、アブラナ科野菜のべと病(Peronospora brassicae)、ネギのべと病(Peronospora destructor)、ハウレンソウのべと病(Peronospora spinaciae)、ダイズのべと病(Peronospora manshurica)、ソラマメのべと病(Peronosporaviciae)、タバコの疫病(Phytophthora nicotiana var. nicotiana)、バレイシヨの疫病(Phytophthora infestans)、ホップのべと病(Pseudoperonospora humuli)、パイナップルの疫病(Phytophthora cinnamomi)、ピーマンの疫病(Phytophthora capsici)、イチゴの根腐病(Phytophthora fragariae)、各種作物の立枯れ病(Pythium属菌等による)等の卵菌類により引き起こされる幅広い植物病害に対して優れた防除効果を有している。

なお、下記も試験例における評価は、病菌の接種7日後に下記の基準により発病程度を調査し、発病度及び防除価を下記式により求めた。

区分	発病程度
健	発病が認められない
小	病斑面積が1/3未満
中	1/3～2/3未満
大	2/3以上

-56-

$$\text{発病度(\%)} = \frac{(n^0 \times 0) + (n^1 \times 1) + (n^2 \times 2) + (n^3 \times 3)}{3N} \times 100$$

n^0 : 発病程度「健」の葉数

n^1 : 発病程度「小」の葉数

n^2 : 発病程度「中」の葉数

n^3 : 発病程度「大」の葉数

N : $n^0 + n^1 + n^2 + n^3$

$$\text{防除価(\%)} = \left(1 - \frac{\text{処理区の発病度}}{\text{無処理区の発病度}} \right) \times 100$$

試験結果は下記の評価基準に従い判定した。

評価基準

- A : 防除価が95%以上
- B : " 80~95%未満
- C : " 50~80%未満
- D : " 50%未満

試験例1

キュウリベと病予防効果試験

直径9cmの塩ビポットにキュウリ種子（品種：相模半白）を5粒ずつ播種し、温室内で7日間育成した。子葉が展開したキュウリ幼苗に、製剤例2に準じて調製した水和剤を有効成分濃度が200ppmになるよう水で希釈し、1鉢当たり10ml散布した。散布1日後、キュウリベと病菌（*Pseudoperonospora cubensis*）の孢子懸濁液を噴霧接種し、20℃の温室内に1日保った後温室で発病させた。評価結果を第13表に示す。

-57-

第13表

化合物番号	評価	化合物番号	評価
1	A	301	A
37	A	310	A
41	B	312	A
49	A	314	A
59	A	337	A
61	A	339	A
83	B	341	A
89	B	357	A
101	A	359	A
124	A	361	A
192	A	363	B
206	A	389	D
216	A	492	C
284	B	502	D
294	A	610	B

試験例2

バレイシヨ疫病予防効果試験

バレイシヨ（品種：メイクイン）の葉に、製剤例2に準じて調製した水和剤を有効成分濃度が200ppmになるよう水で希釈し、1鉢当たり10ml散布した。散布1日後、バレイシヨ疫病（*Phytophthora infestans*）の胞子懸濁液を噴霧接種し、17℃の温室内に1日保った後温室で発病させた。評価結果を第14表に示す。

第14表

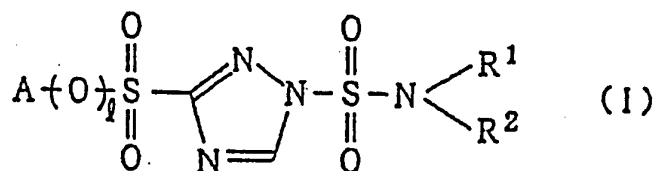
化合物No.	評価
61	A
206	A

(発明の効果)

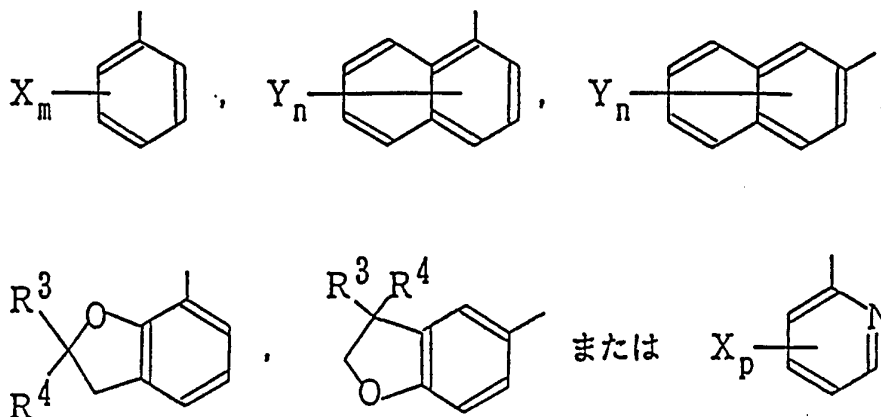
本発明の前記一般式 (I) で表される化合物は、ある特定のアリール基がスルホニル基を介して1-スルファモイル-1,2,4-トリアゾール環と結合した構造有することが特徴であり、その構造的特徴によって該スルファモイルトリアゾール誘導体に優れた殺菌性能が発揮するものと考えられる。

請求の範囲

1. 一般式 (I) :



[式中、 R^1 および R^2 は同一若しくは異なって低級アルキル基を表すか、 R^1 および R^2 が一緒になって、低級アルキル基で置換されてもよい炭素数3～6のアルキレン鎖を表し、 l は0または1の整数を表し、 A は、

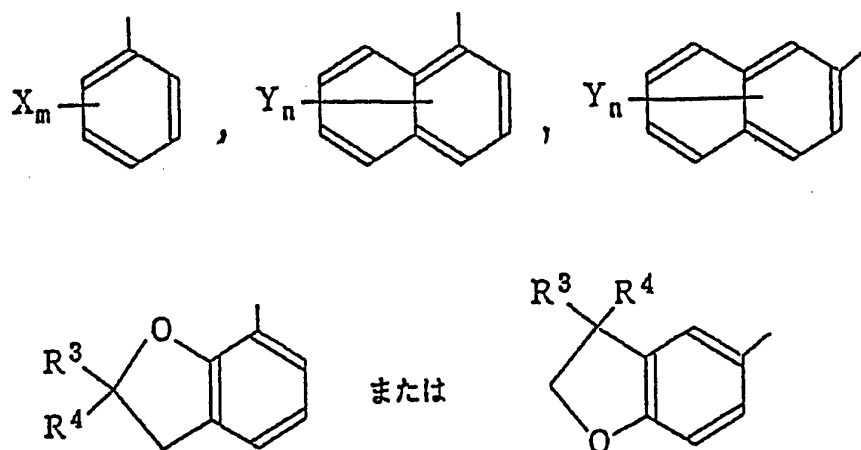


(ここでXは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジルオキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； m は1、2、3、4または5の整数を表し； Y は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； n は1、2、3、4または5の整数を表し； R^3 および R^4 は同一若しくは異な

って、水素原子または低級アルキル基を表し、 p は1、2、3または4の整数を表す)を表す]

で示されるスルファモイルトリアゾール誘導体。

2. 前記一般式(I)において、 l が1であり、且つAが

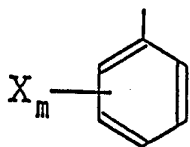


(ここでXは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジルオキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； m は1、2、3、4または5の整数を表し；Yは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； n は1、2、3、4または5の整数を表し； R^3 および R^4 は同一若しくは異なって、水素原子または低級アルキル基を表す)である請求項1記載のスルファモイルトリアゾール誘導体。

3. 前記一般式(I)において、 l が0である請求項1記載のスルファモイルトリアゾール誘導体。

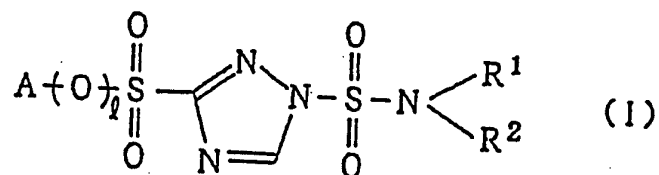
-61-

4. 前記一般式 (I) において、Aが

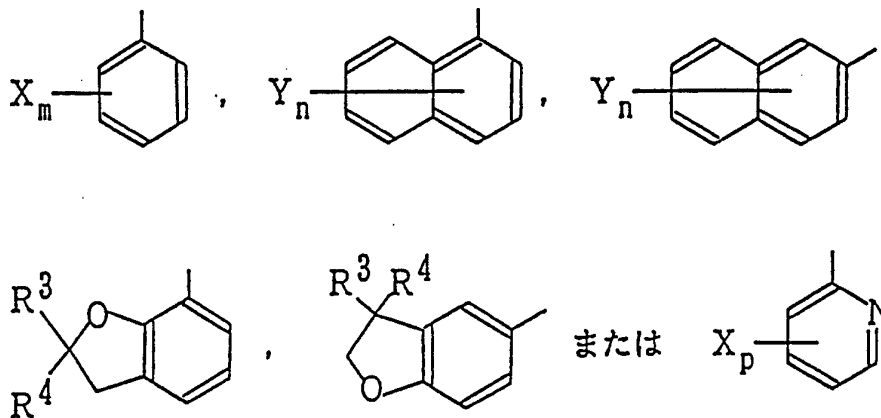


(ここでXは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジルオキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し；mは1、2、3、4または5の整数を表す)である請求項1記載のスルファモイルトリアゾール誘導体。

5. 一般式 (I) :



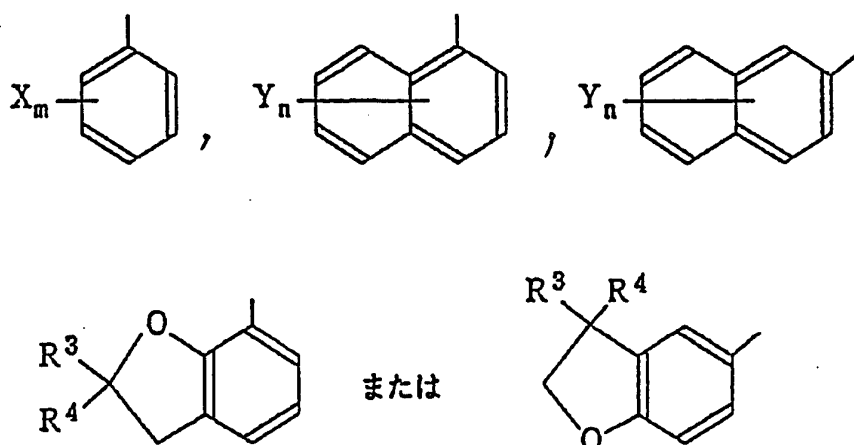
[式中、R¹ およびR² は同一若しくは異なって低級アルキル基を表すか、R¹ およびR² が一緒になって、低級アルキル基で置換されてもよい炭素数3～6のアルキレン鎖を表し、l は0または1の整数を表し、Aは、



(ここでXは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低

級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジルオキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； m は1、2、3、4または5の整数を表し； Y は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； n は1、2、3、4または5の整数を表し； R^3 および R^4 は同一若しくは異なつて、水素原子または低級アルキル基を表し； p は1、2、3または4の整数を表す)を表す]で示されるスルファモイルトリアゾール誘導体を有効成分として含有することを特徴とする殺菌剤。

6. 前記一般式 (I) において、 l が1であり、且つAが

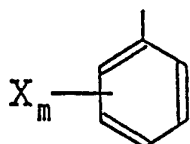


(ここでXは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジルオキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し； m は1、2、3、4または5の整数を表し； Y は水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し；

nは1、2、3、4または5の整数を表し； R^3 および R^4 は同一若しくは異なって、水素原子または低級アルキル基を表す）である請求項5記載の殺菌剤。

7. 前記一般式（I）において、 l が0である請求項5記載の殺菌剤。

8. 前記一般式（I）において、Aが



（ここでXは水素原子、ハロゲン原子、低級アルキル基、低級アルケニル基、低級アルコキシ基、低級ハロアルキル基、低級ハロアルコキシ基、低級アルキルカルボニル基、フェニル基、フェノキシ基、ベンジル基、ベンジロキシ基、ホルミル基、低級アルコキシカルボニル基、ニトロ基、シアノ基またはアセチルアミノ基を表し；mは1、2、3、4または5の整数を表す）である請求項5記載の殺菌剤。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP93/00939

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl⁵ C07D249/12, A01N43/653

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)

Int. Cl⁵ C07D249/08-14, A01N43/647-653, 43/50-52

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

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

CAS ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US, A, 5,091,407 (Imperial Chemical, Ind.), February 25, 1992 (25. 02. 92), Lines 7 to 61, column 1	1-8
A	US, A, 5,045,557 (Shering Agrochemicals, Ltd.), September 3, 1991 (03. 09. 91), Line 6, column 1 to line 62, column 2	1-8
A	US, A, 5,096,915 (Shering Agrochemicals, Ltd.), March 17, 1992 (17. 03. 92), Line 4, column 1 to line 34, column 3	1-8

☒ 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 document 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

September 28, 1993 (28. 09. 93)

Date of mailing of the international search report

October 12, 1993 (12. 10. 93)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl. ⁵ C07D249/12 A01N43/653		
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. ⁵ C07D249/08-14, A01N43/647-653, 43/50-52		
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		
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)		
CAS ONLINE		
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 請求の範囲の番号
A	US, A, 5,091,407 (Imperial Chemical, Ind.) 25. 2月. 1992 (25. 02. 92) 第1欄第7行-第61行	1-8
A	US, A, 5,045,557 (Shering Agrochemicals, Ltd.) 3. 9月. 1991 (03. 09. 91) 第1欄第6行-第2欄第62行	1-8
☒ C欄の続きにも文献が列举されている。 ☐ 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」 先行文献ではあるが、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	国際調査報告の発送日	
28. 09. 93	12.10.93	
名称及びあて先	特許庁審査官 (権限のある職員)	4 C 7 1 8 0
日本国特許庁 (ISA/JP)	主 代 静 義	
郵便番号100	電話番号 03-3581-1101 内線	3453
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		

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 請求の範囲の番号
A	<p>US, A, 5,096,915 (Shering Agrochemicals, Ltd.) 17. 3月. 1992 (17. 03. 92) 第 1 欄 第 4 行 - 第 3 欄 第 3 4 行</p>	1-8