

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **2004161712 A**

(43) Date of publication of application: **10.06.04**

(51) Int. Cl

**C07D275/02**  
**A01N 43/80**

(21) Application number: **2002331736**

(22) Date of filing: **15.11.02**

(71) Applicant: **BAYER CROPSCIENCE AG**

(72) Inventor:  
**KITAGAWA YOSHINORI**  
**MICHAEL ERUGEMEIRAA**  
**SAWADA HARUKO**  
**SHIGYO TAKUTAKA**  
**ASSMANN LUTZ**

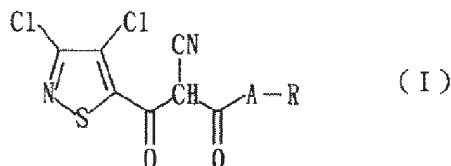
(54) **ISOTHIAZOLES AND DISEASE-CONTROLLING AGENT**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide new compounds exhibiting high effect as a plant-controlling agent and having higher safety.

SOLUTION: The present invention relates to isothiazoles represented by formula (I) [wherein A is an alkylene which may be substituted by a cycloalkyl, or a cycloalkylidene; R is a phenyl which may be substituted (wherein substituent groups are 1 to 5 groups selected from a group consisting of a halogen, an alkyl, an alkenylene, an alkoxy, a phenoxy, an alkylthio, a haloalkyl, a haloalkoxy, a haloalkylthio, phenyl and nitro)].

COPYRIGHT: (C)2004,JPO



(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-161712

(P2004-161712A)

(43) 公開日 平成16年6月10日(2004.6.10)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

C07D 275/02

A01N 43/80

F 1

C O 7 D 275/02

A O 1 N 43/80 1 O 2

テーマコード (参考)

4 C O 3 3

4 H O 1 1

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 17 頁)

(21) 出願番号	特願2002-331736 (P2002-331736)	(71) 出願人	302063961 バイエル・クロツプサイエンス・アクチエ ンゲゼルシャフト ドイツ40789モンハイム・アルフレー ト・ノベル・シユトラーセ50
(22) 出願日	平成14年11月15日 (2002.11.15)	(74) 代理人	100060782 弁理士 小田島 平吉
		(74) 代理人	100074217 弁理士 江角 洋治
		(72) 発明者	北川 芳則 栃木県真岡市荒町1085
		(72) 発明者	ミヒャエル・エルゲメイラー 栃木県小山市駅南町1-5-7
		(72) 発明者	沢田 治子 茨城県結城市小田林943-3

最終頁に続く

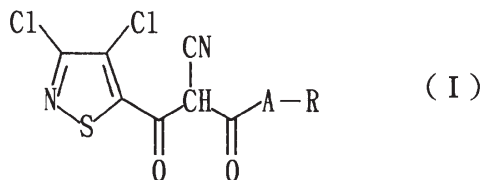
(54) 【発明の名称】 イソチアゾール類および病害防除剤

(57) 【要約】

【課題】 植物防除剤としてより高い効果を示し且つより高い安全性を有する新規化合物を提供すること。

【解決手段】 式

【化1】



10

式中、

Aは場合によりシクロアルキル置換されていてもよいアルキレン、又はシクロアルキリデンを示し、そして

Rは場合により置換されていてもよいフェニル [ここで、置換基はハロゲン、アルキル、アルケニレン、アルコキシ、フェノキシ、アルキルチオ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、ハロアルキルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる1~5個の基である]

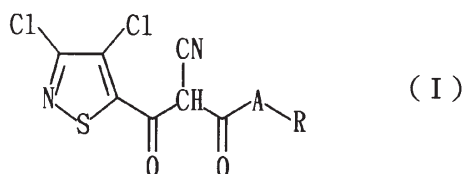
20

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

式

## 【化 1】



10

式中、

A は場合によりシクロアルキル置換されていてもよいアルキレン、又はシクロアルキリデンを示し、そして

R は場合により置換されていてもよいフェニル [ここで、置換基はハロゲン、アルキル、アルケニレン、アルコキシ、フェノキシ、アルキルチオ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、ハロアルキルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる 1～5 個の基である] を示す、

で表わされるイソチアゾール類。

## 【請求項 2】

20

A が場合により C<sub>3</sub> - 8 シクロアルキル置換されていてもよい C<sub>1</sub> - 6 アルキレン、又は C<sub>3</sub> - 8 シクロアルキリデンを示し、そして

R が場合により置換されていてもよいフェニル [ここで、置換基はフルオル、クロル、ブロム、ヨード、C<sub>1</sub> - 6 アルキル、C<sub>4</sub> - 6 アルケニレン、C<sub>1</sub> - 6 アルコキシ、フェノキシ、C<sub>1</sub> - 6 アルキルチオ、C<sub>1</sub> - 6 ハロアルキル、C<sub>1</sub> - 6 ハロアルコキシ、C<sub>1</sub> - 6 ハロアルキルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる 1～3 個の基である] を示す、

請求項 1 記載の化合物。

## 【請求項 3】

30

A がメチレン、エチリデン、プロピリデン、イソプロピリデン、イソプロピルメチレン、ジエチルメチレン、シクロペンチルメチレン、シクロプロピリデン、シクロペンチリデン又はシクロヘキシリデンを示し、そして

R が場合により置換されていてもよいフェニル [ここで、置換基はフルオル、クロル、ブロム、ヨード、メチル、i s o - プロピル、t e r t - ブチル、ブタジエニレン、メトキシ、フェノキシ、メチルチオ、トリフルオロメチル、トリフルオロメトキシ、トリフルオロメチルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる 1 もしくは 2 個の基である] を示す、

請求項 1 記載の化合物。

## 【請求項 4】

請求項 1～3 のいずれかに記載の化合物を有効成分として含有することを特徴とする農薬

40

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、新規なイソチアゾール類、その製造方法及びその植物病害防除剤としての利用に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術及び課題】

ある種のイソチアゾール類が植物病害防除剤としての作用を示すことは既に知られている (例えば、特開平 5 - 5 9 0 2 4 号公報、特開平 8 - 2 7 7 2 7 7 号公報及び特開 2 0 0

50

1-294581号公報等参照)。

【0003】

しかしながら、従来のイソチアゾール類は植物病害防除剤としての効果及び／又は安全性の点で十分に満足できるものではない。

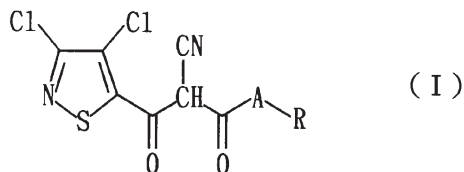
【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、植物病害防除剤としてより高い効果を示し且つより高い安全性を有する新規な化合物を創製すべく鋭意研究を行なった結果、今回、優れた生物活性を持つ下記式(I)で表される新規なイソチアゾール類を見出した。

【0005】

【化2】



10

【0006】

式中、

Aは場合によりシクロアルキル置換されていてもよいアルキレン、又はシクロアルキリデンを示し、そして

Rは場合により置換されていてもよいフェニル〔ここで、置換基はハロゲン、アルキル、アルケニレン、アルコキシ、フェノキシ、アルキルチオ、ハロアルキル、ハロアルコキシ、ハロアルキルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる1～5個の基である〕を示す。

【0007】

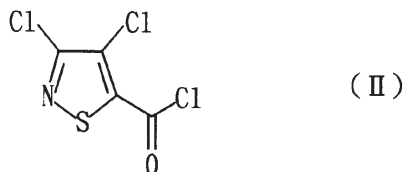
本発明の上記式(I)の化合物は、例えば、下記の製法(a)によって合成することができる：

製法(a)：

式

【0008】

【化3】



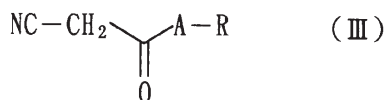
40

【0009】

で表わされる3,4-ジクロロ-5-イソチアゾールカルボニルクロライドを式

【0010】

【化4】



【0011】

50

式中、AおよびRは前記と同義である、  
で表される化合物と反応させる方法。

【0012】

本発明により提供される式(I)のイソチアゾール類は、驚くべきことに、植物病原菌に対し直接作用し防除効果を示すと共に、植物体そのものに植物病原菌に対する抵抗性を誘導する作用をも示し、その結果、植物体の植物病害に対する予防効果を発現する。

【0013】

従って、本発明の化合物は植物病害防除剤(予防剤)として有用である。

【0014】

本明細書において、

「ハロゲン」ならびに「ハロアルキル」、「ハロアルコキシ」及び「ハロアルキルチオ」におけるハロゲンは、フルオル、クロル、ブロム又はヨードを示し、好ましくはフルオル、クロル又はブロムである。

【0015】

「アルキル」は、直鎖状又は分岐状であることができ、例えば、メチル、エチル、*n*-もしくは*i*s*o*-プロピル、*n*-、*i*s*o*-、*sec*-もしくは*tert*-ブチル、*n*-、*i*s*o*-、*neo*-、*tert*-ペンチル、2-メチルブチル、*n*-ヘキシル等が挙げられる。

【0016】

「シクロアルキル」は、例えば、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、シクロオクチル等を包含する。

【0017】

「アルキレン」は、直鎖状又は分岐鎖状であることができ、例えば、メチレン、エチリデン、エチレン、プロピリデン、イソプロピリデン、メチルエチレン(プロピレン)、トリメチレン、エチルエチレン、メチルトリメチレン、2-メチルトリメチレン、テトラメチレン、イソプロピルメチレン、ジエチルメチレン等が包含される。

【0018】

「シクロアルキリデン」は、例えば、シクロプロピリデン、シクロペンチリデン、シクロヘキシリデン、シクロヘプチリデン、シクロオクチリデン等を包含する。

【0019】

「アルケニレン」は、直鎖状もしくは分岐鎖状であり且つ鎖中に少なくとも1個の二重結合を含有することができ、例えば、ブタジエニレン、1-メチルブタジエニレン、2-メチルブタジエニレン、1-エチルブタジエニレン、2-エチルブタジエニレン等が挙げられる。

【0020】

「アルコキシ」は、アルキル部分が上記の意味を有するアルキル-O-基を示し、例えば、C<sub>1-6</sub>アルコキシであることができ、具体的には、メトキシ、エトキシ、*n*-もしくは*i*s*o*-プロポキシ、*n*-、*i*s*o*-、*sec*-もしくは*tert*-ブトキシ、*n*-ペンチルオキシ、*n*-ヘキシルオキシ等が挙げられる。

【0021】

「アルキルチオ」は、アルキル部分が上記の意味を有するアルキル-S-基を示し、例えば、メチルチオ、エチルチオ、*n*-もしくは*i*s*o*-プロピルチオ、*n*-、*i*s*o*-、*sec*-、*tert*-ブチルチオ、*n*-ペンチルチオ、*n*-ヘキシルチオ等が挙げられる。

【0022】

「ハロアルキル」は、少なくとも1つの水素がハロゲンで置換された直鎖状又は分岐状のアルキルを示し、例えば、1~9個のフルオル及び/又はクロルにより置換されたC<sub>1-6</sub>アルキルを例示することができ、その具体例としては、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル、2-フルオロエチル、2-クロロエチル、2,2,2-トリフルオロエチル、1,1,2,2-テトラフルオロエチル、1,1,2,2,2-ペンタフルオロエチル、2-クロロ-1,1,2-トリフルオロエチル、3-フルオロプロピル、3-クロロプロ

10

20

30

40

50

ピル、2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロプロピル、1, 2, 2, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロピル、パーフルオロブチル、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 6-ノナフルオロヘキシル等が挙げられる。

【0023】

「ハロアルコキシ」は、ハロアルキル部分が前記「ハロアルキル」と同義であるハロアルキル-O-基を示し、具体的には、例えば、ジフルオロメトキシ、トリフルオロメトキシ、2-フルオロエトキシ、2-クロロエトキシ、2-ブロモエトキシ、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ、3-クロロプロポキシ等が挙げられる。

【0024】

「ハロアルキルチオ」はハロアルキル部分が前記「ハロアルキル」と同義であるハロアルキル-S-基を示し、具体的には、例えば、ジフルオロメチルチオ、トリフルオロメチルチオ、2-フルオロエチルチオ、3-クロロエチルチオ、2-ブロモエチルチオ、2, 2, 2-トリフルオロエチルチオ、3-クロロプロピルチオ等が挙げられる。

【0025】

前記式(I)の化合物において、好ましくは、

Aが場合によりC<sub>3</sub>-<sub>8</sub>シクロアルキル置換されていてもよいC<sub>1</sub>-<sub>6</sub>アルキレン、又はC<sub>3</sub>-<sub>8</sub>シクロアルキリデンを示し、そして

Rが場合により置換されていてもよいフェニル[ここで、置換基はフルオル、クロル、ブロム、ヨード、C<sub>1</sub>-<sub>6</sub>アルキル、C<sub>4</sub>-<sub>6</sub>アルケニレン、C<sub>1</sub>-<sub>6</sub>アルコキシ、フェノキシ、C<sub>1</sub>-<sub>6</sub>アルキルチオ、C<sub>1</sub>-<sub>6</sub>ハロアルキル、C<sub>1</sub>-<sub>6</sub>ハロアルコキシ、C<sub>1</sub>-<sub>6</sub>ハロアルキルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる1~3個の基である]を示す。

【0026】

前記式(I)の化合物において、特に好ましくは、

Aがメチレン、エチリデン、プロピリデン、イソプロピリデン、イソプロピルメチレン、ジエチルメチレン、シクロペンチルメチレン、シクロプロピリデン、シクロペンチリデン又はシクロヘキシリデンを示し、そして

Rが場合により置換されていてもよいフェニル[ここで、置換基はフルオル、クロル、ブロム、ヨード、メチル、i s o-プロピル、t e r t-ブチル、ブタジエニレン、メトキシ、フェノキシ、メチルチオ、トリフルオロメチル、トリフルオロメトキシ、トリフルオロメチルチオ、フェニル及びニトロからなる群より選ばれる1もしくは2個の基である]を示す。

【0027】

前記製法(a)は出発原料として、例えば、3, 4-ジクロロ-5-イソチアゾールカルボニル クロライドと4-(4-クロロフェニル)-3-オキソブタンニトリルを用いる場合、下記の反応式で表わすことができる。

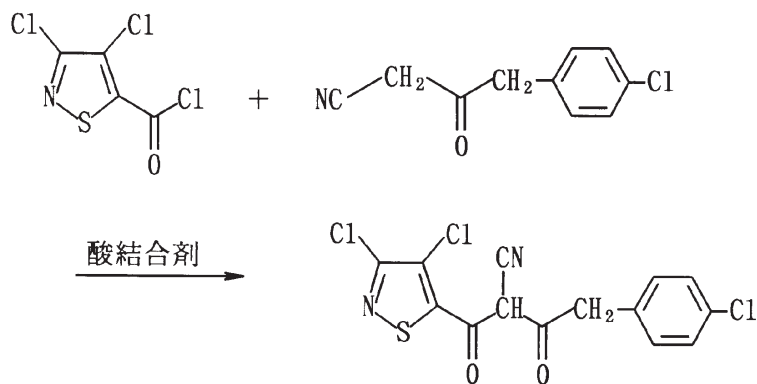
【0028】

【化5】

10

20

30



10

## 【0029】

上記製法 (a) において、出発原料として用いられる前記式 (I I) の化合物、すなわち、3, 4-ジクロロ-5-イソチアゾールカルボニル クロライドは既知の化合物であり、例えば、特開平5-59024号公報に記載の方法にしたがって製造することができる。

## 【0030】

上記製法 (a) において、式 (I I) の化合物と反応せしめられる式 (I I I) の化合物は既知の化合物であり、例えば、Journal of Chemical Researches (Miniprint), p1373-1381 (1997)、Journal of Medicinal Chemistry, Vol. 42, p3629-3635 (1999) 等に記載の方法に従って製造することができる。

20

## 【0031】

製法 (a) において出発原料として用いられる式 (I I I) の化合物の代表例としては下記のを例示することができる。

## 【0032】

3-オキソ-4-フェニルブタンニトリル、  
 4-シクロペンチル-3-オキソ-4-フェニルブタンニトリル、  
 4-メチル-3-オキソ-4-フェニルペンタンニトリル、  
 3-オキソ-4-フェニルヘキサンニトリル、  
 4-(4-クロロフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-(2, 4-ジクロロフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-エチル-3-オキソ-4-フェニルヘキサンニトリル、  
 3-オキソ-4-(4-ピフェニル)ブタンニトリル、  
 4-(4-トリフルオロメチルフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-(3, 5-ビストリフルオロメチルフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-(2-メトキシフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-(4-ニトロフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-(4-トリフルオロメチルチオフェニル)-3-オキソブタンニトリル、  
 4-(1-ナフチル)-3-オキソブタンニトリル、  
 3-オキソ-4-(3-トリル)ブタンニトリル等。

30

40

## 【0033】

上記製法 (a) の反応は適当な希釈剤中で実施することができ、その際に使用される希釈剤の例としては、場合によっては塩素化されてもよい脂肪族、環脂肪族及び芳香族炭化水素類、例えば、ペンタン、ヘキサン、シクロヘキサン、石油エーテル、リグロイン、ベンゼン、トルエン、キシレン、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、クロルベンゼン、ジクロロベンゼン等；エーテル類、例えば、エチルエーテル、メチルエチルエーテル、イソプロピルエーテル、ブチルエーテル、ジオキサン、ジメ

50

トキシエタン (DME)、テトラヒドロフラン (THF)、ジエチレングリコールジメチルエーテル (DGM) 等；アルコール類、例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール等；酸アミド類、例えば、ジメチルホルムアミド (DMF)、ジメチルアセトアミド (DMA)、N-メチルピロリドン、1, 3-ジメチルー2-イミダゾリジノン、ヘキサメチルフォスフォリクトリアミド (HMPA) 等；スルホン、スルホキシド類、例えば、ジメチルスルホキシド (DMSO)、スルホラン等；塩基、例えば、ピリジン等を挙げることができる。

#### 【0034】

製法 (a) は酸結合剤の存在下で行うことができ、該酸結合剤としては、無機塩基として、アルカリ金属又はアルカリ土類金属の水素化物、水酸化物、炭酸塩又は重炭酸塩等、例えば、水素化ナトリウム、水素化リチウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等；無機アルカリ金属アミド類、例えば、リチウムアミド、ナトリウムアミド、カリウムアミド等；有機塩基として、アルコラート、第3級アミン類、ジアルキルアミノアニリン類及びピリジン類、例えば、トリエチルアミン、1, 1, 4, 4-テトラメチルエチレンジアミン (TMEDA)、N, N-ジメチルアニリン、N, N-ジエチルアニリン、ピリジン、4-ジメチルアミノピリジン (DMAP)、1, 4-ジアザビシクロ [2, 2, 2] オクタン (DABCO) 及び 1, 8-ジアザビシクロ [5, 4, 0] ウンデカ-7-エン (DBU) 等；有機リチウム化合物、例えば、メチルリチウム、*n*-ブチルリチウム、*sec*-ブチルリチウム、*tert*-ブチルリチウム、フェニルリチウム、ジメチルカップーリチウム、リチウムジイソプロピルアミド、リチウムシクロヘキシルイソプロピルアミド、リチウムジシクロヘキシルアミド、*n*-ブチルリチウム・DABCO、*n*-ブチルリチウム・DBU、*n*-ブチルリチウム・TMEDA等を挙げることができる。

10

20

#### 【0035】

製法 (a) は実質的に広い温度範囲内において実施することができる。

#### 【0036】

一般には、約-78~約150℃、好ましくは約-78~約50℃の間で実施することができる。また、該反応は常圧下で行うことが望ましいが、場合によっては加圧下または減圧下で操作することもできる。

30

#### 【0037】

製法 (a) を実施するにあたっては、例えば、3, 4-ジクロロ-5-イソチアゾールカルボニルクロリド1モルに対し、希釈剤例えばテトラヒドロフラン中で、1~1.1モル量の式 (III) の化合物を、2~2.2モル量の水素化ナトリウム存在下で反応させることによって、式 (I) の目的化合物を得ることができる。

#### 【0038】

本発明の式 (I) の活性化合物は、植物病原菌の感染防除作用を示し、また、強力な殺菌作用を示し、実際に、望ましからざる植物病原菌から植物を保護するため、又は望ましからざる植物病原菌を防除するために使用することができる。かくして、本発明の式 (I) の活性化合物は、下記の植物病原菌の防除剤として有利に使用することができる：ネコブカビ類 (Plasmodiophoromycetes)、卵菌類 (Oomycetes)、接合菌類 (Zygomycetes)、子囊菌類 (Ascomycetes)、担子菌類 (Basidiomycetes) 及び不完全菌類 (Deuteromycetes)。

40

#### 【0039】

また、本発明の式 (I) の化合物は、プロテオバクテリア (Proteobacteria) 及びグラム陽性細菌 (Gram-positive group) に属する各種の細菌による植物の病害を防ぐためにも使用することができる。

#### 【0040】

本発明の式 (I) の活性化合物は、また、キュウリうどんこ病 (Sphaerotheca

50



a f u l i g i n e a) 等に対し植物病害防除作用を示し、また、イネいもち病 ( P y r i c u l a r i a o r y z a e ) 等の植物病原菌の感染に対する寄主の抵抗性を誘導する作用も示し、結果的に植物病害を防除する効果を現す。

【 0 0 4 1 】

本発明の式 ( I ) の活性化合物は、植物病原菌から感染を防ぐのに必要な活性化合物の濃度において、植物体に対し良好な親和性を示すため、使用に際しては、植物体の地上部に対しての薬剤処理、台木及び種子に対しての薬剤処理、並びに土壌処理が可能である。

【 0 0 4 2 】

また、本発明の化合物は温血動物に対して低毒性であって、農薬として安全に使用することができる。

10

【 0 0 4 3 】

本発明の式 ( I ) の活性化合物は、農薬として使用する場合、通常の製剤形態に製剤化することができる。製剤形態としては、例えば、液剤、水和剤、エマルジョン、懸濁剤、粉剤、泡剤、ペースト、錠剤、粒剤、エアゾール、活性化合物浸潤-天然及び合成物、マイクロカプセル、種子用被覆剤、U L V [ コールドミスト ( c o l d m i s t ) 、ウォームミスト ( w a r m m i s t ) ] 等を挙げることができる。

【 0 0 4 4 】

これらの製剤はそれ自体既知の方法で製造することができる。例えば、活性化合物を、展開剤、即ち、液体又は固体の希釈剤又は担体、並びに場合によっては界面活性剤、即ち、乳化剤及び/又は分散剤及び/又は泡剤形成剤と混合することによって製造することができる。

20

【 0 0 4 5 】

液体の希釈剤又は担体としては、一般には、芳香族炭化水素類 (例えば、キシレン、トルエン、アルキルナフタレン等)、クロル化芳香族又はクロル化脂肪族炭化水素類 (例えば、クロロベンゼン類、塩化エチレン類、塩化メチレン等)、脂肪族炭化水素類 [例えば、シクロヘキサン等、パラフィン類 (例えば鉱油留分等)]、アルコール類 (例えば、ブタノール、グリコール等) 及びそれらのエーテル、エステル等、ケトン類 (例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等)、強極性溶媒 (例えば、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等)、水などを挙げることができる。展開剤として水を用いる場合には、例えば、有機溶媒を補助溶媒として使用することができる。

30

【 0 0 4 6 】

固体の希釈剤又は担体としては、例えば、粉碎天然鉱物 (例えば、カオリン、クレイ、タルク、チョーク、石英、アタパルガイド、モンモリロナイト、珪藻土等)、粉碎合成鉱物 (例えば、高分散ケイ酸、アルミナ、ケイ酸塩等)などを挙げることができる。

【 0 0 4 7 】

粒剤のための固体担体としては、例えば、粉碎且つ分別された岩石 (例えば、方解石、大理石、軽石、海泡石、白雲石等)、無機及び有機物粉の合成粒、有機物質 (例えば、おがくず、ココヤシの実のから、とうもろこしの穂軸、タバコの茎等)の細粒体等を挙げることができる。

40

【 0 0 4 8 】

乳化剤及び/又は泡剤としては、例えば、非イオン及び陰イオン乳化剤 [例えば、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸アルコールエーテル (例えば、アルキルアリアルポリグリコールエーテル、アルキルスルホン酸塩、アルキル硫酸塩、アリアルスルホン酸塩等)]、アルブミン加水分解生成物等を挙げることができる。

【 0 0 4 9 】

分散剤としては、例えば、リグニンサルファイト廃液、メチルセルロース等が包含される。

【 0 0 5 0 】

固着剤も製剤 (粉剤、粒剤、乳剤) に使用することができ、その際に使用しうる固着剤と

50

しては、例えば、カルボキシメチルセルロース、天然及び合成ポリマー（例えば、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、ポリビニルアセテート等）などを挙げるができる。

【0051】

着色剤を使用することもでき、該着色剤としては、例えば、無機顔料（例えば酸化鉄、酸化チタン、プルシアンブルー等）、アリザリン染料、アゾ染料又は金属フタロシアニン染料のような有機染料、更に、鉄、マンガン、ボロン、銅、コバルト、モリブデン、亜鉛及びそれら金属の塩のような微量元素を挙げるができる。

【0052】

該製剤は、一般には、本発明の式（I）の活性化合物を0.1～95重量%、好ましくは0.5～90重量%の範囲内の濃度で含有することができる。

10

【0053】

本発明の式（I）の活性化合物には、上記製剤又はさまざまな使用形態において、他の既知の活性化合物、例えば、殺菌剤（殺かび剤、殺細菌剤、抗ウイルス剤、植物抵抗性誘導剤）、殺虫剤、殺ダニ剤、殺センチュウ剤、除草剤、鳥類忌避剤、生長調整剤、肥料及び／又は土壌改良剤等を共存させることもできる。

【0054】

本発明の式（I）の活性化合物は、そのまま直接施用するか、又は散布用調製液、乳剤、懸濁剤、粉剤、錠剤、ペースト、マイクロカプセル、粒剤等の形態で施用するか、又は更に希釈して調製された使用形態で施用することができる。そして該活性化合物は、通常の方法、例えば、液剤散布（watering）、浸漬、噴霧（spraying、atomizing、mistting）、灌注、懸濁形成、塗布、散粉、散布、粉衣、湿衣、湿潤被覆、糊状被覆、羽衣被覆等の方法で施用することができる。植物体の各部分进行处理する場合の実際の使用形態における式（I）の活性化合物の濃度は、実質的範囲内で変えることができるが、一般的には0.0001～1重量%、好ましくは0.001～0.5重量%の範囲内とすることができる。

20

【0055】

種子処理に際しては、式（I）の活性化合物を種子1kg当たり、一般に0.1～10g、好ましくは1～5gの割合で使用することができる。

【0056】

土壌処理に際しては、作用点に対し、一般に0.00001～0.1重量%、特に0.0001～0.02重量%の範囲内の濃度の式（I）の活性化合物を使用することができる。

30

【0057】

次に、実施例により本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は実施例のみに限定されるべきものではない。

【0058】

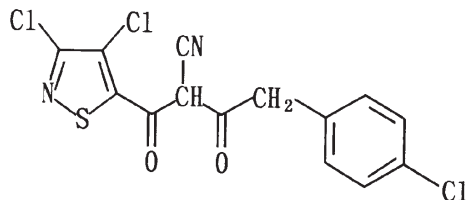
【実施例】

合成例1

【0059】

【化6】

40



【0060】

60%水素化ナトリウム（0.4g）のテトラヒドロフラン（40ml）懸濁液に4-（ 50

4-クロロフェニル)-3-オキソブタンニトリル(1.0 g)を室温下で少量ずつ加え、水素発生が止むまで攪拌する。この溶液に3,4-ジクロロイソチアゾール-5-カルボン酸クロリド(1.1 g)のテトラヒドロフラン(20 ml)溶液を氷冷下で滴下した。滴下終了後、反応液を室温下で一晩攪拌した後、反応液を氷水に注ぎ、6 N 塩酸で酸性にした。析出した固体を濾取し、水、次いでn-ヘキサンで洗浄して4-(4-クロロフェニル)-2-[(3,4-ジクロロ-5-イソチアゾリルカルボニル)]-オキソブタンニトリル(1.8 g)を得た。

mp 132-142°C

上記合成例1と同様にして得られる下記式(Ia)の化合物を、合成例1で合成した化合物と共に、下記第1表に示す。

10

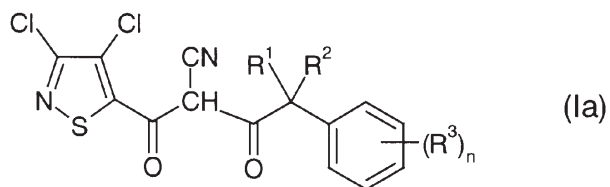
【0061】

なお、下記式(Ia)は、本発明化合物の具体的例示のために本発明式(I)に代わって第1表において用いるものであり、式(I)に包含されるものである。

【0062】

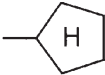
【表1】

第1表



化合物

10


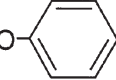
化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(R <sup>3</sup> ) <sub>n</sub>	
Ia-1	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	
Ia-2	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	57-59
Ia-3	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	61-64
Ia-4	H		H	
Ia-5	H	H	H	123-127
Ia-6	H	H	H	
Ia-7	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -iso	H	
Ia-8	H	H	4-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -tert	
Ia-9	H	H	4-SCH <sub>3</sub>	
Ia-10	H	H	4-SCF <sub>3</sub>	149-153
Ia-11	H	H	4-OCH <sub>3</sub>	
Ia-12	H	H	4-OCF <sub>3</sub>	149-151
Ia-13	H	H	4-NO <sub>2</sub>	30
Ia-14	H	H	4-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -iso	
Ia-15	H	H	4-I	
Ia-16	H	H	4-F	
Ia-17	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	4-Cl	
Ia-18	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	4-Cl	101-104
Ia-19	H	CH <sub>3</sub>	4-Cl	
Ia-20	H	H	4-Cl	138-142

40

【 0 0 6 3 】

【 表 2 】

第1表 (続き)

化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(R <sup>3</sup> ) <sub>n</sub>	
Ia-21	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -iso	4-Cl	
Ia-22	H	H	4-CH <sub>3</sub>	10
Ia-23	H	H	4-CF <sub>3</sub>	
Ia-24	H	H	4- 	
Ia-25	H	H	4-Br	
Ia-26	H	H	3-OCH <sub>3</sub>	
Ia-27	H	H	3-OCF <sub>3</sub>	110-113
Ia-28	H	H	3- 	20
Ia-29	H	H	3-F	
Ia-30	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	3-Cl	226-232
Ia-31	H	H	3-Cl	90-92
Ia-32	H	H	3-CH <sub>3</sub>	
Ia-33	H	H	3-CF <sub>3</sub>	
Ia-34	H	H	3-Br	
Ia-35	H	H	3,5-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	
Ia-36	H	H	3,5-(CF <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	110-116
Ia-37	H	H	3,4-Cl <sub>2</sub>	100-105
Ia-38	H	H	3,4-CH=CH-CH=CH-	
Ia-39	H	H	2-OCH <sub>3</sub>	91-93
Ia-40	H	H	2-I	

【 0 0 6 4 】

【 表 3 】

第1表 (続き)

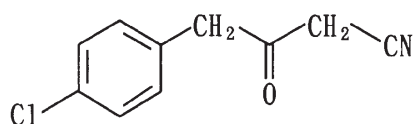
化合物 番号	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	(R <sup>3</sup> ) <sub>n</sub>		
Ia-41	H	H	2-F	133-140	
Ia-42	H	H	2-Cl,4-F		10
Ia-43	H	H	2-Cl	123-127	
Ia-44	H	H	2-CH <sub>3</sub>		
Ia-45	H	H	2-CF <sub>3</sub>		
Ia-46	H	H	2-Br		
Ia-47	H	H	2,6-F <sub>2</sub>		
Ia-48	H	H	2,6-Cl <sub>2</sub>		
Ia-49	H	H	2,5-F <sub>2</sub>		
Ia-50	H	H	2,5-Cl <sub>2</sub>		
Ia-51	H	H	2,5-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>		20
Ia-52	H	H	2,4-F <sub>2</sub>		
Ia-53	H	H	2,4-Cl <sub>2</sub>	126-131	
Ia-54	H	H	2,3-F <sub>2</sub>		
Ia-55	H	H	2,3-Cl <sub>2</sub>		
Ia-56	H	H	2,3-CH=CH-CH=CH-	129-134	
Ia-57	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -		H		
Ia-58	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -		H		
Ia-59	-(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> -		H		30
Ia-60	-(CH <sub>2</sub> ) <sub>5</sub> -		H		

【0065】

合成例2 (原料の製造)

【0066】

【化7】



40

【0067】

p-クロロフェニル酢酸 エチル (10.0 g) とアセトニトリル (4 ml) のテトラヒドロフラン溶液 (100 ml) に60%水素化ナトリウム (3.0 g) を加え、水素発生が止むまで (1.5時間) 室温下で攪拌し、さらに5時間加熱還流した。室温まで冷却した反応液を水に注ぎ、含まれるテトラヒドロフランを減圧下に留去し、得られた水溶液をn-ヘキサンで洗浄した。洗浄した水層を6N塩酸に注いで酸性にし、析出した粗結晶を

50

濾取、水洗し、*n*-ヘキサンで洗って乾燥した。酢酸エチル-*n*-ヘキサンの混合溶液で再結晶して4-(4-クロロフェニル)-3-オキソブタンニトリル(6.7g)を得た。

IR(KBr): 2280 cm<sup>-1</sup>, 1732 cm<sup>-1</sup>。

試験例1: イネいもち病に対する茎葉散布効力試験

供試薬剤の調製

活性化化合物: 30~40重量部

担体: 珪藻土とカオリンとの混合物(1:5) 55重量部~65重量部

乳化剤: ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル 5重量部

上記量の活性化化合物、担体及び乳化剤を粉碎混合して水和剤を調製し、その所定薬量を水で希釈して試験に供する。 10

試験方法

水稲(品種: コシヒカリ)を直径6cmのプラスチックポットに栽培し、その1.5~2葉期に、予め調製した活性化化合物の所定濃度希釈液を3ポット当たり20ml散布した。散布5日後、人工培養したイネいもち病菌(*Pyricularia oryzae*)胞子の懸濁液を接種源として噴霧接種(1回)し、25℃、相対湿度100%に保ち感染させた。接種7日後、ポット当たりの罹病度を下記基準により類別評価し、更に防除価(%)を求めた。また、薬害も同時に調査した。本試験は1区3ポットの結果の平均である。

【0068】

なお、罹病度の評価及び防除価の算出方法は試験例1~3に共通である。 20

【0069】

罹病度                      病斑面積歩合(%)

0	0
0.5	2未満
1	2~5未満
2	5~10未満
3	10~20未満
4	20~40未満
5	40以上

防除価(%) = (1 - {処理区の罹病度 ÷ 無処理区の罹病度}) × 100 30

試験結果

代表例としての化合物番号Ia-3、Ia-5、Ia-12、Ia-36、Ia-37、Ia-41、Ia-43、Ia-53及びIa-56の化合物は、薬剤濃度(500ppm)において80%以上の防除価を示した。なお、薬害は見られなかった。

試験例2: イネいもち病に対する水面施用効力試験

試験方法

直径6cmのプラスチックポットで栽培した1.5葉期の水稲(品種: コシヒカリ)を、一定量の水に入ったプラスチックカップ(直径10cm)に入れて湛水状態にした。これに上記試験例1と同様にして調製した活性化化合物の所定濃度希釈液を1ポット当たり5mlの割合でピペットで水面に滴下した。薬理処理7日後、人工培養したイネいもち病菌(*Pyricularia oryzae*)胞子の懸濁液を接種源として噴霧接種(1回)し、25℃、相対湿度100%に保ち感染させた。接種7日後、ポット当たりの罹病度を類別評価し、更に防除価(%)を求めた。また、薬害も同時に調査した。本試験は1区3ポットの結果の平均である。 40

試験結果

代表例としての化合物番号Ia-20、Ia-31及びIa-43の化合物は、薬剤濃度(8kg/ha)において80%以上の防除価を示した。なお、薬害は見られなかった。

試験例3: イネいもち病に対する種子処理効力試験

試験方法

水稲(品種: コシヒカリ)の種子を、上記試験例1と同様にして調製した活性化化合物の所 50

定濃度希釈液（150粒当たり5ml）に20℃、5日間浸漬した。浸漬後、風乾した種子を直径9cmのプラスチックポット2鉢に播種し、加温育苗器（32℃）に3日間入れて出芽させた。これを更に2週間、2～2.5葉期になるまで栽培したものに、人工培養したイネいもち病菌（*Pyricularia oryzae*）胞子の懸濁液を噴霧接種（1回）し、25℃、相対湿度100%に保ち感染させた。接種7日後、ポット当たりの罹病度を類別評価し、更に防除価（%）を求めた。また、薬害も同時に調査した。本試験は1区3ポットの結果の平均である。

#### 試験結果

代表例としての化合物番号Ia-10、Ia-31、Ia-43及びIa-53の化合物は、薬剤濃度（500ppm）において80%以上の防除価を示した。なお、薬害は見られなかった。

10

#### 試験例4：キュウリうどんこ病防除試験

##### 供試薬剤の調製

供試化合物： 30部

有機溶剤（アセトン）： 55部

乳化剤：ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル： 8部

アルキルベンゼンスルホン酸カルシウム： 7部

上記成分からなる乳剤の所定薬量を水で希釈して試験に供する。

##### 試験方法：

9cm素焼鉢で栽培した2葉期のキュウリ（品種：相模半白）に上記乳剤形態の供試化合物懸濁液をスプレーガンを用いて散布した。散布1日後、病原菌（*Sphaerotheca fuliginea*）の胞子液を噴霧接種し、23℃の恒温室内に放置した後、10日後に病斑面積歩合により罹病度を求め、防除効果を算出した。

20

【0070】

罹病度	病斑面積歩合（%）
0	0
0.5	2未満
1	2～5未満
2	5～15未満
3	15～30未満
4	30～50未満
5	50以上

0

0.5

1

2

3

4

5

0

2未満

2～5未満

5～15未満

15～30未満

30～50未満

50以上

30

【0071】

【数1】

$$\text{防除効果（\%）} = \frac{\text{無処理区の罹病度} - \text{処理区の罹病度}}{\text{無処理区の罹病度}} \times 100$$

【0072】

#### 試験結果

代表例としての化合物番号Ia-5、Ia-12、Ia-18、Ia-39、Ia-43、及びIa-56の化合物は、薬剤濃度（500ppm）において80%以上の防除価を示した。なお、薬害は見られなかった。

40

#### 製剤例1（粒剤）

本発明化合物No. Ia-31（10部）、ベントナイト（モンモリロナイト）（30部）、タルク（滑石）（58部）及びリグニンスルホン酸塩（2部）の混合物に、水（25部）を加え、良く捏化し、押し出し式造粒機により、10～40メッシュの粒状とし、40～50℃で乾燥して粒剤とする。

#### 製剤例2（粒剤）

50



0.2～2mmに粒度分布を有する粘土鉱物粒（95部）を回転混合機に入れ、回転下、液体希釈剤とともに本発明化合物No. Ia-43（5部）を噴霧し均等に湿らせた後、40～50℃で乾燥し粒剤とする。

製剤例3（乳剤）

本発明化合物No. Ia-18（30部）、キシレン（5部）、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル（8部）及びアルキルベンゼンスルホン酸カルシウム（7部）を混合攪拌して乳剤とする。

製剤例4（水和剤）

本発明化合物No. Ia-5（15部）、ホワイトカーボン（含水無結晶酸化ケイ素微粉末）と粉末クレーとの混合物（1：5）（80部）、アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム（2部）及びアルキルナフタレンスルホン酸ナトリウムホルマリン重合体（3部）を粉末混合し、水和剤とする。

10

製剤例5（水和顆粒）

本発明化合物No. Ia-53（20部）、リグニンスルホン酸ナトリウム（30部）、ペントナイト（15部）及び焼成ケイソウ土粉末（35部）を十分に混合し、水を加え、0.3mmのスクリーンで押し出し乾燥して、水和顆粒とする。

【0073】

**【発明の効果】**

本発明の新規イソチアゾール類は、上記生物試験例1、2、3及び4の結果から明らかのように、農園芸用病害防除剤（予防剤）として優れた効果を有している。

20

---

フロントページの続き

(72)発明者 執行 拓宇

栃木県小山市城東2-13-31

(72)発明者 ルッツ・アースマン

ドイツ連邦共和国デー25826ザンクトペーター・オルディング・シーメルライターベーク6

Fターム(参考) 4C033 AA05 AA06 AA17

4H011 AA01 AA03 BA01 BB10 BC01 BC07 BC18 BC19 BC20 DD03

DH03

【要約の続き】

を示す、

で表わされるイソチアゾール類。

【選択図】 なし