00148 139

SEÑOR MINISTRO DE DESARROLLO ECONOMICO
SUPERINTENDENCIA DE INDUSTRIA Y COMERCIO
DIVISION DE NUEVAS CREACIONES
E.S.D.



SUPERINTENDENCIA Y COMERCIO
Radicacion : 00083069 00000231 Folios: 545
Fecha (AMD): 2001-01-16 09:21:03
Remite : 032 PATENTES D 1 REGISTRO/ 467 SOLICITUD
Predecesa: 2000 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

REF: EXPEDIENTE 00 83069
DISEÑO Derivados (Tiona) Aminoquinazolinona sustituidos o sales de los mismos , compuestos intermedios de los mismos , y controladores de plagas y un metodo para utilizacion de los mismos .
CLASE A01N 43/54
SOLICITANTE NIHON NOHYAKU CO., LTD.
TRAMITE 002
EVENTO 001
ACTUACION 467
PETICION DE PRORROGA DE TERMINO
(hasta el 28 de Febrero 2001)

El suscrito **GERMAN ALONSO CUBILLOS MENDOZA** , abogado titulado e inscrito , con c.c. No. 19'397.479 de Bogotá , T.P. No. 38.422 del C.S.J. y codificado ante esa División bajo el No. 3667 , obrando en mi calidad de apoderado de la sociedad , NIHON NOHYAKU CO., LTD. , dentro del término legal y en respuesta a su auto No. 3942 del 30 de noviembre de 2000 , solicito muy comedidamente la prórroga del plazo inicialmente concedido para completar los antecedentes de la solicitud de registro de la referencia , así como para allegar los documentos pedidos por ese despacho .

Lo anterior en razón a que por tratarse de documentos que provienen del extranjero deben ser legalizados y traducidos oficialmente , labor ésta que no pudo ser realizada dentro del plazo inicial .

Invoco lo preceptuado por el artículo 120 la Decisión 486 de la Comisión del Acuerdo de Cartagena .

Presento el comprobante oficial de pago por la suma de $50.000.- conforme lo dispone la Resolución No. 02 del 4 de Enero del 2000 emanado del Ministerio de Desarrollo Económico .

80149 140

Presento también las copias certificadas su conformidad por la Oficina de Patentes del Gobierno Japones , quien recibió las solicitudes de las cuales se reivindican prioridad , debidamente traducidas al español , solicitudes a saber :

	PAIS	SOLICITUD	FECHA
1.	Japón	11-312297	2 de noviembre de 1999
2.	Japón	2000-094493	30 de marzo de 2000

Sin otro particular me suscribo del Señor Ministro .

Cordialmente ,

GERMAN A. CUBILLOS MENDOZA
c.c. No. 19'397.479 de Bogotá
T.P. No. 38.422 del C.S.J.
Código No. 3667

105901 C1 141

~~00159~~

OFICINA DE PATENTES

GOBIERNO JAPONES

La presente es para certificar que lo anexado es una copia fiel de la siguiente solicitud que fue registrada en esta oficina.

FECHA DE SOLICITUD:	2 de noviembre de 1999
NRO. DE SOLICITUD DE PATENTE	11-312297
SOLICITANTE(S):	NIHON NOHYAKU CO., LTD.

A los 10 días de noviembre de 2000.

Kouzo OIKAWA
Comisionado
OFICINA DE PATENTES

Certificado No. 2000-3093992

11-312297

[Título de Documento] Solicitud de Patente
[Número de referencia] C7798
[Fecha de registro] 2 de noviembre de 1999
[Destinatario] Comisionado de la Oficina de Patentes
[Clasificación de patente Internacional] C07D 235/00
A01N 43/40

[Inventor]
[Domicilio] 115-12, Joroku, Sakai-shi, Japón.
[Nombre] Masahiro UEHARA
[Inventor]
[Domicilio] 1-28, Nishinoyamacho, Kawachinagano-shi, Japón.
[Nombre] Masamitsu WATANABE
[Inventor]
[Domicilio] 15-5, Midorigaokaminamimachi, Kawachinagano-shi, Japón.
[Nombre] Masayuki KIMURA
[Inventor]
[Domicilio] 1-28-305, Nishinoyamacho, Kawachinagano-shi, Japón.
[Nombre] Masayuki MORIMOTO
[Inventor]
[Domicilio] 5-3, Koyodai-2-chome, Hashimoto-shi, Japón.
[Nombre] Masanori YOSHIDA
[Solicitante]
[Número de ID de solicitante] 0 0 0 2 3 2 6 2 3
[Nombre] NIHON NOHYAKU CO., LTD.
[Agente]
[Número de ID del Agente] 1 0 0 0 6 8 6 1 8
[Abogado de Patentes]
[Nombre] Norio HANABUSA
[Teléfono] 03-3291-9721

[Agente]

[Nro. de ID de agente] 1 0 0 0 9 3 1 9 3

[Abogado de patentes]

[Nombre] Toshio NAKAMURA

[Agente]

[Nro. de ID de agente] 1 0 0 1 0 4 1 4 5

[Abogado de patentes]

[Nombre] Yoshio MIYAZAKI

[Indicación de Impuesto]

[No. de registro de pago previo] 018120

[Importe del Impuesto] ¥21.000-

[Lista de Documentos Anexados]

[Título del artículo] Descripción 1

[Documento] Resumen 1

[Prueba: requerida o no] Si

144

~~00153~~

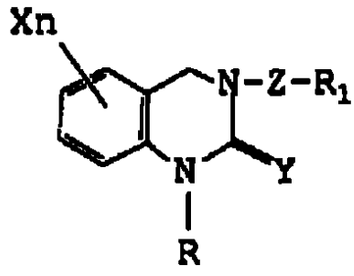
[Título del documento] Descripción

[Título de la invención] DERIVADOS (TIONA) AMINOQUINAZOLINONA SUSTITUIDOS O SALES DE LOS MISMOS, COMPUESTOS INTERMEDIOS DE LOS MISMOS, Y CONTROLADORES DE PLAGAS Y UN MÉTODO PARA UTILIZACIÓN DE LOS MISMOS

[Alcance de reivindicación para una patente]

[Reivindicación 1] Un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido caracterizado por que está representado por la fórmula general (I), o una sal del mismo:

[Fórmula 1]



(I)

en donde R es un átomo de hidrógeno; un grupo hidroxilo; un grupo formilo; grupo alquilo (C_{1-12}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo hidroxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un (C_{2-6}) grupo alquinilo; un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo (C_{1-6}) alcoxilo; un grupo alcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo alcoxi (C_{1-6})alcoxi(C_{1-3})alquilo(C_{1-3}); un grupo alquiltio(C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo alquiltio (C_{1-6}) alquilo (C_{1-3}); un grupo dialcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}) en el cual los grupos

alcoxilos (C_{1-6}) pueden ser iguales o diferentes; un grupo alquil (C_{1-6})amino sin sustituir; un grupo alquil(C_{1-6})amino sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ciano(C_{1-6})alquilo; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo hidroxicarbonil(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxicarbonil (C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo cicloalquil (C_{3-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, (C_{1-6}) grupo alquiltio y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo

(C_{1-6})alcoxilo, grupo (C_{1-6}) alquiltio y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo feniltio sin sustituir; un grupo feniltio sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo fenilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; grupo feniloxicarbonilo sin sustituir; un grupo feniloxicarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo

(C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sin sustituir, un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil (C_{2-6})alquenilo sin sustituir, un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-6}) alquinilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3}) alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden

ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo (C_{1-6}) alcoxilo, grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-3}); un grupo 1,3-dioxolan-2-il(C_{1-3}) alquilo; o un grupo ftalimido(C_{1-6})alquilo,

R_1 es un anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 a 3 heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste del átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno, dicho anillo heterocíclico puede tener 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo y grupo alcoxilo (C_{1-6}), y el átomo de nitrógeno en el anillo heterocíclico puede formar un grupo N-óxido,

Y es el átomo de un oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$$-N=C(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 es igual al definido precedentemente, y R_3 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo formilo, un grupo alquilcarbonilo (C_{1-3}) o un grupo halo(C_{1-3}) alquilcarbonilo),

X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-10})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo halo(C_{1-6})alcoxihalo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir: un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6}) alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ácido sulfónico; un grupo aminosulfonilo sin sustituir; un grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}); un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un

grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio, grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}) y un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3}) alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo piridiloxilo sin sustituir; o un grupo piridiloxilo sustituido que posee uno o mas sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo

que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de valor 0 a 4.

[Reivindicación 2] Un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por que R es un átomo de hidrógeno; un grupo formilo; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo (C_{1-6}) alcoxi(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxi(C_{1-6})alcoxi(C_{1-3})alquilo(C_{1-3}); un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquil(C_{1-6})amino sin sustituir; un grupo alquil(C_{1-6})amino sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ciano(C_{1-6})alquilo; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo hidroxicarbonil(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6}) alquilo(C_{1-3}); un grupo cicloalquil(C_{3-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}),

grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio ; un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniltio sin sustituir; un grupo feniltio sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupos alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sin sustituir; o un grupo fenilalquinil(C_{2-4})alquilo (C_{1-3}) sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que c nsiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupos alquilo

(C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupos alquilendioxilo (C_{1-3}),

R_1 es un anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 a 3 heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste del átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno, dicho anillo heterocíclico puede tener 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo y grupo alcoxilo (C_{1-6}), y el átomo de nitrógeno en el anillo heterocíclico puede formar un grupo N-óxido,

Y es el átomo de un oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$$-N=C(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6}), y R_3 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), grupo formilo, un grupo alquilcarbonilo (C_{1-3}) o un grupo halo(C_{1-3}) alquilcarbonilo),

X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo; un

átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo halo (C_{1-6})alquilo, un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6}) alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo (C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo halo(C_{1-6})alcoxihalo (C_{1-6})alcoxilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupos alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenil sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden sea iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste en átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo

sin sustituir; o un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de valor 0 a 4.

[Reivindicación 3] Un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con la reivindicación 2, caracterizado por que R es un átomo de hidrógeno; un grupo formilo; un grupo alquilo (C_{1-12}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo

(C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupos halo (C_{1-6})alquiltio y grupos alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sin sustituir; o un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}), R^1 es un grupo piridilo,

Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$$-N=C(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6}), y R_3 es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6}),

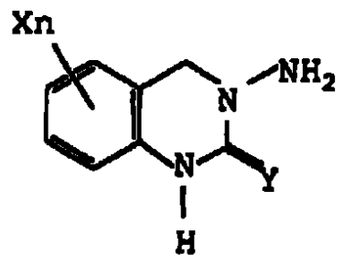
X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo; un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo, un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo; un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo halo(C_{1-6}) alquilsulfinilo; un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo

halo(C_{1-6})alcoxihalo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; o un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de

valor 0 a 4.

[Reivindicación 4] Un compuesto caracterizado por que está representado por la fórmula general (II),

[Fórmula 2]



(II)

en donde, X puede ser igual o diferente y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo halo(C_{1-6})alcoxihalo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo

aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo de ácido sulfónico; un (C1-6) grupo alcoxisulfonilo; un grupo sulfonamida que posee un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}) o un grupo alquinilo (C_{2-6}) en el átomo de nitrógeno; un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo

alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo piridiloxilo sin sustituir; o un grupo piridiloxilo sustituido que posee uno o mas sustituyentes que pueden iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; n es un entero de valor 0 a 4; e Y es átomo de un oxígeno o un átomo de azufre.

[Reivindicación 5] Un controlador de plaga caracterizado por que comprende como ingrediente activo un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con las reivindicaciones 1 a 3.

[Reivindicación 6] Un controlador de plagas caracterizado por que comprende como ingrediente activo un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con las reivindicaciones 1 a 3, y uno o mas compuestos agroquímicos distintos.

[Reivindicación 7] Un método para controlar plagas caracterizado por que comprende aplicar un controlador de plaga que comprende como ingrediente activo un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con las reivindicaciones 1 a 3, a los cultivos objetivo o el suelo.

[Descripción detallada de la invención]

[0001]

[Campo técnico al cual pertenece la invención]

La presente invención se refiere a derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos o sales de los mismos, compuestos intermedios de los mismos para preparar los mismos, controladores de plaga y un método para usar los mismos.

[0002]

[Técnica anterior relacionada]

La publicación de patente Japonesa no examinada, JP-A8-325239 describe que los derivados de aminoquinazolinona son útiles como controladores de plaga.

[0003]

[Problema a ser resuelto por la invención]

Como consecuencia de investigación seriamente dirigida a encontrar a un novedoso controlador de plaga, los presentes inventores encontraron que los compuestos de la presente invención y que poseen sustituyentes en el grupo fenilo que pertenece al anillo quinazolinona, poseen el mismo o mejor efecto insecticida en una baja dosificación en comparación con los compuestos de los Ejemplos descriptos en la JP-A-8-325239 mencionada precedentemente. Particularmente los compuestos de la presente invención poseen el suficiente efecto insecticida contra mosca blanca considerada perjudicial en los campos agrícolas y hortícolas, por consiguiente los presentes

inventores han realizado la presente invención.

El derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o sales del mismo representadas por la fórmula general (I) y los compuestos representados por la fórmula general (II) los cuales son compuestos intermedios para preparar los derivados de la fórmula general (I) son compuestos novedosos que no se han conocido en ninguna literatura de la técnica anterior. Además, los controladores de plaga contienen, como ingrediente activo, el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido representado por la fórmula general (I) o sales del mismo posee el efecto insecticidal excelente contra los diversos insectos en una baja dosificación en comparación con los controladores de plaga convencionales.

[0004]

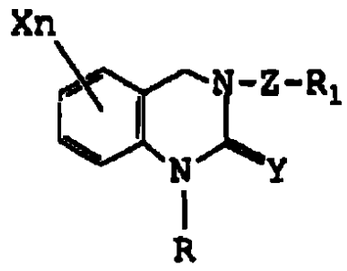
[Medios para resolver el problema]

Los inventores presentes han realizado seriamente una investigación en los derivados (tiona) aminoquinazolinona para desarrollar un nuevo controlador de plaga que posee un extenso espectro insceticida. Finalmente, los inventores han encontrado el hecho que los derivados de aminoquinazolinona novedosos que poseen átomo de bromo, átomo de iodo, grupo perfluoroalquilo, grupo perfluoroalcoxilo o lo similar en el anillo quinazolina poseen una excelente actividad insecticida como controladores de plaga.

[0005]

La presente invención se refiere a derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituido representados por la fórmula general (I), o sales de los mismos:

[Fórmula 3]



(I)

[donde R es un átomo de hidrógeno; un grupo hidroxilo; un grupo formilo; grupo alquilo (C_{1-12}); un grupo halo (C_{1-6}) alquilo; un grupo hidroxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo (C_{1-6}) alcoxilo; un grupo alcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo alcoxi (C_{1-6})alcoxi(C_{1-3})alquilo(C_{1-3}); un grupo alquiltio(C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo alquiltio (C_{1-6}) alquilo (C_{1-3}); un grupo dialcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}) en el cual los grupos alcoxilo (C_{1-6}) pueden ser iguales o diferentes; un grupo alquil(C_{1-6})amino sin sustituir;

[0006]

un grupo alquil(C_{1-6})amino sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, (C_{2-6}) grupo alquenilo y grupo alquinilo (C_{2-6});

un grupo ciano(C_{1-6})alquilo; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo hidroxicarbonil(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxicarbonil (C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo cicloalquil (C_{3-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo (C_{1-6}) alquiltio y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio;

[0007]

un grupo feniltio sin sustituir; un grupo feniltio sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste

de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo fenilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-6})alquilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; grupo feniloxicarbonilo sin sustituir;

[0008]

un grupo feniloxicarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})

alquiltio; un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sin sustituir, un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil (C_{2-6})alquenilo sin sustituir, un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2});

[0009]

un grupo fenil(C_{2-6}) alquinilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3}) alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden

ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo (C_{1-6}) alcoxilo, grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo 1,3-dioxolan-2-il(C_{1-3}) alquilo; o un grupo ftalimido(C_{1-6})alquilo,

[0010]

R_1 es un anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 a 3 heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste del átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno, dicho anillo heterocíclico puede tener 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo y grupo alcoxilo (C_{1-6}), y el átomo de nitrógeno en el anillo heterocíclico puede formar un grupo N-óxido,

Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$-N=C(R_2)-$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

[0011]

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

(en donde R_2 es igual al definido precedentemente, y R_3 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo formilo, un

grupo alquilcarbonilo (C_{1-3}) o un grupo halo(C_{1-3})alquilcarbonilo),

X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-10})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo;

[0012]

un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir: un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6}) alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo éster ácido sulfónico; un grupo aminosulfonilo sin sustituir; un grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}); un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o

diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo,

[0013]

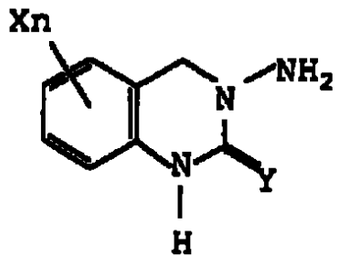
grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio, grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}) y un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3}) alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo

(C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo piridiloxilo sin sustituir; o un grupo piridiloxilo sustituido que posee uno o mas sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de 0 a 4], controladores de plaga que contienen el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o sal del mismo como el ingrediente activo, y un método para utilizar los controladores de plaga.

[0014]

La presente invención también se refiere a compuestos intermedios para producir los derivados mencionados precedentemente, representados por la fórmula general (II):

[Fórmula 4]



(II)

[en donde, X puede ser igual o diferente y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un

grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo;

[0015]

grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6}) alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo (C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo éster ácido sulfónico; un grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}); un grupo sulfonamida que posee un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}) o un grupo alquinilo (C_{2-6}) en el átomo de nitrógeno; un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio

(C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio;

[0016]

un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; n es un entero de 0 a 4; e Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre].

[0017]

[Modalidad para realizar la invención]

En las definiciones de cada uno de los sustituyentes de los derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos de la fórmula general (I) de la presente invención, el "átomo de halógeno" significa un átomo de cloro, un átomo de bromo, un átomo de iodo o un átomo de flúor. El término "(C_{1-12})" significa 1 a 12 átomos de carbono. El término "grupo alquilo (C_{1-12})" significa un grupo alquilo lineal o ramificado de 1 a 12 átomos

de carbono, por ejemplo un grupo alquilo tal como metilo, etilo, n-propilo, i-propilo, n-butilo, i-butilo, s-butilo, n-pentilo, n-hexilo, n-heptilo, n-octilo, n-nonilo, n-decilo, n-undecilo, n-dodecilo y lo similar. El término "grupo halo(C_{1-10})alquilo" significa un grupo alquilo sustituido y lineal o ramificado de 1 a 10 átomos de carbono que posee, como sustituyente(s), uno o mas átomos de halógeno que pueden ser iguales o diferentes, por ejemplo grupo trifluorometilo, grupo pentafluoroetilo, grupo heptafluoropropilo y lo similar. El término "grupo alquenilo (C_{2-6})" significa un grupo alquenilo lineal o ramificado de 2 a 6 átomos de carbono que posee uno o más enlaces dobles. El término "grupo halo(C_{2-6})alquenilo" significa un grupo alquenilo sustituido lineal o ramificado de 2 a 6 átomos de carbono que posee, como sustituyente(s), uno o más átomos de halógeno que pueden ser iguales o diferentes. El término "grupo alquinilo (C_{2-6})" significa un grupo alquinilo lineal o ramificado de 2 a 6 átomos de carbono que posee uno o más enlaces triples.

[0018]

El término "grupo halo(C_{2-6})alquinilo" significa un grupo alquinilo sustituido lineal o ramificado de 2 a 6 carbono átomos que posee, como sustituyente(s), uno o más átomos de halógeno que pueden ser iguales o diferentes. El término "anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 o más heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de

nitrógeno" significa cualquier anillo heterocíclico de 5 o 6 miembros por ejemplo, furano, tiofeno, pirrol, oxazol, tiazol, pirazol, imidazol, 1,2,3-tiadiazol, 1,2,4-tiadiazol, 1,2,5-tiadiazol, 1,3,4-tiadiazol, 1,2,4-triazol, piridina, piridazina, pirimidina, pirazina, pirrolidina, piperidina, morpholina, tiomorfolina, ditiolano, ditian, piperazina, dioxolan, imidazolidina, tetrahidrofurano y lo similar.

[0019]

Los sustituyentes del derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido representados por la fórmula general (I) están preferentemente de acuerdo con lo siguiente: R es un átomo de hidrógeno, un grupo formilo, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}), un grupo alquinilo (C_{2-6}), un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}), un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}), un grupo alquiltio (C_{1-6}), un grupo halo(C_{1-6})alquiltio, un grupo fenilcarbonilo, un grupo fenilcarbonilo sustituido, un grupo fenil(C_{1-6})alquilo sustituido, un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido o un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sustituido; R_1 es un grupo piridilo, particularmente grupo 3-piridilo; Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre; Z es un grupo de la fórmula,

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 y R_3 son cada uno un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6})); X es un átomo de bromo, un átomo de iodo, un grupo halo(C_{1-6})alquilo, un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, un grupo halo(C_{1-6})alquiltio, un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo, un grupo

175
00184

halo(C_{1-6})alquilsulfonilo o un grupo fenilo); y n puede ser preferentemente un entero de valor 0 a 2.

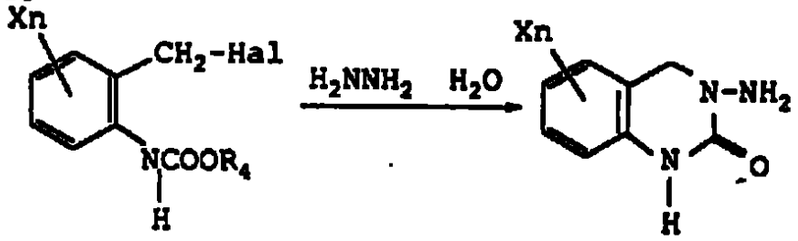
Como la sal del derivativo (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula (I), pueden ejemplificarse sales con ácidos minerales tales como ácido nítrico, ácido sulfúrico, ácido clorhídrico, etc., y sales con átomos de metal alcalino como sodio, potasio, etc.

[0020]

El compuesto de la fórmula (II), un compuesto intermedio utilizado para producir el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula (I) puede ser producido por cualquiera de los procedimientos siguientes.

Procedimiento de producción 1.

[Fórmula 5]



(III) (II-1)

en donde X y n son iguales a los definidos precedentemente, R^4 es un grupo alquilo (C_{1-6}), y Hal es un átomo de halógeno.

[0021]

Un compuesto de la fórmula general (II-1) puede ser producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general anterior (III) con hidrato de hidrazina en la presencia de un

solvente inerte.

Como el solvente inerte utilizable en esta reacción, puede usarse cualquier solvente inerte en tanto no inhiba el progreso de la reacción notablemente. Pueden ejemplificarse alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; los hidrocarburos halogenados tales como diclorometano, cloroformo, tetracloruro de carbono, etc.; los hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, monoclorobenceno etc.; nitrilos tales como acetonitrilo, benzonitrilo, etc.; cellosolve tal como cellosolve de metilo, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; las amidas tales como dimetilformamida, dimetilacetamida, 1,3-dimetil-2-imidazolidinona, 1-metil-2-pirrolidona, etc.; el dimetil sulfoxido; sulfolano: y agua. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

[0032]

La temperatura de la reacción puede escogerse propiamente en el rango de temperatura ambiente al punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde temperatura ambiente a 90°C.

Debido a que la reacción es una reacción equimolar, es suficiente que el compuesto de la fórmula general (III) y el hidrato de hidrazina se usen en cantidades equimolares, aunque cualquiera de estos reactivos puede usarse en exceso. Es preferible usar hidrato de hidrazina en exceso.

Aunque el tiempo de reacción depende de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., que varía desde varios minutos a 48 horas.

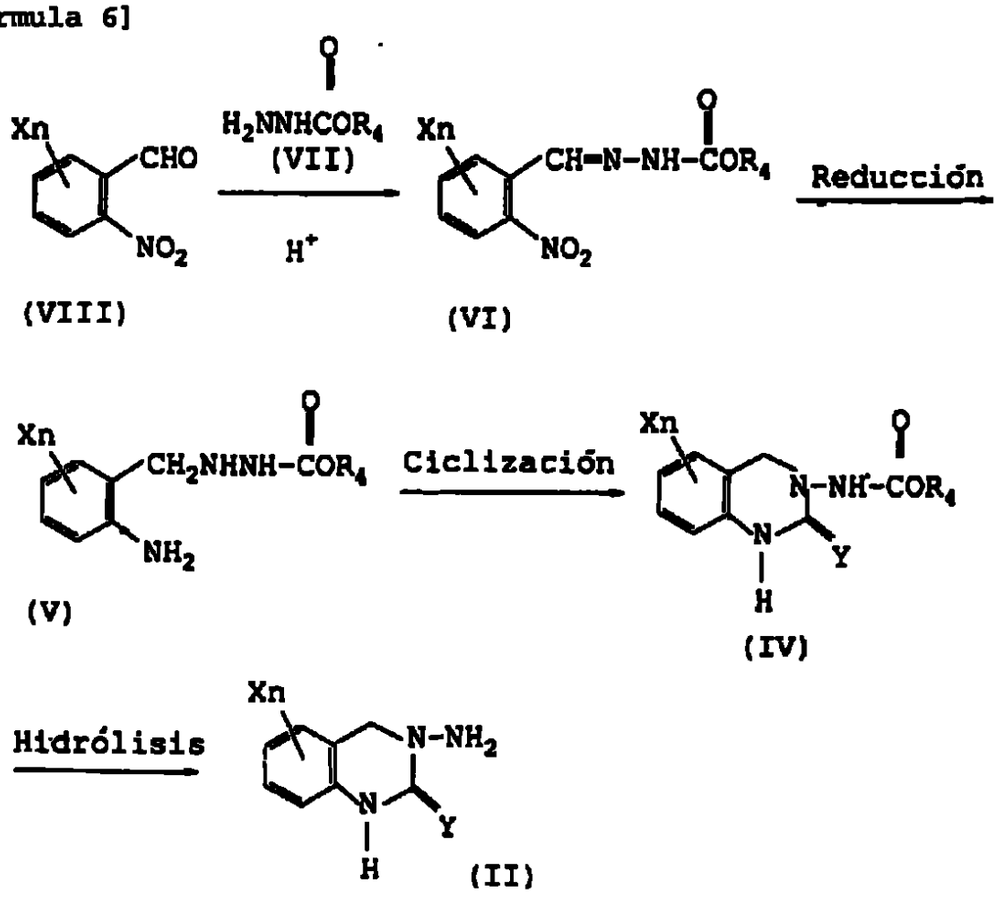
Después de la realización de la reacción, el compuesto deseado es aislado de la mezcla de reacción que contiene el compuesto deseado por medio de un método convencional, y si es necesario, es purificado por recristalización, cromatografía en columna seca, etc., por medio de lo cual el compuesto deseado puede producirse.

El compuesto de la fórmula general anterior (III) puede producirse según "Collect. Czech. Chem. Commn." (Vol. 55), 752 (1990).

[0023]

Procedimiento de producción 2.

[Fórmula 6]



en donde R_4, X, Y y n son iguales a los definidos precedentemente.

[0024]

2-1. Fórmula general (VIII) → fórmula general (VI)

Un compuesto de la fórmula general (VI) puede ser producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general (VIII) con un compuesto de la fórmula general (VII) en la presencia de un solvente inerte y un catalizador.

Como el solvente inerte utilizable en esta reacción, pueden usarse, por ejemplo, los solventes inertes ejemplificados en el procedimiento de producción 1. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

Como el catalizador, pueden usarse ácidos inorgánicos (por ej. ácido clorhídrico y ácido sulfúrico), ácido acético, ácido tolunesulfónico, etc. La cantidad del catalizador usada puede ser tal que el catalizador está presente en el sistema de reacción en una cantidad de 0,001 % en peso a 10 % en peso basado en el peso del compuesto de la fórmula general (VIII).

[0025]

Debido a que la reacción es una reacción equimolar, es suficiente que el compuesto de la fórmula general (VIII) y el compuesto de la fórmula general (VII) se usen en cantidades equimolares, aunque cualquiera de estos reactivos puede usarse en exceso.

La temperatura de la reacción puede escogerse apropiadamente dentro del rango de temperatura ambiente al punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente hasta 90°C.

Aunque el tiempo de reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., que va de varios minutos a 48 horas.

Después de la finalización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la

misma manera como en el procedimiento de producción 1, con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

El compuesto de la fórmula general (VIII) puede ser uno que es comercialmente disponible o puede ser producido por nitración de un benzaldehído sustituido. Además, el compuesto de la fórmula (VIII) puede producirse según el método descripto en "Journal of Chemical Society", 1927, pág. 2375-2378.

[0026]

2-2. Fórmula general (VI) → fórmula general (V)

Un compuesto de la fórmula general (V) puede ser producido reduciendo el compuesto de la fórmula general (VI) con un agente reductor o por reducción catalizadora en la presencia o ausencia de un solvente inerte.

Como el agente reductor, puede usarse, por ejemplo, hidruros de metal tales como, $NaBH_3CN$, $LiBH_3CN$, etc. y agentes reductores tales como BH_3, etc. La cantidad del agente reductor usada puede elegirse apropiadamente dentro del rango desde 1 mol respecto a los moles en exceso (en los términos del número de moles de hidruro como agente reductor) por mol del compuesto de la fórmula general (VI).

Como el solvente inerte utilizable en la reacción, puede utilizarse cualquier solvente inerte en tanto no inhiba notablemente el progreso de la reacción. Pueden ejemplificarse los alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; cellosolve tal como metil cellosolve, etc.; los éteres

tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; los ésteres tales como acetato de etilo, etc.; las amidas tales como dimetilformamida, dimetilacetamida, 1,3-dimetil-2-imidazolidinona, 1-metil-2-pirrolidona, etc.; dimetil sulfóxido; sulfolano; y agua. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

[0027]

La reacción se lleva a cabo bajo las condiciones ácidas o neutras en el pH que puede variar de 1 a 7, preferentemente 4 a 6. Es suficiente que el pH sea ajustado agregando cloruro de hidrógeno, bromuro de hidrógeno o lo similar al sistema de la reacción.

La temperatura de la reacción es elegida en el rango de 0°C al punto de ebullición del solvente, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente hasta 70°C.

Aunque el tiempo de la reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., puede ser desde varios minutos a 48 horas.

Después de la finalización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el Procedimiento de producción 1, con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

Cuando la reducción catalítica se lleva a cabo como una reacción de reducción, se realiza según, por ejemplo, el método que se describe en "Shin Jikken Kagaku Koza", Vol. 15-11,

"Maruzen Co., Ltd". Como el solvente inerte utilizable en este caso, pueden ejemplificarse alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; cellosolve tal como metil cellosolve, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; los hidrocarburos tales como hexano, ciclohexano, etc.; ácidos grasos o ésteres de los mismos, tales como ácido acético, acetato de etilo, etc.; las amidas tales como dimetilformamida, dimetilacetamida, 1,3-dimetil-2-imidazolidinona, 1-metil-2-pirrolidona, etc.; y ureas tales como tetrametilurea, etc. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

[0028]

Como el catalizador usado en la reacción de reducción, pueden ejemplificarse catalizadores típicos para la reducción catalítica, tales como paladio-carbono, negro de paladio, dióxido de platino, níquel Raney, etc. La cantidad del catalizador usada puede elegirse adecuadamente en el rango desde 0,1% equivalente molar a 5% equivalente molar, preferentemente 0,5% equivalente molar a 1% equivalente molar, en relación al compuesto de la fórmula general (VI).

La presión de hidrógeno en la reacción varía desde la presión atmosférica hasta 300 atmósferas, preferentemente desde presión atmosférica hasta 50 atmósferas.

La temperatura de acción puede elegirse adecuadamente en el rango desde la temperatura ambiente al punto de ebullición

del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente a 70°C.

Aunque el tiempo de reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., que va de varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el caso de usar un agente reductor, con el cual puede producirse el compuesto deseado.

[0029]

2-3. Fórmula general (V) → fórmula general (IV)

Un compuesto de la fórmula general (IV) puede ser producido haciendo reaccionar el compuesto de la fórmula general (V) con 1,1'-carbonilbis-1H-imidazol (CDI), un haluro del alcoxicarbonilo, fosgeno o tiofosgeno en la presencia de un solvente inerte y en la presencia o ausencia de una base.

Como el solvente inerte utilizable en la reacción, pueden ejemplificarse éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc., e hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, etc. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

Como la base, puede usarse una base inorgánica o una base orgánica, y pueden ejemplificarse bases inorgánicas tales como los hidróxidos y carbonatos de metales alcalinos y los

metales alcalino térreos [por ej. el hidróxido de sodio, hidróxido de potasio, hidróxido de magnesio, carbonato de sodio, hydrogencarbonate de sodio y carbonato de potasio], y bases orgánicas tales como trietilamina y piridina. Cuando el CDI se usa como un reactivo, la reacción puede llevarse a cabo sin una base.

[0030]

La cantidad de la base usada es de 2 moles o más por el mol del compuesto de la fórmula general (V).

La temperatura de la reacción puede elegirse apropiadamente en el rango desde la temperatura ambiente hasta el punto del ebullición del solvente inerte usado, y varía preferentemente desde la temperatura ambiente hasta 100°C.

Aunque el tiempo de la reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., el tiempo varía desde varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el procedimiento de producción 1, con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

[0031]

2-4. Fórmula general (IV) → fórmula general (II)

Un compuesto de la fórmula general (II) puede ser producido por hidrolización del compuesto de la fórmula general (IV) bajo la condición básica en la presencia de un solvente

inerte.

Como el solvente inerte utilizable en esta reacción, pueden ejemplificarse alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; los hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; y agua. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

Como la base, se pueden utilizar hidróxidos de metales alcalino o metales alcalino térreos, tales como hidróxido de sodio, hidróxido de potasio, hidróxido de magnesio, etc.

Dependiendo del grupo alquilo para R_4, la reacción también puede llevarse a cabo bajo condiciones ácidas usando un ácido orgánico o inorgánico tal como ácido trifluoroacético o ácido clorhídrico.

La temperatura de la reacción puede escogerse apropiadamente en el rango desde 0°C al punto de ebullición del solvente inerte usado.

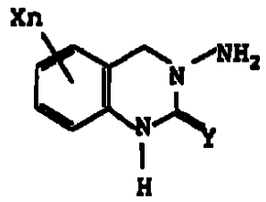
Aunque el tiempo de la reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la reacción, la temperatura, etc., el tiempo varía desde varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción la mezcla de reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el Procedimiento de producción 1, con lo cual que puede producirse el compuesto deseado.

[0032]

Los ejemplos típicos de los compuestos de la fórmula general (II) producido por el procedimiento de producción 1 y 2 se intican en Tabla 1 pero no se pretende de forma alguna que los mismos limiten el alcance de la presente invención.

[Fórmula 7]



(II)

[0033]

Tabla 1

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-1	5-OH	O	Cristalino
II-2	6-OH	O	Cristalino
II-3	7-OH	O	Cristalino
II-4	8-OH	O	Cristalino
II-5	5-Br	O	
II-6	6-Br	O	Cristalino
II-7	7-Br	O	
II-8	8-Br	O	
II-9	5-I	O	
II-10	6-I	O	p.f. 202,3-205,0 °C
II-11	7-I	O	
II-12	8-I	O	
II-13	5-CF_3	O	
II-14	6-CF_3	O	p.f. 155-157,7 °C
II-15	7-CF_3	O	
II-16	8-CF_3	O	
II-17	5-C_2F_5	O	
II-18	6-C_2F_5	O	p.f. 178,4-183,5 °C
II-19	7-C_2F_5	O	
II-20	8-C_2F_5	O	
II-21	5-i-C_3F_7	O	
II-22	6-i-C_3F_7	O	p.f. 147,6-149,5 °C
II-23	7-i-C_3F_7	O	
II-24	8-i-C_3F_7	O	

[0034]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-25	5-n-C_6F_{13}	O	
II-26	6-n-C_6F_{13}	O	Cristalino
II-27	7-n-C_6F_{13}	O	
II-28	8-n-C_6F_{13}	O	
II-29	5-OCF_3	O	
II-30	6-OCF_3	O	p.f. 181,5-184,0 °C
II-31	7-OCF_3	O	
II-32	8-OCF_3	O	
II-33	5-OCH_2-Ph	O	Cristalino
II-34	6-OCH_2-Ph	O	
II-35	7-OCH_2-Ph	O	
II-36	8-OCH_2-Ph	O	Cristalino
II-37	5-$OCHF_2$	O	
II-38	6-$OCHF_2$	O	Cristalino
II-39	7-$OCHF_2$	O	
II-40	8-$OCHF_2$	O	
II-41	5-SCF_3	O	
II-42	6-SCF_3	O	
II-43	7-SCF_3	O	
II-44	8-SCF_3	O	
II-45	5-SC_2F_5	O	
II-46	6-SC_2F_5	O	
II-47	7-SC_2F_5	O	
II-48	8-SC_2F_5	O	

[0035]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-49	5-S-i-C_3F_7	O	
II-50	6-S-i-C_3F_7	O	p.f. 71,2-73,5 °C
II-51	7-S-i-C_3F_7	O	
II-52	8-S-i-C_3F_7	O	
II-53	5-$SOCF_3$	O	
II-54	6-$SOCF_3$	O	
II-55	7-$SOCF_3$	O	
II-56	8-$SOCF_3$	O	
II-57	5-SO_2CF_3	O	
II-58	6-SO_2CF_3	O	
II-59	7-SO_2CF_3	O	
II-60	8-SO_2CF_3	O	
II-61	5-SOC_2F_5	O	
II-62	6-SOC_2F_5	O	
II-63	7-SOC_2F_5	O	
II-64	8-SOC_2F_5	O	
II-65	5-$SO_2C_2F_5$	O	
II-66	6-$SO_2C_2F_5$	O	
II-67	7-$SO_2C_2F_5$	O	
II-68	8-$SO_2C_2F_5$	O	
II-69	5-SO-i-C_3F_7	O	
II-70	6-SO-i-C_3F_7	O	
II-71	7-SO-i-C_3F_7	O	
II-72	8-SO-i-C_3F_7	O	

[0036]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-73	5-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-74	6-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-75	7-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-76	8-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-77	5-$COOC_2H_5$	O	
II-78	6-$COOC_2H_5$	O	
II-79	7-$COOC_2H_5$	O	
II-80	8-$COOC_2H_5$	O	
II-81	5-COOH	O	
II-82	6-COOH	O	
II-83	7-COOH	O	
II-84	8-COOH	O	
II-85	5-Ph	O	
II-86	6-Ph	O	
II-87	7-Ph	O	
II-88	8-Ph	O	
II-89	5-(p-Cl-Ph)	O	
II-90	6-(p-Cl-Ph)	O	
II-91	7-(p-Cl-Ph)	O	
II-92	8-(p-Cl-Ph)	O	
II-93	5-O-Ph	O	
II-94	6-O-Ph	O	
II-95	7-O-Ph	O	
II-96	8-O-Ph	O	

[0037]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-97	5-n-C_4H_9	O	
II-98	6-n-C_4H_9	O	
II-99	7-n-C_4H_9	O	
II-100	8-n-C_4H_9	O	
II-101	5-OCF_2CHF_2	O	
II-102	6-OCF_2CHF_2	O	p.f. 194,8 °C
II-103	7-OCF_2CHF_2	O	
II-104	8-OCF_2CHF_2	O	

[0038]

La Tabla 2 ilustra los datos de RMN de los compuestos siguientes enumerados en la Tabla 1.

Tabla 2

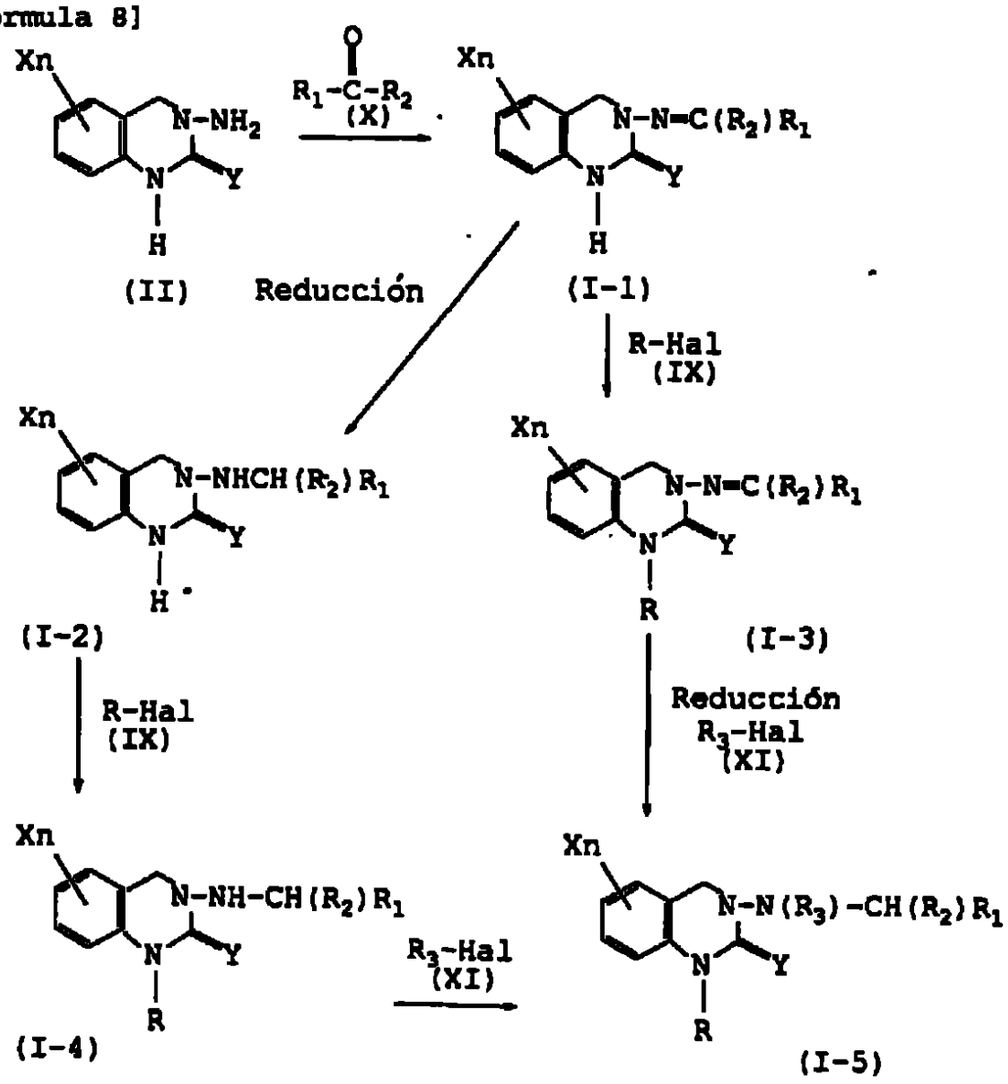
No.	^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]
II-1	4.36(2H,s), 4.65(2H,br), 6.20(1H,d), 6.34(1H,d), 6.89(1H,t), 9.12(1H,br), 9.62(1H,s).
II-2	4.45(2H,s), 4.65(2H,s), 6.51-6.63(3H,m), 9.00(1H,s),
II-3	9.60(1H,brs).
II-4	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.23-6.35(2H,m), 6.85(1H,d), 9.05(1H,s), 9.63(1H,s)
II-6	4.46(2H,s), 4.65(2H,s), 6.57(1H,d), 6.64-6.74(2H,m), 7.95(1H,d), 9.60(1H,brs).
II-18	4.48(2H,s), 4.66(2H,s), 6.74(1H,m), 7.18(1H,m), 7.30(1H,m), 9.43(1H,s).
II-26	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.95(1H,d), 7.40-7.50(2H,m), 9.83(1H,s).
II-33	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.94(1H,d), 7.43-7.48(2H,m), 9.74(1H,s).
II-36	4.48(2H,s), 4.69(2H,s), 5.00(2H,s), 6.30(1H,d), 6.45(1H,d), 7.05(1H,t), 7.25-7.40(6H,m).
II-38	4.48(2H,s), 4.68(2H,s), 5.19(2H,s), 6.71(1H,d), 6.82(1H,t), 6.92(1H,d), 7.30-7.40(3H,m), 7.51(2H,d), 8.18(1H,s).
	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.76-6.79(1H,d,J=8.7Hz), 6.95-7.00(2H,m), 6.80-7.30(1H,t,J=7.46), 9.37(1H,s).

[0039]

Los ejemplos típicos de los procedimientos de producción de los derivados (tiona) aminoquinazolinona de la fórmula general (I) o una sal del mismo de la presente invención se ilustran esquemáticamente a continuación.

Procedimiento de producción 3

[Fórmula 8]



en donde R, R_1, R_2, R_3, X, n, Y y Hal son iguales a los definidos precedentemente con la excepción de cada uno de R y R_3 no sea un átomo de hidrógeno.

[0040]

3-1. Fórmula general (II) → fórmula general (I-1)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-1) puede ser producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general (II) con un compuesto de la fórmula general (X) en la presencia de un solvente inerte y un catalizador.

En el caso de utilizar esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a la descripta en el procedimiento de producción 2-1.

3-2. Fórmula general (I-1) → fórmula general (I-3)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-3) puede ser producido haciendo reaccionar el derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-1) con un compuesto de la fórmula general (IX) en la presencia o ausencia de un solvente inerte y una base.

[0041]

Como solvente inerte utilizable en esta reacción, pueden utilizarse, por ejemplo, los solventes inertes ejemplificados en el procedimiento de producción 1.

Como la base, puede usarse una base inorgánica o una base orgánica. Además de las bases inorgánicas u orgánicas

195
00284

ejemplificadas en el procedimiento de producción 2-3, también pueden usarse alcóxidos tales como CH_3ONa, C_2H_5ONa, t-C_4H_9ONa, CH_3OK, C_2H_5OK, t-C_4H_9OK, etc., e hidruros de metal alcalino tales como NaH, etc. La cantidad de base usada puede elegirse apropiadamente en el rango de 1 mol hasta el exceso de moles por mol del derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-1).

La temperatura de la reacción puede elegirse en el rango desde 0°C hasta el punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente hasta 70°C.

Aunque el tiempo de reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., el tiempo varía de varios minutos a 48 horas.

La mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en procedimiento de producción 1 después de la realización de la reacción, con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

[0042]

3-3. Fórmula general (I-1) → Fórmula general (I-2)

En el caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a la descripta en el procedimiento de producción 2-2.

3-4. Fórmula general (I-2) → Fórmula general (I-4)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula

general (I-4) puede ser producido haciendo reaccionar el derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-2) con el compuesto de la fórmula (IX) en presencia o ausencia de un solvente inerte y una base.

En el caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a eso descrito en procedimiento de producción 3-2.

3-5. Fórmula general (I-4) → Fórmula general (I-5)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-5) puede ser producido haciendo reaccionar el derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-4) con un compuesto de la fórmula general (XI) en la presencia o ausencia de un solvente inerte y una base.

En caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a la descripta en el procedimiento de producción 3-2.

3-6. Fórmula general (I-3) → Fórmula general (I-5)

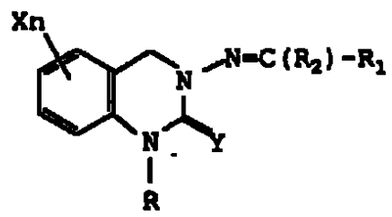
En caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar la descripta en el procedimiento de producción 2-2.

[0043]

Los ejemplos típicos del derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula (I) o sal del mismo de la presente invención se indican en las Tablas 3 y 4. Sin embargo, el alcance de la presente invención no está limitado por estos

ejemplos.

[Fórmula 9]



[0044]

Tabla 3 (R_1=Q_2, R_2=H, Y=O)

No.	R	Xn	Propiedad física
1	H	5-OH	p.f. 293-295 °C
2	H	6-OH	
3	H	7-OH	
4	H	8-OH	p.f. >300°C
5	H	5-Br	
6	H	6-Br	p.f. >300°C
7	H	7-Br	
8	H	8-Br	
9	H	5-I	
10	H	6-I	p.f. >300°C
11	H	7-I	
12	H	8-I	

[0045]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
13	H	5-CF_3	
14	H	6-CF_3	p.f. 227.6-286.7 °C
15	H	7-CF_3	
16	H	8-CF_3	
17	H	5-C_2F_5	
18	H	6-C_2F_5	p.f. 298-300 °C
19	H	7-C_2F_5	
20	H	8-C_2F_5	
21	H	5-i-C_3F_7	
22	H	6-i-C_3F_7	p.f. >300°C
23	H	7-i-C_3F_7	
24	H	8-i-C_3F_7	
25	H	5-n-C_6F_{13}	
26	H	6-n-C_6F_{13}	p.f. >300°C
27	H	7-n-C_6F_{13}	
28	H	8-n-C_6F_{13}	
29	H	5-OCF_3	
30	H	6-OCF_3	p.f. 264.0-266.0 °C
31	H	7-OCF_3	
32	H	8-OCF_3	
33	H	5-CH_2-Ph	
34	H	6-CH_2-Ph	
35	H	7-CH_2-Ph	

[0046]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
36	H	8-CH_2-Ph	
37	H	5-$OCHF_2$	
38	H	6-$OCHF_2$	p.f. 260.1-264.5 °C
39	H	7-$OCHF_2$	
40	H	8-$OCHF_2$	
41	H	5-SCF_3	
42	H	6-SCF_3	
43	H	7-SCF_3	
44	H	8-SCF_3	
45	H	5-SC_2F_5	
46	H	6-SC_2F_5	
47	H	7-SC_2F_5	
48	H	8-SC_2F_5	
49	H	5-S-i-C_3F_7	
50	H	6-S-i-C_3F_7	
51	H	7-S-i-C_3F_7	
52	H	8-S-i-C_3F_7	
53	H	5-$SOCF_3$	
54	H	6-$SOCF_3$	
55	H	7-$SOCF_3$	
56	H	8-$SOCF_3$	
57	H	5-SO_2CF_3	
58	H	6-SO_2CF_3	

[0047]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
59	H	7-SO_2CF_3	
60	H	8-SO_2CF_3	
61	H	5-SOC_2F_5	
62	H	6-SOC_2F_5	
63	H	7-SOC_2F_5	
64	H	8-SOC_2F_5	
65	H	5-$SO_2C_2F_5$	
66	H	6-$SO_2C_2F_5$	
67	H	7-$SO_2C_2F_5$	
68	H	8-$SO_2C_2F_5$	
69	H	5-SO-i-C_3F_7	
70	H	6-SO-i-C_3F_7	
71	H	7-SO-i-C_3F_7	
72	H	8-SO-i-C_3F_7	
73	H	5-SO_2-i-C_3F_7	
74	H	6-SO_2-i-C_3F_7	
75	H	7-SO_2-i-C_3F_7	
76	H	8-SO_2-i-C_3F_7	
77	H	5-$COOC_2H_5$	
78	H	6-$COOC_2H_5$	p.f. 274-278 °C
79	H	7-$COOC_2H_5$	
80	H	8-$COOC_2H_5$	
81	H	5-COOH	

[0048]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
82	H	6-COOH	
83	H	7-COOH	
84	H	8-COOH	
85	H	5-Ph	
86	H	6-Ph	p.f. 250.9-253.8 °C
87	H	7-Ph	
88	H	8-Ph	
89	H	5-(4-Cl-Ph)	
90	H	6-(4-Cl-Ph)	p.f. 276-278 °C
91	H	7-(4-Cl-Ph)	
92	H	8-(4-Cl-Ph)	
93	H	5-O-Ph	
94	H	6-O-Ph	
95	H	7-O-Ph	
96	H	8-O-Ph	
97	H	5-n-C_4H_9	
98	H	6-n-C_4H_9	
99	H	7-n-C_4H_9	
100	H	8-n-C_4H_9	
101	CH_3	6-I	p.f. 181.4-185.3
102	C_2H_5	6-I	p.f. 191.5-194.5
103	n-C_5H_{11}	6-I	p.f. 1.4126(28.5)
104	$CH_3C{\equiv}CH$	6-I	p.f. 214-217

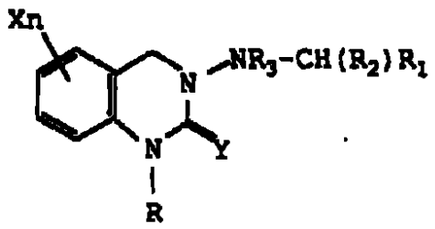
[0049]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
105	$CH_2CH=CH_2$	6-I	p.f. 162-164
106	$CH_2OC_2H_5$	6-I	p.f. 111.3-161.7
107	CH_2(4-Cl-pH)	6-I	p.f. 146-149
108	$COCH_3$	6-I	p.f. 186-188
109	COC_2H_5	6-I	p.f. 135-139
110	SO_2CH_3	6-I	p.f. 174-181
111	SO_2Ph	6-I	p.f. 199-205
112	H	6-OCF_2CHF_2	p.f. 251.6-263.3
113	CO-c-C_3H_7	6-I	p.f. 172-175

[0050]

[Fórmula 10]



[0051]

Tabla 4 (R_2=H, Y=O, R_3=H, excepto para el grupo indicado especialemente.)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
114	H	Q_2	5-OH	
115	H	Q_2	6-OH	p.f. 223-225 °C
116	H	Q_2	7-OH	p.f. 258-259 °C
117	H	Q_2	8-OH	p.f. 177-180 °C
118	H	Q_2	5-Br	
119	H	Q_2	6-Br	p.f. >300°C
120	H	Q_2	7-Br	
121	H	Q_2	8-Br	
122	H	Q_2	5-I	
123	H	Q_2	6-I	
124	H	Q_2	7-I	
125	H	Q_2	8-I	
126	H	Q_2	5-CF_3	
127	H	Q_2	6-CF_3	p.f. 191.0-193.1 °C
128	H	Q_2	7-CF_3	
129	H	Q_2	8-CF_3	
130	H	Q_2	5-C_2F_5	
131	H	Q_2	6-C_2F_5	
132	H	Q_2	7-C_2F_5	
133	H	Q_2	8-C_2F_5	
134	H	Q_2	5-i-C_3F_7	
135	H	Q_2	6-i-C_3F_7	p.f. 159.4-161.0 °C
136	H	Q_2	7-i-C_3F_7	

[0052]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
137	H	Q_2	8-i-C_3F_7	
138	H	Q_2	5-n-C_6F_{13}	
139	H	Q_2	6-n-C_6F_{13}	p.f. 153.9-164.7 °C
140	H	Q_2	7-n-C_6F_{13}	
141	H	Q_2	8-n-C_6F_{13}	
142	H	Q_2	5-OCF_3	
143	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5233(22.6°C)
144	H	Q_2	7-OCF_3	
145	H	Q_2	8-OCF_3	
146	H	Q_2	5-CH_2-Ph	
147	H	Q_2	6-CH_2-Ph	
148	H	Q_2	7-CH_2-Ph	
149	H	Q_2	8-CH_2-Ph	
150	H	Q_2	5-$OCHF_2$	
151	H	Q_2	6-$OCHF_2$	p.f. 129.7-130.2 °C
152	H	Q_2	7-$OCHF_2$	
153	H	Q_2	8-$OCHF_2$	
154	H	Q_2	5-SCF_3	
155	H	Q_2	6-SCF_3	
156	H	Q_2	7-SCF_3	
157	H	Q_2	8-SCF_3	
158	H	Q_2	5-SC_2F_5	
159	H	Q_2	6-SC_2F_5	

[0053]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_3	Xn	Propiedad física
160	H	Q_2	7-SC_2F_5	
161	H	Q_2	8-SC_2F_5	
162	H	Q_2	5-S-i-C_3F_7	
163	H	Q_2	6-S-i-C_3F_7	
164	H	Q_2	7-S-i-C_3F_7	
165	H	Q_2	8-S-i-C_3F_7	
166	H	Q_2	5-$SOCF_3$	
167	H	Q_2	6-$SOCF_3$	
168	H	Q_2	7-$SOCF_3$	
169	H	Q_2	8-$SOCF_3$	
170	H	Q_2	5-SO_2CF_3	
171	H	Q_2	6-SO_2CF_3	
172	H	Q_2	7-SO_2CF_3	
173	H	Q_2	8-SO_2CF_3	
174	H	Q_2	5-SOC_2F_5	
175	H	Q_2	6-SOC_2F_5	
176	H	Q_2	7-SOC_2F_5	
177	H	Q_2	8-SOC_2F_5	
178	H	Q_2	5-$SO_2C_2F_5$	
179	H	Q_2	6-$SO_2C_2F_5$	
180	H	Q_2	7-$SO_2C_2F_5$	
181	H	Q_2	8-$SO_2C_2F_5$	
182	H	Q_2	5-SO-i-C_3F_7	

[0054]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
183	H	Q_2	6-SO-i-C_3F_7	
184	H	Q_2	7-SO-i-C_3F_7	
185	H	Q_2	8-SO-i-C_3F_7	
186	H	Q_2	5-SO_2-i-C_3F_7	
187	H	Q_2	6-SO_2-i-C_3F_7	
188	H	Q_2	7-SO_2-i-C_3F_7	
189	H	Q_2	8-SO_2-i-C_3F_7	
190	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
191	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	
192	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	
193	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
194	H	Q_2	5-COOH	
195	H	Q_2	6-COOH	
196	H	Q_2	7-COOH	
197	H	Q_2	8-COOH	
198	H	Q_2	5-Ph	
199	H	Q_2	6-Ph	
200	H	Q_2	7-Ph	
201	H	Q_2	8-Ph	
202	H	Q_2	5-(4-Cl-Ph)	
203	H	Q_2	6-(4-Cl-Ph)	
204	H	Q_2	7-(4-Cl-Ph)	
205	H	Q_2	8-(4-Cl-Ph)	

[0055]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
206	H	Q_2	5-O-Ph	
207	H	Q_2	6-O-Ph	
208	H	Q_2	7-O-Ph	
209	H	Q_2	8-O-Ph	
210	H	Q_2	5-n-C_4H_9	
211	H	Q_2	6-n-C_4H_9	
212	H	Q_2	7-n-C_4H_9	
213	H	Q_2	8-n-C_4H_9	
214	H	Q_2	6-OCF_2CHF_2	p.f. 168.7-173.9 °C
215	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	p.f. 239.7-243.5°C
216	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$ (R_3=$COCF_3$)	p.f. 209.9-213.4°C
217	CH_3	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5467(23.6°C)
218	C_2H_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5360(24.3°C)
219	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5478(24.1°C)
220	COC_2F_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5174(25.9°C)
221	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	6-OCF_3	p.f. 92.5°C
222	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5325(24.2°C)
223	$CH(CH_3)_2$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5370(24.8°C)
224	H	Q_2	6-OCF_3 (R_3=COC_2H_5)	nD 1.5380(26.0°C)
225	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-Br	nD 1.5760(26.2°C)
226	CH_2SCH_3	Q_2	6-Br	nD 1.6030(27.0°C)

[0056]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
227	C_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5974(26.9℃)
228	i-C_3H_7	Q_2	6-Br	nD 1.4680(28.0℃)
229	$COCH_3$	Q_2	6-Br	nD 1.5930(27.2℃)
230	COC_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5861(26.8℃)
231	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	6-Br	nD 1.5885(27.3℃)
232	CO-Ph	Q_2	6-Br	p.f. >300℃
233	CH_3	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5613(27.9℃)
234	C_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5354(26.4℃)
235	n-C_3H_7	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5590(25.8℃)
236	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5917(27.9℃)
237	i-C_4H_9	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5557(26.4℃)
238	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5668(26.5℃)
239	$COCH_3$	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5503(26.1℃)
240	COC_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5470(26.2℃)
241	CO-i-C_3H_7	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5196(28.3℃)
242	CO-Q_{11}	Q_2	6-$OCHF_2$	p.f. 148-155℃
243	CH_3	Q_2	6-CF_2CHF_2	nD 1.5320(26.2℃)
244	C_2H_5	Q_2	6-CF_2CHF_2	nD 1.5239(26.7℃)

[0057]

Las abreviaturas en Tabla 3 y Tabla 4 se indican para los sustituyentes siguientes:

c : grupo hidrocarburo alicíclico

Ph : grupo fenilo,

Q_1 : grupo 2-piridilo,

Q_2 : grupo 3-piridilo,

Q_3 : grupo 4-piridilo,

Q_4 : grupo 2-piridil-N-óxido,

Q_5 : grupo 3-piridil-N-óxido,

Q_6 : grupo 4-piridil-N-óxido,

Q_7 : grupo tiazol-5-ilo,

Q_8 : grupo furan-2-ilo,

Q_9 : grupo 1,3-dioxolan-2-ilo,

Q_{10} : grupo ftalimid-1-ilo,

Q_{11} : grupo tiofen-2-ilo,

[0058]

[EJEMPLOS]

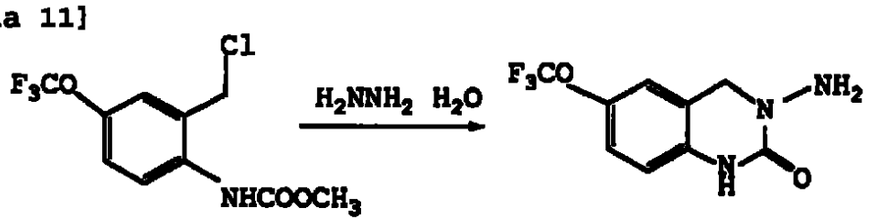
Los ejemplos típicos de la presente invención se describen a continuación, sin embargo el alcance de la presente invención no está restringido por dichos ejemplos.

[0059]

Ejemplo 1

Preparación de 3-amino-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2-(1H)-quinazolinona (Compuesto No. II-30)

[Fórmula 11]



En 20 ml de metanol se disolvió 2,84 g (0,01 mol) de metil 2-clorometil-4-trifluorometoxifenilcarbamato, luego 5 g (0,1 mol) de hidrato de hidrazina se agregó a la solución, y la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, el resto de hidrato de hidrazina y el solvente fueron eliminados de la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado por destilación bajo presión reducida para obtener un producto crudo. El producto crudo resultante era recristalizado de 95% de metanol para obtener 2,22 g del compuesto deseado.

Propiedad física: p.f. 181,5 - 184°C

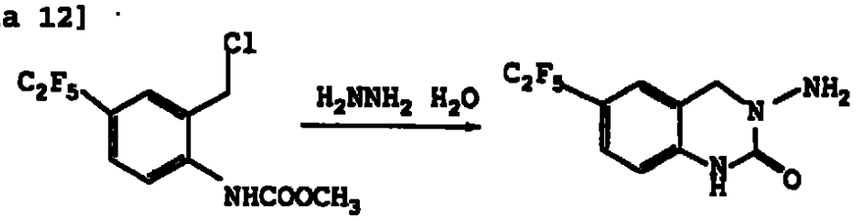
Rendimiento 90%.

[0060]

Ejemplo 2

Preparación de 3-amino-3,4-dihidro-6-pentafluoro-etil-2-(1H)-quinazolinona (compuesto No. II-18)

[Fórmula 12]



En 20 ml de metanol se disolvió 3,18 g (0,01 mol) de metilo 2-clorometil-4-pentafluoroetilfenilcarbamato, luego 5 g (0,1 mol) de hidrato de hidrazina se agregó a esta solución y la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción el resto de hidrato de hidrazina y el solvente fueron eliminados de la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado por destilación bajo presión reducida para obtener un producto crudo. El producto crudo resultante fue recristalizado de 95% metanol para obtener 2,53 g del compuesto deseado.

Propiedad física: p.f. 178,4 - 183,5° C.

Rendimiento: 90%.

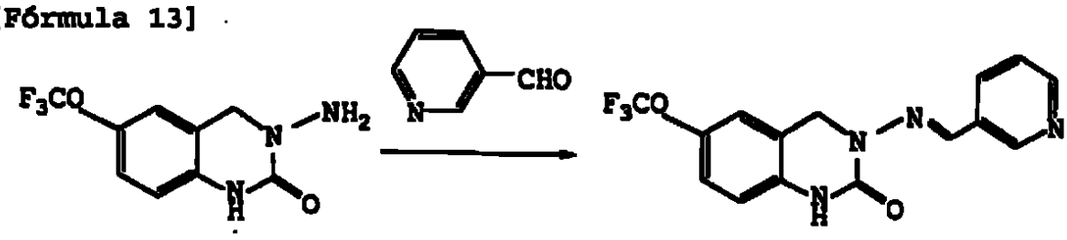
[0061]

Ejemplo 3

Preparación de 3-(3-piridilmetilidenamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona

(Compuesto No. 30)

[Fórmula 13]



A 10 ml de metanol se agregaron 0,62 g (2,5 mmoles) de 3-amino-3,4-dihidro-6-trufluorometoxi-2(1H)-quinazolinona,

0,27 g (2,5 mmol) de nicotinaldehído y 1 gota de ácido sulfúrico, la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, los cristales precipitados en el sistema de reacción fueron recolectados por filtración y se secaron para obtener 0,76 g del producto deseado.

Propiedad física: p.f. 264,5 - 266,0° C.

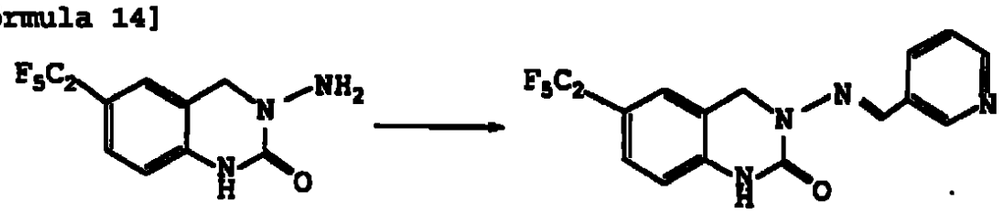
Rendimiento: 93%.

[0062]

Ejemplo 4

Preparación de 3-[1-(3-piridilmetidenamino)-3,4-dihidro-6-pentafluoroetil-2(1H)-quinazolinona (Compuesto No. 18)

[Fórmula 14]



A 10 ml de metanol se agregaron 0,74 g (2,5 mmol) de 3-amino-3,4-dihidro-6-pentafluoroetil-2(1H)-quinazolinona,0,27 g (2,5 mmol) de nicotinaldehído y 1 gota de ácido sulfúrico, la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción los cristales precipitados en el sistema de reacción fueron recolectados por

filtración y se secaron para obtener 0,78 g del producto deseado.

Propiedad física: p.f. 298,0 - 300,0° C.

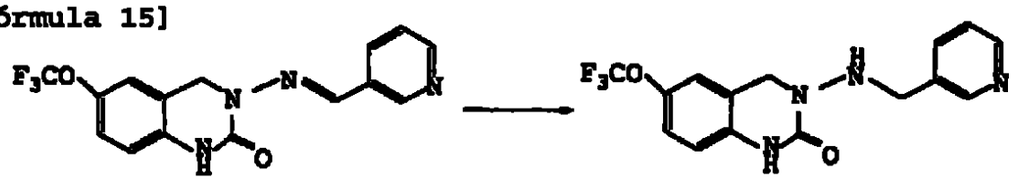
Rendimiento : 84%.

[0063]

Ejemplo 5

Preparación de 3-(3-piridilmetilamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona (Compuesto No. 143)

[Fórmula 15]



A 30 ml de ácido acético se agregaron 3,36 g (2,5 mmol) de 3-(3-piridilmetilidenamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona y 0,2 g de 5% paladio-carbono, la hidrogenación se realizó a 3 a 4 kg/m².

Después de la absorción de una cantidad teórica de hidrógeno, el catalizador fue eliminado de la mezcla de reacción por filtración, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El residuo fue neutralizado agregado de una solución acuosa 20% de hidróxido de sodio y el compuesto deseado se extrajo con cloroformo (20 ml X 3). La solución extraída se lavó con el agua y una solución acuosa saturada con cloruro de

sodio, fue secada sobre sulfato de magnesio anhidro, el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo resultante fue purificado por una cromatografía en columna de gel de sílice (acetato de etilo-metanol=10:1) para obtener 2,5 g del compuesto deseado.

Propiedad física: nD 1,5233 (22,6° C).

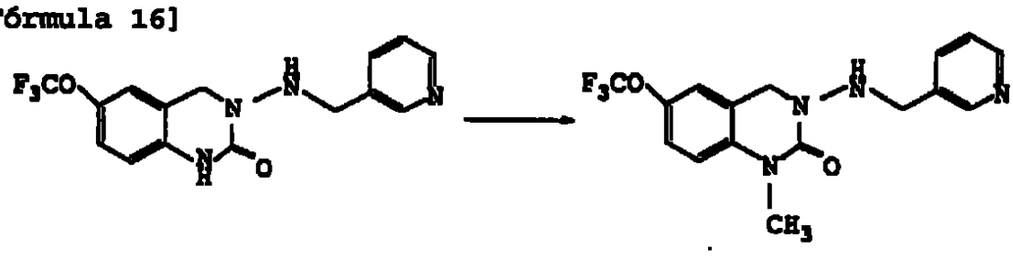
Rendimiento: 74%.

[0064]

Ejemplo 6

Preparación de 1-metil-3-(3-piridilmetilamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona (Compuesto No. 217)

[Fórmula 16]



En 10 ml de dimetilformamida se disolvió 0,68 g (2,0 mmol) de 3-(3-piridilmetilamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona. A la solución, se agregó 0,09 g de hidruro de sodio (62,4 %), y la reacción se realizó a temperatura ambiente durante 30 minutos, luego 0,34 g ioduro de metilo se agregó a la misma y la reacción se realizó durante 4 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla

de la reacción se vierte en una mezcla hielo-agua, el compuesto deseado se extrajo con acetato de etilo (20 ml X 3). La solución extraída se lavó con agua y sol. acuosa saturada de cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magnesio anhidro, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo resultante fue purificado por un cromatografía en columna de gel de sílice (acetato de etilo-metanol=10:1) para obtener 2,5 g del compuesto deseado.

Propiedad física: nD 1,5467 (23,6°C).

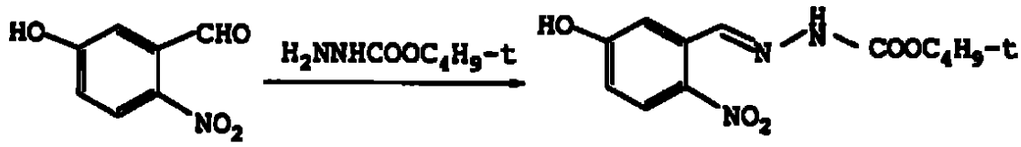
Rendimiento: 50%.

[0065]

Ejemplo 7

7-1. Preparación de t-butil 2-(5-hidroxi-2-nitrofenil-metiliden)carbazato

[Fórmula 17]



A 20 ml de metanol se agregaron 3,34 g (0,02 mol) de 5-hidroxi-2-nitrobenzaldehído, 2,64 g (0,02 mol) de carbazato de t-butilo y 1 gota de ácido sulfúrico, y la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción fue enfriada a temperatura ambiente, los

cristales precipitados fueron recolectados por filtración para obtener 5,06 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [$CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

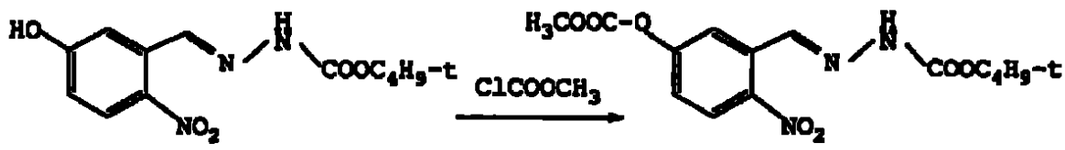
1,57 (9H; s); 6,84 (1H; d.d); 7,66 (1H; d); 7,94 (1H; d); 8,42 (1H; br,s); 8,46 (1H; s); 10,5 (1H; br. s).

Rendimiento: 90%.

[0066]

7-2. Preparación de t-butil 2-(5-metoxicarboniloxi-2-nitrofenilmetiliden)carbazato

[Fórmula 18]



En 15 ml de tetrahidrofurano se disolvieron 4,22 g (0,015 mol) de t-butil 2-(5-hidroxi-2-nitrofenil-metiliden)carbazato que se obtuvo en Ejemplo 7-1 y 1,67 g (0,0165 mol) de trietilamina, luego la solución se enfrió a 0° C. Luego de 15 minutos, a la solución se agregó por gotas 1,56 g (0,0165 mol) de clorofomato de metilo disuelto en 5 ml de tetrahidrofurano, luego la reacción fue continuada en temperatura ambiente durante 3 horas. Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción se vierte en 20 ml de agua, y el compuesto deseado se extrajo con acetato de etilo (20

ml X 3). La solución extraída se lavó con agua y se solución acuosa saturada de cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magnesio anhidro, entonces el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo resultante fue recristalizado de hexano-éter para obtener 4,6 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

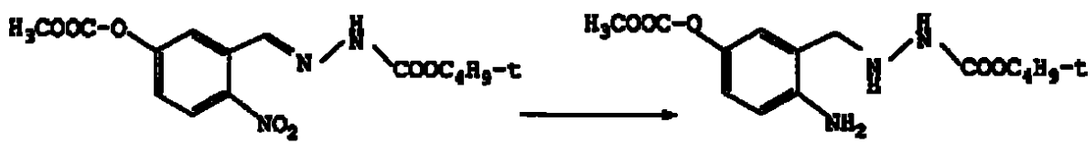
1,54 (9H; s); 3,93 (3H; s); 7,33 (1H; d.d);
8,06 (1H; d); 8,14 (1H; d); 8,21 (1H; br.s);
8,45 (1H; s).

Rendimiento: 90 %.

[0067]

7-3. Preparación de t-butil 2-(2-amino-5-metoxicarboniloxifenilmetil)carbazato

[Fórmula 19]



A 50 ml de metanol se agregaron 4,4 g (0,013 mol) de t-butil 2-(5-metoxicarboniloxi-2-nitrofenilmetiliden)carbazato que se obtuvo en el Ejemplo 7-2 y 0,4 g de 5% paladio-carbono, luego la reducción catalítica se realizó a 3 - 4 kg/m^2.

Después de la absorción de una cantidad teórica de hidrógeno el catalizador fue eliminado de la mezcla de reacción

por medio de filtración, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida, para obtener 4 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

1,46 (9H; s); 3,87 (3H; s); 3,96 (2H; d);

4,6-5,0 (3H; br.s,); 6,05 (1H; br.s);

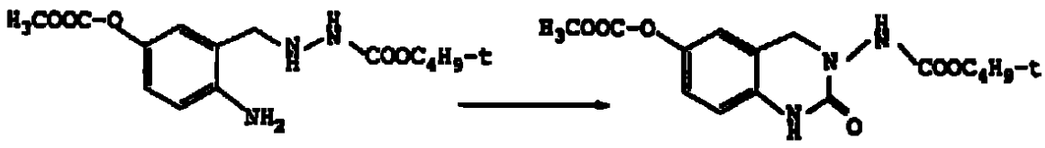
6,6-6,7 (1H; m); 6,8-7,0 (2H; m).

Rendimiento: Cuantitativo.

[0068]

7-4. Preparación de 3-t-butoxicarbonilamino-6-metoxicarboniloxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona

[Fórmula 20]



En 20 ml de tetrahidrofurano se disolvieron 3,1 g (0,01 mol) de t-butil 2-(2-amino-5-metoxicarboniloxifenilmetil)carbazato que se obtuvo en el Ejemplo 7-3 y 2,6 g (0,01 mol) de 1,1'-carbonil-bis(1H-imidazol), la reacción se realizó en la temperatura ambiente durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción se vierte en 20 ml de agua, y el compuesto deseado se extrajo con acetato de etilo (20 ml X 3). La solución

extraída se lavó con agua y solución acuosa saturada de cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magensio anhidro, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo así obtenido fue recristalizado del acetato del hexano-etilo, fue obtenido 2,1 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

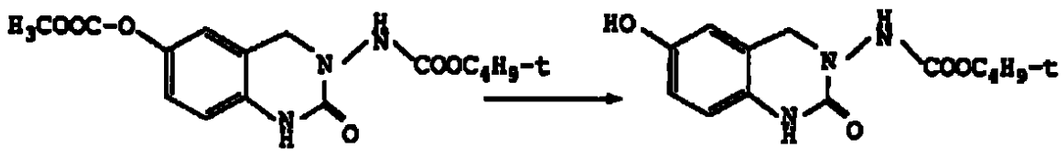
1,42 (9H; s); 3,80 (3H; s); 4,81 (2H; s); 6,5-6,7 (3H; m); 9,01 (1H; s); 9,15 (1H; br.s).

Rendimiento: 60%.

[0069]

7-5. Preparación de 3-t-butoxicarbonilamino-6-hidroxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona

[Fórmula 21]



A 20 ml de 50% metanol se agregaron 2,1 g (0,0062 mol) de 3-t-butoxicarbonilamino-6-metoxicarboniloxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona que se obtuvieron en el Ejemplo 7-4 y 0,64 g (0,0063 mol) de carbonato de sodio, luego la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción el metanol fue eliminado por destilación bajo presión reducida. Al residuo

así obtenido se agregó 10 ml de agua y fue recolectado por filtración, entonces se realiza la recristalización de 95 % metanol para obtener 1,3 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

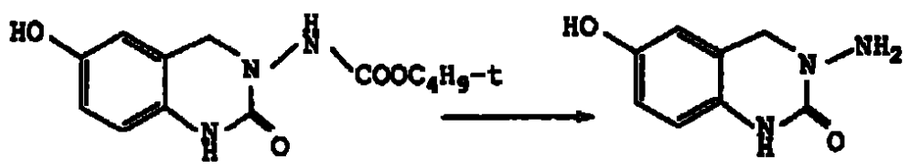
1,42 (9H; s), 4,81 (2H; s), 6,5-6,7 (3H; s),
9,01 (1H; s), 9,10 (1H; s), 9,15 (1H; br.s).

Rendimiento: 75%.

[0070]

7-6. Preparación de 3-amino-6-hidroxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona (Comound No. II-2)

[Fórmula 22]



A 20 ml de ácido trifluoroacético se agregaron 1,3 g (0,0046 mol) de 3-1-butoxicarbonilamino-6-hidroxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona obtenidos en el Ejemplo 7-5, luego la reacción se realizó a temperatura ambiente durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, 10 ml de metanol se agregaron a la mezcla de la reacción, el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El residuo resultante fue recristalizado del metanol para obtener 0,74 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

4,95 (2H; s); 4,65 (2H; s); 6,51-6,63 (3H; m); 9,00 (1H; s); 9,60 (1H; br.s),

Rendimiento: 90 %.

[0071]

Los controladores de plaga conteniendo, como un ingrediente activo, el derivado aminoquinazolinona sustituido (tione) de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención son adecuados para controlar diversas plagas de insecto tales como plagas de insecto agrícolas, plagas de insecto de bosque, plagas de insecto hortícolas, plagas de insecto de grano almacenado, plagas de insecto sanitarias, nemátodos, etc. Éstos también tienen un efecto insecticida, por ejemplo, en HEMIPTEROS incluso la langosta verde del té (Empoasca onukii), langosta de arroz verde (Nephotettix cincticeps), langosta marrón de arroz (Nilaparvata lugens), (Sogatella furcifera), (Diaphorina citri), mosca blanca del cítrico (Dialeurodes citri), mosca blanca de la batata (Bemisia tabaci), mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporarioum), pulgón (Brevicoryne brassicae), pulgón de algodón (Aphis gossypii), pulgón de avena (Rhopalosiphum padi), pulgón verde del duraznero (Myzus persicae), cochinilla de cera india (Ceroplastes ceriferus), (Pulvinaria aurantii), (Pseudaonidia duplex),

[0072]

cochinilla San José (Comstockaspis perniciosa),

cochinilla punta de flecha (Unaspis yanonensis), bicho de la hoja de arroz (Trigonotylus colelestialium), etc., TILENQUIDOS inclusive los nemátodos de lesión de raíz de café (Pratytlenchus coffeae), nemátodo de quiste de papa (Globodera rostochiensis), anguilulosis de la raíz (Meloidogyne sp.), nemátodo de los citrus (Tylenchulus semipenetrans), Aphelenchus. sp (Aphelenchus avenae), nematodo de foliar de crisantemo (Aphelenchoides ritzemabosi), etc., y ORTOPTEROS que incluyen el gorgojo de arroz (Stenchaetothrips biformis), etc.

Adicionalmente, los controladores de plaga de la presente invención producen menores efectos perjudiciales contra los insectos útiles, por ejemplo, gusano de seda (Bombyx mori), larva del poroto (Osmia cornifrons) y lo similar, de esta manera se pueden mencionar com insecticidas altamente seguros.

Los nombres zoológicos y lo similar están de acuerdo con la Sociedad de Zoología y Entomología Aplicada de Japón, "List of Agricultural and Forest Injurious Animals and Insects", publicado en 1987.

[0073]

El controlador de plaga que contiene como ingrediente activo el derivatdo (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención posee un marcado efecto de control en las plagas de insecto, plagas sanitarias, y/o nematodos ejemplificados precedentemente que son dañinos para los campos de arroz, árboles frutales,

verduras y otros cultivos, y flores y plantas ornamentales. Por consiguiente, el efecto deseado del insecticida de la presente invención puede ser obtenido aplicando el insecticida al agua del campo de arroz, la planta de arrozal, los árboles frutales, verduras, otros cultivos, semillas de flores y plantas ornamentales, raíces, tallos y hojas de plantas, suelo, etc., o al dentro de una casa o regaderas automáticas alrededor de una casa en la cual las plagas de insecto sanitarias dañinas para los hombres y bestias ejemplificadas precedentemente se presentan o se espera que se presenten. La aplicación se lleva a cabo en una estación en la cual se espera que las plagas del insecto, plagas sanitarias o nemátodos aparezcan, antes de su aparición o en el momento en el cual su presencia está confirmada. La presente invención sin embargo no debe limitarse a éstas modalidades de realización.

[0074]

Cuando el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención se usa como un controlador de plaga, el derivado o sal se prepara generalmente en las formas convenientemente utilizables según una modalidad convencional para la preparación de agroquímicos.

Es decir, el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención y, opcionalmente, un auxiliar es mezclado con

un portador inerte conveniente en una proporción apropiada y se prepara en una modalidad de la preparación conveniente como una suspensión, concentrado emulsionable, concentrado soluble, polvo humectable, gránulos, polvo o tabletas a través de la disolución, dispersión, suspensión, mezcla, impregnación, adsorción o pegado.

El portador inerte usado en la presente invención puede ser sólido o líquido. Como el portador sólido, pueden ejemplificarse harina de soja, harina de cereal, aserrín de madera, polvo de corteza, polvo de aserrín, polvo de tallo de tabaco, polvo de cáscara de nuez, salvado, polvo de celulosa, residuo de extracción de verduras, polvos o resinas de polímeros sintéticos, arcillas (caolín por ej., bentonita, y la arcilla ácida), talcos (talco por ej. y pirofilita), polvo de sílice o escamas (tierra de diatomeas por ej., arena de sílice, mica y carbón blanco, es decir sintético, ácido silícico de alta dispersión, también llamado sílice hidratado finamente dividido o ácido silícico hidratado, algunos de los productos comercialmente disponibles, contienen silicato de calcio como el componente principal), carbón activado, polvo de azufre, piedra pómez en polvo, tierra de diatomeas calcinada, polvo de ladrillo, ceniza de mosca, arena, polvo de carbonato de calcio, polvo de fosfato de calcio y otros polvos inorgánicos o minerales, fertilizantes químicos (por ej. sulfato de amonio, fosfato de amonio, nitrato de amonio, urea y cloruro de amonio),

y abonos. Estos portadores pueden usarse solos o como una mezcla de los mismos.

[0075]

El portador líquido es aquel que por sí mismo posee solubilidad o que no posee tal solubilidad pero que es capaz de dispersar un ingrediente activo con la ayuda de un auxiliar. Los siguientes son ejemplos típicos del portador líquido y puede usarse solo o como una mezcla de los mismos. El Agua; metanoles tales como alcoholes, etanol, isopropanol, butanol y etilén glicol; cetonas tales como acetona, etilo metil cetona, metil isobutil cetona, diisobutil cetona y ciclohexanona; éteres tales como etil éter, dioxano, cellosolve, dipropil éter y tetrahidrofurano; hidrocarburos alifáticos como querosén y aceite mineral; los hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, nafta solvente y alquilnaftalenos; los hidrocarburos halogenados tales como dicloroetano, cloroformo y tetracloruro de carbono; ésteres tales como etil cetato, diisopropil ftalato, dibutil ftalato y dioctil ftalato; amidas tales como dimetilformamida, dietilformamida y dimetilacetamida; nitrilos tales como acetonitrilo; y dimetil sulfóxido.

[0076]

Lo siguiente son ejemplos típicos del auxiliar, el cual se usa dependiendo en los propósitos y se usa solo o en combinación en algunos casos, o no necesita ser usado en absoluto.

Se utiliza para emulsionar, dispersar, disolver y/o humectar un ingrediente activo, un agente tensioactivo. Como el agente tensioactivo, pueden ejemplificarse alquil éteres de polioxietileno, alquilaril éteres de polioxietileno, polioxietilén ésteres de ácido graso superior, resinatos de polioxietileno, sorbitan monolaurato de polioxietileno, sorbitan monooleato de polioxietileno, alquilarilsulfonatos, los productos de la condensación de ácido naftalensulfónico, ligninsulfonatos y ésteres sulfato de alcohol superior.

[0077]

Además, para estabilizar la dispersión de un ingrediente activo, su adhesión y/o unión, pueden usarse auxiliares tales como caseína, gelatina, almidón, metil celulosa, carboximetil celulosa, goma arábiga, polivinil alcoholes, trementina, aceite de salvado, bentonita y ligninsulfonatos.

Para mejorar la fluidez de un producto sólido, pueden usarse auxiliares tales como ceras, estearatos y fosfatos de alquilo.

Los auxilires tales como los productos de la condensación de ácido naftalensulfónico y policondensados de fosfatos pueden usarse como un peptizador para los productos dispersables.

Los auxiliares tales como aceites de silicona también pueden ser usados como un agente de despumación.

El contenido del ingrediente activo puede variar según sea requerido. En polvos o gránulos, el volumen conveniente es desde 0,01 a 50 % en peso. En concentrado emulsionable o polvos humectables diluibles, también es de 0,01 a 50% en peso.

[0078]

El controlador de plaga que contiene como ingrediente activo el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención se usan para controlar una variedad de plagas de insecto de la manera siguiente. Es decir, se aplica a las plagas de insecto o un sitio en donde no se desea que se presenten o crezcan las plagas del insecto, tal como está o después de diluirse apropiadamente con o suspendido en agua o lo similar, en una cantidad eficaz para el control de las plagas de insecto.

La dosis de aplicación del controlador de plaga que contiene como un ingrediente activo el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención varía dependiendo de diveros factores tales como propósito, plagas de insecto a ser controlado, estado de crecimiento de una planta, tendencia de aparición de plagas de insecto, clima, condiciones medioambientales, forma de la preparación, método de aplicación, sitio de aplicación y tiempo de aplicación. Puede elegirse apropiadamente en el rango desde 0,1 g hasta 5 kg (en términos del ingrediente activo) por 0,1 hectárea dependiendo de los

propósitos.

El controlador de plaga que contiene como ingrediente activo el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención puede usarse en una mezcla con otros insecticidas o fungicidas para extender tanto el espectro de especie de plaga de insecto controlable como el periodo de tiempo cuando las aplicaciones eficaces son posibles o para reducir la dosificación.

Los ejemplos de formulación y ejemplos de prueba típicos de la presente invención se describen a continuación pero los mismos no deben interpretarse como limitadores del alcance de la invención.

En los ejemplos de formulación, las partes son todas en peso.

[0079]

Ejemplo de Formulación 1

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	50 partes
Xileno	40 partes
Mezcla de polioxietilen nonilfenil éter y calcio alquilbencensulfonato	10 partes

Un concentrado emulsionable fue preparado mezclando los ingredientes anteriores uniformemente para efectuar la disolución.

Ejemplo de formulación 2

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	3 partes
Polvo de la arcilla	82 partes
Polvo de tierra de diatomeas	15 partes

Un polvo fue preparado mezclando uniformemente y moliendo los ingredientes anteriores.

[0080]

Ejemplo de formulación 3

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	5 partes
Polvo mezclado de bentonita y arcilla	90 partes
Lignin sulfonato de calcio	5 partes

Los gránulos fueron preparados mezclando los ingredientes anteriores uniformemente, y amasando la mezcla resultante junto con una cantidad conveniente de agua, seguido por granulación y secado.

Ejemplo de formulación 4

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	20 partes
Mezcla de caolín y ácido silícico de alta dispersión sintético,	75 partes
Mezcla de polioxietilen nonilfenil éter y alquilbenzenesulfonato de calcio	5 partes

Un polvo humectable fue preparado mezclando uniformemente y moliendo los ingredientes anteriores.

[0081]

Ejemplo de prueba 1

Eficacia del control contra el pulgón verde del duraznero (Myzus persicae)

Una planta de repollo de la china se plantó en cada una de las macetas de plástico con un diámetro de 8 cm y una altura de 8 cm y los pulgones verdes del duraznero se propagaron en la planta después de lo cual se contaron los parásitos en cada maceta.

Cada uno de los derivados aminoquinazolinona (tiona) sustituidos de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención que se enumera en las Tablas 3 y 4 se dispersó y se diluyó en agua para obtener un líquido químico de 500 ppm. Los tallos y hojas de las plantas de repollo de la se China se rociaron con el líquido químico y se secaron por aire, y luego las macetas se almacenaron en un invernáculo. Seis días después del rociado, los pulgones verdes del duraznero parasitario en cada planta de repollo de la China se contaron y el grado de eficacia de control fue calculado por medio de la ecuación siguiente, con la cual el efecto del insecticidal se evaluó según el criterio indicado a continuación.

[0082]

Eficacia de control = 100 - {(T x Ca)/(Ta x C)}x 100

Ta: número de parásitos antes de rociar en grupo tratado,

T: número de parásitos después de rociar en grupo tratado,

Ca: número de parásitos antes de rociar el grupo no tratado,

C: número de parásitos después de rociar el grupo no tratado.

Criterio:

Eficacia	Porcentaje de control (%)
A	100
B	99 - 90
C	89 - 80
D	79 - 50

[0083]

Ejemplo de prueba 2

Efecto insecticida en el langosta marrón de arroz (Nilaparvata Lugens)

Cada uno de los derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención enumerados en Tablas 3 y 4 se dispersó y se diluyó con agua para obtener un líquido químico con 500 ppm. Las plantas de arroz (cultivo: Nihonbare) se sumergieron en el líquido químico durante 30 segundos y se secó por aire después de lo cual cada planta se coloca en un tubo de ensayo de vidrio y se inoculó con 10 ninfas de tercer etapa de langosta marrón de arroz, y el tubo de ensayo se tapa con un tapón de algodón. Ocho días después de la inoculación, se contaron los especímenes muertos y vivos. La tasa de mortalidad fue calculada por la

232
00241

ecuación siguiente y el efecto de control se evaluó según el criterio descripto a continuación.

Mortalidad de larvas corregida (%) = {(Ca/c-Ta/T)/Ca/c)x100

Ta: número de ninfas vivas en grupos tratados

T: número de ninfas inoculadas en grupos tratados

Ca: número de ninfas vivas en el grupo no tratado

c: número de ninfas inoculadas en grupos no tratados

Criterio: igual que el de Ejemplo de prueba 1.

[0084]

Ejemplo de prueba 3

Prueba insecticida en mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporariorum)

Cada uno de los compuestos de la presente invención enumerados en Tabla 3 y Tabla 4 se dispersaron y se diluyeron con agua para preparar un líquido de prueba que contiene 100 ppm del compuesto de la prueba. Mediante utilización de una pistola rociadora, el líquido de prueba se roció en la superficie de una hoja de planta de tomate colocada en una ampolla de 20 ml que contiene agua en una mesa giratoria. Después de secado por aire, la hoja tratada con el líquido de prueba se coloca en un cilindro de vidrio, y se inoculó con 20 adultos de mosca blanca de invernadero. Después de la inoculación, la hoja se puso en un invernadero, y el número de adultos de mosca blanca del invernadero fue contado. La tasa mortalidad de los adultos se

calculó de manera similar a la realizada en el Ejemplo de prueba 2, y el efecto insecticidal de cada uno de los compuestos de prueba fue evaluado por un método idéntico al Ejemplo de prueba 1.

[0085]

De los resultados obtenidos en Ejemplo de prueba 1, 2 y 3 se desprende: en el Ejemplo de prueba 1, los Compuestos No. 6, 18, 22, 26, 30, 119, 135, 139 y 143 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con A contra el pulgón verde del duraznero (Myzus persicae); en el Ejemplo de prueba 2, los Compuestos No. 6, 18, 22, 26, 30, 119, 135, 139 y 143 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con A contra la langosta (Nilaparvata lugens); y en el Ejemplo de prueba 3, los Compuestos No. 6, 10, 14, 18, 22, 26, 30, 38, 78, 86, 90, 119, 135, 139 y 143 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con D o superior contra la mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporariorum); particularmente, los Compuestos No. 6, 18, 22, 26, 30, 119, 135, 139 y 143 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con A.

[0086]

[Efectos de la invención]

Los controladores de plaga de la presente invención conteniendo, como el ingrediente activo, derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos o sales de los mismos representados por la fórmula general (I) poseen excelente efecto

insecticida en bajas dosis contra la mosca blanca de invernadero (Trialeurodes vaporariorum) y lo similar, respecto a compuestos convencionales con estructura química análoga que no presentan el efecto insecticida deseado. De esta manera, los activo, derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos de la presente invención son excelentes controladores de plagas en comparación con los controladores convencionales.

235

00244

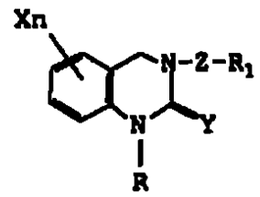
[Título del documento] Resumen

[Resumen]

[Medios de resolución]

Un controlador de plaga que contiene, como ingrediente activo, un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o sal del mismo representado por la fórmula general (I):

[Fórmula 1]



(I)

[en donde R es H, OH, grupo formilo, grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo hidroxi(C_{1-6})alquilo, grupo alquenilo (C_{2-6}), grupo alquil(C_{1-6})amino (sustituido), grupo aminocarbonilo (sustituido), grupo fenil(C_{1-3})alquilo (sustituido), grupo fenilalquinil(C_{1-3})alquilo (sustituido), grupo 1,3-dioxolan-2-il-alquilo (C_{1-3}), grupo ftalimido(C_{1-6})alquilo y lo similar; R_1 es grupo heterocíclico de 5 a 6 miembros que posee 1 a 3 heteroátomos seleccionados del grupo que consiste de O, S y N; Y es O ó S; Z es grupo de la fórmula -N=C(R_2)- o -N(R_3)-CH(R_2) (en donde cada uno de R_2 y R_3 es átomo de hidrógeno, grupo alquilo (C_{1-6}) o lo similar); X es Br, I, OH, CN, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}), grupo aminocarbonilo (sustituido), grupo feniloxilo (sustituido) o lo similar; n es un entero de 0 a 4].

[Efecto]

Dicho derivado aminoquinazolinona sustituido o sal del mismo posee excelente efecto insecticida a bajas dosis contra la mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporariorum) y lo similar respecto a compuestos convencionales con estructura química similar que no presentan el efecto insecticida deseado.

[Dibujo seleccionado] Ninguno

105901C2 237

~~00246~~

OFICINA DE PATENTES

GOBIERNO JAPONES

La presente es para certificar que lo anexado es una copia fiel de la siguiente solicitud que fue registrada en esta oficina.

FECHA DE SOLICITUD:	30 de marzo de 2000
NRO. DE SOLICITUD DE PATENTE	2000-094493
SOLICITANTE(S):	NIHON NOHYAKU CO., LTD.

A los 10 días de noviembre de 2000.

Kouzo OIKAWA
Comisionado
OFICINA DE PATENTES

Certificado No. 2000-3094025

2000-094493

[Título de Documento] Solicitud de Patente
[Número de referencia] C8121
[Fecha de registro] 30 de marzo de 2000
[Destinatario] Comisionado de la Oficina de Patentes
[Clasificación de patentes Internacional] C07D 235/00
A01N 43/40

[Inventor]
[Domicilio] 115-12, Joroku, Sakai-shi, Japón.
[Nombre] Masahiro UEHARA
[Inventor]
[Domicilio] 1-28, Nishinoyamacho, Kawachinagano-shi, Japón.
[Nombre] Masamitsu WATANABE
[Inventor]
[Domicilio] 15-5, Midorigaokaminamimachi, Kawachinagano-shi, Japón.
[Nombre] Masayuki KIMURA
[Inventor]
[Domicilio] 1-28-305, Nishinoyamacho, Kawachinagano-shi, Japón.
[Nombre] Masayuki MORIMOTO
[Inventor]
[Domicilio] 5-3, Koyodai-2-chome, Hashimoto-shi, Japón.
[Nombre] Masanori YOSHIDA
[Solicitante]
[Número de ID de solicitante] 0 0 0 2 3 2 6 2 3
[Nombre] NIHON NOHYAKU CO., LTD.
[Agente]
[Número de ID del Agente] 1 0 0 0 6 8 6 1 8
[Abogado de Patentes]
[Nombre] Norio HANABUSA
[Teléfono] 03-3291-9721

[Agente]
[Nro. de ID de agente] 1 0 0 0 9 3 1 9 3
[Abogado de patentes]
[Nombre] Toshio NAKAMURA
[Agente]
[Nro. de ID de agente] 1 0 0 1 0 4 1 4 5
[Abogado de patentes]
[Nombre] Yoshio MIYAZAKI
[Reivindicando prioridad basada en solicitud anterior:]
[Solicitud de Patente japonesa No.] 11-312297
[Fecha de solicitud de Patente japonesa] 2 de noviembre de 1999

[Indicación de Impuesto]
[No. de registro de pago previo] 018120
[Importe del Impuesto] ¥21.000-
[Lista de Documentos Anexados]
[Título del artículo] Descripción 1
[Título del artículo] Resumen 1
[Número de poder general] 9 7 1 0 3 6 9
[Prueba: Solicitada o no] Si

240
GU249

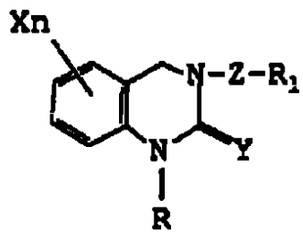
[Título del documento] Descripción

[Título de la invención] DERIVADOS (TIONA) AMINOQUINAZOLINONA SUSTITUIDOS O SALES DE LOS MISMOS, COMPUESTOS INTERMEDIOS DE LOS MISMOS, Y CONTROLADORES DE PLAGAS Y UN MÉTODO PARA UTILIZACIÓN DE LOS MISMOS

[Alcance de reivindicación para una patente]

[Reivindicación 1] Un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido caracterizado por que está representado por la fórmula general (I), o una sal del mismo:

[Fórmula 1]



(I)

en donde R es un átomo de hidrógeno; un grupo hidroxilo; un grupo formilo; grupo alquilo (C_{1-12}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo hidroxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo (C_{1-6}) alcoxilo; un grupo alcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo alcoxi (C_{1-6})alcoxi(C_{1-3})alquilo(C_{1-3}); un grupo alquiltio(C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo alquiltio (C_{1-6}) alquilo (C_{1-3}); un grupo dialcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}) en el cual los grupos

alcoxilos (C_{1-6}) pueden ser iguales o diferentes; un grupo alquil (C_{1-6})amino sin sustituir; un grupo alquil(C_{1-6})amino sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo, grupos alquenilo (C_{2-6}) y grupos alquinilo (C_{2-6}); un grupo ciano(C_{1-6})alquilo; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo hidroxicarbonil(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxicarbonil (C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupos alquilo (C_{1-6}), grupos alquenilo (C_{2-6}) y grupos alquinilo (C_{2-6}); un grupo cicloalquil (C_{3-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6}) alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos

~~00251~~

242

halo(C_{1-6})alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo (C_{1-6}) alquiltio; un grupo feniltio sin sustituir; un grupo feniltio sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo fenilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6}) alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6}) alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; grupo feniloxicarbonilo sin sustituir; un grupo feniloxicarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste

de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sin sustituir, un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6}) alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil (C_{2-6})alquenilo sin sustituir, un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6}) alquiltio y grupos alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-6}) alquinilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo, grupos alcoxilo (C_{1-6}), grupos halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquiltio y grupos alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo

fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3}) alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo, grupos (C_{1-6}) alcoxilo, grupos halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo 1,3-dioxolan-2-il(C_{1-3}) alquilo; o un grupo ftalimido(C_{1-6})alquilo,

R_1 es un anillo heterocíclico de 5- ó 6- miembros que posee 1 a 3 heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno, dicho anillo heterocíclico puede tener 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupos halo(C_{1-6})alquilo y grupos alcoxilo (C_{1-6}), y el átomo de nitrógeno en el anillo heterocíclico puede formar un grupo N-óxido,

Y es el átomo de un oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$$-N=C(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 es igual al definido precedentemente, y R_3 es un

átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo formilo, un grupo alquilcarbonilo (C_{1-3}) o un grupo halo(C_{1-3}) alquilcarbonilo),

X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-10})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir: un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6}) alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ácido sulfónico; un grupo éster ácido sulfónico; un grupo sulfonamida que posee un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}) o un grupo alquinilo (C_{2-6}) en el átomo de nitrógeno; un grupo

alcoxisulfonilo (C_{1-6}); un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio, grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}) y un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3}) alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo

(C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de valor 0 a 4.

[Reivindicación 2] Un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizado por que R es un átomo de hidrógeno; un grupo formilo; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo (C_{1-6}) alcoxi(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxi(C_{1-6})alcoxi(C_{1-3})alquilo(C_{1-3}); un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquil(C_{1-6})amino sin sustituir; un grupo alquil(C_{1-6})amino sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ciano(C_{1-6})alquilo; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo hidroxicarbonil(C_{1-3})alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6}) alquilo(C_{1-3}); un grupo cicloalquil(C_{3-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un

grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniltio sin sustituir; un grupo feniltio sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupos alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sin sustituir; o un grupo fenilalquinil(C_{2-4})alquilo (C_{1-3}) sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio

y grupos alquilendioxilo (C_{1-3}),

R_1 es un anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 a 3 heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste del átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno, dicho anillo heterocíclico puede tener 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos ciano, grupos alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo y grupo alcoxilo (C_{1-6}), y el átomo de nitrógeno en el anillo heterocíclico puede formar un grupo N-óxido,

Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$$-N=C(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6}), y R_3 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), grupo formilo, un grupo alquilcarbonilo (C_{1-3}) o un grupo halo(C_{1-3}) alquilcarbonilo),

X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo; un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo halo

(C_{1-6})alquilo, un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6}) alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo (C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupos alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden sea iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste en átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; o un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes

y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de valor 0 a 4.

[Reivindicación 3] Un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con la reivindicación 2, caracterizado por que R es un átomo de hidrógeno; un grupo formilo; un grupo alquilo (C_{1-12}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), y grupos halo

252

~~60261~~

(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}), un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}), R^1 es un grupo piridilo,

Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$-N=C(R_2)-$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6}), y R_3 es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6}),

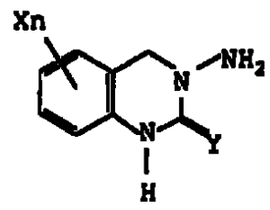
X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo; un

átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo, un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo; un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo halo(C_{1-6}) alquilsulfinilo; un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupos alquiltio (C_{1-6}) y grupos halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; o un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes

y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupos nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de valor 0 a 4.

[Reivindicación 4] Un compuesto caracterizado por que está representado por la fórmula general (II),

[Fórmula 2]



(II)

en donde, X puede ser igual o diferente y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo; un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un

grupo carboxi(C_{1-6}) alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo de ácido sulfónico; un grupo éster ácido sulfónico; un grupo sulfonamida que posee un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}) o un grupo alquinilo (C_{2-6}) en el átomo de nitrógeno; un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes

256
265

y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; n es un entero de valor 0 a 4; e Y es átomo de un oxígeno o un átomo de azufre.

[Reivindicación 5] Un controlador de plaga caracterizado por que comprende como ingrediente activo un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con las reivindicaciones 1 a 3.

[Reivindicación 6] Un controlador de plagas caracterizado por que comprende como ingrediente activo un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con las reivindicaciones 1 a 3, y uno o mas compuestos agroquímicos distintos.

[Reivindicación 7] Un método para controlar plagas caracterizado por que comprende aplicar un controlador de plaga que comprende como ingrediente activo un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o una sal del mismo de acuerdo con las reivindicaciones 1 a 3, a los cultivos objetivo o el suelo.

[Descripción detallada de la invención]

[0001]

[Campo técnico al cual pertenece la invención]

La presente invención se refiere a derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos o sales de los mismos, compuestos

intermedios de los mismos para preparar los mismos, controladores de plaga y un método para usar los mismos.

[0002]

[Técnica anterior relacionada]

La publicación de patente Japonesa no examinada, JP-A8-325239 describe que los derivados de aminoquinazolinona son útiles como controladores de plaga.

[0003]

[Problema a ser resuelto por la invención]

Como consecuencia de investigación seriamente dirigida a encontrar a un novedoso controlador de plaga, los presentes inventores encontraron que los compuestos de la presente invención y que poseen sustituyentes en el grupo fenilo que pertenece al anillo quinazolinona, poseen el mismo o mejor efecto insecticida en una baja dosificación en comparación con los compuestos de los Ejemplos descriptos en la JP-A-8-325239 mencionada precedentemente. Particularmente los compuestos de la presente invención poseen el suficiente efecto insecticida contra mosca blanca considerada perjudicial en los campos agrícolas y hortícolas, por consiguiente los presentes inventores han realizado la presente invención.

El derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o sales del mismo representadas por la fórmula general (I) y los compuestos representados por la fórmula general (II) los cuales son compuestos intermedios para preparar los derivados de la

fórmula general (I) son compuestos novedosos que no se han conocido en ninguna literatura de la técnica anterior. Además, los controladores de plaga contienen, como ingrediente activo, el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido representado por la fórmula general (I) o sales del mismo posee el efecto insecticidal excelente contra los diversos insectos en una baja dosificación en comparación con los controladores de plaga convencionales.

[0004]

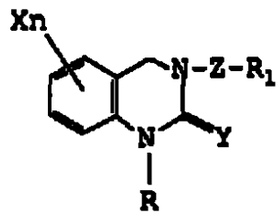
[Medios para resolver el problema]

Los presentes inventores han realizado seriamente una investigación en los derivados (tiona) aminoquinazolinona para desarrollar un nuevo controlador de plaga que posee un extenso espectro insceticida. Finalmente, los inventores han encontrado el hecho que los derivados de aminoquinazolinona novedosos que poseen átomo de bromo, átomo de iodo, grupo perfluoroalquilo, grupo perfluoroalcoxilo o lo similar en el anillo quinazolina poseen una excelente actividad insecticida como controladores de plaga.

[0005]

La presente invención se refiere a derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituido representados por la fórmula general (I), o sales de los mismos:

[Fórmula 3]



(I)

[donde R es un átomo de hidrógeno; un grupo hidroxilo; un grupo formilo; grupo alquilo (C_{1-12}); un grupo halo (C_{1-6}) alquilo; un grupo hidroxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un (C_{2-6}) grupo alquinilo; un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo (C_{1-6}) alcoxilo; un grupo alcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo alcoxi (C_{1-6})alcoxi(C_{1-3})alquilo(C_{1-3}); un grupo alquiltio(C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo alquiltio(C_{1-6})alquilo (C_{1-3}); un grupo dialcoxi(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}) en el cual los grupos alcoxilos (C_{1-6}) pueden ser iguales o diferentes; un grupo alquil(C_{1-6})amino sin sustituir;

[0006]

un grupo alquil(C_{1-6})amino sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ciano(C_{1-6})alquilo; un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}); un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo hidroxicarbonil(C_{1-3}) alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo

aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo cicloalquil (C_{3-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, (C_{1-6}) grupo alquiltio y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenilcarbonilo sin sustituir; un grupo fenilcarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo (C_{1-6}) alquiltio y grupo halo(C_{1-6})alquiltio;

[0007]

un grupo feniltio sin sustituir; un grupo feniltio sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})

alquiltio; un grupo fenilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se selecciona del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-6}) alquilsulfonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; grupo feniloxicarbonilo sin sustituir;

[0008]

un grupo feniloxicarbonilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio; un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sin sustituir, un grupo feniloxi(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se

seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo fenil (C_{2-6})alquenilo sin sustituir, un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupos ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2});

[0009]

un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3}) alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{2-4})alquinil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo (C_{1-6}) alcoxilo, grupo halo

(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio y grupo alquilendioxilo (C_{1-2}); un grupo 1,3-dioxolan-2-il(C_{1-3}) alquilo; o un grupo ftalimido(C_{1-6})alquilo,

[0010]

R_1 es un anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 a 3 heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste del átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno, dicho anillo heterocíclico puede tener 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo y grupo alcoxilo (C_{1-6}), y el átomo de nitrógeno en el anillo heterocíclico puede formar un grupo N-óxido,

Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre,

Z es

$$-N=C(R_2)-$$

(en donde R_2 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}) o un grupo halo(C_{1-6})alquilo), o

[0011]

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(en donde R_2 es igual al definido precedentemente, y R_3 es un átomo de hidrógeno, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo formilo, un grupo alquilcarbonilo (C_{1-3}) o un grupo halo(C_{1-3})

alquilcarbonilo),

X puede ser igual o diferente, y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-10})alquilo; un grupo alquenilo (C_{2-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo;

[0012]

un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un grupo aminocarbonilo sin sustituir: un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6}) alquilo; un grupo alcoxicarbonil (C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo ácido sulfónico; un grupo éster ácido sulfónico; un grupo aminosulfonilo sin sustituir; un grupo sulfonamida que posee un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}) o un grupo alquinilo (C_{2-6}) en el átomo de nitrógeno; un grupo

alcoxisulfonilo (C_{1-6}); un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo,

[0013]

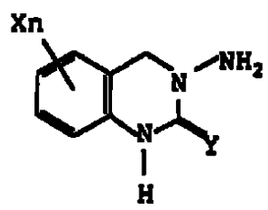
grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquiltio, grupo alcoxisulfonilo (C_{1-6}) y un grupo aminosulfonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3}) alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo

que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; y n es un entero de 0 a 4], controladores de plaga que contienen el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o sal del mismo como el ingrediente activo, y un método para utilizar los controladores de plaga.

[0014]

La presente invención también se refiere a compuestos intermedios para producir los derivados mencionados precedentemente, representados por la fórmula general (II):

[Fórmula 4]



(II)

[en donde, X puede ser igual o diferente y es un átomo de bromo, un átomo de iodo; un grupo hidroxilo; un grupo ciano; un grupo alquilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilo; un grupo alquenilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{2-6})alquenilo; un grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo alcoxilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo; un grupo alquiltio (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo alquilsulfinilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo; un grupo alquilsulfonilo (C_{1-6}); un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo;

[0015]

un grupo carboxilo; un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}); un

grupo aminocarbonilo sin sustituir; un grupo aminocarbonilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo carboxi(C_{1-6})alquilo; un grupo alcoxicarbonil(C_{1-6})alquilo(C_{1-3}); un grupo aminocarbonil (C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo aminocarbonil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee uno o dos sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}) y grupo alquinilo (C_{2-6}); un grupo de ácido sulfónico; un grupo éster ácido sulfónico; un grupo sulfonamida que posee un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}) o un grupo alquinilo (C_{2-6}) en el átomo de nitrógeno; un grupo fenilo sin sustituir; un grupo fenilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo (C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6}) alquiltio;

[0016]

un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sin sustituir; un grupo fenil(C_{1-3})alquilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo halógeno, grupo

nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; un grupo feniloxilo sin sustituir; o un grupo feniloxilo sustituido que posee en el anillo 1 a 5 sustituyentes que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomos de halógeno, grupo nitro, grupo ciano, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo alcoxilo (C_{1-6}), grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, grupo alquiltio (C_{1-6}) y grupo halo(C_{1-6})alquiltio; n es un entero de valor 0 a 4; e Y es átomo de un oxígeno o un átomo de azufre].

[0017]

[Modalidad para realizar la invención]

En las definiciones de cada sustituyente de los derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos de la fórmula general (I) de la presente invención, el "átomo de halógeno" significa un átomo de cloro, un átomo de bromo, un átomo de iodo o un átomo de flúor. El término "(C_{1-12})" significa 1 a 12 átomos de carbono. El término "grupo alquilo (C_{1-12})" significa un grupo alquilo lineal o ramificado de 1 a 12 átomos de carbono, por ejemplo un grupo alquilo tal como metilo, etilo, n-propilo, i-propilo, n-butilo, i-butilo, s-butilo, n-pentilo, n-hexilo, n-heptilo, n-octilo, n-nonilo, n-decilo, n-undecilo, n-dodecilo y lo similar. El término "grupo halo(C_{1-10})alquilo" significa un grupo alquilo sustituido y lineal o ramificado de 1 a 10 carbono átomos que posee, como sustituyente(s), uno o más átomos

halógeno que pueden ser iguales o diferentes, por ejemplo grupo trifluorometilo, grupo pentafluoroetilo, grupo heptafluoropropilo y lo similar. El término "grupo alquenilo (C_{2-6})" significa un grupo alquenilo lineal o ramificado de 2 a 6 átomos de carbono que posee uno o más enlaces dobles. El término "grupo halo(C_{2-6})alquenilo" significa un grupo alquenilo sustituido lineal o ramificado de 2 a 6 átomos de carbono que posee, como sustituyente(s), uno o más átomos de halógeno que pueden ser iguales o diferentes. El término "grupo alquinilo (C_{2-6})" significa un grupo alquinilo lineal o ramificado de 2 a 6 átomos de carbono que posee uno o más enlaces triples.

[0018]

El término "grupo halo(C_{2-6})alquinilo" significa un grupo alquinilo sustituido lineal o ramificado de 2 a 6 carbono átomos que posee, como sustituyente(s), uno o más átomos de halógeno que pueden ser iguales o diferentes. El término "anillo heterocíclico de 5- o 6- miembros que posee 1 o más heteroátomos que pueden ser iguales o diferentes y se seleccionan del grupo que consiste de átomo de oxígeno, átomo de azufre y átomo de nitrógeno" significa cualquier anillo heterocíclico de 5 o 6 miembros por ejemplo, furano, tiofeno, pirrol, oxazol, tiazol, pirazol, imidazol, 1,2,3-tiadiazol, 1,2,4-tiadiazol, 1,2,5-tiadiazol, 1,3,4-tiadiazol, 1,2,4-triazol, piridina, piridazina, pirimidina, pirazina, pirrolidina, piperidina, morpholina, tiomorfolina, ditiolano, ditian, piperazina, dioxolan,

imidazolidina, tetrahidrofurano y lo similar.

[0019]

Los sustituyentes del derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido representados por la fórmula general (I) están preferentemente de acuerdo con lo siguiente: R es un átomo de hidrógeno, un grupo formilo, un grupo alquilo (C_{1-6}), un grupo alquenilo (C_{2-6}), un grupo alquinilo (C_{2-6}), un grupo alquilcarbonilo (C_{1-6}), un grupo alcoxicarbonilo (C_{1-6}), un grupo alquiltio (C_{1-6}), un grupo halo(C_{1-6})alquiltio, un grupo fenilcarbonilo, un grupo fenilcarbonilo sustituido, un grupo fenil(C_{1-6})alquilo sustituido, un grupo fenil(C_{2-6})alquenilo sustituido o un grupo fenil(C_{2-6})alquinilo sustituido; R^1 es un grupo piridilo, particularmente grupo 3-piridilo; Y es átomo de oxígeno o un átomo de azufre; Z es un grupo de la fórmula,

$$-N(R_2)-CH(R_3)-$$

(en donde R_2 y R_3 son cada uno un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo (C_{1-6})); X es un átomo de bromo, un átomo de iodo, un grupo halo(C_{1-6})alquilo, un grupo halo(C_{1-6})alcoxilo, un grupo halo(C_{1-6})alquiltio, un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfinilo, un grupo halo(C_{1-6})alquilsulfonilo o un grupo fenilo); y n puede ser preferentemente un entero de valor 0 a 2.

Como la sal del derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula (I), pueden ejemplificarse sales con

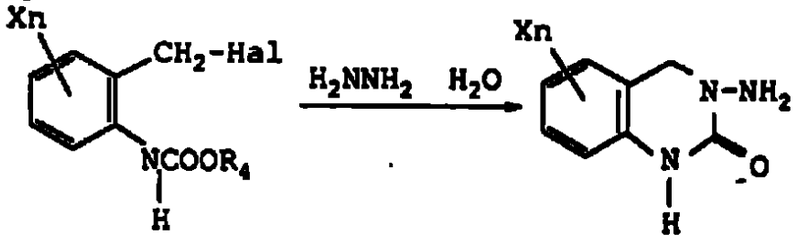
ácidos minerales tales como ácido nítrico, ácido sulfúrico, ácido clorhídrico, etc., y sales con átomos de metal alcalino como sodio, potasio, etc.

[0020]

El compuesto de la fórmula (II), un compuesto intermedio utilizado para producir el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula (I) puede ser producido por cualquiera de los procedimientos siguientes.

Procedimiento de producción 1.

[Fórmula 5]



(III) (II-1)

en donde X y n son iguales a los definidos precedentemente, R_4 es un grupo alquilo (C_{1-6}), y Hal es un átomo de halógeno.

[0021]

Un compuesto de la fórmula general (II-1) puede ser producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general anterior (III) con hidrato de hidrazina en la presencia de un solvente inerte.

Como el solvente inerte utilizable en esta reacción, puede usarse cualquier solvente inerte en tanto no inhiba el progreso de la reacción notablemente. Pueden ejemplificarse

alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; los hidrocarburos halogenados tales como diclorometano, cloroformo, tetracloruro de carbono, etc.; los hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, monoclorobenceno etc.; nitrilos tales como acetonitrilo, benzonitrilo, etc.; cellosolve tal como cellosolve de metilo, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; las amidas tales como dimetilformamida, dimetilacetamida, 1,3-dimetil-2-imidazolidinona, 1-metil-2-pirrolidona, etc.; el dimetil sulfoxido; sulfolano: y agua. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

[0022]

La temperatura de la reacción puede escogerse propiamente en el rango de temperatura ambiente al punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde temperatura ambiente a 90°C.

Debido a que la reacción es una reacción equimolar, es suficiente que el compuesto de la fórmula general (III) y el hidrato de hidrazina se usen en cantidades equimolares, aunque cualquiera de estos reactivos puede usarse en exceso. Es preferible usar hidrato de hidrazina en exceso.

Aunque el tiempo de reacción depende de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., que varía desde varios minutos a 48 horas.

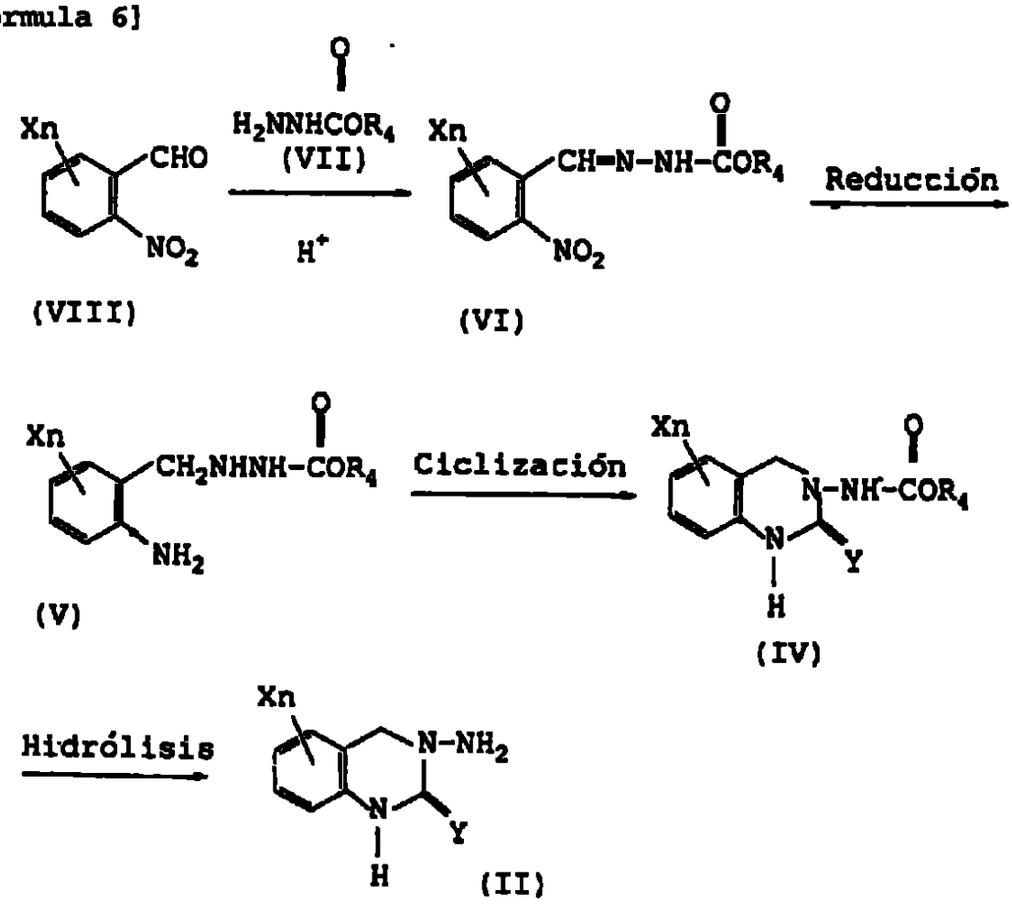
Después de la realización de la reacción, el compuesto

deseado es aislado de la mezcla de reacción que contiene el compuesto deseado por medio de un método convencional, y si es necesario, es purificado por recristalización, cromatografía en columna seca, etc., por medio de lo cual el compuesto deseado puede producirse.

El compuesto de la fórmula general anterior (III) puede producirse según "Collect. Czech. Chem. Commn." (Vol. 55), 752 (1990).

Procedimiento de producción 2.

[Fórmula 6]



en donde R_4, X, Y y n son iguales a los definidos precedentemente.

[0024]

2-1. Fórmula general (VIII) → fórmula general (VI)

Un compuesto de la fórmula general (VI) puede ser producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general (VIII) con un compuesto de la fórmula general (VII) en la presencia de un solvente inerte y un catalizador.

Como el solvente inerte utilizable en esta reacción, pueden usarse, por ejemplo, los solventes inertes ejemplificados en el procedimiento de producción 1. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

Como el catalizador, pueden usarse ácidos inorgánicos (por ej. ácido clorhídrico y ácido sulfúriço), ácido acético, ácido tolunesulfónico, etc. La cantidad del catalizador usada puede ser tal que el catalizador está presente en el sistema de reacción en una cantidad de 0,001 % en peso a 10 % en peso basado en el peso del compuesto de la fórmula general (VIII).

[0025]

Debido a que la reacción es una reacción equimolar, es suficiente que el compuesto de la fórmula general (VIII) y el compuesto de la fórmula general (VII) se usen en cantidades equimolares, aunque cualquiera de estos reactivos puede usarse en exceso.

La temperatura de la reacción puede escogerse

apropiadamente dentro del rango de temperatura ambiente al punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente hasta 90°C.

Aunque el tiempo de reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., que va de varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el procedimiento de producción 1 con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

El compuesto de la fórmula general (VIII) puede ser uno que es comercialmente disponible o puede ser producido por nitración de un benzaldehído sustituido. Además, el compuesto de la fórmula (VIII) puede producirse según el método descripto en "Journal of Chemical Society", 1927, pág. 2375-2378.

[0026]

2-2. Fórmula general (VI) → fórmula general (V)

Un compuesto de la fórmula general (V) puede ser producido reduciendo el compuesto de la fórmula general (VI) con un agente reductor o por reducción catalizadora en la presencia o ausencia de un solvente inerte.

Como el agente reductor, puede usarse, por ejemplo, hidruros de metal tales como, $NaBH_3CN$, $LiBH_3CN$, etc. y agentes reductores tales como BH_3, etc. La cantidad del agente reductor usada puede elegirse apropiadamente dentro del rango desde 1 mol

respecto a los moles en exceso (en los términos del número de moles de hidruro como agente reductor) por mol del compuesto de la fórmula general (VI).

Como el solvente inerte utilizable en la reacción, puede utilizarse cualquier solvente inerte en tanto no inhiba notablemente el progreso de la reacción. Pueden ejemplificarse los alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; cellosolve tal como metil cellosolve, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; los ésteres tales como acetato de etilo, etc.; las amidas tales como dimetilformamida, dimetilacetamida, 1,3-dimetil-2-imidazolidinona, 1-metil-2-pirrolidona, etc.; dimetil sulfóxido; sulfolano; y agua. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

[0027]

La reacción se lleva a cabo bajo las condiciones ácidas o neutras en el pH que puede variar de 1 a 7, preferentemente 4 a 6. Es suficiente que el pH sea ajustado agregando cloruro de hidrógeno, bromuro de hidrógeno o lo similar al sistema de la reacción.

La temperatura de la reacción es elegida en el rango de 0°C al punto de ebullición del solvente, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente hasta 70°C.

Aunque el tiempo de la reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc.,

puede ser desde varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el Procedimiento de producción 1 con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

Cuando la reducción catalítica se lleva a cabo como una reacción de reducción, se realiza según, por ejemplo, el método que se describe en "Shin Jikken Kagaku Koza", Vol. 15-11, "Maruzen Co., Ltd". Como el solvente inerte utilizable en este caso, pueden ejemplificarse alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; cellosolve tal como metil cellosolve, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; los hidrocarburos tales como hexano, ciclohexano, etc.; ácidos grasos o ésteres de los mismos, tales como ácido acético, acetato de etilo, etc.; las amidas tales como dimetilformamida, dimetilacetamida, 1,3-dimetil-2-imidazolidinona, 1-metil-2-pirrolidona, etc.; y ureas tales como tetrametilurea, etc. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

[0028]

Como el catalizador usado en la reacción de reducción, pueden ejemplificarse catalizadores típicos para la reducción catalítica, tales como paladio-carbono, negro de paladio, dióxido de platino, níquel Raney, etc. La cantidad del catalizador usada puede elegirse adecuadamente en el rango desde

0,1% equivalente molar a 5% equivalente molar, preferentemente 0,5% equivalente molar a 1% equivalente molar, en relación al compuesto de la fórmula general (VI).

La presión de hidrógeno en la reacción varía desde la presión atmosférica hasta 300 atmósferas, preferentemente desde presión atmosférica hasta 50 atmósferas.

La temperatura de acción puede elegirse adecuadamente en el rango desde la temperatura ambiente al punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente a 70°C.

Aunque el tiempo de reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., que va de varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el caso de usar un agente reductor, con el cual puede producirse el compuesto deseado.

[0029]

2-3. Fórmula general (V) → fórmula general (IV)

Un compuesto de la fórmula general (IV) puede ser producido haciendo reaccionar el compuesto de la fórmula general (V) con 1,1'-carbonilbis-1H-imidazol (CDI), un haluro del alcoxicarbonilo, fosgeno o tiofosgeno en la presencia de un solvente inerte y en la presencia o ausencia de una base.

Como el solvente inerte utilizable en la reacción,

pueden ejemplificarse éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc., e hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, etc. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

Como la base, puede usarse una base inorgánica o una base orgánica, y pueden ejemplificarse bases inorgánicas tales como los hidróxidos y carbonatos de metales alcalinos y los metales alcalino térreos [por ej. el hidróxido de sodio, hidróxido de potasio, hidróxido de magnesio, carbonato de sodio, hydrogencarbonate de sodio y carbonato de potasio], y bases orgánicas tales como trietilamina y piridina. Cuando el CDI se usa como un reactivo, la reacción puede llevarse a cabo sin una base.

[0030]

La cantidad de la base usada es de 2 moles o más por el mol del compuesto de la fórmula general (V).

La temperatura de la reacción puede elegirse apropiadamente en el rango desde la temperatura ambiente hasta el punto del ebullición del solvente inerte usado, y varía preferentemente desde la temperatura ambiente hasta 100°C.

Aunque el tiempo de la reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., el tiempo varía desde varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla

de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el procedimiento de producción 1 con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

[0031]

2-4. Fórmula general (IV) → fórmula general (II)

Un compuesto de la fórmula general (II) puede ser producido por hidrolización del compuesto de la fórmula general (IV) bajo la condición básica en la presencia de un solvente inerte.

Como el solvente inerte utilizable en esta reacción, pueden ejemplificarse alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, butanol, etc.; los hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, etc.; los éteres tales como dietil éter, diglima, dioxano, tetrahidrofurano, etc.; y agua. Estos solventes inertes pueden usarse individualmente o como una mezcla de los mismos.

Como la base, se pueden utilizar hidróxidos de metales alcalino o metales alcalino térreos, tales como hidróxido de sodio, hidróxido de potasio, hidróxido de magnesio, etc.

Dependiendo del grupo alquilo para R^4, la reacción también puede llevarse a cabo bajo condiciones ácidas usando un ácido orgánico o inorgánico tal como ácido trifluoroacético o ácido clorhídrico.

La temperatura de la reacción puede escogerse apropiadamente en el rango desde 0°C al punto de ebullición del

solvente inerte usado.

Aunque el tiempo de la reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la reacción, la temperatura, etc., el tiempo varía desde varios minutos a 48 horas.

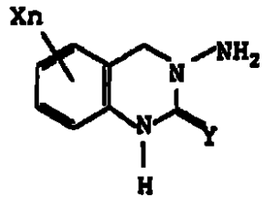
Después de la realización de la reacción la mezcla de reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en el Procedimiento de producción 1, con lo cual que puede producirse el compuesto deseado.

[0032]

Los ejemplos típicos de los compuestos de la fórmula general (II) producido por el procedimiento de producción 1 y 2 se intican en Tabla 1 pero no se pretende de forma alguna que los mismos limiten el alcance de la presente invención.

Fórmula General (II)

[Fórmula 7]



(II)

[0033]

Tabla 1

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-1	5-OH	O	Cristalino
II-2	6-OH	O	Cristalino
II-3	7-OH	O	Cristalino
II-4	8-OH	O	Cristalino
II-5	5-Br	O	
II-6	6-Br	O	Cristalino
II-7	7-Br	O	
II-8	8-Br	O	
II-9	5-I	O	
II-10	6-I	O	p.f. 202.3-205.0 °C
II-11	7-I	O	
II-12	8-I	O	
II-13	5-CF_3	O	
II-14	6-CF_3	O	p.f. 155-157.7 °C
II-15	7-CF_3	O	

[0034]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-16	8-CF_3	O	
II-17	5-C_2F_5	O	
II-18	6-C_2F_5	O	p.f. 178.4-183.5 °C
II-19	7-C_2F_5	O	
II-20	8-C_2F_5	O	
II-21	5-i-C_3F_7	O	
II-22	6-i-C_3F_7	O	p.f. 147.6-149.5 °C
II-23	7-i-C_3F_7	O	
II-24	8-i-C_3F_7	O	
II-25	5-n-C_6F_{13}	O	
II-26	6-n-C_6F_{13}	O	Cristalino
II-27	7-n-C_6F_{13}	O	
II-28	8-n-C_6F_{13}	O	
II-29	5-OCF_3	O	
II-30	6-OCF_3	O	p.f. 181.5-184.0 °C
II-31	7-OCF_3	O	
II-32	8-OCF_3	O	
II-33	5-OCH_2-Ph	O	Cristalino
II-34	6-OCH_2-Ph	O	
II-35	7-OCH_2-Ph	O	
II-36	8-OCH_2-Ph	O	Cristalino
II-37	5-$OCHF_2$	O	
II-38	6-$OCHF_2$	O	Cristalino

[0035]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-39	7-$OCHF_2$	O	
II-40	8-$OCHF_2$	O	
II-41	5-SCF_3	O	
II-42	6-SCF_3	O	
II-43	7-SCF_3	O	
II-44	8-SCF_3	O	
II-45	5-SC_2F_5	O	
II-46	6-SC_2F_5	O	
II-47	7-SC_2F_5	O	
II-48	8-SC_2F_5	O	
II-49	5-S-i-C_3F_7	O	
II-50	6-S-i-C_3F_7	O	
II-51	7-S-i-C_3F_7	O	
II-52	8-S-i-C_3F_7	O	
II-53	5-$SOCF_3$	O	
II-54	6-$SOCF_3$	O	
II-55	7-$SOCF_3$	O	
II-56	8-$SOCF_3$	O	
II-57	5-SO_2CF_3	O	
II-58	6-SO_2CF_3	O	
II-59	7-SO_2CF_3	O	
II-60	8-SO_2CF_3	O	
II-61	5-SOC_2F_5	O	

[0036]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-62	6-SOC_2F_5	O	
II-63	7-SOC_2F_5	O	
II-64	8-SOC_2F_5	O	
II-65	5-$SO_2C_2F_5$	O	
II-66	6-$SO_2C_2F_5$	O	
II-67	7-$SO_2C_2F_5$	O	
II-68	8-$SO_2C_2F_5$	O	
II-69	5-SO-i-C_3F_7	O	
II-70	6-SO-i-C_3F_7	O	
II-71	7-SO-i-C_3F_7	O	
II-72	8-SO-i-C_3F_7	O	
II-73	5-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-74	6-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-75	7-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-76	8-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-77	5-$COOC_2H_5$	O	
II-78	6-$COOC_2H_5$	O	
II-79	7-$COOC_2H_5$	O	
II-80	8-$COOC_2H_5$	O	
II-81	5-COOH	O	
II-82	6-COOH	O	
II-83	7-COOH	O	
II-84	8-COOH	O	

[0037]

Tabla 1 (Continuación)

No.	Xn	Y	Propiedad física
II-85	5-Ph	O	
II-86	6-Ph	O	
II-87	7-Ph	O	
II-88	8-Ph	O	
II-89	5-(p-Cl-Ph)	O	
II-90	6-(p-Cl-Ph)	O	
II-91	7-(p-Cl-Ph)	O	
II-92	8-(p-Cl-Ph)	O	
II-93	5-O-Ph	O	
II-94	6-O-Ph	O	
II-95	7-O-Ph	O	
II-96	8-O-Ph	O	
II-97	5-n-C_4H_9	O	
II-98	6-n-C_4H_9	O	
II-99	7-n-C_4H_9	O	
II-100	8-n-C_4H_9	O	
II-101	5-OCF_2CHF_2	O	
II-102	6-OCF_2CHF_2	O	p.f. 194.8 °C
II-103	7-OCF_2CHF_2	O	
II-104	8-OCF_2CHF_2	O	

La Tabla 2 ilustra los datos de RMN de los compuestos siguientes enumerados en la Tabla 1.

Tabla 2

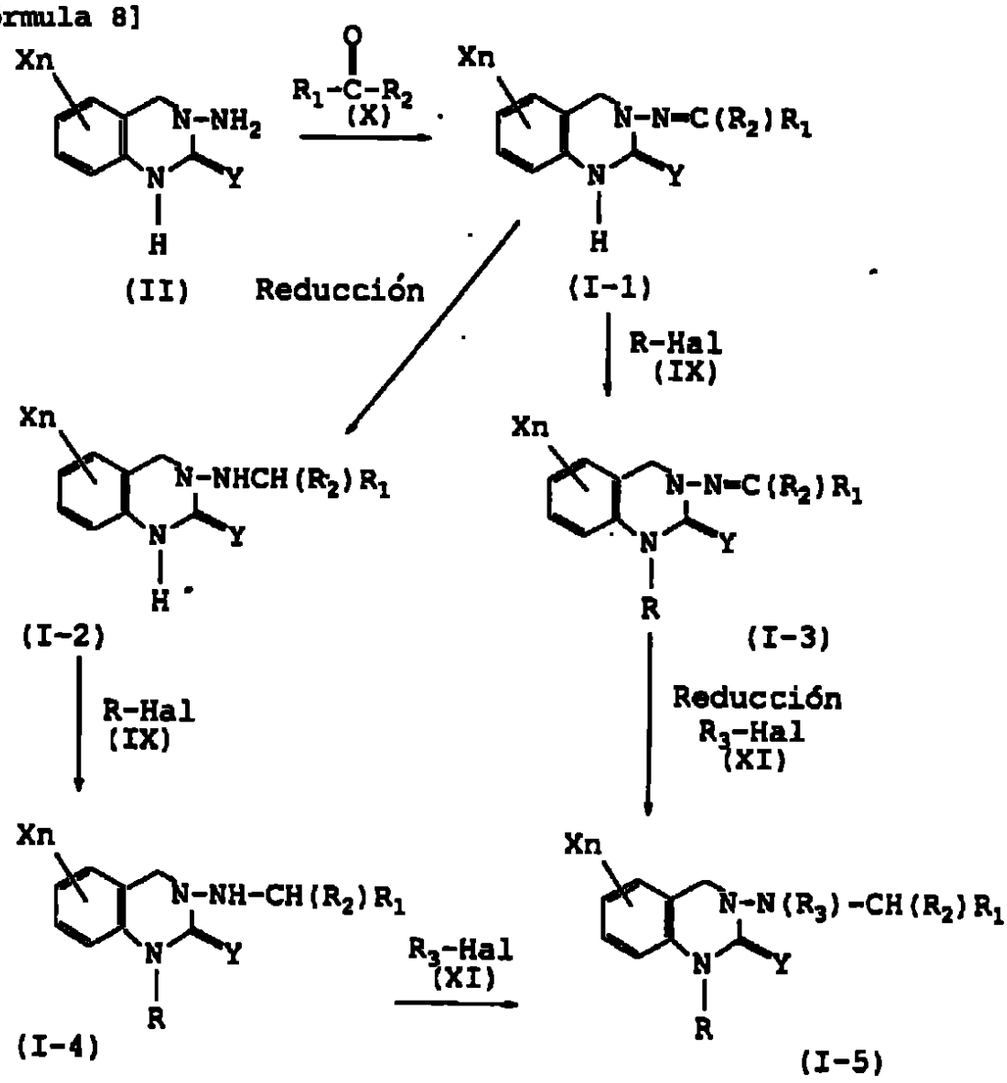
No.	^{1}H-NMR [DMSO-d$_6$/TMS, δ (ppm)]
II-1	4.36(2H,s), 4.65(2H,br), 6.20(1H,d), 6.34(1H,d), 6.89(1H,t), 9.12(1H,br), 9.62(1H,s).
II-2	4.45(2H,s), 4.65(2H,s), 6.51-6.63(3H,m), 9.00(1H,s), 9.60(1H,brs).
II-3	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.23-6.35(2H,m), 6.85(1H,d), 9.05(1H,s), 9.63(1H,s)
II-4	4.46(2H,s), 4.65(2H,s), 6.57(1H,d), 6.64-6.74(2H,m), 7.95(1H,d), 9.60(1H,brs).
II-6	4.48(2H,s), 4.66(2H,s), 6.74(1H,m), 7.18(1H,m), 7.30(1H,m), 9.43(1H,s).
II-18	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.95(1H,d), 7.40-7.50(2H,m), 9.83(1H,s).
II-26	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.94(1H,d), 7.43-7.48(2H,m), 9.74(1H,s).
II-33	4.48(2H,s), 4.69(2H,s), 5.00(2H,s), 6.30(1H,d), 6.45(1H,d), 7.05(1H,t), 7.25-7.40(6H,m).
II-36	4.48(2H,s), 4.68(2H,s), 5.19(2H,s), 6.71(1H,d), 6.82(1H,t), 6.92(1H,d), 7.30-7.40(3H,m), 7.51(2H,d), 8.18(1H,s).
II-38	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.76-6.79(1H,d,J=8.7Hz), 6.95-7.00(2H,m), 6.80-7.30(1H,t,J=7.46), 9.37(1H,s).

[0039]

Los ejemplos típicos de los procedimientos de producción de los derivados (tiona) aminoquinazolinona de la fórmula general (I) o una sal del mismo de la presente invención se ilustran esquemáticamente a continuación.

Procedimiento de producción 3

[Fórmula 8]



en donde R, R_1, R_2, R_3, X, n, Y y Hal son iguales a los definidos precedentemente con la excepción de cada uno de R y R_3 no sea un átomo de hidrógeno.

[0040]

3-1. Fórmula general (II) → fórmula general (I-1)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-1) puede ser producido haciendo reaccionar un compuesto de la fórmula general (II) con un compuesto de la fórmula general (X) en la presencia de un solvente inerte y un catalizador.

En el caso de utilizar esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a la descripta en el procedimiento de producción 2-1.

3-2. Fórmula general (I-1) → fórmula general (I-3)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-3) puede ser producido haciendo reaccionar el derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-1) con un compuesto de la fórmula general (IX) en la presencia o ausencia de un solvente inerte y una base.

[0041]

Como solvente inerte utilizable en esta reacción, pueden utilizarse, por ejemplo, los solventes inertes ejemplificados en el procedimiento de producción 1.

Como la base, puede usarse una base inorgánica o una base orgánica. Además de las bases inorgánicas u orgánicas

ejemplificadas en el procedimiento de producción 2-3, también pueden usarse alcóxidos tales como CH_3ONa, C_2H_5ONa, t-C_4H_9ONa, CH_3OK, C_2H_5OK, t-C_4H_9OK, etc., e hidruros de metal alcalino tales como NaH, etc. La cantidad de base usada puede elegirse apropiadamente en el rango de 1 mol hasta el exceso de moles por mol del derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-1).

La temperatura de la reacción puede elegirse en el rango desde 0°C hasta el punto de ebullición del solvente inerte usado, y preferentemente varía desde la temperatura ambiente hasta 70°C.

Aunque el tiempo de reacción varía dependiendo de la escala de la reacción, la temperatura de la reacción, etc., el tiempo varía de varios minutos a 48 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado se trata de la misma manera como en procedimiento de producción 1 con lo cual puede producirse el compuesto deseado.

[0042]

3-3. Fórmula general (I-1) → Fórmula general (I-2)

En el caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a la descripta en el procedimiento de producción 2-2.

3-4. Fórmula general (I-2) → Fórmula general (I-4)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula

general (I-4) puede ser producido haciendo reaccionar el derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-2) con el compuesto de la fórmula (IX) en presencia o ausencia de un solvente inerte y una base.

En el caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a eso descrito en procedimiento de producción 3-2.

3-5. Fórmula general (I-4) → Fórmula general (I-5)

Un derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-5) puede ser producido haciendo reaccionar el derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula general (I-4) con un compuesto de la fórmula general (XI) en la presencia o ausencia de un solvente inerte y una base.

En caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar a la descripta en el procedimiento de producción 3-2.

3-6. Fórmula general (I-3) → Fórmula general (I-5)

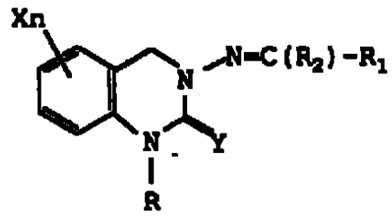
En caso de esta reacción, puede producirse el compuesto deseado de una manera similar la descripta en el procedimiento de producción 2-2.

[0043]

Los ejemplos típicos del derivado aminoquinazolinona (tiona) de la fórmula (I) o sal del mismo de la presente invención se indican en las Tablas 3 y 4. Sin embargo, el alcance de la presente invención no está limitado por estos

ejemplos.

[Fórmula 9]



[0044]

Tabla 3 (R_1=Q_2, R_2=H, Y=O)

No.	R	Xn	Propiedad física
1	H	5-OH	p.f. 293-295 °C
2	H	6-OH	
3	H	7-OH	
4	H	8-OH	p.f. >300°C
5	H	5-Br	
6	H	6-Br	p.f. >300°C
7	H	7-Br	
8	H	8-Br	
9	H	5-I	
10	H	6-I	p.f. >300°C
11	H	7-I	
12	H	8-I	

[0045]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
13	H	5-CF_3	
14	H	6-CF_3	p.f. 227.6-286.7 °C
15	H	7-CF_3	
16	H	8-CF_3	
17	H	5-C_2F_5	
18	H	6-C_2F_5	p.f. 298-300 °C
19	H	7-C_2F_5	
20	H	8-C_2F_5	
21	H	5-i-C_3F_7	
22	H	6-i-C_3F_7	p.f. >300°C
23	H	7-i-C_3F_7	
24	H	8-i-C_3F_7	
25	H	5-n-C_6F_{13}	
26	H	6-n-C_6F_{13}	p.f. >300°C
27	H	7-n-C_6F_{13}	
28	H	8-n-C_6F_{13}	
29	H	5-OCF_3	
30	H	6-OCF_3	p.f. 264.0-266.0 °C
31	H	7-OCF_3	
32	H	8-OCF_3	
33	H	5-CH_2-Ph	
34	H	6-CH_2-Ph	
35	H	7-CH_2-Ph	

[0046]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
36	H	8-CH_2-Ph	
37	H	5-$OCHF_2$	
38	H	6-$OCHF_2$	p.f. 260.1-264.5 °C
39	H	7-$OCHF_2$	
40	H	8-$OCHF_2$	
41	H	5-SCF_3	
42	H	6-SCF_3	
43	H	7-SCF_3	
44	H	8-SCF_3	
45	H	5-SC_2F_5	
46	H	6-SC_2F_5	
47	H	7-SC_2F_5	
48	H	8-SC_2F_5	
49	H	5-S-i-C_3F_7	
50	H	6-S-i-C_3F_7	
51	H	7-S-i-C_3F_7	
52	H	8-S-i-C_3F_7	
53	H	5-$SOCF_3$	
54	H	6-$SOCF_3$	
55	H	7-$SOCF_3$	
56	H	8-$SOCF_3$	
57	H	5-SO_2CF_3	
58	H	6-SO_2CF_3	

[0047]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
59	H	7-SO_2CF_3	
60	H	8-SO_2CF_3	
61	H	5-SOC_2F_5	
62	H	6-SOC_2F_5	
63	H	7-SOC_2F_5	
64	H	8-SOC_2F_5	
65	H	5-$SO_2C_2F_5$	
66	H	6-$SO_2C_2F_5$	
67	H	7-$SO_2C_2F_5$	
68	H	8-$SO_2C_2F_5$	
69	H	5-SO-i-C_3F_7	
70	H	6-SO-i-C_3F_7	
71	H	7-SO-i-C_3F_7	
72	H	8-SO-i-C_3F_7	
73	H	5-SO_2-i-C_3F_7	
74	H	6-SO_2-i-C_3F_7	
75	H	7-SO_2-i-C_3F_7	
76	H	8-SO_2-i-C_3F_7	
77	H	5-$COOC_2H_5$	
78	H	6-$COOC_2H_5$	p.f. 274-278 °C
79	H	7-$COOC_2H_5$	
80	H	8-$COOC_2H_5$	
81	H	5-COOH	

[0048]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
82	H	6-COOH	
83	H	7-COOH	
84	H	8-COOH	
85	H	5-Ph	
86	H	6-Ph	p.f. 250.9-253.8 °C
87	H	7-Ph	
88	H	8-Ph	
89	H	5-(4-Cl-Ph)	
90	H	6-(4-Cl-Ph)	p.f. 276-278 °C
91	H	7-(4-Cl-Ph)	
92	H	8-(4-Cl-Ph)	
93	H	5-O-Ph	
94	H	6-O-Ph	
95	H	7-O-Ph	
96	H	8-O-Ph	
97	H	5-n-C_4H_9	
98	H	6-n-C_4H_9	
99	H	7-n-C_4H_9	
100	H	8-n-C_4H_9	
101	CH_3	5-I	
102	CH_3	6-I	p.f. 181.4-185.3 °C
103	CH_3	7-I	
104	CH_3	8-I	

[0049]

Tabla 3 (Continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
105	C_2H_5	5-I	
106	C_2H_5	6-I	p.f. 191.5-194.5 °C
107	C_2H_5	7-I	
108	C_2H_5	8-I	
109	n-C_5H_{11}	5-I	
110	n-C_5H_{11}	6-I	nD 1.4126(28.5°C)
111	n-C_5H_{11}	7-I	
112	n-C_5H_{11}	8-I	
113	$CH_2C\equiv CH$	5-I	
114	$CH_2C\equiv CH$	6-I	p.f. 214-217 °C
115	$CH_2C\equiv CH$	7-I	
116	$CH_2C\equiv CH$	8-I	
117	$CH_2CH=CH_2$	5-I	
118	$CH_2CH=CH_2$	6-I	p.f. 162-164 °C
119	$CH_2CH=CH_2$	7-I	
120	$CH_2CH=CH_2$	8-I	
121	$CH_2OC_2H_5$	5-I	
122	$CH_2OC_2H_5$	6-I	p.f. 111.3-161.7 °C
123	$CH_2OC_2H_5$	7-I	
124	$CH_2OC_2H_5$	8-I	
125	CH_2(4-Cl-Ph)	5-I	
126	CH_2(4-Cl-Ph)	6-I	p.f. 146-149 °C
127	CH_2(4-Cl-Ph)	7-I	

[0050]

Tabla 3 (continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
128	CH_2(4-Cl-Ph)	8-I	
129	$COCH_3$	5-I	
130	$COCH_3$	6-I	p.f. 186-188 °C
131	$COCH_3$	7-I	
132	$COCH_3$	8-I	
133	COC_2H_5	5-I	
134	COC_2H_5	6-I	p.f. 135-139 °C
135	COC_2H_5	7-I	
136	COC_2H_5	8-I	
137	SO_2CH_3	5-I	
138	SO_2CH_3	6-I	p.f. 174-181 °C
139	SO_2CH_3	7-I	
140	SO_2CH_3	8-I	
141	SO_2Ph	5-I	
142	SO_2Ph	6-I	p.f. 199-205 °C
143	SO_2Ph	7-I	
144	SO_2Ph	8-I	
145	H	5-OCF_2CHF_2	
146	H	6-OCF_2CHF_2	p.f. 251.6-263.3 °C
147	H	7-OCF_2CHF_2	
148	H	8-OCF_2CHF_2	
149	CO-c-C_3H_5	5-I	
150	CO-c-C_3H_5	6-I	p.f. 172-175 °C

[0051]

Tabla 3 (continuación)

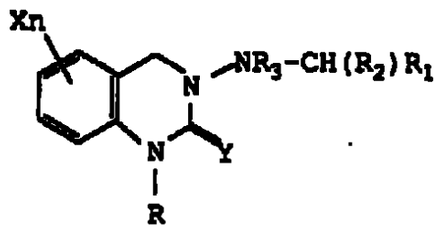
No.	R	Xn	Propiedad física
151	CO-c-C_3H_5	7-I	
152	CO-c-C_3H_5	8-I	
153	H	5-(4-CH_3O-Ph)	
154	H	6-(4-CH_3O-Ph)	p.f. 242 °C
155	H	7-(4-CH_3O-Ph)	
156	H	8-(4-CH_3O-Ph)	
157	H	5-(3-CH_3O-Ph	
158	H	6-(3-CH_3O-Ph)	p.f. 192-199 °C
159	H	7-(3-CH_3O-Ph)	
160	H	8-(3-CH_3O-Ph)	
161	H	5-(3-NO_2-Ph)	
162	H	6-(3-NO_2-Ph)	p.f. >300°C
163	H	7-(3-NO_2-Ph)	
164	H	8-(3-NO_2-Ph)	
165	H	5-COOH	
166	H	6-COOH	p.f. >300°C
167	H	7-COOH	
168	H	8-COOH	
169	H	5-$COOCH_3$	
170	H	6-$COOCH_3$	p.f. 270.5-279.6°C
171	H	7-$COOCH_3$	
172	H	8-$COOCH_3$	
173	H	5-$CON(C_2H_5)_2$	

[0052]

Tabla 3 (continuación)

No.	R	Xn	Propiedad física
174	H	6-CON(C_2H_5)$_2$	p.f. 254.9-278.1℃
175	H	7-CON(C_2H_5)$_2$	
176	H	8-CON(C_2H_5)$_2$	
177	H	6-Cl-7-CF_2H	p.f. 295℃
178	H	6-C_3F_7-i	p.f. 227.1-227.3℃
		(Q_2:Sal loduro de N-metilpiridio)	

[Fórmula 10]



[0054]

Tabla 4 (R_3=H, Y=O, R_3=H, excepto para el grupo indicado especialemente.)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
179	H	Q_2	5-OH	
180	H	Q_2	6-OH	p.f. 223-225 ℃
181	H	Q_2	7-OH	p.f. 258-259 ℃
182	H	Q_2	8-OH	p.f. 177-180 ℃
183	H	Q_2	5-Br	
184	H	Q_2	6-Br	p.f. >300℃
185	H	Q_2	7-Br	
186	H	Q_2	8-Br	
187	H	Q_2	5-I	
188	H	Q_2	6-I	
189	H	Q_2	7-I	
190	H	Q_2	8-I	
191	H	Q_2	5-CF_3	
192	H	Q_2	6-CF_3	p.f. 191.0-193.1 ℃
193	H	Q_2	7-CF_3	
194	H	Q_2	8-CF_3	
195	H	Q_2	5-C_2F_5	
196	H	Q_2	6-C_2F_5	
197	H	Q_2	7-C_2F_5	
198	H	Q_2	8-C_2F_5	
199	H	Q_2	5-i-C_3F_7	
200	H	Q_2	6-i-C_3F_7	p.f. 159.4-161.0 ℃
201	H	Q_2	7-i-C_3F_7	

[0055]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_3	Xn	Propiedad física
202	H	Q_2	8-i-C_3F_7	
203	H	Q_2	5-n-C_6F_{13}	
204	H	Q_2	6-n-C_6F_{13}	p.f. 153.9-164.7 °C
205	H	Q_2	7-n-C_6F_{13}	
206	H	Q_2	8-n-C_6F_{13}	
207	H	Q_2	5-OCF_3	
208	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5233(22.6°C)
209	H	Q_2	7-OCF_3	
210	H	Q_2	8-OCF_3	
211	H	Q_2	5-CH_2-Ph	
212	H	Q_2	6-CH_2-Ph	
213	H	Q_2	7-CH_2-Ph	
214	H	Q_2	8-CH_2-Ph	
215	H	Q_2	5-$OCHF_2$	
216	H	Q_2	6-$OCHF_2$	p.f. 129.7-130.2 °C
217	H	Q_2	7-$OCHF_2$	
218	H	Q_2	8-$OCHF_2$	
219	H	Q_2	5-SCF_3	
220	H	Q_2	6-SCF_3	
221	H	Q_2	7-SCF_3	
222	H	Q_2	8-SCF_3	
223	H	Q_2	5-SC_2F_5	
224	H	Q_2	6-SC_2F_5	

[0056]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
225	H	Q_2	7-SC_2F_5	
226	H	Q_2	8-SC_2F_5	
227	H	Q_2	5-S-i-C_3F_7	
228	H	Q_2	6-S-i-C_3F_7	
229	H	Q_2	7-S-i-C_3F_7	
230	H	Q_2	8-S-i-C_3F_7	
231	H	Q_2	5-$SOCF_3$	
232	H	Q_2	6-$SOCF_3$	
233	H	Q_2	7-$SOCF_3$	
234	H	Q_2	8-$SOCF_3$	
235	H	Q_2	5-SO_2CF_3	
236	H	Q_2	6-SO_2CF_3	
237	H	Q_2	7-SO_2CF_3	
238	H	Q_2	8-SO_2CF_3	
239	H	Q_2	5-SOC_2F_5	
240	H	Q_2	6-SOC_2F_5	
241	H	Q_2	7-SOC_2F_5	
242	H	Q_2	8-SOC_2F_5	
243	H	Q_2	5-$SO_2C_2F_5$	
244	H	Q_2	6-$SO_2C_2F_5$	
245	H	Q_2	7-$SO_2C_2F_5$	
246	H	Q_2	8-$SO_2C_2F_5$	
247	H	Q_2	5-SO-i-C_3F_7	

[0057]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
248	H	Q_2	6-SO-i-C_3F_7	
249	H	Q_2	7-SO-i-C_3F_7	
250	H	Q_2	8-SO-i-C_3F_7	
251	H	Q_2	5-SO_2-i-C_3F_7	
252	H	Q_2	6-SO_2-i-C_3F_7	
253	H	Q_2	7-SO_2-i-C_3F_7	
254	H	Q_2	8-SO_2-i-C_3F_7	
255	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
256	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	
257	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	
258	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
259	H	Q_2	5-COOH	
260	H	Q_2	6-COOH	
261	H	Q_2	7-COOH	
262	H	Q_2	8-COOH	
263	H	Q_2	5-Ph	
264	H	Q_2	6-Ph	
265	H	Q_2	7-Ph	
266	H	Q_2	8-Ph	
267	H	Q_2	5-(4-Cl-Ph)	
268	H	Q_2	6-(4-Cl-Ph)	
269	H	Q_2	7-(4-Cl-Ph)	
270	H	Q_2	8-(4-Cl-Ph)	

[0058]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
271	H	Q_2	5-O-Ph	
272	H	Q_2	6-O-Ph	
273	H	Q_2	7-O-Ph	
274	H	Q_2	8-O-Ph	
275	H	Q_2	5-n-C_4H_9	
276	H	Q_2	6-n-C_4H_9	
277	H	Q_2	7-n-C_4H_9	
278	H	Q_2	8-n-C_4H_9	
279	H	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
280	H	Q_2	6-OCF_2CHF_2	p.f. 168.7-173.9 °C
281	H	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
282	H	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
283	H	Q_2	5-$CF(CF_3)_2$	
284	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	p.f. 239.7-243.5°C
285	H	Q_2	7-$CF(CF_3)_2$	
286	H	Q_2	8-$CF(CF_3)_2$	
287	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	p.f. 209.9-213.4°C (R_3=$COCF_3$)
288	CH_3	Q_2	5-OCF_3	
289	CH_3	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5467(23.6°C)
290	CH_3	Q_2	7-OCF_3	
291	CH_3	Q_2	8-OCF_3	
292	C_2H_5	Q_2	5-OCF_3	

[0059]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
293	C_2H_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5360(24.3℃)
294	C_2H_5	Q_2	7-OCF_3	
295	C_2H_5	Q_2	8-OCF_3	
296	$COCH_3$	Q_2	5-OCF_3	
297	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5478(24.1℃)
298	$COCH_3$	Q_2	7-OCF_3	
299	$COCH_3$	Q_2	8-OCF_3	
300	COC_2F_5	Q_2	5-OCF_3	
301	COC_2F_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5174(25.9℃)
302	COC_2F_5	Q_2	7-OCF_3	
303	COC_2F_5	Q_2	8-OCF_3	
304	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	5-OCF_3	
305	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	6-OCF_3	p.f. 92.5℃
306	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	7-OCF_3	
307	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	8-OCF_3	
308	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	5-OCF_3	
309	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5325(24.2℃)
310	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	7-OCF_3	
311	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	8-OCF_3	
312	$CH(CH_3)_2$	Q_2	5-OCF_3	
313	$CH(CH_3)_2$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5370(24.8℃)
314	$CH(CH_3)_2$	Q_2	7-OCF_3	
315	$CH(CH_3)_2$	Q_2	8-OCF_3	

[0060]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_3	Xn	Propiedad física
316	H	Q_3	6-OCF_3	nD 1.5380(26.0℃) (R_3=COC_2H_5)
317	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_3	5-Br	
318	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_3	6-Br	nD 1.5760(26.2℃)
319	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_3	7-Br	
320	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_3	8-Br	
321	CH_2SCH_3	Q_3	5-Br	
322	CH_2SCH_3	Q_3	6-Br	nD 1.6030(27.0℃)
323	CH_2SCH_3	Q_3	7-Br	
324	CH_2SCH_3	Q_3	8-Br	
325	C_2H_5	Q_3	5-Br	
326	C_2H_5	Q_3	6-Br	nD 1.5974(26.9℃)
327	C_2H_5	Q_3	7-Br	
328	C_2H_5	Q_3	8-Br	
329	i-C_3H_7	Q_3	5-Br	
330	i-C_3H_7	Q_3	6-Br	nD 1.4680(28.0℃)
331	i-C_3H_7	Q_3	7-Br	
332	i-C_3H_7	Q_3	8-Br	
333	$COCH_3$	Q_3	5-Br	
334	$COCH_3$	Q_3	6-Br	nD 1.5930(27.2℃)
335	$COCH_3$	Q_3	7-Br	
336	$COCH_3$	Q_3	8-Br	
337	COC_2H_5	Q_3	5-Br	

[0061]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_3	Xn	Propiedad física
338	COC_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5861(26.8℃)
339	COC_2H_5	Q_2	7-Br	
340	COC_2H_5	Q_2	8-Br	
341	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	5-Br	
342	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	6-Br	nD 1.5885(27.3℃)
343	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	7-Br	
344	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	8-Br	
345	CO-Ph	Q_2	5-Br	
346	CO-Ph	Q_2	6-Br	p.f. >300℃
347	CO-Ph	Q_2	7-Br	
348	CO-Ph	Q_2	8-Br	
349	CH_2	Q_2	5-$OCHF_2$	
350	CH_2	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5613(27.9℃)
351	CH_2	Q_2	7-$OCHF_2$	
352	CH_2	Q_2	8-$OCHF_2$	
353	C_2H_5	Q_2	5-$OCHF_2$	
354	C_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5354(26.4℃)
355	C_2H_5	Q_2	7-$OCHF_2$	
356	C_2H_5	Q_2	8-$OCHF_2$	
357	n-C_3H_{17}	Q_2	5-$OCHF_2$	
358	n-C_3H_{17}	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5590(25.8℃)
359	n-C_3H_{17}	Q_2	7-$OCHF_2$	
360	n-C_3H_{17}	Q_2	8-OCHF	

[0062]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
361	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	5-$OCHF_2$	
362	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5917(27.9℃)
363	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	7-$OCHF_2$	
364	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	8-$OCHF_2$	
365	i-C_4H_9	Q_2	5-$OCHF_2$	
366	i-C_4H_9	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5557(26.4℃)
367	i-C_4H_9	Q_2	7-$OCHF_2$	
368	i-C_4H_9	Q_2	8-$OCHF_2$	
369	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	5-$OCHF_2$	
370	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5668(26.5℃)
371	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	7-$OCHF_2$	
372	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	8-$OCHF_2$	
373	$COCH_3$	Q_2	5-$OCHF_2$	
374	$COCH_3$	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5503(26.1℃)
375	$COCH_3$	Q_2	7-$OCHF_2$	
376	$COCH_3$	Q_2	8-$OCHF_2$	
377	COC_2H_5	Q_2	5-$OCHF_2$	
378	COC_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5470(26.2℃)
379	COC_2H_5	Q_2	7-$OCHF_2$	
380	COC_2H_5	Q_2	8-$OCHF_2$	
381	CO-i-C_3H_7	Q_2	5-$OCHF_2$	
382	CO-i-C_3H_7	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5196(28.3℃)
383	CO-i-C_3H_7	Q_2	7-$OCHF_2$	

[0063]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_8	Xn	Propiedad física
384	CO-i-C_3H_7	Q_2	8-$OCHF_2$	
385	CO-Q_{11}	Q_2	5-$OCHF_2$	
386	CO-Q_{11}	Q_2	6-$OCHF_2$	p.f. 148-155 °C
387	CO-Q_{11}	Q_2	7-$OCHF_2$	
388	CO-Q_{11}	Q_2	8-$OCHF_2$	
389	CH_3	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
390	CH_3	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5320(26.2°C)
391	CH_3	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
392	CH_3	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
393	C_2H_5	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
394	C_2H_5	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5239(26.7°C)
395	C_2H_5	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
396	C_2H_5	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
397	$SO_2C_2H_5$	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
398	$SO_2C_2H_5$	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5309(26.0°C)
399	$SO_2C_2H_5$	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
400	$SO_2C_2H_5$	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
401	CH_3OCH_2-Ph	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
402	CH_3OCH_2-Ph	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5486(26.2°C)
403	CH_3OCH_2-Ph	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
404	CH_3OCH_2-Ph	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
405	$COOC_4H_9$-t	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
406	$COOC_4H_9$-t	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5103(26.2°C)

[0064]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
407	$COOC_4H_9$-t	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
408	$COOC_4H_9$-t	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
409	$COCH_3$	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
410	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5262(25.8℃)
411	$COCH_3$	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
412	$COCH_3$	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
413	COC_2H_5	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
414	COC_2H_5	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5266(25.9℃)
415	COC_2H_5	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
416	COC_2H_5	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
417	CH_2OCH_3	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
418	CH_2OCH_3	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5311(23.9℃)
419	CH_2OCH_3	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
420	CH_2OCH_3	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
421	CH_2-Q_2	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
422	CH_2-Q_2	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5560(26.8℃)
423	CH_2-Q_2	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
424	CH_2-Q_2	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
425	SO_2CH_3	Q_2	5-C_3F_7-i	
426	SO_2CH_3	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 154-156 ℃
427	SO_2CH_3	Q_2	7-C_3F_7-i	
428	SO_2CH_3	Q_2	8-C_3F_7-i	
429	$SO_2C_2H_5$	Q_2	5-C_3F_7-i	

[0065]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_3	Xn	Propiedad física
430	$SO_2C_4H_9$	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 45-50 °C
431	$SO_2C_2H_5$	Q_2	7-C_3F_7-i	
432	$SO_2C_2H_5$	Q_2	8-C_3F_7-i	
433	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	5-C_3F_7-i	
434	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 65-75 °C
435	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	7-C_3F_7-i	
436	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	8-C_3F_7-i	
437	H	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 186-212 °C (hidrocloruro)
438	H	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 168-208.8 °C (sulfato)
439	CO-Ph	Q_2	5-C_3F_7-i	
440	CO-Ph	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 161-165 °C
441	CO-Ph	Q_2	7-C_3F_7-i	
442	CO-Ph	Q_2	8-C_3F_7-i	
443	COC_3H_7-i	Q_2	5-C_3F_7-i	
444	COC_3H_7-i	Q_2	6-C_3F_7-i	nD 1.5051(22.1°C)
445	COC_3H_7-i	Q_2	7-C_3F_7-i	
446	COC_3H_7-i	Q_2	8-C_3F_7-i	
447	$COCH_3$	Q_2	5-C_3F_7-i	
448	$COCH_3$	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 132-134 °C
449	$COCH_3$	Q_2	7-C_3F_7-i	
450	$COCH_3$	Q_2	8-C_3F_7-i	

[0066]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_3	Xn	Propiedad física
451	COC_2H_5	Q_2	5-C_3F_7-i	
452	COC_2H_5	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 108 °C
453	COC_2H_5	Q_2	7-C_3F_7-i	
454	COC_2H_5	Q_2	8-C_3F_7-i	
455	COC_2H_7-n	Q_2	5-C_3F_7-i	
456	COC_2H_7-n	Q_2	6-C_3F_7-i	nD 1.510(22.2 °C)
457	COC_2H_7-n	Q_2	7-C_3F_7-i	
458	COC_2H_7-n	Q_2	8-C_3F_7-i	
459	CH_3	Q_2	5-C_3F_7-i	
460	CH_3	Q_2	6-C_3F_7-i	p.f. 67-75 °C
461	CH_3	Q_2	7-C_3F_7-i	
462	CH_3	Q_2	8-C_3F_7-i	
463	C_2H_5	Q_2	5-C_3F_7-i	
464	C_2H_5	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.98-102.4°C
465	C_2H_5	Q_2	7-C_3F_7-i	
466	C_2H_5	Q_2	8-C_3F_7-i	
467	COC_2H_5	Q_2	5-F	
468	COC_2H_5	Q_2	6-F	nD 1.5660(22.8°C)
469	COC_2H_5	Q_2	7-F	
470	COC_2H_5	Q_2	8-F	
471	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
472	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	p.f. 168.7-171.9 °C
473	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	

[0067]

Tabla 4 (continuación)

No	R	R_2	Xn	Propiedad física
474	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
475	COC_2H_5	Q_2	5-CF_3	
476	COC_2H_5	Q_2	6-CF_3	nD 1.5400(21.1℃)
477	COC_2H_5	Q_2	7-CF_3	
478	COC_2H_5	Q_2	8-CF_3	
479	H	Q_2	5-C_2F_5	
480	H	Q_2	6-C_2F_5	p.f. 139-146 ℃
481	H	Q_2	7-C_2F_5	
482	H	Q_2	8-C_2F_5	
483	H	Q_2	6-Cl-7-$OCHF_2$	p.f. 198-201 ℃

[0068]

Las abreviaturas en Tabla 3 y Tabla 4 se indican para los sustituyentes siguientes:

c : grupo hidrocarburo alicíclico

Ph : grupo fenilo,

Q_1 : grupo 2-piridilo,

Q_2 : grupo 3-piridilo,

Q_3 : grupo 4-piridilo,

Q_4 : grupo 2-piridil-N-óxido,

Q_5 : grupo 3-piridil-N-óxido,

Q_6 : grupo 4-piridil-N-óxido,

Q_7 : grupo tiazol-5-ilo,

Q_8 : grupo furan-2-ilo,

Q_9 : grupo 1,3-dioxolan-2-ilo,

Q_{10} : grupo ftalimid-1-ilo,

Q_{11} : grupo tiofen-2-ilo,

[0069]

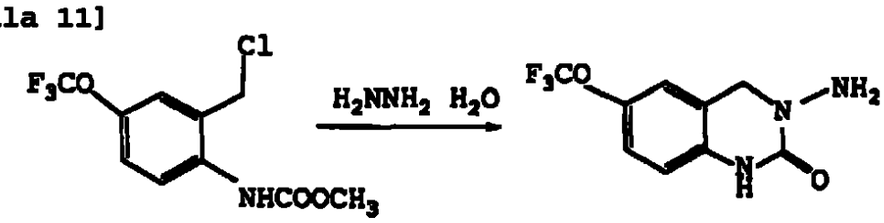
[EJEMPLOS]

Los ejemplos típicos de la presente invención se describen a continuación, sin embargo el alcance de la presente invención no está restringido por dichos ejemplos.

Ejemplo 1

Preparación de 3-amino-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2-(1H)-quinazolinona (Compuesto No. II-30)

[Fórmula 11]



En 20 ml de metanol se disolvió 2,84 g (0,01 mol) de metil 2-clorometil-4-trifluorometoxifenilcarbamato, luego 5 g (0,1 mol) de hidrato de hidrazina se agregó a la solución, y la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, el resto de hidrato de hidrazina y el solvente fueron eliminados de la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado por destilación bajo presión reducida para obtener un producto

crudo. El producto crudo resultante era recristalizado de 95% de metanol para obtener 2,22 g del compuesto deseado.

Propiedad física: p.f. 181,5 - 184°C

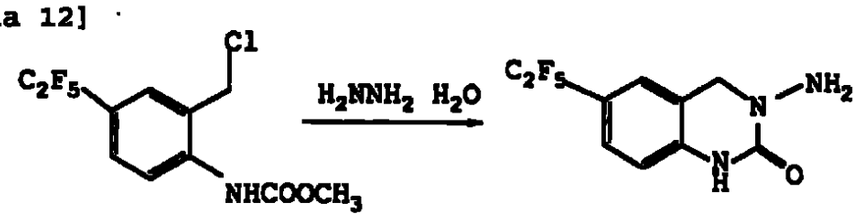
Rendimiento 90%.

[0070]

Ejemplo 2

Preparación de 3-amino-3,4-dihidro-6-pentafluoro-etil-2-(1H)-quinazolinona (compuesto No. II-18)

[Fórmula 12]



En 20 ml de metanol se disolvió 3,18 g (0,01 mol) de metilo 2-clorometil-4-pentafluoroetilfenilcarbamato, luego 5 g (0,1 mol) de hidrato de hidrazina se agregó a esta solución y la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción el resto de hidrato de hidrazina y el solvente fueron eliminados de la mezcla de la reacción que contiene el compuesto deseado por destilación bajo presión reducida para obtener un producto crudo. El producto crudo resultante fue recristalizado de 95% metanol para obtener 2,53 g del compuesto deseado.

Propiedad física: p.f. 178,4 - 183,5° C.

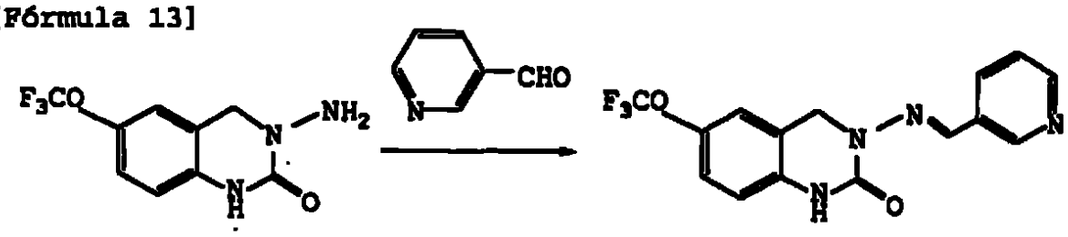
Rendimiento: 90%.

[0071]

Ejemplo 3

Preparación de 3-(3-piridilmetilidenamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona (Compuesto No. 30)

[Fórmula 13]



A 10 ml de metanol se agregaron 0,62 g (2,5 mmoles) de 3-amino-3,4-dihidro-6-trufluorometoxi-2(1H)-quinazolinona, 0,27 g (2,5 mmol) de nicotinaldehído y 1 gota de ácido sulfúrico, la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, los cristales precipitados en el sistema de reacción fueron recolectados por filtración y se secaron para obtener 0,76 g del producto deseado.

Propiedad física: p.f. 264,5 - 266,0° C.

Rendimiento: 93%.

[0072]

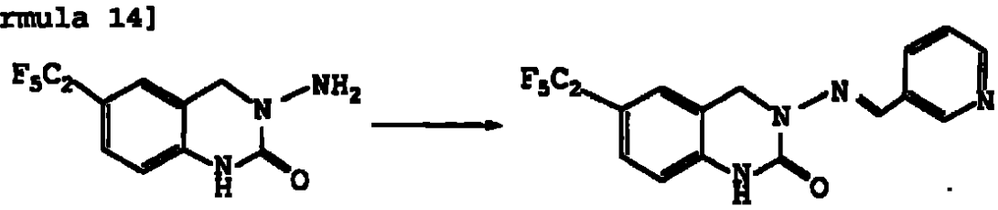
Ejemplo 4

Preparación de 3-[1-(3-piridilmetidenamino)-3,4-

dihidro-6-pentafluoroetil-2(1H)-quinazolinona

(Compuesto No. 18)

[Fórmula 14]



A 10 ml de metanol se agregaron 0,74 g (2,5 mmol) de 3-amino-3,4-dihidro-6-pentafluoroetil-2(1H)-quinazolinona,0,27 g (2,5 mmol) de nicotinaldehído y 1 gota de ácido sulfúrico, la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción los cristales precipitados en el sistema de reacción fueron recolectados por filtración y se secaron para obtener 0,78 g del producto deseado.

Propiedad física: p.f. 298,0 - 300,0° C.

Rendimiento : 84%.

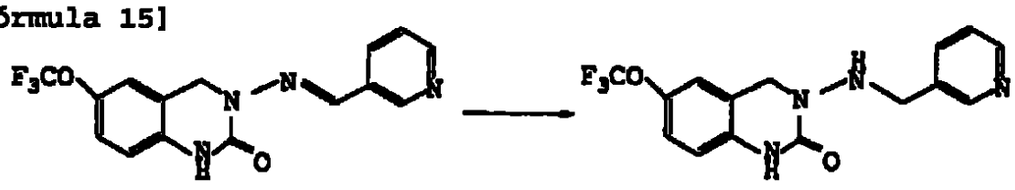
[0073]

Ejemplo 5

Preparación de 3-(3-piridilmetilamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona

(Compuesto No. 208)

[Fórmula 15]



319
88,327

A 30 ml de ácido acético se agregaron 3,36 g (2,5 mmol) de 3-(3-piridilmetilidenamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona y 0,2 g de 5% paladio-carbono, la hidrogenación se realizó a 3 a 4 kg/m².

Después de la absorción de una cantidad teórica de hidrógeno, el catalizador fue eliminado de la mezcla de reacción por filtración, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El residuo fue neutralizado agregado de una solución acuosa 20% de hidróxido de sodio y el compuesto deseado se extrajo con cloroformo (20 ml X 3). La solución extraída se lavó con el agua y una solución acuosa saturada con cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magnesio anhidro, el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo resultante fue purificado por una cromatografía en columna de gel de sílice (acetato de etilo-metanol=10:1) para obtener 2,5 g del compuesto deseado.

Propiedad física: nD 1,5233 (22,6° C).

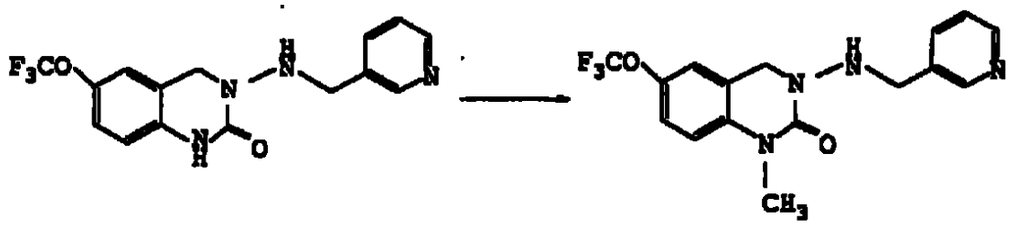
Rendimiento: 74%.

[0074]

Ejemplo 6

Preparación de 1-metil-3-(3-piridilmetilamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona (Compuesto No. 298)

[Fórmula 16]



En 10 ml de dimetilformamida se disolvió 0,68 g (2,0 mmol) de 3-(3-piridilmetilamino)-3,4-dihidro-6-trifluorometoxi-2(1H)-quinazolinona. A la solución, se agregó 0,09 g de hidruro de sodio (62,4 %), y la reacción se realizó a temperatura ambiente durante 30 minutos, luego 0,34 g ioduro de metilo se agregó a la misma y luego la reacción se lleva a cabo durante 4 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción se vierte en una mezcla hielo-agua, el compuesto deseado se extrajo con acetato de etilo (20 ml X 3). La solución extraída se lavó con agua y sol. acuosa saturada de cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magnesio anhidro, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo resultante fue purificado por un cromatografía en columna de gel de sílice (acetato de etilo-metanol=10:1) para obtener 2,5 g del compuesto deseado.

Propiedad física: nD 1,5467 (23,6°C).

Rendimiento: 50%.

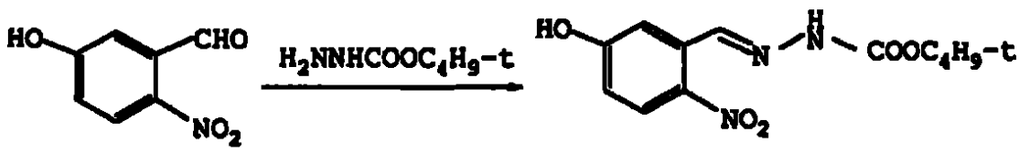
[0075]

321
GU329

Ejemplo 7

7-1. Preparación de t-butil 2-(5-hidroxi-2-nitrofenil-metiliden)carbazato

[Fórmula 17]



A 20 ml de metanol se agregaron 3,34 g (0,02 mol) de 5-hidroxi-2-nitrobenzaldehído, 2,64 g (0,02 mol) de carbazato de t-butilo y 1 gota de ácido sulfúrico, y la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción fue enfriada a temperatura ambiente, los cristales precipitados fueron recolectados por filtración para obtener 5,06 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [$CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

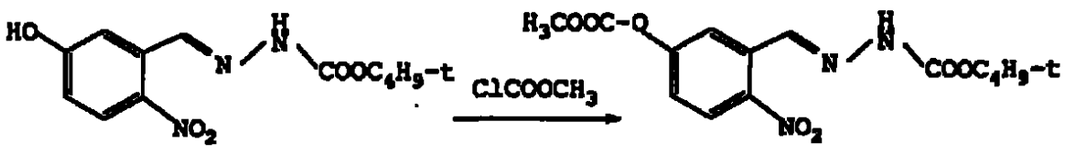
1,57 (9H; s); 6,84 (1H; d.d); 7,66 (1H; d);
7,94 (1H; d); 8,42 (1H; br,s); 8,46 (1H; s);
10,5 (1H; br. s).

Rendimiento: 90%.

[0076]

7-2. Preparación de t-butil 2-(5-metoxicarboniloxi-2-nitrofenilmetiliden)carbazato

[Fórmula 18]



En 15 ml de tetrahidrofurano se disolvieron 4,22 g (0,015 mol) de t-butil 2-(5-hidroxi-2-nitrofenil-metiliden)carbazato que se obtuvo en Ejemplo 7-1 y 1,67 g (0,0165 mol) de trietilamina, luego la solución se enfrió a 0° C. Luego de 15 minutos, a la solución se agregó por gotas 1,56 g (0,0165 mol) de clorofomato de metilo disuelto en 5 ml de tetrahidrofurano, luego la reacción fue continuada en temperatura ambiente durante 3 horas. Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción se vierte en 20 ml de agua, y el compuesto deseado se extrajo con acetato de etilo (20 ml X 3). La solución extraída se lavó con agua y se solución acuosa saturada de cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magnesio anhidro, entonces el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo resultante fue recristalizado de hexano-éter para obtener 4,6 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

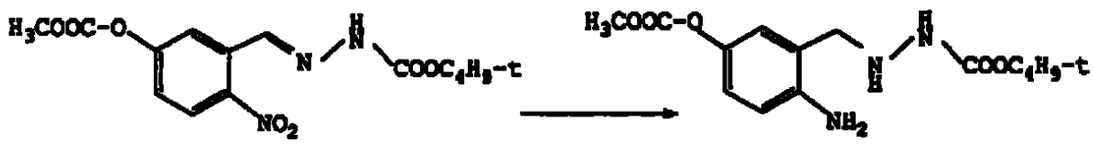
1,54 (9H; s); 3,93 (3H; s); 7,33 (1H; d.d);
8,06 (1H; d); 8,14 (1H; d); 8,21 (1H; br.s);
8,45 (1H; s).

Rendimiento: 90 %.

[0077]

7-3. Preparación de t-butil 2-(2-amino-5-metoxicarboniloxifenilmetil)carbazato

[Fórmula 19]



A 50 ml de metanol se agregaron 4,4 g (0,013 mol) de t-butil 2-(5-metoxicarboniloxi-2-nitrofenilmetiliden)carbazato que se obtuvo en el Ejemplo 7-2 y 0,4 g de 5% paladio-carbono, luego la reducción catalítica se realizó a 3 - 4 kg/m².

Después de la absorción de una cantidad teórica de hidrógeno el catalizador fue eliminado de la mezcla de reacción por medio de filtración, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida, para obtener 4 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

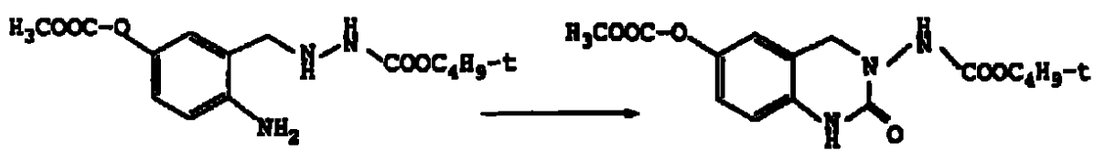
1,46 (9H; s); 3,87 (3H; s); 3,96 (2H; d);
4,6-5,0 (3H; br.s,); 6,05 (1H; br.s);
6,6-6,7 (1H; m); 6,8-7,0 (2H; m).

Rendimiento: Cuantitativo.

[0078]

7-4. Preparación de 3-t-butoxicarbonilamino-6-metoxicarboniloxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona

[Fórmula 20]



En 20 ml de tetrahidrofurano se disolvieron 3,1 g (0,01 mol) de t-butil 2-(2-amino-5-metoxicarboniloxifenilmetil)carbazato que se obtuvo en el Ejemplo 7-3 y 2,6 g (0,01 mol) de 1,1'-carbonil-bis(1H-imidazol), la reacción se realizó en la temperatura ambiente durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, la mezcla de la reacción se vierte en 20 ml de agua, y el compuesto deseado se extrajo con acetato de etilo (20 ml X 3). La solución extraída se lavó con agua y solución acuosa saturada de cloruro de sodio, fue secada sobre sulfato de magensio anhidro, y el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El producto crudo así obtenido fue recristalizado del acetato del hexano-etilo, fue obtenido 2,1 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

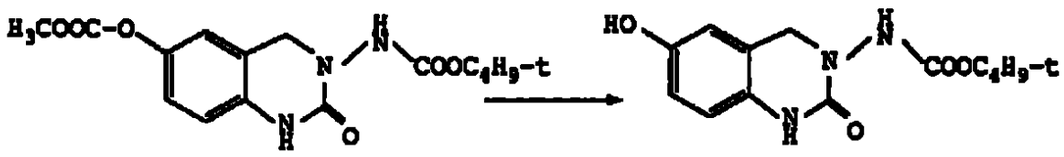
1,42 (9H; s); 3,80 (3H; s); 4,81 (2H; s); 6,5-6,7 (3H; m); 9,01 (1H; s); 9,15 (1H; br.s).

Rendimiento: 60%.

[0079]

7-5. Preparación de 3-t-butoxicarbonilamino-6-hidroxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona

[Fórmula 21]



A 20 ml de 50% metanol se agregaron 2,1 g (0,0062 mol) de 3-t-butoxicarbonilamino-6-metoxicarboniloxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona que se obtuvieron en el Ejemplo 7-4 y 0,64 g (0,0063 mol) de carbonato de sodio, luego la reacción fue realizada calentando bajo reflujo durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción el metanol fue eliminado por destilación bajo presión reducida. Al residuo así obtenido se agregó 10 ml de agua y fue recolectado por filtración, entonces se realiza la recristalización de 95 % metanol para obtener 1,3 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

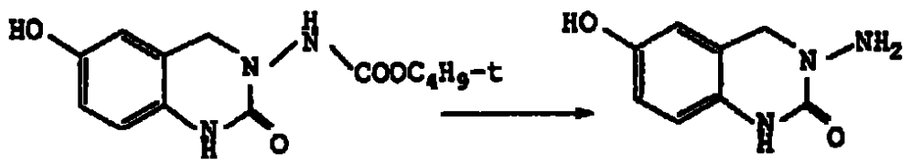
1,42 (9H; s), 4,81 (2H; s), 6,5-6,7 (3H; s),
9,01 (1H; s), 9,10 (1H; s), 9,15 (1H; br.s).

Rendimiento: 75%.

[0080]

7-6. Preparación de 3-amino-6-hidroxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona (Comound No. II-2)

[Fórmula 22]



A 20 ml de ácido trifluoroacético se agregaron 1,3 g (0,0046 mol) de 3-1-butoxicarbonilamino-6-hidroxi-3,4-dihidro-2(1H)-quinazolinona obtenidos en el Ejemplo 7-5, luego la reacción se realizó a temperatura ambiente durante 3 horas.

Después de la realización de la reacción, 10 ml de metanol se agregaron a la mezcla de la reacción, el solvente fue eliminado por destilación bajo presión reducida. El residuo resultante fue recristalizado del metanol para obtener 0,74 g del compuesto deseado.

^{1}H-RMN [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

4,95 (2H; s); 4,65 (2H; s); 6,51-6,63 (3H; m); 9,00 (1H; s); 9,60 (1H; br.s),

Rendimiento: 90 %.

[0081]

Los controladores de plaga conteniendo, como un ingrediente activo, el derivado aminoquinazolinona sustituido (tione) de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención son adecuados para controlar diversas plagas de insecto tales como plagas de insecto agrícolas, plagas de insecto de bosque, plagas de insecto hortícolas, plagas de insecto de grano almacenado, plagas de insecto sanitarias,

nemátodos, etc. Éstos también tienen un efecto insecticida, por ejemplo, en HEMIPTEROS incluso la langosta verde del té (Empoasca onukii), langosta de arroz verde (Nephotettix cincticeps), langosta marrón de arroz (Nilaparvata lugens), (Sogatella furcifera), (Diaphorina citri), mosca blanca del cítrico (Dialeurodes citri), mosca blanca de la batata (Bemisia tabaci), mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporarioum), pulgón (Brevicoryne brassicae), pulgón de algodón (Aphis gossypii), pulgón de avena (Rhopalosiphum padi), pulgón verde del duraznero (Myzus persicae), cochinilla de cera india (Ceroplastes ceriferus), (Pulvinaria aurantii), (Pseudaonidia duplex),

[0082]

cochinilla San José (Comstockaspis perniciosa), cochinilla punta de flecha (Unaspis yanonensis), bicho de la hoja de arroz (Trigonotylus colelestialium), etc., TILENQUIDOS inclusive los nemátodos de lesión de raíz de café (Pratytlenchus coffeae), nemátodo de quiste de papa (Globodera rostochiensis), anguilulosis de la raíz (Meloidogyne sp.), nemátodo de los citrus (Tylenchulus semipenetrans), Aphelenchus. sp (Aphelenchus avenae), nematodo de foliar de crisantemo (Aphelenchoides ritzemabosi), etc., y ORTOPTEROS que incluyen el gorgojo de arroz (Stenchaetothrips biformis), etc.

Adicionalmente, los controladores de plaga de la presente invención producen menores efectos perjudiciales contra

los insectos útiles, por ejemplo, gusano de seda (Bombyx mori), larva del poroto (Osmia cornifrons) y lo similar, de esta manera se pueden mencionar com insecticidas altamente seguros.

Los nombres zoológicos y lo similar están de acuerdo con la Sociedad de Zoología y Entomología Aplicada de Japón, "List of Agricultural and Forest Injurious Animals and Insects", publicado en 1987.

[0083]

El controlador de plaga que contiene como ingrediente activo el derivatdo (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención posee un marcado efecto de control en las plagas de insecto, plagas sanitarias, y/o nematodos ejemplificados precedentemente que son dañinos para los campos de arroz, árboles frutales, verduras y otros cultivos, y flores y plantas ornamentales. Por consiguiente, el efecto deseado del insecticida de la presente invención puede ser obtenido aplicando el insecticida al agua del campo de arroz, la planta de arrozal, los árboles frutales, verduras, otros cultivos, semillas de flores y plantas ornamentales, raíces, tallos y hojas de plantas, suelo, etc., o al dentro de una casa o regaderas automáticas alrededor de una casa en la cual las plagas de insecto sanitarias dañinas para los hombres y bestias ejemplificadas precedentemente se presentan o se espera que se presenten. La aplicación se lleva a cabo en una estación en la cual se espera que las plagas del

insecto, plagas sanitarias o nemátodos aparezcan, antes de su aparición o en el momento en el cual su presencia está confirmada. La presente invención sin embargo no debe limitarse a éstas modalidades de realización.

[0084]

Cuando el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención se usa como un controlador de plaga, el derivado o sal se prepara generalmente en las formas convenientemente utilizables según una modalidad convencional para la preparación de agroquímicos.

Es decir, el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención y, opcionalmente, un auxiliar es mezclado con un portador inerte conveniente en una proporción apropiada y se prepara en una modalidad de la preparación conveniente como una suspensión, concentrado emulsionable, concentrado soluble, polvo humectable, gránulos, polvo o tabletas a través de la disolución, dispersión, suspensión, mezcla, impregnación, adsorción o pegado.

El portador inerte usado en la presente invención puede ser sólido o líquido. Como el portador sólido, pueden ejemplificarse harina de soja, harina de cereal, aserrín de madera, polvo de corteza, polvo de aserrín, polvo de tallo de tabaco, polvo de cáscara de nuez, salvado, polvo de celulosa,

residuo de extracción de verduras, polvos o resinas de polímeros sintéticos, arcillas (caolín por ej., bentonita, y la arcilla ácida), talcos (talco por ej. y pirofilita), polvo de sílice o escamas (tierra de diatomeas por ej., arena de sílice, mica y carbón blanco, es decir sintético, ácido silícico de alta dispersión, también llamado sílice hidratado finamente dividido o ácido silícico hidratado, algunos de los productos comercialmente disponibles, contienen silicato de calcio como el componente principal), carbón activado, polvo de azufre, piedra pómez en polvo, tierra de diatomeas calcinada, polvo de ladrillo, ceniza de mosca, arena, polvo de carbonato de calcio, polvo de fosfato de calcio y otros polvos inorgánicos o minerales, fertilizantes químicos (por ej. sulfato de amonio, fosfato de amonio, nitrato de amonio, urea y cloruro de amonio), y abonos. Estos portadores pueden usarse solos o como una mezcla de los mismos.

[0085]

El portador líquido es aquel que por sí mismo posee solubilidad o que no posee tal solubilidad pero que es capaz de dispersar un ingrediente activo con la ayuda de un auxiliar. Los siguientes son ejemplos típicos del portador líquido y puede usarse solo o como una mezcla de los mismos. El Agua; metanoles tales como alcoholes, etanol, isopropanol, butanol y etilén glicol; cetonas tales como acetona, etiló metil cetona, metil isobutil cetona, diisobutil cetona y ciclohexanona; éteres tales

como etil éter, dioxano, cellosolve, dipropil éter y tetrahidrofurano; hidrocarburos alifáticos como querosén y aceite mineral; los hidrocarburos aromáticos tales como benceno, tolueno, xileno, nafta solvente y alquilnaftalenos; los hidrocarburos halogenados tales como dicloroetano, cloroformo y tetracloruro de carbono; ésteres tales como etil cetato, diisopropil ftalato, dibutil ftalato y dioctil ftalato; amidas tales como dimetilformamida, dietilformamida y dimetilacetamida; nitrilos tales como acetonitrilo; y dimetil sulfóxido.

[0086]

Lo siguiente son ejemplos típicos del auxiliar, el cual se usa dependiendo en los propósitos y se usa solo o en combinación en algunos casos, o no necesita ser usado en absoluto.

Se utiliza para emulsionar, dispersar, disolver y/o humectar un ingrediente activo, un agente tensioactivo. Como el agente tensioactivo, pueden ejemplificarse alquil éteres de polioxietileno, alquilaril éteres de polioxietileno, polioxietilén ésteres de ácido graso superior, resinatos de polioxietileno, sorbitan monolaurato de polioxietileno, sorbitan monooleato de polioxietileno, alquilarilsulfonatos, los productos de la condensación de ácido naftalensulfónico, ligninsulfonatos y ésteres sulfato de alcohol superior.

[0087]

Además, para estabilizar la dispersión de un

ingrediente activo, su adhesión y/o unión, pueden usarse auxiliares tales como caseína, gelatina, almidón, metil celulosa, carboximetil celulosa, goma arábiga, polivinil alcoholes, trementina, aceite de salvado, bentonita y ligninsulfonatos.

Para mejorar la fluidez de un producto sólido, pueden usarse auxiliares tales como ceras, estearatos y fosfatos de alquilo.

Los auxilires tales como los productos de la condensación de ácido naftalensulfónico y policondensados de fosfatos pueden usarse como un peptizador para los productos dispersables.

Los auxiliares tales como aceites de silicona también pueden ser usados como un agente de despumación.

El contenido del ingrediente activo puede variar según sea requerido. En polvos o gránulos, el volumen conveniente es desde 0,01 a 50 % en peso. En concentrado emulsionable o polvos humectables diluibles, también es de 0,01 a 50% en peso.

[0088]

El controlador de plaga que contiene como ingrediente activo el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención se usan para controlar una variedad de plagas de insecto de la manera siguiente. Es decir, se aplica a las plagas de insecto o un sitio en donde no se desea que se presenten o crezcan las

333
UU341

plagas del insecto, tal como está o después de diluirse apropiadamente con o suspendido en agua o lo similar, en una cantidad eficaz para el control de las plagas de insecto.

La dosis de aplicación del controlador de plaga que contiene como un ingrediente activo el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención varía dependiendo de diveros factores tales como propósito, plagas de insecto a ser controlado, estado de crecimiento de una planta, tendencia de aparición de plagas de insecto, clima, condiciones medioambientales, forma de la preparación, método de aplicación, sitio de aplicación y tiempo de aplicación. Puede elegirse apropiadamente en el rango desde 0,1 g hasta 5 kg (en términos del ingrediente activo) por 0,1 hectárea dependiendo de los propósitos.

El controlador de plaga que contiene como ingrediente activo el derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención puede usarse en una mezcla con otros insecticidas o fungicidas para extender tanto el espectro de especie de plaga de insecto controlable como el periodo de tiempo cuando las aplicaciones eficaces son posibles o para reducir la dosificación.

Los ejemplos de formulación y ejemplos de prueba típicos de la presente invención se describen a continuación pero los mismos no deben interpretarse como limitadores del

alcance de la invención.

En los ejemplos de formulación, las partes son todas en peso.

[0089]

Ejemplo de Formulación 1

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	50 partes
Xileno	40 partes
Mezcla de polioxietilen nonilfenil éter y calcio alquilbencensulfonato	10 partes

Un concentrado emulsionable fue preparado mezclando los ingredientes anteriores uniformemente para efectuar la disolución.

Ejemplo de formulación 2

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	3 partes
Polvo de la arcilla	82 partes
Polvo de tierra de diatomeas	15 partes

Un polvo fue preparado mezclando uniformemente y moliendo los ingredientes anteriores.

[0090]

Ejemplo de formulación 3

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4	5 partes

Polvo mezclado de bentonita y arcilla 90 partes

Lignin sulfonato de calcio 5 partes

Los gránulos fueron preparados mezclando los ingredientes anteriores uniformemente, y amasando la mezcla resultante junto con una cantidad conveniente de agua, seguido por granulación y secado.

Ejemplo de formulación 4

Cada compuesto enumerado en Tablas 3 y 4 20 partes

Mezcla de caolín y ácido silícico de alta dispersión sintético, 75 partes

Mezcla de polioxietilen nonilfenil éter y alquilbenzenesulfonato de calcio 5 partes

Un polvo humectable fue preparado mezclando uniformemente y moliendo los ingredientes anteriores.

[0091]

Ejemplo de prueba 1

Eficacia del control contra el pulgón verde del duraznero (Myzus persicae)

Una planta de repollo de la china se plantó en cada una de las macetas de plástico con un diámetro de 8 cm y una altura de 8 cm y los pulgones verdes del duraznero se propagaron en la planta después de lo cual se contaron los parásitos en cada maceta.

336
C0344

Cada uno de los derivados aminoquinazolinona (tiona) sustituidos de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención que se enumera en las Tablas 3 y 4 se dispersó y se diluyó en agua para obtener un líquido químico de 500 ppm. Los tallos y hojas de las plantas de repollo de la se China se rociaron con el líquido químico y se secaron por aire, y luego las macetas se almacenaron en un invernáculo. Seis días después del rociado, los pulgones verdes del duraznero parasitario en cada planta de repollo de la China se contaron y el grado de eficacia de control fue calculado por medio de la ecuación siguiente, con la cual el efecto del insecticidal se evaluó según el criterio indicado a continuación.

[0092]

Eficacia de control = 100 - {(T x Ca)/(Ta x C)}x 100

Ta: número de parásitos antes de rociar en grupo tratado,

T: número de parásitos después de rociar en grupo tratado,

Ca: número de parásitos antes de rociar el grupo no tratado,

C: número de parásitos después de rociar el grupo no tratado.

Criterio:

Eficacia	Porcentaje de control (%)
A	100
B	99 - 90
C	89 - 80
D	79 - 50

[0093]

Ejemplo de prueba 2

Efecto insecticida en el langosta marrón de arroz (Nilaparvata Lugens)

Cada uno de los derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos de la fórmula general (I) o sal del mismo de la presente invención enumerados en Tablas 3 y 4 se dispersó y se diluyó con agua para obtener un líquido químico con 500 ppm. Las plantas de arroz (cultivo: Nihonbare) se sumergieron en el líquido químico durante 30 segundos y se secó por aire después de lo cual cada planta se coloca en un tubo de ensayo de vidrio y se inoculó con 10 ninfas de tercer etapa de langosta marrón de arroz, y el tubo de ensayo se tapa con un tapón de algodón. Ocho días después de la inoculación, se contaron los especímenes muertos y vivos. La tasa de mortalidad fue calculada por la ecuación siguiente y el efecto de control se evaluó según el criterio descripto a continuación.

Mortalidad de larvas corregida (%) = {(Ca/c-Ta/T)/Ca/c)x100

Ta: número de ninfas vivas en grupos tratados

T: número de ninfas inoculadas en grupos tratados

Ca: número de ninfas vivas en el grupo no tratado

c: número de ninfas inoculadas en grupos no tratados

Criterio: igual que el de Ejemplo de prueba 1.

[0094]

Ejemplo de prueba 3

Prueba insecticida en mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporariorum)

Cada uno de los compuestos de la presente invención enumerados en Tabla 3 y Tabla 4 se dispersaron y se diluyeron con agua para preparar un líquido de prueba que contiene 100 ppm del compuesto de la prueba. Mediante utilización de una pistola rociadora, el líquido de prueba se roció en la superficie de una hoja de planta de tomate colocada en una ampolla de 20 ml que contiene agua en una mesa giratoria. Después de secado por aire, la hoja tratada con el líquido de prueba se coloca en un cilindro de vidrio, y se inoculó con 20 adultos de mosca blanca de invernadero. Después de la inoculación, la hoja se puso en un invernadero, y el número de adultos de mosca blanca del invernadero fue contado. La tasa mortalidad de los adultos se calculó de manera similar a la realizada en el Ejemplo de prueba 2, y el efecto insecticidal de cada uno de los compuestos de prueba fue evaluado por un método idéntico al Ejemplo de prueba 1.

[0095]

De los resultados obtenidos en Ejemplo de prueba 1, 2 y 3 se desprende: en el Ejemplo de prueba 1, los Compuestos No. 6, 18, 22, 26, 30, 184, 200, 204 y 208 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con A contra el pulgón verde del duraznero (Myzus persicae); en el Ejemplo de prueba 2, los

Compuestos No. 6, 18, 22, 26, 30, 184, 200, 204 y 208 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con A contra la langosta (Nilaparvata lugens); y en el Ejemplo de prueba 3, los Compuestos No. 6, 10, 14, 18, 22, 26, 30, 38, 78, 86, 90, 184, 200, 204 y 208 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con D o superior contra la mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporariorum); particularmente, los Compuestos No. 6, 18, 22, 26, 30, 184, 200, 204 y 208 demostraron un efecto insecticida excelente calificado con A.

[0096]

[Efectos de la invención]

Los controladores de plaga de la presente invención conteniendo, como el ingrediente activo, derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos o sales de los mismos representados por la fórmula general (I) poseen excelente efecto insecticida en bajas dosis contra la mosca blanca de invernadero (Trialeurodes vaporariorum) y lo similar, respecto a compuestos convencionales con estructura química análoga que no presentan el efecto insecticida deseado. De esta manera, los activo, derivados (tiona) aminoquinazolinona sustituidos de la presente invención son excelentes controladores de plagas en comparación con los controladores convencionales.

340

84348

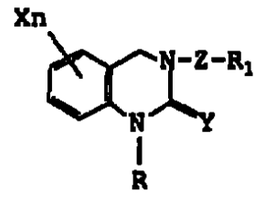
[Título del documento] Resumen

[Resumen]

[Medios de resolución]

Un controlador de plaga que contiene, como ingrediente activo, un derivado (tiona) aminoquinazolinona sustituido o sal del mismo representado por la fórmula general (I):

[Fórmula 1]



(I)

[en donde R es H, OH, grupo formilo, grupo halo(C_{1-6}) alquilo, grupo hidroxi(C_{1-6})alquilo, grupo alquenilo (C_{2-6}), grupo alquil(C_{1-6})amino (sustituido), grupo aminocarbonilo (sustituido), grupo fenil(C_{1-3})alquilo (sustituido), grupo fenilalquinil(C_{1-3})alquilo (sustituido), grupo 1,3-dioxolan-2-il-alquilo(C_{1-3}), grupo ftalimido(C_{1-6})alquilo y lo similar; R_1 es grupo heterocíclico de 5 a 6 miembros que posee 1 a 3 heteroátomos seleccionados del grupo que consiste de O, S y N; Y es O ó S; Z es grupo de la fórmula -N=C(R_2)- o -N(R_3)-CH(R_2) (en donde cada uno de R_2 y R_3 es átomo de hidrógeno, grupo alquilo (C_{1-6}) o lo similar); X es Br, I, OH, CN, grupo alquilo (C_{1-6}), grupo alquenilo (C_{2-6}), grupo aminocarbonilo (sustituido), grupo feniloxilo (sustituido) o lo similar; n es un entero de 0 a 4].

[Efecto]

Dicho derivado aminoquinazolinona sustituido o sal del mismo posee excelente efecto insecticida a bajas dosis contra la mosca blanca del invernadero (Trialeurodes vaporariorum) y lo similar respecto a compuestos convencionales con estructura química similar que no presentan el efecto insecticida deseado.

[Dibujo seleccionado] Ninguno

342

DECLARATION

I, Katsuhisa Meren of No. 1359-5-1-511, Yonamoto, Yachiyo-shi, Chiba-ken, Japan, do solemnly and sincerely declare that I well understand the Japanese language and English language and that the attached English version is full, true and faithful translation made by me this 22nd day of November, 2000 of the attached document.

And I made this solemn declaration conscientiously believing the same to be true.

Katsuhisa Meren

NOTARIAL CERTIFICATE

Registration No. 1152 of 2000

Subscribed and affirmed before me, on this 22nd day of November, 2000.

TOKYO LEGAL AFFAIRS BUREAU
NOTARY OFFICE
NO 1-10 NIHOMBASHI KABUTO-CHO
CHUO-KU TOKYO JAPAN

Masakazu Watanabe

Masakazu Watanabe

Notary, attached to
The Tokyo Legal Affairs Bureau.
No. 1-10, Nihombashi, Kabuto-cho,
Chuo-ku, Tokyo, Japan.

E5585-03
(Colombia) 343

~~00351~~

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this ffice.

DATE OF APPLICATION: March 30, 2000

PATENT APPLICATION NO. 2000-094493

APPLICANT(S): NIHON NOHYAKU CO., LTD.

Dated this 10th day of November , 2000 .

Kouzo OIKAWA
Commissioner
PATENT OFFICE

Certificate No. 2000-3094011

344

2000-094493

[Title of Document] Patent Application

[Reference Number] C8121

[Data of Submission] March 30, 2000

[Addressee] Commissioner
The Patent Office

[International Patent Classification] C07D 235/00
A01N 43/40

[Inventor]

[Address] 115-12, Joroku, Sakai-shi, Japan.

[Name] Masahiro UEHARA

[Inventor]

[Address] 1-28, Nishinoyamacho, Kawachinagano -shi, Japan.

[Name] Masamitsu WATANABE

[Inventor]

[Address] 15-5, Midorigaokaminamimachi, Kawachinagano-shi, Japan.

[Name] Masayuki KIMURA

[Inventor]

[Address] 1-28-305, Nishinoyamacho, Kawachinagano-shi, Japan.

[Name] Masayuki MORIMOTO

[Inventor]

[Address] 5-3, Koyodai-2-chome, Hashimoto-shi, Japan.

[Name] Masanori YOSHIDA

[Applicant]

[Applicant's ID Number] 0 0 0 2 3 2 6 2 3

[Name] NIHON NOHYAKU CO., LTD.

[Agent]

[Agent's ID Number] 1 0 0 0 6 8 6 1 8

[Patent Attorney]

[Name] Norio HANABUSA

[Telephone] 03-3291-9721

[Agent]

[Agent's ID Number] 1 0 0 0 9 3 1 9 3

[Patent Attorney]

[Name] Toshio NAKAMURA

[Agent]

[Agent's ID Number] 1 0 0 1 0 4 1 4 5

[Patent Attorney]

[Name] Yoshio MIYAZAKI

[Priority Claim from Ealier Application]

[Japanese Patent Application No.] 11-312297

[Japanese Patent Application Date] November 2, 1999

346

2000-094493

[Indicaiton on Fee]

[Prepayment Register Number] 018120

[Amount of Payment] ¥21,000-

[List of Items Filed]

[Title of Article] Specification 1

[Title of Article] Abstract 1

[Number of General Power] 9 7 1 0 3 6 9

[Proof: Required or not] Yes

347

00954

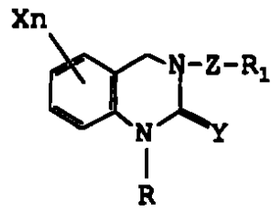
[Title of Document] Specification

[Title of the Invention] SUBSTITUTED AMINOQUINAZOLINONE (THIONE) DERIVATIVES OR SALTS THEREOF, INTERMEDIATES THEREOF, AND PEST CONTROLLERS AND A METHOD FOR USING THE SAME

[Scope of Claim for a Patent]

[Claim 1] A substituted aminoquinazolinone (thione) derivative represented by the general formula (I), or a salt thereof:

[Formula 1]



(I)

wherein R is a hydrogen atom; a hydroxyl group; a formyl group; a (C_{1-12})alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a hydroxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})-alkoxy group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})-alkoxy(C_{1-3})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a (C_{1-6})alkylthio(C_{1-3})alkyl group; a di(C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group in which the (C_{1-6})alkoxy groups may be the same or different; an

unsubstituted amino(C_{1-6})alkyl group; a substituted amino(C_{1-6})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a cyano(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a hydroxycarbonyl-(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})-alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a (C_{3-6})-cycloalkyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted

phenylthio group; a substituted phenylthio group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylsulfonyl group; a substituted phenylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a substituted phenyl(C_{1-6})alkylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxycarbonyl group; a substituted phenyloxycarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-

alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyloxy(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})-alkenyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl

groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; a 1,3-dioxolan-2-yl(C_{1-3})alkyl group; or a phthalimido(C_{1-6})alkyl group,

R_1 is a 5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 to 3 heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom, said heterocyclic ring may have 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups and (C_{1-6})alkoxy groups, and the nitrogen atom in the heterocyclic ring may form an N-oxide group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 is as defined above, and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group, a formyl group, a halo(C_{1-3})-alkylcarbonyl group or a halo(C_{1-3})alkylcarbonyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom; an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; a (C_{1-6})alkoxysulfonyl group; a substituted aminosulfonyl group having one or two substitutents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})-alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted

phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo-(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})-alkylthio groups, (C_{1-6})alkoxysulfonyl groups and substituted aminosulfonyl groups having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4.

[Claim 2] A substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or a salt thereof according to claim 1,

wherein R is a hydrogen atom; a formyl group; a (C_{1-12})-alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; an unsubstituted amino(C_{1-6})alkyl group; a substituted amino(C_{1-6})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a cyano(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a hydroxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a (C_{3-6})cycloalkyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio

groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylthio group; a substituted phenylthio group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})-alkenyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; or a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups,

R_1 is a 5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 to 3 heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom, said heterocyclic ring may have 1 to 5 substituents which

may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups and (C_{1-6})alkoxy groups, and the nitrogen atom in the heterocyclic ring may form an N-oxide group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom or a (C_{1-6})alkyl group, and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group, a formyl group, a (C_{1-3})alkylcarbonyl group or a halo(C_{1-3})-alkylcarbonyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom; an iodine atom; a hydroxyl group; a (C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a halo(C_{1-8})alkyl group, a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl

group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4.

[Claim 3] A substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or a salt thereof according to claim 2,

wherein R is a hydrogen atom; a formyl group; a (C_{1-12})-alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a(C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})-alkyl group; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group; a substituted phenyl(C_{1-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; or a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups, R_1 is

a pyridyl group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

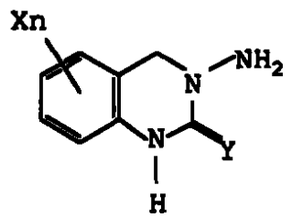
(wherein R_2 is a hydrogen atom or a (C_{1-6})alkyl group, and R_3 is a hydrogen atom or a (C_{1-6})alkyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom; an iodine atom; a hydroxyl group; a (C_{1-6})-alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a halo(C_{1-8})alkyl group, a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group

consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4.

[Claim 4] A compound represented by the general formula (II),

[Formula 2]



(II)

wherein X may be the same or different, and is a bromine atom, an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{1-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl

groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups, an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_1-C_6)alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; n is an integer of 0 to 4; and Y is an oxygen atom or a sulfur atom.

[Claim 5] A pest controller comprising as an active ingredient a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or a salt thereof set forth in any one of claims 1 to 3.

[Claim 6] A pest controller comprising as active ingredients a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or a salt thereof set forth in any one of Claims 1 to 3, and one or two or more of other agricultural chemicals.

[Claim 7] A method for controlling pests which

comprises applying a pest controller comprising as an active ingredient a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or salt thereof set forth in any one of claims 1 to 3, to objective crops or soil.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Technical Field Pertinent to the Invention]

The present invention relates to substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives or salts thereof, intermediates thereof for preparing the same, pest controllers and a method for using the same.

[0002]

[Related Prior Art]

Japanese Patent Unexamined Publication, JP-A-8-325239 discloses that aminoquinazolinone derivatives are useful as pest controllers.

[0003]

[Problem to be solved by the Invention]

As a consequence of investigation earnestly conducted for finding a novel pest controller, the present inventors found that compounds of the present invention, having the substituents in the phenyl group which is belonging to the quinazolinone ring, possess the same or better insecticidal effects at low dosage as compared with compounds of Examples disclosed in the above-mentioned JP-A-8-325239. Paticularly the compounds of the present invention possess sufficient

insecticidal effects against whiteflies under consideration in the agricultural and horticultural fields, consequently the present inventors have accomplished the present invention.

The substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives or salts thereof represented by the general formula (I) and the compounds represented by the general formula (II) which are intermediates for preparing the derivatives of the general formula (I) are novel compounds which have not been known in any prior art literature. Furthermore, pest controllers containing, as the active ingredient, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative represented by the general formula (I) or salts thereof possess excellent insecticidal effects against various insects at low dosage as compared with conventional pest controllers.

[0004]

[Means for Solving Problem]

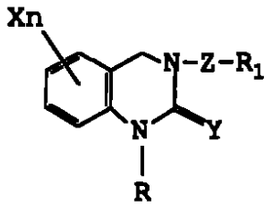
The present inventors have earnestly conducted investigation on the aminoquinazolinone (thione) derivatives for developing a novel pest controller having expanded insceticidal spectrum. Finally, the inventors have found the fact that novel aminoquinazolinone derivatives having bromine atom, iodine atom, perfluoroalkyl group, perfluoroalkoxy group or the like in the quinazoline ring possess quite excellent insecticidal activities as pest controllers.

365

[0005]

The present invention relates to substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives represented by the general formula (I), or salts thereof:

[Formula 3]



(I)

[where R is a hydrogen atom; a hydroxyl group; a formyl group; a (C_{1-12})alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a hydroxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})-alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a (C_{1-6})alkylthio(C_{1-3})alkyl group; a di(C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group in which the (C_{1-6})alkoxy groups may be the same or different; an unsubstituted amino(C_{1-6})alkyl group;

[0006]

a substituted amino(C_{1-6})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a cyano(C_{1-6})alkyl group; a $(C_{1-}$

$_6$)alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a hydroxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxy-carbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a (C_{3-6})cycloalkyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups;

[0007]

an unsubstituted phenylthio group; a substituted phenylthio group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-}

$_6$)alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylsulfonyl group; a substituted phenylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-6})alkyl-sulfonyl group; a substituted phenyl(C_{1-6})alkylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxycarbonyl group;

[0008]

a substituted phenyloxycarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy-(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyloxy(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may

be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups;

[0009]

an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups,

halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; a 1,3-dioxolan-2-yl(C_{1-3})alkyl group; or a phthalimido(C_{1-6})alkyl group,

[0010]

R_1 is a 5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 to 3 heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom, said heterocyclic ring may have 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups and (C_{1-6})alkoxy groups, and the nitrogen atom in the heterocyclic ring may form an N-oxide group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

[0011]

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 is as defined above, and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group, a formyl group, a (C_{1-3})-alkylcarbonyl group or a halo(C_{1-3})alkylcarbonyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom, an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group;

[0012]

a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group, a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; a (C_{1-6})alkoxysulfonyl group; a substituted aminosulfonyl group having one or two substitutents which may be the same or different and are selected

from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups,

[0013]

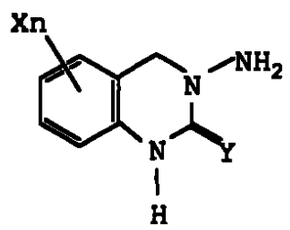
(C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups, (C_{1-6})alkoxysulfonyl groups and a substituted aminosulfonyl groups having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and

halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4], pest controllers containing the substituted amino-quinazolinone (thione) derivative or salts thereof as the active ingredient, and a method for using the pest controllers.

[0014]

The present invention also relates to intermediate compounds for producing the above-mentioned derivatives, represented by the general formula (II):

[Formula 4]



(II)

[wherein, X may be the same or different and is a bromine atom, an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{1-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl groups;

[0015]

a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group;

an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups;

[0016]

an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-

alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; n is an integer of 0 to 4; and Y is an oxygen atom or a sulfur atom].

[0017]

[Mode for Carrying Out the Invention]

In the definitions of each substituents of the substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives of the general formula (I) of the present invention, the "halogen atom" means a chlorine atom, a bromine atom, an iodine atom or a fluorine atom. The term "(C_{1-12})" means 1 to 12 carbon atoms. The term "(C_{1-12})alkyl group" means a linear or branched alkyl group of 1 to 12 carbon atoms, for example an alkyl group such as methyl, ethyl, n-propyl, i-propyl, n-butyl, i-butyl, s-butyl, t-butyl, n-pentyl, n-hexyl, n-heptyl, n-octyl, n-nonyl, n-decyl, n-undecyl, n-dodecyl and the like. The term "halo(C_{1-10})alkyl group" means a substituted and linear or branched alkyl group of 1 to 10 carbon atoms having, as the substituent(s), one or more halogen atoms which may be the same or different, for example trifluoromethyl group, pentafluoroethyl group,

heptafluoropropyl group and the like. The term "(C_{2-6})alkenyl group" means a linear or branched alkenyl group of 2 to 6 carbon atoms having one or more double bonds. The term "halo(C_{2-6})alkenyl group" means a substituted linear or branched alkenyl group of 2 to 6 carbon atoms having, as the substituent(s), one or more halogen atoms which may be the same or different. The term "(C_{2-6})alkynyl group" means a linear or branched alkynyl group of 2 to 6 carbon atoms having one or more triple bonds.

[0018]

The term "halo(C_{2-6})alkynyl group" means a substituted linear or branched alkynyl group of 2 to 6 carbon atoms having, as the substituent(s), one or more halogen atoms which may be the same or different. The term "5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 or more heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom" means any 5- or 6-membered heterocyclic ring for example, furan, thiophene, pyrrole, oxazole, thiazole, pyrazole, imidazole, 1,2,3-thiadiazole, 1,2,4-thiadiazole, 1,2,5-thiadiazole, 1,3,4-thiadiazole, 1,2,4-triazole, pyridine, pyridazine, pyrimidine, pyrazine, pyrrolidine, piperidine, morpholine, thiomorpholine, dithiolane, dithian, piperazine, dioxolan, imidazolidine, tetrahydrofuran and the like.

[0019]

The substituents of the substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives represented by the general formula (I) are preferably as follows: R is a hydrogen atom, a formyl group, a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group, a (C_{2-6})alkynyl group, a (C_{1-6})-alkylcarbonyl group, a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group, a (C_{1-6})alkylthio group, a halo(C_{1-6})alkylthio group, a phenylcarbonyl group, a substituted phenylcarbonyl group, a substituted phenyl(C_{1-6})alkyl group, a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group or a substituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; R_1 is a pyridyl group, particularly 3-pyridyl group; Y is an oxygen atom or a sulfur atom; Z is a group of the formula,

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 and R_3 are each a hydrogen atom or a (C_{1-6})-alkyl group); X is a bromine atom, an iodine atom, a halo(C_{1-6})alkyl group, a halo(C_{1-6})alkoxy group, a halo(C_{1-6})alkylthio group, a halo(C_{1-6})alkylsulfinyl group, a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group or a phenyl group); and n may be preferably an integer of 0 to 2.

As the salt of the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the formula (I), there can be exemplified salts with mineral acids such as hydrochloric acid, sulfuric acid, nitric acid, etc., and salts with alkali metal atoms such as sodium,

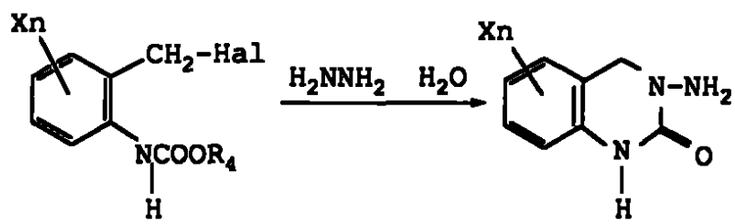
potassium, etc.

[0020]

The compound of the formula (II), an intermediate used for producing the substituted amino-quinazolinone (thione) derivative of the formula (I) can be produced by either of the following processes.

Production process 1.

[Formula 5]



(III) (II-1)

wherein X and n are the same as defined above, R_4 is a (C_{1-6})alkyl group, and Hal is a halogen atom.

[0021]

A compound of the general formula (II-1) can be produced by reacting a compound of the above general formula (III) with hydrazine hydrate in the presence of an inert solvent.

As the inert solvent usable in this reaction, any inert solvent may be used so long as it does not markedly inhibit the progress of the reaction. There can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; halogenated hydrocarbons such

as dichloromethane, chloroform, carbon tetrachloride, etc.; aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, monochlorobenzene etc.; nitriles such as acetonitrile, benzonitrile, etc.; cellosolves such as methyl cellosolve, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; amides such as dimethylformamide, dimethylacetamide, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, 1-methyl-2-pyrrolidone, etc.; dimethyl sulfoxide; sulfolane; and water. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

[0022]

The reaction temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 90℃.

Since the reaction is an equimolar reaction, it is sufficient that the compound of the general formula (III) and hydrazine hydrate are used in equimolar amounts, though either of these reactants may be used in excess. It is preferable to use hydrazine hydrate in excess.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the desired compound is isolated from the reaction mixture containing the desired compound by a conventional

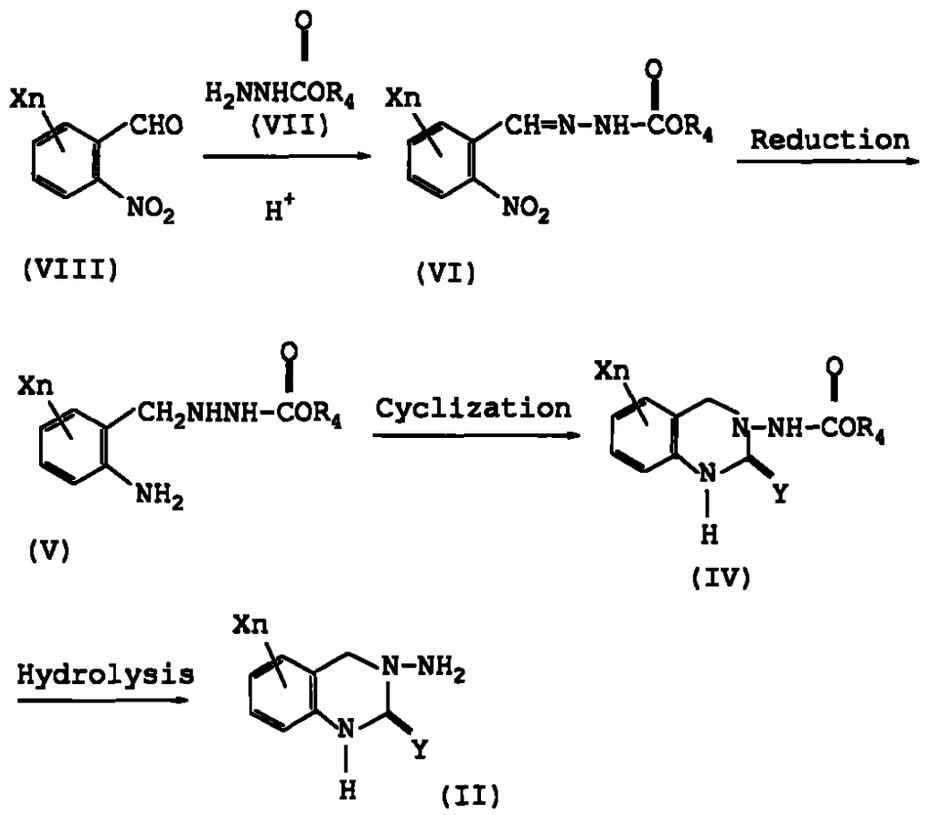
method, and if necessary, purified by recrystallization, dry column chromatography, etc., whereby the desired compound can be produced.

The compound of the above general formula (III) can be produced according to Collect. Czech. Chem. Commn. (Vol. 55), 752 (1990).

[0023]

Production process 2.

[Formula 6]



wherein R_4, X, Y and n are the same as defined above.

380

[0024]

2-1. General formula (VIII) → general formula (VI)

A compound of the general formula (VI) can be produced by reacting a compound of the general formula (VIII) with a compound of the general formula (VII) in the presence of an inert solvent and a catalyst.

As the inert solvent usable in this reaction, there can be used, for example, the inert solvents exemplified in production process 1. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

As the catalyst, there can be used inorganic acids (e.g. hydrochloric acid and sulfuric acid), acetic acid, p-toluenesulfonic acid, etc. The amount of the catalyst used may be such that the catalyst is present in the reaction system in an amount of 0.001 wt% to 10 wt% based on the weight of the compound of the general formula (VIII).

[0025]

Since the reaction is an equimolar reaction, it is sufficient that the compound of the general formula (VIII) and the compound of the general formula (VII) are used in equimolar amounts, though either of these reactants may be used in excess.

The reaction temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 90℃.

Although the reaction time is varied

depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

The compound of the general formula (VIII) may be a commercially available one or may be produced by nitrating a substituted benzaldehyde. Further, the compound of the formula (VIII) can be produced according to the method described in Journal of Chemical Society, 1927, pp. 2375-2378.

[0026]

2-2. General formula (VI) → general formula (V)

A compound of the general formula (V) can be produced by reducing the compound of the general formula (VI) with a reducing agent or by catalytic reduction in the presence or absence of an inert solvent.

As the reducing agent, there can be used, for example, metal hydrides such as, $NaBH_3CN$, $LiBH_3CN$, etc. and reducing agents such as BH_3, etc. The amount of the reducing agent used may be properly chosen in the range of 1 mole to excess moles (in terms of the number of moles of hydride as reducing agent) per mole of the compound of the general formula (VI).

As the inert solvent usable in the reaction,

any inert solvent may be used so long as it does not markedly inhibit the progress of the reaction. There can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; cellosolves such as methyl cellosolve, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; esters such as ethyl acetate, etc.; amides such as dimethylformamide, dimethylacetamide, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, 1-methyl-2-pyrrolidone, etc.; dimethyl sulfoxide; sulfolane; and water. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

[0027]

The reaction is carried out under acidic or neutral conditions in the pH range of 1 to 7, preferably 4 to 6. It is sufficient that the pH is adjusted by adding hydrogen chloride, hydrogen bromide or the like to the reaction system.

The reaction temperature is chosen in the range of 0℃ to the boiling point of the solvent, and ranges preferably from room temperature to 70℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

When catalytic reduction is carried out as the reduction reaction, it is carried out according to, for example, the method described in Shin Jikken Kagaku Koza, Vol. 15-II, Maruzen Co., Ltd. As the inert solvent usable in this case, there can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; cellosolves such as methyl cellosolve, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; hydrocarbons such as hexane, cyclohexane, etc.; fatty acids or esters thereof, such as acetic acid, ethyl acetate, etc.; amides such as dimethylformamide, dimethylacetamide, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, 1-methyl-2-pyrrolidone, etc.; and ureas such as tetramethylurea, etc. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

[0028]

As the catalyst used in the reduction reaction, there can be exemplified typical catalysts for catalytic reduction, such as palladium-carbon, palladium black, platinum dioxide, Raney nickel, etc. The amount of the catalyst used may be properly chosen in the range of 0.1% molar equivalent to 5% molar equivalent, preferably 0.5% molar equivalent to 1% molar equivalent, relative to the compound of the general formula (VI).

The hydrogen pressure in the reaction ranges from atmospheric pressure to 300 atmospheres, preferably from atmospheric pressure to 50 atmospheres.

There action temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 70℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in the case of using the reducing agent, whereby the desired compound can be produced.

[0029]

2-3. General formula (V) → general formula (IV)

A compound of the general formula (IV) can be produced by reacting the compound of the general formula (V) with 1,1'-carbonylbis-1H-imidazole (CDI), an alkoxycarbonyl halide, phosgene or thiophosgen in the presence of an inert solvent and in the presence or absence of a base.

As the inert solvent usable in the reaction, there can be exemplified ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc., and aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, etc. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

As the base, an inorganic base or an organic

base may be used, and there can be exemplified inorganic bases such as hydroxides and carbonates of alkali metals and alkaline earth metals [e.g. sodium hydroxide, potassium hydroxide, magnesium hydroxide, sodium carbonate, sodium hydrogencarbonate and potassium carbonate], and organic bases such as triethylamine and pyridine. When CDI is used as a reactant, the reaction can be carried out without a base.

[0030]

The amount of the base used is 2 moles or more per mole of the compound of the general formula (V).

The reaction temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 100℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

[0031]

2-4. General formula (IV) → general formula (II)

A compound of the general formula (II) can be

produced by hydrolyzing the compound of the general formula (IV) under basic condition in the presence of an inert solvent.

As the inert solvent usable in this reaction, there can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; and water. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

As the base, there can be used hydroxides of alkali metals or alkaline earth metals, such as sodium hydroxide, potassium hydroxide, magnesium hydroxide, etc.

Depending on the alkyl group for R_4, the reaction can be carried out also under acidic conditions by using an organic or inorganic acid such as trifluoroacetic acid or hydrochloric acid.

The reaction temperature may be properly chosen in the range of 0℃ to the boiling point of the inert solvent used.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1,

387

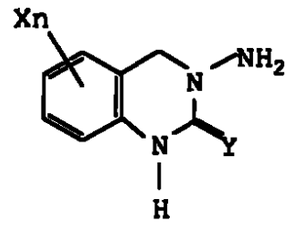
whereby the desired compound can be produced.

[0032]

Typical examples of the compounds of the general formula (II) produced by production processes 1 and 2 are given in Table 1 but they are not intended in any way to limit the scope of the present invention.

General formula (II)

[Formula 7]



(II)

[0033]

Table 1

No.	Xn	Y	Physical property
II-1	5-OH	O	Crystal
II-2	6-OH	O	Crystal
II-3	7-OH	O	Crystal
II-4	8-OH	O	Crystal
II-5	5-Br	O	
II-6	6-Br	O	Crystal
II-7	7-Br	O	
II-8	8-Br	O	
II-9	5-I	O	
II-10	6-I	O	m.p.202.3-205.0 ℃
II-11	7-I	O	
II-12	8-I	O	
II-13	5-CF_3	O	
II-14	6-CF_3	O	m.p.155-157.7 ℃
II-15	7-CF_3	O	

[0034]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-16	8-CF_3	O	
II-17	5-C_2F_5	O	
II-18	6-C_2F_5	O	m.p.178.4-183.5 ℃
II-19	7-C_2F_5	O	
II-20	8-C_2F_5	O	
II-21	5-i-C_3F_7	O	
II-22	6-i-C_3F_7	O	m.p.147.6-149.5 ℃
II-23	7-i-C_3F_7	O	
II-24	8-i-C_3F_7	O	
II-25	5-n-C_6F_{13}	O	
II-26	6-n-C_6F_{13}	O	Crystal
II-27	7-n-C_6F_{13}	O	
II-28	8-n-C_6F_{13}	O	
II-29	5-OCF_3	O	
II-30	6-OCF_3	O	m.p.181.5-184.0 ℃
II-31	7-OCF_3	O	
II-32	8-OCF_3	O	
II-33	5-OCH_2-Ph	O	Crystal
II-34	6-OCH_2-Ph	O	
II-35	7-OCH_2-Ph	O	
II-36	8-OCH_2-Ph	O	Crystal
II-37	5-$OCHF_2$	O	
II-38	6-$OCHF_2$	O	Crystal

[0035]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-39	7-$OCHF_2$	O	
II-40	8-$OCHF_2$	O	
II-41	5-SCF_3	O	
II-42	6-SCF_3	O	
II-43	7-SCF_3	O	
II-44	8-SCF_3	O	
II-45	5-SC_2F_5	O	
II-46	6-SC_2F_5	O	
II-47	7-SC_2F_5	O	
II-48	8-SC_2F_5	O	
II-49	5-S-i-C_3F_7	O	
II-50	6-S-i-C_3F_7	O	
II-51	7-S-i-C_3F_7	O	
II-52	8-S-i-C_3F_7	O	
II-53	5-$SOCF_3$	O	
II-54	6-$SOCF_3$	O	
II-55	7-$SOCF_3$	O	
II-56	8-$SOCF_3$	O	
II-57	5-SO_2CF_3	O	
II-58	6-SO_2CF_3	O	
II-59	7-SO_2CF_3	O	
II-60	8-SO_2CF_3	O	
II-61	5-SOC_2F_5	O	

[0036]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-62	6-SOC_2F_5	O	
II-63	7-SOC_2F_5	O	
II-64	8-SOC_2F_5	O	
II-65	5-$SO_2C_2F_5$	O	
II-66	6-$SO_2C_2F_5$	O	
II-67	7-$SO_2C_2F_5$	O	
II-68	8-$SO_2C_2F_5$	O	
II-69	5-SO-i-C_3F_7	O	
II-70	6-SO-i-C_3F_7	O	
II-71	7-SO-i-C_3F_7	O	
II-72	8-SO-i-C_3F_7	O	
II-73	5-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-74	6-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-75	7-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-76	8-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-77	5-$COOC_2H_5$	O	
II-78	6-$COOC_2H_5$	O	
II-79	7-$COOC_2H_5$	O	
II-80	8-$COOC_2H_5$	O	
II-81	5-COOH	O	
II-82	6-COOH	O	
II-83	7-COOH	O	
II-84	8-COOH	O	

[0037]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-85	5-Ph	O	
II-86	6-Ph	O	
II-87	7-Ph	O	
II-88	8-Ph	O	
II-89	5-(p-Cl-Ph)	O	
II-90	6-(p-Cl-Ph)	O	
II-91	7-(p-Cl-Ph)	O	
II-92	8-(p-Cl-Ph)	O	
II-93	5-O-Ph	O	
II-94	6-O-Ph	O	
II-95	7-O-Ph	O	
II-96	8-O-Ph	O	
II-97	5-n-C_4H_9	O	
II-98	6-n-C_4H_9	O	
II-99	7-n-C_4H_9	O	
II-100	8-n-C_4H_9	O	
II-101	5-OCF_2CHF_2	O	
II-102	6-OCF_2CHF_2	O	m.p.194.8 ℃
II-103	7-OCF_2CHF_2	O	
II-104	8-OCF_2CHF_2	O	

[0038]

Table 2 shows NMR data of the following compounds listed in Table 1.

Table 2

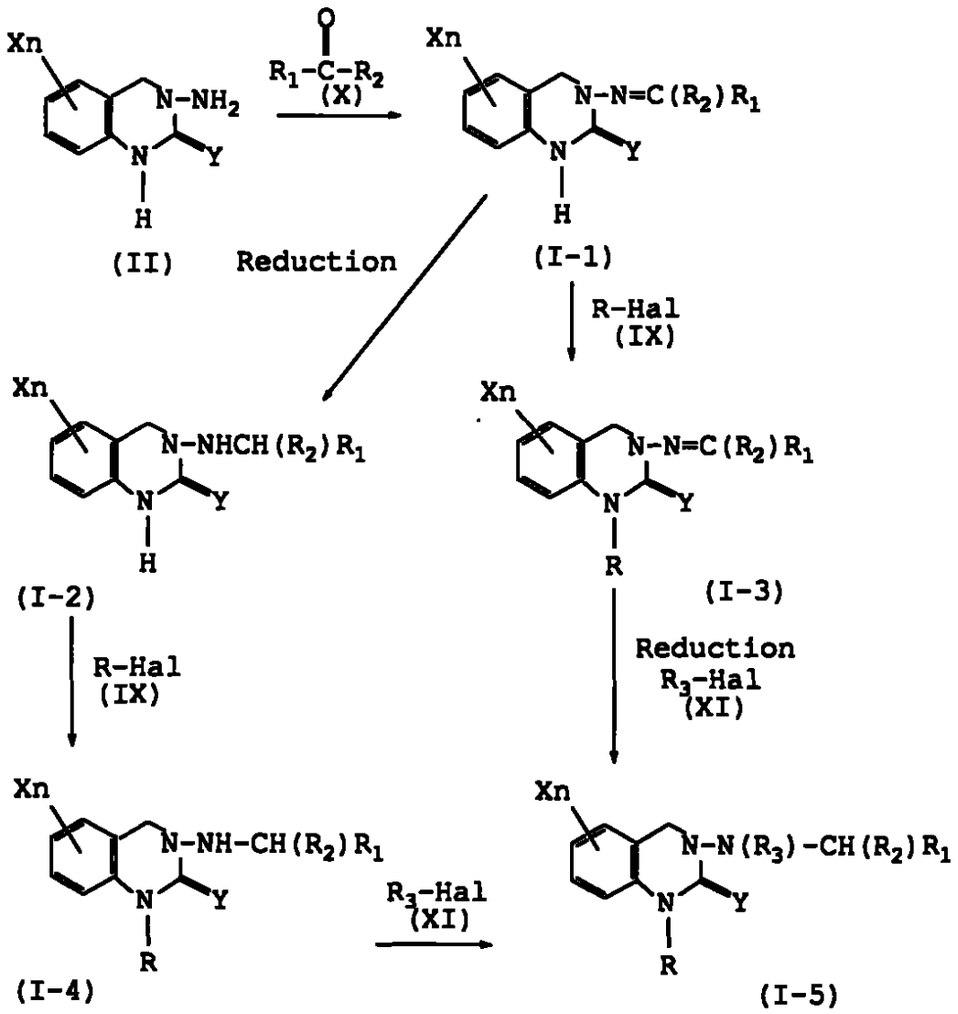
No.	^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]
II-1	4.36(2H,s), 4.65(2H,br), 6.20(1H,d), 6.34(1H,d), 6.89(1H,t), 9.12(1H,br), 9.62(1H,s).
II-2	4.45(2H,s), 4.65(2H,s), 6.51-6.63(3H,m), 9.00(1H,s), 9.60(1H,brs).
II-3	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.23-6.35(2H,m), 6.85(1H,d), 9.05(1H,s), 9.63(1H,s)
II-4	4.46(2H,s), 4.65(2H,s), 6.57(1H,d), 6.64-6.74(2H,m), 7.95(1H,d), 9.60(1H,brs).
II-6	4.48(2H,s), 4.66(2H,s), 6.74(1H,m), 7.18(1H,m), 7.30(1H,m), 9.43(1H,s).
II-18	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.95(1H,d), 7.40-7.50(2H,m), 9.83(1H,s).
II-26	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.94(1H,d), 7.43-7.48(2H,m), 9.74(1H,s).
II-33	4.48(2H,s), 4.69(2H,s), 5.00(2H,s), 6.30(1H,d), 6.45(1H,d), 7.05(1H,t), 7.25-7.40(6H,m).
II-36	4.48(2H,s), 4.68(2H,s), 5.19(2H,s), 6.71(1H,d), 6.82(1H,t), 6.92(1H,d), 7.30-7.40(3H,m), 7.51(2H,d), 8.18(1H,s).
II-38	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.76-6.79(1H,d,J=8.7Hz), 6.95-7.00(2H,m), 6.80-7.30(1H,t,J=7.46), 9.37(1H,s).

[0039]

Typical examples of process for producing the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention are schematically shown below.

Production process 3.

[Formula 8]



wherein R, R_1, R_2, R_3, X, n, Y and Hal are the same as defined above except that each of R and R_3 is not a hydrogen atom.

[0040]

3-1. General formula (II) → general formula (I-1)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-1) can be produced by reacting a compound of the general formula (II) with a compound of the general formula (X) in the presence of an inert solvent and a catalyst.

In the case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 2-1.

3-2. General formula (I-1) → general formula (I-3)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-3) can be produced by reacting the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-1) with a compound of the general formula (IX) in the presence or absence of an inert solvent and a base.

[0041]

As the inert solvent usable in this reaction, there can be used, for example, the inert solvents exemplified in production process 1.

As the base, an inorganic base or an organic base may be used. In addition to the inorganic or organic bases exemplified in production process 2-3,

there can also be used alkoxides such as CH_3ONa, C_2H_5ONa, $t\text{-}C_4H_9ONa$, CH_3OK, C_2H_5OK, $t\text{-}C_4H_9OK$, etc., and alkali metal hydrides such as NaH, etc. The amount of the base used may be properly chosen in the range of 1 mole to excess moles per mole of the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-1).

The reaction temperature may be chosen in the range of 0℃ to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 70℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

[0042]

3-3. General formula (I-1) → general formula (I-2)

In the case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 2-2.

3-4. General formula (I-2) → General formula (I-4)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-4) can be produced by reacting the aminoquinazolinone (thione) derivative of the

general formula (I-2) with the compound of the formula (IX) in the presence or absence of an inert solvent and a base.

In the case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 3-2.

3-5. General formula (I-4) → general formula (I-5)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-5) can be produced by reacting the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-4) with a compound of the general formula (XI) in the presence or absence of an inert solvent and a base.

In case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 3-2.

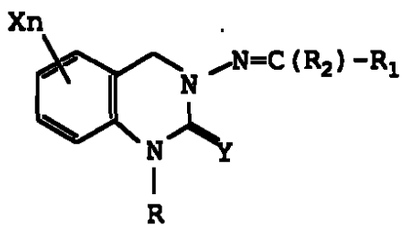
3-6. General formula (I-3) → general formula (I-5)

In case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 2-2.

[0043]

Typical examples of the aminoquinazolinone (thione) derivative of the formula (I) or salt thereof of the present invention are given in Tables 3 and 4 but they are not intended in any way to limit the scope of the present invention.

[Formula 9]



[0044]

Table 3 (R_1=Q_2, R_2=H, Y=O)

No.	R	Xn	Physical property
1	H	5-OH	m.p.293-295 ℃
2	H	6-OH	
3	H	7-OH	
4	H	8-OH	m.p.>300℃
5	H	5-Br	
6	H	6-Br	m.p.>300℃
7	H	7-Br	
8	H	8-Br	
9	H	5-I	
10	H	6-I	m.p.>300℃
11	H	7-I	
12	H	8-I	

[0045]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
13	H	5-CF_3	
14	H	6-CF_3	m.p.227.6-286.7 ℃
15	H	7-CF_3	
16	H	8-CF_3	
17	H	5-C_2F_5	
18	H	6-C_2F_5	m.p.298-300 ℃
19	H	7-C_2F_5	
20	H	8-C_2F_5	
21	H	5-i-C_3F_7	
22	H	6-i-C_3F_7	m.p.>300℃
23	H	7-i-C_3F_7	
24	H	8-i-C_3F_7	
25	H	5-n-C_6F_{13}	
26	H	6-n-C_6F_{13}	m.p.>300℃
27	H	7-n-C_6F_{13}	
28	H	8-n-C_6F_{13}	
29	H	5-OCF_3	
30	H	6-OCF_3	m.p.264.0-266.0 ℃
31	H	7-OCF_3	
32	H	8-OCF_3	
33	H	5-CH_2-Ph	
34	H	6-CH_2-Ph	
35	H	7-CH_2-Ph	

[0046]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
36	H	8-CH_2-Ph	
37	H	5-$OCHF_2$	
38	H	6-$OCHF_2$	m.p.260.1-264.5 ℃
39	H	7-$OCHF_2$	
40	H	8-$OCHF_2$	
41	H	5-SCF_3	
42	H	6-SCF_3	
43	H	7-SCF_3	
44	H	8-SCF_3	
45	H	5-SC_2F_5	
46	H	6-SC_2F_5	
47	H	7-SC_2F_5	
48	H	8-SC_2F_5	
49	H	5-S-i-C_3F_7	
50	H	6-S-i-C_3F_7	
51	H	7-S-i-C_3F_7	
52	H	8-S-i-C_3F_7	
53	H	5-$SOCF_3$	
54	H	6-$SOCF_3$	
55	H	7-$SOCF_3$	
56	H	8-$SOCF_3$	
57	H	5-SO_2CF_3	
58	H	6-SO_2CF_3	

401

[0047]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
59	H	7-SO_2CF_3	
60	H	8-SO_2CF_3	
61	H	5-SOC_2F_5	
62	H	6-SOC_2F_5	
63	H	7-SOC_2F_5	
64	H	8-SOC_2F_5	
65	H	5-$SO_2C_2F_5$	
66	H	6-$SO_2C_2F_5$	
67	H	7-$SO_2C_2F_5$	
68	H	8-$SO_2C_2F_5$	
69	H	5-SO-i-C_3F_7	
70	H	6-SO-i-C_3F_7	
71	H	7-SO-i-C_3F_7	
72	H	8-SO-i-C_3F_7	
73	H	5-SO_2-i-C_3F_7	
74	H	6-SO_2-i-C_3F_7	
75	H	7-SO_2-i-C_3F_7	
76	H	8-SO_2-i-C_3F_7	
77	H	5-$COOC_2H_5$	
78	H	6-$COOC_2H_5$	m.p.274-278 ℃
79	H	7-$COOC_2H_5$	
80	H	8-$COOC_2H_5$	
81	H	5-COOH	

[0048]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
82	H	6-COOH	
83	H	7-COOH	
84	H	8-COOH	
85	H	5-Ph	
86	H	6-Ph	m.p.250.9-253.8 ℃
87	H	7-Ph	
88	H	8-Ph	
89	H	5-(4-Cl-Ph)	
90	H	6-(4-Cl-Ph)	m.p.276-278 ℃
91	H	7-(4-Cl-Ph)	
92	H	8-(4-Cl-Ph)	
93	H	5-O-Ph	
94	H	6-O-Ph	
95	H	7-O-Ph	
96	H	8-O-Ph	
97	H	5-n-C_4H_9	
98	H	6-n-C_4H_9	
99	H	7-n-C_4H_9	
100	H	8-n-C_4H_9	
101	CH_3	5-I	
102	CH_3	6-I	m.p.181.4-185.3 ℃
103	CH_3	7-I	
104	CH_3	8-I	

403 ~~409~~

00407

[0049]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
105	C_2H_5	5-I	
106	C_2H_5	6-I	m.p.191.5-194.5 ℃
107	C_2H_5	7-I	
108	C_2H_5	8-I	
109	n-C_5H_{11}	5-I	
110	n-C_5H_{11}	6-I	nD 1.4126(28.5℃)
111	n-C_5H_{11}	7-I	
112	n-C_5H_{11}	8-I	
113	$CH_2C\equiv CH$	5-I	
114	$CH_2C\equiv CH$	6-I	m.p.214-217 ℃
115	$CH_2C\equiv CH$	7-I	
116	$CH_2C\equiv CH$	8-I	
117	$CH_2CH=CH_2$	5-I	
118	$CH_2CH=CH_2$	6-I	m.p.162-164 ℃
119	$CH_2CH=CH_2$	7-I	
120	$CH_2CH=CH_2$	8-I	
121	$CH_2OC_2H_5$	5-I	
122	$CH_2OC_2H_5$	6-I	m.p.111.3-161.7 ℃
123	$CH_2OC_2H_5$	7-I	
124	$CH_2OC_2H_5$	8-I	
125	CH_2(4-Cl-Ph)	5-I	
126	CH_2(4-Cl-Ph)	6-I	m.p.146-149 ℃
127	CH_2(4-Cl-Ph)	7-I	

[0050]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
128	CH_2(4-Cl-Ph)	8-I	
129	$COCH_3$	5-I	
130	$COCH_3$	6-I	m.p.186-188 ℃
131	$COCH_3$	7-I	
132	$COCH_3$	8-I	
133	COC_2H_5	5-I	
134	COC_2H_5	6-I	m.p.135-139 ℃
135	COC_2H_5	7-I	
136	COC_2H_5	8-I	
137	SO_2CH_3	5-I	
138	SO_2CH_3	6-I	m.p.174-181 ℃
139	SO_2CH_3	7-I	
140	SO_2CH_3	8-I	
141	SO_2Ph	5-I	
142	SO_2Ph	6-I	m.p.199-205 ℃
143	SO_2Ph	7-I	
144	SO_2Ph	8-I	
145	H	5-OCF_2CHF_2	
146	H	6-OCF_2CHF_2	m.p.251.6-263.3 ℃
147	H	7-OCF_2CHF_2	
148	H	8-OCF_2CHF_2	
149	CO-c-C_3H_5	5-I	
150	CO-c-C_3H_5	6-I	m.p.172-175 ℃

[0051]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
151	CO-c-C_3H_5	7-I	
152	CO-c-C_3H_5	8-I	
153	H	5-(4-CH_3O-Ph)	
154	H	6-(4-CH_3O-Ph)	m.p.242 ℃
155	H	7-(4-CH_3O-Ph)	
156	H	8-(4-CH_3O-Ph)	
157	H	5-(3-CH_3O-Ph	
158	H	6-(3-CH_3O-Ph)	m.p.192-199 ℃
159	H	7-(3-CH_3O-Ph)	
160	H	8-(3-CH_3O-Ph)	
161	H	5-(3-NO_2-Ph)	
162	H	6-(3-NO_2-Ph)	m.p.>300℃
163	H	7-(3-NO_2-Ph)	
164	H	8-(3-NO_2-Ph)	
165	H	5-COOH	
166	H	6-COOH	m.p.>300℃
167	H	7-COOH	
168	H	8-COOH	
169	H	5-$COOCH_3$	
170	H	6-$COOCH_3$	m.p.270.5-279.6℃
171	H	7-$COOCH_3$	
172	H	8-$COOCH_3$	
173	H	5-$CON(C_2H_5)_2$	

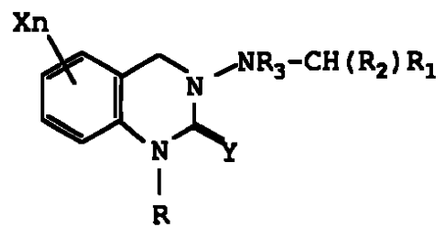
[0052]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
174	H	6-CON(C_2H_5)$_2$	m.p.254.9-278.1℃
175	H	7-CON(C_2H_5)$_2$	
176	H	8-CON(C_2H_5)$_2$	
177	H	6-Cl-7-CF_2H	m.p.295℃
178	H	6-C_3F_7-i	m.p.227.1-227.3℃
		(Q_2: N-methylpyridium iodide salt)	

[0053]

[Formula 10]



407 475

[0054]

Table 4 (R_2=H, Y=O, R_3=H, except for the group noted specially.)

No	R	R_2	Xn	Physical property
179	H	Q_2	5-OH	
180	H	Q_2	6-OH	m.p.223-225 ℃
181	H	Q_2	7-OH	m.p.258-259 ℃
182	H	Q_2	8-OH	m.p.177-180 ℃
183	H	Q_2	5-Br	
184	H	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
185	H	Q_2	7-Br	
186	H	Q_2	8-Br	
187	H	Q_2	5-I	
188	H	Q_2	6-I	
189	H	Q_2	7-I	
190	H	Q_2	8-I	
191	H	Q_2	5-CF_3	
192	H	Q_2	6-CF_3	m.p.191.0-193.1 ℃
193	H	Q_2	7-CF_3	
194	H	Q_2	8-CF_3	
195	H	Q_2	5-C_2F_5	
196	H	Q_2	6-C_2F_5	
197	H	Q_2	7-C_2F_5	
198	H	Q_2	8-C_2F_5	
199	H	Q_2	5-i-C_3F_7	
200	H	Q_2	6-i-C_3F_7	m.p.159.4-161.0 ℃
201	H	Q_2	7-i-C_3F_7	

408 414

[0055]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
202	H	Q_2	8-i-C_3F_7	
203	H	Q_2	5-n-C_6F_{13}	
204	H	Q_2	6-n-C_6F_{13}	m.p.153.9-164.7 ℃
205	H	Q_2	7-n-C_6F_{13}	
206	H	Q_2	8-n-C_6F_{13}	
207	H	Q_2	5-OCF_3	
208	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5233(22.6℃)
209	H	Q_2	7-OCF_3	
210	H	Q_2	8-OCF_3	
211	H	Q_2	5-CH_2-Ph	
212	H	Q_2	6-CH_2-Ph	
213	H	Q_2	7-CH_2-Ph	
214	H	Q_2	8-CH_2-Ph	
215	H	Q_2	5-$OCHF_2$	
216	H	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.129.7-130.2 ℃
217	H	Q_2	7-$OCHF_2$	
218	H	Q_2	8-$OCHF_2$	
219	H	Q_2	5-SCF_3	
220	H	Q_2	6-SCF_3	
221	H	Q_2	7-SCF_3	
222	H	Q_2	8-SCF_3	
223	H	Q_2	5-SC_2F_5	
224	H	Q_2	6-SC_2F_5	

[0056]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
225	H	Q_2	7-SC_2F_5	
226	H	Q_2	8-SC_2F_5	
227	H	Q_2	5-S-i-C_3F_7	
228	H	Q_2	6-S-i-C_3F_7	
229	H	Q_2	7-S-i-C_3F_7	
230	H	Q_2	8-S-i-C_3F_7	
231	H	Q_2	5-$SOCF_3$	
232	H	Q_2	6-$SOCF_3$	
233	H	Q_2	7-$SOCF_3$	
234	H	Q_2	8-$SOCF_3$	
235	H	Q_2	5-SO_2CF_3	
236	H	Q_2	6-SO_2CF_3	
237	H	Q_2	7-SO_2CF_3	
238	H	Q_2	8-SO_2CF_3	
239	H	Q_2	5-SOC_2F_5	
240	H	Q_2	6-SOC_2F_5	
241	H	Q_2	7-SOC_2F_5	
242	H	Q_2	8-SOC_2F_5	
243	H	Q_2	5-$SO_2C_2F_5$	
244	H	Q_2	6-$SO_2C_2F_5$	
245	H	Q_2	7-$SO_2C_2F_5$	
246	H	Q_2	8-$SO_2C_2F_5$	
247	H	Q_2	5-SO-i-C_3F_7	

410 416

08412

[0057]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
248	H	Q_2	6-SO-i-C_3F_7	
249	H	Q_2	7-SO-i-C_3F_7	
250	H	Q_2	8-SO-i-C_3F_7	
251	H	Q_2	5-SO_2-i-C_3F_7	
252	H	Q_2	6-SO_2-i-C_3F_7	
253	H	Q_2	7-SO_2-i-C_3F_7	
254	H	Q_2	8-SO_2-i-C_3F_7	
255	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
256	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	
257	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	
258	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
259	H	Q_2	5-COOH	
260	H	Q_2	6-COOH	
261	H	Q_2	7-COOH	
262	H	Q_2	8-COOH	
263	H	Q_2	5-Ph	
264	H	Q_2	6-Ph	
265	H	Q_2	7-Ph	
266	H	Q_2	8-Ph	
267	H	Q_2	5-(4-Cl-Ph)	
268	H	Q_2	6-(4-Cl-Ph)	
269	H	Q_2	7-(4-Cl-Ph)	
270	H	Q_2	8-(4-Cl-Ph)	

[0058]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
271	H	Q_2	5-O-Ph	
272	H	Q_2	6-O-Ph	
273	H	Q_2	7-O-Ph	
274	H	Q_2	8-O-Ph	
275	H	Q_2	5-n-C_4H_9	
276	H	Q_2	6-n-C_4H_9	
277	H	Q_2	7-n-C_4H_9	
278	H	Q_2	8-n-C_4H_9	
279	H	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
280	H	Q_2	6-OCF_2CHF_2	m.p.168.7-173.9 ℃
281	H	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
282	H	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
283	H	Q_5	5-$CF(CF_3)_2$	
284	H	Q_5	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.239.7-243.5℃
285	H	Q_5	7-$CF(CF_3)_2$	
286	H	Q_5	8-$CF(CF_3)_2$	
287	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.209.9-213.4℃ (R_3=$COCF_3$)
288	CH_3	Q_2	5-OCF_3	
289	CH_3	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5467(23.6℃)
290	CH_3	Q_2	7-OCF_3	
291	CH_3	Q_2	8-OCF_3	
292	C_2H_5	Q_2	5-OCF_3	

[0059]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
293	C_2H_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5360(24.3℃)
294	C_2H_5	Q_2	7-OCF_3	
295	C_2H_5	Q_2	8-OCF_3	
296	$COCH_3$	Q_2	5-OCF_3	
297	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5478(24.1℃)
298	$COCH_3$	Q_2	7-OCF_3	
299	$COCH_3$	Q_2	8-OCF_3	
300	COC_2F_5	Q_2	5-OCF_3	
301	COC_2F_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5174(25.9℃)
302	COC_2F_5	Q_2	7-OCF_3	
303	COC_2F_5	Q_2	8-OCF_3	
304	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	5-OCF_3	
305	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	6-OCF_3	m.p.92.5℃
306	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	7-OCF_3	
307	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	8-OCF_3	
308	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	5-OCF_3	
309	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5325(24.2℃)
310	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	7-OCF_3	
311	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	8-OCF_3	
312	$CH(CH_3)_2$	Q_2	5-OCF_3	
313	$CH(CH_3)_2$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5370(24.8℃)
314	$CH(CH_3)_2$	Q_2	7-OCF_3	
315	$CH(CH_3)_2$	Q_2	8-OCF_3	

413 419

[0060]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
316	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5380(26.0℃) (R_3=COC_2H_5)
317	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	5-Br	
318	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	6-Br	nD 1.5760(26.2℃)
319	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	7-Br	
320	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	8-Br	
321	CH_2SCH_3	Q_2	5-Br	
322	CH_2SCH_3	Q_2	6-Br	nD 1.6030(27.0℃)
323	CH_2SCH_3	Q_2	7-Br	
324	CH_2SCH_3	Q_2	8-Br	
325	C_2H_5	Q_2	5-Br	
326	C_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5974(26.9℃)
327	C_2H_5	Q_2	7-Br	
328	C_2H_5	Q_2	8-Br	
329	i-C_3H_7	Q_2	5-Br	
330	i-C_3H_7	Q_2	6-Br	nD 1.4680(28.0℃)
331	i-C_3H_7	Q_2	7-Br	
332	i-C_3H_7	Q_2	8-Br	
333	$COCH_3$	Q_2	5-Br	
334	$COCH_3$	Q_2	6-Br	nD 1.5930(27.2℃)
335	$COCH_3$	Q_2	7-Br	
336	$COCH_3$	Q_2	8-Br	
337	COC_2H_5	Q_2	5-Br	

[0061]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
338	COC_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5861(26.8℃)
339	COC_2H_5	Q_2	7-Br	
340	COC_2H_5	Q_2	8-Br	
341	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	5-Br	
342	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	6-Br	nD 1.5885(27.3℃)
343	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	7-Br	
344	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	8-Br	
345	CO-Ph	Q_2	5-Br	
346	CO-Ph	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
347	CO-Ph	Q_2	7-Br	
348	CO-Ph	Q_2	8-Br	
349	CH_3	Q_2	5-$OCHF_2$	
350	CH_3	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5613(27.9℃)
351	CH_3	Q_2	7-$OCHF_2$	
352	CH_3	Q_2	8-$OCHF_2$	
353	C_2H_5	Q_2	5-$OCHF_2$	
354	C_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5354(26.4℃)
355	C_2H_5	Q_2	7-$OCHF_2$	
356	C_2H_5	Q_2	8-$OCHF_2$	
357	n-C_8H_{17}	Q_2	5-$OCHF_2$	
358	n-C_8H_{17}	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5590(25.8℃)
359	n-C_8H_{17}	Q_2	7-$OCHF_2$	
360	n-C_8H_{17}	Q_2	8-OCHF	

[0062]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
361	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	5-$OCHF_2$	
362	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5917(27.9℃)
363	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	7-$OCHF_2$	
364	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	8-$OCHF_2$	
365	i-C_4H_9	Q_2	5-$OCHF_2$	
366	i-C_4H_9	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5557(26.4℃)
367	i-C_4H_9	Q_2	7-$OCHF_2$	
368	i-C_4H_9	Q_2	8-$OCHF_2$	
369	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	5-$OCHF_2$	
370	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5668(26.5℃)
371	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	7-$OCHF_2$	
372	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	8-$OCHF_2$	
373	$COCH_3$	Q_2	5-$OCHF_2$	
374	$COCH_3$	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5503(26.1℃)
375	$COCH_3$	Q_2	7-$OCHF_2$	
376	$COCH_3$	Q_2	8-$OCHF_2$	
377	COC_2H_5	Q_2	5-$OCHF_2$	
378	COC_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5470(26.2℃)
379	COC_2H_5	Q_2	7-$OCHF_2$	
380	COC_2H_5	Q_2	8-$OCHF_2$	
381	CO-i-C_3H_7	Q_2	5-$OCHF_2$	
382	CO-i-C_3H_7	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5196(28.3℃)
383	CO-i-C_3H_7	Q_2	7-$OCHF_2$	

[0063]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
384	CO-i-C_3H_7	Q_2	8-$OCHF_2$	
385	CO-Q_{11}	Q_2	5-$OCHF_2$	
386	CO-Q_{11}	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.148-155 ℃
387	CO-Q_{11}	Q_2	7-$OCHF_2$	
388	CO-Q_{11}	Q_2	8-$OCHF_2$	
389	CH_3	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
390	CH_3	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5320(26.2℃)
391	CH_3	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
392	CH_3	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
393	C_2H_5	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
394	C_2H_5	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5239(26.7℃)
395	C_2H_5	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
396	C_2H_5	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
397	$SO_2C_2H_5$	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
398	$SO_2C_2H_5$	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5309(26.0℃)
399	$SO_2C_2H_5$	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
400	$SO_2C_2H_5$	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
401	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
402	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5486(26.2℃)
403	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
404	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
405	$COOC_4H_9$-t	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
406	$COOC_4H_9$-t	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5103(26.2℃)

[0064]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
407	$COOC_4H_9$-t	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
408	$COOC_4H_9$-t	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
409	$COCH_3$	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
410	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5262(25.8℃)
411	$COCH_3$	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
412	$COCH_3$	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
413	COC_2H_5	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
414	COC_2H_5	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5266(25.9℃)
415	COC_2H_5	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
416	COC_2H_5	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
417	CH_2OCH_3	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
418	CH_2OCH_3	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5311(23.9℃)
419	CH_2OCH_3	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
420	CH_2OCH_3	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
421	CH_2-Q_2	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
422	CH_2-Q_2	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5560(26.8℃)
423	CH_2-Q_2	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
424	CH_2-Q_2	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
425	SO_2CH_3	Q_2	5-C_3F_7-i	
426	SO_2CH_3	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.154-156 ℃
427	SO_2CH_3	Q_2	7-C_3F_7-i	
428	SO_2CH_3	Q_2	8-C_3F_7-i	
429	$SO_2C_2H_5$	Q_2	5-C_3F_7-i	

[0065]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
430	$SO_2C_2H_5$	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.45-50 ℃
431	$SO_2C_2H_5$	Q_2	7-C_3F_7-i	
432	$SO_2C_2H_5$	Q_2	8-C_3F_7-i	
433	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	5-C_3F_7-i	
434	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.65-75 ℃
435	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	7-C_3F_7-i	
436	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	8-C_3F_7-i	
437	H	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.186-212 ℃ (hydrochloride)
438	H	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.168-208.8 ℃ (sulfate)
439	CO-Ph	Q_2	5-C_3F_7-i	
440	CO-Ph	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.161-165 ℃
441	CO-Ph	Q_2	7-C_3F_7-i	
442	CO-Ph	Q_2	8-C_3F_7-i	
443	COC_3H_7-i	Q_2	5-C_3F_7-i	
444	COC_3H_7-i	Q_2	6-C_3F_7-i	nD 1.5051(22.1℃)
445	COC_3H_7-i	Q_2	7-C_3F_7-i	
446	COC_3H_7-i	Q_2	8-C_3F_7-i	
447	$COCH_3$	Q_2	5-C_3F_7-i	
448	$COCH_3$	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.132-134 ℃
449	$COCH_3$	Q_2	7-C_3F_7-i	
450	$COCH_3$	Q_2	8-C_3F_7-i	

[0066]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
451	COC_2H_5	Q_2	5-C_3F_7-i	
452	COC_2H_5	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.108 ℃
453	COC_2H_5	Q_2	7-C_3F_7-i	
454	COC_2H_5	Q_2	8-C_3F_7-i	
455	COC_3H_7-n	Q_2	5-C_3F_7-i	
456	COC_3H_7-n	Q_2	6-C_3F_7-i	nD 1.510(22.2 ℃)
457	COC_3H_7-n	Q_2	7-C_3F_7-i	
458	COC_3H_7-n	Q_2	8-C_3F_7-i	
459	CH_3	Q_2	5-C_3F_7-i	
460	CH_3	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.67-75 ℃
461	CH_3	Q_2	7-C_3F_7-i	
462	CH_3	Q_2	8-C_3F_7-i	
463	C_2H_5	Q_2	5-C_3F_7-i	
464	C_2H_5	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.98-102.4℃
465	C_2H_5	Q_2	7-C_3F_7-i	
466	C_2H_5	Q_2	8-C_3F_7-i	
467	COC_2H_5	Q_2	5-F	
468	COC_2H_5	Q_2	6-F	nD 1.5660(22.8℃)
469	COC_2H_5	Q_2	7-F	
470	COC_2H_5	Q_2	8-F	
471	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
472	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	m.p.168.7-171.9 ℃
473	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	

[0067]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
474	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
475	COC_2H_5	Q_2	5-CF_3	
476	COC_2H_5	Q_2	6-CF_3	nD 1.5400(21.1℃)
477	COC_2H_5	Q_2	7-CF_3	
478	COC_2H_5	Q_2	8-CF_3	
479	H	Q_2	5-C_2F_5	
480	H	Q_2	6-C_2F_5	m.p.139-146 ℃
481	H	Q_2	7-C_2F_5	
482	H	Q_2	8-C_2F_5	
483	H	Q_2	6-Cl-7-$OCHF_2$	m.p.198-201 ℃

[0068]

The abbreviations in Table 3 and Table 4 stand for the following substituents;

c : aliphatic hydrocarbon group

Ph : phenyl group

Q_1 : 2-pyridyl group

Q_2 : 3-pyridyl group

Q_3 : 4-pyridyl group

Q_4 : 2-pyridyl-N-oxide group

Q_5 : 3-pyridyl-N-oxide group

Q_6 : 4-pyridyl-N-oxide group

Q_7 : thiazol-5-yl group

Q_8 : furan-2-yl group

Q_9 : 1,3-dioxolan-2-yl group

Q_{10} : phthalimid-1-yl group

Q_{11} : thiophene-2-yl group

[0069]

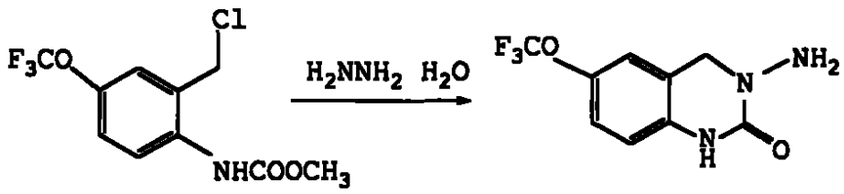
[EXAMPLES]

Typical examples of the present invention are described below, however, the scope of the present invention is not restricted by said examples.

Example 1

Preparation of 3-amino-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2-(1H)-quinazolinone (Compound No. II-30)

[Formula 11]



In 20 ml of methanol was dissolved 2.84 g (0.01 mole) of methyl 2-chloromethyl-4-trifluoromethoxyphenylcarbamate, then 5 g (0.1 mole) of hydrazine hydrate was added to the solution, and the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the remainder of hydrazine hydrate and the solvent were removed from the reaction mixture containing the

desired compound by distillation under reduced pressure to obtain a crude product. The resulting crude product was recrystallized from 95% methanol to obtain 2.22 g of the desired compound.

Physical property: m.p. 181.5 - 184° C.

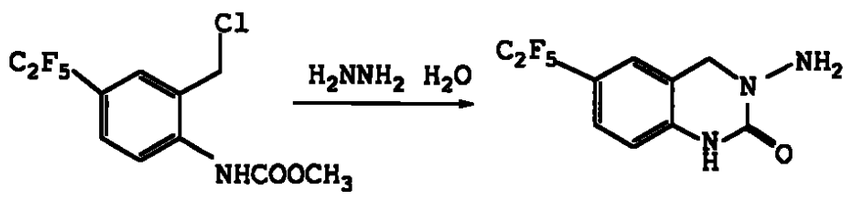
Yield: 90%.

[0070]

Example 2

Preparation of 3-amino-3,4-dihydro-6-pentafluoroethyl-2-(1H)-quinazolinone (Compound No. II-18)

[Formula 12]



In 20 ml of methanol was dissolved 3.18 g (0.01 mole) of methyl 2-chloromethyl-4-pentafluoroethylphenylcarbamate, then 5 g (0.1 mole) of hydrazine hydrate was added to this solution and the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the remainder of hydrazine hydrate and the solvent were removed from the reaction mixture containing the desired compound by distillation under reduced pressure to obtain a crude product. The resulting crude product was recrystallized from 95% methanol to obtain 2.53 g

of the desired compound.

Physical property: m.p. 178.4 - 183.5° C.

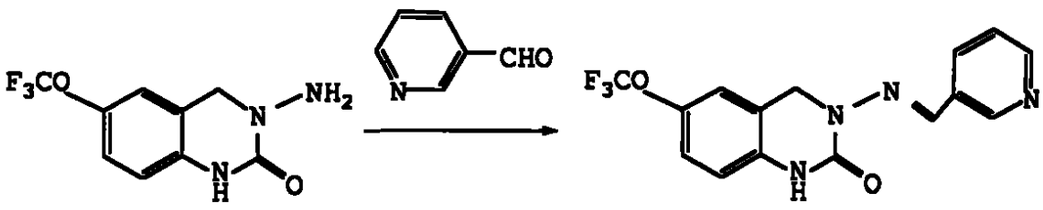
Yield: 90%.

[0071]

Example 3

Preparation of 3-(3-pyridylmethylideneamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 30)

[Formula 13]



To 10 ml of methanol were added 0.62 g (2.5 mmoles) of 3-amino-3,4-dihydro-6-trufluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone, 0.27 g (2.5 mmole) of nicotinaldehyde and 1 drop of sulfuric acid, then the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the crystals precipitated in the reaction system were collected by filtration and dried to obtain 0.76 g of the desired product.

Physical property: m.p. 264.5 - 266.0° C.

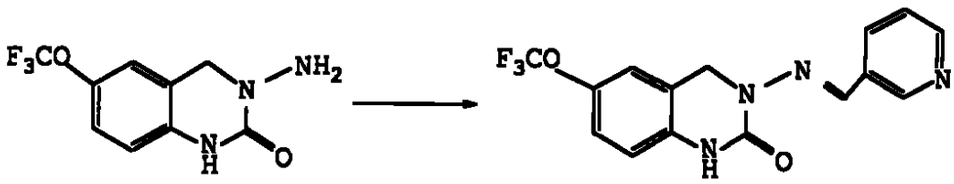
Yield: 93%.

[0072]

Example 4

Preparation of 3-[1-(3-pyridylmethideneamino)-3,4-dihydro-6-pentafluoroethyl-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 18)

[Formula 14]



To 10 ml of methanol were added 0.74 g (2.5 mmols) of 3-amino-3,4-dihydro-6-pentafluoroethyl-2(1H)-quinazolinone, 0.27 g (2.5 mmols) of nicotinaldehyde and 1 drop of sulfuric acid, then the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the crystals precipitated in the reaction system were collected by filtration and dried to obtain 0.78 g of the desired product.

Physical property: m,p. 298.0 - 300.0° C.

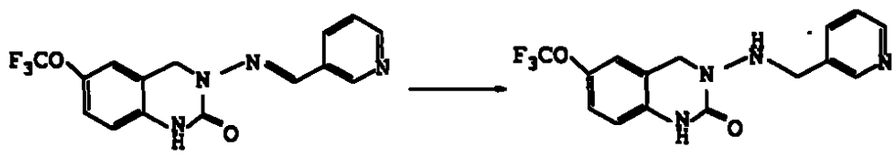
Yield: 84%.

[0073]

Example 5

Preparation of 3-(3-pyridylmethylamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 208)

[Formula 15]



To 30 ml of acetic acid were added 3.36 g (2.5 mmols) of 3-(3-pyridylmethylideneamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone and 0.2 g of 5% palladium-carbon, then the hydrogenation was conducted at 3 to 4 kg/m^2.

After the absorption of a theoretical amount of hydrogen, the catalyst was removed from the reaction mixture by filtration, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The residue was neutralized by adding a 20% aqueous sodium hydroxide solution and the desired compound was extracted with chloroform (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and an aqueous solution saturated with sodium chloride, dried over anhydrous magnesium sulfate, the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting crude product was purified by a silica gel column chromatography (ethyl acetate-methanol=10:1) to obtain 2.5 g of the desired compound.

Physical property: nD 1.5233 (22.6° C).

Yield: 74%.

426

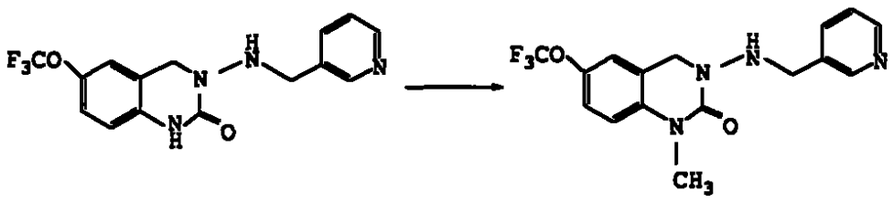
~~00432~~

[0074]

Example 6

Preparation of 1-methyl-3-(3-pyridylmethylamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 298)

[Formula 16]



In 10 ml of dimethylformamide was dissolved 0.68 g (2.0 mmols) of 3-(3-pyridylmethylideneamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone. To the solution, 0.09 g of sodium hydride (62.4%) was added, and the reaction was conducted at room temperature for 30 minutes, then 0.34 g of methyl iodide was added thereto and the reaction was conducted for 4 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture was poured into an ice-water, the desired compound was extracted with ethyl acetate (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and saturated aqueous sodium chloride, dried over anhydrous magnesium sulfate, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting crude product was purified by a silica gel

column chromatography (ethyl acetate-methanol=10:1) to obtain 2.5 g of the desired compound.

Physical property: nD 1.5467 (23.6℃).

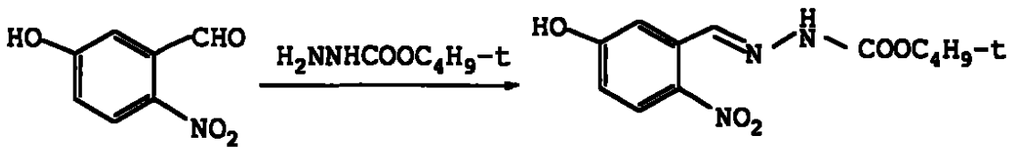
Yield: 50%.

[0075]

Example 7

7-1. Preparaion of t-butyl 2-(5-hydroxy-2-nitrophenyl-methylidene)carbazate

[Formula 17]



To 20 ml of methanol were added 3.34 g (0.02 mole) of 5-hydroxy-2-nitrobenzaldehyde, 2.64 g (0.02 mole) of t-butyl carbazate and 1 drop of sulfuric acid, and the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture was cooled to room temperature, the crystals precipitated were collected by filtration to obtain 5.06 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [$CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

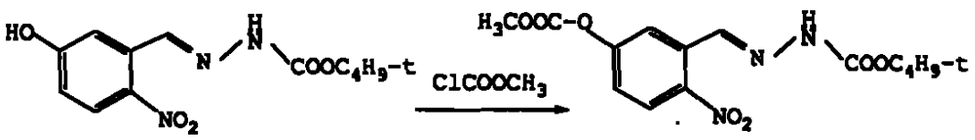
1.57 (9H, s), 6.84 (1H, d.d), 7.66 (1H, d), 7.94 (1H, d), 8.42 (1H, br.s), 8.46 (1H, s).

Yield: 90%.

[0076]

7-2. Preparation of t-butyl 2-(5-methoxycarbonyloxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate

[Formula 18]



In 15 ml of tetrahydrofuran were dissolved 4.22 g (0.015 mole) of t-butyl 2-(5-hydroxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate obtained in Example 7-1 and 1.67 g (0.0165 mole) of triethylamine, then the solution was cooled to 0° C. By taking 15 minutes, to the solution was added dropwise 1.56 g (0.0165 mole) of methyl chlorofomate dissolved in 5 ml of tetrahydrofuran, then the reaction was continued at room temperature for 3 hours. After completion of the reaction, the reaction mixture was poured into 20 ml of water, and the desired compound was extracted with ethyl acetate (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and saturated aqueous sodium chloride, dried over anhydrous magnesium sulfate, then the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting crude product was recrystallized from hexane-ether to obtain 4.6 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

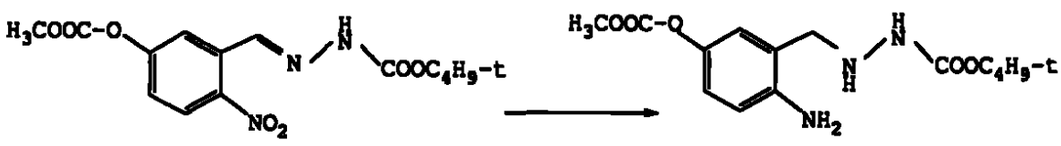
1.54 (9H, s), 3.93 (3H, s), 7.33 (1H, d.d), 8.06 (1H, d), 8.14 (1H, d), 8.21 (1H, br.s), 8.45 (1H, s).

Yield: 90%.

[0077]

7-3. Preparation of t-butyl 2-(2-amino-5-methoxycarbonyloxyphenylmethyl)carbazate

[Formula 19]



To 50 ml of methanol were added 4.4 g (0.013 mole) of t-butyl 2-(5-methoxycarbonyloxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate obtained in Example 7-2 and 0.4 g of 5% palladium-carbon, then the catalytic reduction was conducted at 3 - 4 kg/m^2.

After the absorption of a theoretical amount of hydrogen, the catalyst was removed from the reaction mixture by filtration, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure, to obtain 4 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

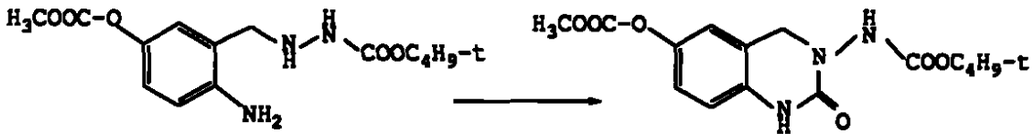
1.46 (9H, s), 3.87 (3H, s), 3.96 (2H, d), 4.6-5.0 (3H, br.s.), 6.05 (1H, br.s), 6.6-6.7 (1H, m), 6.8-7.0 (2H, m).

Yield: Quantitative.

[0078]

7-4. Preparation of 3-t-butoxycarbonylamino-6-methoxycarbonyloxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone

[Formula 20]



In 20 ml of tetrahydrofuran were dissolved 3.1 g (0.01 mole) of t-butyl 2-(2-amino-5-methoxycarbonyloxyphenylmethyl)carbazate obtained in Example 7-3 and 2.6 g (0.01 mole) of 1,1'-carbonyl-bis(1H-imidazole), the reaction was conducted at room temperature for 3 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture was poured into 20 ml of water, and the desired compound was extracted with ethyl acetate (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and saturated aqueous sodium chloride, dried over anhydrous magensium sulfate, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The crude product thus obtained was recrystallized from hexane-ethyl acetate, 2.1 g of the desired compound was obtained.

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

1.42 (9H, s), 3.80 (3H, s), 4.81 (2H, s), 6.5-6.7 (3H, m), 9.01 (1H, s), 9.15 (1H,

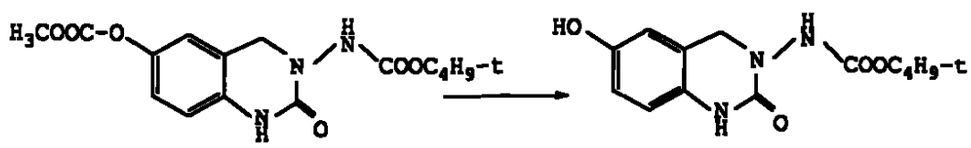
br.s).

Yield: 60%.

[0079]

7-5. Preparation of 3-t-butoxycarbonylamino-6-hydroxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone

[Formula 21]



To 20 ml of 50% methanol were added 2.1 g (0.0062 mole) of 3-t-butoxycarbonylamino-6-methoxycarbonyloxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone obtained in Example 7-4 and 0.64 g (0.0063 mole) of sodium carbonate, then the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the methanol was removed by distillation under reduced pressure. To the residue thus obtained was added 10 ml of water and was collected by filtration, then recrystallization from 95% methanol to obtain 1.3 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

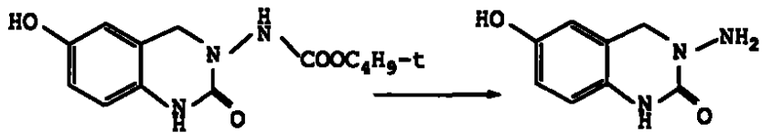
1.42 (9,), 4.81 (2,), 6.5-6.7 (3H, s), 9.01 (1H, s), 9.10 (1H, s), 9.15 (1H, br.s).

Yield: 75%.

[0080]

7-6. Preparation of 3-amino-6-hydroxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone (Comound No. II-2)

[Formula 22]



To 20 ml of trifluoroacetic acid was added 1.3 g (0.0046 mole) of 3-t-butoxycarbonylamino-6-hydroxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone obtained in Example 7-5, then the reaction was conducted at room temperature for 3 hours.

After completion of the reaction, 10 ml of methanol was added to the reaction mixture, the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting residue was recrystallized from methanol to obtain 0.74 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

4.95 (2H, s), 4.65 (2H, s), 6.51-6.63 (3H, m), 9.00 (1H, s), 9.60 (1H, br.s).

Yield: 90%.

[0081]

Pest controllers containing, as an active ingredient, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention are suitable for controlling various insect pests such as agricultural insect pests,

forest insect pests, horticultural insect pests, stored grain insect pests, sanitary insect pests, nematodes, etc. They have an insecticidal effect also, for example, on HEMIPTERA including tea green leafhopper (Empoasca brassicae), green rice leafhopper (Nephotettix cincticeps), brown rice planthopper (Nilaparvata lugens), whitebacked rice planthopper (Sogatella furcifera), citrus psylla (Diaphorina citri), citrus whitefly (Dialeurodes citri), sweetpotato whitefly (Bemisia tabaci), greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum), Cabbage aphid (Brevicoryne brassicae), Cotton aphid (Aphis gossypii), Wheat aphid (Rhopalosiphum padi), green peach aphid (Myzus persicae), Indian wax scale (Ceroplastes ceriferus), cottony citrus scale (Pulvinaria aurantii), camphor scale (Pseudaonidia duplex),

[0082]

San Jose scale (Comstockaspis perniciosa), arrowhead scale (Unaspis yanonensis), rice leaf bug (Trigonotylus colelestialium), etc., TYLENCHIDA including coffee root-lesion nematode (Pratylenchus coffeae), potato cyst nematode (Globodera rostochiensis), root-knot nematode (Meloidogyne sp.), citrus nematode (Tylenchulus semipenetrans), Aphelenchus sp. (Aphelenchus avenae), chrysanthemum foliar nematode (Aphelenchoides ritzemabosi), etc., and ORTHOPTERA including rice thrips (Stenchaetothrips biformis), etc.

Additionally, the pest controllers of the present invention perform less harmful effects against useful insects, for example, silkworm moths (Bombyx mori), bean chalcid (Osmia cornifrons) and the like, thus they can be said as highly safety insecticides.

The zoological names and the like are in accordance with Applied Zoology and Entomology Society of Japan, "List of Agricultural and Forest Injurious Animals and Insects", published in 1987.

[0083]

The pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention has a marked control effect on the above-exemplified insect pests, sanitary pests, and/or nematodes, which are injurious to paddy fields, fruit trees, vegetables and other crops, and flowers and ornamental plants. Therefore, the desired effect of the insecticide of the present invention can be obtained by applying the insecticide to the paddy field water, paddy-rice plant, fuit trees, vegetables, other crops, seeds of flowers and ornamental plants, roots, stalks and leaves of plants, soil, etc., or to the inside of a house or ditches around a house, in which the above-exemplified sanitary insect pests injurious to men and beasts appear or are expected to appear. The application is carried out at a season at which the insect pests, sanitary pests or nematodes are expected

to appear, before their appearance or at the time when their appearance is confirmed. The present invention however should not be limited to these embodiments.

[0084]

When the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention is used as a pest controller, the derivative or salt is generally prepared into conveniently usable forms according to an ordinary manner for preparation of agrochemicals.

That is, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention and, optionally, an adjuvant are blended with a suitable inert carrier in a proper proportion and prepared into a suitable preparation form such as a suspension, emulsifiable concentrate, soluble concentrate, wettable powder, granules, dust or tablets through dissolution, dispersion, suspension, mixing, impregnation, adsorption or sticking.

The inert carrier used in the present invention may be either solid or liquid. As the solid carrier, there can be exemplified soybean flour, cereal flour, wood flour, bark flour, saw dust, powdered tobacco stalks, powdered walnut shells, bran, powdered cellulose, extraction residue of vegetables, powdered synthetic polymers or resins, clays (e.g. kaolin, bentonite, and acid clay), talcs (e.g. talc and

pyrophyllite), silica powders or flakes (e.g. diatomaceous earth, silica sand, mica and white carbon, i.e. synthetic, high-dispersion silicic acid, also called finely divided hydrated silica or hydrated silicic acid, some of commercially available products contain calcium silicate as the major component), activated carbon, powdered sulfur, powdered pumice, calcined diatomaceous earth, ground brick, fly ash, sand, calcium carbonate powder, calcium phosphate powder and other inorganic or mineral powders, chemical fertilizers (e.g. ammonium sulfate, ammonium phosphate, ammonium nitrate, urea and ammonium chloride), and compost. These carriers may be used alone or as a mixture thereof.

[0085]

The liquid carrier is that which itself has solubility or which is without such solubility but is capable of dispersing an active ingredient with the aid of an adjuvant. The following are typical examples of the liquid carrier and can be used alone or as a mixture thereof. Water; alcohols such as methanol, ethanol, isopropanol, butanol and ethylene glycol; ketones such as acetone, methyl ethyl ketone, methyl isobutyl ketone, diisobutyl ketone and cyclohexanone; ethers such as ethyl ether, dioxane, cellosolve, dipropyl ether and tetrahydrofuran; aliphatic hydrocarbons such as kerosene and mineral oils; aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene,

solvent naphtha and alkylnaphthalenes; halogenated hydrocarbons such as dichloroethane, chloroform and carbon tetrachloride; esters such as ethyl cetate, diisopropyl phthalate, dibutyl phthalate and dioctyl phthalate; amides such as dimethylformamide, diethylformamide and dimethylacetamide; nitriles such as acetonitrile; and dimethyl sulfoxide.

[0086]

The following are typical examples of the adjuvant, which are used depending upon purposes and used alone or in combination in some cases, or need not to be used at all.

To emulsify, disperse, dissolve and/or wet an active ingredient, a surfactant is used. As the surfactant, there can be exemplified polyoxyethylene alkyl ethers, polyoxyethylene alkylaryl ethers, polyoxyethylene higher fatty acid esters, polyoxyethylene resinates, polyoxyethylene sorbitan monolaurate, polyoxyethylene sorbitan monooleate, alkylarylsulfonates, naphthalenesulfonic acid condensation products, ligninsulfonates and higher alcohol sulfate esters.

[0087]

Further, to stabilize the dispersion of an active ingredient, tackify it and/or bind it, there may be used adjuvants such as casein, gelatin, starch, methyl cellulose, carboxymethyl cellulose, gum arabic, polyvinyl alcohols, turpentine, bran oil, bentonite and

ligninsulfonates.

To improve the flowability of a solid product, there may be used adjuvants such as waxes, stearates and alkyl phosphates.

Adjuvants such as naphthalenesulfonic acid condensation products and polycondensates of phosphates may be used as a peptizer for dispersible products.

Adjuvants such as silicon oils may also be used as a defoaming agent.

The content of the active ingredient may be varied as required. In dusts or granules, the suitable content thereof is from 0.01 to 50% by weight. In emulsifiable concentrates or flowable wettable powders, it is also from 0.01 to 50% by weight.

[0088]

The pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention is used to control a variety of insect pests in the following manner. That is, it is applied to the insect pests or a site where appearance or growth of the insect pests is undesirable, as it is or after being properly diluted with or suspended in water or the like, in an amount effective for control of the insect pests.

The applying dosage of the pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general

formula (I) or salt thereof of the present invention is varied depending upon various factors such as a purpose, insect pests to be controlled, a growth state of a plant, tendency of insect pests appearance, weather, environmental conditions, a preparation form, an application method, an application site and application time. It may be properly chosen in the range of 0.01 g to 5 kg (in terms of the active ingredient) per 10 ares depending upon purposes.

The pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention may be used in admixture with other insecticides or fungicides in order to expand both spectrum of controllable insect pest species and the period of time when effective applications are possible or to reduce the dosage.

Typical formulation examples and test examples of the present invention are described below but they should not be construed as limiting the scope of the invention.

In the formulation examples, parts are all by weight.

[0089]

Formulation Example 1

Each compound listed in Tables 3 and 4	50 parts
Xylene	40 parts

Mixture of polyoxyethylene nonylphenyl ether and calcium alkylbenzenesulfonate 10 parts

An emulsifiable concentrate was prepared by mixing uniformly the above ingredients to effect dissolution.

Formulation Example 2

Each compound listed in Tables 3 and 4 3 parts

Clay powder 82 parts

Diatomaceous earch powder 15 parts

A dust was prepared by mixing uniformly and grinding the above ingredients.

[0090]

Formulation Example 3

Each compound listed in Tables 3 and 4 5 parts

Mixed powder of bentonite and clay 90 parts

Calcium lignin sulfonate 5 parts

Granules were prepared by mixing the above ingredients uniformly, and kneading the resulting mixture together with a suitable amount of water, followed by granulation and drying.

Formulation Example 4

Each compound listed in Tables 3 and 4 20 parts

Mixture of kaolin and synthetic, high-dispersion silicic acid	75 parts
Mixture of polyoxyethylene nonylphenyl ether and calcium alkylbenzenesulfonate	5 parts

A wettable powder was prepared by mixing uniformly and grinding the above ingredients.

[0091]

Test Example 1

Control efficacy against green peach aphid (Myzus persicae)

A Chinese cabbage plant was planted in each of plastic pots with a diameter of 8 cm and a height of 8 cm and green peach aphids were propagated on the plant, after which the parasites in each pot were counted.

Each substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention listed in Tables 3 and 4 was dispersed in and diluted with water to obtain a 500 ppm liquid chemical. The stalks and leaves of the potted Chinese cabbage plants were sprayed with the liquid chemical and air-dried, and then the pots were stored in a greenhouse. Six days after the spraying, green peach aphids parasitic on each Chinese cabbage plant were counted and the control efficacy degree was calculated by the following equation, whereby the insecticidal effect was judged according to the

442

criterion shown below.

[0092]

Control efficacy = 100 -{(T x Ca)/(Ta x C)}x 100

Ta: number of parasites before spraying in treated group,

T : number of parasites after spraying in treated group,

Ca: number of parasites before spraying in untreated group,

C : number of parasites after spraying in untreated group.

Criterion:

Efficacy	Percent Control (%)
A	100
B	99 - 90
C	89 - 80
D	79 - 50

[0093]

Test Example 2

Insecticidal effect on brown rice planthopper (Nilaparvata lugens)

Each substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention listed in Tables 3 and 4 was dispersed in and diluted with water to obtain a 500 ppm liquid chemical. Rice seedlings (cultivar: Nihonbare) were immersed in the liquid chemical for 30 seconds and

air-dried, after which each seedling was placed in a glass test tube and inoculated with 10 third-instar nymphs of brown rice planthopper, and the test tube was pluged with a cotton plug. Eight days after the inoculation, the dead and alive were counted. The mortality was calculated by the following equation and the control effect was judged according to the criterion described below.

Corrected larval mortality (%) = {(Ca/c-Ta/T)/Ca/c}x100

Ta: number of alive nymphs in treated groups

T : number of inoculated nymphs in treated groups

Ca: number of alive numphs in untreated groups

c : number of inoculated nymphs in untreated groups

Criterion: the same as in Test Example 1.

[0094]

Test Example 3

Insecticidal test on greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum)

Each compounds of the present invention listed in Table 3 and Table 4 was dispersed in and diluted with water to prepare a test liquid containing 100 ppm of the test compound. By use of a spraygun, the test liquid was sprayed on the surface of a leaf of tomato plant put in a 20 ml-vial bottle containing water on a turn table. After air-dried, the leaf

treated with the test liquid was put in a glass cylinder, and inoculated with 20 adults of greenhouse whitefly thereon. After the inoculation, the leaf was placed in a greenhouse, and the number of adults of greenhouse whitefly was counted. The mortality of the adults was calculated similar to that of conducted in Test Example 2, and the insecticidal effect of each one of the test compounds was evaluated by the method identical to Test Example 1.

[0095]

From the results obtained in Test Example 1, 2 and 3 that: in Test Example 1, Compound Nos. 6, 18, 22, 26, 30, 184, 200, 204 and 208 showed excellent insecticidal effect rated A against green peach aphid (Myzus persicae); in Test Example 2, Compound Nos. 6, 18, 22, 26, 30, 184, 200, 204 and 208 showed excellent insecticidal effect rated A against planthopper (Nilaparvata lugens); and in Test Example 3, Compound Nos. 6, 10, 14, 18, 22, 26, 30, 38, 78, 86, 90, 184, 200, 204 and 208 showed excellent insecticidal effect rated D or higher against greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum); particularly, Compound Nos. 6, 18, 22, 26, 30, 184, 200, 204 and 208 showed excellent insecticidal effect rated A.

[0096]

The pest controllers of the present invention containing, as the active ingredient, substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives or salts

thereof represented by the general formula (I) possess excellent insecticidal effect at low dosage against greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum) and the like, to which conventional compounds having similar chemical structures do not show insecticidal effects. Thus, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives of the present invention are excellent pest controllers as compared with conventional ones.

446

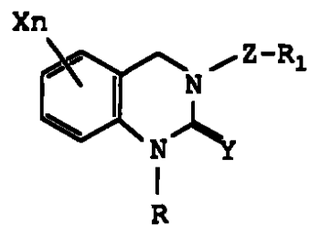
[Title of Document] Abstract

[Abstract]

[Solving Means]

A pest controller containing, as the active ingredient, a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or salt thereof represented by the general formula (I):

[Formula 1]



(I)

[wherein R is H, OH, a formyl group, a (halo)(C_{1-6})alkyl group, a hydroxy(C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group, a (substituted) amino(C_{1-6})alkyl group, a (substituted) aminocarbonyl group, a (substituted) phenyl(C_{1-3})alkyl group, a (substituted) phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group, 1,3-dioxolan-2-yl-(C_{1-3})alkyl group, a phtahlimido(C_{1-6})alkyl group and the like; R_1 is a 5 to 6 membered heterocyclic group having 1 to 3 hetero atoms selected from the group consisting of O, S and N; Y is O or S; Z is a group of the formula -N=C(R_2)- or -N(R_3)-CH(R_2)- (wherein each one of R_2 and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or the like); X is Br, I, OH, CN, a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group, a (substituted) aminocarbonyl group, a (substituted)

phenyloxy group or the like; n is an integer of 0 to 4].

[Effect]

Said substituted aminoquinazolinone derivative or salt thereof possesses excellent insecticidal effects at low dosage against greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum) and the like to which conventional compounds having similar chemical structures do not show the desired insecticidal effects.

[Selected Drawing] None

448

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: ２０００年 ３月３０日

出 願 番 号
Application Number: 特願２０００－０９４４９３

出 願 人
Applicant (s): 日本農薬株式会社

２０００年１１月１０日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Patent Office 及 川 耕 造

出証 号 出証特２０００－３０９４０１１

449

【書類名】　特許願
【整理番号】　C8121
【提出日】　平成12年 3月30日
【あて先】　特許庁長官　殿
【国際特許分類】　C07D235/00
A01N 43/40

【発明者】
【住所又は居所】　大阪府堺市丈六１１５－１２
【氏名】　上原　正浩
【発明者】
【住所又は居所】　大阪府河内長野市西之山町１－２８
【氏名】　渡辺　政光
【発明者】
【住所又は居所】　大阪府河内長野市緑ケ丘南町１５－５
【氏名】　木村　雅行
【発明者】
【住所又は居所】　大阪府河内長野市西之山町１－２８－３０５
【氏名】　森本　雅之
【発明者】
【住所又は居所】　和歌山県橋本市光陽台２－５－３
【氏名】　吉田　正徳

【特許出願人】
【識別番号】　000232623
【氏名又は名称】　日本農薬株式会社
【代理人】
【識別番号】　100068618
【弁理士】
【氏名又は名称】　専　　経夫
【電話番号】　03-3291-9721

【選任した代理人】

【識別番号】　100083193

【弁理士】

【氏名又は名称】　中村　壽夫

【選任した代理人】

【識別番号】　100104145

【弁理士】

【氏名又は名称】　宮崎　嘉夫

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】　平成11年特許願第312297号

【出願日】　平成11年11月 2日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】　018120

【納付金額】　21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】　明細書　1

【物件名】　要約書　1

【包括委任状番号】　9710369

【プルーフの要否】　要

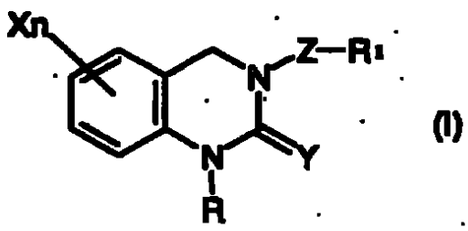
【書類名】　明細

【発明の名称】　置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、その中間体化合物及び有害生物防除剤並びにその使用方法

【特許請求の範囲】

【請求項１】　一般式(I)

【化１】



〔式中、Ｒは水素原子、水酸基、ホルミル基、(C_1-C_{12})アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、ヒドロキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良いジ(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、アミノ(C_1-C_6)アルキル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノ(C_1-C_6)アルキル基、シアノ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、(C_3-C_6)シクロアルキル(C_1-C_3)アルキル基、フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1

-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルチオ基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルスルホニル基、フェニル（C_1-C_6)アルキルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6) アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_6)アルキルスルホニル基、フェニルオキシカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシカルボニル基、フェニルオキシ（C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ（C_1-C_3)アルキル基、フェニル（C_2-C_6)アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アル

453
00159

コキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニル（C_2-C_6）アルケニル基、フェニル（C_2-C_6）アルキニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル基、フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、１，３－ジオキソラン－２－イル（C_1-C_3）アルキル基又はフタルイミド（C_1-C_6）アルキル基を示す。

R_1 は同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択され　１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環基を示し、該複素環基は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基又は（C_1-C_6）アルコキシ基から選択される１～５個の置換基を有す　こともでき、複素環基中の窒素原子はＮ－オキシド基を示すこともできる。

Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚは

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基又はハロ（C_1-C_6）アルキル基を示す。）又は

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2 は前記に同じくし、R_3 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基、ホル

454

ミル基、（C_1-C_3）アルキルカルボニル基又はハロ（C_1-C_3）アルキルカルボニル基を示す。）

を示し、Ｘは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_{10}）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、ハロ（C_2-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、カルボキシル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、（C_1-C_6）アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１

～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニルオキシ基を示し、ｎは０～４の整数を示す。］

で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類。

【請求項２】　Ｒが水素原子、ホルミル基、（C_1-C_{12}）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルコキシ（C_1-C_3）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ（C_1-C_3）アルコキシ（C_1-C_3）アルキル基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、アミノ（C_1-C_6）アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノ（C_1-C_6）アルキル基、シアノ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルキルカルボニル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、（C_3-C_6）シクロアルキル（C_1-C_3）アルキル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１

456
A62

～５個の置換基を環上に有する置換フェニルチオ基、フェニル（C_2-C_6）アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_6）アルケニル基、フェニル（C_2-C_6）アルキニル基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基を示し、R_1 が同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環基を示し、該複素環基は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基又は（C_1-C_6）アルコキシ基から選択される１～５個の置換基を有することもでき、複素環基中の窒素原子はＮ－オキシド基を示すこともできる。Ｙが酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚが

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基又はハロ（C_1-C_6）アルキル基を示す。）又は

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子又は（C_1-C_6）アルキル基を示し、R_3 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基、ホルミル基、（C_1-C_3）アルキルカルボニル基又はハロ（C_1-C_3）アルキルカルボニル基を示す。）を示し、Ｘが同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、ハロ（C_1-C_8）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1

-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、カルボキシル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルオキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基を示し、ｎが０～４の整数を示す請求項１記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類。

【請求項３】　Ｒが水素原子、ホルミル基、(C_1-C_{12})アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、フェニル(C_2-C_6)アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲ

458

ン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基又は(C_1-C_2)アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_6)アルケニル基、フェニル(C_2-C_6)アルキニル基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基又は(C_1-C_2)アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_2-C_4)アルキニル(C_1-C_3)アルキル基を示し、R_1がピリジル基を示し、Ｙが酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚが

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2は水素原子、(C_1-C_6)アルキル基又は、ハロ(C_1-C_6)アルキル基を示す。）又は

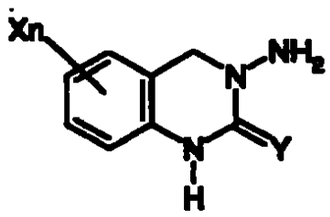
$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2は水素原子又は(C_1-C_6)アルキル基を示し、R_3は水素原子又は(C_1-C_6)アルキル基を示す。）を示し、Ｘは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、ハロ(C_1-C_8)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、カルボキシル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有するアミノカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキル

チオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基、ｎが０～４の整数を示す請求項２記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類。

【請求項４】　一般式(II)

【化２】



(II)

〔式中、Ｘは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_{10}）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、ハロ（C_1-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、カルボキシル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アル

キル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択され　１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基、ｎは０～４の整数を示し、Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示す。］で表される化合物。

【請求項５】　請求項１乃至３のいずれか一項記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤。

【請求項６】　請求項１乃至３のいずれか一項記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類と、１種又は２種以上のその他の農薬を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除組成物。

【請求項７】　有害生物を防除するために請求項１乃至３のいずれか一項記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤の有効量を処理することを特徴とする有害生物防除方法。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は新規な置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、中間体化合物及び該誘導体を有効成分として含有する有害生物防除剤並びにその使用方法に関するものである。

【０００２】

【従来の技術】

特開平８－３２５２３９号公報にアミノキナゾリノン誘導体が有害生物防除剤として有用であることが開示されている。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】

本発明者らは新規な有害生物防除剤を創出すべく鋭意研究を重ねた結果、キナゾリノン環に属するフェニル基に本発明で示す置換基を有する化合物は、上記特開平８－３２５２３９号公報に記載の実施例に開示されている化合物と比べて、低薬量で同等以上の効果があり、特に農園芸場面で問題となるコナジラミ類に対す　充分な殺虫効果を示す事を見出し、本発明を完成させたものである。

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類及び該化合物を製造するための中間体化合物である一般式(II)で表され

化合物は新規化合物であり、一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は従来の薬剤に比べて、各種害虫に対して低薬量で優れた殺虫効果を有するものである。

【０００４】

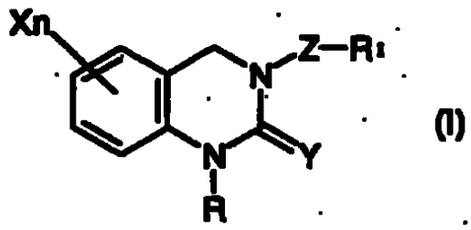
【課題を解決するための手段】

本発明者は、従来の殺虫剤に比較してより低薬量で効果が優れ、かつ殺虫スペクトラムの拡大された殺虫剤を得るべくアミノキナゾリノン誘導体について鋭意研究を進めた結果、キナゾリノン環に臭素原子、ヨー素原子、パーフルオロアルキル基、パーフルオロアルコキシ基等を有する新規なアミノキナゾリノン誘導体が、有害生物防除剤として極めて優れた活性を有することを見いだしたものである。

【０００５】

すなわち、本発明は一般式(I)

【化３】



(I)

〔式中、Ｒは水素原子、水酸基、ホルミル基、(C_1-C_{12})アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、ヒドロキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良いジ(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、アミノ(C_1-C_6)アルキル基、同一又は異なっても良く、

【０００６】

(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノ(C_1-C_6)アルキル基、シアノ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、(C_3-C_6)シクロアルキル(C_1-C_3)アルキル基、フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)

463

アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、

【０００７】

フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルチオ基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルスルホニル基、フェニル（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、フェニルオキシカルボニル基、

【０００８】

同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシカルボニル基、フェニルオキシ（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ（C_1-C_3）アルキル基、フェニル（C_2-C_6）アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選

択される１～５個の置換基を環上に有するフェニル（C_2-C_6）アルケニル基、

【０００９】

フェニル（C_2-C_6）アルキニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル基、フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、１，３－ジオキソラン－２－イル（C_1-C_3）アルキル基又はフタルイミド（C_1-C_6）アルキル基を示す。

【００１０】

R_1 は同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環基を示し、該複素環基は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基又は（C_1-C_6）アルコキシ基から選択される１～５個の置換基を有す　こともでき、複素環基中の窒素原子はＮ－オキシド基を示すこともできる。

Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚは

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基又はハロ（C_1-C_6）アルキル基を示す。）又は

【００１１】

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2 は前記に同じくし、R_3 は水素原子、(C_1-C_6)アルキル基、ホルミル基、(C_1-C_3)アルキルカルボニル基又はハロ(C_1-C_3)アルキルカルボニル基を示す。）

を示し、Xは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_{10})アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、ハロ(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、

【００１２】

カルボキシル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、(C_1-C_6)アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有す　置換アミノスルホニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、

【００１３】

(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基から選

466
88422

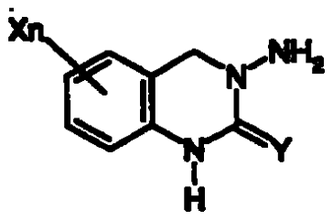
択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニルオキシ基を示し、ｎは０～４の整数を示す。］

で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、並びに該誘導体又はその塩類を有効成分として含有する有害生物防除剤並びにその使用方法に関するものである。

【００１４】

又、本発明は前記誘導体の中間体化合物である一般式(II)

【化４】



(II)

〔式中、Ｘは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_{10}）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、ハロ（C_1-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、

【００１５】

カルボキシル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一

467

又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、

【００１６】

フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基、ｎは０～４の整数を示し、Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示す。］

で表される化合物に関するものである。

【００１７】

【発明の実施の形態】

本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類における各置換基の定義中、『ハロゲン原子』とは塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子又はフッ素原子を示し、例えば『C_1-C_{12}』とは炭素原子数１～１２

を示し、『(C_1-C_{12})アルキル基』とは、炭素原子数１～１２の直鎖状又は分枝状のアルキル基を示し、例えば、メチル、エチル、ｎ－プロピル、ｉ－プロピル、ｎ－ブチル、ｉ－ブチル、ｓ－ブチル、ｔ－ブチル、ｎ－ペンチル、ｎ－ヘキシル、ｎ－ヘプチル、ｎ－オクチル、ｎ－ノニル、ｎ－デシル、ｎ－ウンデシル、ｎ－ドデシル等のアルキル基を示し、『ハロ(C_1-C_{10})アルキル基』とは同一又は異なっても良く、１以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数１～１０の直鎖状又は分枝状のアルキル基を示し、例えばトリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基などを示し、『(C_2-C_6)アルケニル基』とは１以上の２重結合を有する炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルケニル基を示し、『ハロ(C_2-C_6)アルケニル基』とは同一又は異なっても良く、１以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルケニル基を示し、『(C_2-C_6)アルキニル基』とは１以上の３重結合を有する炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルキニル基を示し、

【００１８】

『ハロ(C_2-C_6)アルキニル基』とは同一又は異なっても良く、１以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルキニル基を示し、『同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子又は窒素原子から選択される１以上のヘテロ原子を有する５～６員複素環』とは、例えばフラン、チオフェン、ピロール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イミダゾール、１，２，３－チアジアゾール、１，２，４－チアジアゾール、１，２，５－チアジアゾール、１，３，４－チアジアゾール、１，２，４－トリアゾール、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、ピロリジン、ピペリジン、モルホリン、チオモルホリン、ジチオラン、ジチアン、ピペラジン、ジオキソラン、イミダゾリジン又はテトラヒドロフラン等の５～６員複素環を示すものとする。

【００１９】

一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体で好ましい置換基としては、Ｒが水素原子、ホルミル基、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基

、フェニルカルボニル基、置換フェニルカルボニル基、置換フェニル（C_1-C_6）アルキル基、置換フェニル（C_2-C_6）アルケニル基又は置換フェニル（C_2-C_6）アルキニル基であり、R_1 がピリジル基、特に３－ピリジル基であり、Ｙは酸素原子又は硫黄原子であり、Ｚは

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

であり、R_2 及びR_3 は水素原子又は（C_1-C_6）アルキル基であり、Ｘは臭素原子、ヨウ素原子、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）ハロアルコキシ基、（C_1-C_6）ハロアルキルチオ基、（C_1-C_6）ハロアルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）ハロアルキルスルホニル基又はフェニル基であり、ｎは０～２の整数が好ましい。

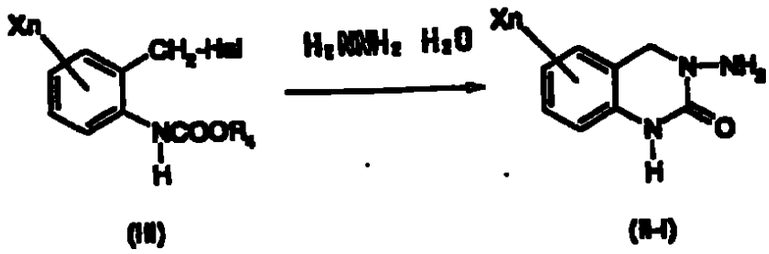
又、一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体の塩としては、例えば塩酸、硫酸、硝酸等の鉱酸塩の他に、ナトリウム、カリウム等のアルカリ金属原子の塩を例示することができる。

【００２０】

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体の中間体化合物である一般式(II)で表される化合物は、例えば下記に示す製造方法により製造することができる。

製造方法１.

【化５】



(II)　　(II-I)

（式中、Ｘ及びｎは前記に同じくし、R_4 は（C_1-C_6）アルキル基を示し、Ｈａｌはハロゲン原子を示す。）

【００２１】

一般式(III) で表される化合物と抱水ヒドラジン類とを不活性溶媒の存在下に反応させることにより一般式(II-1)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレン、モノクロロベンゼン等の芳香族炭化水素類、アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類、メチルセルソルブ等のセルソルブ類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、ジメチルスルホキシド、スルホラン、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

【００２２】

反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～９０℃の範囲である。本反応は等モル反応であるので一般式(III) で表される化合物及び抱水ヒドラジン類を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することもでき、好ましくは抱水ヒドラジン類を過剰に使用するのが良い。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

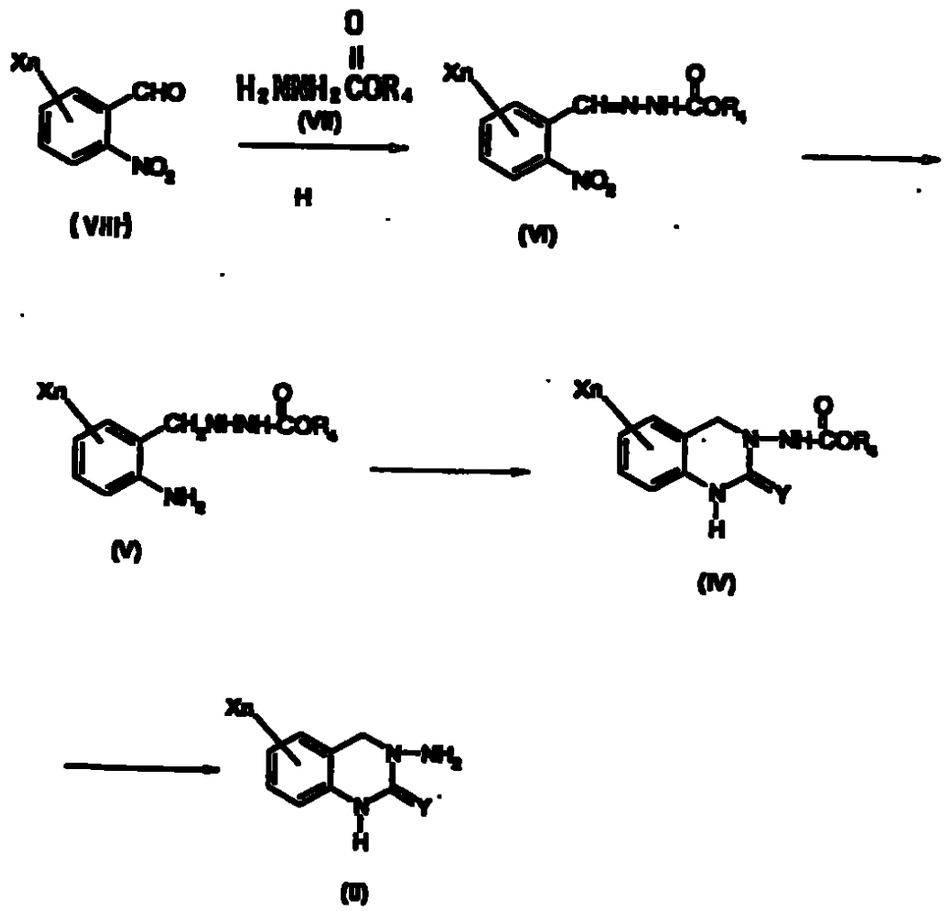
反応終了後、目的物を含む反応系から常法により処理し、必要に応じて再結晶、ドライカラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。

一般式(III) で表される化合物はCollect. Czech. Chem. Comm. (Vol. 55), 752 (1990)に従って製造することができる。

【００２３】

製造方法２.

【化６】



（式中、R_4、X、ｎ及びＹは前記に同じ。）

【００２４】

２－１．一般式(VIII)→一般式(VI)

一般式(VIII)で表される化合物と一般式(VII)で表される化合物とを不活性溶媒及び触媒の存在下に反応させることにより、一般式(VI)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては例えば製造方法１で例示の不活性溶媒を使用することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。触媒としては、例えば塩酸、硫酸等の無機酸の他に酢酸、パラトルエンスルホン酸等を使用することができ、その使用量は一般式(VIII)で

492
44478

表される化合物に対して０．００１重量％～１０重量％の範囲の量が反応系内に存在すれば良い。

【００２５】

本反応は等モル反応であるので一般式(VIII)で表される化合物及び一般式(VII)で表される化合物を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することもできる。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～９０℃の範囲である。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

一般式(VIII)で表される化合物は市販されているものでも良く、置換ベンズアルデヒドのニトロ化によっても製造することができる。又、Jaurnal of Chemical Society 1927,2375-8 記載の方法でも製造できる。

【００２６】

２－２．一般式(VI)→一般式(V)

一般式(VI)で表される化合物を不活性溶媒の存在下又は不存在下に還元剤と反応させるか、又は接触還元することにより、一般式(V) で表される化合物を製造することができる。

本還元反応での還元剤としては、例えば$NaBH_3CN$ 、$LiBH_3CN$ 等の金属水素化物、BH_3 等の還元剤を使用することができ、その使用量は一般式(VI)で表される化合物に対して還元剤のハイドライドのモル数に換算して等モル～過剰モルの範囲から適宜選択して使用すれば良い。

本反応で使用できる不活性溶媒としては本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、メチルセルソルブ等のセルソルブ類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、ジメチルスルホキシド、スルホラン、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性

溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

【００２７】

本反応は酸性～中性条件下で、ｐＨ１～７の範囲で行われ、好ましくはｐＨ４～６の範囲で行われ、反応系に塩化水素、臭化水素等を添加することによりｐＨを調整すれば良い。反応温度は０℃～溶媒の沸点域の範囲から選択され、好ましくは室温～７０℃の範囲である。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

次いで、還元反応として接触還元を行う場合、例えば『新実験化学講座』（第１５　－ＩＩ：丸善）等に記載の方法に従って行えば良く、例えば使用できる不活性溶媒としてはメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、メチルセルソルブ等のセルソルブ類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ヘキサン、シクロヘキサンの炭化水素類、酢酸、酢酸エチル等の脂肪酸又はそのエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、テトラメチルウレア等のウレア類を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

【００２８】

本還元反応で使用する触媒としては、例えばパラジウムカーボン、パラジウムブラック、二酸化白金、ラネーニッケル等の代表的な接触還元触媒を例示することができ、その使用量は一般式(VI)で表される化合物に対して０．１％モル等量～５％モル等量の範囲から選択して使用すれば良く、好ましくは０．５％モル等量～１％モル等量の範囲である。本反応の水素圧は常圧～３００気圧の範囲であり、好ましくは常圧～５０気圧の範囲である。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～７０℃の範囲である。

反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的　を含む反応系から、還元剤を使用した場合と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００２９】

２－３．一般式(V) →一般式(IV)

一般式(V) で表される化合物と１，１'－カルボニルビス－１Ｈ－イミダゾール（ＣＤＩ）、アルコキシカルボニルハライド、ホスゲン又はチオホスゲンとを不活性溶媒の存在下、塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(IV)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えばジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、水等を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上混合して使用することができる。塩基としては無機塩基又は有機塩基を使用することができ、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化マグネシウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属又はアルカリ土類金属の水酸化物、炭酸塩等の無機塩基、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基を例示することができ、反応剤としてＣＤＩを使用する場合には無塩基下に反応を行うこともできる。

【００３０】

塩基の使用量は一般式(V) で表される化合物に対して２倍モル以上の量を使用すれば良い。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～１００℃の範囲である。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から、製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００３１】

２－４．一般式(IV)→一般式(II)

一般式(IV)で表される化合物を不活性溶媒の存在下にアルカリ加水分解反応を行うことにより一般式(II)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、プ

ロパノール、ブタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

塩基としては水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化マグネシウム等のアルカリ金属又はアルカリ土類金属の水酸化物を使用することができる。又、R_4のアルキル基によってはトリフルオロ酢酸、塩酸等の有機酸、無機酸を使用して酸性条件下でも反応を行うことができる。反応温度は０℃～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良い。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

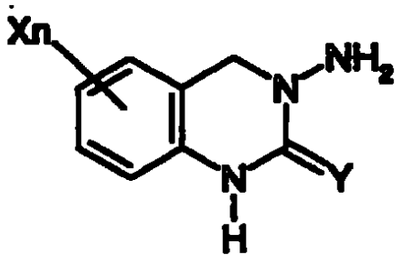
反応終了後、目的物を含む反応系から、製造方法１と同様にすることにより目的　を製造することができる。

【００３２】

以下に製造方法１及び２により製造される一般式(II)で表される化合物の代表例を第１表に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

一般式(II)

【化７】



(II)

【００３３】

第１表

No.	Xn	Y	物　性
II-1	5-OH	O	結晶物
II-2	6-OH	O	結晶物
II-3	7-OH	O	結晶物
II-4	8-OH	O	結晶物
II-5	5-Br	O	
II-6	6-Br	O	結晶物
II-7	7-Br	O	
II-8	8-Br	O	
II-9	5-I	O	
II-10	6-I	O	m.p.202.3-205.0 ℃
II-11	7-I	O	
II-12	8-I	O	
II-13	5-CF_3	O	
II-14	6-CF_3	O	m.p.155-157.7 ℃
II-15	7-CF_3	O	

477

【００３４】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-16	8-CF_3	0	
II-17	5-C_2F_5	0	
II-18	6-C_2F_5	0	m.p.178.4-183.5 ℃
II-19	7-C_2F_5	0	
II-20	8-C_2F_5	0	
II-21	5-i-C_3F_7	0	
II-22	6-i-C_3F_7	0	m.p.147.6-149.5 ℃
II-23	7-i-C_3F_7	0	
II-24	8-i-C_3F_7	0	
II-25	5-n-C_6F_{13}	0	
II-26	6-n-C_6F_{13}	0	結晶物
II-27	7-n-C_6F_{13}	0	
II-28	8-n-C_6F_{13}	0	
II-29	5-OCF_3	0	
II-30	6-OCF_3	0	m.p.181.5-184.0 ℃
II-31	7-OCF_3	0	
II-32	8-OCF_3	0	
II-33	5-OCH_2-Ph	0	結晶物
II-34	6-OCH_2-Ph	0	
II-35	7-OCH_2-Ph	0	
II-36	8-OCH_2-Ph	0	結晶物
II-37	5-$OCHF_2$	0	
II-38	6-$OCHF_2$	0	結晶物

【００３５】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-39	7-$OCHF_2$	0	
II-40	8-$OCHF_2$	0	
II-41	5-SCF_3	0	
II-42	6-SCF_3	0	
II-43	7-SCF_3	0	
II-44	8-SCF_3	0	
II-45	5-SC_2F_5	0	
II-46	6-SC_2F_5	0	
II-47	7-SC_2F_5	0	
II-48	8-SC_2F_5	0	
II-49	5-S-i-C_3F_7	0	
II-50	6-S-i-C_3F_7	0	
II-51	7-S-i-C_3F_7	0	
II-52	8-S-i-C_3F_7	0	
II-53	5-$SOCF_3$	0	
II-54	6-$SOCF_3$	0	
II-55	7-$SOCF_3$	0	
II-56	8-$SOCF_3$	0	
II-57	5-SO_2CF_3	0	
II-58	6-SO_2CF_3	0	
II-59	7-SO_2CF_3	0	
II-60	8-SO_2CF_3	0	
II-61	5-SOC_2F_5	0	

【００３６】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-62	6-SOC_2F_5	0	
II-63	7-SOC_2F_5	0	
II-64	8-SOC_2F_5	0	
II-65	5-$SO_2C_2F_5$	0	
II-66	6-$SO_2C_2F_5$	0	
II-67	7-$SO_2C_2F_5$	0	
II-68	8-$SO_2C_2F_5$	0	
II-69	5-SO-i-C_3F_7	0	
II-70	6-SO-i-C_3F_7	0	
II-71	7-SO-i-C_3F_7	0	
II-72	8-SO-i-C_3F_7	0	
II-73	5-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-74	6-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-75	7-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-76	8-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-77	5-$COOC_2H_5$	0	
II-78	6-$COOC_2H_5$	0	
II-79	7-$COOC_2H_5$	0	
II-80	8-$COOC_2H_5$	0	
II-81	5-COOH	0	
II-82	6-COOH	0	
II-83	7-COOH	0	
II-84	8-COOH	0	

【００３７】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-85	5-Ph	0	
II-86	6-Ph	0	
II-87	7-Ph	0	
II-88	8-Ph	0	
II-89	5-(p-Cl-Ph)	0	
II-90	6-(p-Cl-Ph)	0	
II-91	7-(p-Cl-Ph)	0	
II-92	8-(p-Cl-Ph)	0	
II-93	5-O-Ph	0	
II-94	6-O-Ph	0	
II-95	7-O-Ph	0	
II-96	8-O-Ph	0	
II-97	5-n-C_4H_9	0	
II-98	6-n-C_4H_9	0	
II-99	7-n-C_4H_9	0	
II-100	8-n-C_4H_9	0	
II-101	5-OCF_2CHF_2	0	
II-102	6-OCF_2CHF_2	0	m.p.184.8 ℃
II-103	7-OCF_2CHF_2	0	
II-104	8-OCF_2CHF_2	0	

【００３８】

第１表で示した化合物のＮＭＲデータを第２表に示す。

第２表

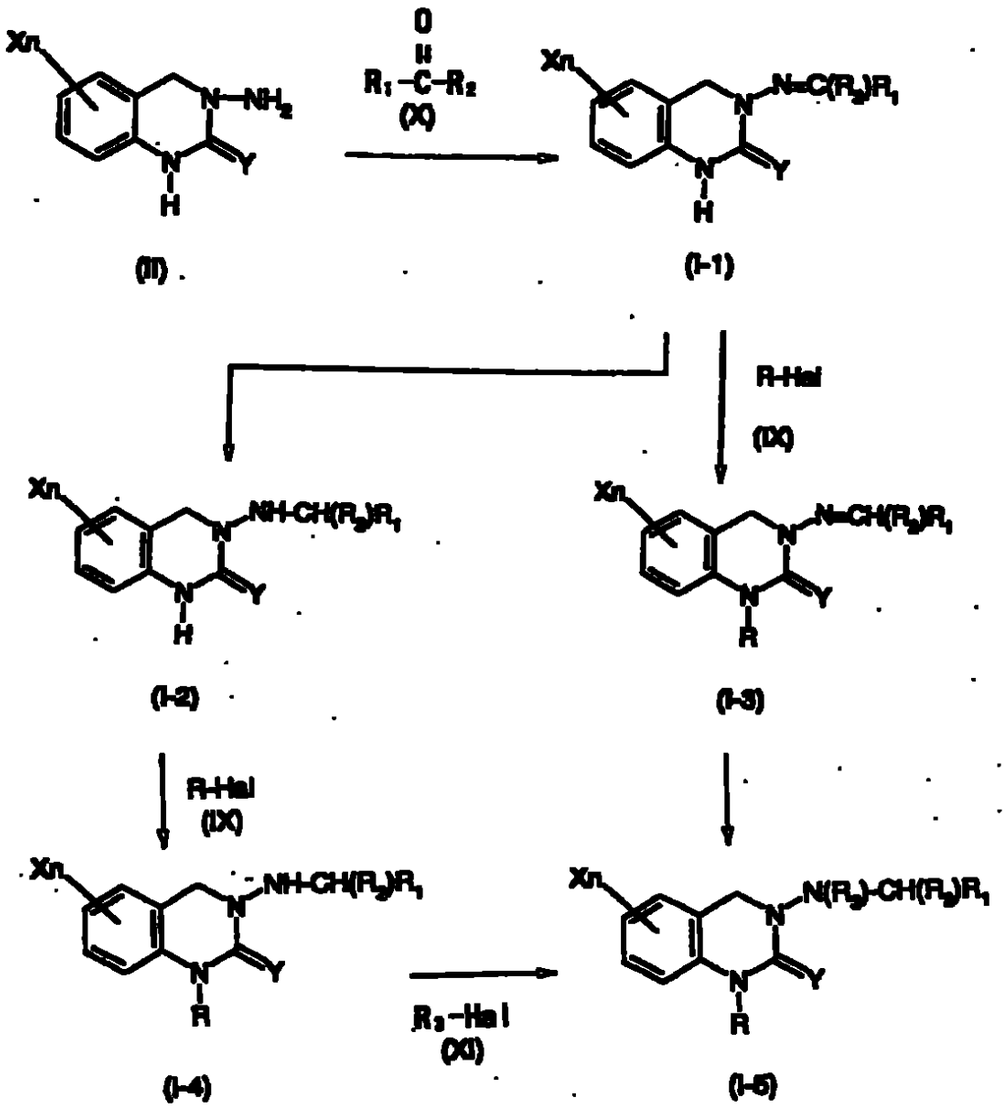
No.	^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ値(ppm)]
II-1	4.36(2H,s), 4.65(2H,br), 6.20(1H,d), 6.34(1H,d), 6.89(1H,t), 9.12(1H,br), 9.62(1H,s).
II-2	4.45(2H,s) 4.65(2H,s) 6.51-6.63(3H,m) 9.00(1H,s), 9.60(1H,brs).
II-3	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.23-6.35(2H,m), 6.85(1H,d), 9.05(1H,s), 9.63(1H,s)
II-4	4.46(2H,s), 4.65(2H,s), 6.57(1H,d), 6.64-6.74(2H,m), 7.95(1H,d), 9.60(1H,brs).
II-6	4.48(2H,s), 4.66(2H,s), 6.74(1H,m), 7.18(1H,m), 7.30(1H,m), 9.43(1H,s).
II-18	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.95(1H,d), 7.40-7.50(2H,m), 9.83(1H,s).
II-26	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.94(1H,d), 7.43-7.48(2H,m), 9.74(1H,s).
II-33	4.48(2H,s), 4.69(2H,s), 5.00(2H,s), 6.30(1H,d), 6.45(1H,d), 7.05(1H,t), 7.25-7.40(6H,m).
II-36	4.48(2H,s), 4.68(2H,s), 5.19(2H,s), 6.71(1H,d), 6.82(1H,t), 6.92(1H,d), 7.30-7.40(3H,m), 7.51(2H,d), 8.18(1H,s).
II-38	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.76-6.79(1H,d,J=8.7Hz), 6.95-7.00(2H,m), 6.80-7.30(1H,t,J=7.46), 9.37(1H,s).

【００３９】

本発明の一般式(I) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩の代表的な製造方法を以下に示す。

製造方法３．

【化８】



（式中、R、R_1、R_2、R_3、X、n、Y及びＨａｌは前記に同じ。但し、R及びR_3は水素原子を除く。）

【００４０】

３－１．一般式(II)→一般式(I-1)

一般式(II)で表される化合物と一般式(X) で表される化合物とを不活性溶媒及び触媒の存在下に反応させることにより一般式(I-1) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

本反応は製造方法２－１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

３－２．一般式(I-1) →一般式(I-3)

一般式(I-1) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体と一般式(IX)で表される化合物とを不活性溶媒及び塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(I-3) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

【００４１】

本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えば製造方法１に例示の不活性溶媒を使用することができ、塩基は無機塩基又は有機塩基を使用することができ、例えば製造方法２－３で例示の無機塩基又は有機塩基の他に、CH_3ONa、C_2H_5ONa、$t\text{-}C_4H_9ONa$ 、CH_3OK 、C_2H_5OK、$t\text{-}C_4H_9OK$等のアルコラート類、NaH 等のアルカリ金属ハイドライド類も使用することができ、その使用量は一般式(I-1) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体に対して等モル～過剰モルの範囲で適宜選択して反応を行えば良い。

反応温度は０℃～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で行えば良く、好ましくは室温～７０℃の範囲である。反応時間は反応規模、反応温度等により一定しないが、数分～４８時間の範囲で行えば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００４２】

３－３．一般式(I-1) →一般式(I-2)

本反応は２－２と同様にすることにより目的物を製造することができる。

３－４．一般式(I-2) →一般式(I-4)

一般式(I-2) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体と一般式(IX)で

表され　化合物とを不活性溶媒及び塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(I-4) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

本反応は３－２と同様にすることにより、目的物を製造することができる。

３－５．一般式(I-4) →一般式(I-5)

一般式(I-4) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体と一般式(XI)で表される化合物とを不活性溶媒及び塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(I-5) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

本反応は３－２と同様にすることにより、目的物を製造することができる。

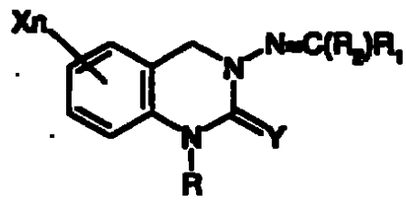
３－６．一般式(I-3) →一般式(I-5)

本反応は２－２と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００４３】

以下に本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類の代表例を第３表及び第４表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【化９】



【００４４】

第3表（R_1=Q_2、R_2=H、Y＝O）

No.	R	Xn	物　性
1	H	5-OH	m.p.293-295 ℃
2	H	6-OH	
3	H	7-OH	
4	H	8-OH	m.p.>300℃
5	H	5-Br	
6	H	6-Br	m.p.>300℃
7	H	7-Br	
8	H	8-Br	
9	H	5-I	
10	H	6-I	m.p.>300℃
11	H	7-I	
12	H	8-I	

【００４５】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
13	H	5-CF_3	
14	H	6-CF_3	m.p.227.6-286.7 ℃
15	H	7-CF_3	
16	H	8-CF_3	
17	H	5-C_2F_5	
18	H	6-C_2F_5	m.p.298-300 ℃
19	H	7-C_2F_5	
20	H	8-C_2F_5	
21	H	5-i-C_3F_7	
22	H	6-i-C_3F_7	m.p.>300℃
23	H	7-i-C_3F_7	
24	H	8-i-C_3F_7	
25	H	5-n-C_6F_{13}	
26	H	6-n-C_6F_{13}	m.p.>300℃
27	H	7-n-C_6F_{13}	
28	H	8-n-C_6F_{13}	
29	H	5-OCF_3	
30	H	6-OCF_3	m.p.264.0-266.0 ℃
31	H	7-OCF_3	
32	H	8-OCF_3	
33	H	5-CH_2-Ph	
34	H	6-CH_2-Ph	
35	H	7-CH_2-Ph	

【００４６】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
36	H	8-CH_2-Ph	
37	H	5-$OCHF_2$	
38	H	6-$OCHF_2$	m.p.260.1-264.5 ℃
39	H	7-$OCHF_2$	
40	H	8-$OCHF_2$	
41	H	5-SCF_3	
42	H	6-SCF_3	
43	H	7-SCF_3	
44	H	8-SCF_3	
45	H	5-SC_2F_5	
46	H	6-SC_2F_5	
47	H	7-SC_2F_5	
48	H	8-SC_2F_5	
49	H	5-S-i-C_3F_7	
50	H	6-S-i-C_3F_7	
51	H	7-S-i-C_3F_7	
52	H	8-S-i-C_3F_7	
53	H	5-$SOCF_3$	
54	H	6-$SOCF_3$	
55	H	7-$SOCF_3$	
56	H	8-$SOCF_3$	
57	H	5-SO_2CF_3	
58	H	6-SO_2CF_3	

【0047】

第3表（続き）

No.	R	Xn	物　性
59	H	7-SO_2CF_3	
60	H	8-SO_2CF_3	
61	H	5-SOC_2F_5	
62	H	6-SOC_2F_5	
63	H	7-SOC_2F_5	
64	H	8-SOC_2F_5	
65	H	5-$SO_2C_2F_5$	
66	H	6-$SO_2C_2F_5$	
67	H	7-$SO_2C_2F_5$	
68	H	8-$SO_2C_2F_5$	
69	H	5-SO-i-C_3F_7	
70	H	6-SO-i-C_3F_7	
71	H	7-SO-i-C_3F_7	
72	H	8-SO-i-C_3F_7	
73	H	5-SO_2-i-C_3F_7	
74	H	6-SO_2-i-C_3F_7	
75	H	7-SO_2-i-C_3F_7	
76	H	8-SO_2-i-C_3F_7	
77	H	5-$COOC_2H_5$	
78	H	6-$COOC_2H_5$	m.p.274-278 ℃
79	H	7-$COOC_2H_5$	
80	H	8-$COOC_2H_5$	
81	H	5-COOH	

【0048】

第3表（続き）

No.	R	Xn	物　性
82	H	6-COOH	
83	H	7-COOH	
84	H	8-COOH	
85	H	5-Ph	
86	H	6-Ph	m.p.250.9-253.8 ℃
87	H	7-Ph	
88	H	8-Ph	
89	H	5-(4-Cl-Ph)	
90	H	6-(4-Cl-Ph)	m.p.276-278 ℃
91	H	7-(4-Cl-Ph)	
92	H	8-(4-Cl-Ph)	
93	H	5-O-Ph	
94	H	6-O-Ph	
95	H	7-O-Ph	
96	H	8-O-Ph	
97	H	5-n-C_4H_9	
98	H	6-n-C_4H_9	
99	H	7-n-C_4H_9	
100	H	8-n-C_4H_9	
101	CH_3	5-I	
102	CH_3	6-I	m.p.181.4-185.3 ℃
103	CH_3	7-I	
104	CH_3	8-I	

【００４９】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
105	C_2H_5	5-I	
106	C_2H_5	6-I	m.p.191.5-194.5 ℃
107	C_2H_5	7-I	
108	C_2H_5	8-I	
109	n-C_5H_{11}	5-I	
110	n-C_5H_{11}	6-I	nD 1.4126(28.5℃)
111	n-C_5H_{11}	7-I	
112	n-C_5H_{11}	8-I	
113	$CH_2C{\equiv}CH$	5-I	
114	$CH_2C{\equiv}CH$	6-I	m.p.214-217 ℃
115	$CH_2C{\equiv}CH$	7-I	
116	$CH_2C{\equiv}CH$	8-I	
117	$CH_2CH{=}CH_2$	5-I	
118	$CH_2CH{=}CH_2$	6-I	m.p.162-164 ℃
119	$CH_2CH{=}CH_2$	7-I	
120	$CH_2CH{=}CH_2$	8-I	
121	$CH_2OC_2H_5$	5-I	
122	$CH_2OC_2H_5$	6-I	m.p.111.3-161.7 ℃
123	$CH_2OC_2H_5$	7-I	
124	$CH_2OC_2H_5$	8-I	
125	CH_2(4-Cl-Ph)	5-I	
126	CH_2(4-Cl-Ph)	6-I	m.p.146-149 ℃
127	CH_2(4-Cl-Ph)	7-I	

491

【００５０】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
128	CH_2(4-Cl-Ph)	8-I	
129	$COCH_3$	5-I	
130	$COCH_3$	6-I	m.p.186-188 ℃
131	$COCH_3$	7-I	
132	$COCH_3$	8-I	
133	COC_2H_5	5-I	
134	COC_2H_5	6-I	m.p.135-139 ℃
135	COC_2H_5	7-I	
136	COC_2H_5	8-I	
137	SO_2CH_3	5-I	
138	SO_2CH_3	6-I	m.p.174-181 ℃
139	SO_2CH_3	7-I	
140	SO_2CH_3	8-I	
141	SO_2Ph	5-I	
142	SO_2Ph	6-I	m.p.199-205 ℃
143	SO_2Ph	7-I	
144	SO_2Ph	8-I	
145	H	5-OCF_2CHF_2	
146	H	6-OCF_2CHF_2	m.p.251.6-263.3 ℃
147	H	7-OCF_2CHF_2	
148	H	8-OCF_2CHF_2	
149	CO-c-C_3H_5	5-I	
150	CO-c-C_3H_5	6-I	m.p.172-175 ℃

【００５１】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
151	CO-c-C_3H_5	7-I	
152	CO-c-C_3H_5	8-I	
153	H	5-(4-CH_3O-Ph)	
154	H	6-(4-CH_3O-Ph)	m.p.242 ℃
155	H	7-(4-CH_3O-Ph)	
156	H	8-(4-CH_3O-Ph)	
157	H	5-(3-CH_3O-Ph	
158	H	6-(3-CH_3O-Ph)	m.p.192-199 ℃
159	H	7-(3-CH_3O-Ph)	
160	H	8-(3-CH_3O-Ph)	
161	H	5-(3-NO_2-Ph)	
162	H	6-(3-NO_2-Ph)	m.p.>300℃
163	H	7-(3-NO_2-Ph)	
164	H	8-(3-NO_2-Ph)	
165	H	5-COOH	
166	H	6-COOH	m.p.>300℃
167	H	7-COOH	
168	H	8-COOH	
169	H	5-$COOCH_3$	
170	H	6-$COOCH_3$	m.p.270.5-279.6 ℃
171	H	7-$COOCH_3$	
172	H	8-$COOCH_3$	
173	H	5-$CON(C_2H_5)_2$	

493

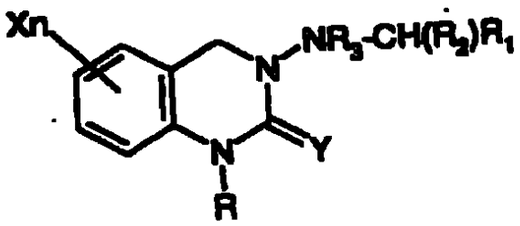
【００５２】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
174	H	6-CON(C_2H_5)$_2$	m.p.254.9-278.1 ℃
175	H	7-CON(C_2H_5)$_2$	
176	H	8-CON(C_2H_5)$_2$	
177	H	6-Cl-7-CF_2H	m.p.285 ℃
178	H	6-C_3F_7-i	m.p.227.1-227.3 ℃
		(Q_2:N-メチル ピリジリウム アイオダイド塩)	

【００５３】

【化１０】



【００５４】

第４表（R_2=H、Y＝O、R_3=H。但し、特記したものを除く。）

No	R	R_2	Xn	物　性
179	H	Q_2	5-OH	
180	H	Q_2	6-OH	m.p.223-225 ℃
181	H	Q_2	7-OH	m.p.258-259 ℃
182	H	Q_2	8-OH	m.p.177-180 ℃
183	H	Q_2	5-Br	
184	H	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
185	H	Q_2	7-Br	
186	H	Q_2	8-Br	
187	H	Q_2	5-I	
188	H	Q_2	6-I	
189	H	Q_2	7-I	
190	H	Q_2	8-I	
191	H	Q_2	5-CF_3	
192	H	Q_2	6-CF_3	m.p.191.0-193.1 ℃
193	H	Q_2	7-CF_3	
194	H	Q_2	8-CF_3	
195	H	Q_2	5-C_2F_5	
196	H	Q_2	6-C_2F_5	
197	H	Q_2	7-C_2F_5	
198	H	Q_2	8-C_2F_5	
199	H	Q_2	5-i-C_3F_7	
200	H	Q_2	6-i-C_3F_7	m.p.159.4-161.0 ℃
201	H	Q_2	7-i-C_3F_7	

495
-60501

【００５５】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
202	H	Q_2	8-i-C_3F_7	
203	H	Q_2	5-n-C_6F_{13}	
204	H	Q_2	6-n-C_6F_{13}	m.p.153.8-164.7 ℃
205	H	Q_2	7-n-C_6F_{13}	
206	H	Q_2	8-n-C_6F_{13}	
207	H	Q_2	5-OCF_3	
208	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5233(22.6℃)
209	H	Q_2	7-OCF_3	
210	H	Q_2	8-OCF_3	
211	H	Q_2	5-CH_2-Ph	
212	H	Q_2	6-CH_2-Ph	
213	H	Q_2	7-CH_2-Ph	
214	H	Q_2	8-CH_2-Ph	
215	H	Q_2	5-$OCHF_2$	
216	H	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.129.7-130.2 ℃
217	H	Q_2	7-$OCHF_2$	
218	H	Q_2	8-$OCHF_2$	
219	H	Q_2	5-SCF_3	
220	H	Q_2	6-SCF_3	
221	H	Q_2	7-SCF_3	
222	H	Q_2	8-SCF_3	
223	H	Q_2	5-SC_2F_5	
224	H	Q_2	6-SC_2F_5	

496

【００５６】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
225	H	Q_2	7-SC_2F_5	
226	H	Q_2	8-SC_2F_5	
227	H	Q_2	5-S-i-C_3F_7	
228	H	Q_2	6-S-i-C_3F_7	
229	H	Q_2	7-S-i-C_3F_7	
230	H	Q_2	8-S-i-C_3F_7	
231	H	Q_2	5-$SOCF_3$	
232	H	Q_2	6-$SOCF_3$	
233	H	Q_2	7-$SOCF_3$	
234	H	Q_2	8-$SOCF_3$	
235	H	Q_2	5-SO_2CF_3	
236	H	Q_2	6-SO_2CF_3	
237	H	Q_2	7-SO_2CF_3	
238	H	Q_2	8-SO_2CF_3	
239	H	Q_2	5-SOC_2F_5	
240	H	Q_2	6-SOC_2F_5	
241	H	Q_2	7-SOC_2F_5	
242	H	Q_2	8-SOC_2F_5	
243	H	Q_2	5-$SO_2C_2F_5$	
244	H	Q_2	6-$SO_2C_2F_5$	
245	H	Q_2	7-$SO_2C_2F_5$	
246	H	Q_2	8-$SO_2C_2F_5$	
247	H	Q_2	5-SO-i-C_3F_7	

47

【００５７】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
248	H	Q_2	6-SO-i-C_3F_7	
249	H	Q_2	7-SO-i-C_3F_7	
250	H	Q_2	8-SO-i-C_3F_7	
251	H	Q_2	5-SO_2-i-C_3F_7	
252	H	Q_2	6-SO_2-i-C_3F_7	
253	H	Q_2	7-SO_2-i-C_3F_7	
254	H	Q_2	8-SO_2-i-C_3F_7	
255	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
256	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	
257	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	
258	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
259	H	Q_2	5-COOH	
260	H	Q_2	6-COOH	
261	H	Q_2	7-COOH	
262	H	Q_2	8-COOH	
263	H	Q_2	5-Ph	
264	H	Q_2	6-Ph	
265	H	Q_2	7-Ph	
266	H	Q_2	8-Ph	
267	H	Q_2	5-(4-Cl-Ph)	
268	H	Q_2	6-(4-Cl-Ph)	
269	H	Q_2	7-(4-Cl-Ph)	
270	H	Q_2	8-(4-Cl-Ph)	

【００５８】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
271	H	Q_2	5-O-Ph	
272	H	Q_2	6-O-Ph	
273	H	Q_2	7-O-Ph	
274	H	Q_2	8-O-Ph	
275	H	Q_2	5-n-C_4H_9	
276	H	Q_2	6-n-C_4H_9	
277	H	Q_2	7-n-C_4H_9	
278	H	Q_2	8-n-C_4H_9	
279	H	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
280	H	Q_2	6-OCF_2CHF_2	m.p.168.7-173.9 ℃
281	H	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
282	H	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
283	H	Q_5	5-$CF(CF_3)_2$	
284	H	Q_5	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.239.7- 243.5℃
285	H	Q_5	7-$CF(CF_3)_2$	
286	H	Q_5	8-$CF(CF_3)_2$	
287	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.209.8- 213.4℃ (R_3=$COCF_3$)
288	CH_3	Q_2	5-OCF_3	
289	CH_3	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5467(23.6℃)
290	CH_3	Q_2	7-OCF_3	
291	CH_3	Q_2	8-OCF_3	
292	C_2H_5	Q_2	5-OCF_3	

499

【００５９】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
293	C_2H_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5360(24.3℃)
294	C_2H_5	Q_2	7-OCF_3	
295	C_2H_5	Q_2	8-OCF_3	
296	$COCH_3$	Q_2	5-OCF_3	
297	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5478(24.1℃)
298	$COCH_3$	Q_2	7-OCF_3	
299	$COCH_3$	Q_2	8-OCF_3	
300	COC_2F_5	Q_2	5-OCF_3	
301	COC_2F_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5174(25.9℃)
302	COC_2F_5	Q_2	7-OCF_3	
303	COC_2F_5	Q_2	8-OCF_3	
304	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	5-OCF_3	
305	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	6-OCF_3	m.p.82.5℃
306	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	7-OCF_3	
307	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	8-OCF_3	
308	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	5-OCF_3	
309	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5325(24.2℃)
310	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	7-OCF_3	
311	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	8-OCF_3	
312	$CH(CH_3)_2$	Q_2	5-OCF_3	
313	$CH(CH_3)_2$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5370(24.8℃)
324	$CH(CH_3)_2$	Q_2	7-OCF_3	
315	$CH(CH_3)_2$	Q_2	8-OCF_3	

【００６０】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
316	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5380(26.0℃) (R_3=COC_2H_5)
317	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	5-Br	
318	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	6-Br	nD 1.5760(26.2℃)
319	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	7-Br	
320	$CH_2C{\equiv}CH$	Q_2	8-Br	
321	CH_2SCH_3	Q_2	5-Br	
322	CH_2SCH_3	Q_2	6-Br	nD 1.6030(27.0℃)
323	CH_2SCH_3	Q_2	7-Br	
324	CH_2SCH_3	Q_2	8-Br	
325	C_2H_5	Q_2	5-Br	
326	C_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5874(26.9℃)
327	C_2H_5	Q_2	7-Br	
328	C_2H_5	Q_2	8-Br	
329	i-C_3H_7	Q_2	5-Br	
330	i-C_3H_7	Q_2	6-Br	nD 1.4680(28.0℃)
331	i-C_3H_7	Q_2	7-Br	
332	i-C_3H_7	Q_2	8-Br	
333	$COCH_3$	Q_2	5-Br	
334	$COCH_3$	Q_2	6-Br	nD 1.5930(27.2℃)
335	$COCH_3$	Q_2	7-Br	
336	$COCH_3$	Q_2	8-Br	
337	COC_2H_5	Q_2	5-Br	

【００６１】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
338	COC_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5861(26.8℃)
339	COC_2H_5	Q_2	7-Br	
340	COC_2H_5	Q_2	8-Br	
341	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	5-Br	
342	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	6-Br	nD 1.5885(27.3℃)
343	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	7-Br	
344	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	8-Br	
345	CO-Ph	Q_2	5-Br	
346	CO-Ph	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
347	CO-Ph	Q_2	7-Br	
348	CO-Ph	Q_2	8-Br	
349	CH_3	Q_2	5-$OCHF_2$	
350	CH_3	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5613(27.9℃)
351	CH_3	Q_2	7-$OCHF_2$	
352	CH_3	Q_2	8-$OCHF_2$	
353	C_2H_5	Q_2	5-$OCHF_2$	
354	C_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5354(26.4℃)
355	C_2H_5	Q_2	7-$OCHF_2$	
356	C_2H_5	Q_2	8-$OCHF_2$	
357	n-C_8H_{17}	Q_2	5-$OCHF_2$	
358	n-C_8H_{17}	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5590(25.8℃)
359	n-C_8H_{17}	Q_2	7-$OCHF_2$	
360	n-C_8H_{17}	Q_2	8-OCHF	

【００６２】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
361	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q	5-$OCHF_2$	
362	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q	6-$OCHF_2$	nD 1.5917(27.9℃)
363	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q	7-$OCHF_2$	
364	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q	8-$OCHF_2$	
365	i-C_4H_9	Q	5-$OCHF_2$	
366	i-C_4H_9	Q	6-$OCHF_2$	nD 1.5557(26.4℃)
367	i-C_4H_9	Q	7-$OCHF_2$	
368	i-C_4H_9	Q	8-$OCHF_2$	
369	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q	5-$OCHF_2$	
370	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q	6-$OCHF_2$	nD 1.5668(26.5℃)
371	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q	7-$OCHF_2$	
372	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q	8-$OCHF_2$	
373	$COCH_3$	Q	5-$OCHF_2$	
374	$COCH_3$	Q	6-$OCHF_2$	nD 1.5503(26.1℃)
375	$COCH_3$	Q	7-$OCHF_2$	
376	$COCH_3$	Q	8-$OCHF_2$	
377	COC_2H_5	Q	5-$OCHF_2$	
378	COC_2H_5	Q	6-$OCHF_2$	nD 1.5470(26.2℃)
379	COC_2H_5	Q	7-$OCHF_2$	
380	COC_2H_5	Q	8-$OCHF_2$	
381	CO-i-C_3H_7	Q	5-$OCHF_2$	
382	CO-i-C_3H_7	Q	6-$OCHF_2$	nD 1.5186(28.3℃)
383	CO-i-C_3H_7	Q	7-$OCHF_2$	

【００６３】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
384	CO-i-C_3H_7	Q_2	8-$OCHF_2$	
385	CO-Q_{11}	Q_2	5-$OCHF_2$	
386	CO-Q_{11}	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.148-155 ℃
387	CO-Q_{11}	Q_2	7-$OCHF_2$	
388	CO-Q_{11}	Q_2	8-$OCHF_2$	
389	CH_3	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
390	CH_3	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5320(26.2℃)
391	CH_3	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
392	CH_3	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
393	C_2H_5	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
394	C_2H_5	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5239(26.7℃)
395	C_2H_5	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
396	C_2H_5	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
397	$SO_2C_2H_5$	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
398	$SO_2C_2H_5$	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5309(26.0℃)
399	$SO_2C_2H_5$	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
400	$SO_2C_2H_5$	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
401	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
402	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5486(26.2℃)
403	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
404	CH_2OCH_2-Ph	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
405	$COOC_4H_9$-t	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
406	$COOC_4H_9$-t	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5103(26.2℃)

504

【００６４】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
407	$COOC_4H_9$-t	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
408	$COOC_4H_9$-t	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
409	$COCH_3$	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
410	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5262(25.8℃)
411	$COCH_3$	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
412	$COCH_3$	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
413	COC_2H_5	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
414	COC_2H_5	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5266(25.9℃)
415	COC_2H_5	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
416	COC_2H_5	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
417	CH_2OCH_3	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
418	CH_2OCH_3	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5311(23.9℃)
419	CH_2OCH_3	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
420	CH_2OCH_3	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
421	CH_2-Q_2	Q_2	5-OCF_2CHF_2	
422	CH_2-Q_2	Q_2	6-OCF_2CHF_2	nD 1.5560(26.8℃)
423	CH_2-Q_2	Q_2	7-OCF_2CHF_2	
424	CH_2-Q_2	Q_2	8-OCF_2CHF_2	
425	SO_2CH_3	Q_2	5-C_3F_7-i	
426	SO_2CH_3	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.154-156 ℃
427	SO_2CH_3	Q_2	7-C_3F_7-i	
428	SO_2CH_3	Q_2	8-C_3F_7-i	
429	$SO_2C_2H_5$	Q_2	5-C_3F_7-i	

505

【００６５】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
430	$SO_2C_2H_5$	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.45-50 ℃
431	$SO_2C_2H_5$	Q_2	7-C_3F_7-i	
432	$SO_2C_2H_5$	Q_2	8-C_3F_7-i	
433	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	5-C_3F_7-i	
434	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.65-75 ℃
435	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	7-C_3F_7-i	
436	SO_2(4-CH_3-Ph)	Q_2	8-C_3F_7-i	
437	H	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.186-212 ℃ (塩酸塩)
438	H	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.168-208.8 ℃ (硫酸塩)
439	CO-Ph	Q_2	5-C_3F_7-i	
440	CO-Ph	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.161-165 ℃
441	CO-Ph	Q_2	7-C_3F_7-i	
442	CO-Ph	Q_2	8-C_3F_7-i	
443	COC_3H_7-i	Q_2	5-C_3F_7-i	
444	COC_3H_7-i	Q_2	6-C_3F_7-i	nD 1.5051(22.1℃)
445	COC_3H_7-i	Q_2	7-C_3F_7-i	
446	COC_3H_7-i	Q_2	8-C_3F_7-i	
447	$COCH_3$	Q_2	5-C_3F_7-i	
448	$COCH_3$	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.132-134 ℃
449	$COCH_3$	Q_2	7-C_3F_7-i	
450	$COCH_3$	Q_2	8-C_3F_7-i	

【００６６】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
451	COC_2H_5	Q_2	5-C_3F_7-i	
452	COC_2H_5	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.108 ℃
453	COC_2H_5	Q_2	7-C_3F_7-i	
454	COC_2H_5	Q_2	8-C_3F_7-i	
455	COC_3H_7-n	Q_2	5-C_3F_7-i	
456	COC_3H_7-n	Q_2	6-C_3F_7-i	nD 1.510(22.2 ℃)
457	COC_3H_7-n	Q_2	7-C_3F_7-i	
458	COC_3H_7-n	Q_2	8-C_3F_7-i	
459	CH_3	Q_2	5-C_3F_7-i	
460	CH_3	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.67-75 ℃
461	CH_3	Q_2	7-C_3F_7-i	
462	CH_3	Q_2	8-C_3F_7-i	
463	C_2H_5	Q_2	5-C_3F_7-i	
464	C_2H_5	Q_2	6-C_3F_7-i	m.p.98-102.4℃
465	C_2H_5	Q_2	7-C_3F_7-i	
466	C_2H_5	Q_2	8-C_3F_7-i	
467	COC_2H_5	Q_2	5-F	
468	COC_2H_5	Q_2	6-F	nD 1.5660(22.8℃)
469	COC_2H_5	Q_2	7-F	
470	COC_2H_5	Q_2	8-F	
471	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
472	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	m.p.168.7-171.9 ℃
473	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	

【００６７】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
474	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
475	COC_2H_5	Q_2	5-CF_3	
476	COC_2H_5	Q_2	6-CF_3	nD 1.5400(21.1℃)
477	COC_2H_5	Q_2	7-CF_3	
478	COC_2H_5	Q_2	8-CF_3	
479	H	Q_2	5-C_2F_5	
480	H	Q_2	6-C_2F_5	m.p.139-146 ℃
481	H	Q_2	7-C_2F_5	
482	H	Q_2	8-C_2F_5	
483	H	Q_2	6-Cl-7-$OCHF_2$	m.p.198-201 ℃

【００６８】

尚、第１表、第３表及び第４表中に略号は以下の置換基を示す。

c　：脂環式炭化水素基

Ｐｈ：フェニル基

Q_1 ：２－ピリジル基

Q_2 ：３－ピリジル基

Q_3 ：４－ピリジル基

Q_4 ：２－ピリジル－Ｎ－オキシド基

Q_5 ：３－ピリジル－Ｎ－オキシド基

Q_6 ：４－ピリジル－Ｎ－オキシド基

Q_7 ：チアゾール－５－イル基

Q_8 ：フラン－２－イル基

Q_9 ：１，３－ジオキソラン－２－イル基

Q_{10}：フタルイミドー１ーイル基

Q_{11}：チオフェンー２ーイル基

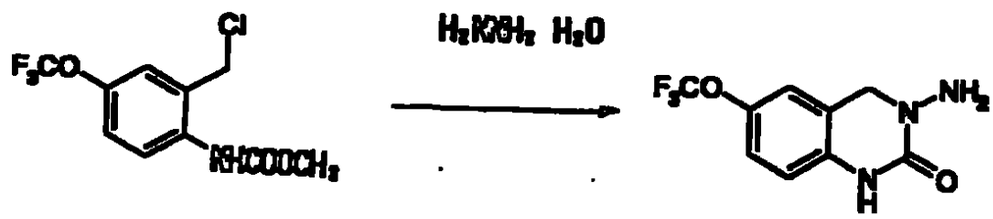
【００６９】

【実施例】

以下に本発明の代表的な実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

実施例１．３ーアミノー３，４ージヒドロー６ートリフルオロメトキシー２（１Ｈ）ーキナゾリノン（化合物No.II-30）の製造。

【化１１】



２．８４ｇ（０．０１モル）のメチル　２ークロロメチルー４ートリフルオロメトキシフェニルカーバメートを２０ｍｌのメタノールに溶解し、該溶液に５ｇ（０．１モル）の抱水ヒドラジンを加えて３時間加熱還流下に反応を行った。反応終了後、目的物を含む反応液から過剰の抱水ヒドラジン及び溶媒を減圧下に留去することにより粗生成物を得た。得られた粗生成物を９５％メタノールから再結晶することにより目的物を２．２２ｇ得た。

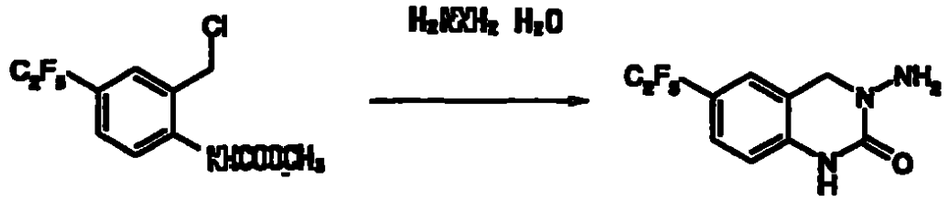
物性：ｍ．ｐ．１８１．５－１８４℃　　収率：９０％

【００７０】

実施例２．３ーアミノー３，４ージヒドロー６ーペンタフルオロエチルー２（１Ｈ）ーキナゾリノン（化合物No.II-18）の製造。

509
00515

【化１２】



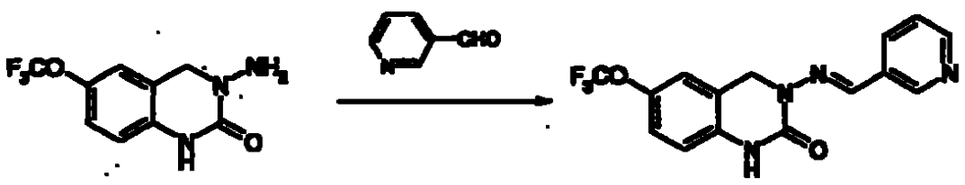
３．１８ｇ（０．０１モル）のメチル　２－クロロメチル－４－ペンタフルオロエチルフェニルカーバメートを２０ｍｌのメタノールに溶解し、該溶液に５ｇ（０．１モル）の抱水ヒドラジンを加えて３時間加熱還流下に反応を行った。反応終了後、目的物を含む反応液から過剰の抱水ヒドラジン及び溶媒を減圧下に留去することにより粗生成物を得、得られた粗生成物を９５％メタノールから再結晶することにより目的物を２．５３ｇ得た。

物性：ｍ．ｐ．１７８．４－１８３．５℃　　収率：９０％

【００７１】

実施例３．３－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．３０）の製造。

【化１３】



０．６２ｇ（２．５ミリモル）の３－アミノ－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）－キナゾリノン、０．２７ｇ（２．５ミリモル）のニコチン酸アルデヒド及び一滴の硫酸を１０ｍｌのメタノール中に加え、加熱還流下に３時間反応を行った。反応終了後、反応系中に析出した結晶を濾集して乾燥することにより目的物０．７６ｇを得た。

510

物性：m．p．２６４．５－２６６．０℃　　収率：９３％

【００７２】

実施例４．３－〔１－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－ペンタフルオロエチル－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．１８）の製造

【化１４】



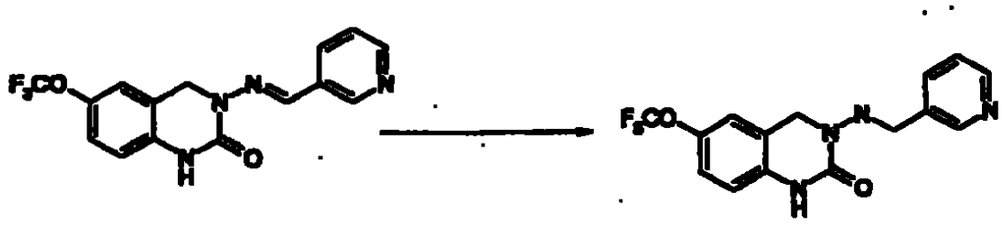
０．７４ｇ（２．５ミリモル）の３－アミノ－３，４－ジヒドロ－６－ペンタフルオロエチル－２（１Ｈ）キナゾリノン、０．２７ｇ（２．５ミリモル）のニコチン酸アルデヒド及び一滴の硫酸を１０ｍｌのメタノール中に加え、加熱還流下に３時間反応を行った。反応終了後、反応系中に析出した結晶を濾集して乾燥することにより目的物０．７８ｇを得た。

性：m．p．２９８．０－３００．０℃　　収率：８４％

【００７３】

実施例５．３－（３－ピリジルメチルアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．２０８）の製造。

【化１５】



３．３６ｇ（２．５ミリモル）の３－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３

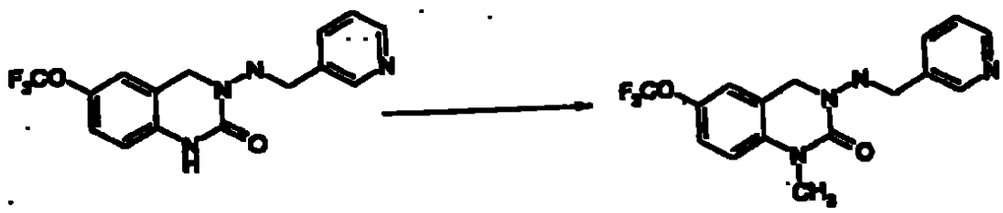
，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン及び０．２ｇのパラジウムカーボンを３０ｍｌの酢酸中に加え、３～４Ｋｇ／m^2 で水素添加を行った。理論量の水素が吸収された後、反応液から触媒を濾去し、溶媒を減圧下に留去し、残査に２０％水酸化ナトリウム水溶液を加えて中和し、目的物をクロロホルム（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（酢酸エチル－メタノール＝１０：１）で精製して目的物を２．５ｇ得た。

物性：ｎＤ　１．５２３３（２２．６° Ｃ）　収率７４％

【００７４】

実施例６．１－メチル－３－（３－ピリジルメチルアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．２８９）の製造。

【化１６】



０．６８ｇ（２．０ミリモル）の３－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノンを１０ｍｌのジメチルホルムアミドに溶解し、その溶液に０．０９ｇの水素化ナトリウム（６２．４％）を加え室温下に３０分反応を行い、次いで０．３４ｇのヨウ化メチルを加えて４時間反応を行った。反応終了後、反応液を氷水中に注ぎ、目的物を酢酸エチル（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（酢酸エチル－メタノール＝１０：１）で精製して目的　を２．５ｇ得た。

512

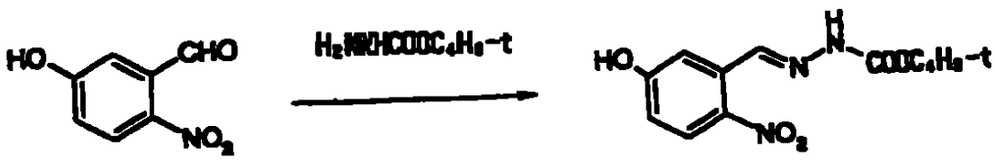
物性：ｎＤ　１．５４６７（２３．６° Ｃ）　収率５０％

【００７５】

実施例７．

７－１．ｔ－ブチル　２－（５－ヒドロキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸の製造。

【化１７】



３．３４ｇ（０．０２モル）の５－ヒドロキシ－２－ニトロベンズアルデヒドと２．６４ｇ（０．０２モル）のｔ－ブチル　カルバジン酸及び一滴の硫酸を２０ｍｌのメタノールに加えて３時間加熱還流下に反応を行った。

反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、析出した結晶を濾集し、目的物を５．０６ｇ得た。

^{1}H-NMR[($CDCl_3$/TMS、δ値(ppm)]

1.57(9H,s), 6.84(1H,d.d), 7.66(1H,d), 7.94(1H,d), 8.42(1H,br.s), 8.46(1H,s).

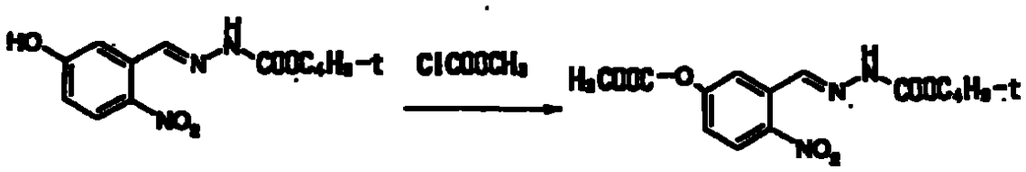
収率：９０％

【００７６】

７－２．ｔ－ブチル　２－（５－メトキシカルボニルオキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸の製造。

513

【化１８】



実施例７－１で得られたｔ－ブチル　２－（５－ヒドロキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸４．２２ｇ（０．０１５モル）と１．６７ｇ（０．０１６５モル）のトリエチルアミンを１５ｍｌのテトラヒドロフランに溶解し、０℃に冷却した。その溶液にクロロギ酸メチル１．５６ｇ（０．０１６５モル）を５ｍｌのテトラヒドロフランに溶解した溶液を１５分かけて滴下した。その後室温にて３時間反応を続けた。反応終了後、反応溶液を２０ｍｌの水中に注ぎ、目的物を酢酸エチル（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をヘキサン－エーテルで再結晶して目的物を４．６ｇ得た

^{1}H-NMR[($CDCl_3$/TMS、δ値(ppm)]

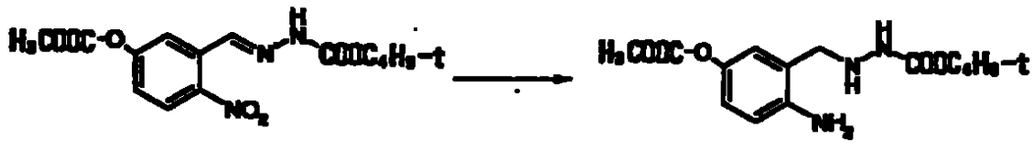
1.54(9H,s), 3.93(3H,s), 7.33(1H,d.d), 8.06(1H,d), 8.14(1H,d), 8.21(1H,br.s), 8.45(1H,s).

収率９０％

【００７７】

７－３．ｔ－ブチル　２－（２－アミノ－５－メトキシカルボニルオキシフェニルメチル）カルバジン酸の製造。

【化１９】



実施例７－２で得られたｔ－ブチル　２－（５－メトキシカルボニルオキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸４．４ｇ（０．０１３モル）と０．４ｇの５％パラジウムカーボンを５０ｍｌのメタノールに加え３～４Ｋｇ／ｍ^{2}で接触還元を行った。理論量の水素が吸収された後、反応溶液から触媒を濾去し、溶媒を減圧下に留去することにより目的物を４ｇ得た。

^{1}H-NMR[($CDCl_3$/TMS、δ値(ppm)]

1.46(9H,s)，3.87(3H,s)，3.96(2H,d)，4.6-5.0(3H,br.s)，

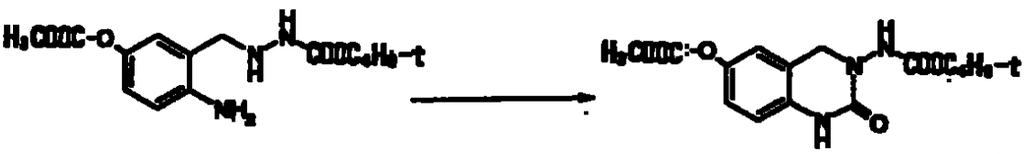
6.05(1H,br.s)，6.6-6.7(1H,m)，6.8-7.0(2H,m)．

収率：定量的

【００７８】

７－４．３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－メトキシカルボニルオキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノンの製造。

【化２０】



実施例７－３で得られたｔ－ブチル　２－（２－アミノ－５－メトキシカルボニルオキシフェニルメチル）カルバジン酸３．１ｇ（０．０１モル）及び２．６ｇ（０．０１モル）の１，１’－カルボニル－１Ｈ－イミダゾールを２０ｍｌの

テトラヒドロフラン中に溶解し、室温下に３時間反応を行った。反応終了後、反応溶液を２０ｍｌの水中に注ぎ、目的物を酢酸エチル（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をヘキサン－酢酸エチルで再結晶することにより目的物を２．１ｇ得た。

^{1}H-NMR[DMSO-d_6/TMS、δ値(ppm)]

1.42(9H,s), 3.80(3H,s), 4.81(2H,s), 6.5-6.7(3H,m), 9.01(1H,s), 9.15(1H,br.s).

収率：６０％

【００７９】

７－５．３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－ヒドロキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノンの製造。

【化２１】



実施例７－４で得られた３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－メトキシカルボニルオキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノン２．１ｇ（０．００６２モル）と０．６４ｇ（０．００６３モル）の炭酸ナトリウムを５０％メタノール２０ｍｌに加え、加熱還流下に３時間反応を行った。反応終了後、メタノールを減圧下に留去した。残査を濾集し、９５％メタノールより再結晶させ目的物を１．３ｇ得た。

^{1}H-NMR[DMSO-d_6/TMS、δ値(ppm)]

1.42(9,), 4.81(2,), 6.5-6.7(3H,s), 9.01(1H,s), 9.10(1H,s), 9.15(1H,br.s).

収率：７５％

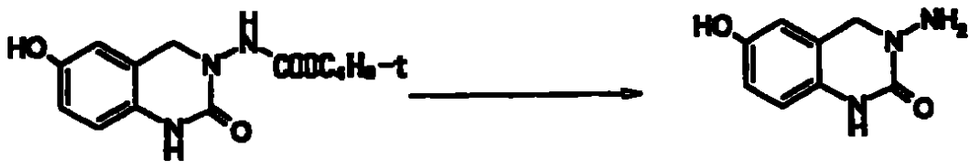
【００８０】

516

00522

７－６．３－アミノ－６－ヒドロキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．II-2）の製造。

【化２２】



実施例７－５で得られた３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－ヒドロキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノン１．３ｇ（０．００４６モル）を２０ｍｌのトリフルオロ酢酸に加え、室温下に３時間反応を行った。反応終了後、反応溶液に１０ｍｌのメタノールを加え、溶媒を減圧下に留去して得られた残渣をメタノールより再結晶させ目的物を０．７４ｇ得た。

^{1}H-NMR[DMSO-d_6/TMS、δ値(ppm)]

4.95(2H,s)，4.65(2H,s)，6.51-6.63(3H,m)，9.00(1H,s)，9.60(1H,br.s)．

収率９０％

【００８１】

本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は水稲、野菜、果樹、その他の作物及び花卉等を加害する各種農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等の害虫防除にに適しており、例えばチャノミドリヒメヨコバイ(Empoasca brassicae)、ツマグロヨコバイ（Nephotettix cincticeps）、トビイロウンカ（Nilaparvata lugens）、セジロウンカ（Sogatella furcifera）、ミカンキジラミ（Diaphorina citri）、ミカンコナジラミ（Dialeurodes citri)、タバココナジラミ（Bemisia tabaci）、オンシツコナジラミ（Trialeurodes vaporariorum）、ダイコンアブラムシ（Brevicoryne brassicae）、ワタアブラムシ(Aphis gossypii)、ムギクビレアブラムシ(Rhopalosiphum padi)、モモアカアブラムシ（Myzus persicae）、ツノロウムシ（Ceroplastes ceriferus）、ミカンワタカイガラムシ（Pulvinaria aurantii）、ミカンマルカイガラムシ（Pseudaonidia duplex）、

517

【００８２】

ナシマルカイガラムシ（Comstockaspis perniciosa）、ヤノネカイガラムシ（Unaspis yanonensis）アカヒゲハソミドリメクラガメ（Trigonotylus coelestialium）等の半翅目害虫、ミナミネグサレセンチュウ（Pratylenchus coffeae）、ジャガイモシストセンチュウ（Globoderarostochiensis）、ネコブセンチュウ（Meloidogyne sp.）、ミカンネセンチュウ（Tylenchulus semipenetrans）、ニセネグサレセンチュウ（Aphelenchusavenae）、ハガレセンチュウ（Aphelenchoides ritzemabosi）等のハリセンチュウ目害虫、イネアザミウマ（Stenchaetothrips biformis）等の総翅目害虫に対しても殺虫効果を有するものである。又、カイコガ（Bombyx mori），マメコバチ（Osmia cornifrons）のような有用昆虫に対しては影響が少なく安全性の高い殺虫剤と言える。尚、学名等は農林有害動物・昆虫名鑑1987年版（日本応用動物昆虫学会編）による。

【００８３】

本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分として含有する有害生物防除剤は水田、果樹、野菜、その他の作物及び花弁等を加害する前記害虫あるいは衛生害虫に対して顕著な殺虫効果を有するものであるので、害虫類の発生が予測される時期に合わせて、害虫類の発生前又は発生が確認された時点で水稲、果樹、野菜、その他の作物、花弁等の種子、根、茎、葉花等の植物体、水田水、又は土壌等へ、衛生害虫にあっては上記害虫の発生若しくは発生が予測される家屋内、家屋周辺の溝等に処理することにより本発明の殺虫剤の所期の効果が奏せられるものであるが、本発明はこれらの態様のみに限定されるものではない。

【００８４】

本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有害生物防除剤として使用する場合、農薬製剤上の常法に従い、使用上都合の良い形状に製剤して使用するのが一般的である。即ち、本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類は、これらを適当な不活性担体に、又は必要に応じて補助剤と一緒に、適当な割合に配合して溶解、分離、懸濁、混合、含浸、吸着若しくは付着させ、適宜の剤形、例え

518

ば懸濁剤、乳剤、液剤、水和剤、粒剤、粉剤、錠剤　に製剤して使用すれば良い。本発明で使用できる不活性担体としては固体又は液体の何れであっても良く、固体の担体になりうる材料としては、例えばダイズ粉、穀物粉、木粉、樹皮粉、鋸粉、タバコ茎粉、クルミ殻粉、ふすま、繊維素粉末、植物エキス抽出後の残渣、粉砕合成樹脂等の合成重合体、粘土類（例えばカオリン、ベントナイト、酸性白土等）、タルク類（例えばタルク、ピロフィライド等）、シリカ類（例えば珪藻土、珪砂、雲母、ホワイトカーボン〔含水微粉珪素、含水珪酸ともいわれる合成高分散珪酸で、製品により珪酸カルシウムを主成分として含むものもある。〕）、活性炭、イオウ粉末、軽石、焼成珪藻土、レンガ粉砕物、フライアッシュ、砂、炭酸カルシウム、燐酸カルシウム等の無機鉱物性粉末、硫安、燐安、硝安、尿素、塩安等の化学肥料、堆肥等を挙げることができ、これらは単独で若しくは二種以上の混合物の形で使用される。

【００８５】

液体の担体になりうる材料としては、それ自体溶媒能を有するものの他、溶媒能を有さずとも補助剤の助けにより有効成分化合物を分散させうることとなるものから選択され、例えば代表例として次に挙げる担体を例示できるが、これらは単独で若しくは２種以上の混合物の形で使用され、例えば水、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）、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、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等）、エーテル類（例えばエチルエーテル、ジオキサン、セロソルブ、ジプロピルエーテル、テトラヒドロフラン等）、脂肪族炭化水素類（例えばケロシン、鉱油等）、芳香族炭化水素類（例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、アルキルナフタレン等）、ハロゲン化炭化水素類（例えばジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素等）、エステル類（例えば酢酸エチル、ジイソプピルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等）、アミド類（例えばジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等）、ニトリル類（例えばアセトニトリル等）、ジメチルスルホキシド類等を挙げることができる。

【００８６】

他の補助剤としては次に例示する代表的な補助剤を挙げることができ、これらの補助剤は目的に応じて使用され、単独で、ある場合は二種以上の補助剤を併用し、又ある場合には全く補助剤を使用しないことも可能である。有効成分化合物の乳化、分散、可溶化及び／又は湿潤の目的のために界面活性剤が使用され、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、ポリオキシエチレン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン樹脂酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレエート、アルキルアリールスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸縮合物、リグニンスルホン酸塩、高級アルコール硫酸エステル等の界面活性剤を例示することができる。

【００８７】

又、有効成分化合物の分散安定化、粘着及び／又は結合の目的のために、次に例示する補助剤を使用することもでき、例えばカゼイン、ゼラチン、澱粉、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、松根油、糠油、ベントナイト、リグニンスルホン酸塩等の補助剤を使用することもできる。固体製品の流動性改良のために次に挙げる補助剤を使用することもでき、例えばワックス、ステアリン酸塩、燐酸アルキルエステル等の補助剤を使用できる。懸濁性製品の解こう剤として、例えばナフタレンスルホン酸縮合物、縮合燐酸塩等の補助剤を使用することもできる。消泡剤としては、例えばシリコーン油等の補助剤を使用することもできる。有効成分化合物の配合割合は必要に応じて加減することができ、例えば粉剤或いは粒剤とする場合は０．０１～５０重量％、又乳剤或いは水和剤とする場合も同様０．０１～５０重量％が適当である。

【００８８】

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は、各種害虫を防除するために、そのまま、又は水等で適宜希釈し、若しくは懸濁させた形で害虫防除に有効な量を当該害虫に、又は当該害虫の発生若しくは成育が好ましくない場所に適用して使用すればよい。本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）

誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生　防除剤の使用量は種々の因子、例えば目的、対象害虫、作物の生育状況、害虫の発生傾向、天候、環境条件、剤型、施用方法、施用場所、施用時期等により変動するが、有効成分化合物として１０アール当たり０．０１ｇ～５ｋｇの範囲から目的に応じて適宜選択すれば良い。

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤を更に防除対象害虫、防除適期の拡大のため、或いは薬量の低減をはかる目的で他の殺虫剤又は殺菌剤と混合して使用することも可能である。

以下に本発明の代表的な処方例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定され　ものではない。尚、処方例中、部とあるのは重量部を示す。

【００８９】

処方例１．

第３又は４表記載の化合物	５０部
キシレン	４０部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	１０部

以上を均一に混合溶解して乳剤とする。

処方例２．

第３又は４表記載の化合物	３部
クレー粉末	８２部
珪藻土粉末	１５部

以上を均一に混合粉砕して粉剤とする。

【００９０】

処方例３．

第３又は４表記載の化合物	５部
ベントナイトとクレーの混合粉末	９０部
リグニンスルホン酸カルシウム	５部

以上を均一に混合し、適量の水を加えて混練し、造粒、乾燥して粒剤とする。

処方例４．

第３又は４表記載の化合物	２０部
カオリンと合成高分散珪酸	７５部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルとアルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	５部

以上を均一に混合粉砕して水和剤とする。

【００９１】

試験例１．モモアカアブラムシ（Myzus persicae）に対する殺虫試験。

直径８ｃｍ、高さ８ｃｍのプラスチックポットにハクサイを植えてモモアカアブラムシを繁殖させ、それぞれのポットの寄生虫数を調査した。本発明の第３又は４表記載の化合物を有効成分とする薬剤を水に分散させて５００ppm の薬液に希釈し、該薬液をポット植えハクサイの茎葉に散布して風乾後、ポットを温室に保管し、薬剤散布後６日目にそれぞれのハクサイに寄生しているモモアカアブラムシの寄生虫数を調査し、下記の式より防除価を算出し、下記基準に従って判定を行った。

【００９２】

防除価＝１００－｛（Ｔ×Ｃａ）／（Ｔａ×Ｃ）｝×１００

Ｔａ：処理区の散布前寄生虫数

Ｔ：処理区の散布後寄生虫数

Ｃａ：無処理区の散布前寄生虫数

Ｃ：無処理区の散布後寄生虫数

判定基準．

Ａ・・・防除価１００％

Ｂ・・・防除価９９％～９０％

Ｃ・・・防除価８９％～８０％

Ｄ・・・防除価７９％～５０％

【００９３】

試験例２．トビイロウンカ（Nilaparvata lugens）に対する殺虫試験。

本発明の第３又は４表記載の化合物を有効成分とする薬剤を水に分散させて５

522

００ppm の薬液に希釈し、該薬液にイネ実生（品種：日本晴）を３０秒間浸漬し、風乾した後にガラス試験管に入れ、トビイロウンカ３令を各１０頭づつ接種した後に綿栓をし、接種８日後に生死虫数を調査し、死虫率を下記の式より算出し、試験例１の判定基準に従って判定を行った。

$$\text{補正死虫率（\%）} = \frac{\text{無処理区生存率} - \text{処理区生存率}}{\text{無処理区生存率}} \times 100$$

【００９４】

試験例３．オンシツコナジラミ（Trialeuroddes vaporariorum）に対する殺虫試験。

本発明の第３又は４表記載の化合物を水に分散させて１００ppm の薬液に希釈し、該薬液を２０ｍｌバイアルビンに水差ししたトマト葉に対してターンテーブル上でスプレーガンを用いて散布した。風乾後、処理葉をガラス円筒管に入れ、オンシツコナジラミ成虫を各２０頭接種した。処理後温室に置き、接種４日後に成虫数を調査し、試験例２と同様にして死虫率を算出し、試験例１と同様にして判定を行った。

【００９５】

試験例１、試験例２及び試験例３の結果より、試験例１のモモアカアブラムシに対しては化合物No. ６、１８、２２、２６、３０、１８４、２００、２０４及び２０８はＡの優れた殺虫効果を示し、試験例２のトビイロウンカに対しては化合物No. ６、１８、２２、２６、３０、１８４、２００、２０４及び２０８はＡの優れた殺虫効果を示し、試験例３のオンシツコナジラミに対しては化合物No. ６、１０、１４、１８、２２、２６、３０、３８、７８、８６、９０、１８４、２００、２０４及び２０８はＤ以上の殺虫効果を示し、特に化合物No. ６、１８、２２、２６、３０、１８４、２００、２０４及び２０８はＡの優れた殺虫効果を示すものである。

【００９６】

523
00529

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は、従来の類似の構造を有する化合物では殺虫効果を示さないオンシツコナジラミ類に対して低薬量で優れた殺虫効果を示すものであり、従来に比べて優れた有害生物防除剤である。

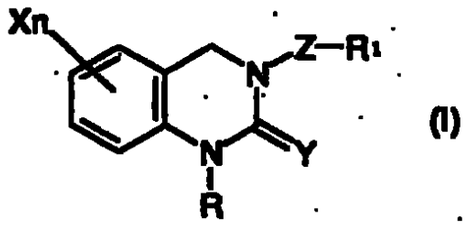
524

【　類名】　要約

【要約】

【解決手段】　一般式(I)：

【化１】



(I)

〔式中、ＲはＨ、ＯＨ、ホルミル、（ハロ）(C_1-C_{12})アルキル、ヒドロキシ（C_1-C_6)アルキル、(C_2-C_6)アルケニル、（置換）アミノ(C_1-C_6)アルキル、（置換）アミノカルボニル、（置換）フェニル(C_1-C_3)アルキル、（置換）フェニル(C_2-C_4)アルキニル(C_1-C_3)アルキル、１，３－ジオキソラン－２－イル(C_1-C_3)アルキル、フタルイミド(C_1-C_6)アルキル等、R_1はＯ、Ｓ、Ｎから選択される１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環等、ＹはＯ、Ｓ、Ｚは$-N=C(R_2)-$、$-N(R_3)-CH(R_2)-$（式中、R_2、R_3はＨ、(C_1-C_6)アルキル等）ＸはＢｒ、Ｉ、ＯＨ、ＣＮ、(C_1-C_6)アルキル、(C_2-C_6)アルケニル、（置換）アミノカルボニル、（置換）フェニルオキシ等、ｎは０～４〕で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、並びに有害生物防除剤。

【効果】　従来の類似の構造を有する化合物では殺虫効果を示さないオンシツコナジラミ類に対して低薬量で優れた殺虫効果を示す。

【選択図】　なし

平成 12 年登簿第 1152 号

525

証

嘱託人　目　連　勝　久　は、

本公証人の面前において別添文書に署名した。

よつて、これを認証する。

平成 12 年 11 月 22 日、本公証人役場において

東京都中央区日本橋兜町1番10号

東京法務局所属

公証人 渡部 正人

Masakazu Watanabe

総公証№ 035596 号

証　明

上記署名は、東京法務局所属公証人の署名に相違ないものであり、かつ、その押印は、真実のものであることを証明する。

平成 12 年 11 月 22 日

東京法務局長　櫻井　浩

CERTIFICATE

This is to certify that the signature affixed above has been provided by Notary, duly authorized by the Tokyo Legal Affairs Bureau and that the Official Seal appearing on the same is genuine.

Date NOV. 22.2000

Hiroshi SAKURAI
Director of the Tokyo Legal Affairs Bureau

526

~~00532~~

DECLARATION

I, Katsuhisa Meren of No. 1359-5-1-511, Yonamoto, Yachiyo-shi, Chiba-ken, Japan, do solemnly and sincerely declare that I well understand the Japanese language and English language and that the attached English version is full, true and faithful translation made by me this 22nd day of November, 2000 of the attached document.

And I made this solemn declaration conscientiously believing the same to be true.

Katsuhisa Meren

NOTARIAL CERTIFICATE

Registration No. 1151 of 2000

Subscribed and affirmed before me, on this 22nd day of November, 2000.

TOKYO LEGAL AFFAIRS BUREAU
NOTARY OFFICE
NO 1-10 NIHONBASHI KABUTO-CHO
CHUO-KU TOKYO JAPAN

Masakazu Watanabe

Masakazu Watanabe

Notary, attached to
The Tokyo Legal Affairs Bureau.
No. 1-10, Nihombashi, Kabuto-cho,
Chuo-ku, Tokyo, Japan.

E5585-03
(Colombia) 08523
527

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this ffice.

DATE OF APPLICATION: November 2, 1999

PATENT APPLICATION NO. 11-312297

APPLICANT(S): NIHON NOHYAKU CO., LTD.

Dated this 10th day of November , 2000 .

Kouzo OIKAWA
Commissioner
PATENT OFFICE

Certificate No. 2000-3093995

528

~~C033~~

11-312297

[Title of Document] Patent Application

[Reference Number] C7798

[Data of Submission] November 2, 1999

[Addressee] Commissioner
The Patent Office

[International Patent Classification] C07D 235/00
A01N 43/40

[Inventor]

[Address] 115-12, Joroku, Sakai-shi, Japan.

[Name] Masahiro UEHARA

[Inventor]

[Address] 1-28, Nishinoyamacho, Kawachinagano
-shi, Japan.

[Name] Masamitsu WATANABE

[Inventor]

[Address] 15-5, Midorigaokaminamimachi,
Kawachinagano-shi, Japan.

[Name] Masayuki KIMURA

[Inventor]

[Address] 1-28-305, Nishinoyamacho,
Kawachinagano-shi, Japan.

[Name] Masayuki MORIMOTO

529

11-312297

[Inventor]

[Address] 5-3, Koyodai-2-chome, Hashimoto-shi, Japan.

[Name] Masanori YOSHIDA

[Applicant]

[Applicant's ID Number] 0 0 0 2 3 2 6 2 3

[Name] NIHON NOHYAKU CO., LTD.

[Agent]

[Agent's ID Number] 1 0 0 0 6 8 6 1 8

[Patent Attorney]

[Name] Norio HANABUSA

[Telephone] 03-3291-9721

[Agent]

[Agent's ID Number] 1 0 0 0 9 3 1 9 3

[Patent Attorney]

[Name] Toshio NAKAMURA

[Agent]

[Agent's ID Number] 1 0 0 1 0 4 1 4 5

[Patent Attorney]

[Name] Yoshio MIYAZAKI

[Indicaiton on Fee]

[Prepayment Register Number] 018120

[Amount of Payment] ¥21,000-

530

~~16~~

11-312297

[List of Items Filed]

[Title of Article] Specification 1

[Title of Article] Abstract 1

[Proof: Required or not] Yes

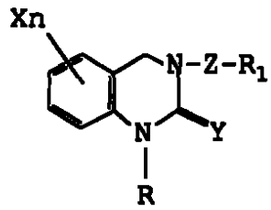
[Title of Document] Specification

[Title of the Invention] SUBSTITUTED AMINOQUINAZOLINONE (THIONE) DERIVATIVES OR SALTS THEREOF, INTERMEDIATES THEREOF, AND PEST CONTROLLERS AND A METHOD FOR USING THE SAME

[Scope of Claim for a Patent]

[Claim 1] A substituted aminoquinazolinone (thione) derivative represented by the general formula (I), or a salt thereof:

[Formula 1]



(I)

wherein R is a hydrogen atom; a hydroxyl group; a formyl group; a (C_{1-12})alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a hydroxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})-alkoxy group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})-alkoxy(C_{1-3})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a (C_{1-6})alkylthio(C_{1-3})alkyl group; a di(C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group in which the (C_{1-6})alkoxy groups may be the same or different; an

unsubstituted amino(C_{1-6})alkyl group; a substituted amino(C_{1-6})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a cyano(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a hydroxycarbonyl-(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})-alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a (C_{3-6})-cycloalkyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted

phenylthio group; a substituted phenylthio group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylsulfonyl group; a substituted phenylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a substituted phenyl(C_{1-6})alkylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxycarbonyl group; a substituted phenyloxycarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-

alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyloxy(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})-alkenyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl

groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; a 1,3-dioxolan-2-yl(C_{1-3})alkyl group; or a phthalimido(C_{1-6})alkyl group,

R_1 is a 5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 to 3 heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom, said heterocyclic ring may have 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups and (C_{1-6})alkoxy groups, and the nitrogen atom in the heterocyclic ring may form an N-oxide group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 is the same as defined above, and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group, a formyl group, a (C_{1-3})alkylcarbonyl group or a halo(C_{1-3})alkylcarbonyl

group),

X may be the same or different, and is a bromine atom; an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; a (C_{1-6})alkoxysulfonyl group; a substituted aminosulfonyl group having one or two substitutents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})-

alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo-(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})-alkylthio groups, (C_{1-6})alkoxysulfonyl groups and substituted aminosulfonyl groups having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4.

[Claim 2] A substituted aminoquinazolinone (thione)

derivative or a salt thereof according to claim 1, wherein R is a hydrogen atom; a formyl group; a (C_{1-12})-alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; an unsubstituted amino(C_{1-6})alkyl group; a substituted amino(C_{1-6})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a cyano(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a hydroxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a (C_{3-6})cycloalkyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-

$_{6}$)alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylthio group; a substituted phenylthio group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})-alkenyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; or a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups,

R_1 is a 5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 to 3 heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom, said

heterocyclic ring may have 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups and (C_{1-6})alkoxy groups, and the nitrogen atom in the heterocyclic ring may form an N-oxide group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom or a (C_{1-6})alkyl group, and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group, a formyl group, a (C_{1-3})alkylcarbonyl group or a halo(C_{1-3})-alkylcarbonyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom; an iodine atom; a hydroxyl group; a (C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a halo(C_{1-8})alkyl group, a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-

$_6$)alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})-alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4.

[Claim 3] A substituted aminoquinazolinone (thione)

derivative or a salt thereof according to claim 2, wherein R is a hydrogen atom; a formyl group; a (C_{1-12})-alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a(C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})-alkyl group; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group; a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; or a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})

$_6$)alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups, R_1 is a pyridyl group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

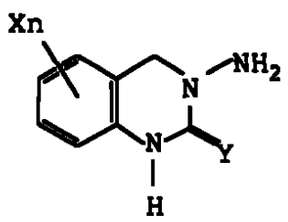
(wherein R_2 is a hydrogen atom or a (C_{1-6})alkyl group, and R_3 is a hydrogen atom or a (C_{1-6})alkyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom; an iodine atom; a hydroxyl group; a (C_{1-6})-alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a halo(C_{1-8})alkyl group, a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the

same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4.

[Claim 4] A compound represented by the general formula (II),

[Formula 2]



(II)

wherein X may be the same or different, and is a bromine atom, an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{1-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group; a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})-alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl

groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups, an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; or a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_1-C_6)alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; n is an integer of 0 to 4; and Y is an oxygen atom or a sulfur atom.

[Claim 5] A pest controller comprising as an active ingredient a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or a salt thereof set forth in any one of claims 1 to 3.

[Claim 6] A pest controller comprising as active ingredients a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or a salt thereof set forth in any one of Claims 1 to 3, and one or two or more of other agricultural chemicals.

[Claim 7] A method for controlling pests which

comprises applying a pest controller comprising as an active ingredient a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or salt thereof set forth in any one of claims 1 to 3, to objective crops or soil.

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Technical Field Pertinent to the Invention]

The present invention relates to substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives or salts thereof, intermediates thereof for preparing the same, pest controllers and a method for using the same.

[0002]

[Related Prior Art]

Japanese Patent Unexamined Publication, JP-A-8-325239 discloses that aminoquinazolinone derivatives are useful as pest controllers.

[0003]

[Problem to be solved by the Invention]

As a consequence of investigation earnestly conducted for finding a novel pest controller, the present inventors found that compounds of the present invention, having the substituents in the phenyl group which is belonging to the quinazolinone ring, possess the same or better insecticidal effects at low dosage as compared with compounds of Examples disclosed in the above-mentioned JP-A-8-325239. Paticularly the compounds of the present invention possess sufficient

insecticidal effects against whiteflies under consideration in the agricultural and horticultural fields, consequently the present inventors have accomplished the present invention.

The substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives or salts thereof represented by the general formula (I) and the compounds represented by the general formula (II) which are intermediates for preparing the derivatives of the general formula (I) are novel compounds which have not been known in any prior art literature. Furthermore, pest controllers containing, as the active ingredient, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative represented by the general formula (I) or salts thereof possess excellent insecticidal effects against various insects at low dosage as compared with conventional pest controllers.

[0004]

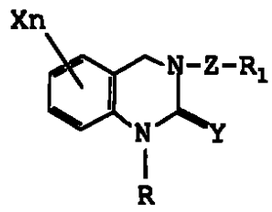
[Means for Solving Problem]

The present inventors have earnestly conducted investigation on the aminoquinazolinone (thione) derivatives for developing a novel pest controller having expanded insceticidal spectrum. Finally, the inventors have found the fact that novel aminoquinazolinone derivatives having bromine atom, iodine atom, perfluoroalkyl group, perfluoroalkoxy group or the like in the quinazoline ring possess quite excellent insecticidal activities as pest controllers.

[0005]

The present invention relates to substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives represented by the general formula (I), or salts thereof:

[Formula 3]



(I)

[where R is a hydrogen atom; a hydroxyl group; a formyl group; a (C_{1-12})alkyl group; a halo(C_{1-6})alkyl group; a hydroxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})-alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkoxy(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a (C_{1-6})alkylthio(C_{1-3})alkyl group; a di(C_{1-6})alkoxy(C_{1-3})alkyl group in which the (C_{1-6})alkoxy groups may be the same or different; an unsubstituted amino(C_{1-6})alkyl group;

[0006]

a substituted amino(C_{1-6})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a cyano(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-}

$_6$)alkylcarbonyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; a hydroxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxy-carbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a (C_{3-6})cycloalkyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylcarbonyl group; a substituted phenylcarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups;

[0007]

an unsubstituted phenylthio group; a substituted phenylthio group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups;

$_6$)alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenylsulfonyl group; a substituted phenylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-6})alkyl-sulfonyl group; a substituted phenyl(C_{1-6})alkylsulfonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxycarbonyl group;

[0008]

a substituted phenyloxycarbonyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy-(C_{1-3})alkyl group, a substituted phenyloxy(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may

be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group, a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups;

[0009]

an unsubstituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; an unsubstituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups,

halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups and (C_{1-2})alkylenedioxy groups; a 1,3-dioxolan-2-yl(C_{1-3})alkyl group; or a phthalimido(C_{1-6})alkyl group,

[0010]

R_1 is a 5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 to 3 heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom, said heterocyclic ring may have 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups and (C_{1-6})alkoxy groups, and the nitrogen atom in the heterocyclic ring may form an N-oxide group,

Y is an oxygen atom or a sulfur atom,

Z is

$$-N=C(R_2)-$$

(wherein R_2 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or a halo(C_{1-6})alkyl group), or

[0011]

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 is as defined above, and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group, a formyl group, a (C_{1-3})-alkylcarbonyl group or a halo(C_{1-3})alkylcarbonyl group),

X may be the same or different, and is a bromine atom, an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{2-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group;

[0012]

a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group; an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; a (C_{1-6})alkoxysulfonyl group; a substituted aminosulfonyl group having one or two substitutents which may be the same or different and are selected

from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups,

[0013]

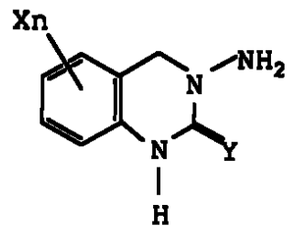
(C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups, halo(C_{1-6})alkylthio groups, (C_{1-6})alkoxysulfonyl groups and a substituted aminosulfonyl groups having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})

$_{6}$)alkylthio groups; and n is an integer of 0 to 4], pest controllers containing the substituted amino-quinazolinone (thione) derivative or salts thereof as the active ingredient, and a method for using the pest controllers.

[0014]

The present invention also relates to intermediate compounds for producing the above-mentioned derivatives, represented by the general formula (II):

[Formula 4]



(II)

[wherein, X may be the same or different and is a bromine atom, an iodine atom; a hydroxyl group; a cyano group; a (C_{1-6})alkyl group; a halo(C_{1-10})alkyl group; a (C_{2-6})alkenyl group; a halo(C_{1-6})alkenyl group; a (C_{2-6})alkynyl group; a (C_{1-6})alkoxy group; a halo(C_{1-6})alkoxy group; a (C_{1-6})alkylthio group; a halo(C_{1-6})alkylthio group; a (C_{1-6})alkylsulfinyl group; a halo(C_{1-6})-alkylsulfinyl group; a (C_{1-6})alkylsulfonyl group; a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl groups;

[0015]

a carboxyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group;

an unsubstituted aminocarbonyl group; a substituted aminocarbonyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a carboxy(C_{1-6})alkyl group; a (C_{1-6})alkoxycarbonyl(C_{1-3})alkyl group; an unsubstituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted aminocarbonyl(C_{1-3})alkyl group having one or two substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of (C_{1-6})alkyl groups, (C_{2-6})alkenyl groups and (C_{2-6})alkynyl groups; a sulfonic acid group; a sulfonic acid ester group; a sulfonamide group having a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})-alkenyl group or a (C_{2-6})alkynyl group on the nitrogen atom; an unsubstituted phenyl group; a substituted phenyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups;

[0016]

an unsubstituted phenyl(C_{1-3})alkyl group; a substituted phenyl(C_{1-3})alkyl group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})-

alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})-alkylthio groups; an unsubstituted phenyloxy group; a substituted phenyloxy group having on the ring 1 to 5 substituents which may be the same or different and are selected from the group consisting of halogen atoms, nitro groups, cyano groups, (C_{1-6})alkyl groups, halo(C_{1-6})alkyl groups, (C_{1-6})alkoxy groups, halo(C_{1-6})alkoxy groups, (C_{1-6})alkylthio groups and halo(C_{1-6})alkylthio groups; n is an integer of 0 to 4; and Y is an oxygen atom or a sulfur atom].

[0017]

[Mode for Carrying Out the Invention]

In the definitions of each substituents of the substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives of the general formula (I) of the present invention, the "halogen atom" means a chlorine atom, a bromine atom, an iodine atom or a fluorine atom. The term "(C_{1-12})" means 1 to 12 carbon atoms. The term "(C_{1-12})alkyl group" means a linear or branched alkyl group of 1 to 12 carbon atoms, for example an alkyl group such as methyl, ethyl, n-propyl, i-propyl, n-butyl, i-butyl, s-butyl, t-butyl, n-pentyl, n-hexyl, n-heptyl, n-octyl, n-nonyl, n-decyl, n-undecyl, n-dodecyl and the like. The term "halo(C_{1-10})alkyl group" means a substituted and linear or branched alkyl group of 1 to 10 carbon atoms having, as the substituent(s), one or more halogen atoms which may be the same or different, for example trifluoromethyl group, pentafluoroethyl group,

heptafluoropropyl group and the like. The term "(C_{2-6})alkenyl group" means a linear or branched alkenyl group of 2 to 6 carbon atoms having one or more double bonds. The term "halo(C_{2-6})alkenyl group" means a substituted linear or branched alkenyl group of 2 to 6 carbon atoms having, as the substituent(s), one or more halogen atoms which may be the same or different. The term "(C_{2-6})alkynyl group" means a linear or branched alkynyl group of 2 to 6 carbon atoms having one or more triple bonds.

[0018]

The term "halo(C_{2-6})alkynyl group" means a substituted linear or branched alkynyl group of 2 to 6 carbon atoms having, as the substituent(s), one or more halogen atoms which may be the same or different. The term "5- or 6-membered heterocyclic ring having 1 or more heteroatoms which may be the same or different and are selected from the group consisting of oxygen atom, sulfur atom and nitrogen atom" means any 5- or 6-membered heterocyclic ring for example, furan, thiophene, pyrrole, oxazole, thiazole, pyrazole, imidazole, 1,2,3-thiadiazole, 1,2,4-thiadiazole, 1,2,5-thiadiazole, 1,3,4-thiadiazole, 1,2,4-triazole, pyridine, pyridazine, pyrimidine, pyrazine, pyrrolidine, piperidine, morpholine, thiomorpholine, dithiolane, dithian, piperazine, dioxolan, imidazolidine, tetrahydrofuran and the like.

[0019]

The substituents of the substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives represented by the general formula (I) are preferably as follows: R is a hydrogen atom, a formyl group, a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group, a (C_{2-6})alkynyl group, a (C_{1-6})-alkylcarbonyl group, a (C_{1-6})alkoxycarbonyl group, a (C_{1-6})alkylthio group, a halo(C_{1-6})alkylthio group, a phenylcarbonyl group, a substituted phenylcarbonyl group, a substituted phenyl(C_{1-6})alkyl group, a substituted phenyl(C_{2-6})alkenyl group or a substituted phenyl(C_{2-6})alkynyl group; R_1 is a pyridyl group, particularly 3-pyridyl group; Y is an oxygen atom or a sulfur atom; Z is a group of the formula,

$$-N(R_3)-CH(R_2)-$$

(wherein R_2 and R_3 are each a hydrogen atom or a (C_{1-6})-alkyl group); X is a bromine atom, an iodine atom, a halo(C_{1-6})alkyl group, a halo(C_{1-6})alkoxy group, a halo(C_{1-6})alkylthio group, a halo(C_{1-6})alkylsulfinyl group, a halo(C_{1-6})alkylsulfonyl group or a phenyl group); and n may be preferably an integer of 0 to 2.

As the salt of the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the formula (I), there can be exemplified salts with mineral acids such as hydrochloric acid, sulfuric acid, nitric acid, etc., and salts with alkali metal atoms such as sodium,

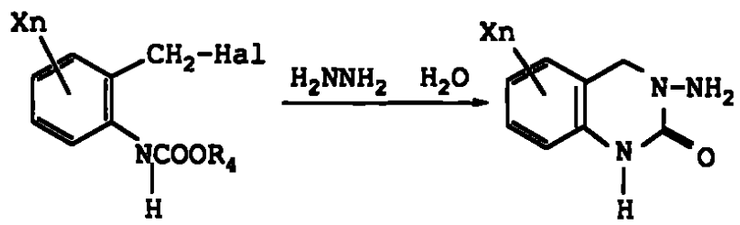
potassium, etc.

[0020]

The compound of the formula (II), an intermediate used for producing the substituted amino-quinazolinone (thione) derivative of the formula (I) can be produced by either of the following processes.

Production process 1.

[Formula 5]



(III) (II-1)

wherein X and n are the same as defined above, R_4 is a (C_{1-6})alkyl group, and Hal is a halogen atom.

[0021]

A compound of the general formula (II-1) can be produced by reacting a compound of the above general formula (III) with hydrazine hydrate in the presence of an inert solvent.

As the inert solvent usable in this reaction, any inert solvent may be used so long as it does not markedly inhibit the progress of the reaction. There can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; halogenated hydrocarbons such

as dichloromethane, chloroform, carbon tetrachloride, etc.; aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, monochlorobenzene etc.; nitriles such as acetonitrile, benzonitrile, etc.; cellosolves such as methyl cellosolve, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; amides such as dimethylformamide, dimethylacetamide, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, 1-methyl-2-pyrrolidone, etc.; dimethyl sulfoxide; sulfolane; and water. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

[0022]

The reaction temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 90℃.

Since the reaction is an equimolar reaction, it is sufficient that the compound of the general formula (III) and hydrazine hydrate are used in equimolar amounts, though either of these reactants may be used in excess. It is preferable to use hydrazine hydrate in excess.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the desired compound is isolated from the reaction mixture containing the desired compound by a conventional

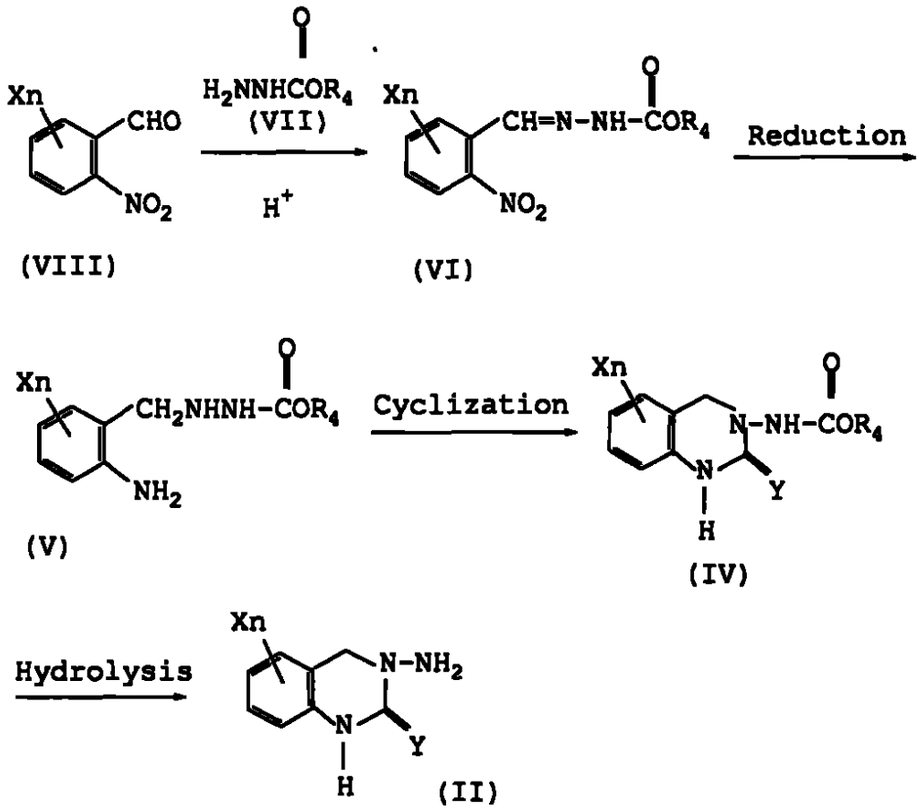
method, and if necessary, purified by recrystallization, dry column chromatography, etc., whereby the desired compound can be produced.

The compound of the above general formula (III) can be produced according to Collect. Czech. Chem. Commn. (Vol. 55), 752 (1990).

[0023]

Production process 2.

[Formula 6]



wherein R_4, X, Y and n are the same as defined above.

[0024]

2-1. General formula (VIII) → general formula (VI)

A compound of the general formula (VI) can be produced by reacting a compound of the general formula (VIII) with a compound of the general formula (VII) in the presence of an inert solvent and a catalyst.

As the inert solvent usable in this reaction, there can be used, for example, the inert solvents exemplified in production process 1. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

As the catalyst, there can be used inorganic acids (e.g. hydrochloric acid and sulfuric acid), acetic acid, p-toluenesulfonic acid, etc. The amount of the catalyst used may be such that the catalyst is present in the reaction system in an amount of 0.001 wt% to 10 wt% based on the weight of the compound of the general formula (VIII).

[0025]

Since the reaction is an equimolar reaction, it is sufficient that the compound of the general formula (VIII) and the compound of the general formula (VII) are used in equimolar amounts, though either of these reactants may be used in excess.

The reaction temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 90℃.

Although the reaction time is varied

depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

The compound of the general formula (VIII) may be a commercially available one or may be produced by nitrating a substituted benzaldehyde. Further, the compound of the formula (VIII) can be produced according to the method described in Journal of Chemical Society, 1927, pp. 2375-2378.

[0026]

2-2. General formula (VI) → general formula (V)

A compound of the general formula (V) can be produced by reducing the compound of the general formula (VI) with a reducing agent or by catalytic reduction in the presence or absence of an inert solvent.

As the reducing agent, there can be used, for example, metal hydrides such as, $NaBH_3CN$, $LiBH_3CN$, etc. and reducing agents such as BH_3, etc. The amount of the reducing agent used may be properly chosen in the range of 1 mole to excess moles (in terms of the number of moles of hydride as reducing agent) per mole of the compound of the general formula (VI).

As the inert solvent usable in the reaction,

any inert solvent may be used so long as it does not markedly inhibit the progress of the reaction. There can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; cellosolves such as methyl cellosolve, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; esters such as ethyl acetate, etc.; amides such as dimethylformamide, dimethylacetamide, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, 1-methyl-2-pyrrolidone, etc.; dimethyl sulfoxide; sulfolane; and water. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

[0027]

The reaction is carried out under acidic or neutral conditions in the pH range of 1 to 7, preferably 4 to 6. It is sufficient that the pH is adjusted by adding hydrogen chloride, hydrogen bromide or the like to the reaction system.

The reaction temperature is chosen in the range of 0℃ to the boiling point of the solvent, and ranges preferably from room temperature to 70℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

When catalytic reduction is carried out as the reduction reaction, it is carried out according to, for example, the method described in Shin Jikken Kagaku Koza, Vol. 15-II, Maruzen Co., Ltd. As the inert solvent usable in this case, there can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; cellosolves such as methyl cellosolve, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; hydrocarbons such as hexane, cyclohexane, etc.; fatty acids or esters thereof, such as acetic acid, ethyl acetate, etc.; amides such as dimethylformamide, dimethylacetamide, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, 1-methyl-2-pyrrolidone, etc.; and ureas such as tetramethylurea, etc. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

[0028]

As the catalyst used in the reduction reaction, there can be exemplified typical catalysts for catalytic reduction, such as palladium-carbon, palladium black, platinum dioxide, Raney nickel, etc. The amount of the catalyst used may be properly chosen in the range of 0.1% molar equivalent to 5% molar equivalent, preferably 0.5% molar equivalent to 1% molar equivalent, relative to the compound of the general formula (VI).

The hydrogen pressure in the reaction ranges from atmospheric pressure to 300 atmospheres, preferably from atmospheric pressure to 50 atmospheres.

There action temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 70℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in the case of using the reducing agent, whereby the desired compound can be produced.

[0029]

2-3. General formula (V) → general formula (IV)

A compound of the general formula (IV) can be produced by reacting the compound of the general formula (V) with 1,1'-carbonylbis-1H-imidazole (CDI), an alkoxycarbonyl halide, phosgene or thiophosgen in the presence of an inert solvent and in the presence or absence of a base.

As the inert solvent usable in the reaction, there can be exemplified ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc., and aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, etc. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

As the base, an inorganic base or an organic

base may be used, and there can be exemplified inorganic bases such as hydroxides and carbonates of alkali metals and alkaline earth metals [e.g. sodium hydroxide, potassium hydroxide, magnesium hydroxide, sodium carbonate, sodium hydrogencarbonate and potassium carbonate], and organic bases such as triethylamine and pyridine. When CDI is used as a reactant, the reaction can be carried out without a base.

[0030]

The amount of the base used is 2 moles or more per mole of the compound of the general formula (V).

The reaction temperature may be properly chosen in the range of room temperature to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 100℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

[0031]

2-4. General formula (IV) → general formula (II)

A compound of the general formula (II) can be

produced by hydrolyzing the compound of the general formula (IV) under basic condition in the presence of an inert solvent.

As the inert solvent usable in this reaction, there can be exemplified alcohols such as methanol, ethanol, propanol, butanol, etc.; aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, etc.; ethers such as diethyl ether, diglyme, dioxane, tetrahydrofuran, etc.; and water. These inert solvents may be used singly or as a mixture thereof.

As the base, there can be used hydroxides of alkali metals or alkaline earth metals, such as sodium hydroxide, potassium hydroxide, magnesium hydroxide, etc.

Depending on the alkyl group for R_4, the reaction can be carried out also under acidic conditions by using an organic or inorganic acid such as trifluoroacetic acid or hydrochloric acid.

The reaction temperature may be properly chosen in the range of 0℃ to the boiling point of the inert solvent used.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

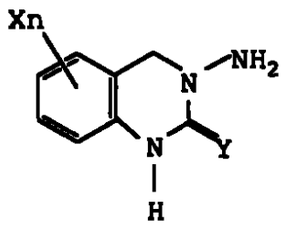
After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1,

whereby the desired compound can be produced.

[0032]

Typical examples of the compounds of the general formula (II) produced by production processes 1 and 2 are given in Table 1 but they are not intended in any way to limit the scope of the present invention.

[Formula 7]



(II)

[0033]

Table 1

No.	Xn	Y	Physical property
II-1	5-OH	O	Crystal
II-2	6-OH	O	Crystal
II-3	7-OH	O	Crystal
II-4	8-OH	O	Crystal
II-5	5-Br	O	
II-6	6-Br	O	Crystal
II-7	7-Br	O	
II-8	8-Br	O	
II-9	5-I	O	
II-10	6-I	O	m.p.202.3-205.0 ℃
II-11	7-I	O	
II-12	8-I	O	
II-13	5-CF_3	O	
II-14	6-CF_3	O	m.p.155-157.7 ℃
II-15	7-CF_3	O	
II-16	8-CF_3	O	

[0034]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-17	5-C_2F_5	O	
II-18	6-C_2F_5	O	m.p.178.4-183.5 ℃
II-19	7-C_2F_5	O	
II-20	8-C_2F_5	O	
II-21	5-i-C_3F_7	O	
II-22	6-i-C_3F_7	O	m.p.147.6-149.5 ℃
II-23	7-i-C_3F_7	O	
II-24	8-i-C_3F_7	O	
II-25	5-n-C_6F_{13}	O	
II-26	6-n-C_6F_{13}	O	Crystal
II-27	7-n-C_6F_{13}	O	
II-28	8-n-C_6F_{13}	O	
II-29	5-OCF_3	O	
II-30	6-OCF_3	O	m.p.181.5-184.0 ℃
II-31	7-OCF_3	O	
II-32	8-OCF_3	O	
II-33	5-OCH_2-Ph	O	Crystal
II-34	6-OCH_2-Ph	O	
II-35	7-OCH_2-Ph	O	
II-36	8-OCH_2-Ph	O	Crystal
II-37	5-$OCHF_2$	O	
II-38	6-$OCHF_2$	O	Crystal
II-39	7-$OCHF_2$	O	

[0035]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-40	8-$OCHF_2$	O	
II-41	5-SCF_3	O	
II-42	6-SCF_3	O	
II-43	7-SCF_3	O	
II-44	8-SCF_3	O	
II-45	5-SC_2F_5	O	
II-46	6-SC_2F_5	O	
II-47	7-SC_2F_5	O	
II-48	8-SC_2F_5	O	
II-49	5-S-i-C_3F_7	O	
II-50	6-S-i-C_3F_7	O	
II-51	7-S-i-C_3F_7	O	
II-52	8-S-i-C_3F_7	O	
II-53	5-$SOCF_3$	O	
II-54	6-$SOCF_3$	O	
II-55	7-$SOCF_3$	O	
II-56	8-$SOCF_3$	O	
II-57	5-SO_2CF_3	O	
II-58	6-SO_2CF_3	O	
II-59	7-SO_2CF_3	O	
II-60	8-SO_2CF_3	O	
II-61	5-SOC_2F_5	O	
II-62	6-SOC_2F_5	O	

[0036]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-63	7-SOC_3F_8	O	
II-64	8-SOC_2F_5	O	
II-65	5-$SO_2C_2F_5$	O	
II-66	6-$SO_2C_2F_5$	O	
II-67	7-$SO_2C_2F_5$	O	
II-68	8-$SO_2C_2F_5$	O	
II-69	5-SO-i-C_3F_7	O	
II-70	6-SO-i-C_3F_7	O	
II-71	7-SO-i-C_3F_7	O	
II-72	8-SO-i-C_3F_7	O	
II-73	5-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-74	6-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-75	7-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-76	8-SO_2-i-C_3F_7	O	
II-77	5-$COOC_2H_5$	O	
II-78	6-$COOC_2H_5$	O	
II-79	7-$COOC_2H_5$	O	
II-80	8-$COOC_2H_5$	O	
II-81	5-COOH	O	
II-82	6-COOH	O	
II-83	7-COOH	O	
II-84	8-COOH	O	
II-85	5-Ph	O	

[0037]

Table 1 (Continued)

No.	Xn	Y	Physical property
II-86	5-Ph	O	
II-87	5-Ph	O	
II-88	5-Ph	O	
II-89	5-(p-Cl-Ph)	O	
II-90	6-(p-Cl-Ph)	O	
II-91	7-(p-Cl-Ph)	O	
II-92	8-(p-Cl-Ph)	O	
II-93	5-O-Ph	O	
II-94	6-O-Ph	O	
II-95	7-O-Ph	O	
II-96	8-O-Ph	O	
II-97	5-n-C_4H_9	O	
II-98	6-n-C_4H_9	O	
II-99	7-n-C_4H_9	O	
II-100	8-n-C_4H_9	O	
II-101	5-OCF_2CHF_2	O	
II-102	6-OCF_2CHF_2	O	m.p.194.8 ℃
II-103	7-OCF_2CHF_2	O	
II-104	8-OCF_2CHF_2	o	

[0038]

Table 2 shows NMR data of the following compounds listed in Table 1.

Table 2

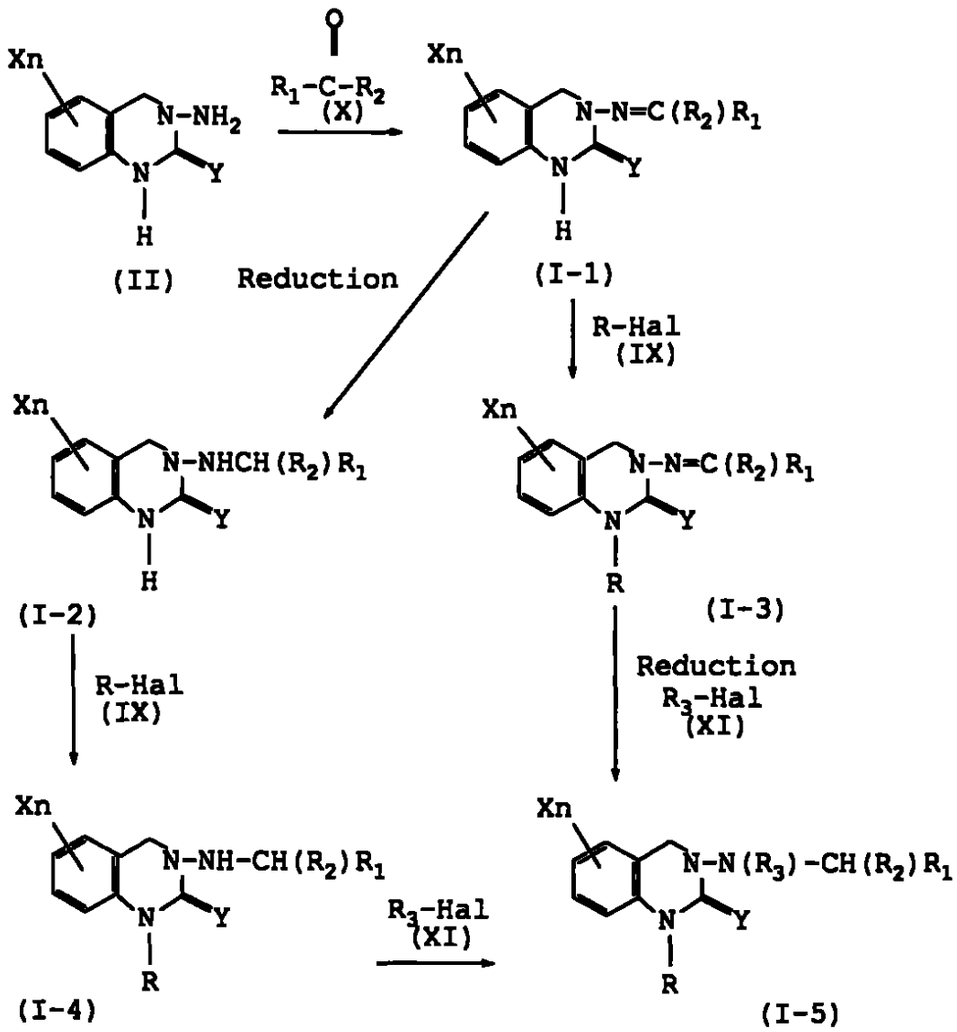
No.	^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]
II-1	4.36(2H,s), 4.65(2H,br), 6.20(1H,d), 6.34(1H,d), 6.89(1H,t), 9.12(1H,br), 9.62(1H,s).
II-2	4.45(2H,s), 4.65(2H,s), 6.51-6.63(3H,m), 9.00(1H,s), 9.60(1H,brs).
II-3	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.23-6.35(2H,m), 6.85(1H,d), 9.05(1H,s). 9.63(1H,s)
II-4	4.46(2H,s), 4.65(2H,s), 6.57(1H,d), 6.64-6.74(2H,m), 7.95(1H,d), 9.60(1H,brs).
II-6	4.48(2H,s), 4.66(2H,s), 6.74(1H,m), 7.18(1H,m), 7.30(1H,m), 9.43(1H,s).
II-18	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.95(1H,d), 7.40-7.50(2H,m), 9.83(1H,s).
II-26	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.94(1H,d), 7.43-7.48(2H,m), 9.74(1H,s).
II-33	4.48(2H,s), 4.69(2H,s), 5.00(2H,s), 6.30(1H,d), 6.45(1H,d), 7.05(1H,t), 7.25-7.40(6H,m).
II-36	4.48(2H,s), 4.68(2H,s), 5.19(2H,s), 6.71(1H,d), 6.82(1H,t), 6.92(1H,d), 7.30-7.40(3H,m), 7.51(2H,d), 8.18(1H,s).
II-38	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.76-6.79(1H,d,J=8.7Hz), 6.95-7.00(2H,m), 6.80-7.30(1H,t,J=7.46), 9.37(1H,s).

[0039]

Typical examples of process for producing the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention are schematically shown below.

Production process 3.

[Formula 8]



wherein R, R_1, R_2, R_3, X, n, Y and Hal are the same as defined above except that each of R and R_3 is not a hydrogen atom.

[0040]

3-1. General formula (II) → general formula (I-1)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-1) can be produced by reacting a compound of the general formula (II) with a compound of the general formula (X) in the presence of an inert solvent and a catalyst.

In the case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 2-1.

3-2. General formula (I-1) → general formula (I-3)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-3) can be produced by reacting the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-1) with a compound of the general formula (IX) in the presence or absence of an inert solvent and a base.

[0041]

As the inert solvent usable in this reaction, there can be used, for example, the inert solvents exemplified in production process 1.

As the base, an inorganic base or an organic base may be used. In addition to the inorganic or organic bases exemplified in production process 2-3,

there can also be used alkoxides such as CH_3ONa, C_2H_5ONa, $t\text{-}C_4H_9ONa$, CH_3OK, C_2H_5OK, $t\text{-}C_4H_9OK$, etc., and alkali metal hydrides such as NaH, etc. The amount of the base used may be properly chosen in the range of 1 mole to excess moles per mole of the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-1).

The reaction temperature may be chosen in the range of 0℃ to the boiling point of the inert solvent used, and ranges preferably from room temperature to 70℃.

Although the reaction time is varied depending on the scale of reaction, the reaction temperature, etc., it ranges from several minutes to 48 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture containing the desired compound is treated in the same manner as in production process 1, whereby the desired compound can be produced.

[0042]

3-3. General formula (I-1) → general formula (I-2)

In the case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 2-2.

3-4. General formula (I-2) → General formula (I-4)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-4) can be produced by reacting the aminoquinazolinone (thione) derivative of the

general formula (I-2) with the compound of the formula (IX) in the presence or absence of an inert solvent and a base.

In the case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 3-2.

3-5. General formula (I-4) → general formula (I-5)

An aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-5) can be produced by reacting the aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I-4) with a compound of the general formula (XI) in the presence or absence of an inert solvent and a base.

In case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 3-2.

3-6. General formula (I-3) → general formula (I-5)

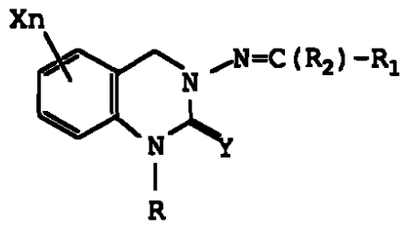
In case of this reaction, the desired compound can be produced in a manner similar to that described in production process 2-2.

582

[0043]

Typical examples of the aminoquinazolinone (thione) derivative of the formula (I) or salt thereof of the present invention are given in Tables 3 and 4. However, the scope of the present invention is not restricted by these examples.

[Formula 9]



[0044]

Table 3 (R_1=Q_2, R_2=H, Y=O)

No.	R	Xn	Physical property
1	H	5-OH	m.p.293-295 ℃
2	H	6-OH	
3	H	7-OH	
4	H	8-OH	m.p.>300℃
5	H	5-Br	
6	H	6-Br	m.p.>300℃
7	H	7-Br	
8	H	8-Br	
9	H	5-I	
10	H	6-I	m.p.>300℃
11	H	7-I	
12	H	8-I	

583

00589

[0045]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
13	H	5-CF_3	
14	H	6-CF_3	m.p.227.6-286.7 ℃
15	H	7-CF_3	
16	H	8-CF_3	
17	H	5-C_2F_5	
18	H	6-C_2F_5	m.p.298-300 ℃
19	H	7-C_2F_5	
20	H	8-C_2F_5	
21	H	5-i-C_3F_7	
22	H	6-i-C_3F_7	m.p.>300℃
23	H	7-i-C_3F_7	
24	H	8-i-C_3F_7	
25	H	5-n-C_6F_{13}	
26	H	6-n-C_6F_{13}	m.p.>300℃
27	H	7-n-C_6F_{13}	
28	H	8-n-C_6F_{13}	
29	H	5-OCF_3	
30	H	6-OCF_3	m.p.264.0-266.0 ℃
31	H	7-OCF_3	
32	H	8-OCF_3	
33	H	5-CH_2-Ph	
34	H	6-CH_2-Ph	
35	H	7-CH_2-Ph	

584

~~00590~~

[0046]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
36	H	8-CH_3-Ph	
37	H	5-$OCHF_2$	
38	H	6-$OCHF_2$	m.p.260.1-264.5 ℃
39	H	7-$OCHF_2$	
40	H	8-$OCHF_2$	
41	H	5-SCF_3	
42	H	6-SCF_3	
43	H	7-SCF_3	
44	H	8-SCF_3	
45	H	5-SC_2F_5	
46	H	6-SC_2F_5	
47	H	7-SC_2F_5	
48	H	8-SC_2F_5	
49	H	5-S-i-C_3F_7	
50	H	6-S-i-C_3F_7	
51	H	7-S-i-C_3F_7	
52	H	8-S-i-C_3F_7	
53	H	5-$SOCF_3$	
54	H	6-$SOCF_3$	
55	H	7-$SOCF_3$	
56	H	8-$SOCF_3$	
57	H	5-SO_2CF_3	
58	H	6-SO_2CF_3	

[0047]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
59	H	7-SO_2CF_3	
60	H	8-SO_2CF_3	
61	H	5-SOC_2F_5	
62	H	6-SOC_2F_5	
63	H	7-SOC_2F_5	
64	H	8-SOC_2F_5	
65	H	5-$SO_2C_2F_5$	
66	H	6-$SO_2C_2F_5$	
67	H	7-$SO_2C_2F_5$	
68	H	8-$SO_2C_2F_5$	
69	H	5-SO-i-C_3F_7	
70	H	6-SO-i-C_3F_7	
71	H	7-SO-i-C_3F_7	
72	H	8-SO-i-C_3F_7	
73	H	5-SO_2-i-C_3F_7	
74	H	6-SO_2-i-C_3F_7	
75	H	7-SO_2-i-C_3F_7	
76	H	8-SO_2-i-C_3F_7	
77	H	5-$COOC_2H_5$	
78	H	6-$COOC_2H_5$	m.p.274-278 ℃
79	H	7-$COOC_2H_5$	
80	H	8-$COOC_2H_5$	
81	H	5-COOH	

[0048]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
82	H	6-COOH	
83	H	7-COOH	
84	H	8-COOH	
85	H	5-Ph	
86	H	6-Ph	m.p.250.9-253.8 ℃
87	H	7-Ph	
88	H	8-Ph	
89	H	5-(4-Cl-Ph)	
90	H	6-(4-Cl-Ph)	m.p.276-278 ℃
91	H	7-(4-Cl-Ph)	
92	H	8-(4-Cl-Ph)	
93	H	5-O-Ph	
94	H	6-O-Ph	
95	H	7-O-Ph	
96	H	8-O-Ph	
97	H	5-n-C_4H_9	
98	H	6-n-C_4H_9	
99	H	7-n-C_4H_9	
100	H	8-n-C_4H_9	
101	CH_3	6-I	m.p.181.4-185.3
102	C_2H_5	6-I	m.p.191.5-194.5
103	n-C_5H_{11}	6-I	m.p.1.4126(28.5)
104	$CH_2C{\equiv}CH$	6-I	m.p.214-217

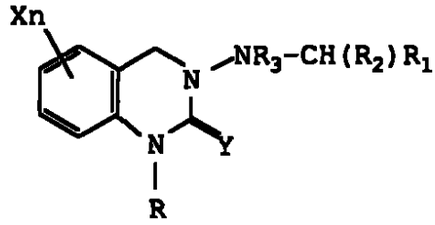
[0049]

Table 3 (Continued)

No.	R	Xn	Physical property
105	$CH_2CH=CH_2$	6-I	m.p.162-164
106	$CH_2OC_2H_5$	6-I	m.p.111.3-161.7
107	CH_2(4-Cl-pH)	6-I	m.p.146-149
108	$COCH_3$	6-I	m.p.186-188
109	COC_2H_5	6-I	m.p.135-139
110	SO_2CH_3	6-I	m.p.174-181
111	SO_2Ph	6-I	m.p.199-205
112	H	6-OCF_2CHF_2	m.p.251.6-263.3
113	CO-c-C_3H_7	6-I	m.p.172-175

[0050]

[Formula 10]



[0051]

Table 4 (R_2=H, Y=O, R_3=H, except for the group noted specially.)

No	R	R_2	Xn	Physical property
114	H	Q_2	5-OH	
115	H	Q_2	6-OH	m.p.223-225 ℃
116	H	Q_2	7-OH	m.p.258-259 ℃
117	H	Q_2	8-OH	m.p.177-180 ℃
118	H	Q_2	5-Br	
119	H	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
120	H	Q_2	7-Br	
121	H	Q_2	8-Br	
122	H	Q_2	5-I	
123	H	Q_2	6-I	
124	H	Q_2	7-I	
125	H	Q_2	8-I	
126	H	Q_2	5-CF_3	
127	H	Q_2	6-CF_3	m.p.191.0-193.1 ℃
128	H	Q_2	7-CF_3	
129	H	Q_2	8-CF_3	
130	H	Q_2	5-C_2F_5	
131	H	Q_2	6-C_2F_5	
132	H	Q_2	7-C_2F_5	
133	H	Q_2	8-C_2F_5	
134	H	Q_2	5-i-C_3F_7	
135	H	Q_2	6-i-C_3F_7	m.p.159.4-161.0 ℃
136	H	Q_2	7-i-C_3F_7	

[0052]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
137	H	Q_2	8-i-C_3F_7	
138	H	Q_2	5-n-C_6F_{13}	
139	H	Q_2	6-n-C_6F_{13}	m.p.153.9-164.7 ℃
140	H	Q_2	7-n-C_6F_{13}	
141	H	Q_2	8-n-C_6F_{13}	
142	H	Q_2	5-OCF_3	
143	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5233(22.6℃)
144	H	Q_2	7-OCF_3	
145	H	Q_2	8-OCF_3	
146	H	Q_2	5-CH_2-Ph	
147	H	Q_2	6-CH_2-Ph	
148	H	Q_2	7-CH_2-Ph	
149	H	Q_2	8-CH_2-Ph	
150	H	Q_2	5-$OCHF_2$	
151	H	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.129.7-130.2 ℃
152	H	Q_2	7-$OCHF_2$	
153	H	Q_2	8-$OCHF_2$	
154	H	Q_2	5-SCF_3	
155	H	Q_2	6-SCF_3	
156	H	Q_2	7-SCF_3	
157	H	Q_2	8-SCF_3	
158	H	Q_2	5-SC_2F_5	
159	H	Q_2	6-SC_2F_5	

590

~~00596~~

[0053]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
160	H	Q_2	7-SC_2F_5	
161	H	Q_2	8-SC_2F_5	
162	H	Q_2	5-S-i-C_3F_7	
163	H	Q_2	6-S-i-C_3F_7	
164	H	Q_2	7-S-i-C_3F_7	
165	H	Q_2	8-S-i-C_3F_7	
166	H	Q_2	5-$SOCF_3$	
167	H	Q_2	6-$SOCF_3$	
168	H	Q_2	7-$SOCF_3$	
169	H	Q_2	8-$SOCF_3$	
170	H	Q_2	5-SO_2CF_3	
171	H	Q_2	6-SO_2CF_3	
172	H	Q_2	7-SO_2CF_3	
173	H	Q_2	8-SO_2CF_3	
174	H	Q_2	5-SOC_2F_5	
175	H	Q_2	6-SOC_2F_5	
176	H	Q_2	7-SOC_2F_5	
177	H	Q_2	8-SOC_2F_5	
178	H	Q_2	5-$SO_2C_2F_5$	
179	H	Q_2	6-$SO_2C_2F_5$	
180	H	Q_2	7-$SO_2C_2F_5$	
181	H	Q_2	8-$SO_2C_2F_5$	
182	H	Q_2	5-SO-i-C_3F_7	

[0054]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
183	H	Q_2	6-SO-i-C_3F_7	
184	H	Q_2	7-SO-i-C_3F_7	
185	H	Q_2	8-SO-i-C_3F_7	
186	H	Q_2	5-SO_2-i-C_3F_7	
187	H	Q_2	6-SO_2-i-C_3F_7	
188	H	Q_2	7-SO_2-i-C_3F_7	
189	H	Q_2	8-SO_2-i-C_3F_7	
190	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
191	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	
192	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	
193	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
194	H	Q_2	5-COOH	
195	H	Q_2	6-COOH	
196	H	Q_2	7-COOH	
197	H	Q_2	8-COOH	
198	H	Q_2	5-Ph	
199	H	Q_2	6-Ph	
200	H	Q_2	7-Ph	
201	H	Q_2	8-Ph	
202	H	Q_2	5-(4-Cl-Ph)	
203	H	Q_2	6-(4-Cl-Ph)	
204	H	Q_2	7-(4-Cl-Ph)	
205	H	Q_2	8-(4-Cl-Ph)	

[0055]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
206	H	Q_2	5-O-Ph	
207	H	Q_2	6-O-Ph	
208	H	Q_2	7-O-Ph	
209	H	Q_2	8-O-Ph	
210	H	Q_2	5-n-C_4H_9	
211	H	Q_2	6-n-C_4H_9	
212	H	Q_2	7-n-C_4H_9	
213	H	Q_2	8-n-C_4H_9	
214	H	Q_2	6-OCF_2CHF_2	m.p.168.7-173.9 ℃
215	H	Q_8	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.239.7-243.5℃
216	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.209.9-213.4℃ (R_3=$COCF_3$)
217	CH_3	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5467(23.6℃)
218	C_2H_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5360(24.3℃)
219	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5478(24.1℃)
220	COC_2F_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5174(25.9℃)
221	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	6-OCF_3	m.p.92.5℃
222	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5325(24.2℃)
223	$CH(CH_3)_2$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5370(24.8℃)
224	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5380(26.0℃) (R_3=COC_2H_5)
225	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-Br	nD 1.5760(26.2℃)
226	CH_2SCH_3	Q_2	6-Br	nD 1.6030(27.0℃)

[0056]

Table 4 (Continued)

No	R	R_2	Xn	Physical property
227	C_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5974(26.9℃)
228	i-C_3H_7	Q_2	6-Br	nD 1.4680(28.0℃)
229	$COCH_3$	Q_2	6-Br	nD 1.5930(27.2℃)
230	COC_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5861(26.8℃)
231	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	6-Br	nD 1.5885(27.3℃)
232	CO-Ph	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
233	CH_3	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5613(27.9℃)
234	C_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5354(26.4℃)
235	n-C_8H_{17}	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5590(25.8℃)
236	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5917(27.9℃)
237	i-C_4H_9	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5557(26.4℃)
238	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5668(26.5℃)
239	$COCH_3$	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5503(26.1℃)
240	COC_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5470(26.2℃)
241	CO-i-C_3H_7	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5196(28.3℃)
242	CO-Q_{11}	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.148-155℃
243	CH_3	Q_2	6-CF_2CHF_2	nD 1.5320(26.2℃)
244	C_2H_5	Q_2	6-CF_2CHF_2	nD 1.5239(26.7℃)

[0057]

The abbreviations in Table 3 and Table 4 stand for the following substituents;

c : aliphatic hydrocarbon group

Ph : phenyl group

Q_1 : 2-pyridyl group

Q_2 : 3-pyridyl group

Q_3 : 4-pyridyl group

Q_4 : 2-pyridyl-N-oxide group

Q_5 : 3-pyridyl-N-oxide group

Q_6 : 4-pyridyl-N-oxide group

Q_7 : thiazol-5-yl group

Q_8 : furan-2-yl group

Q_9 : 1,3-dioxolan-2-yl group

Q_{10} : phthalimid-1-yl group

Q_{11} : thiophene-2-yl group

[0058]

[EXAMPLES]

Typical examples of the present invention are described below, however the scope of the present invention is not restricted by said examples.

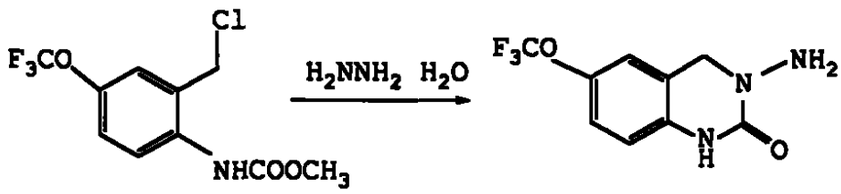
[0059]

Example 1

Preparation of 3-amino-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2-(1H)-quinazolinone (Compound No. II-30)

595

[Formula 11]



In 20 ml of methanol was dissolved 2.84 g (0.01 mole) of methyl 2-chloromethyl-4-trifluoromethoxyphenylcarbamate, then 5 g (0.1 mole) of hydrazine hydrate was added to the solution, and the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the remainder of hydrazine hydrate and the solvent were removed from the reaction mixture containing the desired compound by distillation under reduced pressure to obtain a crude product. The resulting crude product was recrystallized from 95% methanol to obtain 2.22 g of the desired compound.

Physical property: m.p. 181.5 - 184° C.

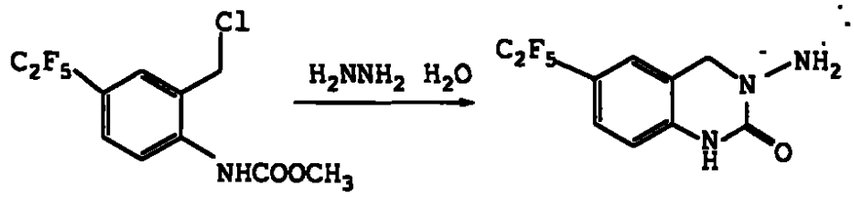
Yield: 90%.

[0060]

Example 2

Preparation of 3-amino-3,4-dihydro-6-pentafluoroethyl-2-(1H)-quinazolinone (Compound No. II-18)

[Formula 12]



In 20 ml of methanol was dissolved 3.18 g (0.01 mole) of methyl 2-chloromethyl-4-pentafluoroethylphenylcarbamate, then 5 g (0.1 mole) of hydrazine hydrate was added to this solution and the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the remainder of hydrazine hydrate and the solvent were removed from the reaction mixture containing the desired compound by distillation under reduced pressure to obtain a crude product. The resulting crude product was recrystallized from 95% methanol to obtain 2.53 g of the desired compound.

Physical property: m.p. 178.4 - 183.5° C.

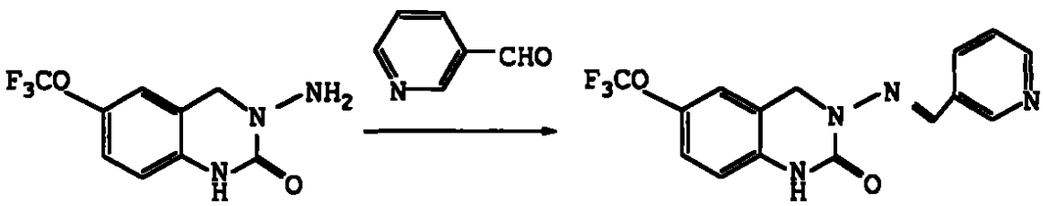
Yield: 90%.

[0061]

Example 3

Preparation of 3-(3-pyridylmethylideneamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 30)

[Formula 13]



To 10 ml of methanol were added 0.62 g (2.5 mmoles) of 3-amino-3,4-dihydro-6-trufluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone, 0.27 g (2.5 mmole) of nicotinaldehyde and 1 drop of sulfuric acid, then the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the crystals precipitated in the reaction system were collected by filtration and dried to obtain 0.76 g of the desired product.

Physical property: m.p. 264.5 - 266.0° C.

Yield: 93%.

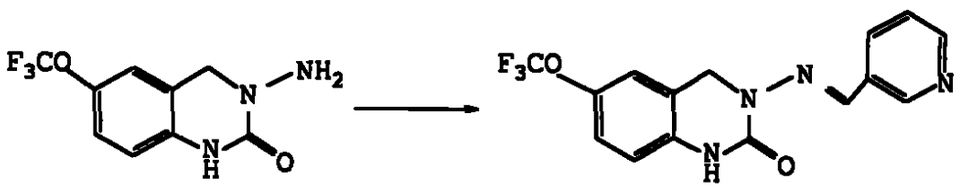
[0062]

Example 4

Preparation of 3-[1-(3-pyridylmethideneamino)-3,4-dihydro-6-pentafluoroethyl-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 18)

598

[Formula 14]



To 10 ml of methanol were added 0.74 g (2.5 mmols) of 3-amino-3,4-dihydro-6-pentafluoroethyl-2(1H)-quinazolinone, 0.27 g (2.5 mmols) of nicotinaldehyde and 1 drop of sulfuric acid, then the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the crystals precipitated in the reaction system were collected by filtration and dried to obtain 0.78 g of the desired product.

Physical property: m,p. 298.0 - 300.0° C.

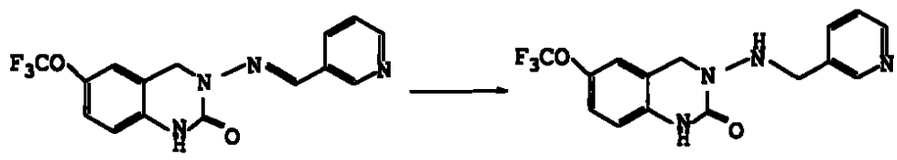
Yield: 84%.

[0063]

Example 5

Preparation of 3-(3-pyridylmethylamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 143)

[Formula 15]



To 30 ml of acetic acid were added 3.36 g (2.5 mmols) of 3-(3-pyridylmethylideneamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone and 0.2 g of 5% palladium-carbon, then the hydrogenation was conducted at 3 to 4 kg/m^2.

After the absorption of a theoretical amount of hydrogen, the catalyst was removed from the reaction mixture by filtration, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The residue was neutralized by adding a 20% aqueous sodium hydroxide solution and the desired compound was extracted with chloroform (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and an aqueous solution saturated with sodium chloride, dried over anhydrous magnesium sulfate, the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting crude product was purified by a silica gel column chromatography (ethyl acetate-methanol=10:1) to obtain 2.5 g of the desired compound.

Physical property: nD 1.5233 (22.6° C).

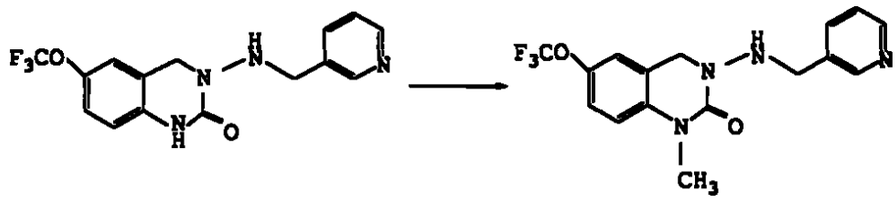
Yield: 74%.

[0064]

Example 6

Preparation of 1-methyl-3-(3-pyridylmethylamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone (Compound No. 217)

[Formula 16]



In 10 ml of dimethylformamide was dissolved 0.68 g (2.0 mmols) of 3-(3-pyridylmethylideneamino)-3,4-dihydro-6-trifluoromethoxy-2(1H)-quinazolinone. To the solution, 0.09 g of sodium hydride (62.4%) was added, and the reaction was conducted at room temperature for 30 minutes, then 0.34 g of methyl iodide was added thereto and the reaction was conducted for 4 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture was poured into an ice-water, the desired compound was extracted with ethyl acetate (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and saturated aqueous sodium chloride, dried over anhydrous magnesium sulfate, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting crude product was purified by a silica gel column chromatography (ethyl acetate-methanol=10:1) to obtain 2.5 g of the desired compound.

Physical property: nD 1.5467 (23.6℃).

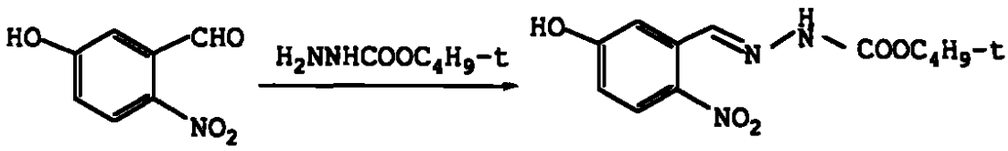
Yield: 50%.

[0065]

Example 7

7-1. Preparation of t-butyl 2-(5-hydroxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate

[Formula 17]



To 20 ml of methanol were added 3.34 g (0.02 mole) of 5-hydroxy-2-nitrobenzaldehyde, 2.64 g (0.02 mole) of t-butyl carbazate and 1 drop of sulfuric acid, and the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture was cooled to room temperature, the crystals precipitated were collected by filtration to obtain 5.06 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [$CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

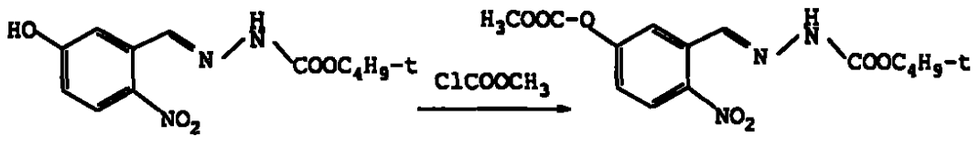
1.57 (9H, s), 6.84 (1H, d.d), 7.66 (1H, d), 7.94 (1H, d), 8.42 (1H, br.s), 8.46 (1H, s).

Yield: 90%.

[0066]

7-2. Preparation of t-butyl 2-(5-methoxycarbonyloxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate

[Formula 18]



In 15 ml of tetrahydrofuran were dissolved 4.22 g (0.015 mole) of t-butyl 2-(5-hydroxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate obtained in Example 7-1 and 1.67 g (0.0165 mole) of triethylamine, then the solution was cooled to 0° C. By taking 15 minutes, to the solution was added dropwise 1.56 g (0.0165 mole) of methyl chlorofomate dissolved in 5 ml of tetrahydrofuran, then the reaction was continued at room temperature for 3 hours. After completion of the reaction, the reaction mixture was poured into 20 ml of water, and the desired compound was extracted with ethyl acetate (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and saturated aqueous sodium chloride, dried over anhydrous magnesium sulfate, then the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting crude product was recrystallized from hexane-ether to obtain 4.6 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

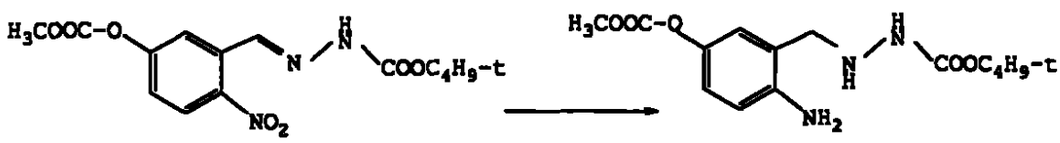
1.54 (9H, s), 3.93 (3H, s), 7.33 (1H, d.d), 8.06 (1H, d), 8.14 (1H, d), 8.21 (1H, br.s), 8.45 (1H, s).

Yield: 90%.

[0067]

7-3. Preparation of t-butyl 2-(2-amino-5-methoxycarbonyloxyphenylmethyl)carbazate

[Formula 19]



To 50 ml of methanol were added 4.4 g (0.013 mole) of t-butyl 2-(5-methoxycarbonyloxy-2-nitrophenylmethylidene)carbazate obtained in Example 7-2 and 0.4 g of 5% palladium-carbon, then the catalytic reduction was conducted at 3 - 4 kg/m^2.

After the absorption of a theoretical amount of hydrogen, the catalyst was removed from the reaction mixture by filtration, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure, to obtain 4 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [($CDCl_3$/TMS, δ (ppm)]

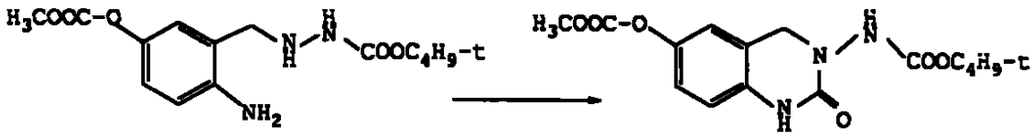
1.46 (9H, s), 3.87 (3H, s), 3.96 (2H, d), 4.6-5.0 (3H, br.s.), 6.05 (1H, br.s), 6.6-6.7 (1H, m), 6.8-7.0 (2H, m).

Yield: Quantitative.

[0068]

7-4. Preparation of 3-t-butoxycarbonylamino-6-methoxycarbonyloxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone

[Formula 20]



In 20 ml of tetrahydrofuran were dissolved 3.1 g (0.01 mole) of t-butyl 2-(2-amino-5-methoxycarbonyloxyphenylmethyl)carbazate obtained in Example 7-3 and 2.6 g (0.01 mole) of 1,1'-carbonyl-bis(1H-imidazole), the reaction was conducted at room temperature for 3 hours.

After completion of the reaction, the reaction mixture was poured into 20 ml of water, and the desired compound was extracted with ethyl acetate (20 ml X 3). The extracted solution was washed with water and saturated aqueous sodium chloride, dried over anhydrous magensium sulfate, and the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The crude product thus obtained was recrystallized from hexane-ethyl acetate, 2.1 g of the desired compound was obtained.

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

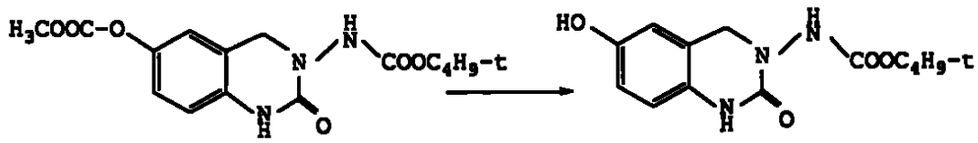
1.42 (9H, s), 3.80 (3H, s), 4.81 (2H, s), 6.5-6.7 (3H, m), 9.01 (1H, s), 9.15 (1H, br.s).

Yield: 60%.

[0069]

7-5. Preparation of 3-t-butoxycarbonylamino-6-hydroxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone

[Formula 21]



To 20 ml of 50% methanol were added 2.1 g (0.0062 mole) of 3-t-butoxycarbonylamino-6-methoxycarbonyloxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone obtained in Example 7-4 and 0.64 g (0.0063 mole) of sodium carbonate, then the reaction was conducted by heating under reflux for 3 hours.

After completion of the reaction, the methanol was removed by distillation under reduced pressure. To the residue thus obtained was added 10 ml of water and was collected by filtration, then recrystallization from 95% methanol to obtain 1.3 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

1.42 (9,), 4.81 (2,), 6.5-6.7 (3H, s),

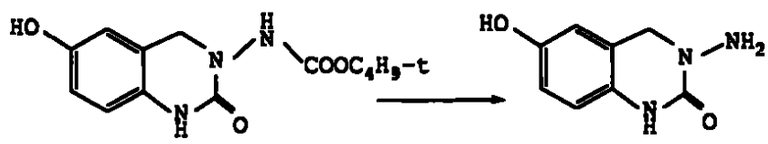
9.01 (1H, s), 9.10 (1H, s), 9.15 (1H, br.s).

Yield: 75%.

[0070]

7-6. Preparation of 3-amino-6-hydroxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone (Comound No. II-2)

[Formula 22]



To 20 ml of trifluoroacetic acid was added 1.3 g (0.0046 mole) of 3-t-butoxycarbonylamino-6-hydroxy-3,4-dihydro-2(1H)-quinazolinone obtained in Example 7-5, then the reaction was conducted at room temperature for 3 hours.

After completion of the reaction, 10 ml of methanol was added to the reaction mixture, the solvent was removed by distillation under reduced pressure. The resulting residue was recrystallized from methanol to obtain 0.74 g of the desired compound.

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ (ppm)]

4.95 (2H, s), 4.65 (2H, s), 6.51-6.63 (3H, m), 9.00 (1H, s), 9.60 (1H, br.s).

Yield: 90%.

[0071]

Pest controllers containing, as an active ingredient, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention are suitable for controlling various insect pests such as agricultural insect pests, forest insect pests, horticultural insect pests, stored grain insect pests, sanitary insect pests, nematodes, etc. They have an insecticidal effect also, for

example, on HEMIPTERA including tea green leafhopper (Empoasca brassicae), green rice leafhopper (Nephotettix cincticeps), brown rice planthopper (Nilaparvata lugens), whitebacked rice planthopper (Sogatella furcifera), citrus psylla (Diaphorina citri), citrus whitefly (Dialeurodes citri), sweetpotato whitefly (Bemisia tabaci), greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum), Cabbage aphid (Brevicoryne brassicae), Cotton aphid (Aphis gossypii), Wheat aphid (Rhopalosiphum padi), green peach aphid (Myzus persicae), Indian wax scale (Ceroplastes ceriferus), cottony citrus scale (Pulvinaria aurantii), camphor scale (Pseudaonidia duplex),

[0072]

San Jose scale (Comstockaspis perniciosa), arrowhead scale (Unaspis yanonensis), rice leaf bug (Trigonotylus colelestialium), etc., TYLENCHIDA including coffee root-lesion nematode (Pratylenchus coffeae), potato cyst nematode (Globodera rostochiensis), root-knot nematode (Meloidogyne sp.), citrus nematode (Tylenchulus semipenetrans), Aphelenchus sp. (Aphelenchus avenae), chrysanthemum foliar nematode (Aphelenchoides ritzemabosi), etc., and ORTHOPTERA including rice thrips (Stenchaetothrips biformis), etc.

Additionally, the pest controllers of the present invention perform less harmful effects against useful insects, for example, silkworm moths (Bombyx

mori), bean chalcid (Osmia cornifrons) and the like, thus they can be said as highly safety insecticides.

The zoological names and the like are in accordance with Applied Zoology and Entomology Society of Japan, "List of Agricultural and Forest Injurious Animals and Insects", published in 1987.

[0073]

The pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention has a marked control effect on the above-exemplified insect pests, sanitary pests, and/or nematodes, which are injurious to paddy fields, fruit trees, vegetables and other crops, and flowers and ornamental plants. Therefore, the desired effect of the insecticide of the present invention can be obtained by applying the insecticide to the paddy field water, paddy-rice plant, fuit trees, vegetables, other crops, seeds of flowers and ornamental plants, roots, stalks and leaves of plants, soil, etc., or to the inside of a house or ditches around a house, in which the above-exemplified sanitary insect pests injurious to men and beasts appear or are expected to appear. The application is carried out at a season at which the insect pests, sanitary pests or nematodes are expected to appear, before their appearance or at the time when their appearance is confirmed. The present invention however should not be limited to these embodiments.

[0074]

When the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention is used as a pest controller, the derivative or salt is generally prepared into conveniently usable forms according to an ordinary manner for preparation of agrochemicals.

That is, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention and, optionally, an adjuvant are blended with a suitable inert carrier in a proper proportion and prepared into a suitable preparation form such as a suspension, emulsifiable concentrate, soluble concentrate, wettable powder, granules, dust or tablets through dissolution, dispersion, suspension, mixing, impregnation, adsorption or sticking.

The inert carrier used in the present invention may be either solid or liquid. As the solid carrier, there can be exemplified soybean flour, cereal flour, wood flour, bark flour, saw dust, powdered tobacco stalks, powdered walnut shells, bran, powdered cellulose, extraction residue of vegetables, powdered synthetic polymers or resins, clays (e.g. kaolin, bentonite, and acid clay), talcs (e.g. talc and pyrophyllite), silica powders or flakes (e.g. diatomaceous earth, silica sand, mica and white carbon, i.e. synthetic, high-dispersion silicic acid, also

called finely divided hydrated silica or hydrated silicic acid, some of commercially available products contain calcium silicate as the major component), activated carbon, powdered sulfur, powdered pumice, calcined diatomaceous earth, ground brick, fly ash, sand, calcium carbonate powder, calcium phosphate powder and other inorganic or mineral powders, chemical fertilizers (e.g. ammonium sulfate, ammonium phosphate, ammonium nitrate, urea and ammonium chloride), and compost. These carriers may be used alone or as a mixture thereof.

[0075]

The liquid carrier is that which itself has solubility or which is without such solubility but is capable of dispersing an active ingredient with the aid of an adjuvant. The following are typical examples of the liquid carrier and can be used alone or as a mixture thereof. Water; alcohols such as methanol, ethanol, isopropanol, butanol and ethylene glycol; ketones such as acetone, methyl ethyl ketone, methyl isobutyl ketone, diisobutyl ketone and cyclohexanone; ethers such as ethyl ether, dioxane, cellosolve, dipropyl ether and tetrahydrofuran; aliphatic hydrocarbons such as kerosene and mineral oils; aromatic hydrocarbons such as benzene, toluene, xylene, solvent naphtha and alkylnaphthalenes; halogenated hydrocarbons such as dichloroethane, chloroform and carbon tetrachloride; esters such as ethyl cetate,

diisopropyl phthalate, dibutyl phthalate and dioctyl phthalate; amides such as dimethylformamide, diethylformamide and dimethylacetamide; nitriles such as acetonitrile; and dimethyl sulfoxide.

[0076]

The following are typical examples of the adjuvant, which are used depending upon purposes and used alone or in combination in some cases, or need not to be used at all.

To emulsify, disperse, dissolve and/or wet an active ingredient, a surfactant is used. As the surfactant, there can be exemplified polyoxyethylene alkyl ethers, polyoxyethylene alkylaryl ethers, polyoxyethylene higher fatty acid esters, polyoxyethylene resinates, polyoxyethylene sorbitan monolaurate, polyoxyethylene sorbitan monooleate, alkylarylsulfonates, naphthalenesulfonic acid condensation products, ligninsulfonates and higher alcohol sulfate esters.

[0077]

Further, to stabilize the dispersion of an active ingredient, tackify it and/or bind it, there may be used adjuvants such as casein, gelatin, starch, methyl cellulose, carboxymethyl cellulose, gum arabic, polyvinyl alcohols, turpentine, bran oil, bentonite and ligninsulfonates.

To improve the flowability of a solid product, there may be used adjuvants such as waxes,

stearates and alkyl phosphates.

Adjuvants such as naphthalenesulfonic acid condensation products and polycondensates of phosphates may be used as a peptizer for dispersible products.

Adjuvants such as silicon oils may also be used as a defoaming agent.

The content of the active ingredient may be varied as required. In dusts or granules, the suitable content thereof is from 0.01 to 50% by weight. In emulsifiable concentrates or flowable wettable powders, it is also from 0.01 to 50% by weight.

[0078]

The pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention is used to control a variety of insect pests in the following manner. That is, it is applied to the insect pests or a site where appearance or growth of the insect pests is undesirable, as it is or after being properly diluted with or suspended in water or the like, in an amount effective for control of the insect pests.

The applying dosage of the pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention is varied depending upon various factors such as a purpose, insect pests to be controlled, a growth state

of a plant, tendency of insect pests appearance, weather, environmental conditions, a preparation form, an application method, an application site and application time. It may be properly chosen in the range of 0.01 g to 5 kg (in terms of the active ingredient) per 10 ares depending upon purposes.

The pest controller containing as an active ingredient the substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention may be used in admixture with other insecticides or fungicides in order to expand both spectrum of controllable insect pest species and the period of time when effective applications are possible or to reduce the dosage.

Typical formulation examples and test examples of the present invention are described below but they should not be construed as limiting the scope of the invention.

In the formulation examples, parts are all by weight.

[0079]

Formulation Example 1

Each compound listed in Tables 3 and 4	50 parts
Xylene	40 parts
Mixture of polyoxyethylene nonylphenyl ether and calcium alkylbenzenesulfonate	10 parts

An emulsifiable concentrate was prepared by mixing uniformly the above ingredients to effect dissolution.

Formulation Example 2

Each compound listed in Tables 3 and 4	3 parts
Clay powder	82 parts
Diatomaceous earch powder	15 parts

A dust was prepared by mixing uniformly and grinding the above ingredients.

[0080]

Formulation Example 3

Each compound listed in Tables 3 and 4	5 parts
Mixed powder of bentonite and clay	90 parts
Calcium lignin sulfonate	5 parts

Granules were prepared by mixing the above ingredients uniformly, and kneading the resulting mixture together with a suitable amount of water, followed by granulation and drying.

Formulation Example 4

Each compound listed in Tables 3 and 4	20 parts
Mixture of kaolin and synthetic, high-dispersion silicic acid	75 parts
Mixture of polyoxyethylene	5 parts

nonylphenyl ether and calcium alkylbenzenesulfonate

A wettable powder was prepared by mixing uniformly and grinding the above ingredients.

[0081]

Test Example 1

Control efficacy against green peach aphid (Myzus persicae)

A Chinese cabbage plant was planted in each of plastic pots with a diameter of 8 cm and a height of 8 cm and green peach aphids were propagated on the plant, after which the parasites in each pot were counted.

Each substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention listed in Tables 3 and 4 was dispersed in and diluted with water to obtain a 500 ppm liquid chemical. The stalks and leaves of the potted Chinese cabbage plants were sprayed with the liquid chemical and air-dried, and then the pots were stored in a greenhouse. Six days after the spraying, green peach aphids parasitic on each Chinese cabbage plant were counted and the control efficacy degree was calculated by the following equation, whereby the insecticidal effect was judged according to the criterion shown below.

[0082]

$$\text{Control efficacy} = 100 - \{(T \times Ca)/(Ta \times C)\} \times 100$$

Ta: number of parasites before spraying in treated group,

T : number of parasites after spraying in treated group,

Ca: number of parasites before spraying in untreated group,

C : number of parasites after spraying in untreated group.

Criterion:

Efficacy	Percent Control (%)
A	100
B	99 - 90
C	89 - 80
D	79 - 50

[0083]

Test Example 2

Insecticidal effect on brown rice planthopper (Nilaparvata lugens)

Each substituted aminoquinazolinone (thione) derivative of the general formula (I) or salt thereof of the present invention listed in Tables 3 and 4 was dispersed in and diluted with water to obtain a 500 ppm liquid chemical. Rice seedlings (cultivar: Nihonbare) were immersed in the liquid chemical for 30 seconds and air-dried, after which each seedling was placed in a glass test tube and inoculated with 10 third-instar nymphs of brown rice planthopper, and the test tube was

pluged with a cotton plug. Eight days after the inoculation, the dead and alive were counted. The mortality was calculated by the following equation and the control effect was judged according to the criterion described below.

Corrected larval mortality (%) = {(Ca/c-Ta/T)/Ca/c}x100

Ta: number of alive nymphs in treated groups

T : number of inoculated nymphs in treated groups

Ca: number of alive numphs in untreated groups

c : number of inoculated nymphs in untreated groups

Criterion: the same as in Test Example 1.

[0084]

Test Example 3

Insecticidal test on greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum)

Each compounds of the present invention listed in Table 3 and Table 4 was dispersed in and diluted with water to prepare a test liquid containing 100 ppm of the test compound. By use of a spraygun, the test liquid was sprayed on the surface of a leaf of tomato plant put in a 20 ml-vial bottle containing water on a turn table. After air-dried, the leaf treated with the test liquid was put in a glass cylinder, and inoculated with 20 adults of greenhouse whitefly thereon. After the inoculation, the leaf was

placed in a greenhouse, and the number of adults of greenhouse whitefly was counted. The mortality of the adults was calculated similar to that of conducted in Test Example 2, and the insecticidal effect of each one of the test compounds was evaluated by the method identical to Test Example 1.

[0085]

From the results obtained in Test Example 1, 2 and 3 that: in Test Example 1, Compound Nos. 6, 18, 22, 26, 30, 119, 135, 139 and 143 showed excellent insecticidal effect rated A against green peach aphid (Myzus persicae); in Test Example 2, Compound Nos. 6, 18, 22, 26, 30, 119, 135, 139 and 143 showed excellent insecticidal effect rated A against planthopper (Nilaparvata lugens); and in Test Example 3, Compound Nos. 6, 10, 14, 18, 22, 26, 30, 38, 78, 86, 90, 119, 135, 139 and 143 showed excellent insecticidal effect rated D or higher against greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum); particularly, Compound Nos. 6, 18, 22, 26, 30, 119, 135, 139 and 143 showed excellent insecticidal effect rated A.

[0086]

[Effects of the Invention]

The pest controllers of the present invention containing, as the active ingredient, substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives or salts thereof represented by the general formula (I) possess excellent insecticidal effect at low dosage against

greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum) and the like, to which conventional compounds having similar chemical structures do not show insecticidal effects. Thus, the substituted aminoquinazolinone (thione) derivatives of the present invention are excellent pest controllers as compared with conventional ones.

620 ~~04826~~

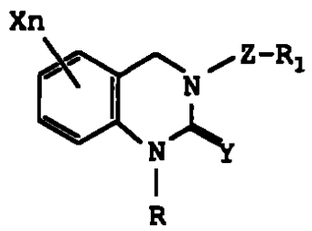
[Title of Document] Abstract

[Abstract]

[Solving Means]

A pest controller containing, as the active ingredient, a substituted aminoquinazolinone (thione) derivative or salt thereof represented by the general formula (I):

[Formula 1]



(I)

[wherein R is H, OH, a formyl group, a (halo)(C_{1-6})alkyl group, a hydroxy(C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group, a (substituted) amino(C_{1-6})alkyl group, a (substituted) aminocarbonyl group, a (substituted) phenyl(C_{1-3})alkyl group, a (substituted) phenyl(C_{2-4})alkynyl(C_{1-3})alkyl group, 1,3-dioxolan-2-yl-(C_{1-3})alkyl group, a phtahlimido(C_{1-6})alkyl group and the like; R_1 is a 5 to 6 membered heterocyclic group having 1 to 3 hetero atoms selected from the group consisting of O, S and N; Y is O or S; Z is a group of the formula -N=C(R_2)- or -N(R_3)-CH(R_2)- (wherein each one of R_2 and R_3 is a hydrogen atom, a (C_{1-6})alkyl group or the like); X is Br, I, OH, CN, a (C_{1-6})alkyl group, a (C_{2-6})alkenyl group, a (substituted) aminocarbonyl group, a (substituted)

phenyloxy group or the like; n is an integer of 0 to 4].

[Effect]

Said substituted aminoquinazolinone derivative or salt thereof possesses excellent insecticidal effects at low dosage against greenhouse whitefly (Trialeurodes vaporariorum) and the like to which conventional compounds having similar chemical structures do not show the desired insecticidal effects.

[Selected Drawing] None

622

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: １９９９年１１月 ２日

出願番号
Application Number: 平成１１年特許願第３１２２９７号

出願人
Applicant (s): 日本農薬株式会社

２０００年１１月１０日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office 及川耕造

出証 号 出証特２０００－３０９３９９５

623

【　類名】　特許願

【整理番号】　C7798

【提出日】　平成11年11月 2日

【あて先】　特許庁長官　殿

【国際特許分類】　C07D235/00

A01N 43/40

【発明者】

【住所又は居所】　大阪府堺市丈六１１５－１２

【氏名】　上原　正浩

【発明者】

【住所又は居所】　大阪府河内長野市西之山町１－２８

【氏名】　渡辺　政光

【発明者】

【住所又は居所】　大阪府河内長野市緑ケ丘南町１５－５

【氏名】　木村　雅行

【発明者】

【住所又は居所】　大阪府河内長野市西之山町１－２８－３０５

【氏名】　森本　雅之

【発明者】

【住所又は居所】　和歌山県橋本市光陽台２－５－３

【氏名】　吉田　正徳

【特許出願人】

【識別番号】　000232623

【氏名又は名称】　日本農薬株式会社

【代理人】

【識別番号】　100068618

【弁理士】

【氏名又は名称】　曾　　経夫

【電話番号】　03-3291-9721

624 ~~1103~~

【選任した代理人】

【識別番号】　100093193

【弁理士】

【氏名又は名称】　中村　壽夫

【選任した代理人】

【識別番号】　100104145

【弁理士】

【氏名又は名称】　宮崎　嘉夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】　018120

【納付金額】　21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】　明細書　1

【物件名】　要約書　1

【プルーフの要否】　要

625

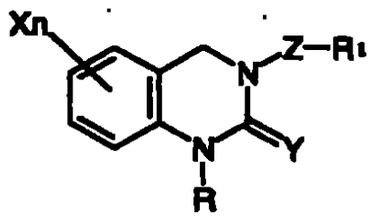
【　類名】　　明細

【発明の名称】　置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、その中間体化合物及び有害生物防除剤並びにその使用方法

【特許請求の範囲】

【請求項１】　一般式(I)

【化１】



(I)

〔式中、Ｒは水素原子、水酸基、ホルミル基、(C_1-C_{12})アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、ヒドロキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良いジ(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、アミノ(C_1-C_6)アルキル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_8)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノ(C_1-C_6)アルキル基、シアノ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、(C_3-C_6)シクロアルキル(C_1-C_3)アルキル基、フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1

-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルチオ基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択され１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルスルホニル基、フェニル（C_1-C_6)アルキルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6) アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_6)アルキルスルホニル基、フェニルオキシカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシカルボニル基、フェニルオキシ（C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択され１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ（C_1-C_3)アルキル基、フェニル（C_2-C_6)アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アル

コキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニル（C_2-C_6）アルケニル基、フェニル（C_2-C_6）アルキニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル基、フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、１，３－ジオキソラン－２－イル（C_1-C_3）アルキル基又はフタルイミド（C_1-C_6）アルキル基を示す。

R_1 は同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択され １～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環基を示し、該複素環基は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基又は（C_1-C_6）アルコキシ基から選択される１～５個の置換基を有することもでき、複素環基中の窒素原子はＮ－オキシド基を示すこともできる。

Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚは

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基又はハロ（C_1-C_6）アルキル基を示す。）又は

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2 は前記に同じくし、R_3 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基、ホル

ミル基、（C_1-C_3）アルキルカルボニル基又はハロ（C_1-C_3）アルキルカルボニル基を示す。）

を示し、Xは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_{10}）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、ハロ（C_2-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、カルボキシル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、（C_1-C_6）アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１

629

0063

～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3)アルキル基、フェニルオキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニルオキシ基を示し、ｎは０～４の整数を示す。］

で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類。

【請求項２】　Ｒが水素原子、ホルミル基、（C_1-C_{12})アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_2-C_6)アルケニル基、（C_2-C_6)アルキニル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルコキシ（C_1-C_3)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ（C_1-C_3)アルコキシ（C_1-C_3)アルキル基、（C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基、アミノ（C_1-C_6)アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_2-C_6)アルケニル基又は（C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノ（C_1-C_6)アルキル基、シアノ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルキルカルボニル基、（C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル（C_1-C_3)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシカルボニル（C_1-C_3)アルキル基、（C_3-C_6)シクロアルキル（C_1-C_3)アルキル基、フェニル（C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１

630

0036

～５個の置換基を環上に有する置換フェニルチオ基、フェニル（C_2-C_6）アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_6）アルケニル基、フェニル（C_2-C_6）アルキニル基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基を示し、R_1 が同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環基を示し、該複素環基は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基又は（C_1-C_6）アルコキシ基から選択される１～５個の置換基を有することもでき、複素環基中の窒素原子はＮ－オキシド基を示すこともできる。Ｙが酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚが

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基又は、ハロ（C_1-C_6）アルキル基を示す。）又は

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子又は（C_1-C_6）アルキル基を示し、R_3 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基、ホルミル基、（C_1-C_3）アルキルカルボニル基又はハロ（C_1-C_3）アルキルカルボニル基を示す。）を示し、Ｘが同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、ハロ（C_1-C_8）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C

631

$_6$)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、カルボキシル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルオキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基を示し、ｎが０～４の整数を示す請求項１記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類。

【請求項３】　Ｒが水素原子、ホルミル基、(C_1-C_{12})アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、フェニル(C_2-C_6)アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲ

ン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基又は(C_1-C_2)アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_6)アルケニル基、フェニル(C_2-C_6)アルキニル基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基又は(C_1-C_2)アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_2-C_4)アルキニル(C_1-C_3)アルキル基を示し、R_1がピリジル基を示し、Yが酸素原子又は硫黄原子を示し、Zが

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2は水素原子、(C_1-C_6)アルキル基又は、ハロ(C_1-C_6)アルキル基を示す。）又は

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2は水素原子又は(C_1-C_6)アルキル基を示し、R_3は水素原子又は(C_1-C_6)アルキル基を示す。）を示し、Xは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、ハロ(C_1-C_8)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、カルボキシル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有するアミノカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチ

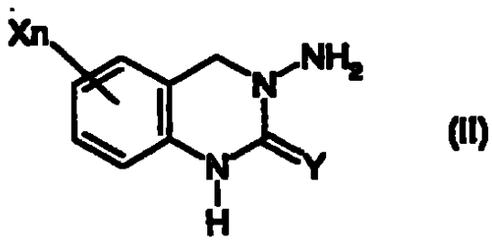
633

~~00639~~

オ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基、ｎが０～４の整数を示す請求項２記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類。

【請求項４】　一般式(II)

【化２】



(II)

〔式中、Ｘは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_{10}）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、ハロ（C_1-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、カルボキシル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、

アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基、ｎは０～４の整数を示し、Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示す。］で表される化合物。

【請求項５】　請求項１乃至３のいずれか一項記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤。

【請求項６】　請求項１乃至３いずれか一項記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類と、１種又は２種以上のその他の農薬を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除組成物。

【請求項７】　有害生物を防除するために請求項１乃至３のいずれか一項記載の置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤の有効量を処理することを特徴とする有害生物防除方法。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

635

0064

【発明の属する技術分野】

本発明は新規な置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、中間体化合物及び該誘導体を有効成分として含有する有害生物防除剤並びにその使用方法に関するものである。

【０００２】

【従来の技術】

特開平８－３２５２３９号公報にアミノキナゾリノン誘導体が有害生物防除剤として有用であることが開示されている。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】

本発明者らは新規な有害生物防除剤を創出すべく鋭意研究を重ねた結果、キナゾリノン環に属するフェニル基に本発明で示す置換基を有する化合物は、上記特開平８－３２５２３９号公報に記載の実施例に開示されている化合物と比べて、低薬量で同等以上の効果があり、特に農園芸場面で問題となるコナジラミ類に対する充分な殺虫効果を示す事を見出し、本発明を完成させたものである。

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類及び該化合物を製造するための中間体化合物である一般式(II)で表される化合物は新規化合物であり、一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は従来の薬剤に比べて、各種害虫に対して低薬量で優れた殺虫効果を有するものである。

【０００４】

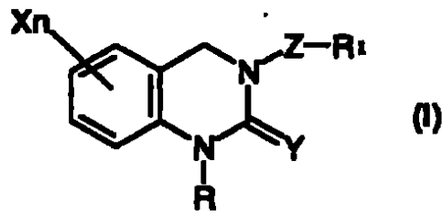
【課題を解決するための手段】

本発明者は、従来の殺虫剤に比較してより低薬量で効果が優れ、かつ殺虫スペクトラムの拡大された殺虫剤を得るべくアミノキナゾリノン誘導体について鋭意研究を進め結果、キナゾリノン環に臭素原子、ヨー素原子、パーフルオロアルキル基、パーフルオロアルコキシ基等を有する新規なアミノキナゾリノン誘導体が、有害生物防除剤として極めて優れた活性を有することを見いだしたものである。

【０００５】

すなわち、本発明は一般式(I)

【化３】



〔式中、Ｒは水素原子、水酸基、ホルミル基、(C_1-C_{12})アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、ヒドロキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、(C_1-C_6)アルキルチオ(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良いジ(C_1-C_6)アルコキシ(C_1-C_3)アルキル基、アミノ(C_1-C_6)アルキル基、同一又は異なっても良く、

【０００６】

(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノ(C_1-C_6)アルキル基、シアノ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルキルカルボニル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、(C_3-C_6)シクロアルキル(C_1-C_3)アルキル基、フェニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル(C_1-C_3)アルキル基、フェニルカルボニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C

637

$_6$)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルカルボニル基、

【０００７】

フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルチオ基、フェニルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルスルホニル基、フェニル（C_1-C_6)アルキルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6) アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_6)アルキルスルホニル基、フェニルオキシカルボニル基、

【０００８】

同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシカルボニル基、フェニルオキシ（C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6)アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ（C_1-C_3)アルキル基、フェニル（C_2-C_6)アルケニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6)アルキル基、ハロ（C_1-C_6)アルキル基、（C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6)アルコキシ基、（C_1-C_6)アルキル

チオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニル（C_2-C_6）アルケニル基、

【０００９】

フェニル（C_2-C_6）アルキニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル基、フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基又は（C_1-C_2）アルキレンジオキシ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_2-C_4）アルキニル（C_1-C_3）アルキル基、１，３－ジオキソラン－２－イル（C_1-C_3）アルキル基又はフタルイミド（C_1-C_6）アルキル基を示す。

【００１０】

R_1 は同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環基を示し、該複素環基は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基又は（C_1-C_6）アルコキシ基から選択される１～５個の置換基を有す　こともでき、複素環基中の窒素原子はＮ－オキシド基を示すこともできる。

Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示し、Ｚは

$-N=C(R_2)-$

（式中、R_2 は水素原子、（C_1-C_6）アルキル基又はハロ（C_1-C_6）アルキル基を示す。）又は

【００１１】

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

（式中、R_2 は前記に同じくし、R_3 は水素原子、(C_1-C_6)アルキル基、ホルミル基、(C_1-C_3)アルキルカルボニル基又はハロ(C_1-C_3)アルキルカルボニル基を示す。）

を示し、Xは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_{10})アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基、ハロ(C_2-C_6)アルケニル基、(C_2-C_6)アルキニル基、(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基、ハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルフィニル基、(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、ハロ(C_1-C_6)アルキルスルホニル基、

【００１２】

カルボキシル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ(C_1-C_6)アルキル基、(C_1-C_6)アルコキシカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、アミノカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択され１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル(C_1-C_3)アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、(C_1-C_6)アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C_1-C_6)アルキル基、ハロ(C_1-C_6)アルキル基、

【００１３】

(C_1-C_6)アルコキシ基、ハロ(C_1-C_6)アルコキシ基、(C_1-C_6)アルキルチオ基又はハロ(C_1-C_6)アルキルチオ基、(C_1-C_6)アルコキシスルホニル基、同一又は異なっても良く、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アルケニル基又は(C_2-C_6)アルキ

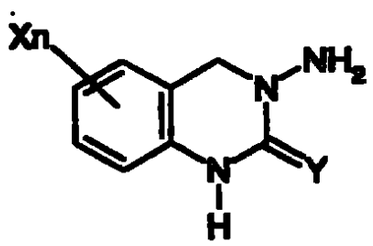
ニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノスルホニル基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有するフェニルオキシ基を示し、ｎは０～４の整数を示す。］

で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、並びに該誘導体又はその塩類を有効成分として含有する有害生物防除剤並びにその使用法に関するものである。

【００１４】

又、本発明は前記誘導体の中間体化合物である一般式(II)

【化４】



(II)

〔式中、Ｘは同一又は異なっても良く、臭素原子、ヨウ素原子、水酸基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_{10}）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基、ハロ（C_1-C_6）アルケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、ハロ（C_1-C_6）アルキルスルホニル基、

641

【００１５】

カルボキシル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、アミノカルボニル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル基、カルボキシ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基から選択される１～２個の置換基を有する置換アミノカルボニル（C_1-C_3）アルキル基、スルホン酸基、スルホン酸エステル基、窒素原子上に（C_1-C_6）アルキル基、（C_2-C_6）アルケニル基又は（C_2-C_6）アルキニル基を有するスルホン酸アミド基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル基、

【００１６】

フェニル（C_1-C_3）アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニル（C_1-C_3）アルキル基、フェニルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、（C_1-C_6）アルキル基、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）アルコキシ基、ハロ（C_1-C_6）アルコキシ基、（C_1-C_6）アルキルチオ基又はハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基から選択される１～５個の置換基を環上に有する置換フェニルオキシ基、ｎは０～４の整数を示し、Ｙは酸素原子又は硫黄原子を示す。］

で表される化合物に関するものである。

【００１７】

【発明の実施の形態】

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又は

642

その塩類における各置換基の定義中、『ハロゲン原子』とは塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子又はフッ素原子を示し、例えば『C_1-C_{12}』とは炭素原子数１～１２を示し、『(C_1-C_{12})アルキル基』とは、炭素原子数１～１２の直鎖状又は分枝状のアルキル基を示し、例えば、メチル、エチル、ｎ－プロピル、ｉ－プロピル、ｎ－ブチル、ｉ－ブチル、ｓ－ブチル、ｔ－ブチル、ｎ－ペンチル、ｎ－ヘキシル、ｎ－ヘプチル、ｎ－オクチル、ｎ－ノニル、ｎ－デシル、ｎ－ウンデシル、ｎ－ドデシル等のアルキル基を示し、『ハロ(C_1-C_{10})アルキル基』とは同一又は異なっても良く、１以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数１～１０の直鎖状又は分枝状のアルキル基を示し、例えばトリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基などを示し、『(C_2-C_6)アルケニル基』とは１以上の２重結合を有する炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルケニル基を示し、『ハロ(C_2-C_6)アルケニル基』とは同一又は異なっても良く、１以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルケニル基を示し、『(C_2-C_6)アルキニル基』とは１以上の３重結合を有する炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルキニル基を示し、

【００１８】

『ハロ(C_2-C_6)アルキニル基』とは同一又は異なっても良く、１以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数２～６の直鎖状又は分枝状のアルキニル基を示し、『同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子又は窒素原子から選択される１以上のヘテロ原子を有する５～６員複素環』とは、例えばフラン、チオフェン、ピロール、オキサゾール、チアゾール、ピラゾール、イミダゾール、１，２，３－チアジアゾール、１，２，４－チアジアゾール、１，２，５－チアジアゾール、１，３，４－チアジアゾール、１，２，４－トリアゾール、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、ピロリジン、ピペリジン、モルホリン、チオモルホリン、ジチオラン、ジチアン、ピペラジン、ジオキソラン、イミダゾリジン又はテトラヒドロフラン等の５～６員複素環を示すものとする。

【００１９】

一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体で好ましい置換基としては、Ｒが水素原子、ホルミル基、(C_1-C_6)アルキル基、(C_2-C_6)アル

643

ケニル基、（C_2-C_6）アルキニル基、（C_1-C_6）アルキルカルボニル基、（C_1-C_6）アルコキシカルボニル基、（C_1-C_6）アルキルチオ基、ハロ（C_1-C_6）アルキルチオ基、フェニルカルボニル基、置換フェニルカルボニル基、置換フェニル（C_1-C_6）アルキル基、置換フェニル（C_2-C_6）アルケニル基又は置換フェニル（C_2-C_6）アルキニル基であり、R_1 がピリジル基、特に３－ピリジル基であり、Ｙは酸素原子又は硫黄原子であり、Ｚは

$-N(R_3)-CH(R_2)-$

であり、R_2 及びR_3 は水素原子又は（C_1-C_6）アルキル基であり、Ｘは臭素原子、ヨウ素原子、ハロ（C_1-C_6）アルキル基、（C_1-C_6）ハロアルコキシ基、（C_1-C_6）ハロアルキルチオ基、（C_1-C_6）ハロアルキルスルフィニル基、（C_1-C_6）ハロアルキルスルホニル基又はフェニル基であり、ｎは０～２の整数が好ましい。

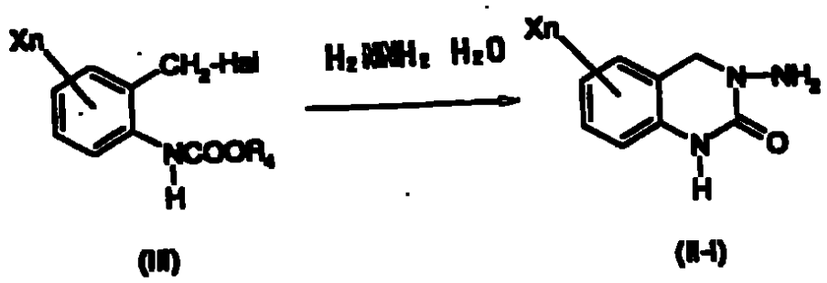
又、一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体の塩としては、例えば塩酸、硫酸、硝酸等の鉱酸塩の他に、ナトリウム、カリウム等のアルカリ金属原子の塩を例示することができる。

【００２０】

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体の中間体化合物である一般式(II)で表される化合物は、例えば下記に示す製造方法により製造することができる。

製造方法１.

【化５】



(II)　　(II-1)

（式中、Ｘ及びｎは前記に同じくし、R_4 は（C_1-C_6）アルキル基を示し、Ｈａ

644
U0350

１はハロゲン原子を示す。）

【００２１】

一般式(III) で表される化合物と抱水ヒドラジン類とを不活性溶媒の存在下に反応させることにより一般式(II-1)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレン、モノクロロベンゼン等の芳香族炭化水素類、アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類、メチルセルソルブ等のセルソルブ類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、ジメチルスルホキシド、スルホラン、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

【００２２】

反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～９０℃の範囲である。本反応は等モル反応であるので一般式(III) で表される化合物及び抱水ヒドラジン類を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することもでき、好ましくは抱水ヒドラジン類を過剰に使用するのが良い。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

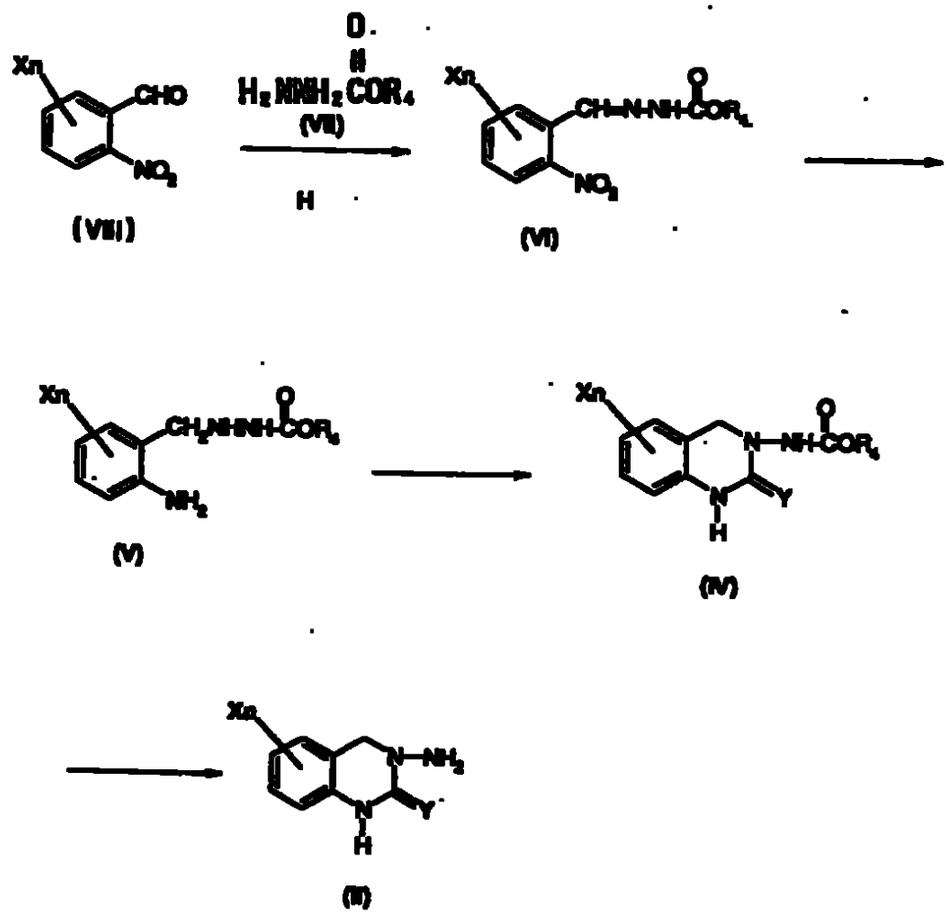
反応終了後、目的物を含む反応系から常法により処理し、必要に応じて再結晶、ドライカラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。

一般式(III) で表される化合物はCollect. Czech. Chem. Commn. (Vol. 55), 752 (1990)に従って製造することができる。

【００２３】

製造方法２.

【化６】



（式中、R_4、X、ｎ及びＹは前記に同じ。）

【００２４】

２－１．一般式(VIII)→一般式(VI)

一般式(VIII)で表される化合物と一般式(VII) で表される化合物とを不活性溶媒及び触媒の存在下に反応させることにより、一般式(VI)で表される化合物を製造す　ことができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては例えば製造方法１で例示の不活性溶媒を使用することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。触媒としては、例えば塩酸、硫酸等の無機酸の他に酢酸、パラトルエンスルホン酸等を使用することができ、その使用量は一般式(VIII)で

表される化合　に対して０．００１重量％～１０重量％の範囲の量が反応系内に存在すれば良い。

【００２５】

本反応は等モル反応であるので一般式(VIII)で表される化合物及び一般式(VII)で表される化合物を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することもできる。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～９０℃の範囲である。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。反応終了後、目的物を含む反応系から製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

一般式(VIII)で表される化合物は市販されているものでも良く、置換ベンズアルデヒドのニトロ化によっても製造することができる。又、Journal of Chemical Society 1927、2375-8 記載の方法でも製造できる。

【００２６】

２－２．一般式(VI)→一般式(V)

一般式(VI)で表される化合物を不活性溶媒の存在下又は不存在下に還元剤と反応させるか、又は接触還元することにより、一般式(V) で表される化合物を製造することができる。

本還元反応での還元剤としては、例えば$NaBH_3CN$ 、$LiBH_3CN$ 等の金属水素化物、BH_3 等の還元剤を使用することができ、その使用量は一般式(VI)で表される化合物に対して還元剤のハイドライドのモル数に換算して等モル～過剰モルの範囲から適宜選択して使用すれば良い。

本反応で使用できる不活性溶媒としては本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、メチルセルソルブ等のセルソルブ類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、ジメチルスルホキシド、スルホラン、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性

溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

【００２７】

本反応は酸性～中性条件下で、ｐＨ１～７の範囲で行われ、好ましくはｐＨ４～６の範囲で行われ、反応系に塩化水素、臭化水素等を添加することによりｐＨを調整すれば良い。反応温度は０℃～溶媒の沸点域の範囲から選択され、好ましくは室温～７０℃の範囲である。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

次いで、還元反応として接触還元を行う場合、例えば『新実験化学講座』（第１５　－ＩＩ：丸善）等に記載の方法に従って行えば良く、例えば使用できる不活性溶媒としてはメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール等のアルコール類、メチルセルソルブ等のセルソルブ類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ヘキサン、シクロヘキサン等の炭化水素類、酢酸、酢酸エチル等の脂肪酸又はそのエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、テトラメチルウレア等のウレア類を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

【００２８】

本還元反応で使用する触媒としては、例えばパラジウムカーボン、パラジウムブラック、二酸化白金、ラネーニッケル等の代表的な接触還元触媒を例示することができ、その使用量は一般式(VI)で表される化合物に対して０．１％モル等量～５％モル等量の範囲から選択して使用すれば良く、好ましくは０．５％モル等量～１％モル等量の範囲である。本反応の水素圧は常圧～３００気圧の範囲であり、好ましくは常圧～５０気圧の範囲である。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～７０℃の範囲である。

反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から、還元剤を使用した場合と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００２９】

２－３．一般式(V) →一般式(IV)

一般式(V) で表される化合物と１，１’－カルボニルビス－１Ｈ－イミダゾール（ＣＤＩ）、アルコキシカルボニルハライド、ホスゲン又はチオホスゲンとを不活性溶媒の存在下、塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(IV)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えばジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、水等を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上混合して使用することができる。塩基としては無機塩基又は有機塩基を使用することができ、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化マグネシウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属又はアルカリ土類金属の水酸化物、炭酸塩等の無機塩基、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基を例示することができ、反応剤としてＣＤＩを使用する場合には無塩基下に反応を行うこともできる。

【００３０】

塩基の使用量は一般式(V) で表される化合物に対して２倍モル以上の量を使用すれば良い。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良く、好ましくは室温～１００℃の範囲である。反応時間は、反応規模、反応温度　により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から、製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００３１】

２－４．一般式(IV)→一般式(II)

一般式(IV)で表される化合物を不活性溶媒の存在下にアルカリ加水分解反応を行うことにより一般式(II)で表される化合物を製造することができる。

本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、プ

649

00355

ロパノール、ブタノール等のアルコール類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳　族炭化水素類、ジエチルエーテル、ジグライム、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は２種以上を混合して使用することができる。

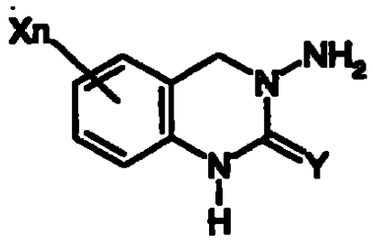
塩基としては水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化マグネシウム等のアルカリ金属又はアルカリ土類金属の水酸化物を使用することができる。又、R_4のアルキル基によってはトリフルオロ酢酸、塩酸等の有機酸、無機酸を使用して酸性条件下でも反応を行うことができる。反応温度は０℃～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で適宜行えば良い。反応時間は、反応規模、反応温度等により一定しないが数分～４８時間の範囲である。

反応終了後、目的物を含む反応系から、製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００３２】

以下に製造方法１及び２により製造される一般式(II)で表される化合物の代表例を第１表に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【化７】



(II)

【００３３】

第１表

No.	Xn	Y	物　性
II-1	5-OH	O	結晶物
II-2	6-OH	O	結晶物
II-3	7-OH	O	結晶物
II-4	8-OH	O	結晶物
II-5	5-Br	O	
II-6	6-Br	O	結晶物
II-7	7-Br	O	
II-8	8-Br	O	
II-9	5-I	O	
II-10	6-I	O	m.p.202.3-205.0 ℃
II-11	7-I	O	
II-12	8-I	O	
II-13	5-CF_3	O	
II-14	6-CF_3	O	m.p.155-157.7 ℃
II-15	7-CF_3	O	
II-16	8-CF_3	O	

651
00037

【００３４】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-17	5-C_2F_5	0	
II-18	6-C_2F_5	0	m.p.178.4-183.5 ℃
II-19	7-C_2F_5	0	
II-20	8-C_2F_5	0	
II-21	5-i-C_3F_7	0	
II-22	6-i-C_3F_7	0	m.p.147.6-149.5 ℃
II-23	7-i-C_3F_7	0	
II-24	8-i-C_3F_7	0	
II-25	5-n-C_6F_{13}	0	
II-26	6-n-C_6F_{13}	0	結晶物
II-27	7-n-C_6F_{13}	0	
II-28	8-n-C_6F_{13}	0	
II-29	5-OCF_3	0	
II-30	6-OCF_3	0	m.p.181.5-184.0 ℃
II-31	7-OCF_3	0	
II-32	8-OCF_3	0	
II-33	5-OCH_2-Ph	0	結晶物
II-34	6-OCH_2-Ph	0	
II-35	7-OCH_2-Ph	0	
II-36	8-OCH_2-Ph	0	結晶物
II-37	5-$OCHF_2$	0	
II-38	6-$OCHF_2$	0	結晶物
II-39	7-$OCHF_2$	0	

652

00558

【００３５】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-40	8-$OCHF_2$	0	
II-41	5-SCF_3	0	
II-42	6-SCF_3	0	
II-43	7-SCF_3	0	
II-44	8-SCF_3	0	
II-45	5-SC_2F_5	0	
II-46	6-SC_2F_5	0	
II-47	7-SC_2F_5	0	
II-48	8-SC_2F_5	0	
II-49	5-S-i-C_3F_7	0	
II-50	6-S-i-C_3F_7	0	
II-51	7-S-i-C_3F_7	0	
II-52	8-S-i-C_3F_7	0	
II-53	5-$SOCF_3$	0	
II-54	6-$SOCF_3$	0	
II-55	7-$SOCF_3$	0	
II-56	8-$SOCF_3$	0	
II-57	5-SO_2CF_3	0	
II-58	6-SO_2CF_3	0	
II-59	7-SO_2CF_3	0	
II-60	8-SO_2CF_3	0	
II-61	5-SOC_2F_5	0	
II-62	6-SOC_2F_5	0	

653

【００３６】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-63	7-SOC_2F_5	0	
II-64	8-SOC_2F_5	0	
II-65	5-$SO_2C_2F_5$	0	
II-66	6-$SO_2C_2F_5$	0	
II-67	7-$SO_2C_2F_5$	0	
II-68	8-$SO_2C_2F_5$	0	
II-69	5-SO-i-C_3F_7	0	
II-70	6-SO-i-C_3F_7	0	
II-71	7-SO-i-C_3F_7	0	
II-72	8-SO-i-C_3F_7	0	
II-73	5-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-74	6-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-75	7-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-76	8-SO_2-i-C_3F_7	0	
II-77	5-$COOC_2H_5$	0	
II-78	6-$COOC_2H_5$	0	
II-79	7-$COOC_2H_5$	0	
II-80	8-$COOC_2H_5$	0	
II-81	5-COOH	0	
II-82	6-COOH	0	
II-83	7-COOH	0	
II-84	8-COOH	0	
II-85	5-Ph	0	

【００３７】

第１表（続き）

No.	Xn	Y	物　性
II-86	5-Ph	0	
II-87	5-Ph	0	
II-88	5-Ph	0	
II-89	5-(p-Cl-Ph)	0	
II-90	6-(p-Cl-Ph)	0	
II-91	7-(p-Cl-Ph)	0	
II-92	8-(p-Cl-Ph)	0	
II-93	5-O-Ph	0	
II-94	6-O-Ph	0	
II-95	7-O-Ph	0	
II-96	8-O-Ph	0	
II-97	5-n-C_4H_9	0	
II-98	6-n-C_4H_9	0	
II-99	7-n-C_4H_9	0	
II-100	8-n-C_4H_9	0	
II-101	5-OCF_2CHF_2	0	
II-102	6-OCF_2CHF_2	0	m.p.194.8 ℃
II-103	7-OCF_2CHF_2	0	
II-104	8-OCF_2CHF_2	0	

655

【００３８】

第１表で示した化合物のＮＭＲデータを第２表に示す。

第２表

No.	^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS, δ値(ppm)]
II-1	4.36(2H,s), 4.65(2H,br), 6.20(1H,d), 6.34(1H,d), 6.89(1H,t),9.12(1H,br), 9.62(1H,s).
II-2	4.45(2H,s) 4.65(2H,s) 6.51-6.63(3H,m) 9.00(1H,s), 9.60(1H,brs).
II-3	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.23-6.35(2H,m), 6.85(1H,d), 9.05(1H,s). 9.63(1H,s)
II-4	4.46(2H,s), 4.65(2H,s), 6.57(1H,d), 6.64-6.74(2H,m), 7.95(1H,d), 9.60(1H,brs).
II-6	4.48(2H,s), 4.66(2H,s), 6.74(1H,m), 7.18(1H,m), 7.30(1H,m), 9.43(1H,s).
II-18	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.95(1H,d), 7.40-7.50(2H,m), 9.83(1H,s).
II-26	4.56(2H,s), 4.70(2H,s), 6.94(1H,d), 7.43-7.48(2H,m), 9.74(1H,s).
II-33	4.48(2H,s), 4.69(2H,s), 5.00(2H,s), 6.30(1H,d), 6.45(1H,d), 7.05(1H,t), 7.25-7.40(6H,m).
II-36	4.48(2H,s), 4.68(2H,s), 5.19(2H,s), 6.71(1H,d), 6.82(1H,t), 6.92(1H,d), 7.30-7.40(3H,m), 7.51(2H,d), 8.18(1H,s).
II-38	4.48(2H,s), 4.65(2H,s), 6.76-6.79(1H,d,J=8.7Hz), 6.95-7.00(2H,m), 6.80-7.30(1H,t,J=7.46), 9.37(1H,s).

656

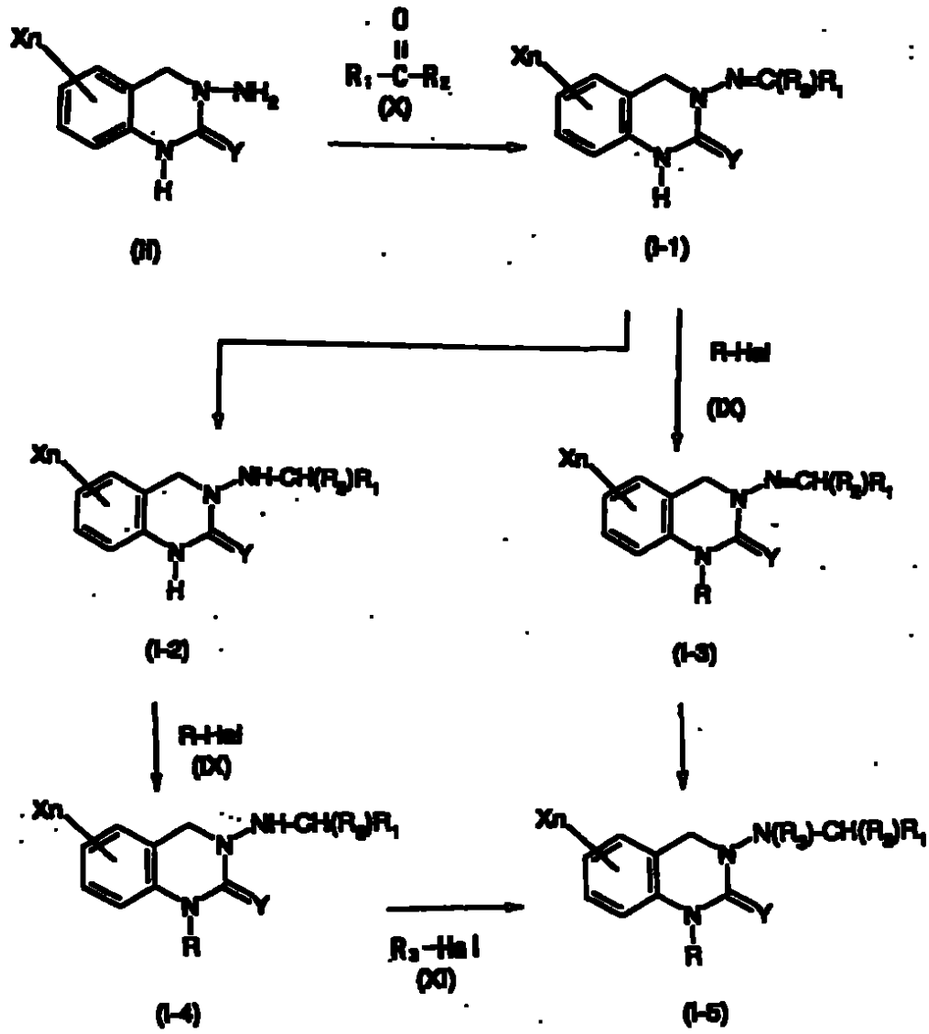
00662

【００３９】

本発明の一般式(I) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩の代表的な製造方法を以下に示す。

製造方法３．

【化８】



（式中、R、R_1、R_2、R_3、X、n、Y及びＨａｌは前記に同じ。但し、R及びR_3は水素原子を除く。）

【００４０】

３－１．一般式(II)→一般式(I-1)

一般式(II)で表される化合物と一般式(X) で表される化合物とを不活性溶媒及び触媒の存在下に反応させることにより一般式(I-1) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

本反応は製造方法２－１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

３－２．一般式(I-1) →一般式(I-3)

一般式(I-1) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体と一般式(IX)で表される化合物とを不活性溶媒及び塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(I-3) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

【００４１】

本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えば製造方法１に例示の不活性溶媒を使用することができ、塩基は無機塩基又は有機塩基を使用することができ、例えば製造方法２－３で例示の無機塩基又は有機塩基の他に、CH_3ONa、C_2H_5ONa、$t\text{-}C_4H_9ONa$ 、CH_3OK 、C_2H_5OK、$t\text{-}C_4H_9OK$等のアルコラート類、NaH 等のアルカリ金属ハイドライド類も使用することができ、その使用量は一般式(I-1) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体に対して等モル～過剰モルの範囲で適宜選択して反応を行えば良い。

反応温度は０℃～使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で行えば良く、好ましくは室温～７０℃の範囲である。反応時間は反応規模、反応温度等により一定しないが、数分～４８時間の範囲で行えば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から製造方法１と同様にすることにより目的物を製造することができる。

【００４２】

３－３．一般式(I-1) →一般式(I-2)

本反応は２－２と同様にすることにより目的物を製造することができる。

３－４．一般式(I-2) →一般式(I-4)

一般式(I-2) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体と一般式(IX)で表される化合物とを不活性溶媒及び塩基の存在下又は不存在下に反応させること

により一般式(I-4) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

本反応は３－２と同様にすることにより、目的物を製造することができる。

３－５．一般式(I-4) →一般式(I-5)

一般式(I-4) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体と一般式(XI)で表される化合物とを不活性溶媒及び塩基の存在下又は不存在下に反応させることにより一般式(I-5) で表されるアミノキナゾリノン（チオン）誘導体を製造することができる。

本反応は３－２と同様にすることにより、目的物を製造することができる。

３－６．一般式(I-3) →一般式(I-5)

本反応は２－２と同様にすることにより目的物を製造することができる。

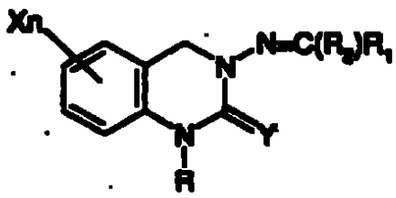
659

00665

【００４３】

以下に本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類の代表例を第３表及び第４表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【化９】



【００４４】

第3表（R_1=Q_2、R_2=H、Y＝O）

No.	R	Xn	物　性
1	H	5-OH	m.p.283-285 ℃
2	H	6-OH	
3	H	7-OH	
4	H	8-OH	m.p.>300℃
5	H	5-Br	
6	H	6-Br	m.p.>300℃
7	H	7-Br	
8	H	8-Br	
9	H	5-I	
10	H	6-I	m.p.>300℃
11	H	7-I	
12	H	8-I	

660

【００４５】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
13	H	5-CF_3	
14	H	6-CF_3	m.p.227.6-286.7 ℃
15	H	7-CF_3	
16	H	8-CF_3	
17	H	5-C_2F_5	
18	H	6-C_2F_5	m.p.298-300 ℃
19	H	7-C_2F_5	
20	H	8-C_2F_5	
21	H	5-i-C_3F_7	
22	H	6-i-C_3F_7	m.p.>300℃
23	H	7-i-C_3F_7	
24	H	8-i-C_3F_7	
25	H	5-n-C_6F_{13}	
26	H	6-n-C_6F_{13}	m.p.>300℃
27	H	7-n-C_6F_{13}	
28	H	8-n-C_6F_{13}	
29	H	5-OCF_3	
30	H	6-OCF_3	m.p.264.0-266.0 ℃
31	H	7-OCF_3	
32	H	8-OCF_3	
33	H	5-CH_2-Ph	
34	H	6-CH_2-Ph	
35	H	7-CH_2-Ph	

661

00667

【００４６】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
36	H	8-CH_2-Ph	
37	H	5-$OCHF_2$	
38	H	6-$OCHF_2$	m.p.260.1-264.5 ℃
39	H	7-$OCHF_2$	
40	H	8-$OCHF_2$	
41	H	5-SCF_3	
42	H	6-SCF_3	
43	H	7-SCF_3	
44	H	8-SCF_3	
45	H	5-SC_2F_5	
46	H	6-SC_2F_5	
47	H	7-SC_2F_5	
48	H	8-SC_2F_5	
49	H	5-S-i-C_3F_7	
50	H	6-S-i-C_3F_7	
51	H	7-S-i-C_3F_7	
52	H	8-S-i-C_3F_7	
53	H	5-$SOCF_3$	
54	H	6-$SOCF_3$	
55	H	7-$SOCF_3$	
56	H	8-$SOCF_3$	
57	H	5-SO_2CF_3	
58	H	6-SO_2CF_3	

662

【００４７】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
59	H	7-SO_2CF_3	
60	H	8-SO_2CF_3	
61	H	5-SOC_2F_5	
62	H	6-SOC_2F_5	
63	H	7-SOC_2F_5	
64	H	8-SOC_2F_5	
65	H	5-$SO_2C_2F_5$	
66	H	6-$SO_2C_2F_5$	
67	H	7-$SO_2C_2F_5$	
68	H	8-$SO_2C_2F_5$	
69	H	5-SO-i-C_3F_7	
70	H	6-SO-i-C_3F_7	
71	H	7-SO-i-C_3F_7	
72	H	8-SO-i-C_3F_7	
73	H	5-SO_2-i-C_3F_7	
74	H	6-SO_2-i-C_3F_7	
75	H	7-SO_2-i-C_3F_7	
76	H	8-SO_2-i-C_3F_7	
77	H	5-$COOC_2H_5$	
78	H	6-$COOC_2H_5$	m.p.274-278 ℃
79	H	7-$COOC_2H_5$	
80	H	8-$COOC_2H_5$	
81	H	5-COOH	

63

0066

【００４８】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
82	H	6-COOH	
83	H	7-COOH	
84	H	8-COOH	
85	H	5-Ph	
86	H	6-Ph	m.p.250.9-253.8 ℃
87	H	7-Ph	
88	H	8-Ph	
89	H	5-(4-Cl-Ph)	
90	H	6-(4-Cl-Ph)	m.p.276-278 ℃
91	H	7-(4-Cl-Ph)	
92	H	8-(4-Cl-Ph)	
93	H	5-O-Ph	
94	H	6-O-Ph	
95	H	7-O-Ph	
96	H	8-O-Ph	
97	H	5-n-C_4H_9	
98	H	6-n-C_4H_9	
99	H	7-n-C_4H_9	
100	H	8-n-C_4H_9	
101	CH_3	6-I	m.p.181.4-185.3
102	C_2H_5	6-I	m.p.191.5-194.5
103	n-C_5H_{11}	6-I	m.p.1.4126(28.5)
104	$CH_2C{\equiv}CH$	6-I	m.p.214-217

664

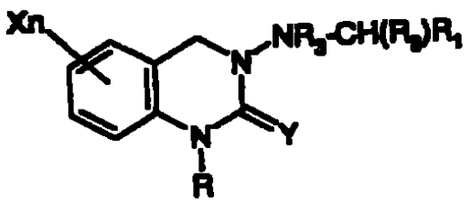
【００４９】

第３表（続き）

No.	R	Xn	物　性
105	$CH_2CH=CH_2$	6-I	m.p.162-164
106	$CH_2OC_2H_5$	6-I	m.p.111.3-161.7
107	CH_2(4-Cl-Ph)	6-I	m.p.146-149
108	$COCH_3$	6-I	m.p.186-188
109	COC_2H_5	6-I	m.p.135-139
110	SO_2CH_3	6-I	m.p.174-181
111	SO_2Ph	6-I	m.p.199-205
112	H	6-OCF_2CHF_2	m.p.251.6-263.3
113	CO-c-C_3H_7	6-I	m.p.172-175

【００５０】

【化１０】



665
00071

【００５１】

第４表（R_2=H、Y＝O、R_3=H。但し、特記したものを除く。）

No	R	R_2	Xn	物　性
114	H	Q_2	5-OH	
115	H	Q_2	6-OH	m.p.223-225 ℃
116	H	Q_2	7-OH	m.p.258-259 ℃
117	H	Q_2	8-OH	m.p.177-180 ℃
118	H	Q_2	5-Br	
119	H	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
120	H	Q_2	7-Br	
121	H	Q_2	8-Br	
122	H	Q_2	5-I	
123	H	Q_2	6-I	
124	H	Q_2	7-I	
125	H	Q_2	8-I	
126	H	Q_2	5-CF_3	
127	H	Q_2	6-CF_3	m.p.181.0-183.1 ℃
128	H	Q_2	7-CF_3	
129	H	Q_2	8-CF_3	
130	H	Q_2	5-C_2F_5	
131	H	Q_2	6-C_2F_5	
132	H	Q_2	7-C_2F_5	
133	H	Q_2	8-C_2F_5	
134	H	Q_2	5-i-C_3F_7	
135	H	Q_2	6-i-C_3F_7	m.p.159.4-161.0 ℃
136	H	Q_2	7-i-C_3F_7	

665

【００５２】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
137	H	Q_2	8-i-C_3F_7	
138	H	Q_2	5-n-C_6F_{13}	
139	H	Q_2	6-n-C_6F_{13}	m.p.153.9-164.7 ℃
140	H	Q_2	7-n-C_6F_{13}	
141	H	Q_2	8-n-C_6F_{13}	
142	H	Q_2	5-OCF_3	
143	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5233(22.6℃)
144	H	Q_2	7-OCF_3	
145	H	Q_2	8-OCF_3	
146	H	Q_2	5-CH_2-Ph	
147	H	Q_2	6-CH_2-Ph	
148	H	Q_2	7-CH_2-Ph	
149	H	Q_2	8-CH_2-Ph	
150	H	Q_2	5-$OCHF_2$	
151	H	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.129.7-130.2 ℃
152	H	Q_2	7-$OCHF_2$	
153	H	Q_2	8-$OCHF_2$	
154	H	Q_2	5-SCF_3	
155	H	Q_2	6-SCF_3	
156	H	Q_2	7-SCF_3	
157	H	Q_2	8-SCF_3	
158	H	Q_2	5-SC_2F_5	
159	H	Q_2	6-SC_2F_5	

667

【００５３】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物性
160	H	Q_2	7-SC_2F_5	
161	H	Q_2	8-SC_2F_5	
162	H	Q_2	5-S-i-C_3F_7	
163	H	Q_2	6-S-i-C_3F_7	
164	H	Q_2	7-S-i-C_3F_7	
165	H	Q_2	8-S-i-C_3F_7	
166	H	Q_2	5-$SOCF_3$	
167	H	Q_2	6-$SOCF_3$	
168	H	Q_2	7-$SOCF_3$	
169	H	Q_2	8-$SOCF_3$	
170	H	Q_2	5-SO_2CF_3	
171	H	Q_2	6-SO_2CF_3	
172	H	Q_2	7-SO_2CF_3	
173	H	Q_2	8-SO_2CF_3	
174	H	Q_2	5-SOC_2F_5	
175	H	Q_2	6-SOC_2F_5	
176	H	Q_2	7-SOC_2F_5	
177	H	Q_2	8-SOC_2F_5	
178	H	Q_2	5-$SO_2C_2F_5$	
179	H	Q_2	6-$SO_2C_2F_5$	
180	H	Q_2	7-$SO_2C_2F_5$	
181	H	Q_2	8-$SO_2C_2F_5$	
182	H	Q_2	5-SO-i-C_3F_7	

【００５４】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物性
183	H	Q_2	6-SO-i-C_3F_7	
184	H	Q_2	7-SO-i-C_3F_7	
185	H	Q_2	8-SO-i-C_3F_7	
186	H	Q_2	5-SO_2-i-C_3F_7	
187	H	Q_2	6-SO_2-i-C_3F_7	
188	H	Q_2	7-SO_2-i-C_3F_7	
189	H	Q_2	8-SO_2-i-C_3F_7	
190	H	Q_2	5-$COOC_2H_5$	
191	H	Q_2	6-$COOC_2H_5$	
192	H	Q_2	7-$COOC_2H_5$	
193	H	Q_2	8-$COOC_2H_5$	
194	H	Q_2	5-COOH	
195	H	Q_2	6-COOH	
196	H	Q_2	7-COOH	
197	H	Q_2	8-COOH	
198	H	Q_2	5-Ph	
199	H	Q_2	6-Ph	
200	H	Q_2	7-Ph	
201	H	Q_2	8-Ph	
202	H	Q_2	5-(4-Cl-Ph)	
203	H	Q_2	6-(4-Cl-Ph)	
204	H	Q_2	7-(4-Cl-Ph)	
205	H	Q_2	8-(4-Cl-Ph)	

669

【００５５】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
206	H	Q_2	5-O-Ph	
207	H	Q_2	6-O-Ph	
208	H	Q_2	7-O-Ph	
209	H	Q_2	8-O-Ph	
210	H	Q_2	5-n-C_4H_9	
211	H	Q_2	6-n-C_4H_9	
212	H	Q_2	7-n-C_4H_9	
213	H	Q_2	8-n-C_4H_9	
214	H	Q_2	6-OCF_2CHF_2	m.p.168.7-173.9 ℃
215	H	Q_5	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.239.7- 243.5℃
216	H	Q_2	6-$CF(CF_3)_2$	m.p.209.8- 213.4℃
				(R_3=$COCF_3$)
217	CH_3	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5467(23.6℃)
218	C_2H_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5360(24.3℃)
219	$COCH_3$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5478(24.1℃)
220	COC_2F_5	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5174(25.9℃)
221	$CH_2CH=CH_2$	Q_2	6-OCF_3	m.p.92.5℃
222	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5325(24.2℃)
223	$CH(CH_3)_2$	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5370(24.8℃)
224	H	Q_2	6-OCF_3	nD 1.5380(26.0℃)
				(R_3=COC_2H_5)
225	$CH_2C\equiv CH$	Q_2	6-Br	nD 1.5760(26.2℃)
226	CH_2SCH_3	Q_2	6-Br	nD 1.6030(27.0℃)

【００５６】

第４表（続き）

No	R	R_2	Xn	物　性
227	C_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5974(26.9℃)
228	i-C_3H_7	Q_2	6-Br	nD 1.4680(28.0℃)
229	$COCH_3$	Q_2	6-Br	nD 1.5930(27.2℃)
230	COC_2H_5	Q_2	6-Br	nD 1.5861(26.8℃)
231	CH_2-(4-Cl-Ph)	Q_2	6-Br	nD 1.5885(27.3℃)
232	CO-Ph	Q_2	6-Br	m.p.>300℃
233	CH_3	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5613(27.9℃)
234	C_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5354(26.4℃)
235	n-C_8H_{17}	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5590(25.8℃)
236	CH_2-(2-NO_2-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5917(27.9℃)
237	i-C_4H_9	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5557(26.4℃)
238	CH_2-(4-CH_3O-Ph)	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5668(26.5℃)
239	$COCH_3$	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5503(26.1℃)
240	COC_2H_5	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5470(26.2℃)
241	CO-i-C_3H_7	Q_2	6-$OCHF_2$	nD 1.5196(28.3℃)
242	CO-Q_{11}	Q_2	6-$OCHF_2$	m.p.148-155 ℃
243	CH_3	Q_2	6-CF_2CHF_2	nD 1.5320(26.2℃)
244	C_2H_5	Q_2	6-CF_2CHF_2	nD 1.5239(26.7℃)

【００５７】

尚、第１表、第３表及び第４表中に略号は以下の置換記を示す。

c　：脂環式炭化水素基

Ｐｈ：フェニル基

Q_1 ：２－ピリジル基

Q_2 ：３－ピリジル基

Q_3 ：４－ピリジル基

Q_4 ：２－ピリジル－Ｎ－オキシド基

Q_5 ：３－ピリジル－Ｎ－オキシド基

Q_6 ：４－ピリジル－Ｎ－オキシド基

Q_7 ：チアゾール－５－イル基

Q_8 ：フラン－２－イル基

Q_9 ：１，３－ジオキソラン－２－イル基

Q_{10}：フタルイミド－１－イル基

Q_{11}：チオフェン－２－イル基

【００５８】

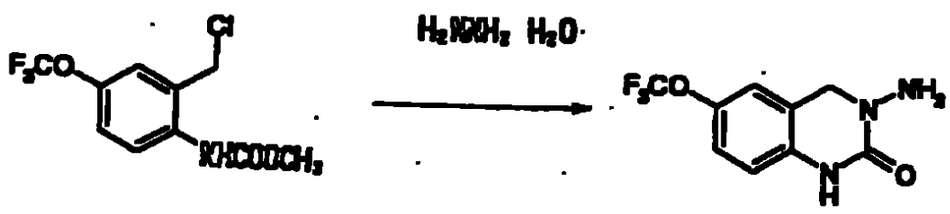
【実施例】

以下に本発明の代表的な実施例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【００５９】

実施例１．３－アミノ－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）－キナゾリノン（化合物No.II-30）の製造。

【化１１】



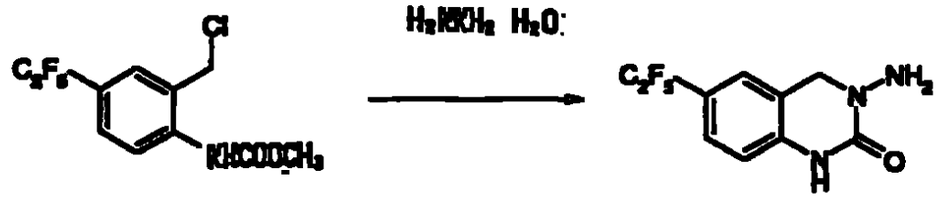
２．８４ｇ（０．０１モル）のメチル　２－クロロメチル－４－トリフルオロメトキシフェニルカーバメートを２０ｍｌのメタノールに溶解し、該溶液に５ｇ（０．１モル）の抱水ヒドラジンを加えて３時間加熱還流下に反応を行った。反応終了後、目的物を含む反応液から過剰の抱水ヒドラジン及び溶媒を減圧下に留去することにより粗生成物を得た。得られた粗生成物を９５％メタノールから再結晶することにより目的物を２．２２ｇ得た。

物性：m．p．１８１．５－１８４℃　　収率：９０％

【００６０】

実施例２．３－アミノ－３，４－ジヒドロ－６－ペンタフルオロエチル－２（１Ｈ）－キナゾリノン（化合物No.II-18）の製造。

【化１２】



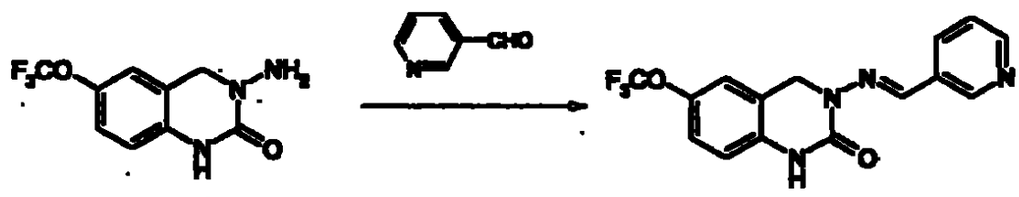
３．１８ｇ（０．０１モル）のメチル　２－クロロメチル－４－ペンタフルオロエチルフェニルカーバメートを２０ｍｌのメタノールに溶解し、該溶液に５ｇ（０．１モル）の抱水ヒドラジンを加えて３時間加熱還流下に反応を行った。反応終了後、目的物を含む反応液から過剰の抱水ヒドラジン及び溶媒を減圧下に留去することにより粗生成物を得、得られた粗生成物を９５％メタノールから再結晶することにより目的物を２．５３ｇ得た。

物性：m．p．１７８．４－１８３．５℃　　収率：９０％

【００６１】

実施例３．３－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．３０）の製造。

【化１３】



０．６２ｇ（２．５ミリモル）の３－アミノ－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）－キナゾリノン、０．２７ｇ（２．５ミリモル）の

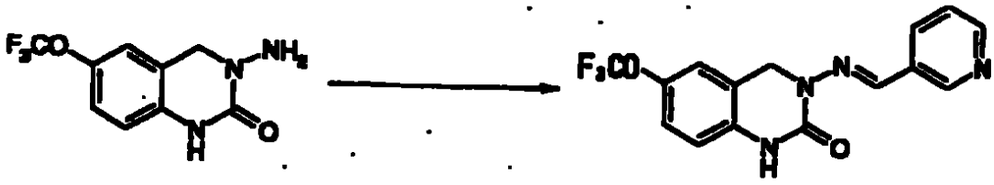
ニコチン酸アルデヒド及び一滴の硫酸を１０ｍｌのメタノール中に加え、加熱還流下に３時間反応を行った。反応終了後、反応系中に析出した結晶を濾集して乾燥することにより目的物０．７６ｇを得た。

物性：ｍ．ｐ．２６４．５－２６６．０℃　　収率：９３％

【００６２】

実施例４．３－〔１－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－ペンタフルオロエチル－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．１８）の製造

【化１４】



０．７４ｇ（２．５ミリモル）の３－アミノ－３，４－ジヒドロ－６－ペンタフルオロエチル－２（１Ｈ）キナゾリノン、０．２７ｇ（２．５ミリモル）のニコチン酸アルデヒド及び一滴の硫酸を１０ｍｌのメタノール中に加え、加熱還流下に３時間反応を行った。反応終了後、反応系中に析出した結晶を濾集して乾燥することにより目的物０．７８ｇを得た。

物性：ｍ．ｐ．２９８．０－３００．０℃　　収率：８４％

【００６３】

実施例５．３－（３－ピリジルメチルアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．１４３）の製造。

674 00630

【化１５】



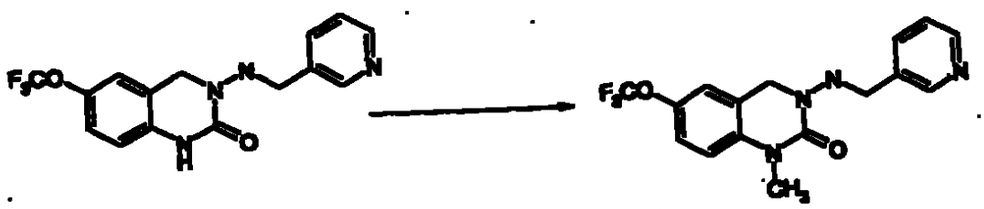
３．３６ｇ（２．５ミリモル）の３－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン及び０．２ｇのパラジウムカーボンを３０ｍｌの酢酸中に加え、３～４Ｋｇ／m^2 で水素添加を行った。理論量の水素が吸収された後、反応液から触媒を濾去し、溶媒を減圧下に留去し、残渣に２０％水酸化ナトリウム水溶液を加えて中和し、目的物をクロロホルム（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（酢酸エチル－メタノール＝１０：１）で精製して目的物を２．５ｇ得た。

物性：ｎＤ　１．５２３３（２２．６° Ｃ）　収率７４％

【００６４】

実施例６．１－メチル－３－（３－ピリジルメチルアミノ）－３，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノン（化合物No．２１７）の製造。

【化１６】



０．６８ｇ（２．０ミリモル）の３－（３－ピリジルメチリデンアミノ）－３

675

，４－ジヒドロ－６－トリフルオロメトキシ－２（１Ｈ）キナゾリノンを１０ｍｌのジメチルホルムアミドに溶解し、その溶液に０．０９ｇの水素化ナトリウム（６２．４％）を加え室温下に３０分反応を行い、次いで０．３４ｇのヨウ化メチルを加えて４時間反応を行った。反応終了後、反応液を氷水中に注ぎ、目的物を酢酸エチル（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（酢酸エチル－メタノール＝１０：１）で精製して目的物を２．５ｇ得た。

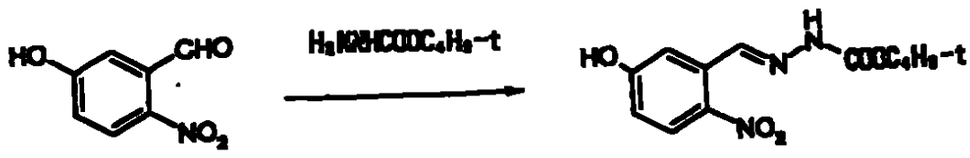
物性：ｎＤ　１．５４６７（２３．６° Ｃ）　収率５０％

【００６５】

実施例７．

７－１．ｔ－ブチル　２－（５－ヒドロキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸の製造。

【化１７】



３．３４ｇ（０．０２モル）の５－ヒドロキシ－２－ニトロベンズアルデヒドと２．６４ｇ（０．０２モル）のｔ－ブチル　カルバジン酸及び一滴の硫酸を２０ｍｌのメタノールに加えて３時間加熱還流下に反応を行った。

反応終了後、反応溶液を室温まで冷却し、析出した結晶を濾集し、目的物を５．０６ｇ得た。

^{1}H-NMR[($CDCl_3$/TMS、δ値(ppm)]

1.57(9H,s), 6.84(1H,d.d), 7.66(1H,d), 7.84(1H,d), 8.42(1H,br.s), 8.46(1H,s).

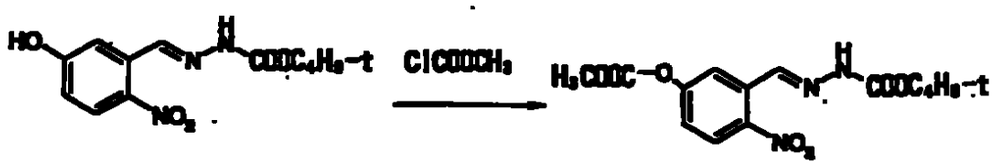
収率：９０％

676

【００６６】

７－２．ｔ－ブチル　２－（５－メトキシカルボニルオキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸の製造。

【化１８】



実施例７－１で得られたｔ－ブチル　２－（５－ヒドロキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸４．２２ｇ（０．０１５モル）と１．６７ｇ（０．０１６５モル）のトリエチルアミンを１５ｍｌのテトラヒドロフランに溶解し、０℃に冷却した。その溶液にクロロギ酸メチル１．５６ｇ（０．０１６５モル）を５ｍｌのテトラヒドロフランに溶解した溶液を１５分かけて滴下した。その後室温にて３時間反応を続けた。反応終了後、反応溶液を２０ｍｌの水中に注ぎ、目的物を酢酸エチル（２０ｍｌ×３）で抽出し、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をヘキサン－エーテルで再結晶して目的物を４．６ｇ得た。

^{1}H-NMR[($CDCl_3$/TMS、δ値(ppm)]

1.54(9H,s), 3.93(3H,s), 7.33(1H,d.d), 8.06(1H,d), 8.14(1H,d), 8.21(1H,br.s), 8.45(1H,s).

収率９０％

【００６７】

７－３．ｔ－ブチル　２－（２－アミノ－５－メトキシカルボニルオキシフェニルメチル）カルバジン酸の製造。

【化１９】



実施例７－２で得られたｔ－ブチル　２－（５－メトキシカルボニルオキシ－２－ニトロフェニルメチリデン）カルバジン酸４．４ｇ（０．０１３モル）と０．４ｇの５％パラジウムカーボンを５０ｍｌのメタノールに加え３～４Ｋｇ／ｍ^{2}で接触還元を行った。理論量の水素が吸収された後、反応溶液から触媒を濾去し、溶媒を減圧下に留去することにより目的物を４ｇ得た。

^{1}H-NMR[($CDCl_3$/TMS、δ値(ppm)]

1.46(9H,s), 3.87(3H,s), 3.96(2H,d), 4.6-5.0(3H,br.s),

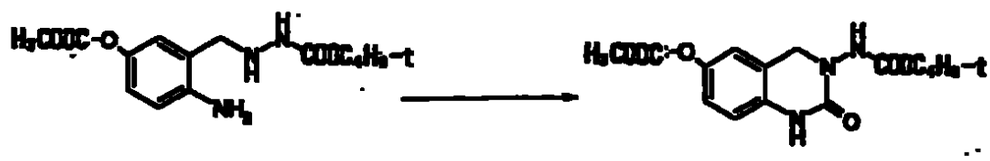
6.05(1H,br.s), 6.6-6.7(1H,m), 6.8-7.0(2H,m).

収率：定量的

【００６８】

７－４．３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－メトキシカルボニルオキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノンの製造。

【化２０】



実施例７－３で得られたｔ－ブチル　２－（２－アミノ－５－メトキシカルボニルオキシフェニルメチル）カルバジン酸３．１ｇ（０．０１モル）及び２．６ｇ（０．０１モル）の１，１’－カルボニル－１Ｈ－イミダゾールを２０ｍｌのテトラヒドロフラン中に溶解し、室温下に３時間反応を行った。反応終了後、反応溶液を２０ｍｌの水中に注ぎ、目的物を酢酸エチル（２０ｍｌ×３）で抽出し

、抽出液を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥させた後、減圧下に溶媒を留去することにより得られた粗生成物をヘキサン－酢酸エチルで再結晶することにより目的物を２．１ｇ得た。

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS 、δ値(ppm)]

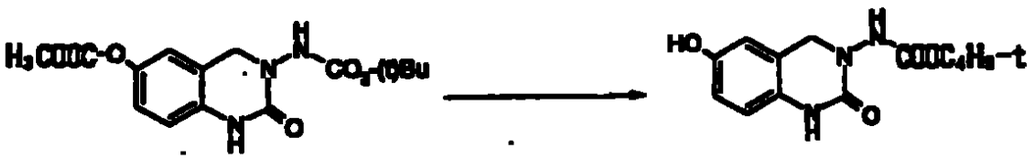
1.42(9H,s), 3.80(3H,s), 4.81(2H,s), 6.5-6.7(3H,m), 9.01(1H,s), 9.15(1H,br.s).

収率：６０％

【００６９】

７－５．３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－ヒドロキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノンの製造。

【化２１】



実施例７－４で得られた３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－メトキシカルボニルオキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノン２．１ｇ（０．００６２モル）と０．６４ｇ（０．００６３モル）の炭酸ナトリウムを５０％メタノール２０ｍｌに加え、加熱還流下に３時間反応を行った。反応終了後、メタノールを減圧下に留去した。残渣を濾集し、９５％メタノールより再結晶させ目的物を１．３ｇ得た。

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS 、δ値(ppm)]

1.42(9,), 4.81(2,), 6.5-6.7(3H,s), 9.01(1H,s), 9.10(1H,s), 9.15(1H,br.s).

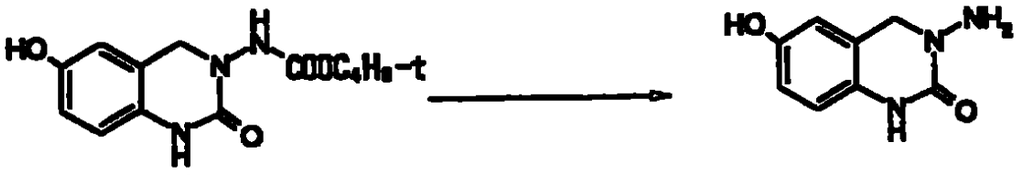
収率：７５％

【００７０】

７－６．３－アミノ－６－ヒドロキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリ

ノン（化合物No. II-2）の製造。

【化２２】



実施例７－５で得られた３－ｔ－ブトキシカルボニルアミノ－６－ヒドロキシ－３，４－ジヒドロ－２（１Ｈ）キナゾリノン１．３ｇ（０．００４６モル）を２０ｍｌのトリフルオロ酢酸に加え、室温下に３時間反応を行った。反応終了後、反応溶液に１０ｍｌのメタノールを加え、溶媒を減圧下に留去して得られた残渣をメタノールより再結晶させ目的物を０．７４ｇ得た。

^{1}H-NMR [DMSO-d_6/TMS 、δ値(ppm)]

4.85(2H,s), 4.65(2H,s), 6.51-6.63(3H,m), 9.00(1H,s), 9.60(1H,br.s).

収率９０％

【００７１】

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は水稲、野菜、果樹、その他の作物及び花弁等を加害する各種農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等の害虫防除にに適しており、例えばチャノミドリヒメヨコバイ(Empoasca brassicae)、ツマグロヨコバイ（Nephotettix cincticeps）、トビイロウンカ（Nilaparvata lugens）、セジロウンカ（Sogatella furcifera ）、ミカンキジラミ（Diaphorina citri）、ミカンコナジラミ（Dialeurodes citri)、タバココナジラミ（Bemisia tabaci）、オンシツコナジラミ（Trialeurodes vaporariorum ）、ダイコンアブラムシ（Brevicoryne brassicae ）、ワタアブラムシ(Aphis gossypii)、ムギクビレアブラムシ(Rhopalosiphum padi)、モモアカアブラムシ（Myzus persicae ）、ツノロウムシ（Ceroplastes ceriferus ）、ミカンワタカイガラムシ（Pulvinaria aurantii ）、ミカンマルカイガラムシ（Pseudaonidia duplex ）、

【００７２】

ナシマルカイガラムシ（Comstockaspis perniciosa）、ヤノネカイガラムシ（Unaspis yanonensis）アカヒゲハソミドリメクラガメ（Trigonotylus coelestialium）等の半翅目害虫、ミナミネグサレセンチュウ（Pratylenchus coffeae）、ジャガイモシストセンチュウ（Globoderarostochiensis）、ネコブセンチュウ（Heloidogyne sp.）、ミカンネセンチュウ（Tylenchulus semipenetrans）、ニセネグサレセンチュウ（Aphelenchusavenae）、ハガレセンチュウ（Aphelenchoides ritzemabosi）等のハリセンチュウ目害虫、イネアザミウマ（Stenchaetothrips biformis）等の総翅目害虫に対しても殺虫効果を有するものである。又、カイコガ（Bombyx mori），マメコバチ（Osmia cornifrons）のような有用昆虫に対しては影響が少なく安全性の高い殺虫剤と言える。尚、学名等は農林有害動物・昆虫名鑑1987年版（日本応用動物昆虫学会編）による。

【００７３】

本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分として含有する有害生物防除剤は水田、果樹、野菜、その他の作物及び花卉等を加害する前記害虫あるいは衛生害虫に対して顕著な殺虫効果を有するものであるので、害虫類の発生が予測される時期に合わせて、害虫類の発生前又は発生が確認された時点で水稲、果樹、野菜、その他の作物、花卉等の種子、根、茎、葉花等の植物体、水田水、又は土壌等へ、衛生害虫にあっては上記害虫の発生若しくは発生が予測される家屋内、家屋周辺の溝等に処理することにより本発明の殺虫剤の所期の効果が奏せられるものであるが、本発明はこれらの態様のみに限定されるものではない。

【００７４】

本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有害生物防除剤として使用する場合、農薬製剤上の常法に従い、使用上都合の良い形状に製剤して使用するのが一般的である。即ち、本発明の一般式(I)で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類は、これらを適当な不活性担体に、又は必要に応じて補助剤と一緒に、適当な割合に配合して溶解、分離、懸濁、混合、含浸、吸着若しくは付着させ、適宜の剤形、例えば懸濁剤、乳剤、液剤、水和剤、粒剤、粉剤、錠剤　に製剤して使用すれば良い

．本発明で使用できる不活性担体としては固体又は液体の何れであっても良く、固体の担体になりうる材料としては、例えばダイズ粉、穀物粉、木粉、樹皮粉、鋸粉、タバコ茎粉、クルミ殻粉、ふすま、繊維素粉末、植物エキス抽出後の残渣、粉砕合成樹脂等の合成重合体、粘土類（例えばカオリン、ベントナイト、酸性白土等）、タルク類（例えばタルク、ピロフィライド等）、シリカ類（例えば珪藻土、珪砂、雲母、ホワイトカーボン〔含水微粉珪素、含水珪酸ともいわれる合成高分散珪酸で、製品により珪酸カルシウムを主成分として含むものもある。〕）、活性炭、イオウ粉末、軽石、焼成珪藻土、レンガ粉砕物、フライアッシュ、砂、炭酸カルシウム、燐酸カルシウム等の無機鉱物性粉末、硫安、燐安、硝安、尿素、塩安等の化学肥料、堆肥等を挙げることができ、これらは単独で若しくは二種以上の混合物の形で使用される。

【００７５】

液体の担体になりうる材料としては、それ自体溶媒能を有するものの他、溶媒能を有さずとも補助剤の助けにより有効成分化合物を分散させうることとなるものから選択され、例えば代表例として次に挙げる担体を例示できるが、これらは単独で若しくは２種以上の混合物の形で使用され、例えば水、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）、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、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等）、エーテル類（例えばエチルエーテル、ジオキサン、セロソルブ、ジプロピルエーテル、テトラヒドロフラン等）、脂肪族炭化水素類（例えばケロシン、鉱油等）、芳香族炭化水素類（例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、アルキルナフタレン等）、ハロゲン化炭化水素類（例えばジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素等）、エステル類（例えば酢酸エチル、ジイソプピルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等）、アミド類（例えばジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等）、ニトリル類（例えばアセトニトリル等）、ジメチルスルホキシド類等を挙げることができる。

【００７６】

他の補助剤としては次に例示する代表的な補助剤を挙げることができ、これら

687
60688

の補助剤は目的に応じて使用され、単独で、ある場合は二種以上の補助剤を併用し、又ある場合には全く補助剤を使用しないことも可能である。有効成分化合物の乳化、分散、可溶化及び／又は湿潤の目的のために界面活性剤が使用され、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、ポリオキシエチレン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン樹脂酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレエート、アルキルアリールスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸縮合物、リグニンスルホン酸塩、高級アルコール硫酸エステル等の界面活性剤を例示することができる。

【００７７】

又、有効成分化合物の分散安定化、粘着及び／又は結合の目的のために、次に例示する補助剤を使用することもでき、例えばカゼイン、ゼラチン、澱粉、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、松根油、糠油、ベントナイト、リグニンスルホン酸塩等の補助剤を使用することもできる。固体製品の流動性改良のために次に挙げる補助剤を使用することもでき、例えばワックス、ステアリン酸塩、燐酸アルキルエステル等の補助剤を使用できる。懸濁性製品の解こう剤として、例えばナフタレンスルホン酸縮合物、縮合燐酸塩等の補助剤を使用することもできる。消泡剤としては、例えばシリコーン油等の補助剤を使用することもできる。有効成分化合物の配合割合は必要に応じて加減することができ、例えば粉剤或いは粒剤とする場合は０．０１～５０重量％、又乳剤或いは水和剤とする場合も同様０．０１～５０重量％が適当である。

【００７８】

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は、各種害虫を防除するために、そのまま、又は水等で適宜希釈し、若しくは懸濁させた形で害虫防除に有効な量を当該害虫に、又は当該害虫の発生若しくは成育が好ましくない場所に適用して使用すればよい。本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生　防除剤の使用量は種々の因子、例

えば目的、対象害虫、作　の生育状況、害虫の発生傾向、天候、環境条件、剤型、施用方法、施用場所、施用時期等により変動するが、有効成分化合物として１０アール当たり０．０１ｇ～５ｋｇの範囲から目的に応じて適宜選択すれば良い。

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤を更に防除対象害虫、防除適期の拡大のため、或いは薬量の低減をはかる目的で他の殺虫剤又は殺菌剤と混合して使用することも可能である。

以下に本発明の代表的な処方例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、処方例中、部とあるのは重量部を示す。

【００７９】

処方例１．

第３又は４表記載の化合物	５０部
キシレン	４０部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと	
アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	１０部

以上を均一に混合溶解して乳剤とする。

処方例２．

第３又は４表記載の化合物	３部
クレー粉末	８２部
珪藻土粉末	１５部

以上を均一に混合粉砕して粉剤とする。

【００８０】

処方例３．

第３又は４表記載の化合物	５部
ベントナイトとクレーの混合粉末	９０部
リグニンスルホン酸カルシウム	５部

以上を均一に混合し、適量の水を加えて混練し、造粒、乾燥して粒剤とする。

処方例４．

第３又は４表記載の化合物　２０部

カオリンと合成高分散珪酸　７５部

ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルとアルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物　５部

以上を均一に混合粉砕して水和剤とする。

【００８１】

試験例１．モモアカアブラムシ（Myzus persicae）に対する殺虫試験。

直径８ｃｍ、高さ８ｃｍのプラスチックポットにハクサイを植えてモモアカアブラムシを繁殖させ、それぞれのポットの寄生虫数を調査した。本発明の第３又は４表記載の化合物を有効成分とする薬剤を水に分散させて５００ppm の薬液に希釈し、該薬液をポット植えハクサイの茎葉に散布して風乾後、ポットを温室に保管し、薬剤散布後６日目にそれぞれのハクサイに寄生しているモモアカアブラムシの寄生虫数を調査し、下記の式より防除価を算出し、下記基準に従って判定を行った。

【００８２】

防除価＝１００－｛（Ｔ×Ｃａ）／（Ｔａ×Ｃ）｝×１００

Ｔａ：処理区の散布前寄生虫数

Ｔ：処理区の散布後寄生虫数

Ｃａ：無処理区の散布前寄生虫数

Ｃ：無処理区の散布後寄生虫数

判定基準.

Ａ・・・防除価１００％

Ｂ・・・防除価９９％～９０％

Ｃ・・・防除価８９％～８０％

Ｄ・・・防除価７９％～５０％

【００８３】

試験例２．トビイロウンカ（Nilaparvata lugens）に対する殺虫試験。

本発明の第３又は４表記載の化合物を有効成分とする薬剤を水に分散させて５００ppm の薬液に希釈し、該薬液にイネ実生（品種：日本晴）を３０秒間浸漬し

685
00691

、風乾した後にガラス試験管に入れ、トビイロウンカ３令を各１０頭づつ接種した後に綿栓をし、接種８日後に生死虫数を調査し、死虫率を下記の式より算出し、試験例１の判定基準に従って判定を行った。

$$\text{補正死虫率（\%）} = \frac{\text{無処理区生存率} - \text{処理区生存率}}{\text{無処理区生存率}} \times 100$$

【００８４】

試験例３．オンシツコナジラミ（Trialeuroddes vaporariorum）に対する殺虫試験。

本発明の第３又は４表記載の化合物を水に分散させて１００ppm の薬液に希釈し、該薬液を２０ｍｌバイアルビンに水差ししたトマト葉に対してターンテーブル上でスプレーガンを用いて散布した。風乾後、処理葉をガラス円筒管に入れ、オンシツコナジラミ成虫を各２０頭接種した。処理後温室に置き、接種４日後に成虫数を調査し、試験例２と同様にして死虫率を算出し、試験例１と同様にして判定を行った。

【００８５】

試験例１、試験例２及び試験例３の結果より、試験例１のモモアカアブラムシに対しては化合物No．６、１８、２２、２６、３０、１１９、１３５、１３９及び１４３はＡの優れた殺虫効果を示し、試験例２のトビイロウンカに対しては化合物No．６、１８、２２、２６、３０、１１９、１３５、１３９及び１４３はＡの優れた殺虫効果を示し、試験例３のオンシツコナジラミに対しては化合物No．６、１０、１４、１８、２２、２６、３０、３８、７８、８６、９０、１１９、１３５、１３９及び１４３はＤ以上の殺虫効果を示し、特に化合物No．６、１８、２２、２６、３０、１１９、１３５、１３９及び１４３はＡの優れた殺虫効果を示すものである。

【００８６】

【発明の効果】

686
60-98

本発明の一般式(I) で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類を有効成分とする有害生物防除剤は、従来の類似の構造を有する化合物では殺虫効果を示さないオンシツコナジラミ類に対して低薬量で優れた殺虫効果を示すものであり、従来に比べて優れた有害生物防除剤である。

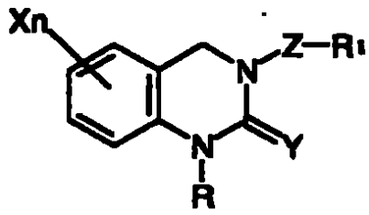
687

【書類名】　要約

【要約】

【解決手段】　一般式(I)：

【化１】



(I)

〔式中、ＲはＨ、ＯＨ、ホルミル、（ハロ）(C_1-C_6)アルキル、ヒドロキシ（C_1-C_6)アルキル、(C_2-C_6)アルケニル、（置換）アミノ(C_1-C_6)アルキル、（置換）アミノカルボニル、（置換）フェニル(C_1-C_3)アルキル、（置換）フェニル(C_2-C_4)アルキニル(C_1-C_3)アルキル、１，３－ジオキソラン－２－イル(C_1-C_3)アルキル、フタルイミド(C_1-C_6)アルキル等、R_1はＯ、Ｓ、Ｎから選択される１～３個のヘテロ原子を有する５～６員複素環等、ＹはＯ、Ｓ、Ｚは$-N=C(R_2)-$、$-N(R_3)-CH(R_2)-$（式中、R_2、R_3はＨ、(C_1-C_6)アルキル等）、Ｂｒ、Ｉ、ＯＨ、ＣＮ、(C_1-C_6)アルキル、(C_2-C_6)アルケニル、（置換）アミノカルボニル、（置換）フェニルオキシ等、ｎは０～４］で表される置換アミノキナゾリノン（チオン）誘導体又はその塩類、並びに有害生物防除剤。

【効果】　従来の類似の構造を有する化合物では殺虫効果を示さないオンシツコナジラミ類に対して低薬量で優れた殺虫効果を示す。

【選択図】　なし

平成12年登簿第 1151 号

認　　証

嘱託人　　目　　連　　勝　　久　　は、

本公証人の面前において別添文書に署名した。

よつて、これを認証する。

平成 12 年11 月22 日、本公証人役場において

東京都中央区日本橋兜町1番10号

東京法務局所属

公証人 渡部正和

Masakazu Watanabe

謄公証№ 035595 号

証　　明

上記署名は、東京法務局所属公証人の署名に相違ないものであり、かつ、その押印は、真実のものであることを証明する。

平成 12 年11 月22 日

東京法務局長　　櫻井　浩

CERTIFICATE

This is to certify that the signature affixed above has been provided by Notary, duly authorized by the Tokyo Legal Affairs Bureau and that the Official Seal appearing on the same is genuine.

NOV. 22 2000

Date

Hiroshi SAKURAI
Director of the Tokyo Legal Affairs Bureau

689 699 845

00095

Industria y Comercio

SUPERINTENDENCIA

NIT : 800176089-2

SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO
Radicacion : C2002069 C2002201 Folios: 345
Fecha (AMD): 2001-01-16 09:21:03
Tramite : 632 PATENTES D 1 REGISTRO/ 467 SOLICITUD
Dependencia: 2020 DIVISION DE NUEVOS CREDITORES

RECIBO OFICIAL DE CAJA : 1,610
FECHA : ENERO 16 DE 2001

C O N S I G N A C I O N

SOLICITANTE	TIPO PAGO	BANCO	SUCURSAL	CUENTA	No. PAGO	Vr. PAGO
FERNANDO MAYANETI	CONSIGNACION	BANCO POPULAR	BOGOTA	050 00110 6	3057227	50,000.00

C O N C E P T O

CANT.	ESTATUTOS	CONCEPTO	TOTAL CONCEPTO
1	50005 01 00 PRORROGA DE TERMINOS	31 PRORROGA DE TERMINOS	50,000.00
		TOTAL : $	50,000.00

SON: CINCUENTA MIL PESOS

RESPONSABLE : _____

PESO DE CAJA APLICADO AL EXPEDIENTE No. _____

Carrera 13 No. 27-00 Pisos 5, 7 y 10
Conmutador: 382 0840
Fax: 350 5220
e-mail: info@sic.gov.co
www.sic.gov.co
Bogotá, D.C.,Colombia

STG