

QP

SUPERINTENDENCIA DE INDUSTRIA Y COMERCIO



DELEGATURA PROPIEDAD INDUSTRIAL

División de Nuevas Creaciones

PCT
SOLICITUD

PATENTE DE INVENCION

ENTRADA EN FASE NACIONAL

03-67428

21. EXPEDIENTE No.

54. TITULO COMPUESTOS DE 6-(1-FLUOROETIL)-5-YODO-4-AMINOPIRIMIDINA, PROCEDIMIENTO

PARA LA PREPARACION DE LOS MISMOS Y CONTROLADORES DE PLAGAS PARA USO

AGRICOLA Y HORTICOLA

51. CLASIFICACION INTERNACIONAL

A01N 43/54

71. SOLICITANTE

UBE INDUSTRIES, LTD.

DOMICILIO

UBE-SHI, YAMAGUCHI 755-8633, JAPON

74. APODERADO

RAMIRO CASTRO DUQUE

22. SANTAFE DE BOGOTA, D.C.

PETITORIO

AS: 91.297

Industria y Comercio
SUPERINTENDENCIA

03 067428 00

SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO
Radicación : 03067428 00000000 Folios: 74
Fecha (AMB): 2003-08-06 16:45:30
Trámite : 011 PCI-PAIENT 379 FASE NNCI 411 PRESENTAC
Dependencia: 2020 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES

FORMULARIO ÚNICO DE SOLICITUD DE PATENTE PCT ENTRADA EN FASE NACIONAL

1

SOLICITUD DE:

☒ Patente de Invención.

☐ Patente de Modelo de Utilidad.

☐ Capítulo I.

☒ Capítulo II.

2

SOLICITANTE
(71)

Nombre: UBE INDUSTRIES, LTD.

Dirección: 1978-96, Oaza kogushi, Ube-Shi,
Yamaguchi 755-8633, JAPON
Nacionalidad o Domicilio: JAPÓN
Lugar de Constitución: JAPÓN
Teléfono: Fax
E-mail

IDENTIFICACION

C.C. ☐ NIT ☐

C.E. ☐ Otro ☐

Cual _____

Número _____

3

REPRESENTANTE
O APODERADO

Nombre: RAMIRO CASTRO DUQUE

Dirección: Cra. 7 No. 16-56 Piso 9

Teléfono: 380-2200 Fax: 380-2700
E-mail:

IDENTIFICACION

C.C. ☒ NIT ☐

C.E. ☐ Otro ☐

Cual _____

Número 170.322 TP 1003

4

INVENTOR (ES)
(72)

Nombre: Katsutoshi Fujii, Shoji Shikita

Dirección: 1978-5, Oaza kogushi, Ube-Shi, Yamaguchi 755-8633, JAPON
(Respectivamente)

Nacionalidad o Domicilio: JAPÓN (Respectivamente)

5 PCT (88)

Solicitud Internacional No. PCT/JP02/00064 Fecha 10-01-2002

Publicación Internacional No. WO 02/066444 A1 Fecha 29-08-2002

Título (54): COMPUESTOS DE 6-(1-FLUOROETIL)-5-YODO-4-AMINOPYRIMIDINA. PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACIÓN DE LOS MISMOS Y CONTROLADORES DE PLAGAS PARA USO AGRÍCOLA Y HORTÍCOLA

7 Clasificación Internacional (51) A01N 43/54 ; C07D 239/42

8 Prioridad

SI ☒ NO ☐

(33) País de Origen

JP

(32) Fecha

11-01-2001

(31) Número de Solicitud

2001-3825

Comprobante de pago No. 103-18617

Fecha 05-08-2003

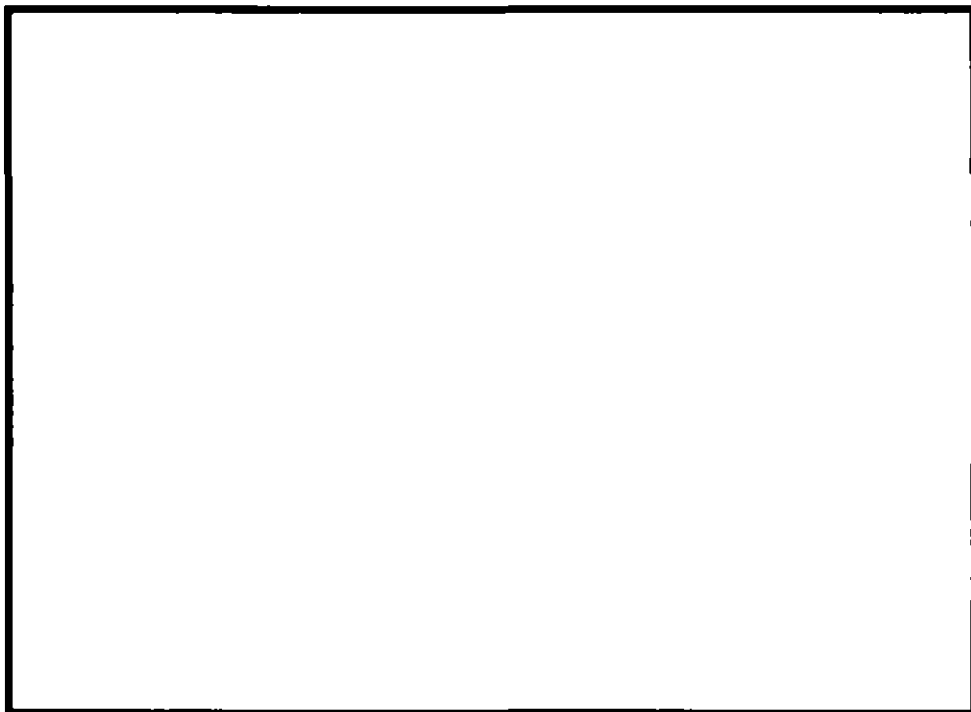
Instrucciones para el diligenciamiento del presente formulario, ver reverso de esta página.

10

ANEXOS

- ☒ Comprobante de pago de la tasa de presentación de la solicitud. \$400.000
- ☐ Documento que acredite la existencia y representación legal cuando el solicitante sea persona jurídica.
- ☐ Poderes, al fuere el caso.
- ☐ Documento de cesión del inventor al solicitante o a su causante.
- ☐ Declaraciones
- ☒ Copia de la solicitud internacional. (Resumen, descripción, reivindicaciones, dibujos)
- ☒ Traducción de la solicitud internacional al castellano. (Resumen, descripción, reivindicaciones, dibujos)
- ☒ Copia del examen preliminar efectuado por la IPEA.
- ☐ Traducción del examen preliminar efectuado por la IPEA.
- ☐ De ser el caso, copia del contrato de acceso.
- ☐ De ser el caso, documento que acredite la licencia o autorización de uso de conocimientos tradicionales de las comunidades indígenas.
- ☐ De ser el caso, certificado de depósito del material biológico.
- ☐ Arte final 12x12.
- ☐ De ser el caso, información sobre otras solicitudes de patente o títulos obtenidos en el extranjero por el mismo titular o su causante, relacionadas parcial o totalmente con la invención de esta solicitud.
- ☒ Otros Tarjeta de propletarico.

11 FIGURA CARACTERÍSTICA:



120. Soldo la conscripción de la patente

NOMBRE: PATRICK CASTRO BUDLE

FIRMA: 

C.C. 17012263 Bogotá T.P. 10036510 SH

Instrucciones para la presentación de los anexos, ver reverso de esta página.

SUPERINDUSTRIA Y COMERCIO
 Radicacion : 03067428 00000000
 Fecha (ORD): 2003-05-06 16:45:30
 Trámite : 011 PC1-PATENT 379 FASE NRC1 411 PRESENTAC
 Dependencia: 2020 DIVISION DE NUEVAS CREACIONES
 NIT : 800176089-

Folios: 74

RECIBO OFICIAL DE CAJA : 03 - 36,617
 FECHA : MAYO 26 DE 2003

***** CONSIGNACION *****

DEPOSITANTE	TIPO PAGO	BANCO	CUENTA	No. PAGO	FECHA PGO	Vr. PAGO
BRIGARD & CASTRO LTDA	CONSIGNACION	BANCO POPULAR	050-00110-6	7320826	26/05/2003	24,340,000.00
BRIGARD & CASTRO LTDA	CONSIGNACION	BANCO POPULAR	050-00110-6	7320828	26/05/2003	1,120,000.00

***** CONCEPTO *****

CANT.	RENTISTICO	CONCEPTO	TOTAL CONCEPTO
1	50005-01-01 SOLICITUDES	1 TRAMITES DE SOL. DE PATENTE DE IN	400,000.00
		TOTAL :	\$ 400,000.00

SON: CUATROCIENTOS MIL PESOS

RESPONSABLE : _____

RECIBO DE CAJA APLICADO AL EXPEDIENTE No. _____

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 8 月 29 日 (29.08.2002)

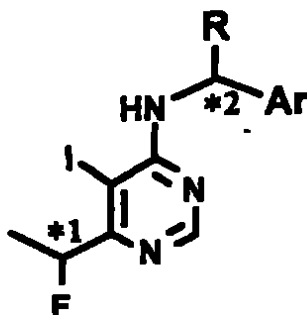
PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/066444 A1

- (51) 国際特許分類: C07D 239/42, 755-8633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 5 宇部興産株式会社宇部研究所内 Yamaguchi (JP).
409/12, 405/12, A01N 43/54
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/00064 (74) 代理人: 津国 豊 (TSUKUNI, Hajime); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 1 2 号 S V A X T S ビル Tokyo (JP).
- (22) 国際出願日: 2002 年 1 月 10 日 (10.01.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AU, BA, BB, BG, BR, BZ, CA, CN, CQ, CR, CU, CZ, DM, DZ, EC, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, OM, PH, PL, RO, SG, SI, SK, TN, TT, UA, US, UZ, VN, YU, ZA.
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願 2001-3825 2001 年 1 月 11 日 (11.01.2001) JP (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア 特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ 特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 宇部興産株式会社 (UBE INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒755-8633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 9 8 Yamaguchi (JP).
- (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 藤井 勝利 (FUJII, Katsutoshi) [JP/JP]; 〒755-8633 山口県宇部市大字小串 1 9 7 8 番地の 5 宇部興産株式会社宇部研究所内 Yamaguchi (JP). 数田 庄司 (SHIKITA, Shoji) [JP/JP];
- 添付公開書類:
国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: 6-(1-FLUOROETHYL)-5-iodo-4-aminopyrimidine COMPOUNDS, PROCESS FOR PREPARATION OF THE SAME, AND PEST CONTROLLERS FOR AGRICULTURAL AND HORTICULTURAL USE

(54) 発明の名称: 6-(1-フルオロエチル)-5-ヨード-4-アミノピリミジン化合物、その製法及び農園薬用の有害生物防除剤



(I)

(57)-Abstract: 6-(1-Fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compounds represented by the general formula (I), a process for preparing the compounds, and pest controllers containing the same as the active ingredient: (I) wherein Ar is phenyl which may have one to three substituents selected from the group consisting of halogeno, C₁₋₄ alkyl, C₁₋₄ haloalkyl, C₁₋₄ alkoxy, C₁₋₄ haloalkoxy, and phenoxy, naphthyl, thienyl, indanyl, or 1,4-benzodioxan-6-yl; R is hydrogen or C₁₋₄ alkyl; *1 represents an asymmetric carbon atom; and *2 represents an asymmetric carbon atom when R is C₁₋₄ alkyl.

/続き /

WO 02/066444 A1

Specification

6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound,
process for preparing the same, and agricultural and
5 horticultural chemicals for controlling noxious organisms

Technical field

The present invention relates to a novel 6-(1-
fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound useful as
10 agricultural and horticultural chemicals for controlling
noxious organisms.

Background art

The 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine
15 compound of the present invention is a novel compound and
it has not been known that it has agricultural and
horticultural effects of controlling noxious organisms.

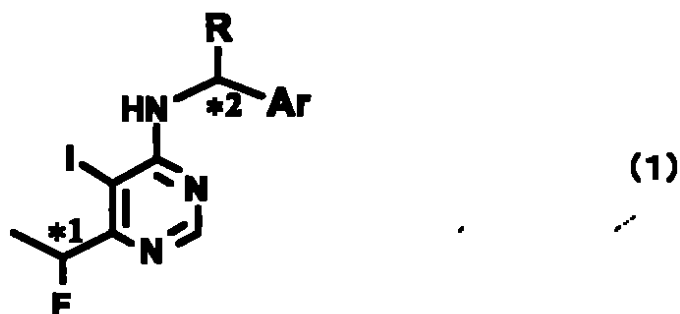
An object of the present invention is to provide a
novel 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound,
20 a process for preparing the same and agricultural and
horticultural chemicals for controlling noxious organisms
containing the same as an effective ingredient.

Disclosure of the invention

25 The present inventors have studied to solve the
above-mentioned problems, and as a result, they have found
that novel 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine
compounds have remarkable insecticidal, acaricidal,
nematocidal and fungicidal effects for an agricultural and
30 horticultural use, whereby they have accomplished the
present invention.

That is, the present invention is as shown below.

The first invention relates to a 6-(1-fluoroethyl)-5-
iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the
35 following formula (1):



wherein Ar represents a phenyl group, a naphthyl group, a thienyl group, an indanyl group or a 1,4-benzodioxan-6-yl group, which is unsubstituted or substituted by 1 to 3 substituents selected from the group consisting of a halogen atom, an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms, an alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms and a phenoxy group; R represents a hydrogen atom or an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms; *1 represents an asymmetric carbon atom; *2 represents an asymmetric carbon atom when R represents an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms.

The second invention relates to a process for preparing the 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the above-mentioned formula (1), which comprises reacting 4-chloro-6-(1-fluoroethyl)-5-iodopyrimidine represented by the following formula (2):



wherein *1 has the same meaning as defined above, with an amine represented by the following formula (3):



wherein Ar, R and *2 have the same meanings as

defined above.

The third invention relates to an agricultural and horticultural chemicals for controlling noxious organisms containing the 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the above-mentioned formula (1) as an effective ingredient.

Best mode for carrying out the invention

In the following, the present invention will be explained in detail.

The respective substituents shown in the above-mentioned respective compounds are as mentioned below.

Ar is a phenyl group, a naphthyl group, a thienyl group, an indanyl group or a 1,4-benzodioxan-6-yl group, which is unsubstituted or substituted by 1 to 3 substituents selected from the group consisting of a halogen atom, an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms, an alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms and a phenoxy group.

R is a hydrogen atom or an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms.

*1 is an asymmetric carbon atom.

*2 is an asymmetric carbon atom when R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms.

As the halogen atom which is a substituent for Ar, there may be mentioned, for example, a chlorine atom, an iodine atom, a bromine atom, a fluorine atom, etc., and preferably a chlorine atom and a fluorine atom.

As the alkyl group having 1 to 4 carbon atoms which is a substituent for Ar, there may be mentioned, for example, a straight or branched alkyl group, and preferably a methyl group, an ethyl group, an isopropyl group and a t-butyl group.

As the haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms which is a substituent for Ar, there may be mentioned, for

X
8

example, a difluoromethyl group, a trifluoromethyl group, 2,2,2-trifluoroethyl group, a 2-fluoroethyl group, etc., preferably a trifluoromethyl group.

5 As the alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms which is a substituent for Ar, there may be mentioned, for example, a straight or branched alkoxy group, preferably a methoxy group and an ethoxy group.

10 As the haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms which is a substituent for Ar, there may be mentioned, for example, a difluoromethoxy group, a trifluoromethoxy group, 2,2,2-trifluoroethoxy group, a 2-trifluoroethoxy group, etc., and preferably a difluoromethoxy group and a trifluoromethoxy group.

15 As the phenoxy group which is a substituent for Ar, there may be mentioned, for example, a phenoxy group which may be substituted by the above-mentioned halogen atom, the alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, the haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms, the alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms or a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon
20 atoms, preferably an unsubstituted phenoxy group.

A number of these substituents is preferably 1 to 3.

As the alkyl group having 1 to 4 carbon atoms of R, there may be mentioned, for example, a straight or branched alkyl group, and preferably a methyl group, an ethyl group,
25 an i-propyl group, a n-butyl group and an i-butyl group.

The compound (1) of the present invention has an amino group so that an acid addition salt derived therefrom is also included in the present invention.

As an acid which forms an acid addition salt, there
30 may be mentioned, for example, an inorganic acid such as hydrochloric acid, hydrobromic acid, nitric acid, sulfuric acid, phosphoric acid, etc.; a carboxylic acid such as formic acid, oxalic acid, fumaric acid, adipic acid, stearic acid, oleic acid, aconitic acid, etc.; a sulfonic
35 acid such as methanesulfonic acid, benzenesulfonic acid, p-toluenesulfonic acid, etc.; saccharine, etc.

Also, the compound (1) of the present invention contains an asymmetric carbon atom represented by *1 and *2 so that the respective optical isomers, racemic isomers, diastereomers or a mixture thereof derived therefrom are each included in the present invention.

Among the compounds (1) of the present invention, particularly preferred compounds may include the following.

- (1) A compound in which R is a hydrogen atom, and Ar is a phenyl group substituted by an alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms. For example, there may be mentioned Compounds 5, 6, etc. shown in Table 1 mentioned below.
- (2) A compound in which R is a hydrogen atom, and Ar is a phenyl group substituted by an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms. For example, there may be mentioned Compounds 1, 2, 11, etc. shown in Table 1 mentioned below.
- (3) A compound in which R is a hydrogen atom, and Ar is a phenyl group substituted by a phenoxy group. For example, there may be mentioned Compound 12, etc. shown in Table 1 mentioned below.
- (4) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is an unsubstituted phenyl group. For example, there may be mentioned Compounds 13 to 18, etc. shown in Table 1 mentioned below.
- (5) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is a phenyl group substituted by a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms and a halogen atom. For example, there may be mentioned Compound 22, etc. shown in Table 1 mentioned below.
- (6) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is a phenyl group substituted by a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms. For example, there may be mentioned Compounds 20, 21, 23, etc. shown in Table 1 mentioned below.
- (7) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is a phenyl group substituted by a halogen atom. For example, there may be mentioned

7
10

Compounds 24, 25, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(8) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is a phenyl group substituted by an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms. For example, there may be mentioned Compounds 27, 28, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(9) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is an unsubstituted indanyl group. For example, there may be mentioned Compounds 36, 37, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(10) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is an unsubstituted 1,4-benzodioxan-6-yl group. For example, there may be mentioned Compound 39, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(11) A compound in which R is a hydrogen atom, and Ar is a phenyl group substituted by a halogen atom. For example, there may be mentioned Compounds 3, 7, 8, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(12) A compound in which R is a hydrogen atom, and Ar is a phenyl group substituted by a haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms. For example, there may be mentioned Compound 4, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(13) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is an unsubstituted naphthyl group. For example, there may be mentioned Compound 29, etc. shown in Table 1 mentioned below.

(14) A compound in which R is an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, and Ar is an unsubstituted thienyl group. For example, there may be mentioned Compound 33, etc. shown in Table 1 mentioned below.

A synthetic method of the above-mentioned compound (1) according to the present invention is described in detail.

(Synthetic method)

Compound (1) is synthesized by reacting Compound (2) with Compound (3) in a solvent, in the presence of a base.

2
11

As a kind of the solvent, it is not particularly limited so long as it does not directly participate in the present reaction, and there may be mentioned, for example, a chlorinated or not chlorinated aromatic, aliphatic or alicyclic hydrocarbon such as benzene, toluene, xylene, methylnaphthalene, petroleum ether, ligroin, hexane, chlorobenzene, dichlorobenzene, chloroform, dichloroethane, trichloroethylene, etc.; an ether such as tetrahydrofuran, dioxane, diethyl ether, etc.; a nitrile such as acetonitrile, propionitrile, etc.; a ketone such as acetone, methyl ethyl ketone, etc.; an aprotic polar solvent such as N,N-dimethylformamide, dimethylsulfoxide, sulforane, N,N-dimethylimidazolidinone, N-methylpyrrolidone, etc.; and a mixture of the above-mentioned solvents.

15 An amount of the solvent to be used is preferably such that the content of Compound (2) becomes 5 to 80% by weight; and more preferably 10 to 70% by weight.

20 A kind of the base is not specifically limited, and an organic base and an inorganic base are mentioned. There may be mentioned, for example, a tertiary amine such as triethylamine, an organic base such as DBU, an inorganic base such as a hydride, hydroxide, carbonate, hydrogen carbonate of an alkali metal or an alkaline earth metal; and preferably an organic base such as triethylamine.

25 An amount of the base to be used is preferably 1 to 5-fold mol, more preferably 1.2 to 2.0-fold mol based on the amount of Compound (2).

30 A reaction temperature is not specifically limited, and it is preferably within the temperature range from a room temperature to a boiling point or less of the solvent to be used, particularly preferably 60 to 110°C.

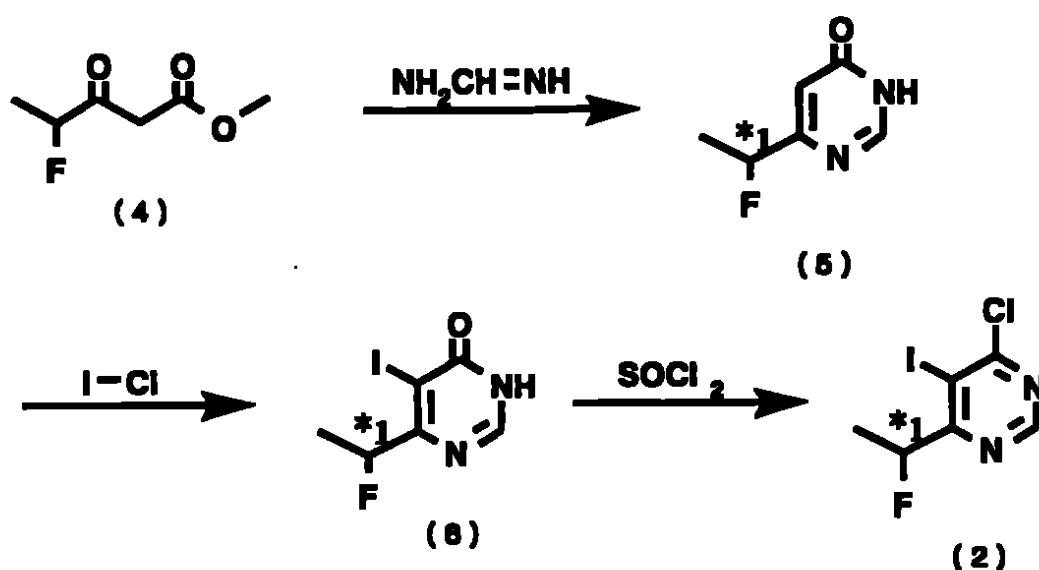
A reaction time may vary depending on the above-mentioned concentration and temperature, and generally 0.5 to 8 hours.

35 An amount of the starting compound to be used is preferably 1.0 to 5-fold mol of Compound (3) based on the

37
12

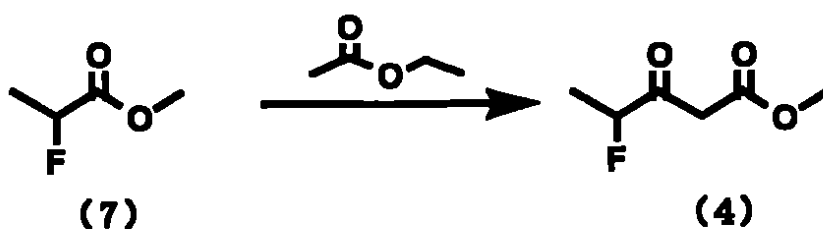
amount of Compound (2), and more preferably 1 to 1.1-fold mol.

Compound (2) to be used in the present invention can be prepared by the method shown in the following scheme according to the description of Japanese Patent Application No. 2000-384776.



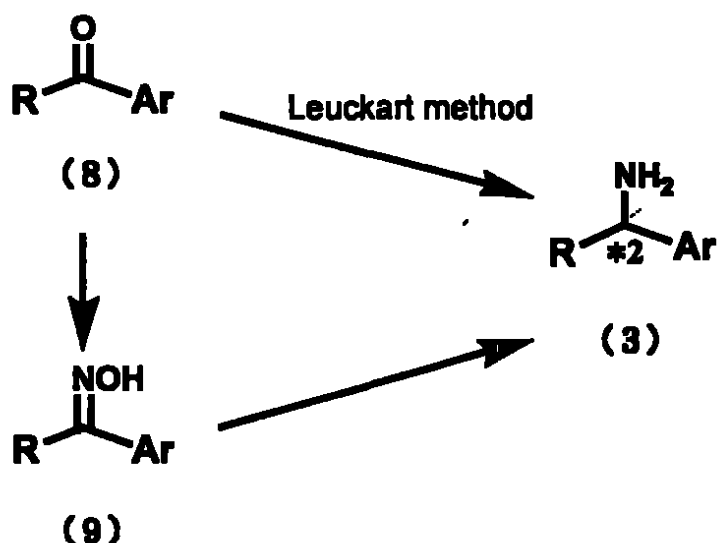
wherein *1 has the same meaning as defined above.

Compound (4) can be prepared, for example, by the method according to Japanese Provisional Patent Application No. 171834/1999.



Compound (3) may be a commercially available product or may be prepared by the method shown in the following scheme.

3



wherein Ar, R and *2 have the same meanings as defined above.

The desired Compound (1) prepared as mentioned above
 5 may be subjected to usual post-treatment such as extrac-
 tion, concentration, filtration, etc. after completion of
 the reaction, and, if necessary, may be subjected to
 purification by the known methods such as recrystalliza-
 tion, various kinds of chromatographies, etc.
 10 (Controlling effects)

As the agricultural and horticultural noxious
 organisms on which a controlling effect by the compound (1)
 of the present invention can be observed, there may be
 mentioned agricultural and horticultural noxious insects
 15 [e.g. *Hemiptera* (planthoppers, leafhoppers, aphides, white-
 flies, etc.), *Lepidoptera* (cabbage armyworms, diamond-back
 moth, leafroller moths, pyralid moths, codling moths,
cabbage butterfly, etc.), *Coleoptera* (Tenebrionid beetles,
 leafbeetles, weevils, scarabs, etc.), *Acarina* (citrus red
 20 mite, two-spotted spider mite, etc. of *Tetranychidae*
 family, pink citrus rust mite of *Eriophyidae* family,
 etc.)], nematodes (e.g. root knot nematodes, cystcid
 nematodes, root lesion nematodes, white-tip nematodes, pine
 wood nematodes), bulb mite in soil, hygienically noxious
 25 insects (e.g. flies, mosquitoes, cockroaches, etc.),

7/14

noxious insects of stored grains (e.g. rust-red flour beetles, bean weevils, etc.), wood insects (e.g. termite such as formosan subterranean termite, *Reticulitermes speratus* and *Cryptotermes domesticus*; powderpost beetles, drugstore beetles, carpenter moths, long-horned beetle, bark beetles, etc.) and also agricultural and horticultural diseases (e.g. wheat brown rust, barley powdery mildew, cucumber downy mildew, rice blast, tomato late blight, etc.).

10 (Chemical for controlling noxious organisms)

The agricultural and horticultural chemical for controlling noxious organisms of the present invention has particularly remarkable in insecticidal, acaricidal and nematocidal effects, and contains one or more kinds of

15 Compound (1) as an effective ingredient.

Compound (1) may be used singly, however, it is generally preferred to use the same by formulating a carrier, surfactant, dispersant, auxiliary, etc. (for example, it is prepared as a composition such as dust powder, an emulsifiable concentrate, a fine granule, a granule, a wettable powder, an oily suspension, an aerosol, etc.) according to the conventionally known method.

As the carrier, there may be mentioned, for example, a solid carrier such as talc, bentonite, clay, kaolin, diatomaceous earth, white carbon, vermiculite, calcium hydroxide, siliceous sand, ammonium sulfate, urea, etc., a liquid carrier such as hydrocarbon (kerosine, mineral oil, etc.), aromatic hydrocarbon, (benzene, toluene, xylene, etc.), chlorinated hydrocarbon (chloroform, carbon tetrachloride, etc.), ethers (dioxane, tetrahydrofuran, etc.), ketones (acetone, cyclohexanone, isophorone, etc.), esters (ethyl acetate, ethyleneglycol acetate, dibutyl maleate, etc.), alcohols (methanol, n-hexanol, ethylene glycol, etc.), aprotic polar solvent (dimethylformamide, dimethylsulfoxide, etc.), water, etc.; a gas carrier such as air, nitrogen, a carbon dioxide

15

gas, fleone, etc. (in this case, mixture spreading can be carried out), and the like.

As the surfactant and dispersant which can be used for improving attachment of the present chemical to and absorption thereof in animals and plants, and improving characteristics such as dispersion, emulsification and spreading of the chemical, there may be mentioned, for example, alcohol sulfates, alkylsulfonate, lignosulfonate and polyoxyethylene glycol ether. As a surfactant, there may be used commercially available products, for example, Neopelex powder (trade name, produced by Kao K.K.), Demol (trade name, produced by Kao K.K.), Toxanone (trade name, produced by Sanyo Chemical Industries, Ltd.) and the like. Further, for improving properties of its formulation, for example, carboxymethyl cellulose, polyethylene glycol and gum arabic can be used as an auxiliary.

In preparation of the present chemical, the above-mentioned carrier, surfactant, dispersant and auxiliary can be used singly or in a suitable combination, respectively, depending on the respective purposes.

When the compound (1) of the present invention is made into formulations, the concentration of the active ingredient is generally 1 to 50% by weight in an emulsifiable concentrate, generally 0.3 to 25% by weight in a dust-able powder, generally 1 to 90% by weight in a wettable powder, generally 0.5 to 5% by weight in a granule, generally 0.5 to 5% by weight in an oily suspension, and generally 0.1 to 5% by weight in an aerosol.

These formulations can be provided for various uses by diluting them to a suitable concentration and spraying them to stems and leaves of plants, soil and paddy field surface, or by applying them directly thereto, depending on the purposes.

Example

In the following, the present invention will be

16

explained specifically by referring to Reference examples and Examples. Incidentally, these will not limit the scope of the present invention.

Reference example 1 (Synthetic method of Compound (5))

5 Synthesis of 6-(1-fluoroethyl)-4-pyrimidone

In methanol (1000 ml) was dissolved methyl 4-fluoro-3-oxopentanoate (93.3 g), and a 28% sodium methyolate/methanol solution (365 g) and formamidine acetate (98.4 g) were successively added to the solution, and the
10 resulting mixture was refluxed at 40°C for 12 hours.

After completion of the reaction, the mixture was cooled to 10°C or lower, and a mixture of conc. sulfuric acid (95.1 g) and water (85 g) was added to the above mixture. Then, the mixture was stirred at 50°C for 30
15 minutes, insoluble materials were removed by filtration, and the filtrate was concentrated under reduced pressure. The resulting residue was recrystallized from isopropanol to obtain 58 g of the desired compound as colorless crystal.

20 m.p.: 170.0 to 171.5°C

Reference example 2 (Synthetic method of Compound (6))

Synthesis of 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-pyrimidone

To an acetic acid (150 ml) solution of 6-(1-fluoroethyl)-4-pyrimidone (56.8 g) was added dropwise under
25 room temperature and stirring an acetic acid solution of iodine monochloride prepared by adding iodine (50.8 g) to acetic acid (500 ml) and blowing chlorine (15 g) thereinto under room temperature and stirring, and the resulting mixture was stirred for 6 hours.

30 After completion of the reaction, the acetic acid was removed under reduced pressure, water (300 ml) was added to the residue to dissolve the material, and pH of the mixture was adjusted to 5 with 2N sodium hydroxide and an aqueous saturated sodium hydrogen carbonate solution. The
35 precipitated crystals were collected by filtration, washed with water and dried to obtain 85 g of the desired product

26
17

as pale ochreous crystal.

Moreover, the crystal was purified by recrystallization from ethyl acetate-hexane to obtain 76.0 g of the desired product as colorless needle-like crystal.

5 m.p.: 195 to 196°C

Reference example 3 (Synthetic method of Compound (2))

Synthesis of 4-chloro-6-(1-fluoroethyl)-5-iodopyrimidine

To ethyl acetate (180 ml) was added 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-pyrimidone (53.6 g), N,N-dimethylformamide
10 (1.5 g) was added to the mixture and the resulting mixture was stirred at 70°C while heating. Subsequently, thionyl chloride (28.6 g) was added dropwise to the mixture and stirred for 3 hours to complete the reaction.

After cooling the reaction mixture, the mixture was
15 poured into ice-cold water, and pH of the mixture was adjusted to 4 with 2N sodium hydroxide. The ethyl acetate layer was collected by separation, washed with water, and then, dried over anhydrous sodium sulfate. Subsequently, under reduced pressure, the solvent was removed by
20 distillation, and the obtained residue was purified by distillation under reduced pressure to obtain 54.6 g of the desired compound as a pale yellowish liquid.

b.p.116 to 118°C/4 mmHg

Example 1 (Synthetic method of Compound (1))

25 (1) Synthesis of 4-(4-t-butylbenzylamino)-6-(1-fluoroethyl)-5-iodopyrimidine (Compound 1)

In 20 ml of toluene were dissolved 4-t-butylbenzylamine (0.8 g) and triethylamine (0.6 g), and 4-chloro-6-(1-fluoroethyl)-5-iodopyrimidine (1.5 g) was added to the
30 solution and the resulting mixture was stirred at about 80°C for 3 hours.

After completion of the reaction, triethylamine hydrochloride was removed by filtration, the solvent was removed under reduced pressure, and the obtained residue
35 was purified by silica gel column chromatography (Wako gel C-200, eluent; n-hexane/ethyl acetate=3/1) to obtain 1.5 g

18

of the objective product as colorless small plate-shaped crystal.

m.p.: 114 to 115°C

¹H-NMR (CDCl₃, δ ppm)

5 1.32 (9H, s), 1.61 to 1.71 (3H, d-d), 4.68 to 4.70 (2H, d), 3.74 to 3.81 (2H, q), 5.70 to 5.92 (1H, d-q), 5.76 (1H, b), 7.26 to 7.41 (4H, m), 8.50 (1H, s)

(2) Synthesis of 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-(α-methylbenzylamino)pyrimidine (Compound 13)

10 In 40 ml of toluene were dissolved α-methylbenzylamine (1.2 g) and triethylamine (1.2 g), and 4-chloro-6-(1-fluoroethyl)-5-iodopyrimidine (2.9 g) was added to the solution and the resulting mixture was stirred at about 80°C for 3 hours.

15 After completion of the reaction, triethylamine hydrochloride was removed by filtration, the solvent was removed under reduced pressure, and the obtained residue was purified by silica gel column chromatography (Wako gel C-200, eluent; n-hexane/ethyl acetate=3/1) to obtain 2.9 g
20 of the desired product as a pale orange viscous liquid.

¹H-NMR (CDCl₃, δ ppm)

1.57 to 1.69 (6H, m), 4.68 to 4.70 (2H, d), 5.24 to 5.92 (1H, d-q), 5.83 (1H, b), 7.24 to 7.37 (5H, m), 8.43 (1H, s)

25 (3) Synthesis of other Compound (1) in Table 1

According to the methods described in the above-mentioned (1) and (2), other compounds (1) in Table 1 were synthesized.

30 The compounds (1) synthesized as mentioned above and their physical properties are shown in Table 1.

*1 is all racemic mixtures (R,S).

28
19

Table 1

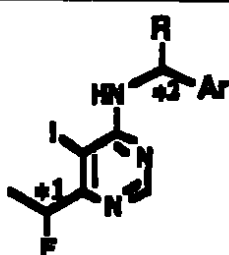
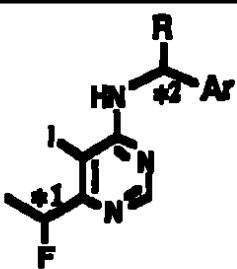
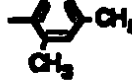
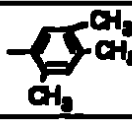
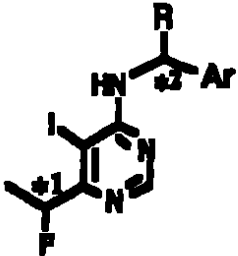
 (1)				
Compound	Ar	R	* 2	Physical property
1		H	R, S	m.p.114~115°C
2		H	R, S	m.p.80~81°C
3		H	R, S	m.p.105~106°C
4		H	R, S	m.p.112~113°C
5		H	R, S	$n_D^{21.5}$ 1.6089
6		H	R, S	m.p.62~63°C
7		H	R, S	m.p.72~73°C
8		H	R, S	m.p.69~71°C
9		H	R, S	
10		H	R, S	
11		H	R, S	m.p.62~63°C
12		H	R, S	$n_D^{18.5}$ 1.6145
13		CH ₃	R, S	$n_D^{22.5}$ 1.6053
14		CH ₃	S	$n_D^{22.3}$ 1.6061
15		CH ₃	R	$n_D^{22.2}$ 1.6065
16		C ₂ H ₅	R, S	$n_D^{23.1}$ 1.5993
17		C ₄ H ₉ -n	R, S	$n_D^{18.5}$ 1.5827
18		C ₄ H ₉ -l	R, S	$n_D^{23.7}$ 1.5831
19		CH ₃	R, S	
20		C ₂ H ₅	R, S	$n_D^{22.5}$ 1.5645

Table 1 (contd.)

 (1)				
Compound	Ar	R	* 2	Physical property
2 1		C ₂ H ₅	R, S	unable to measure
2 2		CH ₃	R, S	$n_D^{23.4}$ 1.5755
2 3		CH ₃	R, S	$n_D^{22.5}$ 1.5675
2 4		C ₂ H ₅	R, S	$n_D^{23.1}$ 1.6002
2 5		CH ₃	R, S	$n_D^{23.7}$ 1.6006
2 6		CH ₃	R, S	$n_D^{23.6}$ 1.5936
2 7		CH ₃	R, S	$n_D^{23.7}$ 1.5842
2 8		CH ₃	R, S	$n_D^{23.5}$ 1.5837
2 9		CH ₃	R, S	m.p.110~112°C
3 0		CH ₃	R, S	
3 1		C ₂ H ₅	R, S	
3 2		CH ₃	R, S	
3 3		CH ₃	R, S	$n_D^{23.3}$ 1.6105
3 4		CH ₃	R, S	
3 5		CH ₃	R, S	

22

Table 1 (contd.)

 (1)				
Compound	Ar	R	* 2	Physical property
36		CH ₃	R, S	n _D ^{19.5} 1.5923
37		C ₂ H ₅	R, S	n _D ^{19.5} 1.5856
38		CH ₃	R, S	
39		CH ₃	R, S	n _D ^{19.1} 1.5835
40		CH ₃	R, S	

Example 2 (Preparation of formulations)

(1) Preparation of granule

5 Five parts by weight of Compound (1) were uniformly mixed with 35 parts by weight of bentonite, 57 parts by weight of talc, 1 part by weight of Neopelex powder (trade name, produced by Kao K.K.) and 2 parts by weight of sodium lignosulfonate, then the mixture was kneaded with addition
10 of a small amount of water, followed by granulation and drying, to obtain a granule.

(2) Preparation of wettable powder

 Ten parts by weight of Compound (1) were uniformly mixed with 70 parts by weight of kaolin, 18 parts by weight
15 of white carbon, 1.5 parts by weight of Neopelex powder (trade name, produced by Kao K.K.) and 0.5 part by weight of Demol (trade name, produced by Kao K.K.), then the mixture was pulverized to obtain a wettable powder.

(3) Preparation of emulsifiable concentrate

20 Twenty parts by weight of Compound (1) were uniformly

3
22

mixed with 70 parts by weight of xylene by adding 10 parts by weight of Toxanone (trade name, produced by Sanyo Chemical Industries, Ltd.), and mixed therein uniformly to obtain an emulsifiable concentrate.

5 (4) Preparation of dustable powder,

Five parts by weight of Compound (1) were uniformly mixed with 50 parts by weight of talc and 45 parts by weight of kaolin to obtain dustable powder.

Example 3 (Tests of effects)

10 (1) Test of effect on green caterpillar (common cabbage worm)

The respective wettable powders of Compounds (1) shown in Table 1 prepared as in Example 2 were diluted to 1000 ppm with water containing a surfactant (0.01%), and in 15 these respective chemical solutions, cabbage leaves (5 x 5 cm) were dipped for 30 seconds, and each leaf was put into the respective plastic cups and air-dried.

Subsequently, 10 green caterpillars (3rd instar larvae) were placed in the respective cups, which were 20 sealed by lids, and they were left to stand in a thermostat chamber at 25°C. After 2 days, insecticidal rate was determined by counting living and dead insects in the respective cups.

As a result, Compounds 1 to 8, 11 to 18, 20 to 29, 25 33, 36, 37, 39 showed the insecticidal effect of 80% or more.

(2) Test of effect on green peach aphid

The respective wettable powders of Compounds (1) shown in Table 1 prepared as in Example 2 were diluted to 30 100 ppm with water containing a surfactant (0.01%), and in these respective chemical solutions, cabbage leaves (5 x 5 cm) were dipped for 30 seconds, and each leaf was put into the respective plastic cups and air-dried.

Subsequently, 10 green peach aphids (unfledged female 35 adults) were placed in the respective cups, which were sealed by lids, and they were left to stand in a thermostat

23

chamber at 25°C. After 3 days, insecticidal rate was determined by counting living and dead unfledged female adults and larvaes in the respective cups.

As a result, Compounds 6, 11 to 14, 16, 22 to 25, 27, 28, 37 and 39 showed the insecticidal effect of 80% or more.

(3) Antibacterial test

Acetone solutions of Compounds (1) shown in Table 1 were migrated into a PDA (potato dextrose agar) medium with a final concentration of 40 ppm to prepare plate culture media.

Respective colonies of brown rot bacteria and rice blast bacteria each previously grown in PDA plate culture media were cut with 1 mm square by a scalpel and inoculated to plate culture media containing chemicals.

They were cultured at 25°C under dark place for 3 days, and the diameter of the colony was compared to those grown in the area to which no chemical was added, and a colony growth-inhibiting ratio (%) was calculated by the following equation.

$$\text{Colony growth inhibiting ratio (\%)} = \left(1 - \frac{\text{Diameter (mm) of colony grown in chemical treated area}}{\text{Diameter (mm) of colony grown in chemical non-treated area}} \right) \times 100$$

Judgment of the effects was carried out with 6 ranks from 5 to 0 in which a colony growth-inhibiting ratio of 95 to 100% was rated 5, 85 to 95% was 4, 75 to 85% was 3, 45 to 70% was 2, 10 to 45% was 1, and 10 to 0% was 0.

As a result, Compounds 2 to 8, 11 to 18, 20 to 29, 33, 36, 37 and 39 showed effects of 4 or more against plum brown rot bacteria, and Compounds 1 to 8, 11 to 18, 20 to 29, 33, 37 and 39 showed effects of 4 or more against rice blast bacteria.

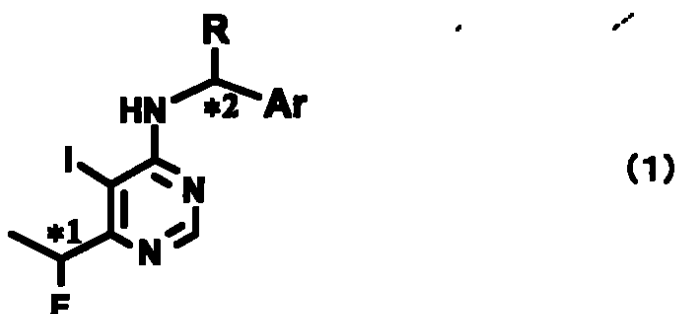
Industrial applicability

The novel 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound of the present invention has excellent effects of
5 controlling noxious organisms for an agricultural and horticultural use.

~~28~~
25

Claims:

1. A 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the following formula (1):



5

wherein Ar represents a phenyl group, a naphthyl group, a thienyl group, an indanyl group or a 1,4-benzodioxan-6-yl group, which is unsubstituted or substituted by 1 to 3 substituents selected from the group consisting of a halogen atom, an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms, an alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms and a phenoxy group; R represents a hydrogen atom or an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms; *1 represents an asymmetric carbon atom; *2 represents an asymmetric carbon atom when R represents an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms.

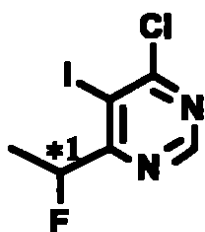
2. The 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound according to Claim 1, wherein Ar in the above mentioned formula (1) is a phenyl group substituted by 1 to 3 substituents selected from the group consisting of a halogen atom, an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkyl group having 1 to 4 carbon atoms, an alkoxy group having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon atoms and a phenoxy group, or an unsubstituted phenyl group.

3. The 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound

according to Claim 1 or 2, wherein the substituent for Ar is selected from the group consisting of a chlorine atom, a fluorine atom, a methyl group, an ethyl group, an isopropyl group, a t-butyl group, a trifluoromethyl group, a methoxy group, an ethoxy group, a difluoromethoxy group, a tri-
 5 fluoromethoxy group and an unsubstituted phenoxy group.

4. The 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound according to any one of Claims 1 to 3, wherein R is a
 10 hydrogen atom, a methyl group, an ethyl group, an i-propyl group, a n-butyl group or an i-butyl group.

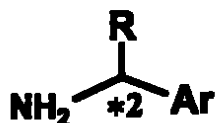
5. A process for preparing the 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the formula (1) according to Claim 1, which comprises reacting 4-chloro-6-
 15 (1-fluoroethyl)-5-iodopyrimidine represented by the following formula (2):



(2)

wherein *1 has the same meaning as defined in Claim
 20 1,

with an amine represented by the following formula (3):



(3)

wherein Ar, R and *2 have the same meanings as defined in Claim 1.

25

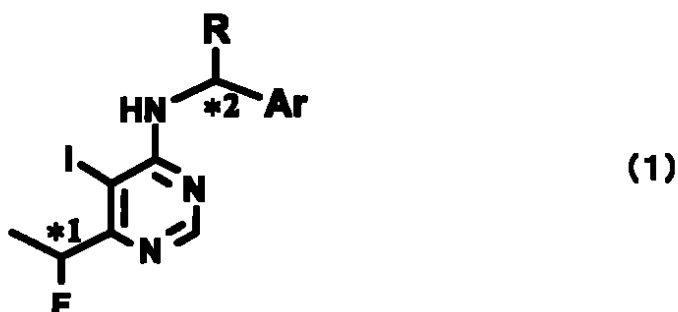
6. A chemical for controlling noxious organisms containing the 6-(1-fluoroethyl)-5-iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the formula (1) according to Claim 1 as an effective ingredient.

30

27

Abstract

The present invention relates to a 6-(1-fluoroethyl)-
5-iodo-4-aminopyrimidine compound represented by the
5 following formula (1):



10 wherein Ar represents a phenyl group, a naphthyl
group, a thienyl group, an indanyl group or a 1,4-
benzodioxan-6-yl group, which is unsubstituted or
substituted by 1 to 3 substituents selected from the
group consisting of a halogen atom, an alkyl group
having 1 to 4 carbon atoms, a haloalkyl group having
1 to 4 carbon atoms, an alkoxy group having 1 to 4
15 carbon atoms, a haloalkoxy group having 1 to 4 carbon
atoms and a phenoxy group; R represents a hydrogen
atom or an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms; *1
represents an asymmetric carbon atom; *2 represents
an asymmetric carbon atom when R represents an alkyl
20 group having 1 to 4 carbon atoms,
a process for preparing the same, and agricultural and
horticultural chemicals for controlling noxious organisms.

27
28

COMPUESTOS DE 6-(1-FLUOR ETIL)-5-YODO-4-AMINOPIRIMIDINA,
PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE LOS MISMOS Y
CONTROLADORES DE PLAGAS PARA USO AGRICOLA Y HORTICOLA

5 **CAMPO TECNICO DE LA INVENCION**

La presente invención se refiere a un compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina útil como sustancia química agrícola u hortícola para controlar organismos nocivos.

10

TECNICA ANTECEDENTE

El compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina de la presente invención es compuesto novedoso y se ha sabido que tiene efectos agrícolas y hortícolas para controlar organismos nocivos.

15

Un objeto de la presente invención es proveer un compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina, un procedimiento para preparar el mismo y sustancias químicas agrícolas y hortícolas para controlar organismos nocivos que contienen el mismo como un ingrediente efectivo.

20

DESCRIPCION DE LA INVENCION

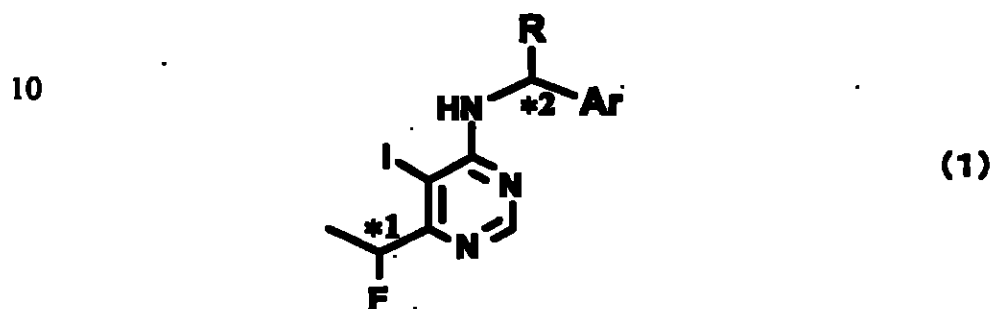
Los inventores de la presente han estudiado resolver los

29

problemas antes mencionados, y como resultado de ello han encontrado que los compuestos de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina novedosos tienen efectos insecticidas, acaricidas, nematocidas y fungicidas resaltantes para uso agrícola y hortícola, por lo que han logrado realizar la presente invención.

5 Es decir, la presente invención es como se muestra a continuación.

La primera invención se refiere a un compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina representado por la siguiente fórmula (1):



en donde Ar representa un grupo fenilo, un grupo naftilo, un grupo tienilo, un grupo indanilo o un grupo 1,4-benzodioxan-6-ilo, que es no sustituido o sustituido por 1 a 3 sustituyentes seleccionados del grupo que consiste de un átomo de halógeno, un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalcoxi que

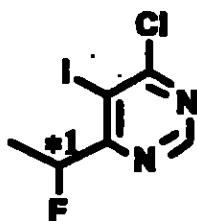
15

20 tiene 1 a 4 átomos de carbono y un grupo fenoxi; R representa un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono; *1 representa un átomo de carbono asimétrico; *2 representa un átomo de carbono asimétrico cuando R representa un grupo alquilo que tiene 1 a 4

30

átomos de carbono.

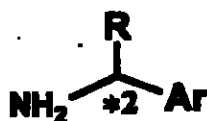
La segunda invención se refiere a un procedimiento para preparar un compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina representado por la fórmula (1) anteriormente mencionada, que consiste en
5 hacer reaccionar 4-cloro-6-(1-fluoroetil)-5-yodopirimidina representada por la siguiente fórmula (2):



(2)

10

en donde *1 tiene el mismo significado que se definió antes, con una amina representada por la siguiente fórmula (3):



(3)

15

en donde Ar, R y *2 tienen los mismos significados que se definieron antes.

La tercera invención se refiere a una sustancia química agrícola y hortícola para controlar organismos nocivos que contiene el compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina representado por la fórmula (1) antes
20 mencionada como un ingrediente efectivo.

MEJ R M D PARA LLEVAR A CABO LA INVENCION

A continuación, se explicará con detalle la presente invención.

Los sustituyentes respectivos mostrados en los compuestos
5 respectivos antes mencionados son como se menciona a continuación.

Ar es un grupo fenilo, un grupo naftilo, un grupo tienilo, un grupo indanilo o un grupo 1,4-benzodioxan-6-ilo, que es no sustituido o sustituido por 1 a 3 sustituyentes seleccionados del grupo que consiste de un átomo de halógeno, un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo
10 halogenoalquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono y un grupo fenoxi.

R es un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono.

15 *1 es un átomo de carbono asimétrico.

*2 es un átomo de carbono asimétrico cuando R es un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono.

Como el átomo de halógeno que es un sustituyente para Ar, se puede mencionar, por ejemplo un átomo de cloro, un átomo de yodo, un
20 átomo de bromo, un átomo de flúor, etc., y preferiblemente un átomo de cloro y un átomo de flúor.

Como el grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono que es un sustituyente para Ar, se puede mencionar, por ejemplo, un grupo alquilo de

cadena recta o ramificada, y preferiblemente un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo isopropilo y un grupo t-butilo.

Como el grupo halogenoalquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono que es un sustituyente para Ar, se puede mencionar, por ejemplo, un grupo difluorometilo, un grupo trifluorometilo, un grupo 2,2,2-trifluoroetilo, un grupo 2-fluoroetilo, etc., preferiblemente un grupo trifluorometilo.

Como el grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono que es un sustituyente para Ar, se puede mencionar por ejemplo, un grupo alcoxi de cadena recta o ramificada, preferiblemente un grupo metoxi y un grupo etoxi.

Como el halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono que es un sustituyente para Ar, se puede mencionar, por ejemplo, un grupo difluorometoxi, un grupo trifluorometoxi, un grupo 2,2,2-trifluoroetoxi, un grupo 2-trifluoroetoxi, etc., y preferiblemente un grupo difluorometoxi y un grupo trifluorometoxi.

Como el grupo fenoxi que es un sustituyente para Ar, se puede mencionar, por ejemplo, un grupo fenoxi que puede ser sustituido por el átomo de halógeno antes mencionado, el grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, el grupo halogenoalquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, el grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono o un grupo halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono, preferiblemente un grupo fenoxi no sustituido.

Un número de estos sustituyentes es preferiblemente 1 a 3.

Como el grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono de R,

X
33

se puede mencionar, por ejemplo, un grupo alquilo de cadena recta o ramificada, y preferiblemente un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo i-propilo, un grupo n-butilo y un grupo i-butilo.

El compuesto (1) de la presente invención tiene un grupo amino de modo que una sal ácida de adición derivada del mismo también se incluye en la presente invención.

Como un ácido que forma una sal ácida de adición, se puede mencionar, por ejemplo, un ácido inorgánico tal como ácido clorhídrico, ácido bromhídrico, ácido nítrico, ácido sulfúrico, ácido fosfórico, etc.; un ácido carboxílico tal como ácido carboxílico tal como ácido fórmico, ácido oxálico, ácido fumárico, ácido adípico, ácido esteárico, ácido oleico, ácido aconítico, etc.; un ácido sulfónico tal como ácido metansulfónico, ácido bencensulfónico, ácido p-toluensulfónico, etc.; sacarina, etc.

También, el compuesto (1) de la presente invención contiene un átomo de carbono asimétrico representado por *1 y *2 de modo que los isómeros ópticos respectivos, isómeros racémicos, diastereómeros o una mezcla de los mismos derivada de los mismos se incluyen cada uno en la presente invención.

Entre los compuestos (1) de la presente invención, los compuestos particularmente preferidos pueden incluir los siguientes.

(1) Un compuesto en el cual R es un átomo de hidrógeno y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 5, 6, etc.,

mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

(2) Un compuesto en el cual R es un átomo de hidrógeno, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 1, 2, 11, etc.,
5 mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

(3) Un compuesto en el cual R es un átomo de hidrógeno, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo fenoxi. Por ejemplo, se puede mencionar, el compuesto 12, etc., mostrado en el cuadro 1 mencionado más adelante.

10 (4) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono y Ar es un grupo fenilo no sustituido. Por ejemplo, se puede mencionar los compuestos 13 a 18, etc., mostrados en cuadro 1 que se menciona más adelante.

(5) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a
15 4 átomos de carbono, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono y un átomo de halógeno. Por ejemplo, se puede mencionar el compuesto 22, etc., mostrado en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

(6) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a
20 4 átomos de carbono, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 20, 21, 23, etc., mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

(7) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un átomo de halógeno. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 24, 25, etc., mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

5 (8) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 27, 28, etc., mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

10 (9) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, y Ar es un grupo indanilo no sustituido. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 36, 37, etc., mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

15 (10) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, y Ar es un grupo 1,4-benzodioxan-6-ilo no sustituido. Por ejemplo, se puede mencionar el compuesto 39, etc., mostrado en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

20 (11) Un compuesto en el cual R es átomo de hidrógeno, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un átomo de halógeno. Por ejemplo, se pueden mencionar los compuestos 3, 7, 8, etc., mostrados en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

(12) Un compuesto en el cual R es un átomo de hidrógeno, y Ar es un grupo fenilo sustituido por un grupo halogenoalquilo que tiene 1 a 4

36

átomos de carbono. Por ejemplo, se puede mencionar el compuesto 4, etc.,
mostrado en el cuadro 1 que se menciona más adelante.

(13) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a
4 átomos de carbono, y Ar es un grupo naftilo no sustituido. Por ejemplo, se
5 puede mencionar el compuesto 29, etc., mostrado en el cuadro 1 que se
menciona más adelante.

(14) Un compuesto en el cual R es un grupo alquilo que tiene 1 a
4 átomos de carbono, y Ar es un grupo tienilo no sustituido. Por ejemplo, se
puede mencionar el compuesto 33, etc., mostrado en el cuadro 1 que se
10 menciona más adelante.

Un método de síntesis del compuesto (1) antes mencionado de
conformidad con la presente invención se describe con detalle.

Método de síntesis

15 El compuesto (1) se sintetiza haciendo reaccionar el compuesto
(2) con el compuesto (3) en un solvente, en presencia de una base.

Como un tipo del solvente, no se limita particularmente siempre
que no participe directamente en la presente reacción, y se puede mencionar,
por ejemplo, un hidrocarburo aromático, alifático o alicíclico clorado o no
20 clorado tal como benceno, tolueno, xileno, metilnaftaleno, éter de petróleo,
ligroína, hexano, clorobenceno, diclorobenceno, cloroformo, dicloroetano,
tricloroetileno, etc.; un éter tal como tetrahidrofurano, dioxano, éter dietílico,
etc.; un nitrilo tal como acetonitrilo, propionitrilo, etc.; una cetona tal como

37

acetona, metiletilcetona, etc.; un solvente polar aprótico tal como N,N-dimetilformamida, sulfóxido de dimetilo, sulforano, N,N-dimetilimidazolidinona, N-metilpirrolidona, etc.; y una mezcla de los solventes antes mencionados.

Una cantidad del solvente que se ha de usar es preferiblemente
5 tal que el contenido del compuesto (2) se vuelve de 5 a 80% en peso; y muy preferiblemente de 10 a 70% en peso.

Un tipo de la base no es específicamente limitado, y se menciona una base orgánica y una base inorgánica. Se puede mencionar, por ejemplo, una amina terciaria tal como trietilamina, una base orgánica tal como
10 DBU, una base inorgánica tal como hidruro, hidróxido, carbonato, carbonato ácido de un metal alcalino o un metal alcalinotérreo; y preferiblemente una base orgánica tal como trietilamina.

Una cantidad de la base que se ha de usar es preferiblemente de 1 a 5 veces molar, muy preferiblemente 1.2 a 2.0 veces molar con base en la
15 cantidad del compuesto (2).

Una temperatura de reacción no es específicamente limitada y está preferiblemente dentro del intervalo de temperatura desde temperatura ambiente hasta el punto de ebullición o menos del solvente que se ha de usar, particularmente de preferencia 60 a 110°C.

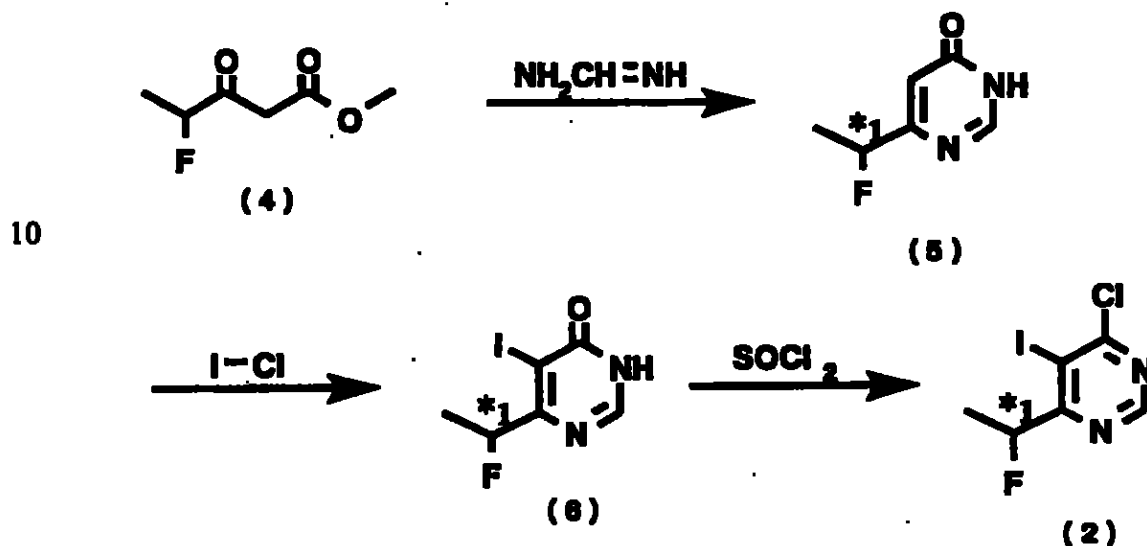
20 Un tiempo de reacción puede variar dependiendo de la concentración y temperatura antes mencionadas, y generalmente de 0.5 a 8 horas.

Una cantidad del compuesto de partida que se ha de usar es

38

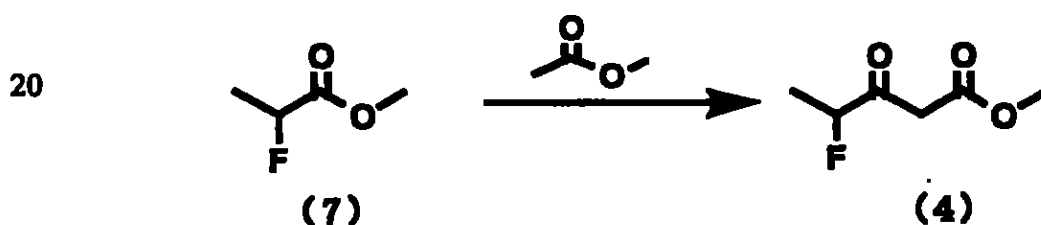
preferiblemente 1.0 a 5 veces molar de compuesto (3) basado en una cantidad de compuesto (2), muy preferiblemente 1 a 1.1 veces molar.

El compuesto (2) que se ha de usar en la presente invención se puede preparar por el método mostrado en el siguiente esquema de conformidad con la descripción de la solicitud de patente japonesa No. 2000-384776.



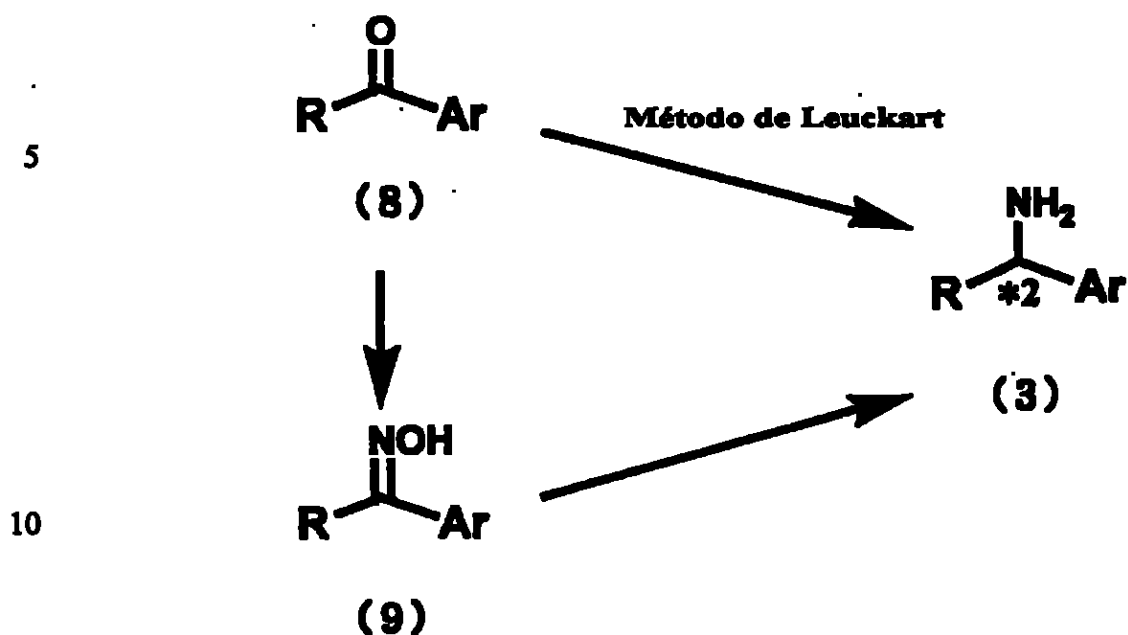
15 en donde *1 tiene el mismo significado que se definió antes.

El compuesto (4) se puede preparar, por ejemplo, por el método de conformidad con la solicitud de patente provisional japonesa No. 171834/1999.



El compuesto (3) puede ser un producto comercialmente

disponible o se puede preparar mediante el método mostrado en el siguiente esquema.



en donde Ar, R y *2 tienen el mismo significado que se definió antes.

El compuesto (1) deseado preparado como se mencionó antes se puede someter a post-tratamiento tal como extracción, concentración, filtración, etc., después de completarse la reacción y, si es necesario, se puede someter a purificación por métodos conocidos tales como recristalización, varios tipos de cromatografía, etc.

20 Efectos de control

Como los organismos nocivos agrícolas y hortícolas sobre los cuales se puede observar un efecto controlador por medio del compuesto (1) de la presente invención, se pueden mencionar insectos nocivos agrícolas y

40/4

hortícolas [v. gr., *Hemiptera* (saltarillas, saltamontes, áfidos, moscas blancas, etc.), *Lepidoptera* (gusano soldado de la col, polilla de dorso de diamante, polillas del enroscamiento de las hojas, polillas pirálidas, polillas de la manzana verde, mariposa de la col, etc.), *Coleoptera* (escarabajos tenebriónidos, 5 escarabajos de las hojas, picudos, escarabajos, etc.), *Acarina* (ácaro rojo de los cítricos, ácaro araña de dos puntos, etc., de la familia *Tetranychidae*, ácaro rosa de la roya de los cítricos de la familia *Eriophyidae* etc.)], nematodos (v. gr., nematodos de los nódulos de la raíz, nematodos cisticidos, nematodos de lesiones de la raíz, nematodos de punta blanca, nematodos de madera de 10 pino), ácaros de bulbos en el suelo, insectos higiénicamente nocivos (v. gr., moscas, mosquitos, cucarachas, etc.), insectos nocivos de granos almacenados (v. gr., escarabajos rojos de la harina, picudos del frijol, etc.), insectos de la madera (v. gr., termitas, tales como termita subterránea de formosa, *Reticulitermes speratus* y *Cryptotermes domesticus*; escarabajos de 15 los postes, escarabajos de las farmacias, polillas de la madera, escarabajos de cuerno largo, escarabajos de la corteza, etc.) y también enfermedades agrícolas y hortícolas (v. gr., *monilia fruticola*, roya café del trigo, mildiú pulverulento de la cebada, mildiú del ahogamiento del pepino, *pyricularia oryzae*, tizón tardío del tomate, etc.).

20

Sustancias químicas para controlar organismos nocivos

Las sustancias químicas agrícolas y hortícolas para controlar organismos nocivos de la presente invención son particularmente remarcables

41

en efectos insecticidas, acaricidas y nematocidas, y contienen uno o más tipos de compuesto (1) como un ingrediente efectivo.

El compuesto (1) se puede usar en forma individual, sin embargo, generalmente se prefiere que se use el mismo al formular un
5 vehículo, agente tensioactivo, dispersante, auxiliar, etc. (por ejemplo, se prepara como una composición tal como un polvo espolvoreable, un emulsionante, un gránulo fino, un gránulo, un polvo humectable, una suspensión oleosa, un aerosol, etc.) de acuerdo con el método convencionalmente conocido.

10 Como el vehículo, se puede mencionar, por ejemplo, un vehículo sólido tal como talco, bentonita, arcilla, caolina, tierra diatomácea, carbón blanco, vermiculita, hidróxido de calcio, arena silícea, sulfato de amonio, urea, etc., un vehículo líquido tal como un hidrocarburo (kerosina, aceite mineral, etc.), hidrocarburo aromático (benceno, tolueno, xileno, etc.), hidrocarburo
15 clorado (cloroformo, tetracloruro de carbono, etc.), éteres (dioxano, tetrahidrofurano, etc.), cetonas (acetona, ciclohexanona, isoforona, etc.), ésteres (acetato de etilo, acetato de etilenglicol, maleato de dibutilo, etc.), alcoholes (metanol, n-hexanol, etilenglicol, etc.); solvente polar aprótico (dimetilformamida, sulfóxido de dimetilo, etc.), agua, etc.; un vehículo gaseoso
20 tal como aire, nitrógeno, un dióxido de carbono gaseoso, fleona, etc. (en este caso, se puede llevar a cabo la diseminación de la mezcla), y similares.

Como el agente tensioactivo y dispersante que se puede usar para mejorar la fijación de la sustancia química presente a animales y plantas

42/27

y la absorción del mismo en éstos, y mejorando las características tales como dispersión, emulsificación y diseminación de la sustancia química, se puede mencionar, por ejemplo, sulfatos de alcohol, alquilsulfonato, lignosulfonato y éter polioxietilenglicólico. Como un agente tensioactivo, se pueden mencionar

5 productos comercialmente disponibles, por ejemplo, polvo de Neopelex (nombre comercial, producido por Kao K.K.), Demol (nombre comercial, producido por Kao K.K.), Toxanone (nombre comercial, producido por Sanyo Chemical Industries, Ltd.) y similares. Además, para mejorar las propiedades de su formulación, por ejemplo, carboximetilcelulosa, polietilenglicol y goma

10 arábiga se pueden usar como un auxiliar.

En la preparación de la presente sustancia química, el vehículo, agente tensioactivo, dispersante y auxiliar antes mencionados se pueden usar en forma individual o en una combinación adecuada, respectivamente, dependiendo de los propósitos respectivos.

15 Cuando el compuesto (1) de la presente invención se hace en formulaciones, la concentración del ingrediente activo es generalmente de 1 a 50% en peso en un concentrado emulsionable, generalmente de 0.3 a 25% en peso en un polvo espolvoreable, generalmente de 1 a 90% en peso en un polvo humectable, generalmente de 0.5 a 5% en peso en un gránulo,

20 generalmente de 0.5 a 5% en peso en una suspensión oleosa, y generalmente de 0.1 a 5% en peso en un aerosol.

Estas formulaciones se pueden proveer para varios usos diluyéndolas a una concentración adecuada y rociándolas a los tallos y hojas

de las plantas, suelo y superficie de arrozales con residuos de plantas, o aplicándolas directamente a los mismos dependiendo de los propósitos.

EJEMPLO

5

A continuación, la presente invención se explicará específicamente haciendo referencia a los ejemplos de referencia y a los ejemplos. De manera incidental, estos no limitarán el alcance de la presente invención.

10

EJEMPLO DE REFERENCIA 1

Método de síntesis del compuesto (5)

Síntesis de 6-(1-fluoroetil)-4-pirimidona

15

En metanol (1000 ml) se disolvió 4-fluoro-3-oxopentanoato de metilo (93.3 g), y una solución de metilato de sodio al 28%/metanol (365 g) y acetato de formamidina (98.4 g) se añadieron sucesivamente a la solución, y la mezcla resultante se puso a reflujo a 40°C durante 12 horas.

20

Después de completarse la reacción, la mezcla se enfrió a 10°C o menos, y una mezcla de ácido sulfúrico concentrado (95.1 g) y agua (85 g) se añadió a la mezcla anterior. Después, la mezcla se agitó a 50°C durante 30 minutos, los materiales insolubles se removieron por filtración, y el filtrado se concentró bajo presión reducida. El residuo resultante se recrystalizó a partir

44

de isopropanol para obtener 58 g del compuesto deseado como un cristal incoloro.

p.f. 170.0 a 171.5°C

5

EJEMPLO DE REFERENCIA 2

Método de síntesis del compuesto (6)

Síntesis de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-pirimidona

A una solución en ácido acético (150 ml) de 6-(1-fluoroetil)-4-pirimidona (56.8 g) se añadió gota a gota bajo temperatura ambiente y agitación una solución en ácido acético de monoclورو de yodo preparada añadiendo yodo (50.8 g) a ácido acético (500 ml) y soplando cloro (15 g) a la misma bajo temperatura ambiente y agitación, y la mezcla resultante se agitó durante 6 horas.

Después de completarse la reacción, el ácido acético se removió bajo presión reducida, se añadió agua (300 ml) al residuo para disolver el material, y el pH de la mezcla se ajustó a 5 con hidróxido de sodio 2N y una solución acuosa saturada de bicarbonato de sodio. Los cristales precipitados se recogieron por filtración, se lavaron con agua y se secaron para obtener 85 g del producto deseado como un cristal ocreo pálido.

Además, el cristal se purificó por recristalización a partir de acetato de etilo-hexano para obtener 76.0 g del producto deseado como un cristal en forma de agujas incoloro.

45 X

p.f.: 195 a 196°C.

EJEMPLO DE REFERENCIA 3

Método de síntesis del compuesto (2)

5

Síntesis de 4-cloro-6-(1-fluoroetil)-5-yodopirimidina

A acetato de etilo (180 ml) se añadió 6-(1-fluoro-etil)-5-yodo-4-pirimidona (53.6 g), se añadió N,N-dimetilformamida (1.5 g) a la mezcla y la mezcla resultante se agitó a 70°C mientras se calentaba. Subsecuentemente se añadió gota a gota cloruro de tionilo (28.6 g) a la mezcla y se agitó durante 3 horas para completar la reacción.

Después de enfriar la mezcla de reacción, la mezcla se vació en agua con hielo y el pH de la mezcla se ajustó a 4 con hidróxido de sodio 2N. La capa de acetato de etilo se recogió por separación, se lavó con agua y después se secó sobre sulfato de sodio anhidro. Subsecuentemente, bajo presión reducida, el solvente se removió por destilación y el residuo obtenido se purificó por destilación bajo presión reducida para obtener 54.6 g del compuesto deseado como un líquido amarillento pálido.

15

p.e. 116 a 118°C/4 mmHg

20

EJEMPLO 1**Método de síntesis del compuesto (1)****(1) Síntesis de 4-(4-t-butilbencilamino)-6-(1-fluoro-etil)-5-****5 yodopirimidina (compuesto 1)**

En 20 ml de tolueno se disolvió 4-t-butilbencil-amina (0.8 g) y trietilamina (0.6 g), y se añadió 4-cloro-6-(1-fluoroetil)-5-yodopirimidina (1.5 g) a la solución y la mezcla resultante se agitó a aproximadamente 80°C durante 3 horas.

10 Después de completarse la reacción, se removió clorhidrato de trietilamina por filtración, el solvente se removió bajo presión reducida y el residuo obtenido se purificó por cromatografía en columna sobre gel de sílice (gel C-200 de Wako, eluyente; n-hexano/acetato de etilo = 3/1) para obtener 1.5 g del producto objetivo como un cristal en forma de placa pequeña
15 incoloro.

p.f.: 114 a 115°C

¹H-RMN (CDCl₃, δ ppm)

1.32 (9H, s), 1.61 a 1.71 (3H, d-d), 4.68 a 4.70 (2H, d), 3.74 a 3.81 (2H, q), 5.70 a 5.92 (1H, d-q), 5.76 (1H, b), 7.26 a 7.41 (4H, m), 8.50 (1H,
20 s)

47

(2) Síntesis de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-(α -metil-bencilamino)-

pirimidina (compuesto 13)

En 40 ml de tolueno se disolvió α -metilbencil-amina (1.2 g) y trietilamina (1.2 g), y se añadió 4-cloro-6-(1-fluoroetil)-5-yodopirimidina (2.9 g) a la solución y la mezcla resultante se agitó a aproximadamente 80°C durante 3 horas.

Después de completarse la reacción, se removió clorhidrato de trietilamina por filtración, el solvente se removió bajo presión reducida y el residuo obtenido se purificó por cromatografía en columna sobre gel de sílice (gel C-200 de Wako, eluyente; n-hexano/acetato de etilo = 3/1) para obtener 2.9 g del producto deseado como un líquido viscoso anaranjado pálido.

^1H -RMN (CDCl_3 , δ ppm)

1.57 a 1.69 (6H, m), 4.68 a 4.70 (2H, d), 5.24 a 5.92 (1H, d-q), 5.83 (1H, b), 7.24 a 7.37 (5H, m), 8.43 (1H, s)

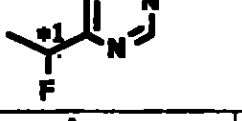
(3) Síntesis de otro compuesto (1) en el cuadro 1

De conformidad con los métodos descritos en (1) y (2) antes mencionados, se sintetizaron otros compuestos (1) en el cuadro 1.

Los compuestos (1) sintetizados como se mencionó antes y sus propiedades físicas se muestran en el cuadro 1.

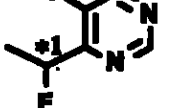
*1 es mezclas racémicas (R,S).

CUADRO 1

5					
	(1)				
	Compuesto	Ar	R	*2	Propiedad física
	1	 C ₆ H ₅ -t	H	R, S	p.f. 114-115°C
	2	 CH ₃	H	R, S	p.f. 80-81°C
	3	 Cl	H	R, S	p.f. 105-106°C
10	4	 CF ₃	H	R, S	p.f. 112-113°C
	5	 OCH ₃	H	R, S	n _D ²⁰ 1.6089
	6	 OC ₂ H ₅	H	R, S	p.f. 62-63°C
	7	 F	H	R, S	p.f. 72-63°C
	8	 C ₆ H ₅	H	R, S	p.f. 69-71°C
	9		H	R, S	
	10	 Cl	H	R, S	
15	11	 C ₆ H ₄ -I	H	R, S	p.f. 62-63°C
	12		H	R, S	n _D ^{18.5} 1.6145
	13		CH ₃	R, S	n _D ^{22.5} 1.6053
	14		CH ₃	S	n _D ^{22.5} 1.6061
	15		CH ₃	R	n _D ^{22.2} 1.6065
	16		C ₂ H ₅	R, S	n _D ^{21.1} 1.5993
	17		C ₄ H ₉ -n	R, S	n _D ^{18.5} 1.5827
	18		C ₄ H ₉ -i	R, S	n _D ^{21.7} 1.5831
20	19	 OCF ₃	CH ₃	R, S	
	20	 OCH ₂ CF ₃	C ₂ H ₅	R, S	n _D ^{22.5} 1.5645

49 ~~2~~

CUADRO 1 (continuación)

5		(1)
10	Compuesto	Ar
15	21	
20	22	
25	23	
30	24	
35	25	
40	26	
45	27	
50	28	
55	29	
60	30	
65	31	
70	32	
75	33	
80	34	
85	35	

50 ~~7~~

CUADRO 1 (continuación)

5

10

C(F)(C)C1=NC(=C(C(=N1)I)NC(C)C2=CC=CC=C2)
(1)

Compuesto	Ar	R	*2	Propiedad física
36		CH ₃	R, S	$n_D^{18.5}$ 1.5923
37		C ₂ H ₅	R, S	$n_D^{18.5}$ 1.5858
38		CH ₃	R, S	
39		CH ₃	R, S	$n_D^{18.1}$ 1.5935
40		CH ₃	R, S	

EJEMPLO 2

Preparación de formulaciones

15

(1) Preparación de gránulo

20

Cinco partes en peso del compuesto (1) se mezclaron uniformemente con 35 partes en peso de bentonita, 57 partes en peso de talco, 1 parte en peso de polvo de Neopelex (nombre comercial, producido por Kao K.K.) y 2 partes en peso de lignosulfonato de sodio, después la mezcla se amasó con la adición de una pequeña cantidad de agua, seguido por granulación y secado, para obtener un gránulo.

51/7

(2) Preparación de polvo humectable

Diez partes en peso de compuesto (1) se mezclaron uniformemente con 70 partes en peso de caolina, 18 partes en peso de carbón blanco, 1.5 partes en peso de polvo de Neopelex (nombre comercial, producido por Kao K.K.) y 0.5 parte en peso de Demol (nombre comercial, producido por Kao K.K.), después la mezcla se pulverizó para obtener un polvo humectable.

(3) Preparación de concentrado emulsificable

10 Veinte partes en peso del compuesto (1) se mezclaron uniformemente con 70 partes en peso de xileno mediante la adición de 10 partes en peso de Toxanone (nombre comercial, producido por Sanyo Chemical Industries, Ltd.), y mezclado en el mismo uniformemente para obtener un concentrado emulsificable.

15

(4) Preparación de polvo espolvoreable

Cinco partes en peso de compuesto (1) se mezclaron uniformemente con 50 partes en peso de talco y 45 partes en peso de caolina para obtener polvo espolvoreable.

20

52

EJEMPLO 3**Pruebas de efectos****(1) Prueba de efecto sobre la oruga verde (gusano común de la****5 col)**

Los polvos humectables respectivos de los compuestos (1) mostrados en el cuadro 1 preparados como en el ejemplo 2 se diluyeron a 1000 ppm con agua que contenía un agente tensioactivo (0.01%), y en estas soluciones químicas respectivas, hojas de col (5 x 5 cm) se sumergieron
10 durante 30 segundos, y cada hoja se puso en los vasos de plástico respectivos y se secaron con aire.

Subsecuentemente, 10 orugas verdes (larvas de 3er estadio) se colocaron en los vasos respectivos, que se sellaron con tapas, y se dejaron reposar en una cámara con termostato a 25°C. Después de 2 días, la tasa de
15 insecticida se determinó contando los insectos vivos y muertos en los vasos respectivos.

Como resultado de ello, los compuestos 1 a 8, 11 a 18, 20 a 29, 33, 36, 37, 39 mostraron el efecto insecticida de 80% o más.

20 (2) Prueba del efecto sobre áfido del durazno verde

Los polvos humectables respectivos de los compuestos (1) mostrados en el cuadro 1 preparados como en el ejemplo 2 se diluyeron a 1000 ppm con agua que contenía un agente tensioactivo (0.01%), y en estas

soluciones químicas respectivas, hojas de col (5 x 5 cm) se sumergieron durante 30 segundos, y cada hoja se puso en los vasos de plástico respectivos y se secaron con aire.

Subsecuentemente, 10 áfidos del durazno verde (adultos hembra ápteros) se colocaron en vasos respectivos, que se sellaron con tapas, y después se dejaron reposar en una cámara con termostato a 25°C. Después de 3 días, la tasa de insecticida se determinó contando los adultos hembra ápteros y larvas vivos y muertos en los vasos respectivos.

Como resultado de ello, los compuestos 6, 11 a 14, 16, 22 a 25, 27, 28, 37 y 39 mostraron el efecto insecticida de 80% o más.

(3) Prueba antibacterina

Soluciones en acetona de los compuestos (1) mostrados en el cuadro 1 se hicieron migrar a un medio de PDA (agar con papa-dextrosa) con una concentración final de 40 ppm para preparar un medio de cultivo de placa.

Las colonias respectivas de *monilia fruticola* y *pyricularia oryzae*, cada una de las cuales se hizo crecer previamente en un medio de cultivo de placa con PDA, se cortaron con un cuadro de 1 mm con un bisturí y se inocularon a medio de cultivo de placa que contenía sustancias químicas.

Se cultivaron a 25°C en un lugar oscuro durante 3 días, y el diámetro de la colonia se comparó con aquellas que crecieron en el área a la cual no se añadió sustancia química, y una relación (%) de inhibición de crecimiento de colonias se calculó mediante la siguiente ecuación.

54

$$\text{Relación de inhibición de crecimiento de colonias (\%)} = \left(1 - \frac{\text{Diámetro (mm) de crecimiento de colonias en área tratada con sustancia química}}{\text{Diámetro (mm) de crecimiento de colonias en áreas no tratada con sustancia química}} \right) \times 100$$

El juicio de los efectos se llevó a cabo con 6 categorías de 5 a 0 en los cuales una relación de inhibición de crecimiento de colonias de 95 a 100% se calificó con 5, 85 a 95% con 4, 85 a 70% con 3, 45 a 70% con 2, 10 a 45% con 1 y 10 a 0% con 0.

Como resultado de ello, los compuestos 2 a 8, 11 a 18, 20 a 29, 33, 36, 37 y 39 mostraron efectos de 4 o más contra *monilia fruticola*, y los compuestos 1 a 8, 11 a 18, 20 a 29, 33, 37 y 39 mostraron efectos de 4 o más contra las *pyricularia oryzae*.

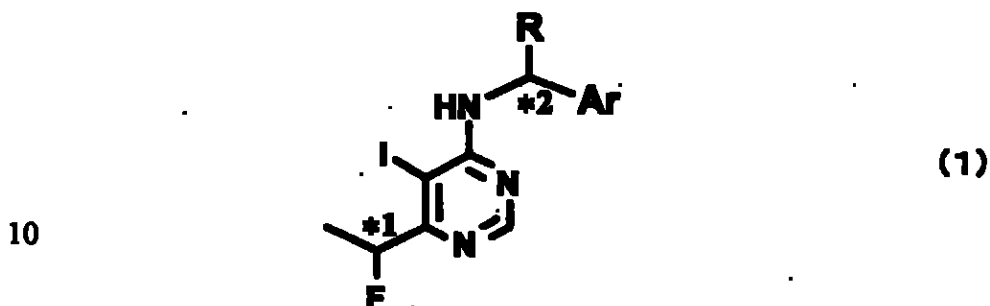
Campo de aplicación industrial

El compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina novedoso de la presente invención tiene excelentes efectos de control de organismos nocivos para uso agrícola y hortícola.

SS

NOVEDAD DE LA INVENCION**REIVINDICACIONES**

- 5 1.- Un compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina representado por la siguiente fórmula (1):



en donde Ar representa un grupo fenilo, un grupo naftilo, un grupo tienilo, un grupo indanilo o un grupo 1,4-benzodioxan-6-ilo, que es no sustituido o sustituido por 1 a 3 sustituyentes seleccionados del grupo que consiste de un

15 átomo de halógeno, un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono y un grupo fenoxi; R representa un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono; *1 representa un átomo

20 de carbono asimétrico; *2 representa un átomo de carbono asimétrico cuando R representa un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono.

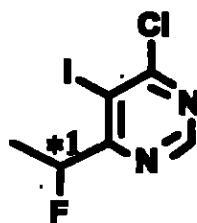
2.- El compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina de conformidad con la reivindicación 1, caracterizado además porque Ar en la

fórmula (1) anterior es un grupo fenilo sustituido por 1 a 3 sustituyentes seleccionados del grupo que consiste de un átomo de halógeno, un grupo alquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalquilo que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo alcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono, un grupo halogenoalcoxi que tiene 1 a 4 átomos de carbono y un grupo fenoxi, o un grupo fenilo no sustituido.

3.- El compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina de conformidad con la reivindicación 1 ó 2, caracterizado además porque el sustituyente para Ar se selecciona del grupo que consiste de un átomo de cloro, un átomo de flúor, un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo isopropilo, un grupop t-butilo, un grupop trifluorometilo, un grupo metoxi, un grupo etoxi, un grupo difluorometoxi, un grupo trifluorometoxi y un grupo fenoxi no sustituido.

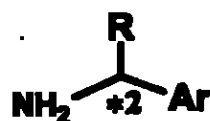
4.- El compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina de conformidad con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizado además porque R es un átomo de hidrógeno, un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo i-propilo, un grupo n-butilo o un grupo i-butilo.

5.- Un procedimiento para preparar el compuesto de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina representado por la fórmula (1) de conformidad con la reivindicación 1, que consiste en hacer reaccionar 4-cloro-6- fluoroetil)-5-yodopirimidina representada por la siguiente fórmula (2):

ST 

(2)

5 en donde *1 tiene el mismo significado que se definió en la reivindicación 1,
con una amina representada por la siguiente fórmula (3):



(3)

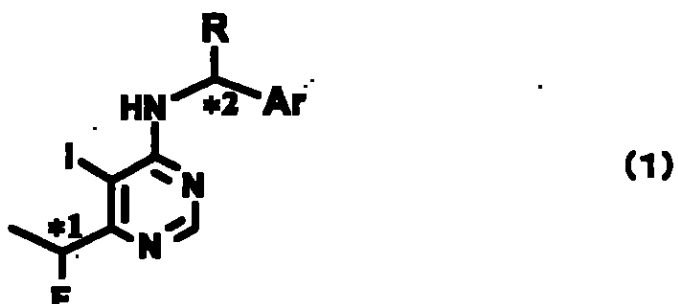
en donde Ar, R y *2 tienen los mismos significados que se definieron en la
10 reivindicación 1.

6.- Una sustancia química para controlar organismos nocivos
que contiene el compuesto representado por la fórmula (1) de conformidad
con la reivindicación 1 como un ingrediente efectivo.

58
X
7**RESUMEN DE LA INVENCION**

Compuestos de 6-(1-fluoroetil)-5-yodo-4-aminopirimidina representados por la siguiente fórmula (1):

5



- 10 un procedimiento para preparar los compuestos, y controladores de plagas que contienen el mismo como ingrediente activo: (1) en donde Ar es fenilo que puede tener de uno a tres sustituyentes seleccionados del grupo que consiste de halógeno, alquilo de C₁₋₄, halogenoalquilo de C₁₋₄, alcoxi de C₁₋₄, halogenoalcoxi de C₁₋₄, y fenoxi, naftilo, tienilo, Indanilo o 1,4-benzodioxan-6-
- 15 ilo; R es hidrógeno o alquilo de C₁₋₄, *1 representa un átomo de carbono asimétrico; *2 representa un átomo de carbono asimétrico cuando R es alquilo de C₁₋₄.

20 JJ

P03/790F

59/20

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 FP2484PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO2/00064	国際出願日 (日.月.年) 10.01.02	優先日 (日.月.年) 11.01.01
国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ C07D239/42, 409/12, 405/12, A01N43/54		
出願人 (氏名又は名称) 宇都興産株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。 ☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施規則第607号参照) この附属書類は、全部で _____ ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。 I ☒ 国際予備審査報告の基礎 II ☐ 優先権 III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV ☐ 発明の単一性の欠如 V ☒ PCT36条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文獻及び説明 VI ☐ ある種の引用文獻 VII ☐ 国際出願の不備 VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 12.04.02	国際予備審査報告を作成した日 09.08.02	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4 3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 内藤 伸一 電話番号 03-3581-1101 内線 3492	4P 8615

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)

60
76

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

☐ 明細書 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
請求の範囲 第 _____ 項、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された磁気ディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

61 2

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1-6	有
	請求の範囲		無
進歩性 (IS)	請求の範囲	1-6	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1-6	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献 1) J P 11-302261 A
2) J P 64-68362 A

請求の範囲 1-6 の発明は、新規性及び進歩性を有する。
本願発明化合物は、国際調査報告で引用された文献 1, 2 に記載された化合物に比較して、殺虫活性及び殺菌活性の点で著しく優れ、かつ、魚毒性が低いものであることが、答弁書に記載された比較試験結果から明らかである。

特許協力条約に基づく国際出願
願

出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。

国際出願番号	受領印
国際出願日	10.1.02
(受付印)	
出願人又は代理人の登録番号 (希望する場合、最大12桁)	FP2484PCT

第I欄 発明の名称

6-(1-フルオロエチル)-5-ヨード-4-アミノピリミジン化合物、
その製法及び農園芸用の有害生物防除剤

第II欄 出願人 ☐ この欄に記載した者は、発明者でもある。

氏名(名称)及びあて名:(姓・名の順に記載;法人は公式の完全な名称を記載;あて名は郵便番号及び国名も記載)

宇部興産株式会社
UBE INDUSTRIES, LTD.

〒755-8633 日本国山口県宇部市大字小串1978番地の96

1978-96, Oaza Kogushi, Ube-shi, Yamaguchi 755-8633 JAPAN

電話番号:

ファクシミリ番号:

加入電話番号:

出願人登録番号:

国籍(国名): 日本国 JAPAN

住所(国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
特定期間についての出願人である: ☐ すべての特定期間 ☒ 米国の特定期間 ☐ 米国のみ ☐ 通定期間

第III欄 その他の出願人又は発明者

氏名(名称)及びあて名:(姓・名の順に記載;法人は公式の完全な名称を記載;あて名は郵便番号及び国名も記載)

藤井 勝利 FUJII Katsutoshi

〒755-8633 日本国山口県宇部市大字小串1978番地の5

宇部興産株式会社 宇部研究所内

c/o Ube Research Laboratory, Ube Industries, Ltd.

1978-5, Oaza Kogushi, Ube-shi, Yamaguchi 755-8633 JAPAN

この欄に記載した者は
次に該当する:

☐ 出願人のみである。

☒ 出願人及び発明者である。

☐ 発明者のみである。
(ここにレ印を付したときは、
以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍(国名): 日本国 JAPAN

住所(国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
特定期間についての出願人である: ☐ すべての特定期間 ☐ 米国の特定期間 ☒ 米国のみ ☐ 通定期間

☒ その他の出願人又は発明者が従前に記載されている。

第IV欄 代理人又は代表者、通知のあて名

次に記載された者は、国際出願において出願人のために行動する: ☒ 代理人 ☐ 代表者

氏名(名称)及びあて名:(姓・名の順に記載;法人は公式の完全な名称を記載;あて名は郵便番号及び国名も記載)

弁理士 津国 肇 TSUKUNI Hajime

〒105-0001 日本国東京都港区虎ノ門1丁目22番12号

SVAX TS ビル

SVAX TS Bldg.,

22-12, Toranomon 1-chome, Minato-ku, Tokyo 105-0001 JAPAN

電話番号:

03-3502-7213

ファクシミリ番号:

03-3502-7218

加入電話番号:

代理人登録番号:

7866

☐ 通知のためのあて名: 代理人又は代表者が選任されておらず、上記特許内に特に通知が送付されるあて名を記載している場合は、レ印を付す。

63

第三欄の続 その他の出願人又は発明者

この紙を使用しないときは、この用紙を願書に含めないこと。

氏名(名称)及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は正式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

数田 庄司

SHIKITA Shoji

〒755-8633 日本国山口県宇部市大字小串1978番地の5
宇部興産株式会社 宇部研究所内c/o Ube Research Laboratory, Ube Industries, Ltd.
1978-5, Oaza Kogushi, Ube-shi, Yamaguchi 755-8633 JAPANこの欄に記載した者は
次に該当する:☐ 出願人のみである。☒ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
(ここに印を付したときは、
以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍(国名): 日本国 JAPAN

住所(国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☒ 米国のみ ☐ 通定欄に記載した指定国

氏名(名称)及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は正式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

この欄に記載した者は
次に該当する:☐ 出願人のみである。☐ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
(ここに印を付したときは、
以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍(国名):

住所(国名):

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 通定欄に記載した指定国

氏名(名称)及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は正式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

この欄に記載した者は
次に該当する:☐ 出願人のみである。☐ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
(ここに印を付したときは、
以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍(国名):

住所(国名):

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 通定欄に記載した指定国

氏名(名称)及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は正式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

この欄に記載した者は
次に該当する:☐ 出願人のみである。☐ 出願人及び発明者である。☐ 発明者のみである。
(ここに印を付したときは、
以下に記入しないこと)

出願人登録番号:

国籍(国名):

住所(国名):

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 通定欄に記載した指定国☐ その他の出願人又は発明者が他の紙面に記載されている。

第V欄 国の指定

(指定する□に印を付すこと：少なくとも1つの□に印を付すこと)

規則4.3(a)の規定に基づき次の指定を行う。ほかの種類の保護又は取扱いをいづれかの指定欄(又はOAP)で求める場合には追加欄に記載する。

広域特許

- ☒ **A P A R I P O 特許** : G H ガーナ Ghana, G M ガンビア Gambia, K E ケニア Kenya, L S レソト Lesotho, M W マラウイ Malawi, M Z モザンビーク Mozambique, S D スーダン Sudan, S L シエラ・レオネ Sierra Leone, S Z スワジランド Swaziland, T Z タンザニア United Republic of Tanzania, U G ウガンダ Uganda, Z W ジンバブエ Zimbabwe, 及びハラレプロトコルと特許協力条約の締結国である他の国
- ☒ **E A ユーラシア特許** : A M アルメニア Armenia, A Z アゼルバイジャン Azerbaijan, B Y ベラルーシ Belarus, K G キルギスタン Kyrgyzstan, K Z カザフスタン Kazakhstan, M D モルドヴァ Republic of Moldova, R U ロシア Russian Federation, T J タジキスタン Tajikistan, T M トルクメニスタン Turkmenistan, 及びユーラシア特許条約と特許協力条約の締結国である他の国
- ☒ **E P ヨーロッパ特許** : A オーストリア Austria, B ベルギー Belgium, C H and L I スイス及びリヒテンシュタイン Switzerland and Liechtenstein, C Y キプロス Cyprus, D E ドイツ Germany, D K デンマーク Denmark, E S スペイン Spain, F I フィンランド Finland, F R フランス France, G B 英国 United Kingdom, G R ギリシャ Greece, I E アイルランド Ireland, I T イタリア Italy, L U ルクセンブルグ Luxembourg, M C モナコ Monaco, N L オランダ Netherlands, P T ポルトガル Portugal, S E スウェーデン Sweden, T R トルコ Turkey, 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締結国である他の国
- ☒ **O A O A P I 特許** : B F ブルキナ・ファソ Burkina Faso, B J ベナン Benin, C F 中央アフリカ Central African Republic, C G コンゴ Congo, C I コートジボアール Côte d'Ivoire, C M カメルーン Cameroon, G A ガボン Gabon, G N ギニア Guinea, G W ギニア・ビサウ Guinea-Bissau, M L マリ Mali, M R モーリタニア Mauritania, N E ニジェール Niger, S N セネガル Senegal, T D チャド Chad, T G トーゴ Togo, 及びアフリカ知的所有権条約のメンバー国であり特許協力条約の締結国である他の国 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には点線の上に記載する)

国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には点線の上に記載する)

- | | | |
|--|--|--|
| ☒ A E アラブ首長国連邦
United Arab Emirates | ☒ G D グレナダ Grenada | ☐ M W マラウイ Malawi |
| ☒ A G アンティグア・バーブダ
Antigua and Barbuda | ☒ G E ジョージア Georgia | ☒ M X メキシコ Mexico |
| ☒ A L アルバニア Albania | ☐ G H ガーナ Ghana | ☐ M Z モザンビーク Mozambique |
| ☐ A M アルメニア Armenia | ☐ G M ガンビア Gambia | ☒ N O ノルウェー Norway |
| ☐ A T オーストリア Austria | ☒ H R クロアチア Croatia | ☒ N Z ニュー・ジーランド New Zealand |
| ☒ A U オーストラリア Australia | ☒ H U ハンガリー Hungary | ☐ P L ポーランド Poland |
| ☐ A Z アゼルバイジャン Azerbaijan | ☒ I D インドネシア Indonesia | ☐ P T ポルトガル Portugal |
| ☒ B A ボスニア・ヘルツェゴヴィナ Bosnia and Herzegovina | ☒ I L イスラエル Israel | ☒ R O ルーマニア Romania |
| ☒ B B ベルバドス Barbados | ☒ I N インド India | ☐ R U ロシア Russian Federation |
| ☒ B G ブルガリア Bulgaria | ☒ I S アイスランド Iceland | ☐ S D スーダン Sudan |
| ☒ B R ブラジル Brazil | ☐ J P 日本 Japan | ☐ S E スウェーデン Sweden |
| ☐ B Y ベラルーシ Belarus | ☐ K E ケニア Kenya | ☒ S G シンガポール Singapore |
| ☒ B Z ベリーズ Belize | ☐ K G キルギスタン Kyrgyzstan | ☒ S I スロヴェニア Slovenia |
| ☒ C A カナダ Canada | ☐ K P 北朝鮮
Democratic People's Republic of Korea | ☒ S K スロヴァキア Slovakia |
| ☐ C H and L I
スイス及びリヒテンシュタイン
Switzerland and Liechtenstein | ☒ K R 韓国 Republic of Korea | ☐ S L シエラ・レオネ Sierra Leone |
| ☒ C N 中国 China | ☐ K Z カザフスタン Kazakhstan | ☒ T J タジキスタン Tajikistan |
| ☒ C O コロンビア Colombia | ☒ L C セント・ルシア Saint Lucia | ☐ T M トルクメニスタン Turkmenistan |
| ☒ C R コスタリカ Costa Rica | ☒ L K スリ・ランカ Sri Lanka | ☐ T R トルコ Turkey |
| ☒ C U キューバ Cuba | ☒ L R リベリア Liberia | ☒ T T トリニダード・トバゴ
Trinidad and Tobago |
| ☒ C Z チェコ Czech Republic | ☐ L S レソト Lesotho | ☐ T Z タンザニア
United Republic of Tanzania |
| ☐ D E ドイツ Germany | ☒ L T リトアニア Lithuania | ☒ U A ウクライナ Ukraine |
| ☐ D K デンマーク Denmark | ☐ L U ルクセンブルグ Luxembourg | ☐ U G ウガンダ Uganda |
| ☒ D M ドミニカ Dominica | ☒ L V ラトヴィア Latvia | ☒ U S 米国 United States of America |
| ☒ D Z アルジェリア Algeria | ☒ M A モロッコ Morocco | ☐ U Z ウズベキスタン Uzbekistan |
| ☒ E C エクアドル Ecuador | ☐ M D モルドヴァ Republic of Moldova | ☒ V N ベトナム Viet Nam |
| ☒ E E エストニア Estonia | ☒ M G マダガスカル Madagascar | ☒ Y U ユーゴスラヴィア Yugoslavia |
| ☐ E S スペイン Spain | ☒ M K マケドニア 旧ユーゴスラヴィア
共和国 The former Yugoslav Republic of
Macedonia | ☒ Z A 南アフリカ共和国 South Africa |
| ☐ F I フィンランド Finland | ☒ M N モンゴル Mongolia | ☐ Z W ジンバブエ Zimbabwe |
| ☐ G B 英国 United Kingdom | | |

以下の□は、この形式の発行後に特許協力条約の締結国となった国を指定するためのものである。

- | | | |
|---|--------------------------|--------------------------|
| ☐ P H フィリピン Philippines | ☐ | ☐ |
| ☐ Q M モナコ Monaco | ☐ | ☐ |
| ☐ T N トンガ Tonga | ☐ | ☐ |

指定の取消の宣言：出願人は、上記の指定に加えて、規則4.3(b)の規定に基づき、特許協力条約の下で認められる他の全ての国の指定を行う。もし、通知欄にこの宣言から除く旨の表示をした国は、指定から除かれる。出願人は、これらの通知される指定が取消を条件としていること、並びに従来日から15日が経過する前にその取消がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。(指定の取消は、指定を付する通知の提出と指定手数料及び取消手数料の納付からなる。この取消は、従来日から15日以内に受理官庁へ提出しなければならない。)

第VI欄 優先権主張

以下の先の出願に基づく優先権を主張する：

先の出願日 (日. 月. 年)	先の出願番号	先の出願		
		国内出願：国名	広域出願：*広域官庁名	国際出願：受理官庁名
(1) 11. 01. 01	特願 2001-003825	日本国 Japan		
(2)				
(3)				
(4)				
(5)				

☐ 他の優先権の主張（先の出願）が追記欄に記載されている。

上記の先の出願（ただし、本国際出願の受理官庁に対して出願されたものに限る）のうち、以下のものについて、出願書類の保証書を作成し国際事務局へ送付すること、受理官庁（日本国特許庁の長官）に対して請求する

☒ すべて ☐ 優先権(1) ☐ 優先権(2) ☐ 優先権(3) ☐ 優先権(4) ☐ 優先権(5) ☐ その他は追記欄参照

*先の出願がARIPO出願である場合には、当該先の出願を行った工業所有権の保護のためのパリ条約同盟国若しくは世界貿易機関の加盟国の少なくとも1ヶ国を表明しなければならない（規則4.10(a)(ii)）：.....

第VII欄 国際調査機関

国際調査機関（ISA）の選択（2以上の国際調査機関が国際調査を実施することが可能な場合、いずれかを選択し二文字コードを記載。）

ISA / JP

先の調査結果の利用請求：当該調査の照会（先の調査が、国際調査機関によって既に実施又は請求されている場合）
出願日（日. 月. 年） 出願番号 国名（又は広域官庁名）

第VIII欄 申立て

この出願は以下の申立てを含む。（下記の該当する欄をチェックし、右にそれぞれの申立て数を記載）

申立て数

- ☐ 第VIII欄(i) 発明者の特定に関する申立て : _____
- ☐ 第VIII欄(ii) 出願し及び特許を与えられる国際出願日における出願人の資格に関する申立て : _____
- ☐ 第VIII欄(iii) 先の出願の優先権を主張する国際出願日における出願人の資格に関する申立て : _____
- ☐ 第VIII欄(iv) 発明者である旨の申立て（米國を指定国とする場合） : _____
- ☐ 第VIII欄(v) 不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て : _____

第Ⅺ欄 照合欄：出願の言語

この国際出願の紙形式の枚数は次のとおりである。

(a) 紙形式での枚数

要約書(申立てを含む).....	5 枚
明細書(配列表を除く).....	17 枚
請求の範囲.....	2 枚
要約書.....	1 枚
図面.....	0 枚
小計.....	25 枚

明細書の配列表部分..... 0 枚
 (紙形式での出願の場合はその枚数
 コンピュータ読み取り可能な形式の複製を同封しない
 下記(a)参照)

合計 25 枚

(b) コンピュータ読み取り可能な形式による配列表部分

(i) ☐ コンピュータ読み取り可能な形式のみ
(実施細則第 801 号(a)(i))(ii) ☐ 紙形式に追加
(実施細則第 801 号(a)(ii))配列表部分を含む媒体の種類 (7477' 47' (a)、CD-ROM、CD-R その他) と枚数
(追加的写しは右欄 9、(ii)に記載)

この国際出願には、以下にチェックしたものが添付されている。

- | | | |
|--|---|---|
| 1. ☒ 手数料計算用紙 | 数 | 1 |
| ☒ 納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面 | | 1 |
| ☒ 国際事務局の口座への振込を証明する書面 | | 1 |
| 2. ☒ 個別の委任状の原本 | | 2 |
| 3. ☐ 包括委任状の原本 | | |
| 4. ☐ 包括委任状の写し (あれば包括委任状番号) | | |
| 5. ☐ 記名押印(署名)の欠陥についての説明書 | | |
| 6. ☐ 優先権書類 (上記第VI欄の () の番号を記載する): | | |
| 7. ☐ 国際出願の翻訳文 (翻訳に使用した言語名を記載する): | | |
| 8. ☐ 寄託した微生物又は他の生物材料に関する書面 | | |
| 9. ☐ コンピュータ読み取り可能なヌクレオチド又はアミノ酸配列表
(媒体の種類 (7477' 47' (a)、CD-ROM、CD-R その他) と枚数も添付する) | | |
| (i) ☐ 規則 13 の3に基づき提出する国際調査のための写し
(国際出願の一部を構成しない) | | |
| (ii) ☐ (左欄(a)又は(ii)印に捺印した場合のみ)
規則 13 の3に基づき提出する国際調査のための写しを含む追加的写し | | |
| (iii) ☐ 国際調査のための写しの同一性、又は左欄に記載した
配列表部分を含む写しの同一性についての簡述書を添付 | | |
| 10. ☐ その他 (書類名を具体的に記載): | | |

要約書とともに提示する図面:

本国際出願の言語: 日本語

第Ⅻ欄 出願人、代理人又は代表者の記名押印

各人の氏名 (名称) を記載し、その次に捺印する。

津 国 肇



受理官庁記入欄

1. 国際出願として提出された書類の実際の受理の日

3. 国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であって
その後期間内に受理されたものの実際の受理の日 (訂正日)

4. 特許協力条約第 11 条 (2) に基づく必要な補完の期間内の受理の日

5. 出願人により特定された
国際調査機関

ISA/

6. ☐ 調査手数料未払いにつき、国際調査機関に
調査用写しを送付していない。

2. 図面

☐ 受理された☐ 不足図面がある

国際事務局記入欄

記載原本の受理の日:

PATENT COOPERATION TREAT .

PCT

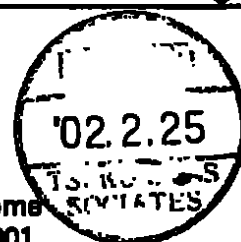
NOTIFICATION OF RECEIPT OF
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

TSUKUNI, Hajime
SVAX TS Bldg.
22-12, Toranomon 1-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0001
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 19 February 2002 (19.02.02)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference FP2484PCT	International application No. PCT/JP02/00064

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

UBE INDUSTRIES, LTD. (for all designated States except US)
FUJII, Katsutoshi et al (for US)

International filing date : 10 January 2002 (10.01.02)

Priority date(s) claimed : 11 January 2001 (11.01.01)

Date of receipt of the record copy
by the International Bureau : 25 January 2002 (25.01.02)

List of designated Offices :

AP : GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW

EA : AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR

OA : BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GO, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG

National : AE, AG, AL, AU, BA, BB, BG, BR, BZ, CA, CN, CO, CR, CU, CZ, DM, DZ, EC, EE, GD, GE, HR, HU, ID,
IL, IN, IS, KR, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, OM, PH, PL, RO, SG, SI, SK, TN, TT, UA, US,
UZ, VN, YU, ZA

ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
☒ confirmation of precautionary designations
☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer: Susumu KUBO Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated in the Notification of Receipt of Record Copy (Form PCT/IB/301) by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by the applicable national laws.

The time limit for performing these procedural acts is 20 MONTHS from the priority date or, for those designated States which the applicant elects in a demand for international preliminary examination or in a later election, 30 MONTHS from the priority date, provided that the election is made before the expiration of 18 months from the priority date. Some designated (or elected) Offices have fixed time limits which expire even later than 20 or 30 months from the priority date. In other Offices an extension of time or grace period, in some cases upon payment of an additional fee, is available.

In addition to these procedural acts, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure that the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most designated Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

For detailed information about the procedural acts to be performed to enter the national phase before each designated Office, the applicable time limits and possible extensions of time or grace periods, and any other requirements, see the relevant Chapters of Volume II of the PCT Applicant's Guide. Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in Chapter IX of Volume I of the PCT Applicant's Guide.

GR and ES became bound by PCT Chapter II on 7 September 1998 and 8 September 1997, respectively, and may, therefore, be elected in a demand or a later election filed on or after 7 September 1998 and 8 September 1997, respectively, regardless of the filing date of the international application. (See second paragraph above.)

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

CONFIRMATION OF PRECAUTIONARY DESIGNATIONS

This notification lists only specific designations made under Rule 4.8(a) in the request. It is important to check that these designations are correct. Errors in designations can be corrected where precautionary designations have been made under Rule 4.8(b). The applicant is hereby reminded that any precautionary designations may be confirmed according to Rule 4.8(a) before the expiration of 15 months from the priority date. If it is not confirmed, it will automatically be regarded as withdrawn by the applicant. There will be no reminder and no invitation. Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying the designated State concerned (with an indication of the kind of protection or treatment desired) and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.

REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS

For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 18 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 18-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 18-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 18-month time limit is the filing date of the earliest application whose priority is claimed.

PATENT COOPERATION TREATY

69 8

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

TSUKUNI, Hajime
SVAX TS Bldg.
22-12, Toranomon 1-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0001
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 14 March 2002 (14.03.02)	
Applicant's or agent's file reference FP2484PCT	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP02/00064	International filing date (day/month/year) 10 January 2002 (10.01.02)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 11 January 2001 (11.01.01)
Applicant UBE INDUSTRIES, LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	Date of receipt of priority document
11 Janu 2001 (11.01.01)	2001-3825	JP	01 Marc 2002 (01.03.02)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer Khemals BRAHMI Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/00064

70

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C07D239/42, 409/12, 405/12, A01N43/54

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C07D239/42, 409/12, 405/12, A01N43/54

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

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

CA(STN), REGISTRY(STN), WPIDS(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 11-302261, A (Ube Industries, Ltd.), 02 November, 1999 (02.11.99), Claims & EP 1074546 A	1-6
Y	JP, 64-68362, A (Ube Industries, Ltd.), 14 March, 1989 (14.03.89), Claims & EP 264217 A	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

01 April, 2002 (01.04.02)

Date of mailing of the international search report

09 April, 2002 (09.04.02)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C07D239/42, 409/12, 405/12, A01N43/54

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C07D239/42, 409/12, 405/12, A01N43/54

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

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

CA (STN), REGISTRY (STN), WPIDS (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の 号
Y	JP 11-302261 A (宇部興産株式会社) 1999. 1 1. 02, 特許請求の範囲 & EP 1074546 A	1-6
Y	JP 64-68362 A (宇部興産株式会社外1名) 198 9. 03. 14, 特許請求の範囲 & EP 264217 A	1-6

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を 照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

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

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

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

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

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

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

01. 04. 02

国際調査報告の発送日

09.04.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便 号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4 3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

内藤 一

4P

8615

電話番号 03-3581-1101 内 3492

PATENT COOPERATION TREATY

23.-9

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

TSUKUNI & ASSOCIATES

TSUKUNI, Hajime
SVAX TS Bldg.
22-12, Toranomom 1-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0001
JAPONNOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

Date of mailing (day/month/year) 29 August 2002 (29.08.02)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference FP2484PCT			
International application No. PCT/JP02/00064	International filing date (day/month/year) 10 January 2002 (10.01.02)	Priority date (day/month/year) 11 January 2001 (11.01.01)	
Applicant UBE INDUSTRIES, LTD. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this notice:

KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AE,AG,AL,AP,AU,BA,BB,BG,BR,BZ,CA,CN,CO,CR,CU,CZ,DM,DZ,EA,EC,EE,EP,GD,GE,HR,HU,ID,
IL,IN,IS,LC,LK,LR,LT,LV,MA,MG,MK,MN,MX,NO,NZ,OA,OM,PH,PL,RO,SG,SI,SK,TN,TT,UA,UZ,
VN,YU,ZA

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 29 August 2002 (29.08.02) under No. WO 02/066444

4. TIME LIMITS for filing a demand for international preliminary examination and for entry into national phase

The applicable time limit for entering the national phase will, subject to what is said in the following paragraph be 30 MONTHS from the priority date, not only in respect of any elected Office if a demand for international preliminary examination is filed before the expiration of 18 months from the priority date, but also in respect of any designated Office, in the absence of filing of such demand, where Article 22(1) as modified with effect from 1 April 2002 applies in respect of the designated Office. For further details, see PCT Gazette No.44/2001 of 1 November 2001, pages 18826, 18832 and 18834, as well as the PCT Newsletter, October and November 2001 and February 2002 issues.

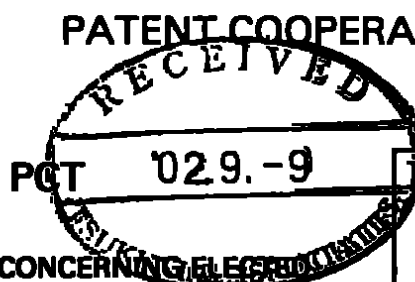
In practice, time limits other than the 30-month time limit will continue to apply, for various periods of time, in respect of certain designated or elected Offices. For regular updates on the applicable time limits (20, 21, 30 or 31 months, or other time limit), Office by Office, refer to the PCT Gazette, the PCT Newsletter and the PCT Applicant's Guide, Volume II, National Chapters, all available from WIPO's Internet site, at <http://www.wipo.int/pct/en/index.html>.

For filing a demand for international preliminary examination, see the PCT Applicant's Guide, Volume I/A, Chapter IX. Only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination (at present, all PCT Contracting States are bound by Chapter II.)

It is the applicant's sole responsibility to monitor all these limits.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.91.11
--	---

PATENT COOPERATION TREATY



from the INTERNATIONAL BUREAU

INFORMATION CONCERNING ELECTRONIC
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

To: TSUKUNI, Hajime
SVAX TS Bldg.
22-12, Toranomon 1-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0001
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 29 August 2002 (29.08.02)		IMPORTANT INFORMATION	
Applicant's or agent's file reference FP2484PCT			
International application No. PCT/JP02/00064	International filing date (day/month/year) 10 January 2002 (10.01.02)	Priority date (day/month/year) 11 January 2001 (11.01.01)	
Applicant UBE INDUSTRIES, LTD. et al			

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR
National : AU, BG, CA, CN, IL, KR, MN, NO, PL, RO, SK, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

AP : GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW
EA : AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM
OA : BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG
National : AE, AG, AL, BA, BB, BR, BZ, CO, CR, CU, CZ, DM, DZ, EC, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IN, IS, LC, LK, LR, LT, LV, MA, MG, MK, MX, NZ, OM, PH, SG, SI, TN, TT, UA, UZ, VN, YU, ZA

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" before the expiration of 30 months from the priority date before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 38(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 38(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer: J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--