

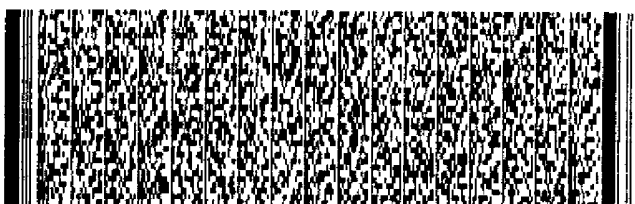
申請日期： 87.12.14	案號： 87120735	<b>公 告 本</b>
類別：		

(以上各欄由本局填註)

## 發明專利說明書

464471

一、 發明名稱	中文	基於醯胺化合物及吡啶衍生物之殺真菌混合物
	英文	FUNGICIDAL MIXTURES BASED ON AMIDE COMPOUNDS AND PYRIDINE DERIVATIVES
二、 發明人	姓名 (中文)	1. 克勞士 雪柏格 2. 瑪利亞 雪兒 3. 克爾 伊肯 4. 曼弗德 海佩
	姓名 (英文)	1. KLAUS SCHELBERGER 2. MARIA SCHERER 3. KARL EICKEN 4. MANFRED HAMPEL
	國籍	1. 奧地利 2. 德國 3. 德國 4. 德國
	住、居所	1. 德國高翰市屈米那路2號 2. 德國蘭道市荷曼-哲根士街30號 3. 德國威程翰市艾姆 荷頓溫格街12號 4. 德國那斯泰德市伊姆 賓卡頓街15號
三、 申請人	姓名 (名稱) (中文)	1. 德商巴地斯顏料化工廠
	姓名 (名稱) (英文)	1. BASF AKTIENGESELLSCHAFT
	國籍	1. 德國
	住、居所 (事務所)	1. 德國來恩河勞域沙芬市
	代表人 姓名 (中文)	1. 安德瑞斯·拜伯拜奇 2. 維拉·史塔克
	代表人 姓名 (英文)	1. ANDREAS BIEBERBACH 2. VERA STARK



464471


申請日期：

案號：

類別：

(以上各欄由本局填註)

## 發明專利說明書

一、 發明名稱	中文	
	英文	
二、 發明人	姓名 (中文)	5. 伊柏哈德 艾莫曼 6. 吉瑟拉 羅倫茲 7. 西弗德 史翠曼
	姓名 (英文)	5. EBERHARD AMMERMANN 6. GISELA LORENZ 7. SIEGFRIED STRATHMANN
	國籍	5. 德國 6. 德國 7. 德國
	住、居所	5. 德國海本翰市芬-高格恩街2號 6. 德國那斯泰德市爾蘭路13號 7. 德國理柏格哈弗市多那柏格街9號
三、 申請人	姓名 (名稱) (中文)	
	姓名 (名稱) (英文)	
	國籍	
	住、居所 (事務所)	
	代表人 姓名 (中文)	
	代表人 姓名 (英文)	
		

本案已向

國(地區)申請專利

申請日期

案號

主張優先權

德國 DE

1997/12/18 19756380.5

有

有關微生物已寄存於

寄存日期

寄存號碼

無



## 五、發明說明 (I)

本發明係有關一種用以防治有害真菌之殺真菌混合物，該混合物包括協有效量之下列化合物

式I之醯胺化合物：



其中

A係芳基或含1至3個選自O, N及S之雜原子之芳族或非芳族5-或6-員雜環；

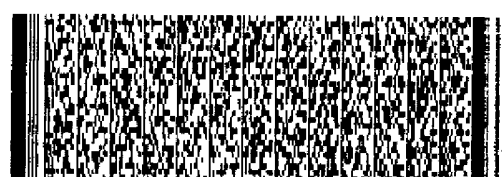
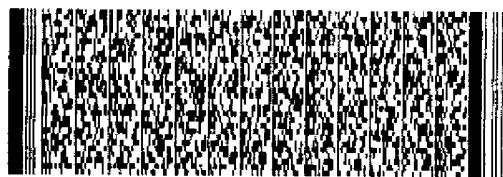
其中芳基或雜環可具有或不具有1, 2或3個彼此獨立選自烷基、鹵素、 $CHF_2$ 、 $CF_3$ 、烷氧基、鹵烷氧基、烷硫基、烷亞磺醯基及烷磺醯基之取代基；

$R^1$ 為氫原子；

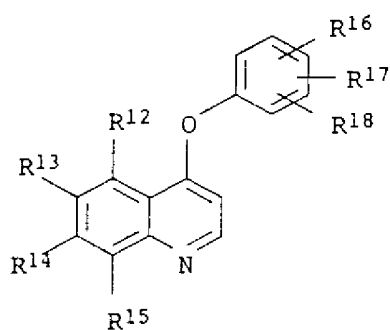
$R^2$ 為可具有或不具有1, 2或3個彼此獨立選自烷基、烯基、炔基、烷氧基、烯氧基、炔氧基、環烷基、環烯基、環烷氧基、環烯氧基、苯基及鹵素之取代基之苯基或環烷基，其中脂族及環脂族基可部份或完全鹵化及/或環脂族基可經1至3個烷基取代且其中苯基可具有1至5個鹵原子及/或1至3個彼此獨立選自烷基、鹵烷基、烷氧基、鹵烷氧基、烷硫基及鹵烷硫基之取代基，及其中醯胺苯基可與或不與可經或不經一或多個烷基取代及/或可具有選自O及S之雜原子之飽和5-員環縮合，

及

式II化合物，其N-氧化物或其鹽之一：



## 五、發明說明 (2)



(II)

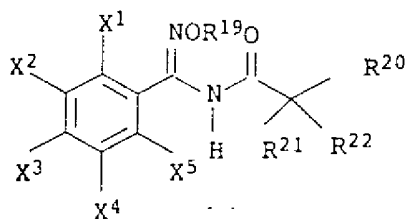
其中取代基定義如下：

$R^{12}$ ,  $R^{13}$ ,  $R^{14}$ ,  $R^{15}$  彼此獨立為氫、羥基、硝基、鹵素、 $C_1-C_4$ -烷基、 $C_1-C_4$ -鹵烷基、 $C_1-C_4$ -烷氧基、 $C_1-C_4$ -鹵烷氧基、 $C_1-C_4$ -烷硫基、 $C_1-C_4$ -鹵烷硫基；

$R^{16}$ ,  $R^{17}$ ,  $R^{18}$  彼此獨立為氫、羥基、氰基、硝基、鹵素、 $C_1-C_7$ -烷基、 $C_1-C_7$ -鹵烷基、 $C_1-C_7$ -烷氧基、 $C_1-C_7$ -鹵烷氧基、 $C_1-C_7$ -烷硫基、 $C_1-C_7$ -鹵烷硫基、 $C_1-C_7$ -羥烷基、 $C_2-C_4$ -醯基、芳基、芳氧基，

其中含有芳基作為其一部份之基可帶有1至3個下列基：氰基、硝基、鹵素、 $C_1-C_4$ -烷基、 $C_1-C_4$ -鹵烷基、 $C_1-C_4$ -烷氧基、 $C_1-C_4$ -鹵烷氧基、 $C_1-C_4$ -烷硫基及 $C_1-C_4$ -鹵烷硫基；

及/或式III之化合物：



(III)

其中取代基 $X^1$ 及 $X^5$ 及 $R^{19}$ 至 $R^{22}$ 定義如下：

$X^1$ 至 $X^5$ 彼此獨立為氫、鹵素、 $C_1-C_4$ -烷基、 $C_1-C_4$ -鹵烷基、

## 五、發明說明 (3)

$C_1-C_4$ -烷氧基、 $C_1-C_4$ -鹵烷氧基、 $C_1-C_4$ -烷硫基、 $C_1-C_4$ -硫烷氧基、 $C_1-C_4$ -硫醯基烷基、硝基、胺基、 $N-C_1-C_4$ -醯胺基、 $N-C_1-C_4$ -烷胺基；

$R^{19}$  為  $C_1-C_4$ -烷基、 $C_2-C_4$ -烯基、 $C_2-C_4$ -炔基、 $C_1-C_4$ -烷基- $C_3-C_7$ -環烷基，其中該等基可帶有選自鹵素、氧基及  $C_1-C_4$ -烷氧基之取代基；

$R^{20}$  為苯基或含有至少一個選自N、O及S之雜原子之5-或6-員飽和或不飽和雜環基，其中環狀基可具有1至3個選自鹵素、 $C_1-C_4$ -烷基、 $C_1-C_4$ -烷氧基、 $C_1-C_4$ -鹵烷基、 $C_1-C_4$ -鹵烷氧基、 $C_1-C_4$ -烷氧基- $C_2-C_4$ -烯基、 $C_1-C_4$ -烷氧基- $C_2-C_4$ -炔基之取代基；

$R^{21}$  及  $R^{22}$  彼此獨立為氫、 $C_1-C_4$ -烷基、 $C_1-C_4$ -烷氧基、 $C_1-C_4$ -烷硫基、 $N-C_1-C_4$ -烷胺基、 $C_1-C_4$ -鹵烷基或  $C_1-C_4$ -鹵烷氧基。

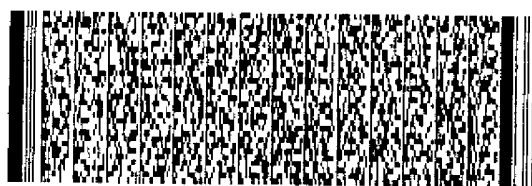
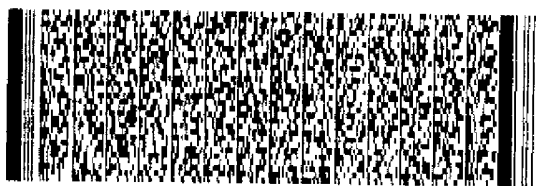
式I之醯胺化合物本身為已知且述於文獻(EP-A 545 099)中。

WO 97/08952描述殺真菌混合物，其除了式I化合物以外，亦含有芬納唑醯(fenazaquin)作為進一步之成分。其描抗葡萄孢(Botrytis)非常有效。

式II化合物本身為已知且述於例如US-A 5,240,940。除了其他殺真菌活性化合物以外亦包括式II化合物之殺真菌混合物亦已知且述於O.Z. 45483。

式III化合物及其製備方法述於WO-A 96/19442。

本發明之目的係提供一種具有改良之抗有害真菌活性及



## 五、發明說明(4)

可施加總量減少之活性成分之混合物(協同混合物)，而預期可降低施用率及改良已知化合物之活性譜。

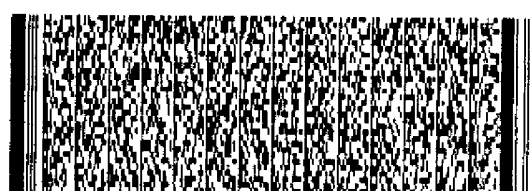
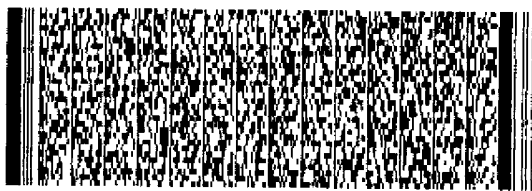
已發現此目的可藉前揭混合物達成。再者，已發現藉同時(一起或分別)施用化合物II及化合物II及III，或藉依序施加化合物I及化合物II及III時，可得到比個別施用化合物I或II至III更佳之防治有害真菌效果。

本發明之混合物具協同作用且因此特別適用於防治有害真菌，尤其是蔬菜及葡萄中之粉黴真菌。

就本發明而論，鹵素為氟、氯、溴及碘且尤其為氟、氯及溴。

“烷基”一詞包含直鏈及分支烷基。較好為直鏈或分支 $C_1-C_{12}$ -烷基，且尤其是 $C_1-C_6$ -烷基。烷基實例為例如甲基、乙基、丙基、1-甲基乙基、丁基、1-甲基丙基、2-甲基丙基、1,1-二甲基乙基、正戊基、1-甲基丁基、2-甲基丁基、3-甲基丁基、1,2-二甲基丙基、1,1-二甲基丙基、2,2-二甲基丙基、1-乙基丙基、正己基、1-甲基戊基、2-甲基戊基、3-甲基戊基、4-甲基戊基、1,2-二甲基丁基、1,3-二甲基丁基、2,3-二甲基丁基、1,1-二甲基丁基、2,2-二甲基丁基、3,3-二甲基丁基、1,1,2-三甲基丙基、1,2,2-三甲基丙基、1-乙基丁基、2-乙基丁基、1-乙基-2-甲基丙基、正庚基、1-甲基己基、1-乙基戊基、2-乙基戊基、1-丙基丁基、辛基、癸基、十二烷基之烷基。

鹵烷基為部份或全部經一或多個鹵原子，尤其是氟及氯鹵化之上述定義之烷基。較好存在有1至3個鹵原子，且以

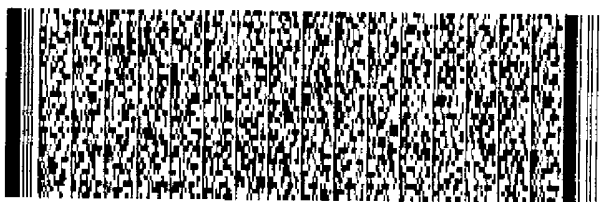


## 五、發明說明 (5)

二氟甲基或三氟甲基尤佳。

上述對烷基及鹵烷基之陳述以對烷基及鹵烷基之對應方式應用於烷氧基、鹵烷氧基、烷硫基、鹵烷硫基、烷亞磺醯基及烷磺醯基。

烯基包含直鏈及分支烯基。其較好為直鏈或分支 $C_3-C_{12}$ -烯基且尤其是 $C_3-C_6$ -烯基。烯基實例為2-丙烯基、2-丁烯基、3-丁烯基、1-甲基-2-丙烯基、2-甲基-2-丙烯基、2-戊烯基、3-戊烯基、4-戊烯基、1-甲基-2-烯基、2-甲基-2-丁烯基、3-甲基-2-丁烯基、1-甲基-3-丁烯基、2-甲基-3-丁烯基、3-甲基-3-丁烯基、1,1-二甲基-2-丙烯基、1,2-二甲基-2-丙烯基、1-乙基-2-丙烯基、2-己烯基、3-己烯基、4-己烯基、5-己烯基、1-甲基-2-戊烯基、2-甲基-2-戊烯基、3-甲基-2-戊烯基、4-甲基-2-戊烯基、1-甲基-3-戊烯基、2-甲基-3-戊烯基、3-甲基-3-戊烯基、4-甲基-3-戊烯基、1-甲基-4-戊烯基、2-甲基-4-戊烯基、3-甲基-4-戊烯基、4-甲基-4-戊烯基、1,1-二甲基-2-丁烯基、1,1-二甲基-3-丁烯基、1,2-二甲基-2-丁烯基、1,2-二甲基-3-丁烯基、1,3-二甲基-2-丁烯基、1,3-二甲基-3-丁烯基、2,2-二甲基-3-丁烯基、2,3-二甲基-2-丁烯基、2,3-二甲基-3-丁烯基、1-乙基-2-丁烯基、1-乙基-3-丁烯基、2-乙基-2-丁烯基、2-乙基-3-丁烯基、1,1,2-三甲基-2-丙烯基、1-乙基-1-甲基-2-丙烯基及1-乙基-2-甲基-2-丙烯基，尤其是2-丙烯基、2-丁烯基、3-甲基-2-丁烯基及3-甲基-2-戊烯基。





## 五、發明說明 (6)

烯基可部份或全部經一或多個鹵原子尤其是氯及氟鹵化。烯基較好具有1至3個鹵原子。

炔基包含直鏈及分支炔基。較好為直鏈及分支 $C_3-C_{12}$ -炔基且尤其是 $C_3-C_6$ -炔基。炔基實例為2-丙炔基、2-丁炔基、3-丁炔基、1-甲基-2-丙炔基、2-戊炔基、3-戊炔基、4-戊炔基、1-甲基-3-丁炔基、2-甲基-3-丁炔基、1-甲基-2-丁炔基、1,1-二甲基-2-丙炔基、1-乙基-2-丙炔基、2-己炔基、3-己炔基、4-己炔基、5-己炔基、1-甲基-2-戊炔基、1-甲基-3-戊炔基、1-甲基-4-戊炔基、2-甲基-3-戊炔基、2-甲基-4-戊炔基、3-甲基-4-戊炔基、4-甲基-2-戊炔基、1,2-二甲基-2-丁炔基、1,1-二甲基-3-丁炔基、1,2-二甲基-3-丁炔基、2,2-二甲基-3-丁炔基、1-乙基-2-丁炔基、1-乙基-3-丁炔基、2-乙基-3-丁炔基及1-乙基-1-甲基-2-丙炔基。

上述對烯基及其鹵素取代基及對炔基之陳述以對應方式應用至烯氧基及炔氧基。

環烷基較好為 $C_3-C_6$ -環烷基，如環丙基、環丁基、環戊基或環己基。若環烷基經取代，則較好具有1至3個 $C_1-C_4$ -烷基作為取代基。

環烯基較好為 $C_4-C_6$ -環烯基如環丁烯基、環戊烯基或環己烯基。若環烯基經取代，則較好具有1至3個 $C_1-C_4$ -烷基作為取代基。

環烷氧基較好為 $C_5-C_6$ -環烷氧基如環戊氧基或環己氧基。若環烷氧基經取代，則較好具有1至3個 $C_1-C_4$ -烷基作

## 五、發明說明 (7)

為取代基。

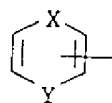
環烯氧基較好為 $C_5-C_6$ -環烯氧基如環戊烯氧基或環己烯氧基。若環烯氧基經取代，則較好具有1至3個 $C_1-C_4$ -烷基作為取代基。

芳基較好為苯基。

若A為苯基，其可於任何位置具有1、2或3個上述取代基。該等取代基較好彼此獨立選自烷基、二氟甲基、三氟甲基及鹵素，尤其是氯、溴及碘。尤佳，苯基在2-位置具有取代基。

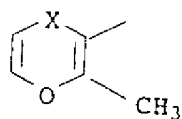
若A為5-員雜環，其尤其為咪喃基、噻唑基、吡唑基、咪唑基、嘓唑基、噻吩基、三唑基或噻二唑基或其對應之二氫或四氫衍生物。較佳為噻唑基或吡唑基。

若A為6-員雜環，尤其為吡啶基或下式之基：



其中X及Y基之一為O、S或 $NR^{23}$ ，其中 $R^{23}$ 為H或烷基，及X及Y基之另一個為 $CH_2$ 、S、SO、 $SO_2$ 或 $NR^{23}$ 。虛線表示可存在或不存在有雙鍵。

6-員芳族雜環尤佳為吡啶基，尤其是3-吡啶基或下式之基：



(A3)

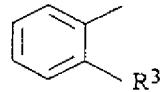
其中X為 $CH_2$ 、S、SO或 $SO_2$ 。

上述雜環基可具有或不具有1、2或3個上述取代基，其

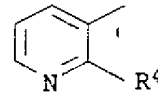
## 五、發明說明 (8)

中該等取代基較好彼此獨立選自烷基、鹵素、二氟甲基或三氟甲基。

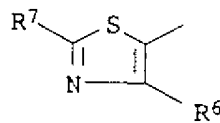
A 尤佳為下式之基：



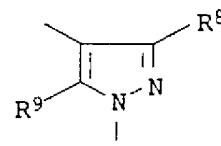
(A1)



(A2)



(A5)

(A7) CH<sub>3</sub>

其中 $R^3$ ， $R^4$ ， $R^6$ ， $R^7$ ， $R^8$ 及 $R^9$ 彼此獨立為氫、烷基，尤其是甲基、鹵素，更尤其是氯、 $\text{CHF}_2$ 或 $\text{CF}_3$ 。

式I中 $R^1$ 基較好為氫原子。

式I中 $R^2$ 基較好為苯基。 $R^2$ 較好在尤其是2-位置具有至少一個取代基。取代基(或諸取代基)較好選自烷基、環烷基、環烯基、鹵素及苯基之組群。

$R^2$ 基之取代基又可再經取代。脂族或環脂族取代基可部份或完全鹵化，尤其是氟化或氯化。其較好具有1、2或3個氟或氯原子。若 $R^2$ 基之取代基為苯基，此苯基較好經1至3個鹵原子(尤其是氯原子)及/或經較好選自烷基及烷氧基取代。尤佳，苯基在對-位上經鹵原子取代，亦即 $R^2$ 基之特佳取代基為對-鹵素取代之苯基。 $R^2$ 基亦可與飽和5-員環縮合，其中此環部份可具有1至3個烷基取代基。

此例中， $R^2$ 為例如茚滿基、噻茚滿基及喹茚滿基。較佳

## 五、發明說明 (9)

為尤其是經由4-位置附接至氮原子之茚滿基及2-喹茚滿基。

依據較佳具體例，本發明組合物包括式I中A如下列定義之化合物作為醯胺化合物：

苯基、吡啶基、二氫吡喃基、二氫喹噁喃基、二氫喹噁喃基氧化物、二氫喹噁喃基二氧化物、呋喃基、噻唑基、吡唑基或噁唑基，其中該等基可具有1、2或3個彼此獨立選自烷基、鹵素、二氟甲基及三氟甲基之取代基。

依據進一步較佳具體例，A為：

吡啶-3-基，其可在2-位置經或不經鹵素、甲基、二氟甲基、三氟甲基、甲氧基、甲硫基、甲亞磺醯基或甲磺醯基取代；

苯基，其可在2-位置經或不經甲基、三氟甲基、氯、溴或碘取代；

2-甲基-5,6-二氫吡喃-3-基；

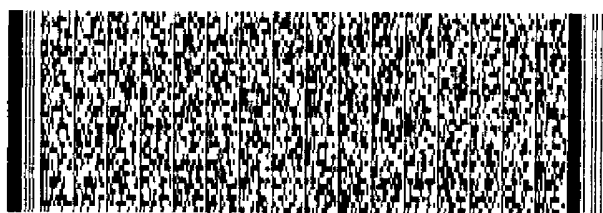
2-甲基-5,6-二氫-1,4-喹噁喃-3-基或其4-氧化物或4,4-二氧化物；

2-甲基呋喃-3-基，其可在4-及/或5-位置經或不經甲基取代；

噻唑-5-基，其可在2-及/或4-位置經或不經甲基、氯、二氟甲基或三氟甲基取代；

噻唑-4-基，其可在2-及/或5-位置經或不經甲基、氯、二氟甲基或三氟甲基取代；

1-甲基吡唑-4-基，其可在3-及/或5-位置經或不經甲



## 五、發明說明 (10)

基、氯、二氯甲基或三氯甲基取代；或

噁唑-5-基，其可在2-及/或4-位置經或不經甲基或氯取代。

依據進一步較佳具體例，本發明組合物包括式I中R<sup>2</sup>為可經或不經1、2或3個上述取代基取代之苯基之化合物作為醯胺化合物。

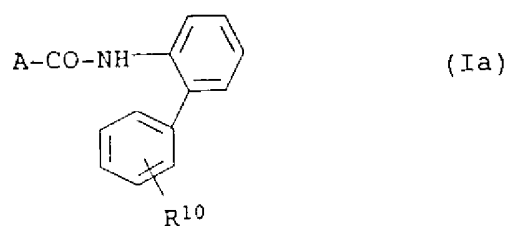
依據進一步較佳具體例，本發明組合物包括式I中R<sup>2</sup>為在2-位置具下列取代基之苯基之化合物作為醯胺化合物。

C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-烷基、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-環烯基、C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-環烷氧基、環烯氧基，其中該等基可經1、2或3個C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基取代，

苯基，其經1至5個鹵素原子及/或經1至3個彼此獨立選自C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵烷基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷氧基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵烷氧基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷硫基及C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵烷硫經之基取代，

蒽基或萸蒽基，其可經或不經1、2或3個C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基取代。

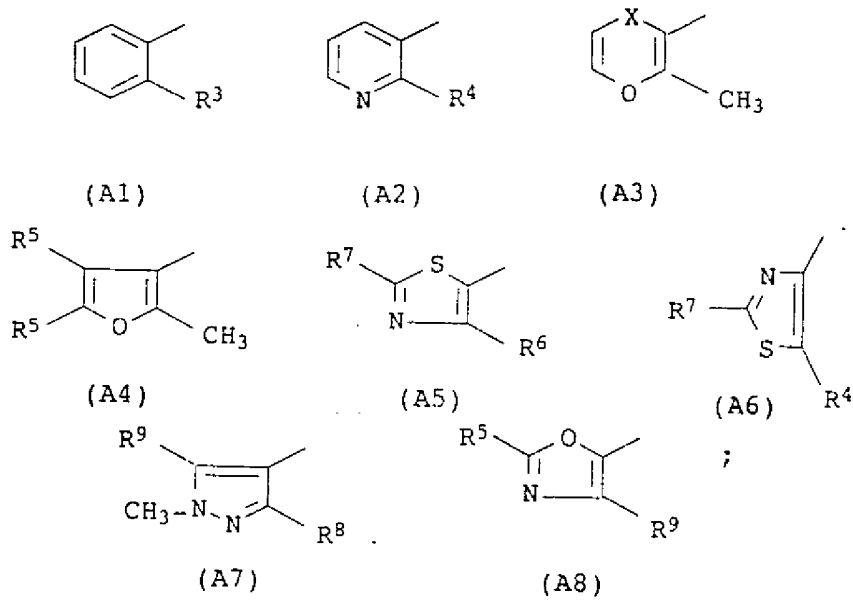
依據進一步較佳具體例，本發明組合物包括式Ia之化合物作為醯胺化合物：



其中

A 為

五、發明說明 (11)



X 為伸甲基、硫、亞磺醯基或磺醯基(SO<sub>2</sub>)，

R<sup>3</sup> 為甲基、二氟甲基、三氟甲基、氯、溴或碘，

R<sup>4</sup> 為三氟甲基或氯，

R<sup>5</sup> 為氫或甲基，

R<sup>6</sup> 為甲基、二氟甲基、三氟甲基或氯，

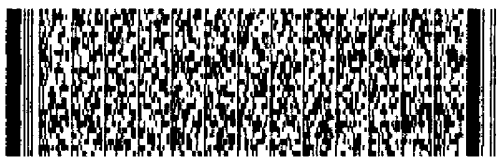
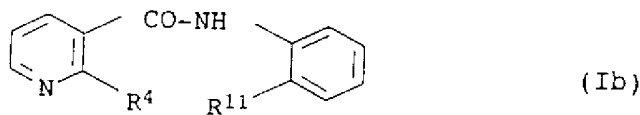
R<sup>7</sup> 為氫、甲基或氯，

R<sup>8</sup> 為甲基、二氟甲基或三氟甲基，

R<sup>9</sup> 為氫、甲基、二氟甲基、三氟甲基或氯，

R<sup>10</sup> 為C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷氧基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷硫基或鹵素。

依據特佳具體例，此組合物包括式Ib化合物作為醯胺化合物：



## 五、發明說明 (12)

其中

$R^4$  為鹵素，及

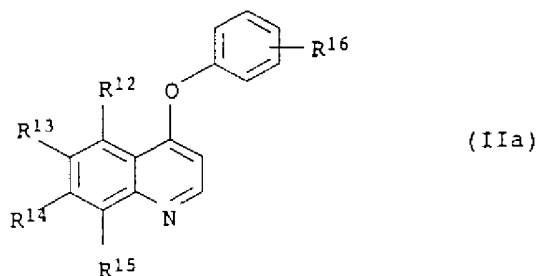
$R^{11}$  為經鹵素取代之苯基。

有用之式I醯胺化合物述於EP-A-545 099及589 301，其全部併於本文供參考。

式I醯胺化合物之製備為已知，例如具於EP-A-545 099或589 301或可依類似方法進行。

特佳成分b)為下表I之化合物IIa。

表I



編號	$R^{12}$	$R^{13}$	$R^{14}$	$R^{15}$	$R^{16}$
II.1	H	H	Cl	H	2-F
II.2	H	H	Cl	H	2-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
II.3	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub>
II.4	H	H	Cl	H	2-OCH <sub>3</sub>
II.5	H	H	Cl	H	3-F
II.6	H	H	Cl	H	3-Cl
II.7	H	H	Cl	H	3-CF <sub>3</sub>
II.8	H	H	Cl	H	3-CN
II.9	H	H	Cl	H	3-OCH <sub>3</sub>
II.10	H	H	Cl	H	3-苯基
II.11	H	H	Cl	H	4-Cl
II.12	H	H	Cl	H	4-Br
II.13	H	H	Cl	H	4-CF <sub>3</sub>
II.14	H	H	Cl	H	4-CH <sub>3</sub>
II.15	H	H	Cl	H	4-CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>



## 五、發明說明 (13)

編號	R <sup>12</sup>	R <sup>13</sup>	R <sup>14</sup>	R <sup>15</sup>	R <sup>16</sup>
II.16	H	H	Cl	H	4-CN
II.17	H	H	Cl	H	2-Cl-4-F
II.18	H	H	Cl	H	2,4-二-Br
II.19	H	H	Cl	H	2,4-二-NO <sub>2</sub>
II.20	H	H	Cl	H	2-CH <sub>3</sub> -4-F
II.21	H	H	Cl	H	2,6-二-F
II.22	H	H	Cl	H	2,4,6-三-CH <sub>3</sub>
II.23	F	H	H	H	4-F
II.24	Cl	H	H	H	4-F
II.25	NO <sub>2</sub>	H	H	H	4-F
II.26	H	F	H	H	4-F
II.27	H	Cl	H	H	4-F
II.28	H	CH <sub>3</sub>	H	H	4-F
II.29	H	NO <sub>2</sub>	H	H	4-F
II.30	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	4-F
II.31	H	H	F	H	4-F
II.32	H	H	Cl	H	4-F
II.33	H	H	Br	H	4-F
II.34	H	H	NO <sub>2</sub>	H	4-F
II.35	H	H	OCF <sub>3</sub>	H	4-F
II.36	H	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	4-F
II.37	H	H	SCF <sub>3</sub>	H	4-F
II.38	H	H	O-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	4-F
II.39	H	H	H	F	4-F
II.40	H	H	H	Cl	4-F
II.41	H	H	H	CF <sub>3</sub>	4-F
II.42	F	H	F	H	4-F
II.43	O-CH <sub>3</sub>	H	O-CH <sub>3</sub>	H	4-F
II.44	Cl	F	H	H	4-F
II.45	Cl	Cl	H	H	4-F
II.46	Cl	CH <sub>3</sub>	H	H	4-F
II.47	H	Br	H	Cl	4-F
II.48	H	Cl	H	OH	4-F
II.49	H	O-CH <sub>3</sub>	H	NO <sub>2</sub>	4-F
II.50	H	F	Cl	H	4-F
II.51	H	CH <sub>3</sub>	Cl	H	4-F





## 五、發明說明 (14)

編號	R <sup>12</sup>	R <sup>13</sup>	R <sup>14</sup>	R <sup>15</sup>	R <sup>16</sup>
II.52	H	H	Cl	Cl	4-F
II.53	Cl	H	H	Cl	4-F
II.54	Cl	F	Cl	H	4-F
II.55	H	H	Cl	CN	4-F
II.56	Cl	CH <sub>3</sub>	Cl	H	4-F
II.57	Cl	Cl	Cl	H	4-F
II.58	Cl	Cl	Cl	Cl	4-F
II.59	H	H	H	Cl	2-F-4-Br
II.60	H	H	H	Cl	2,3-二-CH <sub>3</sub>
II.61	H	H	H	Cl	2-F-4-Cl
II.62	H	H	H	Cl	2,4-二-Cl-6-F
II.63	H	H	H	Cl	2,4-二-F
II.64	H	H	H	Cl	2,4-二-CH <sub>3</sub>
II.65	H	H	H	Cl	2-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
II.66	H	H	H	Cl	2-CH <sub>3</sub> -4-F
II.67	H	H	H	Cl	3-CH <sub>3</sub> -4-Cl
II.68	H	H	Cl	H	H
II.69	Cl	H	Cl	H	H
II.70	H	H	Cl	H	4-C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>



## 五、發明說明 (15)

極佳為表2之化合物IIa及其中述及之化合物2.78之鹽酸鹽及鹽酸鹽。

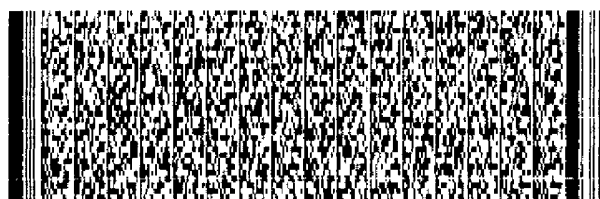
表2：

編號	R <sup>12</sup>	R <sup>13</sup>	R <sup>14</sup>	R <sup>15</sup>	R <sup>16</sup>
II.71	H	H	Cl	H	2-Cl
II.72	H	H	Cl	H	2-Br
II.73	H	H	Cl	H	2-CN
II.74	H	H	Cl	H	2-CF <sub>3</sub>
II.75	H	H	Cl	H	2-NO <sub>2</sub>
II.76	H	H	Cl	H	4-F
II.77	H	H	Cl	H	2,4-二-F
II.78	Cl	H	Cl	H	4-F
II.79	H	H	H	Cl	2-Cl-4-F
II.80	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	4-F

表1及2所述或與其有關之式IIa化合物見於US-A 5 240 940及/或ACS Sympos. Ser. 443, 第538至552頁(1991)。

式III化合物中，較好為其中X<sup>1</sup>為C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵烷基(尤其是三氟甲基)及X<sup>2</sup>及X<sup>3</sup>為氫或鹵素(尤其是氫原子)，X<sup>4</sup>及X<sup>5</sup>較好為氫、鹵素(尤其是Cl或F)、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷氧基(尤其是甲氧基或乙氧基)、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷硫基(尤其是甲硫基或乙硫基)、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵烷基(尤其是三氟甲基)或C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-鹵烷氧基(尤其是三氟甲氧基)者。

較佳之取代基R<sup>19</sup>為C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基(甲基、乙基、正-及異-丙基及第三丁基)、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-伸烷基-C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-環烷基、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烯基(尤其是乙烯基、丙烯基及丁烯基，其可經尤其是鹵素(較



## 五、發明說明 (16)

好Cl)取代)、丙炔基、氟甲基及甲氧甲基。C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-伸烷基-C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-環烷基取代基中，尤佳為伸甲基取代之化合物，尤其是伸甲基環丙基、伸甲基環戊基、伸甲基環己基及伸甲基環己烯基。該等取代基中之環較好可經鹵素取代。

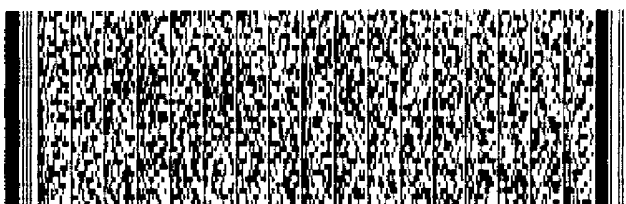
除了苯基以外可述及之取代基R<sup>20</sup>尤其為(經取代或未取代)噻吩基、吡啶基、吡咯基、咪唑基、噻唑基、呋喃基、嗒吡基及嘧啶基。該等環系統上較佳取代基為鹵素(尤其是F及Cl)、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷氧基(尤其是甲氧基)及C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-烷基(尤其是甲基、乙基)。環取代基數目可為1至3，尤其是1至2。尤佳為苯基或經取代苯基。

較佳之取代基R<sup>21</sup>及R<sup>22</sup>為氫、F、Cl、甲基、乙基、甲氧基、硫甲基及N-甲胺基。R<sup>3</sup>及R<sup>4</sup>亦可合而形成=O基。

式III較佳化合物見於WO 96/019442(前已述及)之表中。其中，尤佳為下表3所列之化合物(R<sup>21</sup>及R<sup>22</sup>各為氫)。

表3：

編號	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	X <sup>3</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>5</sup>	R <sup>19</sup>	R <sup>20</sup>
III.1	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	乙基	Ph-4-OMe
III.2	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	甲基	Ph-4-OMe
III.3	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	2-噻吩基
III.4	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-噻吩基
III.5	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2,4-F <sub>2</sub>
III.6	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F
III.7	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-4-OMe
III.8	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-3-Me
III.9	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-3-Me-4-OMe
III.10	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-F
III.11	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-Me
III.12	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-OMe
III.13	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.14	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -CH=CH <sub>2</sub>	Ph



## 五、發明說明 (17)

編號	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	X <sup>3</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>5</sup>	R <sup>19</sup>	R <sup>20</sup>
III.15	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -CH=CH <sub>2</sub>	Ph-4-OMe
III.16	CF <sub>3</sub>	H	H	H	H	-CH <sub>2</sub> -CH=CCl <sub>2</sub>	Ph-4-OMe
III.17	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.18	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	Ph
III.19	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.20	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.21	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F
III.22	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2,4-F <sub>2</sub>
III.23	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-3-Me
III.24	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-4-OMe
III.25	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-3,5-Me <sub>2</sub>
III.26	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-甲基吡啶-1-基
III.27	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-甲基-2-噁吩基
III.28	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	2-噁吩基
III.29	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-噁吩基
III.30	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -CHF <sub>2</sub>	Ph-4-OMe
III.31	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -OCH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.32	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -OCH <sub>3</sub>	Ph
III.33	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> CN	Ph-4-OMe
III.34	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> CN	Ph
III.35	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	Ph
III.36	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	Ph-4-OMe
III.37	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	Ph-2-F
III.38	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	Ph-4-Me
III.39	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	2-噁吩基
III.40	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	Ph-2-F-4-OMe
III.41	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	i-丙基	Ph
III.42	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	n-丁基	Ph
III.43	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	n-丙基	Ph
III.44	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	t-丁基	Ph
III.45	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>3</sub>	
III.46	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> CN	Ph-4-OMe
III.47	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> -OMe	Ph-4-OMe
III.48	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.49	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-甲基吡啶-1-基



## 五、發明說明 (18)

編號	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	X <sup>3</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>5</sup>	R <sup>19</sup>	R <sup>20</sup>
III.50	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> -cPr	2-噻吩基
III.51	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2,4-F <sub>2</sub>
III.52	CF <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	-CH <sub>2</sub> -C=CH	Ph-4-OMe
III.53	CF <sub>3</sub>	H	H	H	CF <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.54	CF <sub>3</sub>	H	H	H	CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl	Ph-4-OMe
III.55	CF <sub>3</sub>	H	H	H	CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	2-噻吩基
III.56	CF <sub>3</sub>	H	H	H	CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-5-Me
III.57	CF <sub>3</sub>	H	H	H	CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-OMe
III.58	CF <sub>3</sub>	H	H	H	CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.59	CF <sub>3</sub>	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.60	CF <sub>3</sub>	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-OMe
III.61	CF <sub>3</sub>	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.62	CF <sub>3</sub>	H	H	H	SCH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.63	CF <sub>3</sub>	H	H	H	SCH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-Ome
III.64	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	F	-CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> Cl	Ph
III.65	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	F	-CH <sub>2</sub> -CH=CH <sub>2</sub>	Ph-4-OMe
III.66	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	2-噻吩基
III.67	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F
III.68	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.69	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-5-Me
III.70	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	Cl	-CH <sub>2</sub> -CH=CH <sub>2</sub>	Ph-4-OMe
III.71	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> Cl	Ph
III.72	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	Cl	-CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	Ph-2-F-5-Me
III.73	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	Cl	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-3,5-Me <sub>2</sub>
III.74	CF <sub>3</sub>	H	H	SCH <sub>3</sub>	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-OMe
III.75	CF <sub>3</sub>	H	H	OCH <sub>3</sub>	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-OMe
III.76	CF <sub>3</sub>	H	F	H	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.77	CF <sub>3</sub>	H	F	H	H	-CH <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.78	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	Ph
III.79	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> Cl	Ph-2-F-5-Me
III.80	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -OCH <sub>3</sub> '	Ph-4-OMe
III.81	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.82	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-甲基吡啶-1-基
III.83	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	3-甲基-2-噻吩基
III.84	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-3-Me



## 五、發明說明 (19)

編號	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	X <sup>3</sup>	X <sup>4</sup>	X <sup>5</sup>	R <sup>19</sup>	R <sup>20</sup>
III.85	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-4-OMe
III.86	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-2-F-5-Me
III.87	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-OMe
III.88	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4F
III.89	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	i-丙基	Ph-4-OMe
III.90	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	n-丁基	Ph-4-OMe
III.91	CF <sub>3</sub>	H	H	F	F	-CH <sub>2</sub> -C≡CH	Ph-4-OMe
III.92	CF <sub>3</sub>	H	H	CF <sub>3</sub>	F	-CH <sub>3</sub>	Ph-4-OMe
III.93	CF <sub>3</sub>	H	H	CF <sub>3</sub>	F	-CH <sub>2</sub> -CH=CH <sub>2</sub>	Ph
III.94	CF <sub>3</sub>	H	H	CF <sub>3</sub>	F	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph
III.95	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	Cl	-CH <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub>	Ph
III.96	CF <sub>3</sub>	H	H	F	H	-CH <sub>2</sub> -cPr	Ph-4-F
III.97	CF <sub>3</sub>	H	H	Cl	Cl	-CH <sub>2</sub> -cHex	Ph
III.98	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -SCH <sub>3</sub>	Ph
III.99	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -SOCH <sub>3</sub>	Ph
III.100	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -SO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	Ph
III.101	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	-CH <sub>2</sub> -NHMe	Ph
III.102	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	CH <sub>2</sub> -CONH <sub>2</sub>	Ph
III.103	CF <sub>3</sub>	H	H	H	F	CH <sub>2</sub> CON(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Ph



## 五、發明說明 (20)

上表中，cPr為環丙基，cHxe-n為環己烯基，其在n位置為不飽和，c-Hex為環己基及Ph為苯基。

尤佳之式III化合物為其中R<sup>19</sup>為CH<sub>2</sub>-cPr及R<sup>20</sup>為含或不含取代基之苯基者。其中，較佳為式中X<sup>4</sup>及X<sup>5</sup>為鹵素，較好為F之化合物。該等化合物之物理數據及其製備方法見於WO 96/19442 (其已述及)。

為了顯現協同活性，甚至少量之式I醯胺化合物即已足夠。較好使用醯胺化合物與式II及/或III之活性成分之重量比在50:1至1:50之範圍，尤其自10:1至1:10。本文亦可使用三元混合物，其除了醯胺化合物I以外，又包括化合物II及化合物III。此混合物中，化合物II及III彼此之混合比例通常在50:1之1:50，較好10:1至1:10之範圍。

由於式II化合物之氮原子基本特性，式II化合物可與無機或有機酸或與金屬離子形成鹽或加成物。

無機酸實例為鹵酸如氫氟酸、氫氯酸、氫溴酸及氫碘酸、碳酸、硫酸、磷酸及硝酸。

適宜有機酸為例如甲酸及烷酸如乙酸、三氟乙酸、三氯乙酸及丙酸，亦可為乙醇酸、硫代氰酸、丙醇酸、丁二酸、檸檬酸、苯甲酸、桂皮酸、草酸、烷磺酸(具有含1至20個碳原子之直鏈或分支烷基之磺酸、芳磺酸或芳二磺酸(可帶有1或2個磺醯基之芳族基如苯基及萘基)、烷膦酸(具有含1至20個碳原子之直鏈或分支烷基)之膦酸)、芳膦酸或芳二膦酸(可帶有或2個膦酸基之芳族基如苯基及萘基)，對烷基及芳基而言又可帶有其他取代基，如對-甲苯

## 五、發明說明 (21)

磺酸、水楊酸、對-胺基水楊酸、2-苯氧基苯甲酸、2-乙醯氧基苯甲酸等。

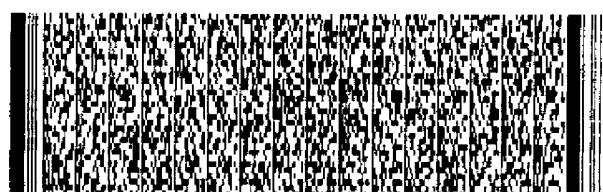
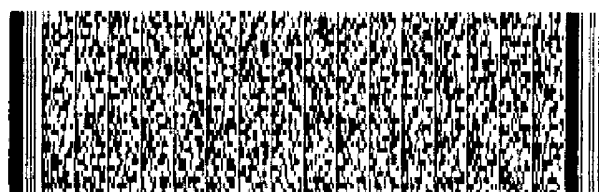
適宜之金屬離子尤其為第1至第8亞族元素之離子，尤其是鉻、錳、鐵、鈷、鎳、銅、鋅，又可為第2主族元素，尤其是鈣及鎂，及第3及第4主族元素，尤其為鋁、錫及鉛。金屬可存在有可能之各種價數。

當製備此混合物時，較好使用純活性成分I及II及/或III，於其中又可混合其他抗有害真菌或其他害蟲之活性成分，如殺昆蟲劑、殺蟎劑或殺線蟲劑，或其他除草或生長調節活性成分或肥料。

化合物I及II及/或III之混合物，或同時(一起或分別)使用之化合物I及II及/或III對廣範圍之植物致病性真菌呈現顯著之活性，尤其是對囊子菌綱(Ascomycetes)、擔子菌綱(Basidiomycetes)、藻菌綱(Phycomycetes)及不完全菌綱(Deuteromycetes)類。其有些係系統性作用且因此亦可作為葉面-及土壤-作用之殺真菌劑。

其對各種農作物如棉花、蔬菜物種(如胡瓜、菜豆、蕃茄、馬鈴薯及葫蘆)、大麥、牧草、橡樹、香蕉、咖啡、玉米、水果物種、稻、裸麥、大豆、葡萄、小麥、裝飾性植物、甘蔗及各種種子中之大量真菌之防治尤具重要性。

其特別適用於防治下列植物致病性真菌：穀類之禾白粉菌(*Erysiphe graminis*)，葫蘆之二孢白粉菌(*Erysiphe cichoracearum*)及單絲殼(*Sphaerotheca fuliginea*)，蘋果之白叉絲單囊殼(*Podosphaera leucotricha*)，葡萄之





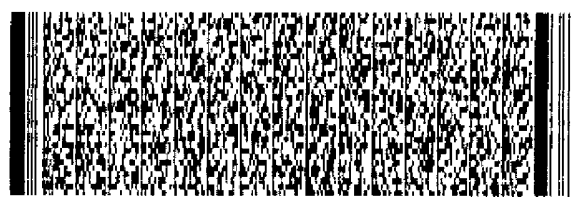
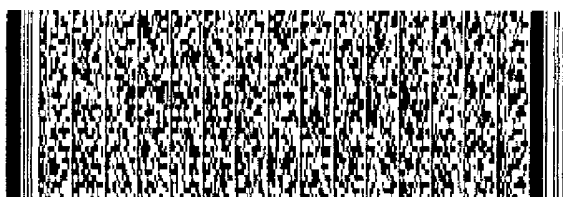
## 五、發明說明 (22)

葡萄鈎絲殼(*Uncinula necator*)，穀類之柄銹菌(*Puccinia species*)物種，棉花、稻及草地之絲殼菌(*Rhizoctonia species*)物種，穀類及甘蔗之黑粉菌(*Ustilago species*)物種，蘋果之蘋果黑星菌(*Venturia inaequalis*)(瘡痂病)，穀類之長蠕孢(*Helminthosporium species*)物種，小麥之穎枯殼針孢(*Septoria nodorum*)，草莓、蔬菜、裝飾性植物及葡萄之灰葡萄孢(*Botrytis cinerea*)(灰黴)，落花生之落花生尾孢(*Cercospora arachidicola*)，小麥及大麥之假小尾孢(*Pseudocercospora herpotrichoides*)，稻之稻瘟菌(*Pyricularia oryzae*)，馬鈴薯及蕃茄之致病疫黴(*Phytophthora infestans*)，葡萄之葡萄生單軸黴(*Plasmopara viticola*)，蛇麻草及胡瓜之假霜黴(*Pseudoperonospora species*)物種，蔬菜及水果之鏈格孢(*Alternaria species*)物種，香蕉之球腔菌(*Mycosphaerella species*)物種及鐮孢(*Fusarium*)及輪枝孢(*Verticillium*)物種。

本發明混合物尤其可用於防治葡萄及蔬菜之作物以及裝飾性植物之粉黴真菌。

化合物I及II及/或III可同時施用，以一起或分別或依序使用，在分別施用之例中，對防治指標之結果並無任何影響。

視所需效果種類而定，本發明混合物之施用率(尤其是農業作物區)自0.01至8公斤/公頃，較好0.1至5公斤/公



## 五、發明說明 (23)

頃，尤其是0.2至3.0公斤/公頃。

化合物I之施用率為0.01至2.5公斤/公頃，較好0.05至2.5公斤/公頃，尤其是0.1至1.0公斤/公頃。

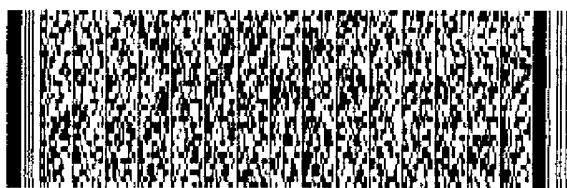
對應地，化合物II及/或III之例中，施用率係自0.001至5公斤/公頃，較好0.005至2公斤/公頃，尤其是0.01至1.0公斤/公頃。

對種子處理而言，混合物之施用率通常自0.001至250克/公斤種子，較好0.01至100克/公斤，尤其是0.01至50克/公斤。

若欲防治植物致病性有害真菌，則化合物I及II及/或III之分別或一起施用或化合物I及II及/或III之混合物之施用可藉對種子、植物或植物播種前或後之土壤、或植物萌發前或後，噴霧或撒粉而進行。

本發明之殺真菌協同混合物(或化合物I與II及/或III)可調配成立即噴霧之溶液、粉末及懸浮液態或調配成高度濃縮水性、油性或其他懸浮液、分散液、乳液、油分散液、糊膏、粉劑、供散播之物質或顆粒態，並藉噴霧、霧化、撒粉、散播或撒水施用。使用狀態視所欲目的而異；任何例中，須儘可能確使本發明混合物分佈細密及均勻。

該配方係依已知方式製備，例如以溶劑及/或載體及若需要則使用乳化劑及分散劑稀釋該活性成分，若使用水作為稀釋劑則亦可使用其他溶劑作為輔助溶劑。此目的之適宜輔助劑基本上如下：溶劑如芳族(如二甲苯)、氯化芳族(如氯苯)、鏈烷(礦油餾份)、醇類(如甲醇、丁醇)、酮類



## 五、發明說明 (24)

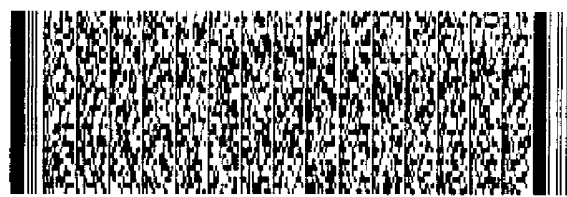
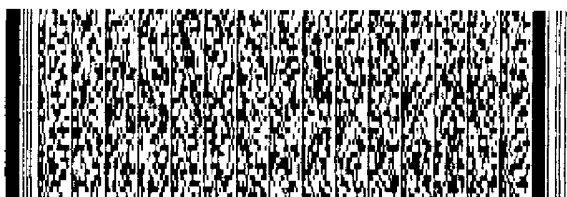
(如環己酮)、胺類(如乙醇胺、二甲基甲醯胺)及水；載劑如研磨天然礦物(如高嶺土、黏土、滑石、白堊)及研磨合成礦物(如細粒氧化矽、矽酸鹽)；乳化劑如非離子性及陰離子性乳化劑(如聚氧乙烯脂肪醇醚、烷磺酸酯及芳磺酸酯)及分散劑如木質亞硫酸鹽廢液及甲基纖維素。

適宜之界面活性劑為芳族磺酸如木質-、酚-、萘-及二丁基萘磺酸之鹼金屬鹽、鹼土金屬鹽及銨鹽，脂肪酸、烷基、及烷芳基磺酸之鹼金屬鹽、鹼土金屬鹽及銨鹽，烷基月桂醚及脂肪醇硫酸鹽，及硫酸化十己-、十七-及十八烷醇之鹽，或脂肪醇二醇醚之鹽，磺酸化萘及其衍生物與甲醛之縮合物、萘或萘磺酸與酚及甲醛之縮合物，聚氧乙烯辛基酚醚、乙氧化異辛基-、辛基或壬基-酚、烷基酚聚二醇醚、三丁基苯基聚二醇醚、烷芳基聚醚醇、異十三烷醇、脂肪醇/環氧乙烷縮合物、乙氧化蓖麻油、聚氧乙烯烷基醚或聚氧丙烯烷基醚、月桂醇聚二醇醚乙酸酯、山梨糖醇酯、木質亞硫酸廢液或甲基纖維素。

粉末、供散播之物質及粉劑可藉混合或一起研磨化合物I或II及/或III、或化合物I及II及/或III之混合物，與固體載體而製備。

顆粒劑(如包衣顆粒、浸潤顆粒或均質顆粒)一般係使活性成分(或諸活性成分)結合至固體載體上而製備。

填料或固體載體為例如礦土如氧化矽、矽膠、矽酸鹽、滑石、高嶺土、石灰石、石灰、白堊、紅玄武土、黃土、黏土、白雲石、矽藻土、硫酸鈣、硫酸鎂、氧化鎂、研磨



## 五、發明說明 (25)

合成材料及肥料如硫酸銨、磷酸銨、硝酸銨、尿素、及植物來源之產物如穀粉、樹皮粉、木粉及堅果殼粉、纖維素粉末或其他固體載體。

此配方通常包括自0.1至95重量%，較好0.5至90重量%之化合物I或II及/或III之一或化合物I與II及/或III之混合物。活性成分使用純度自90%至100%，較好95%至100%者(依NMR光譜或HPLC測定)。

化合物I或II及/或III，混合物或對應配方可以殺真菌有效量之混合物或殺真菌有效量之化合物I及II及/或III(分別施用之例中)處理有害真菌、其棲息處、或欲防治真菌之植物、種子、土壤、區域、材料或空間。

施用可在受有害真菌感染前後進行。

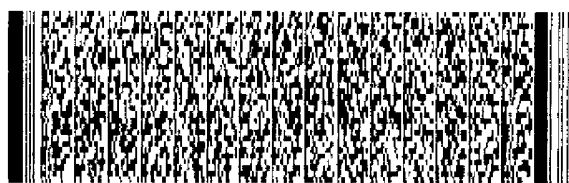
此種包括活性成分之製劑實例為：

I. 含90重量份活性成分及10重量份N-甲基吡咯烷酮之溶液；此溶液宜以微滴劑使用；

II. 含20重量份活性成分、80重量份二甲基、10重量份之8至10莫耳環氧乙烷與1莫耳油酸N-單乙醇醯胺之加成物、5重量份十二烷基苯磺酸鈣鹽、5重量份之40莫耳環氧乙烷與1莫耳蓖麻油之加成物之混合物；藉使此溶液微細分佈於水中獲得分散液；

III. 含20重量份活性成分、40重量份環己酮、30重量份異丁醇、20重量份之40莫耳環氧乙烷與1莫耳蓖麻油之加成物之水性分散液；

IV. 含20重量份活性成分、25重量份環己醇、65重量份



## 五、發明說明 (26)

沸點210至280°C之礦油餾份及10重量份之40莫耳環氧乙烷與1莫耳蓖麻油之加成物之水性分散液；

V. 於錘磨機中研磨之含80重量份活性成分、3重量份二異丁基萘-1-磺酸鈉鹽、10重量份得自亞硫酸鹽廢液之木質磺酸鈉鹽及7重量份粉碎矽膠之混合物；藉微細分佈該混合物於水中獲得噴霧混合物；

VI. 3重量份活性成分及97重量份細粒高嶺土之緊密混合物；此粉塵包括3重量%活性成分；

VII. 30重量份活性成分、92重量份粉碎矽膠及8重量份已噴霧至此矽膠表面之石蠟油之緊密混合物；此配方賦與活性成分良好黏著性；

VIII. 40重量份活性成分、10重量份酚磺酸/脲/甲醛縮合物之鈉鹽、2重量份矽膠及48重量份水之安定水性分散液；此分散液可再經稀釋；

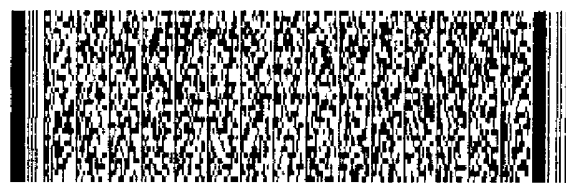
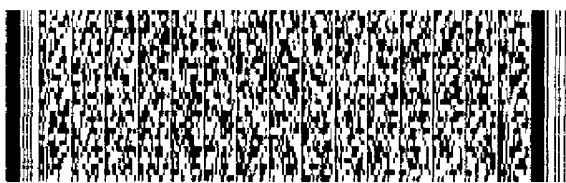
IX. 20重量份活性成分、2重量份十二烷基苯磺酸鈣鹽、8重量份脂肪醇聚二醇醚、20重量份酚磺酸/脲/甲醛縮合物之鈉鹽及88重量份石蠟礦油之安定油性分散液。

## 使用實例

本發明之混合物之協同活性依據下列實驗證明：

活性成分(分別或一起)調配成於含63重量%環己酮及27重量%乳化劑之混合物中之10%乳液，並以水稀釋至所需濃度。

藉測定受感染葉片面積百分比進行評估。該等百分比轉化成效率。效率(W)使用亞伯特氏(Abbot's)程式如下計



## 五、發明說明 (27)

算：

$$W = (1 - \alpha) \cdot 100 / \beta$$

$\alpha$  相當於經處理植物受真菌感染之%，及

$\beta$  相當於未處理植物受真菌感染之%。

效率0表示經處理植物受感染程度相當於未處理之對照組植物；效率100表示經處理植物未受感染。

使用柯比(Colby's)程式[R. S. Colby, Weeds 15, 20-22 (1967)]測定活性成分混合物之預期效率並與所觀察之效率比較。

$$\text{柯比程式：} E = x + y - x \cdot y / 100$$

E 當使用濃度a及b之活性成分A及B之混合物時，以未處理對照組之%表示之預期效率

x 當使用濃度a之活性成分A時，以未處理對照組之%表示之效率

y 當使用濃度b之活性成分B時，以未處理對照組之%表示之效率

## 小麥之抗粉黴活性

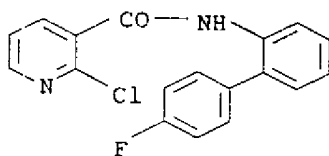
以由含10%活性成分、63%環己酮及27%乳化劑之原料溶液製備之活性成分水性製劑噴霧"Frühgold"種之盆栽幼苗上至滴下之程度。噴霧24小時後，塗覆層乾燥且葉片散佈小麥粉黴(禾白粉菌)之孢子。測試植物隨後於20-24°C及60-90%相對溼度之溫室中培育。7天後，以目視評估全部葉片面積發展出粉黴之感染%。

所用化合物I為下列成分：

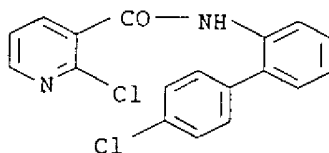


## 五、發明說明 (28)

I.1



I.2



結果示於下表4及5。

表4

實例	活性成分	噴霧液中活性成分濃度 (ppm)	對未處理對照組之效率 (%)
1C	對照組(未處理)	0 (98%感染率)	0
2C	I.1	63	0
		16	0
3C	I.2	63	0
		16	0
4C	表2之化合物 II.78	1	0
		0.25	0
5C	表3之化合物 III.17	0.25	85



## 五、發明說明 (29)

表 5

實例	本發明之混合物 (含量為 ppm)	觀察效率	計算效率*)
6	63 ppm I.1 + 1 ppm II.78	29	0
7	63 ppm I.2 + 1 ppm II.78	59	0
8	16 ppm I.2 + 0.25 ppm II.78	19	0
9	16 ppm I.1 + 0.25 ppm III.17	97	85
10	16 ppm I.2 + 0.25 ppm III.17	100	85

\*) 使用柯比程式計算者。

測試結果顯示所有混合比例之觀察效率均比使用柯比程式計算之效率高。

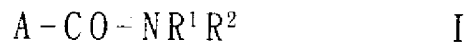




四、中文發明摘要 (發明之名稱：基於醯胺化合物及吡啶衍生物之殺真菌混合物)

一種殺真菌混合物，包括協同有效量之下列成分作為活性成分：

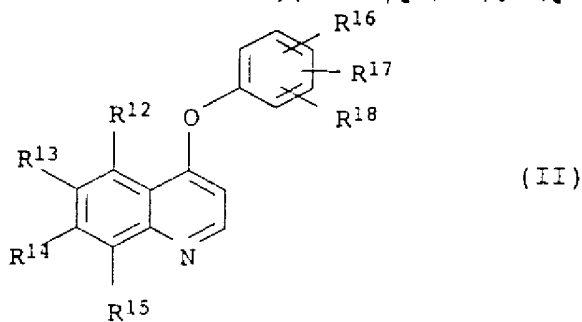
a) 式I之醯胺化合物：



其中A， $R^1$ 及 $R^2$ 如說明書之定義，

及

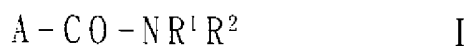
b) 式II之化合物，其N-氧化物或其鹽之一：



英文發明摘要 (發明之名稱：FUNGICIDAL MIXTURES BASED ON AMIDE COMPOUNDS AND PYRIDINE DERIVATIVES)

Fungicidal mixtures comprise as active components

a) an amide compound of the formula I



in which A,  $R^1$  and  $R^2$  are as defined in the description,

and

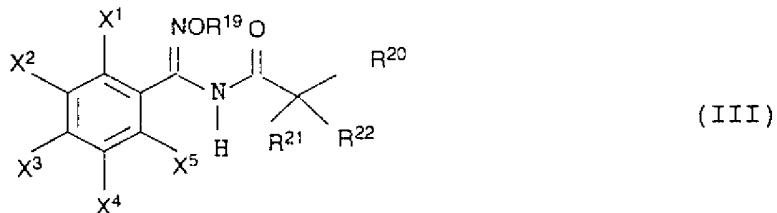
b) compounds of the formula II, their N-oxide or one of their salts



四、中文發明摘要 (發明之名稱：基於醯胺化合物及吡啶衍生物之殺真菌混合物)

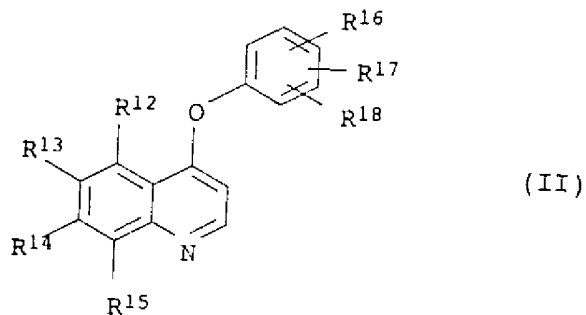
其中取代基 $R^{12}$ 至 $R^{18}$ 如說明書之定義，  
及/或

c) 式III之化合物：



其中取代基 $X^1$ 至 $X^5$ 及 $R^{19}$ 至 $R^{22}$ 如說明書之定義。

英文發明摘要 (發明之名稱：FUNGICIDAL MIXTURES BASED ON AMIDE COMPOUNDS AND PYRIDINE DERIVATIVES)



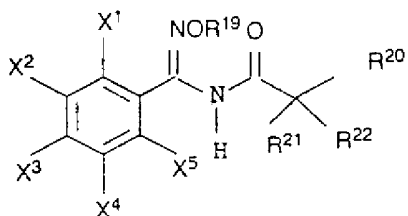
where the substituents  $R^{12}$  to  $R^{18}$  are as  
defined in the description,  
and/or

c) compounds of the formula III



四、中文發明摘要 (發明之名稱：基於醯胺化合物及吡啶衍生物之殺真菌混合物)

英文發明摘要 (發明之名稱：FUNGICIDAL MIXTURES BASED ON AMIDE COMPOUNDS AND PYRIDINE DERIVATIVES)



(III)

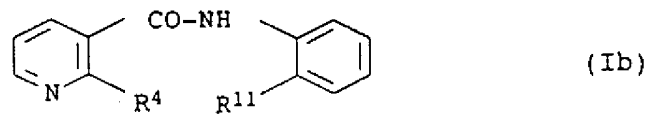
where the substituents X<sup>1</sup> to X<sup>5</sup> and R<sup>19</sup> to R<sup>22</sup> are as defined in the description, in a synergistically effective amount.



## 六、申請專利範圍

1. 一種殺真菌混合物，包括協同有效量之下列成分作為活性成分：

a) 式Ib之醯胺化合物：

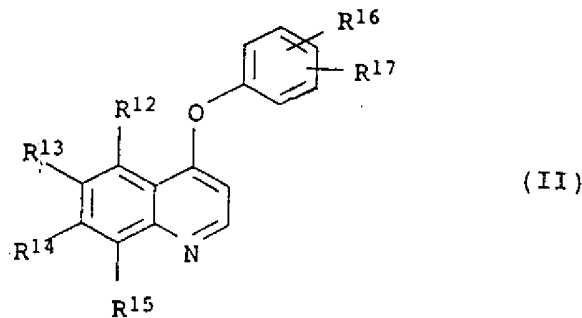


其中

$R^4$  為鹵素，及

$R^{11}$  為經鹵素取代苯基。

b) 式II化合物，其N-氧化物或其鹽之一：



其中取代基定義如下：

$R^{12}$ ， $R^{13}$ ， $R^{14}$ ， $R^{15}$  彼此獨立為氫及鹵素，但至少一者為鹵素；

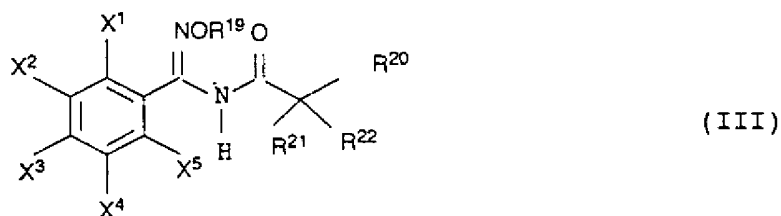
$R^{16}$ ， $R^{17}$  彼此獨立為氫及鹵素；但至少一者為鹵素；



## 六、申請專利範圍

及/或

c) 式III之化合物：



其中取代基 $X^1$ 至 $X^5$ 及 $R^{19}$ 至 $R^{22}$ 定義如下：

$X^1$ 為三氟甲基；

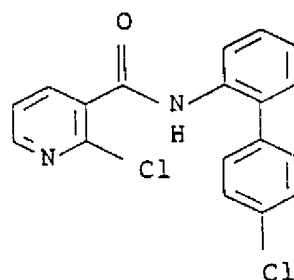
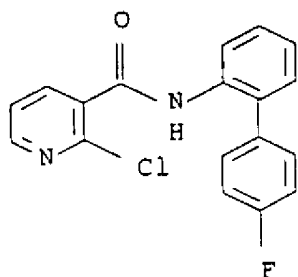
$X^2$ 至 $X^5$ 彼此獨立氫及鹵素；

$R^{19}$ 為 $C_1$ - $C_4$ -烷基、環丙基甲基或烯丙基；

$R^{20}$ 為苯基，其係未經取代或經 $C_1$ - $C_4$ -烷氧基取代；

$R^{21}$ 與 $R^{22}$ 為氫。

2. 根據申請專利範圍第1項之殺真菌混合物，其包括下式之化合物作為醯胺化合物：



## 六、申請專利範圍

3. 根據申請專利範圍第1項之殺真菌混合物，係調整成兩部份，其中一部份包括於固體或液體載體中之醯胺化合物I，及另一部份包括於固體或液體載體中之式II及/或III化合物。

4. 一種防治有害真菌之方法，包括以根據申請專利範圍第1至3項任一項之殺真菌混合物處理真菌，其棲息處，或欲防治真菌免受其侵害之材料、植物、種子、土壤、區域或空間，其中活性成分醯胺化合物I及式II及/或式III化合物可同時、一起或分別或依序施用。

5. 根據申請專利範圍第1項之殺真菌混合物，其含有式III化合物作為化合物c)，其中取代基 $X^1$ 至 $X^5$ 及 $R^{19}$ 至 $R^{22}$ 定義如下：

$X^1$  為三氟甲基；

$X^2$  至  $X^4$  為氫；

$X^5$  為鹵素；

$R^{19}$  為 $C_1-C_4$ -烷基；

$R^{20}$  為苯基，其係經 $C_1-C_4$ -烷氧基取代；

$R^{21}$  與  $R^{22}$  為氫。

6. 根據申請專利範圍第1項之殺真菌混合物，其含有式II化合物，其N-氧化物或其鹽之一作為化合物b)，其中

$R^{13}$ ， $R^{15}$ ， $R^{17}$  為氫；

$R^{12}$ ， $R^{14}$ ， $R^{16}$  為鹵素。

7. 根據申請專利範圍第1項之殺真菌混合物，其含有式



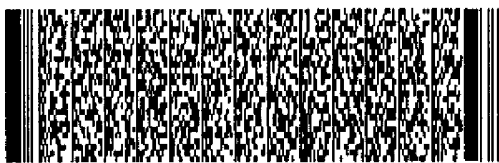
## 六、申請專利範圍

II 化合物，其N-氧化物或其鹽之一作為化合物b)，其中  
 $R^{13}$ ， $R^{15}$ ， $R^{17}$  為氫；

$R^{12}$ ， $R^{14}$  為氯；

$R^{16}$  為在4-位置之氯。

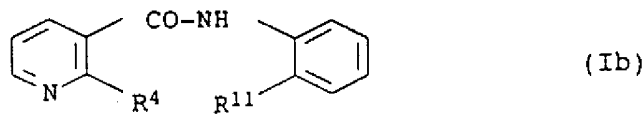
8. 根據申請專利範圍第1項之殺真菌混合物，其含有重量比為63:1至1:10之該醯胺化合物及式II及/或式III之有效成份。



## 六、申請專利範圍

1. 一種殺真菌混合物，包括協同有效量之下列成分作為活性成分：

a) 式Ib之醯胺化合物：

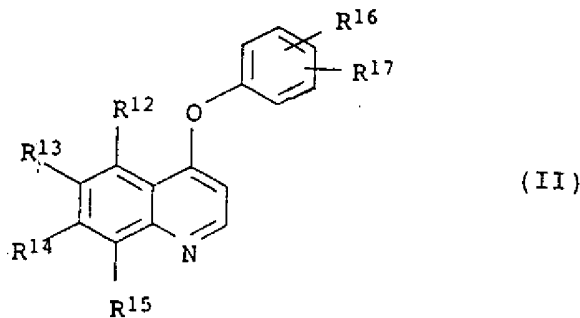


其中

R<sup>4</sup> 為鹵素，及

R<sup>11</sup> 為經鹵素取代苯基。

b) 式II化合物，其N-氧化物或其鹽之一：



其中取代基定義如下：

R<sup>12</sup>，R<sup>13</sup>，R<sup>14</sup>，R<sup>15</sup>彼此獨立為氫及鹵素，但至少一者為鹵素；

R<sup>16</sup>，R<sup>17</sup>彼此獨立為氫及鹵素；但至少一者為鹵素；

