• 研究论文 •

***N*-[2,4-二取代-5-(3-甲基-2,6-二氧-4-三氟甲基-1,2,3,6-四氢嘧啶-1-基)苯基]酰亚胺类化合物的合成及除草活性**黄明智^{*a,b} 李宏伟^a 庞怀林^{b,c} 张泉^d 任叶果^b 尹笃林^c^(a) 华中师范大学化学学院 武汉 430079)^(b) 湖南化工研究院国家农药创制工程技术研究中心 长沙 410007)^(c) 湖南师范大学化学生物学及中药分析教育部重点实验室 长沙 410081)^(d) 中国科学院昆明植物研究所 植物化学与西部植物资源持续利用国家重点实验室 昆明 650204)

摘要 脲嘧啶类化合物具有显著的除草活性. 设计并合成了 10 个未见文献报道的 *N*-[2,4-二取代-5-(3-甲基-2,6-二氧-4-三氟甲基-1,2,3,6-四氢嘧啶-1-基)苯基]酰亚胺类化合物, 其化学结构经 ¹H NMR, IR, HPLC/MS 和元素分析表征. 初步生物活性测定结果表明, 该类化合物具有一定的除草活性, 如 **9a**, **9b**, **9c**, **9f**, **9g** 和 **9h** 在有效成分 75 g/hm² 剂量下, 茎叶处理对苘麻(*Abutilon theophrasti Medic*)、刺苋(*Amaranthus spinosus*)等双子叶杂草的抑制率达 90% 以上.

关键词 脲嘧啶; 原叶啉原氧化酶; 酰亚胺; 合成; 除草活性

Synthesis and Herbicidal Activity of *N*-[2,4-Disubstituted-5-(3-methyl-2,6-dioxo-4-trifluoromethyl-1,2,3,6-tetrahydropyrimidin-1-yl)phenyl]imidesHUANG, Ming-Zhi^{*a,b} LI, Hong-Wei^a PANG, Huai-Lin^{b,c}ZHANG, Quan^d REN, Ye-Guo^b YIN, Du-Lin^c^(a) College of Chemistry, Central China Normal University, Wuhan 430079)^(b) National Engineering Research Center for Agrochemicals, Hunan Research Institute of Chemical Industry, Changsha 410007)^(c) Key Laboratory of Chemical Biology and Traditional Chinese Medicine Research, Ministry of Education, Hunan Normal University, Changsha 410081)^(d) State Key Laboratory of Phytochemistry and Plant Resources in West China, Kunming Institute of Botany, Chinese Academy of Sciences, Kunming 650204)

Abstract Uracil compounds have significant herbicidal activity. Ten *N*-[2,4-disubstituted-5-(3-methyl-2,6-dioxo-4-trifluoromethyl-1,2,3,6-tetrahydropyrimidin-1-yl)phenyl]imides were designed and synthesized. Their structures were confirmed by ¹H NMR, IR, HPLC/MS and elemental analysis. Preliminary bioassay showed that most of title compounds had good herbicidal activity, for example, **9a**, **9b**, **9c**, **9f**, **9g** and **9h** exhibited more than 90% inhibition against dicotyledon weeds, such as *Abutilon theophrasti Medic* and *Amaranthus spinosus* at an active ingredient 75 g/hm² in post-emergence treatment.

Keywords uracil; protox; phthalimide; synthesis; herbicidal activity

* E-mail: huang-mz@163.com

Received October 30, 2007; revised March 3, 2008; accepted April 14, 2008.

国家自然科学基金(No. 20575019)、湖南省自然科学基金(No. 07JJ1003)和湖南师范大学化学生物学及中药分析教育部重点实验室开放基金(No. KLCBTCMR2008-14)资助项目.

中间体 **3** 按照文献[19]合成。其它试剂或溶剂均为市售分析纯或化学纯,使用前经常规处理。

1.2 中间体 2a~2d 的合成

以 **2a** 为例: 在 50 mL 三颈瓶中加入 2.91 g (20 mmol) 2-氟-4-氯苯胺(**1a**), 3.16 g (40 mmol)吡啶及 25 mL 二氯甲烷, 室温搅拌溶解, 冰水浴冷却至 0~5 °C; 开始缓慢滴加 2.17 g (20 mmol)氯甲酸乙酯, 滴加完毕, 撤去冰水浴, 室温搅拌反应 2 h。用 2 mol/L 盐酸中和反应混合物至中性, 取下层有机层, 用无水硫酸钠干燥, 过滤, 脱除二氯甲烷, 石油醚重结晶得无色晶体 4.23 g, m.p. 60.7~61.5 °C, 收率 97%。

1.3 中间体 5a~5d 的合成

以 **5a** 为例: 在配有磁力搅拌器、温度计和冷凝管的 100 mL 三颈瓶中加入 0.50 g NaH (12 mmol, 60%), 冰水浴冷却至 0~5 °C, 缓慢滴加 1.83 g (10 mmol)中间体 **3a** 的 *N,N*-二甲基甲酰胺(DMF) (15 mL)溶液, 滴加完毕后, 0~5 °C 下搅拌反应 30 min; 然后开始缓慢滴加 2.17 g (10 mmol)中间体 **2a** 的 DMF (10 mL)溶液, 滴加完毕后, 在室温下搅拌反应 30 min。然后升温至 125~130 °C, 搅拌反应 5 h, 冷却, 得到 3-(2-氟-4-氯苯基)-6-(三氟甲基)嘧啶-2,4(1*H*,3*H*)-二酮(**4a**)的 DMF 溶液。

向上述反应液中加入 1.66 g (12 mmol)粉末状 K₂CO₃, 室温下搅拌反应 15 min, 然后再缓慢滴加 2.84 g (20 mmol)碘甲烷, 滴加完毕后, 室温搅拌反应 15 h。将反应液倾入 60 mL 冰水中, 充分析出固体, 过滤, 用水洗涤(30 mL×3)固体, 干燥, 得白色固体 2.24 g。m.p. 106.1~109.9 °C(文献值^[20] 108.0 °C), 总收率 70%。

1.4 中间体 6a~6d 的合成

以 **6a** 为例: 在 100 mL 圆底烧瓶中加入 4.20 g (13 mmol)中间体 **5a** 及 20 mL 浓硫酸, 搅拌溶解, 冰水浴冷却至 0~5 °C, 开始缓慢滴加 1.30 g (14 mmol)浓硝酸, 滴加过程中控温 0~10 °C, 滴加完毕后, 该温度下, 搅拌反应 45 min。将反应液倾入 40 mL 冰水中, 静置, 充分析出固体, 过滤, 用水洗涤(30 mL×3)固体, 干燥, 得淡黄色固体 4.44 g。m.p. 121.4~124.7 °C(文献值^[20] 124.0 °C), 收率率 93%。

1.5 中间体 7a~7d 的合成

以 **7a** 为例: 在配有磁力搅拌器、温度计和冷凝管的 100 mL 三颈瓶中加入 2.94 g (8 mmol) **6a** 及 25 mL 冰醋酸及 3 mL 水, 搅拌, 加热升温至 60 °C, 固体逐渐溶解, 然后开始缓慢加入 1.84 g (33 mmol)铁粉, 控制反应温度在 60~70 °C。投料完毕后, 保温 60~65 °C 反应 2.5 h。将反应液倾入 50 mL 冰水中, 用乙酸乙酯(25 mL×3)萃取, 水洗, 取有机相, 无水硫酸钠干燥、过滤、脱溶、得

棕红色固体 **7a** 2.40 g。m.p. 127.9~131.4 °C(文献值^[20] 129.0 °C), 收率 92%。

采用同样的方法合成中间体 **7b~7d**, **7b**: 棕色固体, m.p. 134.8~136.1 °C, 收率 93%; **7c**: 棕色固体, m.p. 139.7~141.9 °C, 收率 94%; **7d**: 淡黄色固体, m.p. 131.5~132.9 °C, 收率 93%。

1.6 目标化合物 9a~9j 的合成

以 **9f** 为例: 在配有磁力搅拌器、温度计和冷凝管的 50 mL 圆底烧瓶中, 加入 1.60 g (5 mmol) 3-(5-氨基-4-氯苯基)-1-甲基-6-(三氟甲基)嘧啶-2,4(1*H*,3*H*)-酮(**7b**), 1.05 g (5 mmol) 5,6-二氯苯醌(**8b**)及 20 mL 冰醋酸, 搅拌溶解, 然后加热回流反应 6 h。将反应液冷却后缓慢倾入 40 mL 冰水中, 充分搅拌, 过滤, 析出的固体用水洗涤(30 mL×3), 滤饼干燥得粗品, 经柱层析得乳白色固体 2.23 g, 纯度 95% (HPLC), 收率 82%, m.p. 139.2~139.7 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 3.56 (s, 3H, NCH₃), 6.36 (s, 1H, =CH), 7.26~7.28 (m, 1H, ArH), 7.32~7.36 (m, 1H, ArH), 7.68 (d, *J*=8.7 Hz, 1H, ArH), 8.05 (s, 2H, ArH); IR (KBr) *v*: 1731, 1686 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 518 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₉Cl₃F₃N₃O₄: C 46.31, H 1.75, N 8.10; found C 46.21, H 1.81, N 8.19.

9a: 白色固体, 收率 79%, m.p. 176.0~177.0 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 3.56 (s, 3H, NCH₃), 6.37 (s, 1H, =CH), 7.33 (d, *J*=6.9 Hz, 1H, ArH), 7.50 (d, *J*=9.0 Hz, 1H, ArH), 7.80~7.81 (m, 2H, ArH), 7.94~7.98 (m, 2H, ArH); IR (KBr) *v*: 1736, 1686 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 468 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₀ClF₃N₃O₄: C 51.35, H 2.15, N 8.98; found C 51.44, H 2.22, N 8.86.

9b: 黄色固体, 收率 84%, m.p. 128.6~129.5 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 3.55 (s, 3H, NCH₃), 6.36 (s, 1H, =CH), 7.26~7.34 (m, 2H, ArH), 7.69 (d, *J*=8.4 Hz, 1H, ArH), 7.80~7.83 (m, 2H, ArH), 7.97~7.99 (m, 2H, ArH); IR (KBr) *v*: 1732, 1685 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 450 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₁ClF₃N₃O₄: C 53.41, H 2.47, N 9.34; found C 53.30, H 2.55, N 9.41.

9c: 白色固体, 收率 78%, m.p. 227.3~230.0 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 3.57 (s, 3H, NCH₃), 6.36 (s, 1H, =CH), 7.26~7.31 (m, 1H, ArH), 7.79~7.83 (m, 3H, ArH), 7.96~7.98 (m, 2H, ArH); IR (KBr) *v*: 1727, 1685 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 484 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₀Cl₂F₃N₃O₄: C 49.61, H 2.08, N 8.68; found C 49.50, H 2.19, N 8.79.

9d: 黄色固体, 收率 80%, m.p. 261.2~263.0 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 3.56 (s, 3H, NCH₃), 6.37 (s, 1H, =CH), 7.36 (d, *J*=6.6 Hz, 1H, ArH), 7.50 (d, *J*=9.0 Hz, 1H, ArH), 7.80~7.81 (m, 2H, ArH), 7.94~7.98 (m, 2H, ArH); IR (KBr) *v*: 1729, 1683 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 468 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₀ClF₄N₃O₄: C 51.35, H 2.15, N 8.98; found C 51.51, H 2.22, N 8.82.

9e: 黄色固体, 产率 79%, m.p. 140.8~143.1 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 3.56 (s, 3H, NCH₃), 6.37 (s, 1H, =CH), 7.26~7.39 (m, 2H, ArH), 7.72 (d, *J*=8.7 Hz, 1H, ArH), 8.16~8.19 (m, 1H, ArH), 8.67~8.70 (m, 1H, ArH), 8.78~8.79 (m, 1H, ArH); IR (KBr) *v*: 1735, 1686 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 495 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₀ClF₃N₄O₆: C 48.55, H 2.04, N 11.32; found C 48.72, H 2.17, N 11.18.

9g: 黄色固体, 产率 87%, m.p. 113.9~114.1 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 2.55 (s, 3H, CH₃), 3.55 (s, 3H, NCH₃), 6.36 (s, 1H, =CH), 7.26~7.34 (m, 2H, ArH), 7.58~7.86 (m, 4H, ArH); IR (KBr) *v*: 1732, 1686 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 464 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₁H₁₃ClF₃N₃O₄: C 54.38, H 2.83, N 9.06; found C 54.19, H 2.75, N 9.20.

9h: 白色固体, 产率 88%, m.p. 145.5~147.6 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 1.81~1.84 (m, 4H, 2CH₂), 2.42~2.43 (m, 4H, 2CH₂), 3.54 (s, 3H, NCH₃), 6.35 (s, 1H, =CH), 7.20 (d, *J*=7.2 Hz, 1H, ArH), 7.42 (d, *J*=9.3 Hz, 1H, ArH); IR (KBr) *v*: 1735, 1686 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 472 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₄ClF₄N₃O₄: C 50.92, H 2.99, N 8.91; found C 50.98, H 3.05, N 8.82.

9i: 黄色固体, 产率 91%, m.p. 95.5~97.4 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 1.81~1.84 (m, 4H, 2CH₂), 2.42~2.43 (m, 4H, 2CH₂), 3.54 (s, 3H, NCH₃), 6.35 (s, 1H, =CH), 7.18 (d, *J*=2.4 Hz, 1H, ArH), 7.24~7.28 (m, 1H, ArH), 7.60~7.64 (m, 1H, ArH); IR (KBr) *v*: 1721, 1688 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 454 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₅ClF₃N₃O₄: C 52.93, H 3.33, N 9.26; found C 53.06, H 3.40, N 9.12.

9j: 棕黄色固体, 产率 88%, m.p. 163.0~164.9 °C; ¹H NMR (CDCl₃, 300 MHz) δ: 1.81~1.83 (m, 4H, 2CH₂), 2.43~2.44 (m, 4H, 2CH₂), 3.56 (s, 3H, NCH₃), 6.36 (s, 1H, =CH), 7.20 (s, 1H, ArH), 7.73 (s, 1H, ArH); IR (KBr) *v*: 1730, 1687 (C=O) cm⁻¹; LC/MS (positive ion) *m/z* (%): 488 ([M+1]⁺, 100). Anal. calcd for C₂₀H₁₄Cl₂F₃-

N₃O₄: C 49.20, H 2.89, N 8.61; found C 49.01, H 2.86, N 8.68.

1.7 除草活性测定

在截面积 81 cm² 的塑料盆钵中分别播种单子叶杂草马唐 (*Digitaria sanguinalis*, DS)、稗草 (*Echinochloa crusgalli*, EC)、狗尾草 (*Setaria viridis*, SV), 同时均匀播种双子叶杂草苘麻 (*Abutilon theophrasti* Medic, AT)、刺苋 (*Amaranthus spinosus*, AS) 于另一盆钵中, 覆盖 0.5 cm 的土层, 淋水后置于温室培养. 将化合物溶于少量有机溶剂, 加入少量乳化剂, 并用蒸馏水稀释, 药剂处理量为有效成分 75 g/hm². 土壤处理在植物播种 24 h 后进行, 茎叶处理在单子叶杂草 1 叶 1 心期和双子叶 4 叶期进行, 14 d 后观察植株生长情况, 防效以植物株高抑制百分率表示.

2 结果与讨论

2.1 中间体 5 的合成

文献报道^[20]的方法是对中间体 **4** 的反应液进行酸化, 析出沉淀, 过滤, 洗涤, 然后再进行烷基化. 我们发现无需对中间体 **4** 的反应液进行处理, 直接进行烷基化, 烷基化试剂选择碘甲烷, 避免了剧毒物硫酸二甲酯的应用, 节约了溶剂, 操作简便, 简化了实验过程, 易于工业化.

2.2 中间体 7 的合成

文献[18]以容易得到的 3-硝基-4-氯苯胺为起始原料合成中间体 **7b**, 我们以不含硝基的取代苯胺 **1a**~**1d** 为起始原料合成中间体 **7a**~**7d**. 两者相比, 后者增加了一个硝化反应, 但是这种方法对于起始原料难得的类似化合物的合成更具有通用性.

2.3 目标物的合成

在用取代邻苯二甲酸酐 **8a**~**8d** 与脲嘧啶取代苯胺 **7a**~**7d** 缩合制备目标化合物时, 可选用乙酸作溶剂直接反应, 亦可选用甲苯回流分水^[21]. 实验结果表明: 当用甲苯回流分水进行缩合反应时, 需用一定比例的丙酸与哌啶. 而用乙酸作溶剂反应时, 操作方便, 后处理简单, 目标化合物的纯度与收率均与甲苯回流分水方法相当.

2.4 波谱数据分析

所有化合物红外光谱图在 1700 cm⁻¹ 附近有两个较为明显的羰基吸收峰: 位于波数较大处应为环酰亚胺羰基吸收峰, 较小处为脲嘧啶环上的羰基吸收峰. 可能是因为五元环的张力大于六元环的张力. 化合物 ¹H NMR 数据中, 脲嘧啶环上与双键相连的氢位移为 δ 6.35~6.38, 由于氢处于碳碳双键 π 电子云的去屏蔽区,

同时还受羰基吸电子的诱导效应的影响,使其化学位移向低场偏移。

2.5 目标化合物的除草活性

2.5.1 除草活性

如表 1 所示,部分目标化合物表现出良好的除草活性,在有效成分 75 g/hm² 剂量下,化合物 **9a** 不论芽前还是芽后施用对苘麻、刺苋等双子叶杂草和马唐、稗草、狗尾草等单子叶杂草均具有 100% 的除草活性;化合物 **9b**, **9c**, **9f**, **9g** 和 **9h** 芽后施用、化合物 **9b** 和 **9h** 芽前施用对苘麻、刺苋等双子叶杂草具有 90% 以上的除草活性;杂草中毒症状有叶片白化、卷曲、灼伤和坏死等,是 protox 抑制剂典型的除草特征^[22]。

从表 1 还不难看出,目标化合物的芽后茎叶除草活性高于芽前土壤除草活性,对双子叶杂草的活性高于对单子叶杂草的活性。此外,在所合成的 10 个化合物中,化合物 **9d**, **9e**, **9i**, **9j** 除草活性低或没有除草活性,它们对所测试的 5 种杂草靶标中任一种的芽后茎叶除草活性与芽前土壤除草活性均没有超过 70%。

2.5.2 定性构效关系

结合表 1 可以总结出以下定性构效关系规律:目标化合物结构通式中苯环上卤素的种类及位置可以影响对应化合物的除草活性。当化合物结构中含 1,3-二氧异吲哚-2-基时,苯环上卤元素对除草活性的影响规律为:2-F, 4-Cl > 4-Cl > 2-Cl, 4-Cl > 2-Cl, 4-F, 如: **9a** > **9b** >

9c > **9d**。当化合物结构中含 1,3-二氧-4,5,6,7-四氢-1*H*-异吲哚-2(3*H*)-基时,苯环上卤元素的影响规律为:2-F, 4-Cl > 2-Cl, 4-Cl > 4-Cl。如: **9h** > **9j** > **9i**。上述苯环上氟原子的取代基效应与文献[23]报道的趋势一致,2-位取代基的大小,对于目标化合物的立体结构和生物活性有一定的影响。该取代基过大或过小都不太有利于目标化合物与其作用靶标酶的结合,从而影响到化合物的生物活性。

将化合物结构中 1,3-二氧-4,5,6,7-四氢-1*H*-异吲哚-2(3*H*)-基变换为 1,3-二氧异吲哚-2-基能明显提高化合物的除草活性。如:化合物 **9a**, **9b**, **9c** 的除草活性分别高于化合物 **9h**, **9i**, **9j**。

结构中含有 1,3-二氧异吲哚-2-基的化合物,在异吲哚环的苯环上取代基的引入不能提高化合物的除草活性和除草谱。如化合物 **9e**, **9f**, **9g** 的除草活性和除草谱明显低于 **9b**, 其中氯、甲基取代基的引入使对应化合物 **9f** 和 **9g** 的除草活性降低并不明显,而除草谱却明显降低;当引入硝基时,对应化合物 **9e** 的除草活性和除草谱都显著降低。

对目标化合物 *N*-[5-(3-甲基-2,6-二氧-4-三氟甲基-2,3-二氢嘧啶-1(6*H*)-基)苯基]酰亚胺(**9**)的进一步结构优化、化合物 **9a** 在更低剂量下的除草活性和高剂量下对作物的安全性研究工作正在进行中。

表 1 目标化合物 **9a**~**9j** 普筛除草活性

Table 1 Preliminary herbicidal activity of compounds **9a**~**9j**

Compd.	Pre-emergence activity (75 g/hm ²)					Post-emergence activity (75 g/hm ²)				
	AT	AS	DS	EC	SV	AT	AS	DS	EC	SV
9a	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
9b	90	90	0	0	0	100	90	80	0	80
9c	0	0	0	0	0	90	90	50	50	50
9d	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
9e	0	0	0	0	0	50	50	0	0	0
9f	0	0	0	0	0	100	100	0	0	0
9g	0	0	0	0	0	100	100	0	0	0
9h	90	90	0	0	0	100	100	80	80	0
9i	0	0	0	0	0	50	50	0	0	0
9j	0	0	0	0	0	70	70	50	0	0

References

- Zhang, Q.; Huang, M.-Z.; Min, Z.-C.; Chen, W.-M. *Pesticides* **2006**, 45(2), 73 (in Chinese). (张泉, 黄明智, 闵忠诚, 谌伟民, 农药, **2006**, 45(2), 73.)
- Sato, J.; Fukuda, K.; Ito, K.; Shi, I. *JP 03287585*, **1991** [*Chem. Abstr.* **1992**, 116, 235650q].
- Fox, R. T. V.; Kohn, G. K.; Rathmell, W. G.; Shephard, M. *C. GB 2043629*, **1980** [*Chem. Abstr.* **1981**, 95, 43153f].
- Kundu, N. G.; Mahanty, J. S.; Spears, C. P. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* **1996**, 6, 1497.
- Ren, Q.-Y.; He, H.-W.; Liu, J.-C. *Chin. J. Org. Chem.* **2007**, 27(3), 397 (in Chinese). (任青云, 贺红武, 刘建超, 有机化学, **2007**, 27(3), 397.)

- 6 Wenger, J.; Wintemitz, P. W. *EP 0195346*, **1986** [*Chem. Abstr.* **1987**, 106, 50241g].
- 7 Brouwer, W.; Felauer, E. E. *US 4927451*, **1990** [*Chem. Abstr.* **1990**, 113, 152463t].
- 8 Suchy, M.; Wenger, J. *EP 0473551*, **1992** [*Chem. Abstr.* **1992**, 117, 7946f].
- 9 Fukuda, K.; Sato, J.; Ito, K. *JP 3215476*, **1991** [*Chem. Abstr.* **1992**, 116, 59391].
- 10 Blume, F.; Arndt, F. *DE 3712782*, **1988** [*Chem. Abstr.* **1989**, 110, 154312e].
- 11 Bell, A. R. *US 4943309*, **1990** [*Chem. Abstr.* **1991**, 115, 250376c].
- 12 Theodoridis, G. *US 5262390*, **1993** [*Chem. Abstr.* **1994**, 120, 3709574].
- 13 Sting, A. R.; Siegrist, U. E.; Studer, M.; Baumeister, P. F. *DE 19741411*, **1998** [*Chem. Abstr.* **1998**, 128, 243878h].
- 14 Andree, R.; Drewes, M. W.; Dollinger, M. *WO 9855462*, **1998** [*Chem. Abstr.* **1999**, 130, 38397a].
- 15 Puttner, R.; Bohner, J.; Kraehmer, H. *DE 19705012*, **1998** [*Chem. Abstr.* **1998**, 129, 175647].
- 16 Ishida, S.; Iida, T.; Kohno, H. *J. Pestic. Sci.* **1999**, 24, 28.
- 17 Su, S.-Q. *Herbicide Target and Discovery of New Active Compound*, Chemical Industry Press, Beijing, **2001**, pp. 174~176 (in Chinese).
(苏少泉, 除草剂作用靶标与新品种创制, 化学工业出版社, 北京, **2001**, pp. 174~176.)
- 18 Huang, M.-Z.; Zhang, Q.; Ren, Y.-G.; Lei, M.-X.; Huang, L.; Ren, J.; Yang, G.-F. *Chin. J. Org. Chem.* **2006**, 26(11), 1539 (in Chinese).
(黄明智, 张泉, 任叶果, 雷满香, 黄路, 任竞, 杨光富, 有机化学, **2006**, 26(11), 1539.)
- 19 Lutz, A. W. *J. Heterocycl. Chem.* **1972**, 9, 513.
- 20 Uster, J. W.; Greifensee, P. W. *US 4859229*, **1989** [*Chem. Abstr.* **1988**, 109, 129862f].
- 21 Wu, H.; Xie, C.-Y.; Li, Y.-H. *Pesticides* **2000**, 39(11), 14 (in Chinese).
(吴浩, 谢春艳, 李永会, 农药, **2000**, 39(11), 14.)
- 22 Johnson, W. O.; Kollman, G. E.; Swithenbank, C.; Yih, R. *Y. J. Agric. Food Chem.* **1978**, 26, 285.
- 23 Ishida, S.; Iida, T.; Kohno, H.; Sato, Y.; Kubo, H.; Boeger, P.; Wakabayashi, K. *J. Pestic. Sci.* **1999**, 24, 28.

(Y0710301 QIN, X. Q.; DONG, H. Z.)