



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 101939302 B

(45) 授权公告日 2014. 10. 29

(21) 申请号 200980104397. 6

(22) 申请日 2009. 01. 30

(30) 优先权数据

61/063789 2008. 02. 06 US

61/043428 2008. 04. 09 US

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2010. 08. 06

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/US2009/032584 2009. 01. 30

(87) PCT国际申请的公布数据

W02009/099929 EN 2009. 08. 13

(73) 专利权人 纳幕尔杜邦公司

地址 美国特拉华州

(72) 发明人 C·W·小霍尔约克 M·T·童

R·A·科亚茨 W·张 S·F·麦肯

D·M·陈

(74) 专利代理机构 中国专利代理(香港)有限公司
72001

代理人 孟慧岚 李炳爱

(51) Int. Cl.

C07D 239/54 (2006. 01)

C07D 401/06 (2006. 01)

C07D 417/06 (2006. 01)

C07D 471/04 (2006. 01)

C07D 487/04 (2006. 01)

(续)

(56) 对比文件

US 5089501 A, 1992. 02. 18, 说明书第1栏第
1-2段、表1.Michael E. Rogers, et al.. Mesoionic
Purinone Analogues as Inhibitors of
Cyclic-AMP Phosphodiesterase: A Comparison
of Several Ring Systems. 《J. Med.
Chem.》. 1981, 第24卷(第11期), 1284-1287.René Urban, et al.. Alkylation des
《malonyl- α -aminopyridines》. 《HELVETICA
CHIMICA ACTA》. 1970, 第53卷(第5
期), 905-922.R. A. GLENNON, et al.. Mesoionic
Xanthine Analogs as Inhibitors of Cyclic
AMP Phosphodiesterase. 《Journal of
Pharmaceutical Sciences》. 1978, 第67卷(第
12期), 1762-1765.Salvatore Giandinoto, et al.. A Facile
Preparation of some Novel Class II
Mesoionic Xanthine Acyclonucleosides. 《J.
Heterocyclic Chem.》. 1996, 第33卷 1839-1845.R. A. Glennon, et al.. Imidazo[1,2-a]
pyrimidines and 1,2,4-Triazolo[1,5-a]
pyrimidines: Two New Examples of Mesoionic
Xanthine Analogs. 《J. Heterocyclic
Chem.》. 1980, 第17卷 337-340.Mark Hellberg, et al.. A Preliminary
Investigation of Mesoionic Xanthine
Analogues as Inhibitors of Platelet
Aggregation. 《Bioorganic & Medicinal
Chemistry》. 2000, 第8卷 1917-1923.

审查员 李冠琼

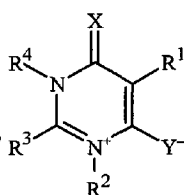
权利要求书6页 说明书178页

(54) 发明名称

介离子杀虫剂

(57) 摘要

本发明公开了式1的化合物,



1

其中 X 为 O 或 S; Y 为 O 或 S; 并且 R¹、R²、R³和 R⁴
如公开中所定义。还公开了包含式的 1 化合物的
组合物和用于控制无脊椎害虫的方法, 所述方法
包括使所述无脊椎害虫或其环境与生物学有效量
的本发明的化合物或组合物接触。

[转续页]

[接上页]

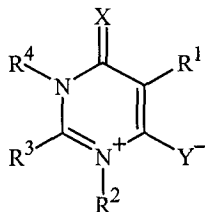
(51) Int. Cl.

C07D 513/04 (2006. 01)

C07D 498/04 (2006. 01)

A01N 43/54 (2006. 01)

1. 式 1 的化合物,



1

其中

X 为 0 ;

Y 为 0 ;

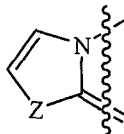
R¹ 为苯基, 任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(0)_nR¹²、SF₅、Si(CH₃)₃ 和 OC(0)R¹⁹; 或者

R¹ 为苯基, 其被 Q¹ 取代, 并且任选被 1 或 2 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₁-C₄ 烷氧基和 C₁-C₄ 卤代烷氧基 ;

Q¹ 为苯基或吡啶基, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₁-C₄ 烷氧基和 C₁-C₄ 卤代烷氧基 ;

R² 为 CR⁵R⁶Q ;

R³ 和 R⁴ 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成环 R-2



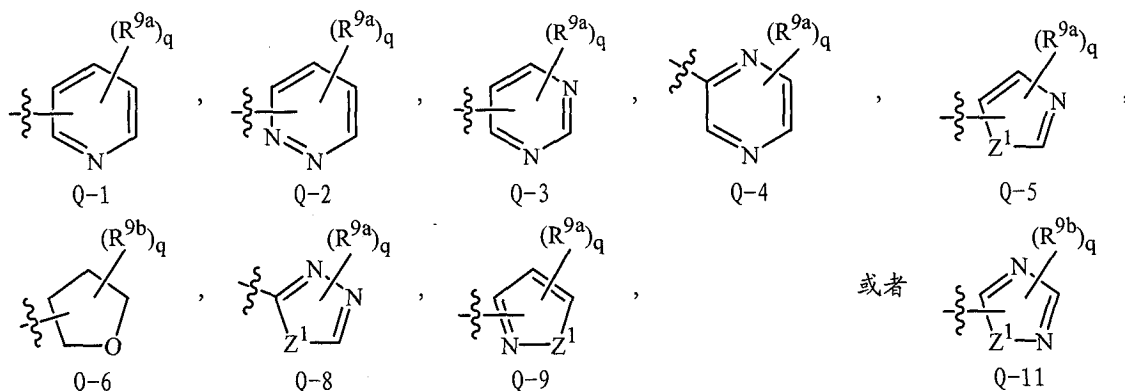
R-2 ;

Z 为 C(R^{8a})=C(R^{8b}) 或 S, 前提条件是所述 C(R^{8a})=C(R^{8b}) 部分定向, 使得与 R^{8b} 键合的碳原子如式 1 中的 R³ 那样连接 ;

每个 R⁵ 独立地为 H、F、Cl、氰基或 C₁-C₄ 烷基 ;

每个 R⁶ 独立地为 H、F、Cl 或 CH₃ ;

Q 为



Z^1 为 O、S 或 NR^{14} ;

R^{8a} 为 H 或 F;

R^{8b} 为 H、F、 CF_2H 或 CF_3 ;

每个 R^{9a} 独立地为 H、卤素、氰基、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_1-C_4 烷氧基或 C_1-C_4 卤代烷氧基;

每个 R^{9b} 独立地为 H、卤素、氰基、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_1-C_4 烷氧基或 C_1-C_4 卤代烷氧基;

每个 R^{12} 独立地为 C_1-C_4 烷基或 C_1-C_4 卤代烷基;

R^{14} 为 H 或 C_1-C_4 烷基;

每个 R^{19} 独立地为 C_1-C_4 烷基;

每个 n 独立地为 0、1 或 2; 并且

每个 q 独立地为 0、1 或 2。

2. 权利要求 1 的化合物, 其中

R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-2; 并且

Z 为 $CH=CH$ 或 $CH=CF$, 前提条件是所述 $CH=CF$ 部分定向, 使得与 F 键合的碳原子如式 1 中的 R^3 那样连接。

3. 权利要求 1 的化合物, 其中

R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-2; 并且

Z 为 S。

4. 权利要求 2 或 3 的化合物, 其中

R^1 为苯基, 其任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、S(0) $_n$ 、 R^{12} 、 SF_5 、 $Si(CH_3)_3$ 和 $OC(0)R^{19}$ 。

5. 权利要求 2 或 3 的化合物, 其中

R^1 为苯基, 其被 Q^1 取代, 并且还任选被 1 或 2 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_1-C_4 烷氧基和 C_1-C_4 卤代烷氧基。

6. 权利要求 2 或 3 的化合物, 其中

Q 为 Q-1、Q-5、Q-6 或 Q-9;

R⁵ 为 H 或甲基 ;和

R⁶ 为 H。

7. 化合物,所述化合物选自

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(2,4-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(3-氯苯基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲氧基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-苯基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2,4-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-(4-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-(3-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(3-溴苯基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(3-溴苯基)-1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲氧基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[4-(三氟甲基)-2-吡啶基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2-氰基苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-苯基-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶鎓内盐;

8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-6-(4-氟苯基)-7-羟基-5-氧代-5H-噻唑并[3,2-a]

嘧啶鎓内盐；

8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-[3-(三氟甲氧基)苯基]-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶鎓内盐；

8-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-苯基-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶鎓内盐；

8-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-6-(4-氟苯基)-7-羟基-5-氧代-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶鎓内盐；

8-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-[3-(三氟甲氧基)苯基]-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶鎓内盐；

3-[3-(6-氯-3-吡啶基)苯基]-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲氧基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

3-(5-氯-2-氟苯基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[2-氯-5-(三氟甲氧基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

3-(4-氟苯基)-2-羟基-1-[(1-甲基-1H-吡唑-4-基)甲基]-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

2-羟基-1-[(1-甲基-1H-吡唑-4-基)甲基]-4-氧代-3-苯基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(3,5-二甲氧基苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲氧基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

3-(2-氯-4-吡啶基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2-氟-5-溴苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-(2,4,5-三氟苯基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

3-[3-溴-5-(三氟甲氧基)苯基]-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

3-[3-溴-5-(三氟甲基)苯基]-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐；

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-(2-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-6-(2-氟苯基)-7-羟基-5-氧代-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[1-(6-氯-3-吡啶基)乙基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-3-(3-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(2,3-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(3,5-二甲氧基苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(4-氟苯基)-2-羟基-1-[(2-甲基-5-噻唑基)甲基]-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

2-羟基-4-氧代-3-苯基-1-[(5-噻唑基)甲基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-1-[(5-噻唑基)甲基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(2-氟苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-[2-氯-5-(三氟甲基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

3-(2-氟-4-氰基苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;

1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(2-氟-3-甲氧基苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐;和

1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(6-三氟甲基-3-吡啶基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐。

8. 用于控制无脊椎害虫的组合物,所述组合物包含权利要求1的化合物和至少一种附加组分,所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂,所述组合物任选还包含至少一种附加的生物活性化合物或试剂。

9. 权利要求8的组合物,其中所述至少一种附加的生物活性化合物或试剂选自阿巴美丁、高灭磷、灭螨醌、啉虫脒、氟丙菊酯、磺胺螨酯、双甲脒、阿维菌素、印楝素、甲基谷硫磷、联苯菊酯、联苯肼酯、双三氟虫脒、硼酸盐、3-溴-1-(3-氯-2-吡啶基)-N-[4-氰基-2-甲基-6-[(甲基氨基)羰基]苯基]-1H-吡唑-5-甲酰胺(氰虫酰胺)、扑虱灵、

硫线磷、西维因、克百威、杀螟丹、伐虫脒、氯虫苯甲酰胺、溴虫腈、定虫隆、氯吡硫磷、氯吡硫磷-甲基、可芬诺、螨死净、可尼丁、丁氟螨酯、氟氯氰菊酯、 β -氟氯氰菊酯、三氟氯氰菊酯、 γ -三氟氯氰菊酯、高三氟氯氰菊酯、氯氰菊酯、 α -氯氰菊酯、 ζ -氯氰菊酯、赛灭净、溴氢菊酯、丁醚脒、敌匹硫磷、迪厄尔丁、除虫脒、四氟甲醚菊酯、杀虫双、乐果、呋虫胺、二苯丙醚、甲氨基阿维菌素、硫丹、顺式氰戊菊酯、乙虫腈、醚菊酯、乙螨唑、苯丁锡、苯硫威、苯氧威、甲氰菊酯、腈苯苯醚菊酯、氟虫腈、氟啶虫酰胺、氟虫酰胺、氟氰戊菊酯、噻虫胺、氟虫脒、氟胺氰菊酯、氟胺氰菊酯、大福松、伐虫脒、噻唑磷、氯虫酰胺、氟铃脒、噻螨酮、伏蚁脒、吡虫啉、茚虫威、杀虫皂、异柳磷、虱螨脒、马拉硫磷、氰氟虫脒、多聚乙醛、甲胺磷、杀扑磷、灭虫威、乙肼威、甲氧普烯、甲氧滴滴涕、甲氧卞氟菊酯、久效磷、甲氧虫酰胺、烯啶虫胺、硝乙脒、噻唑、双苯氟脒、多氟虫酰胺、草氨酰、对硫磷、甲基对硫磷、扑灭司林、甲拌磷、伏杀硫磷、亚胺硫磷、磷胺、抗蚜威、丙溴磷、丙氟菊酯、克螨特、prot rifenbute、吡蚜酮、pyrafluprole、除虫菊酯、哒螨酮、啶虫丙醚、pyrifluquinazon、pyriprole、蚊蝇醚、鱼藤酮、理阿诺碱、多菌虫素、多杀菌素、季酮螨酯、螺甲螨酯、螺虫乙酯、硫丙磷、N-[甲基[1-[6-(三氟甲基)-3-吡啶基]乙基]-4-硫酮]氨脒、虫酰胺、吡螨胺、伏虫脒、七氟菊酯、特丁磷、杀虫畏、似虫菊、噻虫啉、噻虫嗪、硫双灭多威、杀虫双、啮虫酰胺、四溴菊酯、啮蚜威、敌百虫、杀虫脒、苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素、昆虫致病细菌、昆虫病原病毒和昆虫病原真菌。

10. 用于保护动物免受无脊椎寄生害虫侵害的组合物,所述组合物包含杀寄生物有效量的权利要求 1 的化合物和至少一种载体。

11. 非治疗目的的、用于控制无脊椎害虫的方法,所述方法包括使所述无脊椎害虫或其环境接触生物学有效量的权利要求 1 的化合物。

12. 权利要求 11 的方法,其中所述环境为植物。

13. 权利要求 11 的方法,其中所述环境为种子。

14. 权利要求 13 的方法,其中所述种子被包含权利要求 1 化合物和任选的成膜剂或粘合剂的组合物包覆。

介离子杀虫剂

发明领域

[0001] 本发明涉及适于农业、非农业和动物健康用途的某些嘧啶鎓化合物以及它们的组合物,在农业和非农业环境中使用它们来控制无脊椎害虫诸如节肢动物的方法,以及在一般环境中使用它们来处理动物寄生物感染或侵染的方法。

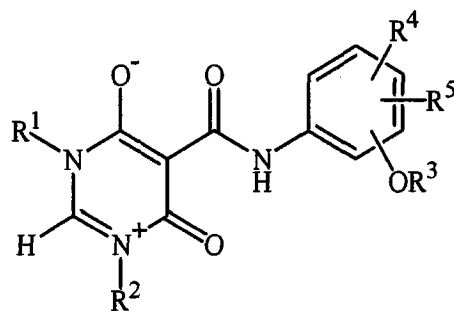
[0002] 发明背景

[0003] 为获得高作物效率,控制无脊椎害虫是极为重要的。无脊椎害虫对农作物生长和储存的损害会导致产量显著降低,从而造成消费者成本上升。对于林业、温室作物、观赏植物、苗圃作物、贮藏食物和纤维产品、牲畜、居室、草皮、木制品以及公共卫生,控制无脊椎害虫也是重要的。为此目的,有许多产品可商购获得,但是持续需要更有效、更经济、毒性更小、对环境更安全或具有不同作用位点的新型化合物。

[0004] 在动物健康中,控制动物寄生物是非常重要的,尤其是在食物产品和伴侣动物领域。由于对当前许多商品化驱虫剂日益增强的抗耐性,因此现有的处理方法和寄生物控制方法效果并不理想。因此发现可更有效控制动物寄生物的方法是当务之急。

[0005] 美国专利公开 5, 151, 427 公开了作为驱肠虫剂的式 i 的介离子嘧啶鎓化合物,

[0006]



i

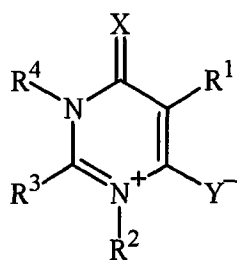
[0007] 其中特别的是, R¹ 和 R² 独立地为 C₁-C₆ 烷基, R³ 为 6 元杂芳环, 并且 R⁴ 和 R⁵ 独立地为氢或 C₁-C₄ 烷基。

[0008] 本发明的嘧啶鎓化合物未公开于此公布中。

[0009] 发明概述

[0010] 本发明涉及式 1 的化合物 (包括所有的几何和立体异构体) 和包含它们的组合物, 以及它们控制无脊椎害虫的用途:

[0011]



1

[0012] 其中

[0013] X 为 O 或 S；

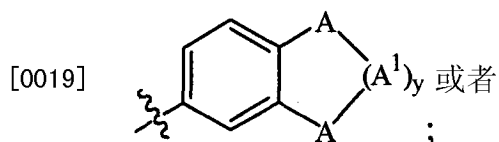
[0014] Y 为 O 或 S；

[0015] R¹ 为 H、卤素、C₁-C₆ 烷基、C₁-C₆ 卤代烷基、C₂-C₆ 烯基、C₂-C₆ 卤代烯基、C₂-C₆ 炔基、C₂-C₆ 卤代炔基、CR²⁴ = C(R²⁴)R¹⁰ 或 C ≡ CR¹⁰；或者

[0016] R¹ 为 C₃-C₇ 环烷基、C₄-C₈ 环烷基烷基或 C₅-C₇ 环烯基，每个任选被 1 至 4 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、C₁-C₂ 烷基、C₁-C₂ 烷氧基、1 个环丙基、1 个 CF₃ 和 1 个 OCF₃；或者

[0017] R¹ 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环，每个任选被 1 至 3 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 卤代烯基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基、C₂-C₆ 二烷基氨基、SF₅、Si(CH₃)₃、CHO、羟基、OC(O)R¹⁹ 和 N(R²⁰)C(O)R¹⁹；或者

[0018] R¹ 为



[0020] R¹ 为 C(X¹)R¹⁸、C(=NOR²³)R¹⁸、C(O)NR¹⁶R^{18a}、C(=NNR^{20a}R²³)R¹⁸、C(=NNR^{20a}C(O)R²³)R¹⁸、C(=NNR^{20a}C(O)OR^{23a})R¹⁸ 或 C(=NNR^{20a}C(O)NR^{20a}R²³)R¹⁸；或者

[0021] R¹ 为 8 元至 10 元杂芳族二环环系，所述二环环系任选在碳环成员上被至多 3 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、SF₅、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基、C₂-C₆ 二烷基氨基、Si(CH₃)₃、CHO、羟基、OC(O)R¹⁹ 和 N(R²⁰)C(O)R¹⁹，并且任选在氮环成员上被甲基取代；或者

[0022] R¹ 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环，每个被 GQ¹ 取代，每个任选被 1 个 Q² 取代，并且每个任选被 1 或 2 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、SF₅、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基、C₂-C₆ 二烷基氨基、Si(CH₃)₃、

CHO、羟基、OC(O)R¹⁹ 和 N(R²⁰)C(O)R¹⁹ ;或者

[0023] R¹ 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环,每个被 LQ¹ 取代,并且每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基和 C₂-C₆ 二烷基氨基 ;

[0024] 每个 A 独立地为 C(R¹⁶)₂、O、S(O)_n 或 NR¹⁵ ;

[0025] 每个 A¹ 独立地为 C(R¹⁷)₂ ;

[0026] X¹ 为 O 或 S ;

[0027] G 为直接键、O、S(O)_n、NH、N(CH₃)、CH₂、CH₂O、OCH₂、C(O)、C(O)O、OC(O)、C(O)NH 或 NHC(O) ;

[0028] L 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环,其任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基和 C₂-C₆ 二烷基氨基 ;

[0029] Q¹ 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基、C₂-C₆ 二烷基氨基、SF₅、Si(CH₃)₃、CHO、羟基、OC(O)R¹⁹ 和 N(R²⁰)C(O)R¹⁹ ;

[0030] Q² 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C(O)N(CH₂Z²CH₂)、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基和 C₂-C₆ 二烷基氨基 ;

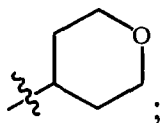
[0031] R² 为 C₂-C₆ 烷基、C₁-C₆ 卤代烷基、C₃-C₆ 烯基、C₃-C₆ 卤代烯基、C₃-C₆ 炔基、C₃-C₆ 卤代炔基、CH₂CO₂R²¹、CR⁵R⁶CH₂OR²¹、CR⁵R⁶CH₂CH₂OR²¹、CR⁵R⁶CH₂S(O)_nR²¹ 或 CR⁵R⁶CH₂CH₂S(O)_nR²¹ ;或者

[0032] R² 为 C₃-C₆ 环烷基或 C₄-C₇ 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基选自卤素、C₁-C₂ 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF₃ ;或者

[0033] R² 为 CR⁵R⁶Q ;或者

[0034] R² 为

[0035]



[0036] R³ 为 H、C₁-C₆ 烷基、C₁-C₆ 卤代烷基、C₂-C₆ 烯基、C₂-C₆ 卤代烯基、C₂-C₆ 炔基、C₂-C₆ 卤代炔基或 C ≡ CR¹⁰ ;或者

[0037] R³ 为 C₃-C₆ 环烷基或 C₄-C₇ 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代

基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0038] R^3 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、**C(O)N(CH₂Z²CH₂)**、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;

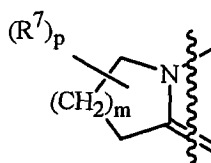
[0039] R^4 为 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

[0040] R^4 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0041] R^4 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、**C(O)N(CH₂Z²CH₂)**、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;或者

[0042] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-1

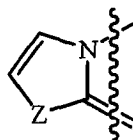
[0043]



R-1

[0044] 或环 R-2

[0045]



R-2 ;

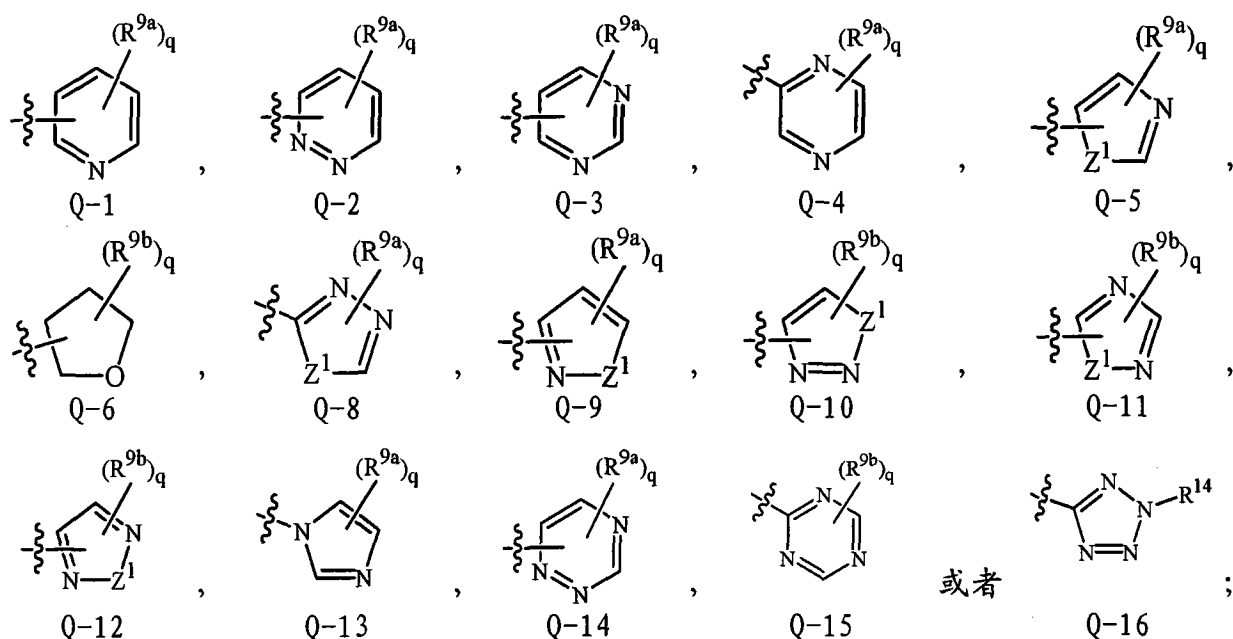
[0046] Z 为 $C(R^{8a}) = C(R^{8b})$ 、S、O 或 NCH_3 ,前提条件是所述 $C(R^{8a}) = C(R^{8b})$ 部分定向,使得与 R^{8b} 键合的碳原子如式 1 中的 R^3 那样连接 ;

[0047] 每个 R^5 独立地为 H、F、Cl、氰基或 C_1-C_4 烷基 ;

[0048] 每个 R^6 独立地为 H、F、Cl 或 CH_3 ;

[0049] Q 为

[0050]



[0051] Z^1 为 O、S 或 NR^{14} ;

[0052] 每个 R^7 独立地为 H、卤素、氰基、 CF_3 、 C_1 - C_3 烷基或 C_3 - C_6 环烷基 ;

[0053] R^{8a} 为 H 或 F ;

[0054] R^{8b} 为 H、F、 CF_2H 或 CF_3 ;

[0055] 每个 R^{9a} 独立地为 H、卤素、氰基、硝基、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 卤代烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_2 - C_4 卤代炔基、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷氧基羰基、 $C(O)NH_2$ 、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 **$C(O)N(CH_2Z^2CH_2)_2$** 、 C_2 - C_4 卤代烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 卤代二烷基氨基羰基、 SF_5 、 $S(O)_nR^{12}$ 或 $S(O)_2R^{13}$;或 C_3 - C_6 环烷基或 C_4 - C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基选自卤素、 C_1 - C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或苯基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1 - C_4 烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 **$C(O)N(CH_2Z^2CH_2)_2$** 、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1 - C_4 烷基氨基和 C_2 - C_6 二烷基氨基 ;

[0056] 每个 R^{9b} 独立地为 H、卤素、氰基、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_1 - C_4 烷氧基或 C_1 - C_4 卤代烷氧基 ;或苯基或吡啶基,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$;

[0057] 每个 R^{10} 独立地为 $Si(R^{11})_3$;或苯基或吡啶基,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 C_1 - C_4 烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 **$C(O)N(CH_2Z^2CH_2)_2$** 、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1 - C_4 烷基氨基和 C_2 - C_6 二烷基氨基 ;

[0058] 每个 R^{11} 独立地为 C_1 - C_4 烷基 ;

[0059] 每个 R^{12} 独立地为 C_1 - C_4 烷基或 C_1 - C_4 卤代烷基 ;

[0060] 每个 R^{13} 独立地为 C_1 - C_4 烷基氨基、 C_2 - C_6 二烷基氨基或 **$N(CH_2Z^2CH_2)_2$** ;

[0061] R^{14} 为 H、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_5 烷氧基羰基、 C_2-C_5 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、**C(O)N(CH₂Z²CH₂)**、 $S(O)_nR^{12}$ 或 $S(O)_2R^{13}$ ；或苯基或吡啶基，每个任选被 1 至 3 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$ ；

[0062] 每个 R^{15} 独立地为 C_1-C_4 烷基；

[0063] 每个 R^{16} 独立地为 H 或 C_1-C_4 烷基；

[0064] 每个 R^{17} 独立地为 H、F 或 CH_3 ；

[0065] R^{18} 为 H、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 环烷基、 C_1-C_6 烷氧基、 C_1-C_6 烷基氨基或 C_2-C_7 二烷基氨基；或苯基或 5 元或 6 元杂芳环，每个任选被 1 至 3 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$ ；

[0066] R^{18a} 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环，每个任选被 1 至 3 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$ ；

[0067] 每个 R^{19} 独立地为 C_1-C_4 烷基；

[0068] 每个 R^{20} 独立地为 H 或 C_1-C_4 烷基；

[0069] 每个 R^{20a} 独立地为 C_1-C_4 烷基；

[0070] 每个 R^{21} 独立地为 H 或 C_1-C_4 烷基；

[0071] R^{23} 为 H、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基、 C_3-C_6 卤代烯基、 C_3-C_6 炔基、 C_3-C_6 卤代炔基或 $CH_2CO_2R^{21}$ ；或者

[0072] R^{23} 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基，每个任选被 1 至 4 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ；或者

[0073] R^{23} 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环，每个任选被 1 至 3 个取代基取代，所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、**C(O)N(CH₂Z²CH₂)**、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基；

[0074] R^{23a} 为 C_1-C_6 烷基、 C_2-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基或 C_3-C_6 环烷基；

[0075] 每个 R^{24} 独立地为 H、F 或 CH_3 ；

[0076] m 为 0、1、2 或 3；

[0077] 每个 n 独立地为 0、1 或 2；

[0078] p 为 0、1、2、3 或 4；

[0079] 每个 q 独立地为 0、1 或 2；

[0080] y 为 1 或 2；并且

[0081] 每个 Z^2 独立地为 CH_2CH_2 、 $CH_2CH_2CH_2$ 或 CH_2OCH_2 。

[0082] 本发明还涉及如上所述的具有式 1 结构的此类化合物（包括所有几何和立体异构体）和包含它们的组合物，以及它们控制无脊椎害虫的用途，此外在本文中，假如 (a) R^2 为 $CH_2CH=CH_2$ ， R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2，Z 为 $CH=CH$ ，X 为 O 并且 Y 为 O 时，则 R^1 不是 H、 $CH(CH_3)_2$ 、 $CH_2CH_2CH_2CH_3$ 、 $CH_2CH=CH_2$ 或未取代的苯基；(b) R^1 为 H， R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2，Z 为 $CH=CH$ ，X 为 O 并且 Y 为 O 时，则 R^2 不是 $CH_2CH=CH_2$ 或 $CH_2C\equiv CH$ ；(c) R^1 为 CH_2CH_3 ， R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2，Z 为 $CH=CH$ ，X 为 O 并且 Y 为 O 时，则 R^2 不是

$\text{CH}_2(\text{CH}_2)_3\text{CH}_3$; (d) R^3 为 H, R^2 和 R^4 均为环己基, X 为 O 并且 Y 为 O 时, 则 R^1 不是 CH_3 ; (e) R^1 为 H 或 $\text{C}_1\text{-C}_3\text{n-}$ 烷基, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 O 并且 Y 为 O 时, 则 R^2 不是 $\text{C}_1\text{-C}_6$ 烷基或 $\text{C}_3\text{-C}_4$ 烷氧基烷基; (f) R^2 为环丙基甲基, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 O 并且 Y 为 O 时, 则 R^1 不是 CH_3 、 CH_2CH_3 或 $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$; (g) R^1 为未取代的苯基, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 O 并且 Y 为 O 时, 则 R^2 不是 $\text{C}_3\text{-C}_4$ 烷氧基烷基; 以及 (h) R^1 为 Br, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 O 并且 Y 为 O 时, 则 R^2 不是 CH_2CH_3 。

[0083] 本发明还提供了包含式 1 的化合物以及至少一种附加组分的组合物, 所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂。在一个实施方案中, 本发明还提供了用于控制无脊椎害虫的组合物, 所述组合物包含式 1 的化合物 (即为生物学有效量) 和至少一种附加组分, 所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂, 所述组合物任选还包含至少一种附加生物活性化合物或试剂 (即为生物学有效量)。

[0084] 本发明还提供了保护动物免受无脊椎寄生害虫侵害的组合物, 所述组合物包含杀寄生虫有效量的式 1 的化合物 (即为杀寄生物有效量) 和至少一种载体。

[0085] 本发明还提供了用于控制无脊椎害虫的喷剂组合物, 所述组合物包含式 1 的化合物或上述组合物 (即为生物学有效量) 和推进剂。本发明还提供了用于控制无脊椎害虫的饵料组合物, 所述组合物包含式 1 的化合物或上文实施方案中所述的组合物 (即为生物学有效量)、一种或多种食物物料、任选的诱虫剂、和任选的湿润剂。

[0086] 本发明还提供了用于控制无脊椎害虫的诱捕装置, 所述装置包括所述饵料组合物和适于容纳所述饵料组合物的外罩, 其中所述外罩具有至少一个开口, 所述开口尺寸能够使无脊椎害虫通过, 以使无脊椎害虫能够从位于外罩外部的的位置触及所述饵料组合物, 并且其中所述外罩还适于放置在潜在或已知的无脊椎害虫活动场所之中或附近。

[0087] 本发明还提供了用于控制无脊椎害虫的方法, 所述方法包括使无脊椎害虫或其环境接触生物学有效量的式 1 的化合物 (例如为本文所述的组合物)。本发明还涉及此类方法, 其中使所述无脊椎害虫或其环境接触一种组合物, 所述组合物包含生物学有效量的式 1 的化合物和至少一种附加组分, 所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂, 所述组合物还任选包含生物学有效量的至少一种附加生物活性化合物或试剂。

[0088] 本发明还提供了用于保护种子免受无脊椎害虫侵害的方法, 所述方法包括使种子接触生物学有效量的式 1 的化合物 (例如为本文所述的组合物)。本发明还涉及经处理的种子。

[0089] 本发明还提供了处理、预防、抑制和 / 或杀灭体外和 / 或体内寄生物的方法, 所述方法包括向动物和 / 或在动物上施用杀寄生物有效量的式 1 的化合物 (例如为本文所述的组合物)。本发明还涉及此类方法, 其中将杀寄生物有效量的式 1 的化合物 (例如为本文所述的组合物) 施用到其中动物居住的环境中 (例如畜栏或毛毯)。

[0090] 发明详述

[0091] 如本文所用, 术语“包含”、“由... 组成”、“包括”、“涵盖”、“具有”、“含有”、“包容”或“容纳”或其任何其他变型旨在包括非排他性的包括。例如, 包含一系列元素的组合物、混合物、工艺、方法、制品或设备不必仅限于那些元素, 而可以包括其他未明确列出的元素, 或此类组合物、混合物、工艺、方法、制品或设备固有的元素。此外, 除非有相反的明确说明, “或”是指包含性的“或”, 而不是指排他性的“或”。例如, 以下任何一种情况均满足条件 A 或

B:A 是真实的（或存在的）且 B 是虚假的（或不存在的），A 是虚假的（或不存在的）且 B 是真实的（或存在的），以及 A 和 B 都是真实的（或存在的）。

[0092] 同样，涉及元素或组分实例（即次数）的数目在本发明元素或组分前的不定冠词“一个”或“一种”旨在是非限制性的。因此，应将“一个”或“一种”理解为包括一个或至少一个，并且元素或组分的词语单数形式也包括复数指代，除非有数字明显表示单数。

[0093] 如本公开中所涉及的，术语“无脊椎害虫”包括具有经济学重要性的作为害虫的节肢动物、腹足动物和线虫动物。术语“节肢动物”包括昆虫、螨虫、蜘蛛、蝎子、蜈蚣、马陆、球潮虫和综合纲动物。术语“腹足动物”包括蜗牛、蛞蝓以及其他柄眼目动物。术语“线虫动物”包括所有蠕虫，诸如：蛔虫、犬恶丝虫和植食性线虫（线虫纲）、吸虫（吸虫纲）、棘头虫、和绦虫（绦虫纲）。

[0094] 在本发明的公开上下文中，“控制无脊椎害虫”是指抑制无脊椎害虫的发育（包括死亡，摄食量下降，和 / 或交配干扰），并且可类似定义相关的表达。

[0095] 术语“农业的”是指诸如用于食物和纤维的田园作物的生产，并且包括玉米、大豆和其他豆类、水稻、谷类食物（例如小麦、燕麦、大麦、裸麦、水稻、玉米）、叶菜（例如莴苣、卷心菜以及其他菜荚作物）、果菜（例如番茄、辣椒、茄子、十字花科植物和葫芦科植物）、马铃薯、甘薯、葡萄、棉花、木本果（例如梨果、硬质种子和柑橘）、小果（浆果、樱桃）以及其他特殊作物（例如低芥酸菜籽、向日葵、橄榄）的生长。

[0096] 术语“非农业的”是指非田园作物诸如园艺作物（例如不在田地中生长的温室植物、苗圃植物或观赏植物），居住结构、农业结构、商业结构和产业结构，草皮（例如草场、牧场、高尔夫球场、草坪、运动场等），木制品，储藏制品，农林间作和植被管理，公共卫生（即人）和动物卫生（例如驯养动物诸如宠物、牲畜和家禽，未驯化的动物诸如野生动物）应用。

[0097] 非农业应用包括通过向要保护的动物施用杀寄生物有效（即生物有效）量的本发明的化合物（通常为配制供兽用的组合物形式），保护动物免受无脊椎寄生害虫的侵害。如本公开和权利要求中所涉及的，术语“杀寄生物的”和“杀寄生物性”涉及观察得到的对无脊椎寄生害虫的功效，以向动物提供保护，使其免受害虫的侵害。杀寄生物功效通常涉及减少目标无脊椎寄生害虫的出现或活动。对害虫的此类功效包括坏死、致死、延缓生长、减少移动性或降低保留在宿主动物之上或之中的能力、摄食量下降以及繁殖抑制。对无脊椎寄生害虫的这些功效提供了对动物寄生侵染或感染的控制（包括预防、减少或消除）。

[0098] 在以上表述中，单独使用或在复合词如“卤代烷基”中使用的术语“烷基”包括直链或支链烷基，如甲基、乙基、正丙基、异丙基，或不同的丁基、戊基或己基异构体。“烯基”包括直链或支链烯烃，如乙烯基、1-丙烯基、2-丙烯基、以及不同的丁烯基、戊烯基和己烯基异构体。“烯基”还包括多烯如 1,2-丙二烯基和 2,4-己二烯基。“炔基”包括直链或支链的炔烃，如乙炔基、1-丙炔基、2-丙炔基，以及不同的丁炔基、戊炔基和己炔基异构体。“炔基”还包括由多个三键构成的部分，如 2,5-己二炔基。

[0099] “烷氧基”包括例如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、异丙氧基和不同的丁氧基、戊氧基和己氧基异构体。“烷氧基烷基”表示烷氧基取代在烷基上。“烷氧基烷基”的实例包括 CH_3OCH_2 、 $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{CH}_2$ 、 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OCH}_2$ 、 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OCH}_2$ 和 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OCH}_2\text{CH}_2$ 。

[0100] “环烷基”包括例如环丙基、环丁基、环戊基和环己基。术语“环烷基烷基”表示环

烷基取代在烷基部分上。“环烷基烷基”的实例包括环丙基甲基、环戊基乙基、以及键合到直链或支链的烷基上的其他环烷基部分。

[0101] 单独的或在复合词如“卤代烷基”中的或者当在描述如“用卤素取代的烷基”中使用的术语“卤素”包括氟、氯、溴或碘。此外,当用于复合词如“卤代烷基”中时,或者当用于描述如“用卤素取代的烷基”中时,所述烷基可以是使用卤原子(其可以是相同的或不同的)部分地或完全地取代的。“卤代烷基”或“取代有卤素的烷基”实例包括 CF_3 、 CH_2Cl 、 CH_2CF_3 和 CCl_2CF_3 。术语“卤代烷氧基”、“卤代烯基”、“卤代炔基”等,与术语“卤代烷基”相类似地定义。“卤代烷氧基”的实例包括 OCF_3 、 OCH_2CCl_3 、 $\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CHF}_2$ 和 OCH_2CF_3 。“卤代链烯基”的实例包括 $\text{CH}_2\text{CH}=\text{C}(\text{Cl})_2$ 和 $\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCH}_2\text{CF}_3$ 。“卤代炔基”的实例包括 $\text{CHClC}\equiv\text{CH}$ 、 $\text{C}\equiv\text{CCF}_3$ 、 $\text{C}\equiv\text{CCCl}_3$ 和 $\text{CH}_2\text{C}\equiv\text{CCH}_2\text{F}$ 。

[0102] “烷基氨基”表示被直链或支链烷基取代的 NH 基团。“烷基氨基”的实例包括 NHCH_2CH_3 、 $\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 、和 $\text{NHCH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 。“二烷基氨基”表示被两个直链或支链烷基独立取代的 N 基团。“二烷基氨基”的实例包括 $\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 、 $\text{N}(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2)_2$ 和 $\text{N}(\text{CH}_3)\text{CH}_2\text{CH}_3$ 。“卤代二烷基氨基”表示一个直链或支链烷基部分和一个直链或支链卤代烷基部分键合到 N 基团上,或两个独立的直链或支链卤代烷基部分键合到 N 基团上,其中“卤代烷基”如上定义。“卤代二烷基氨基”的实例包括 $\text{N}(\text{CH}_2\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Cl})$ 和 $\text{N}(\text{CF}_2\text{CF}_3)_2$ 。

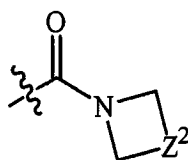
[0103] “烷基羰基”表示直链或支链的烷基部分键合到 $\text{C}(=\text{O})$ 部分上。如本文所用,化学缩写 $\text{C}(\text{O})$ 和 $\text{C}(=\text{O})$ 代表羰基部分。“烷基羰基”实例包括 $\text{C}(\text{O})\text{CH}_3$ 、 $\text{C}(\text{O})\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 和 $\text{C}(\text{O})\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 。“卤代烷基羰基”的实例包括 $\text{C}(\text{O})\text{CF}_3$ 、 $\text{C}(\text{O})\text{CCl}_3$ 、 $\text{C}(\text{O})\text{CH}_2\text{CF}_3$ 和 $\text{C}(\text{O})\text{CF}_2\text{CF}_3$ 。

[0104] “烷氧羰基”表示直链或支链的烷基部分键合到 CO_2 部分上。如本文所用,化学缩写 CO_2 和 $\text{C}(\text{O})\text{O}$ 代表酯部分。“烷氧羰基”的实例包括 $\text{C}(\text{O})\text{OCH}_3$ 、 $\text{C}(\text{O})\text{OCH}_2\text{CH}_3$ 、 $\text{C}(\text{O})\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 和 $\text{C}(\text{O})\text{OCH}(\text{CH}_3)_2$ 。

[0105] “烷基氨基羰基”表示直链或支链的烷基部分键合到 $\text{C}(\text{O})\text{NH}$ 部分上。如本文所用,化学缩写 $\text{C}(\text{O})\text{NH}$ 和 $\text{C}(\text{O})\text{N}$ 代表酰胺部分(即氨基羰基)。“烷基氨基羰基”的实例包括 $\text{C}(\text{O})\text{NHCH}_3$ 、 $\text{C}(\text{O})\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 和 $\text{C}(\text{O})\text{NHCH}(\text{CH}_3)_2$ 。“二烷基氨基羰基”表示两个独立的直链或支链烷基部分键合到 $\text{C}(\text{O})\text{N}$ 部分上。“二烷基氨基羰基”的实例包括 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_3)_2$ 和 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_3)(\text{CH}_2\text{CH}_3)$ 。

[0106] 如本文所用,化学缩写 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_2\text{Z}^2\text{CH}_2)_2$ 表示二烷基氨基羰基部分,其中两个烷基连接形成如下所示的环。

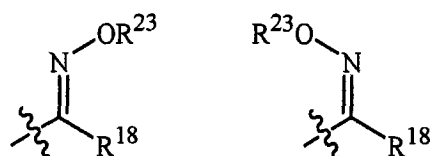
[0107]



[0108] 类似地定义化学缩写 $\text{N}(\text{CH}_2\text{Z}^2\text{CH}_2)_2$ 。

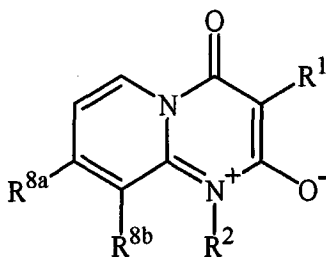
[0109] 如本文所用,化学缩写 $\text{C}(=\text{NOR}^{23})\text{R}^{18}$ 表示如下所示的两个脞部分几何异构体。

[0110]



[0111] 当 R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-2, 并且 Z 为 $C(R^{8a}) = C(R^{8b})$ 时, 则 $C(R^{8a}) = C(R^{8b})$ 部分部分定向, 使得与 R^{8b} 键合的碳原子如式 1 中的 R^3 那样连接, 如下所示。

[0112]



[0113] 上文结构以及公开别处 (例如表 1 之前的 X-24 至 X-128, 和 Y-30 至 Y-71) 中的波形线表示分子片段与分子其余部分的连结位置。

[0114] 取代基中的碳原子总数由“ C_i-C_j 前缀表示, 其中 i 和 j 为 1 至 7 的数。例如, C_1-C_4 烷基代表甲基至丁基; C_2 烷氧基烷基代表 CH_2OCH_3 ; C_3 烷氧基烷基代表例如 $CH_3CH(OCH_3)$ 、 $CH_2CH_2OCH_3$ 或 $CH_2OCH_2CH_3$; 并且 C_4 烷氧基烷基代表被包含共四个碳原子的烷氧基取代的各种烷基异构体, 实例包括 $CH_2OCH_2CH_2CH_3$ 和 $CH_2CH_2OCH_2CH_3$ 。

[0115] 当化合物被带有下列 (其表示所述取代基的数目可超过 1) 的取代基取代时, 所述取代基 (当它们超过 1 时) 独立地选自所定义的取代基, 例如 $(R^i)_p$, p 为 0、1、2、3 或 4。当基团包含可以是氢的取代基例如 R^1 或 R^3 时, 则当此取代基被认为是氢时, 应该认识到这相当于所述基团是未取代的。当可变基团示出可任选连接到一个位置上时, 例如示例 1 的 U-36 中的 $(R^i)_r$, 其中 r 可为 0, 则即使可变基团定义中没有进行叙述, 氢也可以在所述位置上。当基团中的一个或多个位置被称为“没有取代的”或“未取代的”时, 则连接了氢原子, 以占据任何自由价。

[0116] 术语“杂芳环”表示其中至少一个形成环骨架的原子不是碳的芳环, 所述原子为例如氮、氧或硫。通常, 杂芳环包含不超过 4 个的氮、不超过 1 个氧和不超过 1 个硫。除非另外指明, 杂芳环可经由任何可利用的碳或氮通过替换所述碳或氮上的氢来连接。“芳族”表示每个环原子基本上在同一平面上, 并且具有与所述环平面相垂直的 p -轨道, 并且其中 $(4n+2)$ 个 π 电子 (其中 n 为正整数) 与所述环关联, 以符合休克尔法则。术语“杂芳族二环环系”表示由两个稠环组成的环系, 其中两个环中有至少一个为如上定义的杂芳环。

[0117] 当基团 (例如 R^1 定义中的环烷基) 任选被所列取代基取代同时说明了取代基数目 (例如“1 至 4”) 时, 则所述基团可以是未取代的, 或被许多取代基取代, 所述取代基数变化范围至多达到所述最大值 (例如“4”), 并且所连接的取代基独立地选自所列取代基。当所列取代基包括特定取代基的下限 (例如“1 个环丙基”) 时, 这相应地限制了与所述基团连接的取代基中该特定取代基的实例数。因此就 R^1 而言, 当有至多四个取代基可连接到环烷基上时, 仅一个取代基可以是环丙基。

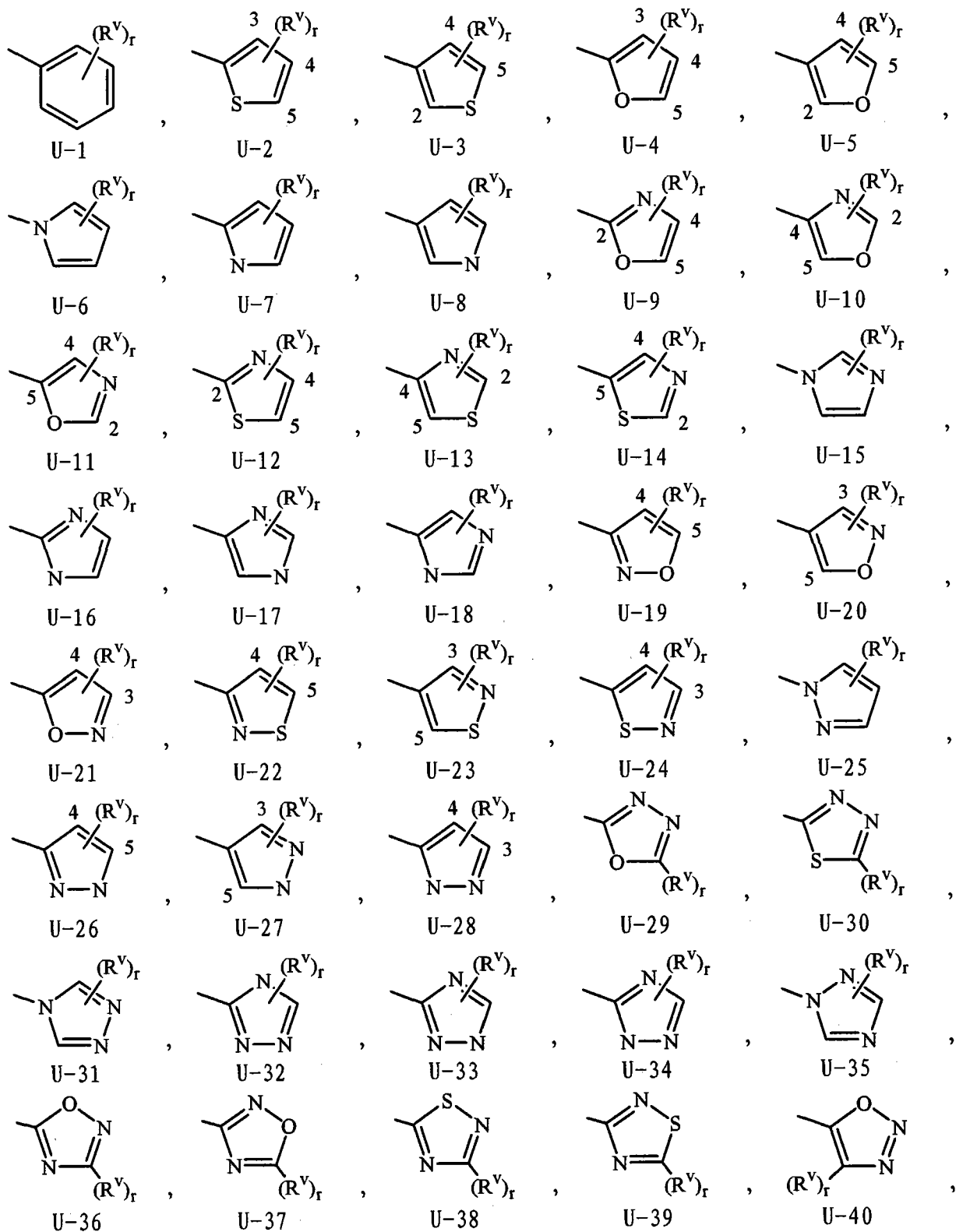
[0118] 除非另外指明, 当取代基 (例如 R^1) 为 5 元或 6 元含氮杂芳环时, 它可经由任何可

得的碳或氮环原子与式 1 的其余部分连接。如上所述,取代基如 R^1 可为(除了别的以外)任选被一个至三个取代基取代的苯基,所述取代基选自如发明概述中定义的取代基。任选被一个至三个取代基取代的苯基的实例是如示例 1 中的 U-1 所示的环,其中 R^v 如发明概述中所定义(例如对于 R^1),并且 r 为 0 至 3 的整数。

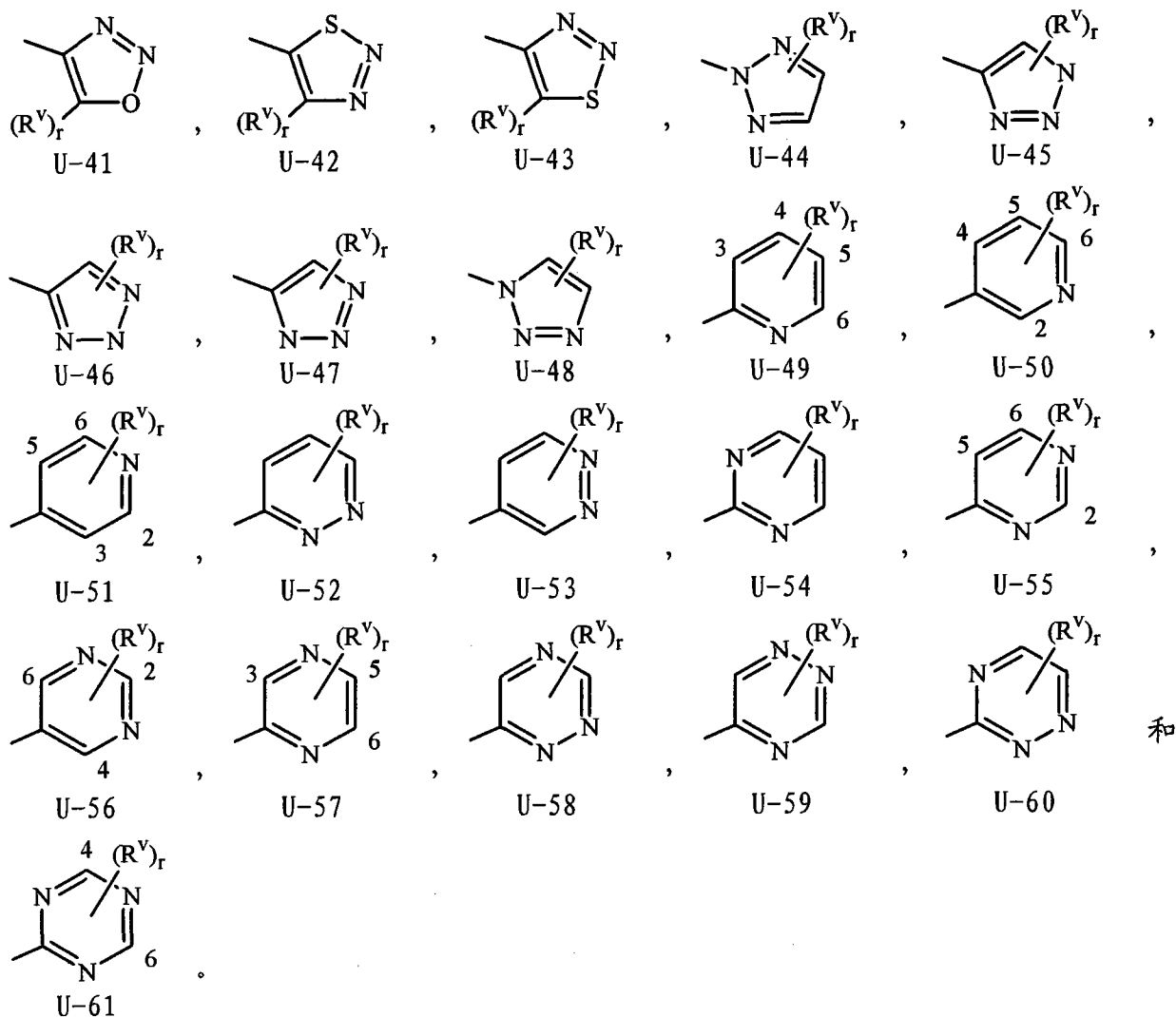
[0119] 如上所述,取代基如 R^1 可为(除了别的以外)任选被一个或多个取代基取代的 5 元或 6 元杂芳环,所述取代基选自如发明概述中所定义的取代基。任选被一个或多个取代基取代的 5 元或 6 元杂芳环的实例包括示例 1 中所示的环 U-2 至 U-61,其中 R^v 是如发明概述中所定义的任何取代基(例如对于 R^1),并且 r 为 0 至 2 的整数,其受限于每个 U 基团上的可得位置数。由于 U-29、U-30、U-36、U-37、U-38、U-39、U-40、U-41、U-42 和 U-43 仅有一个可获得的位置,因此对于这些 U 基团, r 限于整数 0 或 1,并且 r 为 0 是指 U 基团是未取代的,并且有一个氢在 $(R^v)_r$ 所示的位置。

[0120] 示例 1

[0121]



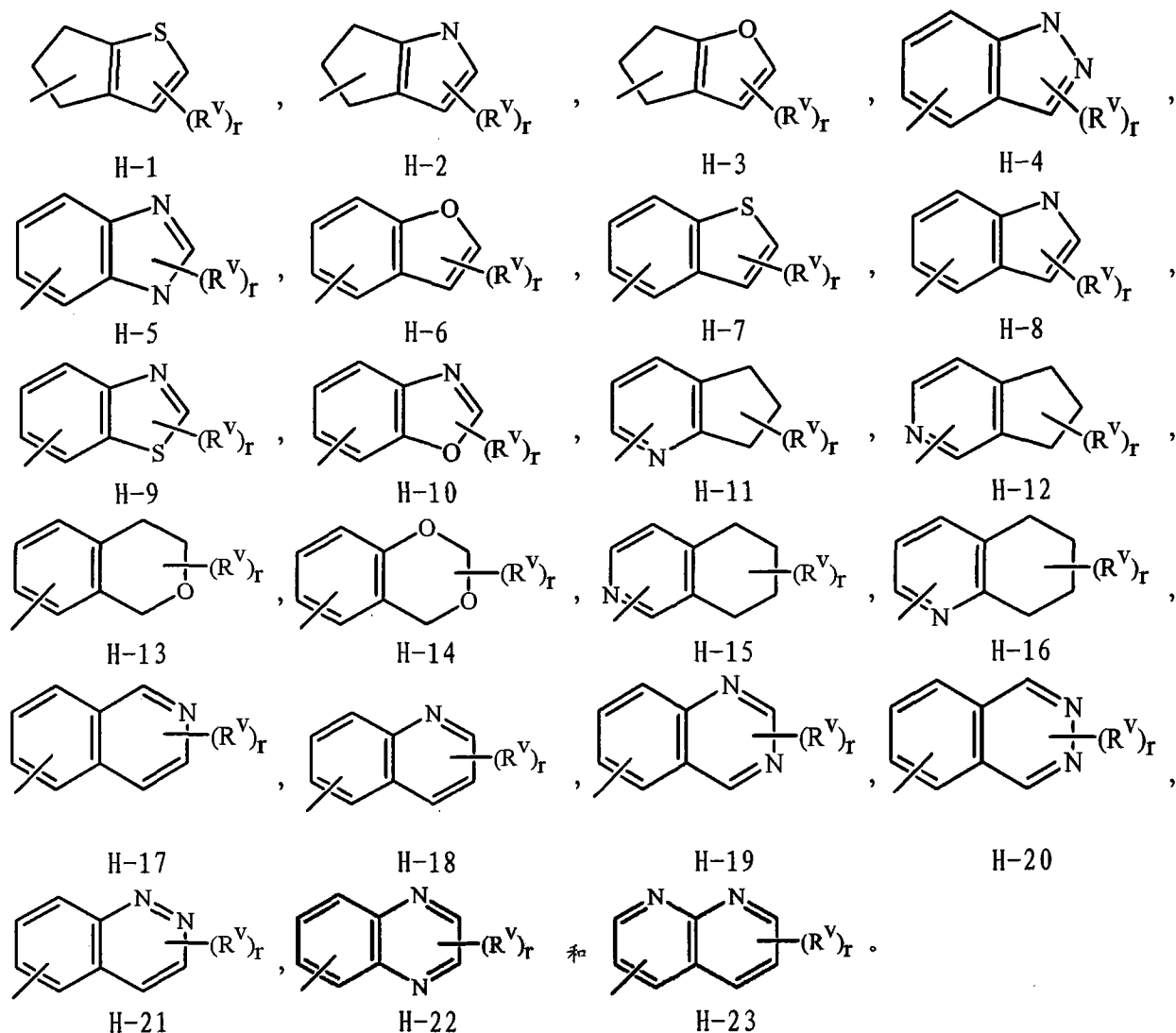
[0122]



[0123] 如上所述,取代基如 R^1 可为(除了别的以外)任选被至多 3 个取代基取代的 8 元、9 元或 10 元杂芳族二环环系,所述取代基选自如发明概述中所定义的取代基。任选被至多 3 个取代基取代的 8 元、9 元或 10 元杂芳族二环环系的实例包括示例 2 中所示的环系 H-1 至 H-23,其中 R^v 为如发明概述中所定义的任何取代基(例如碳环成员上的卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基,以及氮环成员上的甲基),并且 r 为 0 至 3 的整数,其受限于是每个 H 基团上的可得位置数。

[0124] 示例 2

[0125]



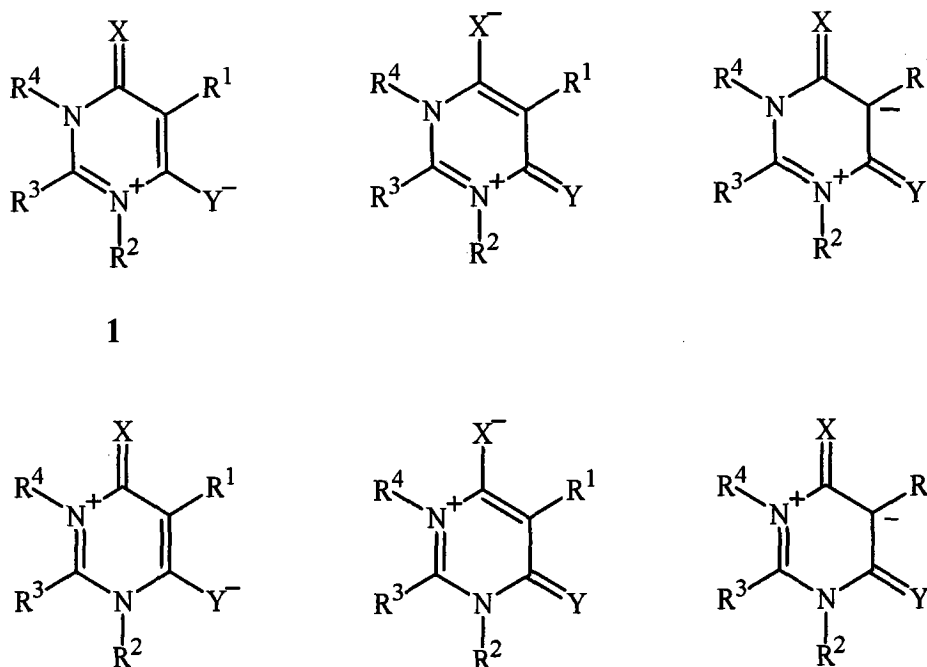
[0126] 虽然在结构 U-1 至 U-61 和 H-1 至 H-23 中示出了 R^V 基团,但是注意到,由于它们是任选的取代基,因此不是必须存在的。需要取代以填充其化合价的氮原子可被 H 或 R^V 取代。注意到,当 $(R^V)_r$ 与 U 或 H 基团间的连接点显示成浮置时, $(R^V)_r$ 可与 U 或 H 基团中的任何可得碳原子或氮原子连接。注意到,当 U 或 H 基团上的连接点表示成浮置时,则所述 U 或 H 基团可通过替换氢原子而经由 U 或 H 基团中的任何可得碳或氮连接到式 1 的其余部分上。注意到,某些 U 基团仅能被小于 2 个的 R^V 基团取代(例如 U-2 至 U-5, U-7 至 U-48,以及 U-52 至 U-61)。

[0127] 在本领域已知有多种合成方法能够制备芳族的和非芳族的杂环和环系;大量的综述参见八卷集的 Comprehensive Heterocyclic Chemistry (A. R. Katritzky 和 C. W. Rees 主编, Pergamon Press, Oxford, 1984) 和十二卷集的 Comprehensive Heterocyclic Chemistry II (A. R. Katritzky, C. W. Rees 和 E. F. V. Scriven 主编, Pergamon Press, Oxford, 1996)。

[0128] 式 1 的化合物为介离子内盐。“内盐”在本领域中还被称为“两性离子”,其为电中性分子,但是根据价键理论,其在每个价键结构中的不同原子上带有形式正电荷和负电荷。此外,式 1 的化合物的分子结构可由下示六种价键结构表示,每一种在不同的原子上带有形式正电荷和负电荷。由于这种共振,式 1 的化合物还被描述为“介离子”。虽然为简洁起见,在本公开和权利要求中将式 1 分子结构描述为单一价键结构,但是此具体价键结构应

被理解为是涉及式 1 的化合物分子内连接的所有六种价键结构的代表。因此,除非另外指明,对本公开和权利要求中式 1 的引用涉及所有六种相关的价键结构以及其他(例如分子轨道理论)结构。

[0129]



[0130] 本发明的化合物可以一种或多种立体异构体的形式存在。多种立体异构体包括对映异构体、非对映异构体、阻转异构体和几何异构体。例如,取代基和其他分子组分如 R^1 可包含手性中心。本领域的技术人员将会知道,当一种立体异构体相对于其他立体异构体富集时,或者当其与其他立体异构体分离时,其可能更有活性和/或可能表现出有益的效果。另外,本领域的技术人员知道如何分离、富集和/或选择性地制备所述立体异构体。本发明包括在这些手性中心处外消旋的混合物以及富集并且基本上纯的立体构型。

[0131] 由于因空间位阻造成键旋转受限,因此本发明的化合物可以一种或更多种构象异构体形式存在。例如,由于围绕 R^1 -嘧啶鎓环键的旋转受限,因此式 1 的化合物(其中 R^1 为在邻位上被具有空间需求的烷基(例如异丙基)取代的苯基)可以两种旋转异构体形式存在。本发明包括构象异构体的混合物。此外,本发明包括相对于其他构象异构体富集了一种构象异构体的化合物。

[0132] 式 1 的化合物可作为多晶型体(即不同的结晶形式)以固相形式存在。术语“多晶型体”是指可以不同晶型结晶的化合物的具体晶型,这些晶型在晶格中具有不同的分子排列和/或构象。虽然多晶型体可具有相同的化学组成,但是它们也可具有不同的组成,这应归于是是否存在微弱或强力键合于晶格内的共结晶的水或其他分子。多晶型体可具有不同的化学、物理和生物特性,如晶体形状、密度、硬度、颜色、化学稳定性、熔点、吸湿性、可悬浮性、溶解率和生物利用度。本领域的技术人员将会知道,相对于式 1 的相同化合物的另一种多晶型体或多晶型体混合物,式 1 的化合物的多晶型体可显示出有益功效(例如制备可用制剂的适宜性)。式 1 的化合物的具体多晶型体的制备和分离可通过本领域技术人员已知的方法实现,包括例如采用所选溶剂和温度进行结晶。本发明包括单一形态以及多种形态的混合物,包括相对于其他形态富含一种形态的混合物。

[0133] 如发明概述中所述的本发明实施方案包括下述那些。在下列实施方案中,除非在实施方案中另外定义,与“式 1 的化合物”相关的包括发明概述中规定的取代基定义。式 1r 和式 1s 的化合物是式 1 的不同子集。

[0134] 实施方案 1:式 1 的化合物,其中 X 为 O。

[0135] 实施方案 2:式 1 的化合物,其中 X 为 S。

[0136] 实施方案 3:式 1 或实施方案 1 或 2 中的化合物,其中 Y 为 O。

[0137] 实施方案 4:式 1 或实施方案 1 或 2 中的化合物,其中 Y 为 S。

[0138] 实施方案 5:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中 R^1 为 H 或卤素。

[0139] 实施方案 6:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中 R^1 为苯基或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 卤代烯基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)$ 、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基、 C_2-C_6 二烷基氨基、 SF_5 、 $Si(CH_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$ 。

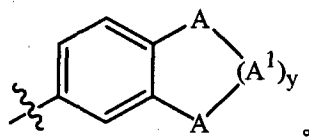
[0140] 实施方案 7:实施方案 6 中的化合物,其中 R^1 为苯基或吡啶基,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 卤代烯基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)$ 、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基、 C_2-C_6 二烷基氨基、 SF_5 、 $Si(CH_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$ 。

[0141] 实施方案 8:实施方案 7 中的化合物,其中 R^1 为苯基或吡啶基,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_4 烷基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)$ 、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$ 。

[0142] 实施方案 9:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中

[0143] R^1 为

[0144]



[0145] 实施方案 10:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中 R^1 为 $C(X^1)R^{18}$ 或 $C(=NOR^{23})R^{18}$ 。

[0146] 实施方案 11:实施方案 10 中的化合物,其中 R^1 为 $C(X^1)R^{18}$ 。

[0147] 实施方案 12:式 1 或实施方案 1-11 中任一项的化合物,其中 X^1 为 O。

[0148] 实施方案 13:式 1 或实施方案 1-11 中任一项的化合物,其中 X^1 为 S。

[0149] 实施方案 14:实施方案 10 中的化合物,其中 R^1 为 $C(=NOR^{23})R^{18}$ 。

[0150] 实施方案 15:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中 R^1 为任选在碳环成员上被至多 3 个取代基取代并且任选在氮环成员上被甲基取代的 8 元至 10 元杂芳族二环环

系,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烯基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 炔基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 卤代烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷氧基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基氨基羰基、 $\text{C}_3\text{-C}_7$ 二烷基氨基羰基、 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_2\text{Z}^2\text{CH}_2)\text{-}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷氧基烷基、 $\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{12}$ 、 $\text{S}(\text{O})_2\text{R}^{13}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基氨基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 二烷基氨基、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $\text{OC}(\text{O})\text{R}^{19}$ 和 $\text{N}(\text{R}^{20})\text{C}(\text{O})\text{R}^{19}$ 。

[0151] 实施方案 16:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中 R^1 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环,每个被 GQ^1 取代,并且还任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烯基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 炔基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 卤代烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷氧基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基氨基羰基、 $\text{C}_3\text{-C}_7$ 二烷基氨基羰基、 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_2\text{Z}^2\text{CH}_2)\text{-}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷氧基烷基、 $\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{12}$ 、 $\text{S}(\text{O})_2\text{R}^{13}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基氨基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 二烷基氨基、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $\text{OC}(\text{O})\text{R}^{19}$ 和 $\text{N}(\text{R}^{20})\text{C}(\text{O})\text{R}^{19}$ 。

[0152] 实施方案 17:实施方案 16 中的化合物,其中 R^1 为苯基或吡啶基,每个被 GQ^1 取代,并且还任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 SF_5 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷氧基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基氨基羰基、 $\text{C}_3\text{-C}_7$ 二烷基氨基羰基、 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_2\text{Z}^2\text{CH}_2)\text{-}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷氧基烷基、 $\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{12}$ 和 $\text{S}(\text{O})_2\text{R}^{13}$ 。

[0153] 实施方案 18:式 1 或实施方案 1-17 中任一项的化合物,其中 Q^1 为苯基或吡啶基,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷氧基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基氨基羰基、 $\text{C}_3\text{-C}_7$ 二烷基氨基羰基、 $\text{C}(\text{O})\text{N}(\text{CH}_2\text{Z}^2\text{CH}_2)\text{-}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷氧基烷基、 $\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{12}$ 和 $\text{S}(\text{O})_2\text{R}^{13}$ 。

[0154] 实施方案 19:式 1 或实施方案 1-4 中任一项的化合物,其中 R^1 选自实施方案 5、6、9、10、15 和 16。

[0155] 实施方案 20:式 1 或实施方案 1-19 中任一项的化合物,其中 R^2 为 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_6$ 卤代烷基、 $\text{CH}_2\text{CO}_2\text{R}^{21}$ 、 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{CH}_2\text{OR}^{21}$ 、 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OR}^{22}$ 、 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{21}$ 、或 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{CH}_2\text{CH}_2\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{21}$ 。

[0156] 实施方案 21:式 1 或实施方案 1-19 中任一项的化合物,其中 R^2 为 $\text{C}_3\text{-C}_6$ 环烷基或 $\text{C}_4\text{-C}_7$ 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基选自卤素、 $\text{C}_1\text{-C}_2$ 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 。

[0157] 实施方案 22:式 1 或实施方案 1-19 中任一项的化合物,其中 R^2 为 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{Q}$ 。

[0158] 实施方案 22a:式 1 或实施方案 1-19 中任一项的化合物,其中 R^2 选自实施方案 20、21 和 22。

[0159] 实施方案 23:实施方案 20 中的化合物,其中 R^2 为 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_6$ 卤代烷基、或 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{CH}_2\text{OR}^{21}$ 。

[0160] 实施方案 24:实施方案 21 中的化合物,其中 R^2 为任选被 1 至 4 个取代基取代的 $\text{C}_4\text{-C}_7$ 环烷基烷基,所述取代基选自卤素、 $\text{C}_1\text{-C}_2$ 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 。

[0161] 实施方案 24a:式 1 或实施方案 1-19 中任一项的化合物,其中 R^2 选自实施方案 23 和 24。

[0162] 实施方案 25:式 1 或实施方案 1-24 中任一项的化合物,其中 G 为直接键。

[0163] 实施方案 26:式 1 或实施方案 1-25 中任一项的化合物,其中 R^3 为 H、 $\text{C}_1\text{-C}_6$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_6$ 卤代烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烯基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 卤代烯基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 炔基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 卤代炔基、或 $\text{C} \equiv \text{CR}^{10}$ 。

[0164] 实施方案 27 : 式 1 或实施方案 1-25 中任一项的化合物, 其中 R^3 为 C_3 - C_6 环烷基或 C_4 - C_7 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、 C_1 - C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 。

[0165] 实施方案 28 : 实施方案 26 中的化合物, 其中 R^3 为 C_1 - C_6 烷基或 C_1 - C_6 卤代烷基。

[0166] 实施方案 29 : 实施方案 3 中的化合物, 其中 R^{28} 为 CH_3 。

[0167] 实施方案 29a : 式 1 或实施方案 1-29 中任一项的化合物, 其中 R^4 为 C_1 - C_6 烷基、 C_1 - C_6 卤代烷基、 C_2 - C_6 烯基、 C_2 - C_6 卤代烯基、 C_2 - C_6 炔基、 C_2 - C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$ 。

[0168] 实施方案 29b : 式 1 或实施方案 1-29 中任一项的化合物, 其中 R^4 为 C_3 - C_6 环烷基或 C_4 - C_7 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、 C_1 - C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 。

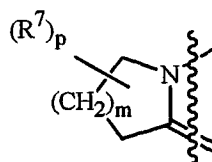
[0169] 实施方案 29c : 实施方案 29a 中的化合物, 其中 R^4 为 C_1 - C_6 烷基或 C_1 - C_6 卤代烷基。

[0170] 实施方案 29d : 实施方案 29c 中的化合物, 其中 R^4 为 CH_3 。

[0171] 实施方案 30 : 式 1 或实施方案 1-25 中任一项的化合物, 其中 R^3 和 R^4

[0172] 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-1

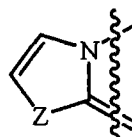
[0173]



R-1

[0174] 或环 R-2

[0175]



R-2

[0176] 实施方案 31 : 实施方案 30 中的化合物, 其中 R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-1。

[0177] 实施方案 32 : 实施方案 30 中的化合物, 其中 R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-2。

[0178] 实施方案 32a : 式 1 或实施方案 1-25 中任一项的化合物, 其中 R^3 选自实施方案 26 和 27, 并且 R^4 选自实施方案 29a 和 29b ; 或者如实施方案 30 中所述, R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环。

[0179] 实施方案 32b : 式 1 或实施方案 1-32a 中任一项的化合物, 其中 m 为 2 或 3。

[0180] 实施方案 32c : 式 1 或实施方案 1-32b 中任一项的化合物, 其中 p 为 0。

[0181] 实施方案 32d : 式 1 或实施方案 1-32c 中任一项的化合物, 其中 Z 为 $C(R^{8a}) = C(R^{8b})$ 或 S , 前提条件是 $C(R^{8a}) = C(R^{8b})$ 部分定向, 使得与 R^{8b} 键合的碳原子如式 1 中的 R^3 那样连接。

[0182] 实施方案 33 : 实施方案 32d 中的化合物, 其中 Z 为 CH = CH 或 CH = CF, 前提条件是 CH = CF 部分定向, 使得与 F 键合的碳原子如式 1 中的 R³ 那样连接。

[0183] 实施方案 34 : 实施方案 32d 中的化合物, 其中 Z 为 S。

[0184] 实施方案 35 : 式 1 或实施方案 1-34 中任一项的化合物, 其中每个 R⁵ 独立地为 H 或 C₁-C₄ 烷基。

[0185] 实施方案 36 : 实施方案 35 中的化合物, 其中每个 R⁵ 独立地为 H 或甲基。

[0186] 实施方案 37 : 式 1 或实施方案 1-36 中任一项的化合物, 其中 R⁶ 为 H。

[0187] 实施方案 38 : 式 1 或实施方案 1-37 中任一项的化合物, 其中 Q 为 Q-1、Q-5、Q-6 或 Q-9。

[0188] 实施方案 39 : 实施方案 38 中的化合物, 其中 Q 为 Q-1、Q-5 或 Q-9。

[0189] 实施方案 40 : 实施方案 38 中的化合物, 其中 Q 为 Q-1。

[0190] 实施方案 41 : 实施方案 38 中的化合物, 其中 Q 为 Q-5。

[0191] 实施方案 42 : 实施方案 38 中的化合物, 其中 Q 为 Q-6。

[0192] 实施方案 43 : 实施方案 38 中的化合物, 其中 Q 为 Q-9。

[0193] 实施方案 44 : 实施方案 38、39、41 或 43 中任一项的化合物, 其中 Z¹ 为 O。

[0194] 实施方案 45 : 实施方案 38、39、41 或 43 中任一项的化合物, 其中 Z¹ 为 S。

[0195] 实施方案 46 : 实施方案 38、39、41 或 43 中任一项的化合物, 其中 Z¹ 为 NR¹⁴。

[0196] 实施方案 47 : 式 1 或实施方案 1-46 中任一项的化合物, 其中每个 R^{9a} 独立地为 H、卤素、氰基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、SF₅ 或 S(O)_nR¹²; 或 C₃-C₆ 环烷基或 C₄-C₇ 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基选自卤素、C₁-C₂ 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF₃。

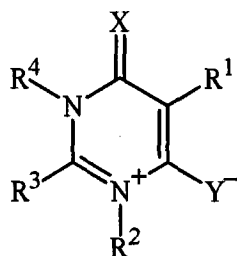
[0197] 实施方案 48 : 实施方案 47 中的化合物, 其中每个 R^{9a} 独立地为 H、卤素、氰基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、SF₅ 或 S(O)_nR¹²。

[0198] 实施方案 49 : 实施方案 47 中的化合物, 其中每个 R^{9a} 独立地为 C₃-C₆ 环烷基或 C₄-C₇ 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基选自卤素、C₁-C₂ 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF₃。

[0199] 实施方案 50 : 式 1 或实施方案 1-49 中任一项的化合物, 其中每个 R^{9b} 独立地为 H、卤素、氰基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₁-C₄ 烷氧基或 C₁-C₄ 卤代烷氧基。

[0200] 实施方案 51 : 式 1r 化合物

[0201]



1r

[0202] 其中

[0203] X 为 O 或 S;

[0204] Y 为 O 或 S ;

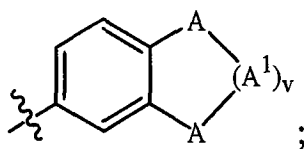
[0205] R^1 为 H、卤素、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

[0206] R^1 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0207] R^1 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;或者

[0208] R^1 为

[0209]



[0210] 每个 A 独立地为 $C(R^{16})_2$ 、O、S、或 NR^{15} ;

[0211] 每个 A^1 独立地为 $C(R^{17})_2$;

[0212] R^2 为 C_2-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基、 C_3-C_6 卤代烯基、 C_3-C_6 炔基、 C_3-C_6 卤代炔基或 C_2-C_6 烷氧基烷基 ;或者

[0213] R^2 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0214] R^2 为 CR^5R^6Q ;

[0215] R^3 为 H、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

[0216] R^3 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0217] R^3 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;

[0218] R^4 为 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

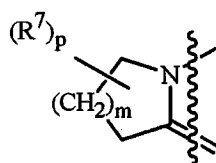
[0219] R^4 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0220] R^4 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;

氨基 ;或者

[0221] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-1

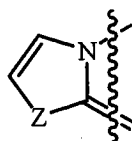
[0222]



R-1

[0223] 或环 R-2

[0224]



R-2 ;

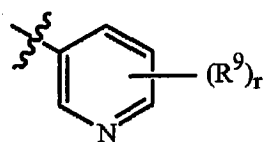
[0225] Z 为 $C(R^8) = C(R^8)$ 或 S ;

[0226] R^5 为 H、F、Cl、氰基或 C_1 - C_4 烷基 ;

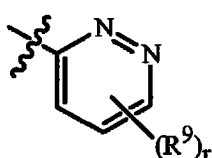
[0227] R^6 为 H、F、Cl 或 CH_3 ;

[0228] Q 为

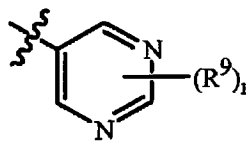
[0229]



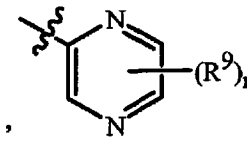
Q-1a



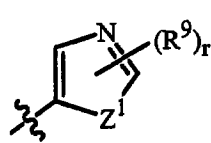
Q-2a



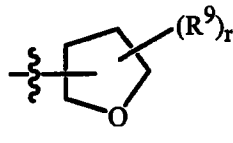
Q-3a



Q-4a

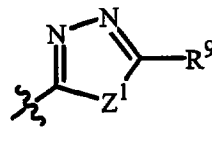


Q-5a



Q-6a

或者



Q-8a

[0230] Z^I 为 O、S 或 NR^{14} ;

[0231] R^7 为 H、卤素、氰基、 CF_3 、 C_1 - C_3 烷基或 C_3 - C_6 环烷基 ;

[0232] 每个 R^8 独立地为 H 或 F ;

[0233] 每个 R^9 独立地为 H、卤素、氰基、硝基、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 卤代烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_2 - C_4 卤代炔基、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷氧基羰基、 $C(O)NH_2$ 、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 卤代二烷基氨基羰基或 $S(O)_nR^{12}$;或者

[0234] 每个 R^9 独立地为 C_3 - C_6 环烷基或 C_4 - C_7 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取

代,所述取代基选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0235] 每个 R^9 独立地为苯基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基;

[0236] 每个 R^{10} 独立地为 $Si(R^{11})_3$;或任选被卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基或 C_2-C_6 二烷基氨基取代的苯基;

[0237] 每个 R^{11} 独立地为 C_1-C_4 烷基;

[0238] 每个 R^{12} 独立地为 C_1-C_4 烷基或 C_1-C_4 卤代烷基;

[0239] R^{14} 为 C_1-C_4 烷基;

[0240] 每个 R^{15} 独立地为 C_1-C_4 烷基;

[0241] 每个 R^{16} 独立地为 H 或 C_1-C_4 烷基;

[0242] 每个 R^{17} 独立地为 H 或 F;

[0243] m 为 1、2 或 3;

[0244] 每个 n 独立地为 0、1 或 2;

[0245] p 为 0、1、2、3 或 4;

[0246] 每个 r 独立地为 0、1 或 2;并且

[0247] v 为 1 或 2;

[0248] 前提条件是:(a) 当 R^2 为 $CH_2CH=CH_2$, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 $CH=CH$, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^1 不是 H、 $CH(CH_3)_2$ 、 $CH_2CH_2CH_2CH_3$ 、 $CH_2CH=CH_2$ 或未取代的苯基;(b) 当 R^1 为 H, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 $CH=CH$, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 $CH_2CH=CH_2$ 或 $CH_2C\equiv CH$;(c) 当 R^1 为 CH_2CH_3 , R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 $CH=CH$, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 $CH_2(CH_2)_3CH_3$;(d) 当 R^3 为 H, R^2 和 R^4 均为环己基, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^1 不是 CH_3 ;(e) 当 R^1 为 H 或 C_1-C_3n - 烷基, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 C_1-C_6 烷基或 C_3-C_4 烷氧基烷基;(f) 当 R^2 为环丙基甲基, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^1 不是 CH_3 、 CH_2CH_3 或 $CH_2CH_2CH_3$;(g) 当 R^1 为未取代的苯基, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 C_3-C_4 烷氧基烷基;以及 (h) 当 R^1 为 Br, R^3 和 R^4 合在一起形成环 R-2, Z 为 S, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 CH_2CH_3 。

[0249] 实施方案 52:实施方案 51 中的化合物,其中 X 为 0。

[0250] 实施方案 53:实施方案 51 中的化合物,其中 Y 为 0。

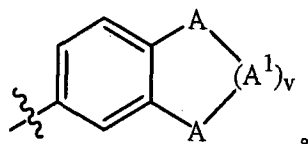
[0251] 实施方案 54:实施方案 51 中的化合物,其中 R^1 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基。

[0252] 实施方案 55 : 实施方案 54 中的化合物, 其中 R^1 为任选被 1 或 2 个取代基取代的苯基, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_2 卤代烷基、 C_1-C_2 烷氧基和 C_1-C_2 卤代烷氧基。

[0253] 实施方案 56 : 实施方案 54 中的化合物, 其中 R^1 为任选被卤素、氰基、 C_1-C_2 卤代烷基、 C_1-C_2 烷氧基或 C_1-C_2 卤代烷氧基取代的 2-、3- 或 4- 吡啶基。

[0254] 实施方案 57 : 式 1r 的化合物, 其中 R^1 为

[0255]



[0256] 实施方案 58 : 实施方案 51 中的化合物, 其中 R^2 为 C_2-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基或 C_3-C_6 卤代烯基。

[0257] 实施方案 59 : 实施方案 51 中的化合物, 其中 R^2 为 CH_2CF_3 或 CR^5R^6Q 。

[0258] 实施方案 60 : 实施方案 59 中的化合物, 其中 R^2 为 CR^5R^6Q 。

[0259] 实施方案 61 : 实施方案 59 中的化合物, 其中 R^2 为 CH_2CF_3 。

[0260] 实施方案 62 : 实施方案 51 或实施方案 60 中的化合物, 其中 R^5 为 H 或 CH_3 。

[0261] 实施方案 63 : 实施方案 51 或实施方案 60 中的化合物, 其中 R^6 为 H。

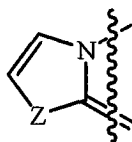
[0262] 实施方案 64 : 实施方案 51 中的化合物, 其中 Q 为 Q-1a、Q-2a、Q-3a、Q-4a 或 Q-5a。

[0263] 实施方案 65 : 实施方案 64 中的化合物, 其中 Q 为 Q-1a 或 Q-5a。

[0264] 实施方案 66 : 实施方案 51 中的化合物, 其中 R^9 为 F 或 Cl。

[0265] 实施方案 67 : 实施方案 51 中的化合物, 其中 R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成环 R-2

[0266]



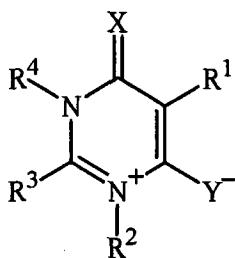
R-2。

[0267] 实施方案 68 : 实施方案 51 或实施方案 67 中的化合物, 其中 Z 为 $CH=CH$ 。

[0268] 实施方案 69 : 实施方案 51 或实施方案 67 中的化合物, 其中 Z 为 S。

[0269] 实施方案 70 : 式 1s 化合物

[0270]



1s

[0271] 其中

[0272] X 为 O 或 S ;

[0273] Y 为 O 或 S ;

[0274] R^1 为 H、卤素、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

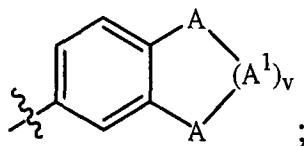
[0275] R^1 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0276] R^1 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、

[0277] C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;或者

[0278] R^1 为

[0279]



[0280] 每个 A 独立地为 $C(R^{16})_2$ 、O、S、或 NR^{15} ;

[0281] 每个 A^1 独立地为 $C(R^{17})_2$;

[0282] R^2 为 C_2-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基、 C_3-C_6 卤代烯基、 C_3-C_6 炔基、 C_3-C_6 卤代炔基或 C_2-C_6 烷氧基烷基 ;或者

[0283] R^2 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0284] R^2 为 CR^5R^6Q ;

[0285] R^3 为 H、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

[0286] R^3 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0287] R^3 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基 ;

[0288] R^4 为 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$;或者

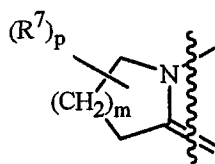
[0289] R^4 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基,每个任选被 1 至 4 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;或者

[0290] R^4 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 或 2 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、

C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、C₁-C₄ 烷基氨基和 C₂-C₆ 二烷基氨基；或者

[0291] R³ 和 R⁴ 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-1

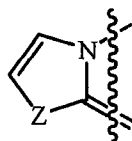
[0292]



R-1

[0293] 或任选被取代的芳环 R-2

[0294]



R-2 ;

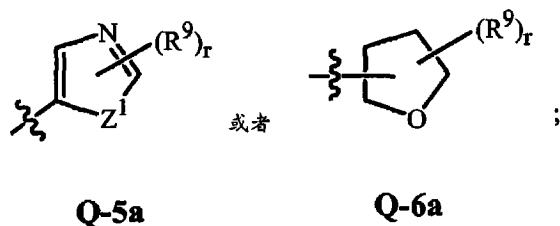
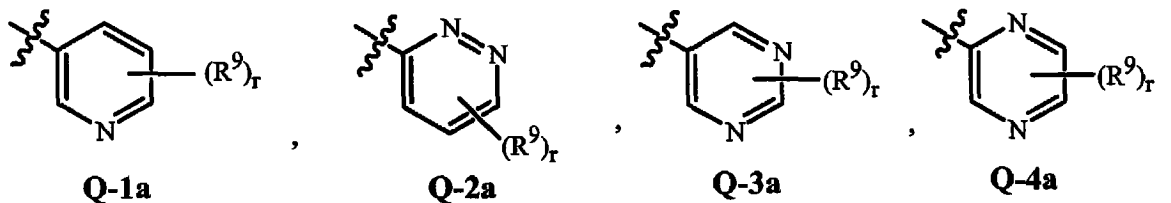
[0295] Z 为 C(R⁸) = C(R⁸) ;

[0296] R⁵ 为 H、F、Cl、氰基或 C₁-C₄ 烷基 ;

[0297] R⁶ 为 H、F、Cl 和 CH₃ ;

[0298] Q 为

[0299]



[0300] Z¹ 为 O、S 或 NR¹⁴ ;

[0301] R⁷ 为 H、卤素、氰基、CF₃、C₁-C₃ 烷基或 C₃-C₆ 环烷基 ;

[0302] 每个 R⁸ 独立地为 H 或 F ;

[0303] 每个 R⁹ 独立地为 H、卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 卤代烯基、C₂-C₄ 炔基、C₂-C₄ 卤代炔基、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 卤代烷氧基羰基、C(O)NH₂、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基氨基羰基、C₃-C₇ 卤代二烷基氨基羰基或 S(O)_nR¹² ;或者

[0304] 每个 R⁹ 独立地为 C₃-C₆ 环烷基或 C₄-C₇ 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取

代,所述取代基选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;

[0305] 每个 R^{10} 独立地为 $Si(R^{11})_3$;或任选被卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基取代的苯基;

[0306] 每个 R^{11} 独立地为 C_1-C_4 烷基;

[0307] 每个 R^{12} 独立地为 C_1-C_4 烷基或 C_1-C_4 卤代烷基;

[0308] R^{14} 为 C_1-C_4 烷基;

[0309] 每个 R^{15} 独立地为 C_1-C_4 烷基;

[0310] 每个 R^{16} 独立地为 H 或 C_1-C_4 烷基;

[0311] 每个 R^{17} 独立地为 H 或 F;

[0312] m 为 1、2 或 3;

[0313] 每个 n 独立地为 0、1 或 2;

[0314] p 为 0、1、2、3 或 4;

[0315] 每个 r 独立地为 0、1 或 2;并且

[0316] v 为 1 或 2;

[0317] 前提条件是:(a) 当 R^2 为 $CH_2CH=CH_2$, R^3 和 R^4 合在一起形成碳环 R-2, Z 为 $CH=CH$, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^1 不是 H、 $CH(CH_3)_2$ 、 $CH_2CH_2CH_2CH_3$ 、 $CH_2CH=CH_2$ 或未取代的苯基;
(b) 当 R^1 为 H, R^3 和 R^4 合在一起形成碳环 R-2, Z 为 $CH=CH$, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 $CH_2CH=CH_2$ 或 $CH_2C\equiv CH$;
(c) 当 R^1 为 CH_2CH_3 , R^3 和 R^4 合在一起形成碳环 R-2, Z 为 $CH=CH$, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^2 不是 $CH_2(CH_2)_3CH_3$;以及 (d) 当 R^3 为 H, R^2 和 R^4 均为环己基, X 为 0 并且 Y 为 0 时,则 R^1 不是 CH_3 。

[0318] 实施方案 71:实施方案 70 中的化合物,其中 X 为 0。

[0319] 实施方案 72:实施方案 70 中的化合物,其中 Y 为 0。

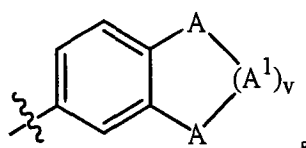
[0320] 实施方案 73:实施方案 70 中的化合物,其中 R^1 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基和 C_2-C_6 二烷基氨基。

[0321] 实施方案 74:实施方案 73 中的化合物,其中 R^1 为任选被 1 或 2 个取代基取代的苯基,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_2 卤代烷基、 C_1-C_2 烷氧基和 C_1-C_2 卤代烷氧基。

[0322] 实施方案 75:实施方案 73 中的化合物,其中 R^1 为任选被卤素、氰基、 C_1-C_2 卤代烷基、 C_1-C_2 烷氧基和 C_1-C_2 卤代烷氧基取代的 2-、3- 或 4- 吡啶基。

[0323] 实施方案 76:实施方案 70 中的化合物,其中 R^1 为

[0324]



[0325] 实施方案 77:式 1s 的化合物,其中 R^2 为 C_2-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基或

C₃-C₆ 卤代烯基。

[0326] 实施方案 78 : 实施方案 70 中的化合物, 其中 R² 为 CH₂CF₃ 或 CR⁵R⁶Q。

[0327] 实施方案 79 : 实施方案 78 中的化合物, 其中 R² 为 CR⁵R⁶Q。

[0328] 实施方案 80 : 实施方案 78 中的化合物, 其中 R² 为 CH₂CF₃。

[0329] 实施方案 81 : 实施方案 70 或实施方案 79 中的化合物, 其中 R⁵ 为 H 或 CH₃。

[0330] 实施方案 82 : 实施方案 70 或实施方案 79 中的化合物, 其中 R⁶ 为 H。

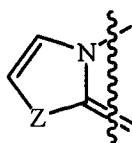
[0331] 实施方案 83 : 实施方案 70 中的化合物, 其中 Q 为 Q-1a、Q-2a、Q-3a、Q-4a 或 Q-5a。

[0332] 实施方案 84 : 实施方案 83 中的化合物, 其中 Q 为 Q-1a 或 Q-5a。

[0333] 实施方案 85 : 实施方案 70 中的化合物, 其中 R⁹ 为 F 或 Cl。

[0334] 实施方案 86 : 实施方案 70 中的化合物, 其中 R³ 和 R⁴ 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的芳环 R-2

[0335]



R-2。

[0336] 实施方案 87 : 实施方案 70 或实施方案 86 中的化合物, 其中 Z 为 CH = CH。

[0337] 值得注意的是式 1、式 1r 和式 1s 的化合物或实施方案 1-87 中任一项的化合物 (其中 X 和 Y 为 0), 包含所述化合物的组合物, 以及它用于控制无脊椎害虫的用途。

[0338] 包括上述实施方案 1-87 以及本文所述的任何其他实施方案在内的本发明实施方案可以任何方式组合, 并且实施方案中的变量描述不仅涉及式 1、式 1r 和式 1s 的化合物, 而且还涉及可用于制备式 1、式 1r 和式 1s 的化合物的起始化合物和中间体化合物。此外, 本发明的实施方案, 包括以上的实施方案 1-87 以及本文所述的任何其他实施方案, 以及它们的任何组合, 适用于本发明的组合物和方法。

[0339] 实施方案 1-50 的组合可由以下示出:

[0340] 实施方案 A : 式 1 的化合物, 其中

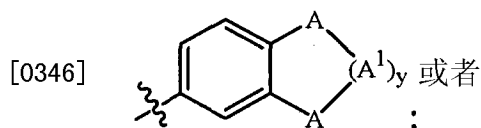
[0341] X 为 0;

[0342] Y 为 0;

[0343] R¹ 为 H 或卤素; 或者

[0344] R¹ 为苯基或 6 元杂芳环, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、C₁-C₄ 烷基、C₂-C₄ 烯基、C₂-C₄ 炔基、C₁-C₄ 卤代烷基、C₂-C₄ 卤代烯基、C₂-C₄ 烷基羰基、C₂-C₄ 卤代烷基羰基、C₂-C₄ 烷氧基羰基、C₂-C₄ 烷基氨基羰基、C₃-C₇ 二烷基氨基羰基、**C(O)N(CH₂Z²CH₂)₂**、C₁-C₄ 烷氧基、C₁-C₄ 卤代烷氧基、C₂-C₆ 烷氧基烷基、S(O)_nR¹²、S(O)₂R¹³、C₁-C₄ 烷基氨基、C₂-C₆ 二烷基氨基、SF₅、Si(CH₃)₃、CHO、羟基、OC(O)R¹⁹ 和 N(R²⁰)C(O)R¹⁹; 或者

[0345] R¹ 为



[0347] R^1 为 $C(X^1)R^{18}$ 或 $C(=NOR^{23})R^{18}$; 或者

[0348] R^1 为在碳环成员上被至多 3 个取代基取代并且任选在氮环成员上被甲基取代的 8 元至 10 元杂芳族二环环系, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)$ 、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基、 C_2-C_6 二烷基氨基、 $Si(CH_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$; 或者

[0349] R^1 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环, 每个被 GQ^1 取代, 每个任选被 1 个 Q^2 取代, 并且每个任选被 1 或 2 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)$ 、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基、 C_2-C_6 二烷基氨基、 $Si(CH_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$;

[0350] G 为直接键;

[0351] Q^1 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1-C_4 烷基、 C_2-C_4 烯基、 C_2-C_4 炔基、 C_1-C_4 卤代烷基、 C_2-C_4 烷基羰基、 C_2-C_4 卤代烷基羰基、 C_2-C_4 烷氧基羰基、 C_2-C_4 烷基氨基羰基、 C_3-C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)$ 、 C_1-C_4 烷氧基、 C_1-C_4 卤代烷氧基、 C_2-C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1-C_4 烷基氨基、 C_2-C_6 二烷基氨基、 SF_5 、 $Si(CH_3)_3$ 、 CHO 、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$;

[0352] R^2 为 C_2-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 $CH_2CO_2R^{21}$ 、 $CR^5R^6CH_2OR^{21}$ 、 $CR^5R^6CH_2CH_2OR^{21}$ 、 $CR^5R^6CH_2S(O)_nR^{21}$ 或 $CR^5R^6CH_2CH_2S(O)_nR^{21}$; 或者

[0353] R^2 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ; 或者

[0354] R^2 为 CR^5R^6Q ;

[0355] R^3 为 H 、 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$; 或者

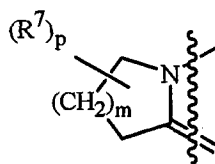
[0356] R^3 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ;

[0357] R^4 为 C_1-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_2-C_6 烯基、 C_2-C_6 卤代烯基、 C_2-C_6 炔基、 C_2-C_6 卤代炔基或 $C \equiv CR^{10}$; 或者

[0358] R^4 为 C_3-C_6 环烷基或 C_4-C_7 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、 C_1-C_2 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ; 或者

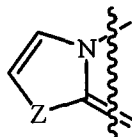
[0359] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 $R-1$

[0360]

**R-1**

[0361] 或环 R-2

[0362]

**R-2** ;

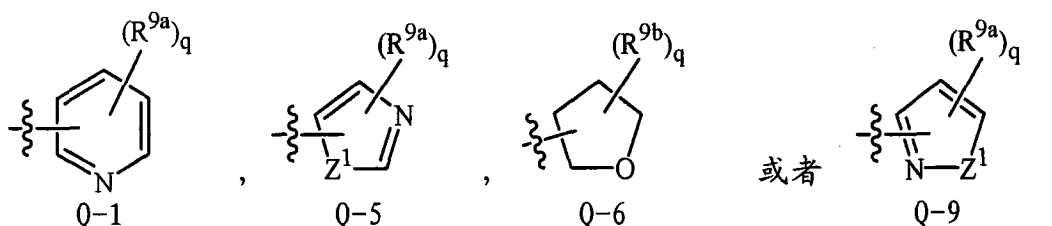
[0363] Z 为 $C(R^{8a})=C(R^{8b})$ 或 S, 前提条件是 $C(R^{8a})=C(R^{8b})$ 部分定向, 使得与 R^{8b} 键合的碳原子如式 1 中的 R^3 那样连接;

[0364] 每个 R^5 独立地为 H、F、Cl、氰基或 C_1-C_4 烷基;

[0365] 每个 R^6 独立地为 H、F、Cl 或 CH_3 ; 并且

[0366] Q 为

[0367]



[0368] 实施方案 B: 实施方案 A 中的化合物, 其中

[0369] X 为 0; 并且

[0370] Y 为 0。

[0371] 实施方案 C: 实施方案 B 中的化合物, 其中

[0372] R^3 为 C_1-C_6 烷基或 C_1-C_6 卤代烷基; 并且

[0373] R^4 为 C_1-C_6 烷基或 C_1-C_6 卤代烷基。

[0374] 实施方案 D: 实施方案 C 中的化合物, 其中

[0375] R^3 为 CH_3 ; 并且

[0376] R^4 为 CH_3 。

[0377] 实施方案 E: 实施方案 B 中的化合物, 其中

[0378] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-1;

[0379] m 为 2 或 3; 并且

[0380] p 为 0。

[0381] 实施方案 F: 实施方案 B 中的化合物, 其中

[0382] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-2; 并且

[0383] Z 为 $CH=CH$ 或 $CH=CF$, 前提条件是 $CH=CF$ 部分定向, 使得与 F 键合的碳原子

如式 1 中的 R^3 那样连接。

[0384] 实施方案 G: 实施方案 B 中的化合物, 其中

[0385] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的环 R-2; 并且

[0386] Z 为 S。

[0387] 实施方案 H: 实施方案 C-G 中任一项的化合物, 其中

[0388] R^1 为 H 或卤素。

[0389] 实施方案 I: 实施方案 C-G 中任一项的化合物, 其中

[0390] R^1 为苯基或吡啶基, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1 - C_4 烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 卤代烯基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)-$ 、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1 - C_4 烷基氨基、 C_2 - C_6 二烷基氨基、 SF_5 、 $Si(CH_3)_3$ 、CHO、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$ 。

[0391] 实施方案 J: 实施方案 I 中的化合物, 其中

[0392] R^1 为苯基或吡啶基, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)-$ 、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$ 。

[0393] 实施方案 K: 实施方案 C-G 中任一项的化合物, 其中

[0394] R^1 为 $C(X^1)R^{18}$ 或 $C(=NOR^{23})R^{18}$; 并且

[0395] X^1 为 O。

[0396] 实施方案 L: 实施方案 C-G 中任一项的化合物, 其中

[0397] R^1 为苯基或吡啶基, 每个被 GQ^1 取代, 并且还任选被 1 或 2 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 SF_5 、 C_1 - C_4 烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)-$ 、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 、 $S(O)_2R^{13}$ 、 C_1 - C_4 烷基氨基、 C_2 - C_6 二烷基氨基、 $Si(CH_3)_3$ 、CHO、羟基、 $OC(O)R^{19}$ 和 $N(R^{20})C(O)R^{19}$ 。

[0398] 实施方案 M: 实施方案 L 中的化合物, 其中

[0399] R^1 为苯基或吡啶基, 每个被 GQ^1 取代, 并且还任选被 1 或 2 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、 SF_5 、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)-$ 、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$; 并且

[0400] Q^1 为苯基或吡啶基, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1 - C_4 烷基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 $C(O)N(CH_2Z^2CH_2)-$ 、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_nR^{12}$ 和 $S(O)_2R^{13}$ 。

[0401] 实施方案 N: 实施方案 C-G 中任一项的化合物, 其中

[0402] R^2 为 C_2 - C_6 烷基、 C_1 - C_6 卤代烷基或 $CR^5R^6CH_2OR^{21}$; 或者

[0403] R^2 为任选被 1 至 4 个取代基取代的 C_4 - C_7 环烷基烷基, 所述取代基选自卤素、 C_1 - C_2

烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 。

[0404] 实施方案 O : 实施方案 C-G 中任一项的化合物, 其中

[0405] R^2 为 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{Q}$ 。

[0406] 实施方案 P : 实施方案 O 中的化合物, 其中

[0407] Q 为 Q-1、Q-5、Q-6 或 Q-9 ;

[0408] R^5 为 H 或甲基 ;

[0409] R^6 为 H ;

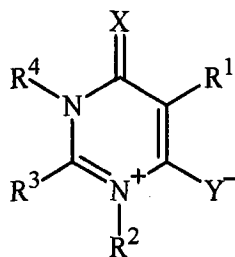
[0410] 每个 R^{9a} 独立地为 H、卤素、氰基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基、 SF_5 或 $\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{12}$; 或 $\text{C}_3\text{-C}_6$ 环烷基或 $\text{C}_4\text{-C}_7$ 环烷基烷基, 每个任选被 1 至 4 个取代基取代, 所述取代基选自卤素、 $\text{C}_1\text{-C}_2$ 烷基、1 个环丙基和 1 个 CF_3 ; 并且

[0411] 每个 R^{9b} 独立地为 H、卤素、氰基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基或 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基。

[0412] 实施方案 51-69 的组合可由以下示出 :

[0413] 实施方案 A1 : 式 1r 的化合物

[0414]



1r

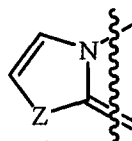
[0415] 其中

[0416] X 为 O ;

[0417] Y 为 O ; 并且

[0418] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成环 R-2

[0419]



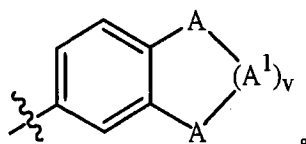
R-2。

[0420] 实施方案 B1 : 实施方案 A1 中的化合物, 其中

[0421] R^1 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环, 每个任选被 1 至 3 个取代基取代, 所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烯基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 炔基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 卤代烷基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷氧基羰基、 $\text{C}_2\text{-C}_4$ 烷基氨基羰基、 $\text{C}_3\text{-C}_7$ 二烷基氨基羰基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷氧基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 卤代烷氧基、 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 烷氧基烷基、 $\text{S}(\text{O})_n\text{R}^{12}$ 、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ 烷基氨基和 $\text{C}_2\text{-C}_6$ 二烷基氨基 ; 或者

[0422] R^1 为

[0423]



[0424] 实施方案 C1 :实施方案 B1 中的化合物,其中

[0425] R^2 为 C_2-C_6 烷基、 C_1-C_6 卤代烷基、 C_3-C_6 烯基或 C_3-C_6 卤代烯基 ;或者[0426] R^2 为 CR^5R^6Q ;并且[0427] Q 为 Q-1a、Q-2a、Q-3a、Q-4a 或 Q-5a。

[0428] 实施方案 D1 :实施方案 C1 中的化合物,其中

[0429] Z 为 $CH=CH$;[0430] R^1 为任选被 1 或 2 个取代基取代的苯基,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_2 卤代烷基、 C_1-C_2 烷氧基和 C_1-C_2 卤代烷氧基 ;[0431] R^2 为 CH_2CF_3 或 CR^5R^6Q ;[0432] R^5 为 H 或 CH_3 ;[0433] Q 为 Q-1a 或 Q-5a ;[0434] R^6 为 H ;[0435] R^9 为 F 或 Cl ;并且[0436] r 为 1。

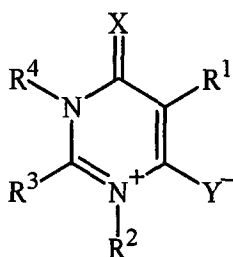
[0437] 实施方案 E1 :实施方案 C1 中的化合物,其中

[0438] Z 为 S ;[0439] R^1 为任选被 1 或 2 个取代基取代的苯基,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1-C_2 卤代烷基、 C_1-C_2 烷氧基和 C_1-C_2 卤代烷氧基 ;[0440] R^2 为 CH_2CF_3 或 CR^5R^6Q ;[0441] R^5 为 H 或 CH_3 ;[0442] Q 为 Q-1a 或 Q-5a ;[0443] R^6 为 H ;[0444] R^9 为 F 或 Cl ;并且[0445] r 为 1。

[0446] 实施方案 70-87 的组合可由以下示出 :

[0447] 实施方案 A2. 式 1s 的化合物

[0448]

**1s**

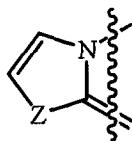
[0449] 其中

[0450] X 为 0 ;

[0451] Y 为 0 ;并且

[0452] R^3 和 R^4 与邻接的所述连接氮和碳原子合在一起形成任选被取代的芳环 R-2

[0453]



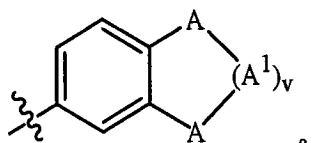
R-2。

[0454] 实施方案 B2 :实施方案 A2 中的化合物,其中

[0455] R^1 为苯基、萘基或 5 元或 6 元杂芳环,每个任选被 1 至 3 个取代基取代,所述取代基独立地选自卤素、氰基、硝基、 C_1 - C_4 烷基、 C_2 - C_4 烯基、 C_2 - C_4 炔基、 C_1 - C_4 卤代烷基、 C_2 - C_4 烷基羰基、 C_2 - C_4 卤代烷基羰基、 C_2 - C_4 烷氧基羰基、 C_2 - C_4 烷基氨基羰基、 C_3 - C_7 二烷基氨基羰基、 C_1 - C_4 烷氧基、 C_1 - C_4 卤代烷氧基、 C_2 - C_6 烷氧基烷基、 $S(O)_n R^{12}$ 、 C_1 - C_4 烷基氨基和 C_2 - C_6 二烷基氨基 ;或者

[0456] R^1 为

[0457]



[0458] 实施方案 C2 :实施方案 B2 中的化合物,其中

[0459] R^2 为 C_2 - C_6 烷基、 C_1 - C_6 卤代烷基、 C_3 - C_6 烯基或 C_3 - C_6 卤代烯基 ;或者

[0460] R^2 为 $CR^5 R^6 Q$;并且

[0461] Q 为 Q-1a、Q-2a、Q-3a、Q-4a 或 Q-5a。

[0462] 实施方案 D2 :实施方案 C2 中的化合物,其中

[0463] Z 为 $CH=CH$;

[0464] R^1 为任选被 1 或 2 个取代基取代的苯基,所述取代基独立地选自卤素、氰基、 C_1 - C_2 卤代烷基、 C_1 - C_2 烷氧基和 C_1 - C_2 卤代烷氧基 ;

[0465] R^2 为 CH_2CF_3 或 $CR^5 R^6 Q$;

[0466] R^5 为 H 或 CH_3 ;

[0467] Q 为 Q-1a 或 Q-5a ;

[0468] R^6 为 H ;

[0469] R^9 为 F 或 Cl ;并且

[0470] r 为 1。

[0471] 具体的实施方案包括式 1 的化合物,所述式 1 的化合物选自 :

[0472] 3-(2,4-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 鎓内盐 ;

[0473] 3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 鎓内盐 ;

[0474] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(2,4-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0475] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0476] 3-(3-氯苯基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0477] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0478] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲氧基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0479] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0480] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-苯基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0481] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2,4-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0482] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-(4-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0483] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-(3-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0484] 1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0485] 3-(3-溴苯基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0486] 3-(3-溴苯基)-1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0487] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲氧基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0488] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[4-(三氟甲基)-2-吡啶基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0489] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2-氰基苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0490] 8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-苯基-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0491] 8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-6-(4-氟苯基)-7-羟基-5-氧代-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0492] 8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-[3-(三氟甲氧基)苯基]-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0493] 8-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-苯基-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0494] 8-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-6-(4-氟苯基)-7-羟基-5-氧代-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0495] 8-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-7-羟基-5-氧代-6-[3-(三氟甲氧基)苯基]-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0496] 3-[3-(6-氯-3-吡啶基)苯基]-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0497] 1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲氧基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0498] 3-(5-氯-2-氟苯基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0499] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[2-氯-5-(三氟甲氧基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0500] 3-(4-氟苯基)-2-羟基-1-[(1-甲基-1H-吡唑-4-基)甲基]-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0501] 2-羟基-1-[(1-甲基-1H-吡唑-4-基)甲基]-4-氧代-3-苯基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0502] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(3,5-二甲氧基苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0503] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲氧基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0504] 3-(2-氯-4-吡啶基)-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0505] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2-氟-5-溴苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0506] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-(2,4,5-三氟苯基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0507] 3-[3-溴-5-(三氟甲氧基)苯基]-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0508] 3-[3-溴-5-(三氟甲基)苯基]-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0509] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0510] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-(2-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0511] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(2-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0512] 8-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-6-(2-氟苯基)-7-羟基-5-氧代-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0513] 2-羟基-4-氧代-3-苯基-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0514] 3-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-5-(4-氟苯基)-3,6-二氢-4-羟基-1,2-二甲基-6-氧代嘧啶 铕内盐；

[0515] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-[3-(6-氟-3-吡啶基)-5-(三氟甲基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0516] 1-[1-(6-氯-3-吡啶基)乙基]-3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0517] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-3-(乙氧基羰基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0518] 3-苯甲酰基-1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0519] 3-(2,4-二氟苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0520] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-3-(3-甲氧基苯基)-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0521] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(2,3-二氟苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0522] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-(2-氟-3-甲氧基苯基)-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0523] 3-(3,5-二甲氧基苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0524] 1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(三氟甲基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0525] 3-(4-氟苯基)-2-羟基-1-[(2-甲基-5-噻唑基)甲基]-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0526] 2-羟基-4-氧代-3-苯基-1-[(5-噻唑基)甲基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0527] 3-(4-氟苯基)-2-羟基-4-氧代-1-[(5-噻唑基)甲基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铕内盐；

[0528] 3-(2-氟苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0529] 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-[2-氯-5-(三氟甲基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0530] 3-(2-氟-4-氰基苯基)-1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；

[0531] 1-[(6-氟-3-吡啶基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐；和

[0532] 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-[3-(6-三氟甲基-3-吡啶基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶 铰内盐。

[0533] 值得注意的是，本发明的化合物的特征在于有利的新陈代谢和/或土壤残留模式，并且表现出对农业和非农业无脊椎害虫的广谱控制活性。

[0534] 尤其值得注意的是，由于对无脊椎害虫的广谱控制性和经济重要性，因此通过控制无脊椎害虫来保护农作物免受无脊椎害虫损害或损伤是本发明的实施方案。由于本发明的化合物在植株内有利的转移特性或体系性，因此它们也同样保护未与式 1 的化合物或包含所述化合物的组合物直接接触的叶片或其他植株部分。

[0535] 作为本发明的实施方案，还值得注意的是组合物，所述组合物包含任何前述实施方案以及本文所述任何其他实施方案中的化合物以及它们的任何组合，和至少一种附加组分，所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂，所述组合物任选还包含至少一种附加的生物活性化合物或试剂。

[0536] 作为本发明的实施方案，还值得注意的是用于控制无脊椎害虫的组合物，所述组合物包含生物学有效量的任何前述实施方案以及本文所述任何其他实施方案中的化合物以及它们的任何组合，和至少一种选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂的附加组分，所述组合物任选还包含生物学有效量的至少一种附加的生物活性化合物或试剂。

[0537] 本发明的实施方案还包括用于保护动物的组合物，所述组合物包含任一项前述实施方案中的化合物（即为杀寄生物有效量）和载体。

[0538] 本发明的实施方案还包括控制无脊椎害虫的方法，所述方法包括使无脊椎害虫或其环境接触生物学有效量的任何前述实施方案中的化合物（例如作为本文所述的组合物）。尤其值得注意的是用于保护动物的方法，所述方法包括向动物施用杀寄生物有效量的前述任何实施方案中的化合物（例如为本文所述的组合物）。

[0539] 本发明的实施方案还包括为浸壤液体制剂形式的包含前述任何实施方案中化合物的组合物。本发明的实施方案还包括控制无脊椎害虫的方法，所述方法包括使土壤接触包含生物学有效量的任何前述实施方案中化合物的作为土壤浸液的液体组合物。

[0540] 本发明的实施方案还包括用于控制无脊椎害虫的喷剂组合物，所述组合物包含生物学有效量的任何前述实施方案中的化合物和推进剂。本发明的实施方案还包括用于控制无脊椎害虫的饵料组合物，所述组合物包含生物学有效量的任何前述实施方案中的化合物、一种或多种食物物料、任选的诱虫剂和任选的湿润剂。本发明的实施方案还包括用于控制无脊椎害虫的装置，所述装置包括所述饵料组合物和适于容纳所述饵料组合物的外罩，

其中所述外罩具有至少一个开口,所述开口的尺寸能够使无脊椎害虫通过,以使无脊椎害虫能够从位于外罩外部的位罝触及所述饵料组合物,并且其中所述外罩还适于放置在潜在或已知的无脊椎害虫活动场所之中或附近。

[0541] 本发明的实施方案还包括保护种子免受无脊椎害虫侵害的方法,所述方法包括使种子接触生物学有效量的前述任何实施方案中的化合物(例如为本文所述的组合物)。

[0542] 本发明的实施方案还包括用于保护动物免受无脊椎寄生害虫侵害的方法,所述方法包括向所述动物施用杀寄生物有效量的任何前述实施方案中的化合物。

[0543] 本发明的实施方案还包括用于控制无脊椎害虫的方法,所述方法包括使无脊椎害虫或其环境与生物学有效量的式 1 的化合物、其 N-氧化物或盐(例如本文所述的组合物)接触,前提条件是所述方法不是通过治疗对人或动物躯体进行药物处理的方法。

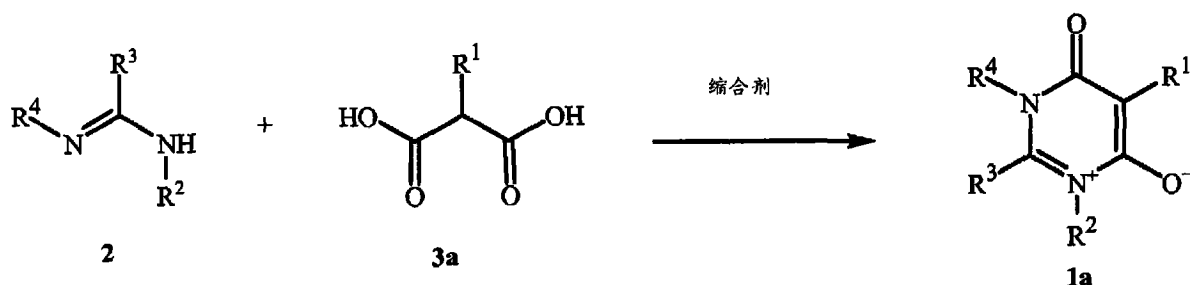
[0544] 本发明还涉及此类方法,其中使所述无脊椎寄生害虫或其环境接触一种组合物,所述组合物包含生物学有效量的式 1 的化合物、其 N-氧化物或盐,以及至少一种附加组分,所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂,所述组合物还任选包含生物学有效量的至少一种附加生物活性化合物或试剂,前提条件是所述方法不是通过治疗对人或动物躯体进行药物处理的方法。

[0545] 可使用一种或多种如方案 1-19 中所述的下列方法和变型来制备式 1 的化合物。除非另外指明,下文式 1-22 的化合物中 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^9 、 R^{10} 、 R^{18} 、 R^{23} 、X 和 Y 的定义如上文发明概述中所定义。式 1a-11 是式 1 的各种子集,并且除非另外指明,式 1a-11 的所有取代基如上文式 1 中所定义。环境温度或室温定义为约 20-25℃。

[0546] 式 1a 的化合物(即式 1,其中 X 和 Y 为 O)可通过在缩合剂的存在下,适当被取代的式 2 的化合物与任选被取代的丙二酸(3a)的缩合反应制得,如方案 1 所示。缩合剂可以是碳二亚胺如二环己基碳二亚胺(参见例如 Koch, A. 等人的 Tetrahedron, 2004 年,60,第 10011-10018 页)或本领域熟知的在存在或不存在活化剂如 N-羟基苯并三唑的情况下形成酰胺键的其他试剂,如 Science of Synthesis (2005 年,21,第 17-25 页)和 Tetrahedron (2005 年,61,第 10827-10852 页)中所述。此反应通常在惰性有机溶剂如二氯甲烷或 1,2-二氯乙烷中,在约 0℃至约 80℃的温度下实施 10 分钟至若干天时间。

[0547] 方案 1

[0548]



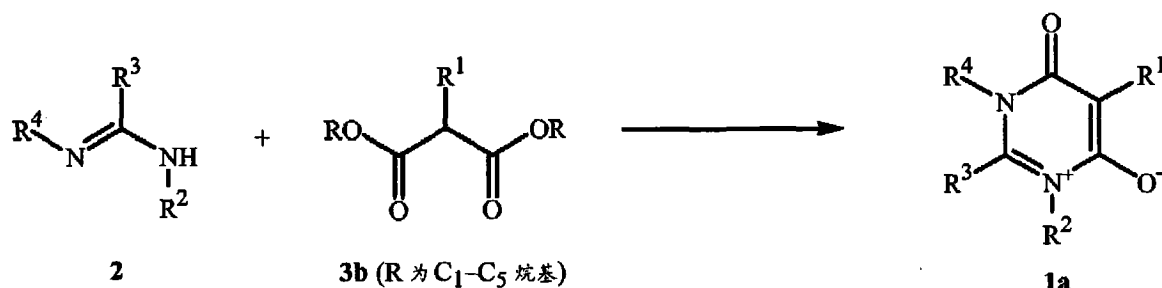
[0549] 式 1a 的化合物还可由式 2 的化合物与丙二酸酯(3b)的缩合反应制得,其中 R 为 C_1 - C_5 烷基,优选 C_1 - C_4 烷基,如方案 2 所示。这些反应可无溶剂实施或在惰性溶剂的存在下实施,如 Bulletin of the Chemical Society of Japan (1999 年,72(3),第 503-509 页)中所述。惰性溶剂包括但不限于高沸点烃如三甲苯、蔡满或异丙基苯,或高沸点醚如二苯基醚。典型的温度在 50℃至 250℃范围内。值得注意的是 150℃至 200℃的温度,其通常提供短反

应时间和高收率。这些反应还可在相同的温度范围内,在微波反应器中实施。典型的反应时间在 5 分钟至若干小时范围内。

[0550] 式 3a 的化合物可通过本领域已知的多种方法制得,例如通过式 3b 的化合物的碱水解反应。式 3b 的化合物可通过钼催化(J. Org. Chem.(2002 年,67,第 541-555 页))或铜催化(Org. Lett. (2002 年,4,第 269-272 页)和 Org. Lett. (2005 年,7,第 4693-4695 页))的丙二酸酯芳基化反应制得。

[0551] 方案 2

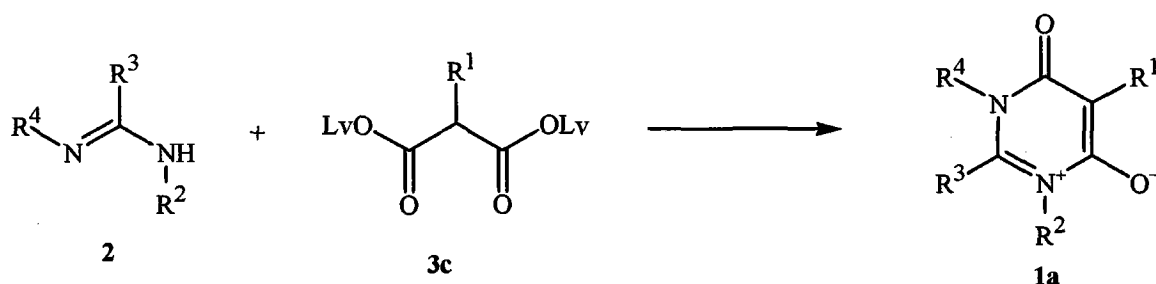
[0552]



[0553] 式 1a 的化合物还可通过用式 3c 的活性酯(其中 LvO 为活性离去基团)处理式 2 的化合物制得,如方案 3 所示。因易于合成或反应性而优选的 Lv 的实例是 2,4,6-三氯苯基、五氯苯基或五氟苯基,如 Archiv der Pharmazie(Weinheim, Germany)(1991 年,324,第 863-6 页)中所述。其他活性酯是本领域熟知的,并且包括但不限于 N-羟基琥珀酰亚胺酯(参见例如 J. Am. Chem. Soc. (2002 年,124,第 6872-6878 页))。典型的温度在 50℃至 200℃范围内。值得注意的是 50℃至 150℃的温度,其通常提供短反应时间和高收率。这些反应可在存在或不存在溶剂如甲苯的情况下进行,并且可在相同的温度范围内,在微波反应器中进行。典型的反应时间在 5 分钟至 2 小时范围内。

[0554] 方案 3

[0555]

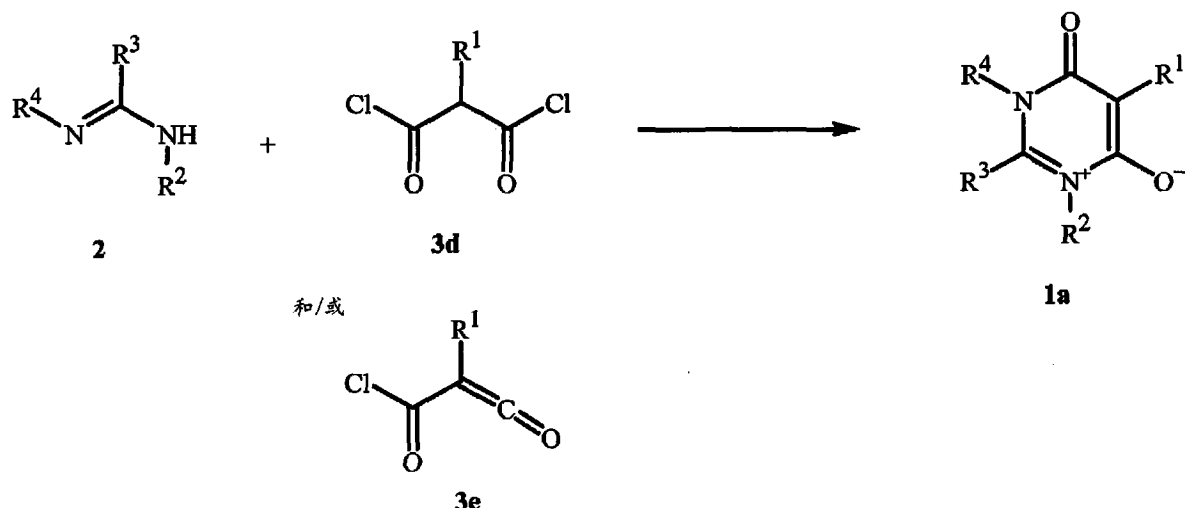


[0556] 式 3c 的化合物可由例如式 3a 的化合物制得(参见例如 J. Het. Chem. (1980 年,17,第 337 页))。

[0557] 式 1a 的化合物还可通过式 2 的化合物与式 3d 或式 3e 的化合物的缩合反应制得,或可通过式 2 的化合物与式 3d 和式 3e 的化合物的混合物的缩合反应制得,如方案 4 所示。这些反应通常在惰性溶剂如二氯甲烷中进行,并且任选在两当量或更多当量的酸受体的存在下进行(参见例如 Zeitschrift für Naturforschung, Teil B:Anorganische Chemie(Organische Chemie,1982 年,37B(2),第 222-33 页))。典型的酸受体包括但不限于三乙胺、N,N-二异丙基乙胺、吡啶和取代的吡啶。

[0558] 方案 4

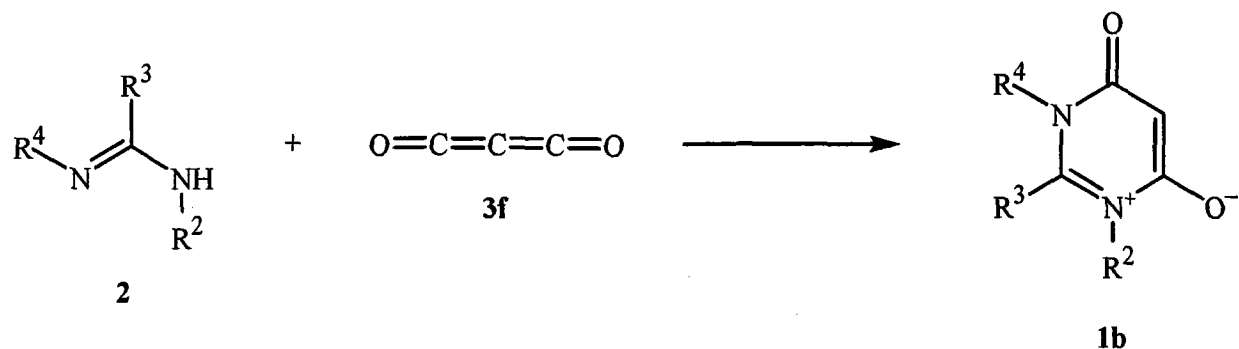
[0559]



[0560] 式 1b 的化合物 (即式 1a, 其中 R^1 为 H) 可通过式 2 的化合物与二氧化三碳 (3f) 的缩合反应制得 (参见例如 J. Org. Chem. (1972 年, 37 (9), 第 1422-5 页)), 如方案 5 所示。所述反应通常在惰性溶剂如醚中进行, 并且可包括使用催化剂如 AlCl_3 。

[0561] 方案 5

[0562]

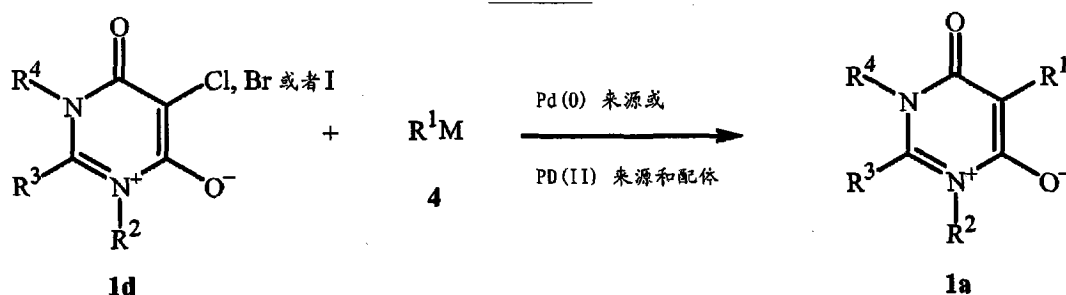


[0563] 式 2 的化合物可以本领域已知的多种方法制得; 参见例如 Patai, S. 的 The Chemistry of Functional Groups: The Chemistry of Amidines and Imidates (Wiley: Chichester, UK, 1975); The Chemistry of Amidines and Imidates (Patai, S.、Rappoport, Z. 编辑; Wiley: Chichester, UK, 1991 年; 第 2 卷); Mega, T. 等人的 Bulletin of the Chemical Society of Japan (1988, 61 (12), 第 4315-21 页); Ife, R. 等人的 European Journal of Medicinal Chemistry (1989 年, 24 (3), 第 249-57 页); Wagaw, S.、Buchwald, S. 的 Journal of Organic Chemistry (1996 年, 61 (21), 第 7240-7241 页); Shen, Q. 等人的 Angewandte Chemie 国际版 (2005 年, 44 (9), 第 1371-1375 页); 和 Okano, K. 等人的 Organic Letters (2003 年, 5 (26), 第 4987-4990 页)。

[0564] 式 1a 的化合物 (其中 R^1 为 $\text{CR}^{24}=\text{C}(\text{R}^{24})\text{R}^{10}$ 、任选被取代的苯基、萘基、5 元或 6 元杂芳环或 8 元至 10 元杂芳族二环环系) 可由式 1d 的化合物 (即式 1, 其中 R^1 为 Cl、Br 或 I, 优选地, 其中 R^1 为 Br 或 I) 和式 4 的化合物 (其中 M 与 R^1 形成硼酸、硼酸酯或三氟硼酸盐, 或 M 为三烷基甲锡烷基或锌, 并且 R^1 为 $\text{CR}^{24}=\text{C}(\text{R}^{24})\text{R}^{10}$ 、任选被取代的苯基、萘基、5 元或 6 元杂芳环或 8 元至 10 元杂芳族二环环系) 制得, 如方案 6 所示。

[0565] 方案 6

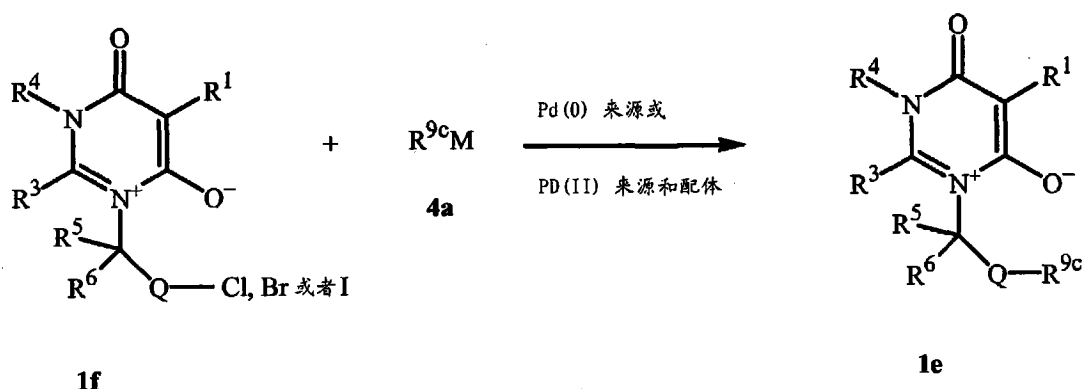
[0566]



[0567] 式 1e 的化合物 (即式 1a, 其中 R^2 为 $\text{CR}^5\text{R}^6\text{Q}$, 并且 Q 为被苯基或 5 元或 6 元杂芳环取代的杂环) 可由式 1f 的化合物和式 4a 的化合物 (其中 M 与 R^{9c} 形成硼酸、硼酸酯或三氟硼酸盐, 或 M 为三烷基甲锡烷基或锌, 并且 R^{9c} 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环) 制得, 如方案 7 所示。

[0568] 方案 7

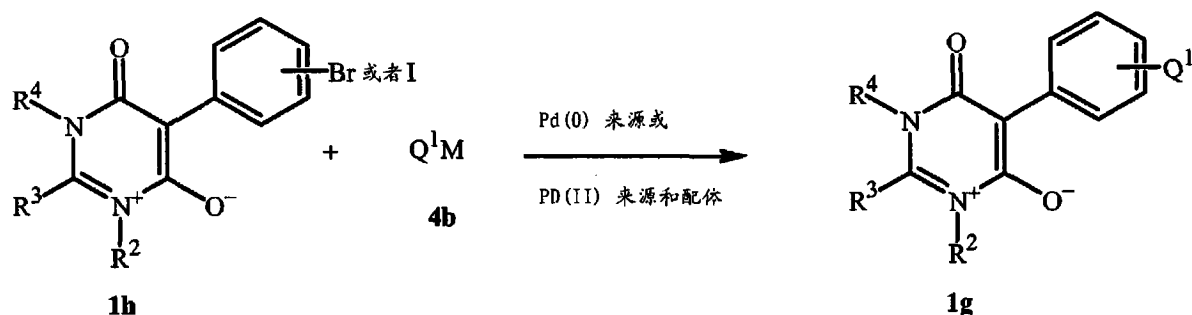
[0569]



[0570] 式 1g 的化合物 (即式 1a, 其中 R^1 为被 GQ^1 取代的苯基或吡啶基, 并且 G 为直接键) 可由式 1h 的化合物 (即式 1a, 其中 R^1 为被 Br 或 I 取代的苯基) 和式 4b 的化合物 (其中 M 与 Q^1 形成硼酸、硼酸酯或三氟硼酸盐, 或 M 为三烷基甲锡烷基或锌, 并且 Q^1 为苯基或 5 元或 6 元杂芳环) 制得, 如方案 8 所示。

[0571] 方案 8

[0572]



[0573] 方案 6、7 和 8 中的反应通常在钯催化剂和碱的存在下, 任选在惰性气氛下实施。用于方案 6、7 和 8 反应中的钯催化剂通常包含 0 价 (即 Pd(0)) 或 2 价 (即 Pd(II)) 形式氧化态形式的钯。有多种此类含钯化合物和配合物可用作这些反应的催化剂。在方案 6、7 和 8 方法中可用作催化剂的含钯化合物和配合物实例包括 $\text{PdCl}_2(\text{PPh}_3)_2$ (二氯化双 (三苯

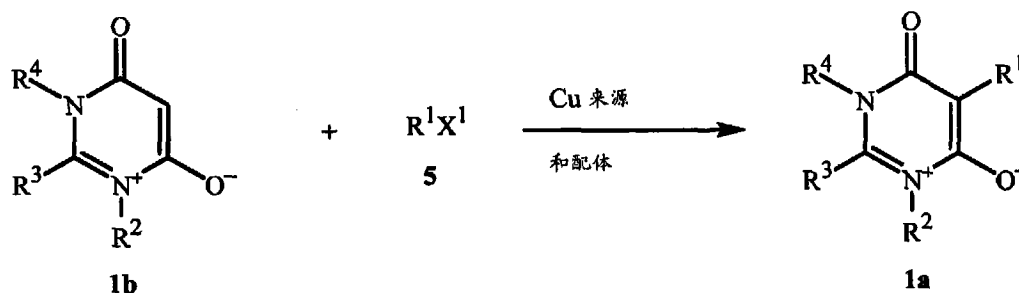
基膦)合钯(II))、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (四(三苯基膦)合钯(0))、 $\text{Pd}(\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2)_2$ (乙酰丙酮钯(II))、 $\text{Pd}_2(\text{dba})_3$ (三(二亚苄基丙酮)合二钯(0))、和[1,1'-双(二苯基膦)二茂铁]二氯化钯(II)。方案6、7和8中的方法一般在液相中实施,因此如果钯催化剂在液相中优选具有良好溶解度,则是最有效的。可用的溶剂包括例如水、醚如1,2-二甲氧基乙烷、酰胺如N,N-二甲基乙酰胺、和未卤代的芳族烃如甲苯。

[0574] 方案6、7和8中的方法可在广泛的温度范围内实施,范围从约25℃至约200℃。值得注意的是约60℃至约150℃的温度,这通常提供快速的反应时间和高产物收率。芳基碘化物、溴化物或氯化物与芳基锡、芳基锌或芳基硼酸的相应Stille、Negishi和Suzuki偶合反应的一般方法和步骤是文献中熟知的;参见例如E. Negishi的Handbook of Organopalladium Chemistry for Organic Synthesis(Wiley-Interscience, 2002, New York, New York)。

[0575] 式1a的化合物(其中 R^1 为任选被取代的苯基、萘基、5元或6元杂芳环或8元至10元杂芳族二环环系)可由式1b的化合物(即式1a,其中 R^1 为H)和式5的化合物(其中 X^1 为Cl、Br或I,优选地,其中 X^1 为Br或I)制得,如方案9所示。

[0576] 方案9

[0577]



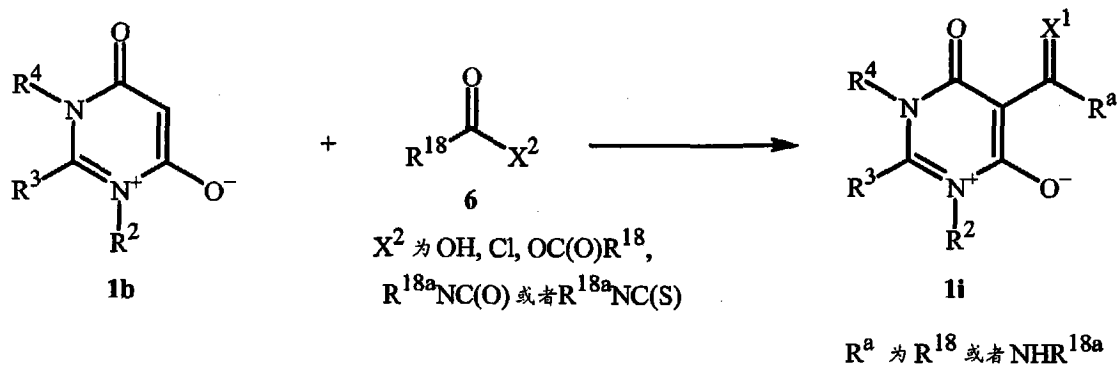
[0578] 这些反应通常在铜催化剂的存在下,任选在惰性气氛下实施。用于本发明方法中的铜催化剂通常包括金属形式的铜(例如为粉末)或1价形式氧化态的铜(即Cu(I))。在方案9方法中可用作催化剂的含铜化合物的实例包括但不限于Cu、CuI、CuBr、CuCl。可用于方案9方法中的溶剂包括例如醚如1,4-二氧杂环己烷、酰胺如N,N-二甲基乙酰胺和二甲基亚砷。

[0579] 方案9的方法可在25℃至200℃的广泛温度范围内实施。值得注意的是40℃至150℃的温度。方案9的方法可在配体的存在下实施。有多种此类含铜化合物可用作本发明的方法的配体。可用配体的实例包括但不限于1,10-菲咯啉、N,N-二甲基乙二胺、L-脯氨酸和2-吡啶甲酸。铜催化的Ullmann型偶合反应的一般方法和步骤是文献中熟知的;参见例如Xie, Ma等人的Org. Lett. (2005年,7,第4693-4695页)。

[0580] 式1i的化合物可由式1b的化合物通过与式6的化合物的羰化反应制得,如方案10所示。可用于方案10方法中的式6的羰化剂的实例包括但不限于脂族或芳族羧酸、酸酐、酰卤、异氰酸酯和异硫氰酸酯。通常,所述反应在惰性溶剂中进行,更典型在极性溶剂如N,N-二甲基乙酰胺或1-甲基-2-吡咯烷酮中进行。所述反应通常在0℃至180℃,更典型在环境温度至150℃的温度下进行。微波辐射在加热反应混合物方面是有利的。

[0581] 方案10

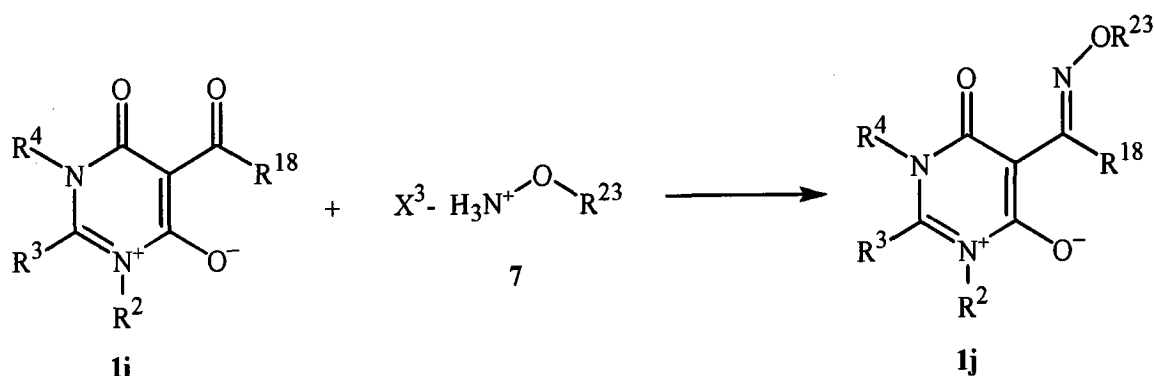
[0582]



[0583] 式 1j 的化合物可通过式 1i 的化合物与式 7 的烷氧基胺盐的反应制得, 其中 X³ 为抗衡离子如卤离子或草酸根, 如方案 11 所示。所述反应可在醇溶剂如乙醇或丙醇中, 在 80°C 至溶剂回流温度范围内的温度下, 进行 3 至 24 小时。

[0584] 方案 11

[0585]

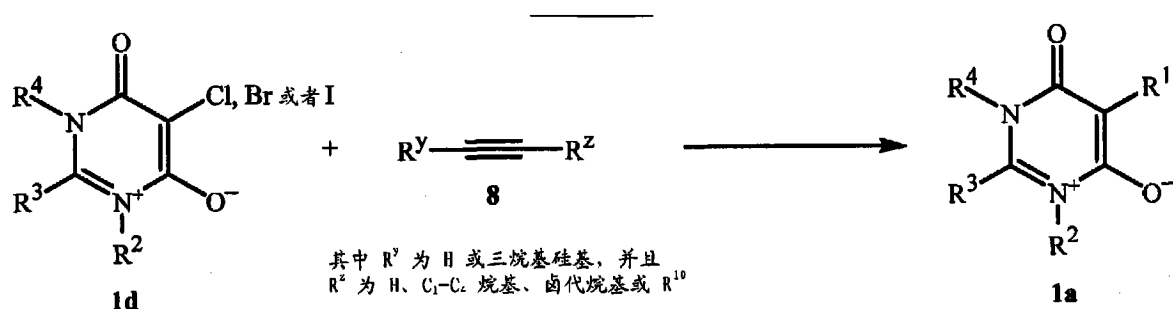


[0586] 式 1a 的化合物 (其中 R¹ 为 C(=NNR²⁰R²³)R¹⁸、C(=NNR²⁰C(O)R²³)R¹⁸、C(=NNR²⁰C(O)OR^{23a})R¹⁸、或 C(=NNR²⁰C(O)NR²⁰R²³)R¹⁸) 可根据方案 11 中所示的方法, 由式 1i 的化合物和适当取代的胍制得。

[0587] 式 1a 的化合物 (其中 R¹ 为 C₂-C₆ 炔基、C₂-C₆ 卤代炔基、或 C≡CR¹⁰) 可根据 Sonigashira 偶合反应, 由式 1d 的化合物 (即式 1a, 其中 R¹ 为 Cl、Br 或 I) 和式 8 的取代的炔烃制得, 如方案 12 所示。Sonigashira 偶合反应是文献中熟知的。参见例如 E. Negishi 的 Handbook of Organopalladium Chemistry for Organic Synthesis (Wiley-Interscience, 2002, New York, New York) 中的 K. Sonogashira 的 Sonogashira Alkyne Synthesis 第 2 卷第 493 页。

[0588] 方案 12

[0589]

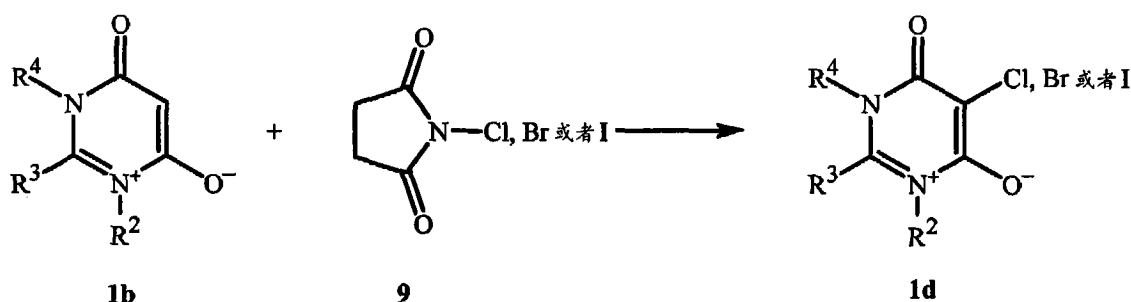


[0590] 式 1d 的化合物可使用例如液溴或 N- 卤代琥珀酰亚胺 (9), 由式 1b 的化合物通过

卤化制得,如方案 13 所示。通常,所述反应在惰性溶剂,更典型在卤代溶剂如二氯甲烷或 1,2-二氯乙烷中进行。所述反应通常在 0℃至 80℃,更典型在环境温度下进行。

[0591] 方案 13

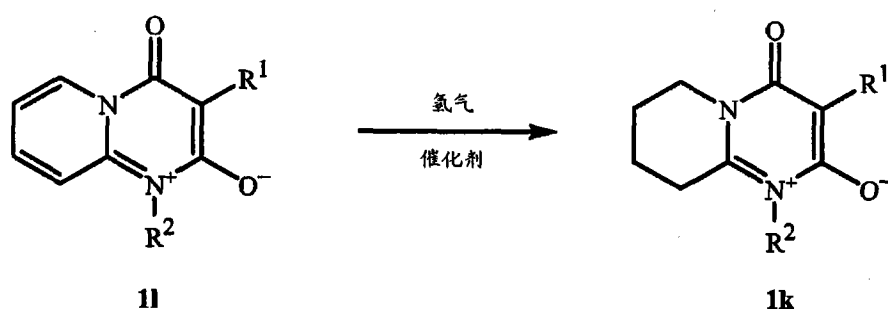
[0592]



[0593] 式 1k 的化合物 (即式 1a, 其中 R^3 和 R^4 合在一起形成任选被取代的碳环 R-1, 其中 m 为 2) 可在铂族金属或金属氧化物催化剂的存在下, 通过使用氢气还原, 由式 11 的化合物 (即式 1, 其中 R^3 和 R^4 合在一起形成任选被取代的芳环 R-2, 其中 Z 为 $\text{CH}=\text{CH}$) 制得, 如方案 14 所示。铂族金属通常为铂或钯或它们的氧化物, 并且还原反应在惰性溶剂中进行 (参见例如 Kappe, Thomas 等人的 *Heterocycles* (1995 年, 40, 第 681-9 页)。适宜的溶剂包括但不限于甲醇、乙醇、四氢呋喃和甲基叔丁基醚。所述反应通常在环境温度下, 在约 100kPa 压力下实施。

[0594] 方案 14

[0595]

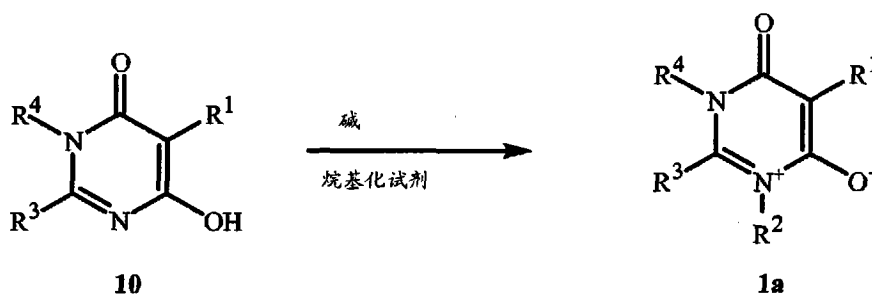


[0596] 式 11 的化合物可根据方案 1 至 5 中所示的方法, 由式 2 的化合物 (其中 R^3 和 R^4 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成环 R-1, 并且 Z 为 $\text{CH}=\text{CH}$) 制得。

[0597] 式 1a 的化合物还可使用适当取代的烷基化试剂和碱如碳酸钾, 由式 10 的化合物的烷基化反应制得, 如方案 15 所示 (参见例如 Kappe, T. 等人的 *Monatshefte für Chemie* (1971 年, 102, 第 412-424 页) 和 Urban, M. G.、Arnold, W. 的 *Helvetica Chimica Acta* (1970 年, 53, 第 905-922 页))。烷基化试剂包括但不限于烷基氯化物、溴化物、碘化物以及磺酸酯。有多种碱和溶剂可用于方案 15 方法中, 并且这些碱和溶剂是本领域熟知的。

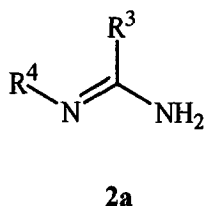
[0598] 方案 15

[0599]



[0600] 式 10 的化合物可通过与方案 1 至 5 中所示那些相类似的方法,由式 2a 的化合物制得。式 2a 的化合物是可商购获得的,或能够由本领域熟知的一般方法制得。

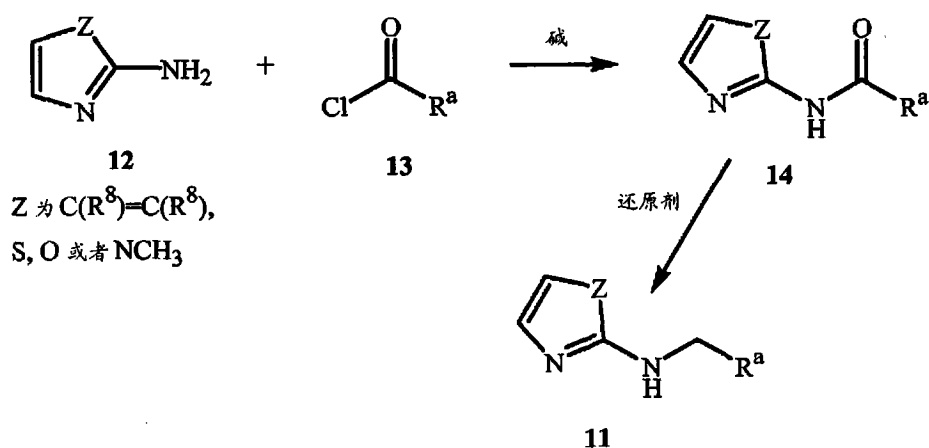
[0601]



[0602] 本领域的技术人员将会知道,式 2 的化合物(其中 R^3 和 R^4 合在一起形成环 R^2 , 并且其中 R^a 是包含末端 CH_2 基团的 R^2 取代基的子集)可通过本领域熟知的一般方法制得。例如,方案 16 示出了一种方法,其中在适当碱的存在下,用式 13 的化合物酰化式 12 的化合物。用适当的试剂如乙硼烷还原所得的式 14 中间体,获得式 11 的化合物。

[0603] 方案 16

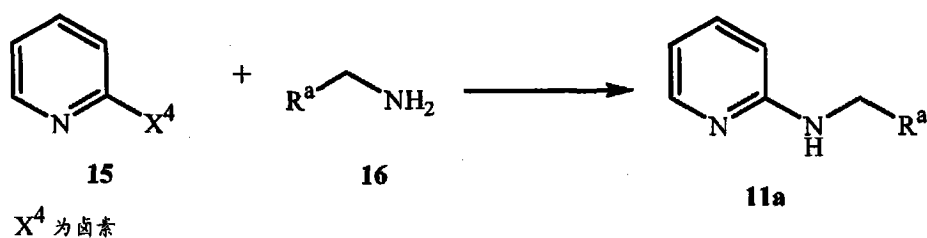
[0604]



[0605] 式 11a 的化合物(式 11 的化合物,其中 Z 为 $\text{CH}=\text{CH}$)可经由适宜的式 16 的胺,通过式 15 的 α -卤代吡啶化合物的直接取代反应制得,如方案 17 所示。可用于方案 17 方法中的 α -卤代吡啶化合物的实例包括但不限于 2-氟吡啶和 2-氯吡啶。适宜胺的实例包括但不限于 2,2,2-三氟乙胺和 5-氨基甲基-2-氯吡啶。通常,所述反应在惰性溶剂中进行,更典型在极性溶剂如 N,N-二甲基乙酰胺或 1-甲基-2-吡咯烷酮中进行。所述反应通常在 0°C 至 250°C ,更典型在环境温度至 150°C 的温度下进行。作为另外一种选择,所述反应可在实验室微波反应器内,在封管中进行;典型的反应温度为 200°C 至 240°C 。式 15 的化合物的盐酸盐是适用于此方法的原料。

[0606] 方案 17

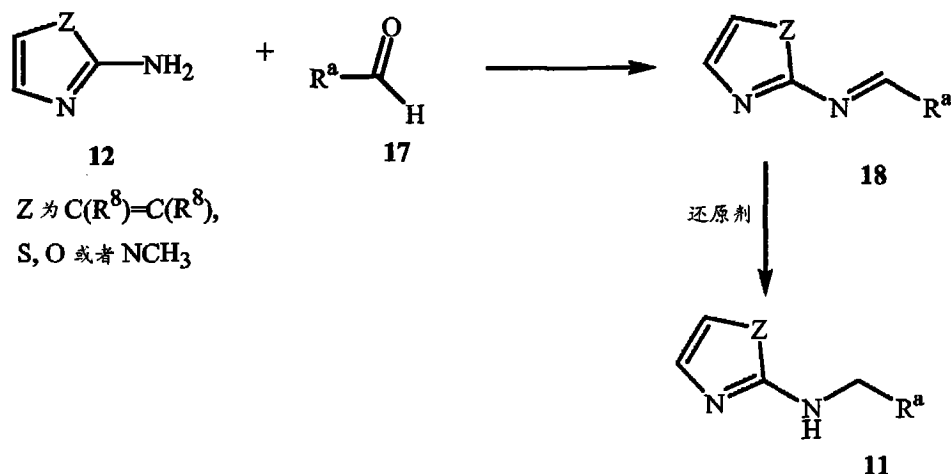
[0607]



[0608] 式 11 的化合物可通过式 12 的胺与适宜的式 17 的醛之间的还原胺化反应制得。这些反应可一锅进行,或可经由式 18 的亚胺中间体分步反应进行,如方案 18 所示。可用于方案 18 方法中的胺化合物的实例包括但不限于 2-氨基吡啶和 2-氨基噻唑。方案 18 方法中的适宜醛的实例包括但不限于 6-氯吡啶甲醛。方案 18 方法中的适宜还原剂的实例包括但不限于硼氢化钠、硼氢化锌和氰基硼氢化钠。还原胺化反应的一般方法和步骤是文献中熟知的;参见例如 Abdel-Magid 等人的 J. Org. Chem. (1996 年, 61(11), 第 3849-3862 页)。

[0609] 方案 18

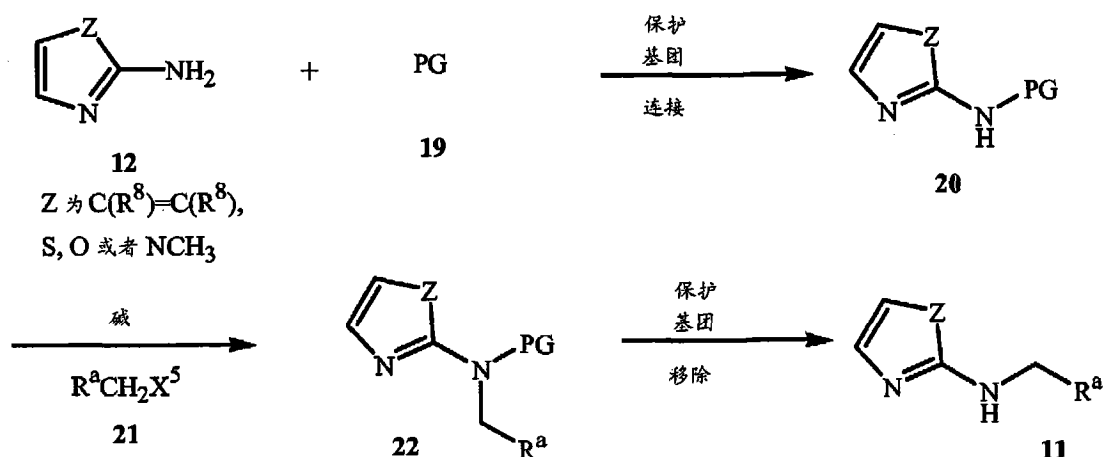
[0610]



[0611] 制备式 11 的化合物的可供选择的方法示于方案 19 中。在方案 19 方法中,用适宜的保护基团如但不限于叔丁氧基羰基、乙酰基或甲酰基保护式 12 的化合物,以形成式 20 中间体,其中 PG 为保护基团。然后用适当的式 21 试剂(其中 R^a 为包含末端 CH_2 基团的 R^2 取代基的子集,并且 X^5 为离去基团如卤素)将式 20 的化合物烷基化,以获得式 22 的中间体。将保护基团移除,以获得式 11 的化合物。在胺官能团上形成和移除保护基团的条件是文献中已知的(参见例如 Greene, T. W.、Wuts, P. G. M. 的 Protective Groups in Organic Synthesis 第 2 版;Wiley:New York, 1991)。

[0612] 方案 19

[0613]

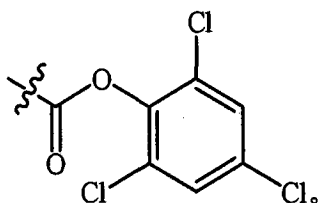


[0614] 式 1 的化合物 (其中 X 和 / 或 Y 为 S) 可通过本领域已知的一般方法, 由相应的式 1a 的化合物制得, 所述方法涉及用硫化剂如 P_4S_{10} 或 Lawesson 试剂 (2,4-二-(4-甲氧基苯基)-1,3-二硫代-2,4-二磷杂环丁烷-2,4-二硫化物) 处理。作为另外一种选择, 可用 $P_2S_6(CH_3)_2$ 处理式 3a 的丙二酸, 如 J. Am. Chem. Soc. (1988 年, 110(4), 第 1316-1318 页) 中所述。然后可通过方案 1 的方法, 使用所得丙二酸硫衍生物来制备式 1 的化合物, 其中 X 和 / 或 Y 为 S。

[0615] 方案 1 至 19 示出了制备式 1 的化合物的方法, 所述化合物具有多种标示为 R^1 、 R^2 、 R^3 和 R^4 的取代基。具有与方案 1 至 19 中具体指定的那些不同的 R^1 、 R^2 、 R^3 和 R^4 取代基的式 1 的化合物可由合成有机化学领域中已知的一般方法制得, 包括与方案 1 至 19 中所述的那些相类似的方法。

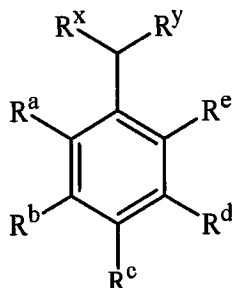
[0616] 可用于本发明化合物制备中的中间体实例示于表 I-1 至 I-19 中。以下表中使用如下缩写: Me 表示甲基, Et 表示乙基, 并且 $C(O)O(2,4,6-三氯苯基)$ 表示

[0617]



[0618] 表 I-1

[0619]

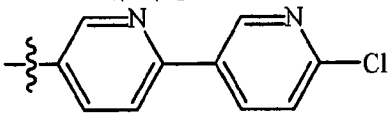


[0620] R^x 为 $C(O)OH$, 并且 R^y 为 H

[0621]

R^a	R^b	R^c	R^d	R^e
H	H	H	H	H
F	H	H	H	H
H	F	H	H	H
H	H	F	H	H
OMe	H	H	H	H
H	OMe	H	H	H
H	H	OMe	H	H
F	F	H	H	H
F	H	F	H	H
F	H	H	F	H
F	H	H	H	F
Cl	H	H	H	H
H	Cl	H	H	H
H	H	Cl	H	H
H	Br	H	H	H
H	I	H	H	H
H	Cl	H	Cl	H
H	Cl	H	Br	H
H	Cl	H	OCF ₃	H
H	Cl	H	CF ₃	H
H	Br	H	Br	H
H	Br	H	OCF ₃	H
H	Br	H	CF ₃	H
H	H	氨基	H	H
F	H	氨基	H	H
H	OCF ₃	H	H	H
H	CF ₃	H	H	H
H	SCF ₃	H	H	H

[0622]

R^a	R^b	R^c	R^d	R^e
F	H	H	Cl	H
F	H	H	Br	H
F	H	H	OCF ₃	H
F	H	H	CF ₃	H
F	H	H	OMe	H
F	H	H	SCF ₃	H
Cl	H	H	OCF ₃	H
Cl	H	H	CF ₃	H
H	H	H	SF ₃	H
Cl	H	H	SF ₃	H
H	OCF ₂ H	H	H	H
H	H	OCF ₂ H	H	H
F	F	H	F	H
F	H	F	H	F
F	H	F	F	H
F	F	F	H	H
H	OMe	H	OMe	H
F	OMe	H	H	H
OMe	H	H	Cl	H
OMe	H	H	Br	H
OMe	H	H	OCF ₃	H
OMe	H	H	CF ₃	H
H	CF ₃	H	CF ₃	H
Me	H	H	H	H
H	Me	H	H	H
H	H	Me	H	H
H	6-氟-3-吡啶基	H	H	
H	6-氯-3-吡啶基	H	H	
H	6-溴-3-吡啶基	H	H	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	H	H	
				
H	6-氟-3-吡啶基	H	H	
H	6-氯-3-吡啶基	H	OMe	
H	6-溴-3-吡啶基	H	OMe	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	H	OMe	
H	6-氟-3-吡啶基	H	CF ₃	
H	6-氯-3-吡啶基	H	CF ₃	
H	6-溴-3-吡啶基	H	CF ₃	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	H	CF ₃	
H	6-氟-3-吡啶基	H	Br	

[0623]

R^a	R^b	R^c	R^d	R^e
H	6-氯-3-吡啶基	H	Br	
H	6-溴-3-吡啶基	H	Br	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	H	Br	
H	6-氟-3-吡啶基	H	Cl	
H	6-氯-3-吡啶基	H	Cl	
H	6-溴-3-吡啶基	H	Cl	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	H	Cl	
H	6-氟-3-吡啶基	OMe	H	
H	6-氯-3-吡啶基	OMe	H	
H	6-溴-3-吡啶基	OMe	H	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	OMe	H	
H	6-氟-3-吡啶基	F	H	
H	6-氯-3-吡啶基	F	H	
H	6-溴-3-吡啶基	F	H	
H	6-三氟甲基-3-吡啶基	F	H	
SCF ₃	H	H	Cl	
SCF ₃	H	H	Br	
SCF ₃	H	H	OCF ₃	
SCF ₃	H	H	CF ₃	
SCF ₃	H	H	SCF ₃	
SCF ₃	H	H	6-三氟甲基-3-吡啶基	
SCF ₃	H	H	6-氟-3-吡啶基	
SCF ₃	H	H	6-氯-3-吡啶基	
SCF ₃	H	H	6-溴-3-吡啶基	

[0624] 表 I-2

[0625] 表 I-2 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)OMe,并且 R^y 为 H。

[0626] 表 I-3

[0627] 表 I-3 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)OEt,并且 R^y 为 H。

[0628] 表 I-4

[0629] 表 I-4 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)OH,并且 R^y 为 C(O)OH。

[0630] 表 I-5

[0631] 表 I-5 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)OH,并且 R^y 为 C(O)OMe。

[0632] 表 I-6

[0633] 表 I-6 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)OH,并且 R^y 为 C(O)OEt。

[0634] 表 I-7

[0635] 表 I-7 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)OH,并且 R^y 为 C(O)OC(CH₃)₃。

[0636] 表 I-8

[0637] 表 I-8 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 C(O)Cl,并且 R^y 为 C(O)Cl。

[0638] 表 I-9

[0639] 表 I-9 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 $C(O)OMe$,并且 R^y 为 $C(O)OMe$ 。

[0640] 表 I-10

[0641] 表 I-10 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 $C(O)OEt$,并且 R^y 为 $C(O)OEt$ 。

[0642] 表 I-11

[0643] 表 I-11 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 $C(O)OC(CH_3)_3$,并且 R^y 为 $C(O)OC(CH_3)_3$ 。

[0644] 表 I-12

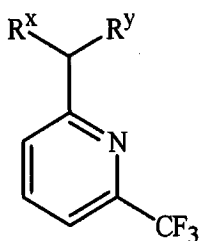
[0645] 表 I-12 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 $C(O)O(2,4,6-三氯苯基)$,并且 R^y 为 $C(O)O(2,4,6-三氯苯基)$ 。

[0646] 表 I-12a

[0647] 表 I-12a 的构造与表 I-1 相同,不同的是 R^x 为 H ,并且 R^y 为 $C(O)OC(CH_3)_3$ 。

[0648] 表 I-13

[0649]

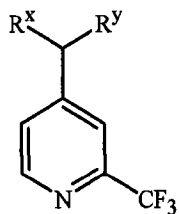


[0650]

$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	$C(O)OH$	$C(O)OMe$	$C(O)OMe$
H	$C(O)OMe$	$C(O)OEt$	$C(O)OEt$
H	$C(O)OEt$	$C(O)OC(CH_3)_3$	$C(O)OC(CH_3)_3$
$C(O)OH$	$C(O)OH$	$C(O)OH$	$C(O)OMe$
$C(O)Cl$	$C(O)Cl$	$C(O)OH$	$C(O)OEt$
$C(O)O(2,4,6-三氯苯基)$	$C(O)O(2,4,6-三氯苯基)$	$C(O)OH$	$C(O)OC(CH_3)_3$
H	$C(O)OC(CH_3)_3$		

[0651] 表 I-14

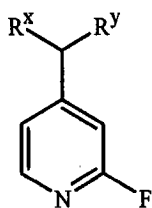
[0652]



$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	C(O)OH	C(O)OMe	C(O)OMe
H	C(O)OMe	C(O)OEt	C(O)OEt
H	C(O)OEt	C(O)OC(CH ₃) ₃	C(O)OC(CH ₃) ₃
C(O)OH	C(O)OH	C(O)OH	C(O)OMe
C(O)Cl	C(O)Cl	C(O)OH	C(O)OEt
C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)OH	C(O)OC(CH ₃) ₃
H	C(O)OC(CH ₃) ₃		

[0653] 表 I-15

[0654]



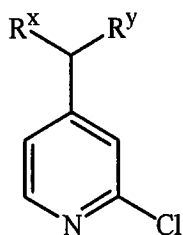
$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	C(O)OH	C(O)OMe	C(O)OMe
H	C(O)OMe	C(O)OEt	C(O)OEt

[0655]

$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	C(O)OEt	C(O)OC(CH ₃) ₃	C(O)OC(CH ₃) ₃
C(O)OH	C(O)OH	C(O)OH	C(O)OMe
C(O)Cl	C(O)Cl	C(O)OH	C(O)OEt
C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)OH	C(O)OC(CH ₃) ₃
H	C(O)OC(CH ₃) ₃		

[0656] 表 I-16

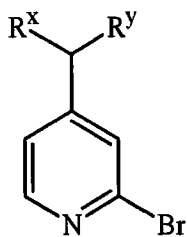
[0657]



$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	C(O)OH	C(O)OMe	C(O)OMe
H	C(O)OMe	C(O)OEt	C(O)OEt
H	C(O)OEt	C(O)OC(CH ₃) ₃	C(O)OC(CH ₃) ₃
C(O)OH	C(O)OH	C(O)OH	C(O)OMe
C(O)Cl	C(O)Cl	C(O)OH	C(O)OEt
C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)OH	C(O)OC(CH ₃) ₃
H	C(O)OC(CH ₃) ₃		

[0658] 表 I-17

[0659]



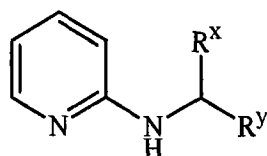
$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	C(O)OH	C(O)OMe	C(O)OMe
H	C(O)OMe	C(O)OEt	C(O)OEt
H	C(O)OEt	C(O)OC(CH ₃) ₃	C(O)OC(CH ₃) ₃
C(O)OH	C(O)OH	C(O)OH	C(O)OMe
C(O)Cl	C(O)Cl	C(O)OH	C(O)OEt

[0660]

$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)O(2,4,6-三氯苯基)	C(O)OH	C(O)OC(CH ₃) ₃
H	C(O)OC(CH ₃) ₃		

[0661] 表 I-18

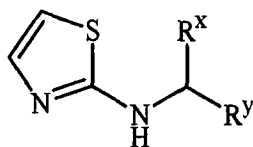
[0662]



$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	CF ₃	H	CH ₂ CHF CF ₂ C1
Me	CF ₃	Me	CH ₂ CHF CF ₂ C1
H	Et	H	环丙基
Me	Et	Me	环丙基
H	3-吡啶基	H	6-甲基-3-吡啶基
Me	3-吡啶基	Me	6-甲基-3-吡啶基
H	6-氟-3-吡啶基	H	6-氟-3-吡啶基
Me	6-氟-3-吡啶基	Me	6-氟-3-吡啶基
H	6-氟-3-吡啶基	H	5-噻唑基
Me	6-氟-3-吡啶基	Me	5-噻唑基
H	2-甲基-5-噻唑基	H	2-氟-5-噻唑基
Me	2-甲基-5-噻唑基	Me	2-氟-5-噻唑基
H	2-甲基-5-噻唑基	H	2-氟-5-噻唑基
Me	2-甲基-5-噻唑基	Me	2-溴-5-噻唑基
H	1-甲基-4-吡唑基	H	3-甲基-5-异噁唑基
Me	1-甲基-4-吡唑基	Me	3-甲基-5-异噁唑基

[0663] 表 I-19

[0664]



$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$	$\underline{R^x}$	$\underline{R^y}$
H	CF ₃	H	CH ₂ CHF CF ₂ C1
Me	CF ₃	Me	CH ₂ CHF CF ₂ C1
H	Et	H	环丙基

[0665]

R^x	R^y	R^x	R^y
Me	Et	Me	环丙基
H	3-吡啶基	H	6-甲基-3-吡啶基
Me	3-吡啶基	Me	6-甲基-3-吡啶基
H	6-氟-3-吡啶基	H	6-氟-3-吡啶基
Me	6-氟-3-吡啶基	Me	6-氟-3-吡啶基
H	6-溴-3-吡啶基	H	5-噻唑基
Me	6-溴-3-吡啶基	Me	5-噻唑基
H	2-甲基-5-噻唑基	H	2-氟-5-噻唑基
Me	2-甲基-5-噻唑基	Me	2-氟-5-噻唑基
H	2-氟-5-噻唑基	H	2-溴-5-噻唑基
Me	2-氟-5-噻唑基	Me	2-溴-5-噻唑基
H	1-甲基-4-吡唑基	H	3-甲基-5-异噁唑基
Me	1-甲基-4-吡唑基	Me	3-甲基-5-异噁唑基

[0666] 应认识到,上述用于制备式 1 的化合物的某些试剂和反应条件可能与中间体中存在的某些官能团不相容。在这些情况下,将保护/去保护序列或官能团互变引入到合成中将有助于获得所期望的产物。保护基团的使用和选择对于化学合成领域的技术人员将是显而易见的(参见例如 Greene, T. W.、Wuts, P. G. M. 的 Protective Groups in Organic Synthesis 第 2 版;Wiley:New York,1991)。本领域的技术人员将认识到,在一些情况下,在按照任何单独方案中的描述引入指定试剂后,可能需要实施没有详细描述额外常规合成步骤,以完成式 1 的化合物的合成。本领域的技术人员还将认识到,可能需要以与制备式 1 的化合物时所示的具体顺序不同的顺序来实施上文方案中示出的步骤的组合。

[0667] 本领域的技术人员还将认识到,本文所述的式 1 的化合物和中间体可经历各种亲电反应、亲核反应、自由基反应、有机金属反应、氧化反应和还原反应,以引入取代基或修饰现有的取代基。

[0668] 无需进一步详尽说明,据信本领域的技术人员使用以上所述内容可将本发明利用至最大限度。因此,以下合成实施例应理解为仅是例证性的,而不以任何方式限制本发明的公开内容。以下合成实施例中的步骤示出了整个合成转化中每个步骤的过程,并且用于每个步骤的起始料不必由在其他实施例或步骤中描述的具体制备步骤制得。环境温度或室温定义为约 20-25°C。百分比均按重量计,除非是色谱溶剂混合物或除非另外指明。色谱溶剂混合物的份数和百分比均按体积计,除非另外指明。以距四甲基硅烷的低场 ppm 数为单位记录 ^1H NMR 光谱;“s”表示单峰,“d”表示双重峰,“dd”表示双重双重峰,“ddd”表示两个双重双重峰,“t”表示三重峰,“m”表示多重峰,并且“br s”表示宽的单峰。就质谱数据而言,记录的数值是采用大气压化学电离(AP⁺),由质谱观测到的 H⁺(分子量为 1)加在所述分子上获得 M+1 峰所形成的母分子离子的分子量(M)。

[0669] 合成实施例 1

[0670] 制备 2-羟基-4-氧代-3-苯基-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐

[0671] 将苯基丙二酸二乙酯(0.62g,2.7mmol)和 N-(2,2,2-三氟乙基)-2-吡啶胺

(0.87g, 2.7mmol, 由 Bissell, E. R.、Swanslger, R. W. 在 J. Chem. Eng. Data. (1981 年, 26, 第 234-235 页) 中所述的方法制得) 的混合物在 180℃ 下加热 2h。冷却后, 通过用乙酸乙酯洗脱, 在硅胶上经由层析纯化反应混合物, 获得黄色固体状标题化合物 (化合物编号 7) (本发明的化合物) (45mg)。

[0672] ^1H NMR (CDCl_3) δ 9.61 (dd, 1H), 8.17 (ddd, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.55 (d, 1H), 7.45 (t, 1H), 7.39 (m, 2H), 7.21-7.25 (m, 1H), 5.10 (br s, 2H)。

[0673] 合成实施例 2

[0674] 制备 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐和 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-(2,2,2-三氟乙酰基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0675] 步骤 A: 制备 N-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-N-2-吡啶基氨基甲酸 1,1-二甲基乙酯 (另名为 2-氯噻唑-5-基甲基) 吡啶-2-基-氨基甲酸叔丁酯)

[0676] 在冰/水浴中冷却至 0℃ 的圆底烧瓶中, 将分散在矿物油中的氢化钠 (60%, 2.22g, 55.6mmol) 分批加入到 N-2-吡啶基氨基甲酸 1,1-二甲基乙酯 (9.0g, 46.3mmol, 由 Krein, D. M.、Lowary, T. L. 在 J. Org. Chem. (2002 年, 67, 第 4965-4967 页) 中所述的方法制得) 的 N,N-二甲基甲酰胺 (40mL) 溶液中。将悬浮液再剧烈搅拌 30 分钟, 然后加入 2-氯-5-(氯甲基)噻唑 (7.4g, 55.6mmol)。使反应混合物逐渐升至室温, 并且搅拌 16-24 小时。然后加入水 (200mL), 并且用 50mL 乙酸乙酯将反应混合物萃取三次。用 20mL 水将合并的有机萃取物洗涤四次, 在 Na_2SO_4 上干燥, 并且减压浓缩。通过用乙酸乙酯/己烷洗脱, 在硅胶上经由层析纯化所得残余物, 获得琥珀色油状标题化合物 (9.3g)。

[0677] ^1H NMR (CDCl_3) δ 8.40 (d, 1H), 7.78 (d, 1H), 7.64 (t, 1H), 7.49 (s, 1H), 7.03 (t, 1H), 5.18 (s, 2H), 1.54 (s, 9H)。

[0678] 步骤 B: 制备 N-[(氯代-5-噻唑基)甲基]-2-吡啶胺 (另名为 (2-氯噻唑-5-基甲基)-吡啶-2-基-胺)

[0679] 在圆底烧瓶内, 将三氟乙酸 (13.2mL, 171mmol) 加入到 N-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-N-2-吡啶基氨基甲酸 1,1-二甲基乙酯 (即步骤 A 中的产物) (9.3g, 28.5mmol) 的二氯甲烷: 水 (60mL : 8mL) 溶液中, 并且将所述混合物搅拌 66 小时。然后将反应混合物冷却至 0℃, 并且用 3M NaOH 中和至约 pH 12, 之后用 100mL 乙酸乙酯萃取两次。合并有机层, 在 Na_2SO_4 上干燥, 并且减压浓缩, 获得棕褐色固体状标题化合物 (5.0g)。

[0680] ^1H NMR (CDCl_3) δ 8.19 (d, 1H), 7.43 (m, 2H), 7.65 (t, 1H), 6.42 (d, 1H), 4.80 (s, NH), 4.67 (d, 2H)。

[0681] 步骤 C: 制备 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0682] 在圆底烧瓶内, 将二环己基碳二亚胺的溶液 (1.0M 的二氯甲烷溶液, 26.6mL, 26.6mmol) 加入到 N-[(氯代-5-噻唑基)甲基]-2-吡啶胺 (即步骤 B 中的产物) (3.0g, 13.3mmol) 和丙二酸 (1.38g, 13.3mmol) 的二氯甲烷 (30mL) 溶液中。将反应混合物在室温下搅拌 16-24 小时。然后将反应混合物通过 Celite® 硅藻土助滤剂垫过滤, 并且用二氯甲烷洗涤滤饼。将合并的有机相减压浓缩, 并且通过用乙酸乙酯/己烷洗脱, 在硅胶上经由层

析纯化所得残余物,以获得浅黄色固体状标题化合物(化合物编号 125)(本发明的化合物)(2.90g)。

[0683] ^1H NMR($\text{CD}_3\text{S}(\text{O})\text{CD}_3$) δ 9.20(d, 1H), 8.36(t, 1H), 8.11(d, 1H), 7.95(s, 1H), 7.52(t, 1H), 5.56(s, 2H), 4.98(s, 1H)。

[0684] 步骤 D:制备 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-(2,2,2-三氟乙酰基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0685] 将 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐(即步骤 C 中的产物)(300mg, 1.02mmol)、1,4-二氮杂二环[2.2.2]辛烷(11.5mg, 0.102mmol)、和三氟乙酸酐(0.14mL, 1.02mmol)溶解于 N-甲基-2-吡咯烷酮(3mL)中,并且将反应混合物在室温下搅拌 1 小时。用二氯甲烷(30mL)稀释所述混合物,用水(10mL)、饱和碳酸氢钠水溶液(10mL)和水(10mL $\times$ 4 次)洗涤,浓缩并且用乙醚粉化,获得固体状标题化合物(化合物编号 702)(本发明的化合物)(98mg)。

[0686] ^1H NMR(CD_3COCD_3) δ 9.38(d, 1H), 8.58(t, 1H), 8.22(d, 1H), 7.94(s, 1H), 7.70(t, 1H), 5.71(br s, 2H)。

[0687] 合成实施例 3

[0688] 制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲氧基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐、1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐、和 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-3-碘-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0689] 步骤 A:制备 6-氯-N-2-吡啶基-3-吡啶甲胺

[0690] 在微波反应器中,将 2-氟吡啶(1.4g, 15mmol)和 6-氯-3-吡啶甲胺(另名为 5-氨基甲基-2-氯吡啶)(2.55g, 18mmol)混合物的 N-甲基吡咯烷酮(5mL)溶液在 230 $^\circ\text{C}$ 下加热 30 分钟。将此反应重复四次,每次重复使用相同量的原料。然后将所有五批反应混合物倒入到饱和碳酸氢钠水溶液中,并且萃入到乙酸乙酯中。用饱和碳酸氢钠水溶液洗涤有机层,在 Na_2SO_4 上干燥,并且减压浓缩。然后使用 10%乙酸乙酯的己烷溶液作为洗脱液,在硅胶上经由层析纯化粗产物,获得油状标题化合物(5.1g)。

[0691] ^1H NMR(CDCl_3) δ 8.38(s, 1H), 8.1(m, 1H), 7.67(d, 1H), 7.42(dd, 1H), 7.28(d, 1H), 6.63(m, 1H), 6.38(d, 1H), 4.88(s, 1H), 4.56(d, 2H)。

[0692] 步骤 B:制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0693] 在圆底烧瓶内,将二环己基碳二亚胺的溶液(4.12g, 20mmol 的 10mL 二氯甲烷溶液)加入到 6-氯-N-2-吡啶基-3-吡啶甲胺(即步骤 A 中的产物)(2.19g, 10mmol)和丙二酸(1.04g, 10mmol)的二氯甲烷(10mL)溶液中。将反应混合物在室温下搅拌 16-24 小时。然后将反应混合物过滤,并且用乙醚洗涤滤饼。将滤液减压浓缩,并且用甲醇洗涤所得残余物,获得浅黄色固体状标题化合物(化合物编号 611)(本发明的化合物)(2.54g)。

[0694] ^1H NMR(丙酮- d_6) δ 9.32(d, 1H), 8.52(s, 1H), 8.29(dd, 1H), 7.79(m, 2H), 7.52(t, 1H), 7.42(d, 1H), 5.63(s, 2H), 5.03(s, 1H)。

[0695] 步骤 C:制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-3-碘-4-氧代-4H-吡啶并

[1,2-a] 嘧啶鎓内盐

[0696] 将 N-碘琥珀酰亚胺 (1.12g, 5mmol) 加入到 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐 (即步骤 B 中的产物) (1.4g, 5mmol) 的 N,N-二甲基甲酰胺 (10mL) 溶液中, 并且搅拌 5 分钟。加入水, 并且用二氯甲烷萃取所述混合物。用水反复洗涤合并的有机相, 在 Na₂SO₄ 上干燥, 并且减压浓缩。所得粗产物 (化合物编号 118) (本发明的化合物) (1.8g) 无需进一步纯化即可用于下一步中。

[0697] ¹H NMR (CDCl₃) δ 9.49 (d, 1H), 8.45 (d, 1H), 8.12 (dd, 1H), 7.40 (m, 2H), 7.32 (d, 1H), 5.50 (s, 2H)。

[0698] 步骤 D: 制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-3-[2-氟-5-(三氟甲氧基)苯基]-2-羟基-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐

[0699] 将 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-3-碘-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐 (即步骤 C 中的产物) (206mg, 0.5mmol)、2-氟-5-(三氟甲氧基)苯硼酸 (224mg, 1mmol) 和二氯化双(三苯基膦)合钼 (35mg, 0.005mmol) 溶于二氧杂环己烷 (2mL) 中。加入碳酸钠水溶液 (2N, 1mL), 并且在微波反应器中使反应混合物在 160℃ 下加热 10 分钟。将冷却的反应混合物直接倒入到硅胶柱上, 并且相继用己烷、30% 乙酸乙酯的己烷溶液、50% 乙酸乙酯的己烷溶液、以及最后用乙酸乙酯洗脱, 获得固体状标题化合物 (化合物编号 58) (本发明的化合物) (20mg)。

[0700] ¹H NMR (CDCl₃) δ 9.53 (d, 1H), 8.49 (s, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.69 (d, 1H), 7.50 (d, 1H), 7.41 (m, 2H), 7.34 (d, 1H), 7.16 (d, 2H), 7.58 (br s, 2H)。

[0701] 合成实施例 4

[0702] 制备 2-羟基-4-氧代-3-苯基-1-(2-丙烯-1-基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐

[0703] 将 N-2-丙烯-1-基-2-吡啶胺 (670mg, 5mmol) 和 2-苯基丙二酸 1,3-二(2,4,6-三氯苯酯) (3.0g, 6mmol) 溶于二氧杂环己烷 (3mL) 中, 并且在 60℃ 下加热 15 分钟。然后将反应混合物倒入到硅胶柱上, 用 50% 乙酸乙酯的己烷溶液洗脱, 获得固体状标题化合物 (化合物编号 122) (本发明的化合物) (14mg)。

[0704] ¹H NMR (CDCl₃) δ 9.52 (d, 1H), 8.04 (dd, 1H), 7.76 (d, 1H), 7.2-7.45 (m, 6H), 5.95 (m, 1H), 5.34 (d, 1H), 5.30 (d, 1H), 5.01 (d, 2H)。

[0705] 合成实施例 5

[0706] 制备 2-羟基-4-氧代-3-苯基-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐

[0707] 步骤 A: 制备 N-(2,2,2-三氟乙基)-2-吡啶胺

[0708] 在微波反应器中, 将 2-氟吡啶 (2.00g, 20.6mmol) 和 2,2,2-三氟乙胺盐酸盐 (5.00g, 36.9mmol) 的混合物在 220℃ 下加热 30 分钟。将相同的反应重复 5 次。将得自所有 6 批反应的反应混合物冷却, 合并然后用乙酸乙酯 (150mL) 稀释。通过用饱和碳酸氢钠水溶液、水 (30mL) 和盐水 (30mL) 洗涤, 中和有机混合物。在 Na₂SO₄ 上干燥有机相并且浓缩, 并且使用 80% 乙酸乙酯/己烷作为洗脱剂, 在硅胶上经由层析纯化所得残余物, 获得白色固体状标题化合物 (17.0g)。

[0709] ^1H NMR(CDCl_3) δ 8.15(d, 1H), 7.45(dd, 1H), 6.69(dd, 1H), 6.49(d, 1H), 4.58(br s, 1H), 4.11(q, 2H)。

[0710] 步骤 B: 制备 2- 苯基丙二酸 1,3- 二 (2,4,6- 三氯苯酯)

[0711] 在室温下向苯基丙二酸 (5.00g, 27.8mmol) 的二氯甲烷 (7mL) 浆液中, 加入一滴 N, N- 二甲基甲酰胺, 然后以一定的速率滴加草酰氯 (9.09g, 71.6mmol), 以保持气体在受控下析出。将反应混合物在室温下再搅拌一小时, 期间反应混合物变澄清。加入 2,4,6- 三氯苯酚 (15g, 76mmol), 并且将反应混合物在室温下搅拌 18 小时。将反应混合物减压浓缩, 将甲醇 (100mL) 加入到残余物中, 这致使大量固体沉淀出来。过滤收集固体, 用甲醇 (80mL) 淋洗并且风干, 获得白色固体状标题产物 (13g)。

[0712] ^1H NMR(CDCl_3) δ 7.64-7.62(m, 2H), 7.46-7.43(m, 3H), 7.36(s, 4H), 5.32(s, 1H)。

[0713] 步骤 C: 制备 2- 羟基 -4- 氧代 -3- 苯基 -1-(2,2,2- 三氟乙基) -4H- 吡啶并 [1, 2-a] - 嘧啶铕内盐

[0714] 将 N-(2,2,2- 三氟乙基) -2- 吡啶胺 (即步骤 A 中的产物) (2.00g, 11.4mmol) 和 2- 苯基丙二酸 1,3- 二 (2,4,6- 三氯苯酯) (即步骤 B 中的产物) (6.40g, 11.9mmol) 的甲苯 (40mL) 溶液回流 1 小时。将反应混合物在冰 - 水浴中冷却, 同时搅拌 2 小时。过滤收集沉淀出的固体, 用乙醚淋洗并且风干, 获得黄色固体状标题化合物 (化合物编号 7) (本发明的化合物) (3.44g)。

[0715] ^1H NMR($\text{CD}_3\text{S}(\text{O})\text{CD}_3$) δ 9.37(d, 1H), 8.42(m, 1H), 8.11(d, 1H), 7.66(d, 2H), 7.61(m, 1H), 7.32(t, 2H), 7.18(t, 1H), 5.35(q, 2H)。

[0716] 合成实施例 6

[0717] 制备 8-[(6- 氯 -3- 吡啶基) 甲基] -7- 羟基 -5- 氧代 -6-[3-(三氟甲氧基) 苯基] -5H- 噻唑并 [3,2-a] 嘧啶铕内盐

[0718] 步骤 A: 制备 N-[(6- 氯 -3- 吡啶基) 亚甲基] -2- 噻唑胺

[0719] 在室温下将 2- 氨基噻唑 (0.75g, 7.5mmol) 加入到 2- 氯吡啶 -5- 甲醛 (1.0g, 7.1mmol) 的二氯甲烷 (25mL) 溶液中。将悬浮液再搅拌 10 分钟, 然后减压浓缩至干。将所得残余物在配备不可返回式防爆沸球的旋转蒸发器上加热至 90°C, 以有利于除水。30 分钟后, 由 NMR 检测所得黄色固体, 以证实反应完全 (根据 10.10ppm 处醛特征峰 (s, 1H) 消失)。获得黄色固体状标题化合物 (1.55g), 并且无需进一步纯化即可用于下一步中。 ^1H NMR(CDCl_3) δ 9.10(s, 1H), 8.84(d, 1H), 8.35-8.32(dd, 1H), 7.72-7.70(d, 1H), 7.48-7.46(d, 1H), 7.32-7.31(d, 1H)。

[0720] 步骤 B: 制备 6- 氯 -N-2- 噻唑基 -3- 吡啶甲胺

[0721] 将 N-[(6- 氯 -3- 吡啶基) 亚甲基] -2- 噻唑胺 (即步骤 A 中的产物) (0.55g, 2.46mmol) 分批加入到搅拌着的过量硼氢化钠 (0.45g, 11.8mmol) 的甲醇 (30mL) 溶液中。在加入亚胺期间, 加入额外份额的硼氢化钠 (2×1 当量), 以维持放热反应。在加料完成后, 使反应混合物在环境温度下搅拌 5 分钟。通过加入冰醋酸淬灭过量的还原剂, 直至气体停止析出。将透明的反应混合物浓缩, 并且使所得残余物在饱和碳酸钠水溶液与乙酸乙酯间分配。用乙酸乙酯 (3×30mL) 萃取含水相, 并且用盐水洗涤合并的有机相, 干燥 (MgSO_4) 并且浓缩, 获得棕褐色粉末状标题化合物 (0.55g)。

[0722] ^1H NMR(CDCl_3) δ 8.39(d, 1H), 7.71-7.68(dd, 1H), 7.30-7.28(d, 1H), 6.98(d, 1H),

6.48(d, 1H), 4.48(s, 2H)。

[0723] 步骤 C: 制备 2-[3-(三氟甲氧基)苯基]丙二酸

[0724] 在 65℃ 下, 使 3-三氟甲氧基苯基丙二酸二乙酯 (3.00g, 9.38mmol) 在氢氧化钠水溶液 (15g, 20 重量%) 中搅拌 10 分钟。然后在冰浴中冷却反应混合物, 并且将冰 (7g) 加入到反应混合物中, 然后加入 6N 盐酸以将 pH 调节至约 2。用氯化钠饱和含水混合物, 并且用乙酸乙酯萃取三次。干燥 (MgSO₄) 合并的有机相并且浓缩, 获得固体, 用 33% 乙醚/己烷的混合物将所述固体粉化, 获得白色固体状标题化合物 (2.24g)。

[0725] ¹H NMR (CD₃C(O)CD₃) δ 11.51 (br s, 2H), 7.54-7.51 (m, 3H), 7.35-7.30 (m, 1H), 4.91 (s, 1H)。

[0726] 步骤 D: 制备 8-[6-氯-3-吡啶基]甲基]-7-羟基-5-氧代-6-[3-(三氟甲氧基)苯基]-5H-噻唑并[3,2-a]嘧啶铕内盐

[0727] 在环境温度下, 将草酰氯 (1.0mL, 11mmol) 滴加到包含催化量 N,N-二甲基甲酰胺的 2-[3-(三氟甲氧基)苯基]丙二酸 (即步骤 C 中的产物) (0.17g, 0.66mmol) 的二氯甲烷 (0.2mL) 浆液中。将反应混合物再搅拌 10 分钟, 期间气体停止析出。在环境温度下将反应混合物短暂地减压浓缩。将所得的油溶解于二氯甲烷 (2mL) 中, 并且在 0℃ 下加入到 6-氯-N-2-噻唑基-3-吡啶甲胺 (即步骤 B 中的产物) (0.23g, 1.02mmol) 和三乙胺 (0.40g, 3.37mmol) 的二氯甲烷 (4mL) 溶液中。搅拌 15 分钟后, 将反应混合物浓缩, 并且使用 50-100% 乙酸乙酯/己烷作为洗脱剂, 在硅胶上经由层析纯化所得残余物, 获得固体状标题化合物 (化合物编号 138) (本发明的化合物) (0.19g)。

[0728] ¹H NMR (CDCl₃) δ 8.50 (s, 1H), 8.25 (d, 1H), 7.87 (d, 1H), 7.75 (d, 1H), 7.70 (s, 1H), 7.41-7.35 (m, 2H), 7.08 (d, 1H), 7.03 (d, 1H), 5.29 (s, 2H)。

[0729] 合成实施例 7

[0730] 制备 2-羟基-4-氧代-1-丙基-3-[2-(三氟甲基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐和 2-羟基-4-氧代-1-丙基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0731] 步骤 A: 制备 2-羟基-4-氧代-1-丙基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0732] 将二环己基碳二亚胺的溶液 (15.63g 溶于 45mL 二氯甲烷中, 75.76mmol) 加入到 N-丙基-2-氨基吡啶 (5.16g, 37.8mmol) 和丙二酸 (3.94g, 37.8mmol) 的二氯甲烷 (90mL) 溶液中。使反应混合物在室温下搅拌 24 小时。然后使反应混合物过滤通过 Celite® 垫, 并且用二氯甲烷洗涤滤饼。浓缩合并的有机相, 并且使用 50-100% 乙酸乙酯/己烷作为洗脱剂, 在硅胶上通过层析纯化所得残余物, 获得浅黄色固体状标题化合物 (化合物编号 609) (本发明的化合物) (5.60g)。

[0733] ¹H NMR (CDCl₃) δ 9.40 (d, 1H), 8.15 (t, 1H), 7.42 (d, 1H), 7.30 (t, 1H), 5.38 (s, 1H), 4.24 (t, 2H), 1.88 (m, 2H), 1.06 (t, 3H)。

[0734] 步骤 B: 制备 2-羟基-4-氧代-1-丙基-3-[2-(三氟甲基)苯基]-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0735] 将 2-羟基-4-氧代-1-丙基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐 (即步骤 A 中的产物) (500mg, 2.45mmol)、1-碘-2-(三氟甲基)苯 (0.34mL, 2.45mmol)、碘化铜 (46.6mg, 0.245mmol)、1,10-菲咯啉 (44.1mg, 0.245mmol) 和碳酸铕 (798mg, 2.45mmol) 混合于 N,

N-二甲基甲酰胺 (3mL) 中。氮气下, 将反应混合物在 118℃ 下加热 24 小时。将反应混合物冷却并且浓缩, 并且使用 30-90% (1 : 1 乙腈 / 甲醇) / 水梯度洗脱, 在 XTerra® C18 OBD 柱 (5 微米颗粒, 30×100mm, 由 Waters 制造) 上经由反向液相色谱法纯化所得残余物, 获得固体状标题化合物 (化合物编号 308) (本发明的化合物) (20mg)。

[0736] ^1H NMR (CDCl_3) δ 9.44 (d, 1H), 8.13 (t, 1H), 7.75 (d, 1H), 7.58 (t, 1H), 7.42-7.52 (m, 3H), 7.35 (t, 1H), 4.42-4.35 (m, 1H), 4.24-4.18 (m, 1H), 1.80 (q, 2H), 1.05 (t, 3H)。

[0737] 合成实施例 8

[0738] 制备 2-羟基-3-碘-1-[[2-(3-甲氧基苯基)-5-噻唑基]甲基]-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐

[0739] 步骤 A: 制备 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-碘-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐

[0740] 将 N-碘琥珀酰亚胺 (2.19g, 9.76mmol) 加入到 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-碘-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐 (即实施例 2 步骤 C 中的产物) (2.9g, 9.76mmol) 的 N,N-二甲基甲酰胺 (30mL) 溶液中, 并且将所述混合物搅拌 5 分钟。加入水, 并且用乙酸乙酯萃取所述混合物。用水将合并的有机相洗涤若干次, 在 Na_2SO_4 上干燥并且减压浓缩。所得粗产物 (化合物编号 608) (1.2g) (本发明的化合物) 无需进一步纯化即可用于下一步中。

[0741] ^1H NMR (CD_3COCD_3) δ 9.36 (d, 1H), 8.45 (t, 1H), 8.20 (d, 1H), 7.94 (s, 1H), 7.58 (t, 1H), 5.77 (s, 2H)。

[0742] 步骤 B: 制备 2-羟基-3-碘-1-[[2-(3-甲氧基苯基)-5-噻唑基]甲基]-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐

[0743] 将 1-[(2-氯-5-噻唑基)甲基]-2-羟基-3-碘-4-氧代-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐 (即步骤 A 中的产物) (250mg, 0.59mmol)、3-甲氧基苯硼酸 (89mg, 0.59mmol) 和二氯化双(三苯基膦)合钼 (II) (20mg, 0.029mmol) 溶于二氧杂环己烷 (3mL) 中。加入碳酸钠水溶液 (2N, 1mL), 并且在微波反应器中使反应混合物在 150℃ 下加热 15 分钟。将冷却的反应混合物直接倒入到硅胶柱上, 并且相继用己烷、30% 乙酸乙酯的己烷溶液、50% 乙酸乙酯的己烷溶液、以及最后用乙酸乙酯洗脱, 获得固体状标题化合物 (化合物编号 613) (本发明的化合物) (35mg)。

[0744] ^1H NMR (CD_3COCD_3) δ 9.38 (d, 1H), 8.43 (t, 1H), 8.20 (d, 1H), 8.13 (s, 1H), 7.58 (t, 1H), 7.50 (m, 2H), 7.39 (t, 1H), 7.02 (d, 1H), 5.88 (br s, 2H), 3.86 (s, 3H)。

[0745] 合成实施例 9

[0746] 制备 2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-3-[2,2,2-三氟-1-(甲氧基氨基)乙基]-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐、2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐、和 2-羟基-4-氧代-3-(2,2,2-三氟乙酰基)-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐

[0747] 步骤 A: 制备 2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶

铕内盐

[0748] 在圆底烧瓶内,将二环己基碳二亚胺的溶液(1.0M的二氯甲烷溶液,108mL,108mmol)加入到N-(2,2,2-三氟乙基)-2-吡啶胺(即实施例5步骤A中的产物)(9.51g,54.0mmol)和丙二酸(5.62g,54.0mmol)的二氯甲烷(190mL)溶液中。将反应混合物在室温下搅拌24小时。然后将反应混合物通过 Celite® 垫过滤,并且用二氯甲烷洗涤滤饼。将合并的有机相减压浓缩,并且使用50-100%乙酸乙酯/己烷作为洗脱剂,在硅胶上经由层层析纯化所得残余物,以获得浅黄色固体状标题化合物(化合物编号610)(本发明的化合物)(7.0g)。

[0749] ^1H NMR($\text{CD}_3\text{S}(\text{O})\text{CD}_3$) δ 9.22(d,1H),8.42(t,1H),8.11(d,1H),7.59(t,1H),5.25(q,2H),4.96(s,1H)。

[0750] 步骤B:制备2-羟基-4-氧代-3-(2,2,2-三氟乙酰基)-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐

[0751] 将2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐(即步骤A中的产物)(1.12g,4.57mmol)、1,4-二氮杂二环[2.2.2]辛烷(132.0mg,1.12mmol)和三氟乙酸酐(1.50mL,10.92mmol)溶于1-甲基-2-吡咯烷酮(10mL)中,并且将反应混合物在室温下搅拌18小时。用乙酸乙酯(250mL)稀释所述混合物,用饱和碳酸氢钠水溶液(150mL)和水($3\times 100\text{mL}$)洗涤,并且浓缩。用乙醚粉化残余物,获得固体状标题化合物(化合物编号711)(本发明的化合物)(1.10g)。

[0752] ^1H NMR($\text{CD}_3\text{S}(\text{O})\text{CD}_3$) δ 9.25(d,1H),8.58(t,1H),8.10(d,1H),7.65(t,1H),5.25(q,2H)。

[0753] 步骤C:制备2-羟基-4-氧代-1-(2,2,2-三氟乙基)-3-[2,2,2-三氟-1-(甲氧基氨基)乙基]-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐

[0754] 将2-羟基-4-氧代-3-(2,2,2-三氟乙酰基)-1-(2,2,2-三氟乙基)-4H-吡啶并[1,2-a]-嘧啶铕内盐(即步骤B中的产物)(75mg,0.22mmol)和甲氧基胺盐酸盐(62mg,0.74mmol)的乙醇(7mL)溶液回流3小时。减压浓缩溶剂,并且加入乙酸乙酯(60mL)。相继用稀氢氧化钠溶液(3mL 1N的NaOH和30mL水)和水(20mL)洗涤有机相。然后使有机相过滤通过用 Celite® 预填装的 Chem Elut™ 料筒(由 Varian 制得),并且浓缩成粗制油。使用乙酸乙酯洗脱,在 Analtech Uniplat™ (20×20cm,2000 微米硅胶层)上经由制备性薄层层析纯化所得残余物,获得粘稠油状标题化合物(化合物编号637)(本发明的化合物)(53mg,1:1的E和Z异构体的混合物)。

[0755] ^1H NMR(CDCl_3) δ 9.49(d,0.5H),9.47(d,0.5H),8.23(t,1H),7.61(d,1H),7.50(m,1H),5.00(m,2H),4.10(s,1.5H),4.04(s,1.5H)

[0756] 合成实施例10

[0757] 制备1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-4-羟基-2-亚氨基-3-(2-甲氧基苯基)-2H-吡啶并[1,2-a]嘧啶铕内盐

[0758] 步骤A:制备 α -氰基-2-甲氧基苯乙酸苯酯

[0759] 在室温下,向氢化钠(3.39g,60%的矿物油分散体,84.9mmol)的四氢呋喃(200mL)浆液中,滴加入2-(2-甲氧基苯基)乙腈(10.0g,67.9mmol)。然后将反应混合

物加热至回流,并且灰色的悬浮液在 30 分钟内变成深红色。滴加碳酸二苯酯 (18.2g, 84.9mmol),并且将反应悬浮液在回流下再加热 18 小时。将反应混合物冷却,倒入到 1N HCl (200mL) 中,并且用乙酸乙酯 (3×200mL) 萃取。合并有机相,在硫酸镁上干燥,在 **Celite**® 上过滤并且减压浓缩。使用 10-90% 乙酸乙酯 / 己烷作为洗脱剂,在硅胶上经由层析纯化所得残余物,获得浅黄色固体状标题化合物 (14.3g)。

[0760] $^1\text{H NMR}(\text{CD}_3\text{S}(\text{O})\text{CD}_3)$ δ 7.48-7.44(m, 3H), 7.31(t, 1H), 7.19-7.03(m, 4H), 6.75(d, 1H), 5.97(s, 1H), 3.93(s, 3H)。

[0761] 步骤 B:制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-4-羟基-2-亚氨基-3-(2-甲氧基苯基)-2H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐

[0762] 在氮气下,向包含 6-氯-N-2-吡啶基-3-吡啶甲胺 (0.82g, 3.74mmol) 的二甲苯 (100mL) 溶液中,加入 α -氰基-2-甲氧基苯乙酸苯酯 (即步骤 A 中的产物) (1.00g, 3.74mmol)。将反应混合物回流加热 24 小时。将所述混合物冷却,加入 **Celite**®,并且将二甲苯减压蒸发。使用 100% 乙酸乙酯至 1% 三乙基胺 / 40% 甲醇 / 59% 乙酸乙酯作为梯度洗脱剂,在硅胶上经由层析纯化所得残余物,获得固体霜膏状标题化合物 (化合物编号 662) (本发明的化合物) (4.7mg)。MS(AP+) = 393。

[0763] $^1\text{H NMR}(\text{CD}_3\text{COCD}_3)$ δ 8.47(d, 1H), 8.28(s, 1H), 7.83(t, 1H), 7.76(d, 1H), 7.38-7.27(m, 5H), 6.94-6.88(m, 2H), 5.71(s, NH), 5.62(s, 2H), 3.64(s, 3H)。

[0764] 合成实施例 11

[0765] 制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-苯基-4H-吡啶并[1,2-a]嘧啶鎓内盐

[0766] 步骤 A:制备 N-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-苯基-N-(2-吡啶基)丙酰胺酸乙酯

[0767] 依照“Journal of Organic Chemistry”(2000 年, 65, 第 5834-5836 页) 中的方法, 制备 2-苯基丙二酸一乙酯。将 2-苯基丙二酸一乙酯 (1.02g, 5.0mmol) 溶于无水二氯甲烷 (10mL) 中, 并且加入草酰氯 (0.52mL, 6.0mmol), 然后加入一滴 N, N-二甲基甲酰胺。将反应混合物搅拌 30 分钟, 然后浓缩, 再次溶于无水二氯甲烷 (5mL) 中, 并且在 0°C 下加入到 6-氯-N-2-吡啶基-3-吡啶甲胺 (即实施例 3 步骤 A 中的产物) (1.1g, 5.0mmol) 和三乙胺 (0.83mL, 6.0mmol) 的无水二氯甲烷 (5mL) 溶液中。使搅拌的反应混合物在 30 分钟内升温至室温。将反应混合物倒入到硅胶料筒 (Bond **Elute**®, 由 Varian 制造) 中, 并且使用 0-50% 乙酸乙酯 / 己烷梯度洗脱纯化。分离出所需产物和原料胺的混合物 (1.3g, 33mol% 回收的胺 / 67mol% 所需产物)。将 2-苯基丙二酸一乙酯 (0.54g, 2.6mmol) 溶于无水二氯甲烷 (3mL), 并且加入草酰氯 (0.26mL, 3.0mmol), 然后加入一滴 N, N-二甲基甲酰胺。将反应混合物搅拌, 直至气体停止析出, 然后浓缩, 再次溶于无水二氯甲烷 (3mL) 中, 并且加入到先前分离出的回收的胺和所需产物的混合物中。将反应混合物搅拌 30 分钟, 然后浓缩, 并且如前所述层析粗制残余物, 获得固体状标题化合物 (0.9g)。

[0768] $^1\text{H NMR}(\text{CDCl}_3)$ δ 8.50(m, 1H), 8.18(s, 1H), 7.60-7.75(m, 2H), 7.2-7.3(m, 5H), 7.13(m, 2H), 6.87(s, 1H), 5.13-4.88(dd, 2H), 4.86(s, 1H), 4.16(m, 2H), 1.22(t, 3H)。

[0769] 步骤 B:制备 1-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-羟基-4-氧代-3-苯基-4H-吡啶

并 [1,2-a] 嘧啶铕内盐

[0770] 将 N-[(6-氯-3-吡啶基)甲基]-2-苯基-N-(2-吡啶基)丙酰胺酸乙酯(即步骤 A 中的产物)(200mg, 0.49mmol) 加入到萘满(0.5mL) 中, 并且在 200°C 下加热 30 分钟。将反应混合物冷却并且浓缩, 并且使用 50-100% 乙酸乙酯/己烷作为洗脱剂, 在硅胶上经由层析纯化所得残余物, 获得固体状标题化合物(化合物编号 59)(本发明的化合物)(15mg)。

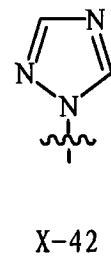
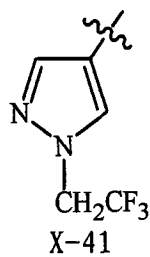
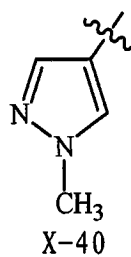
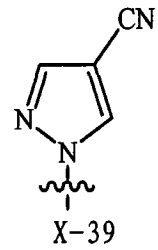
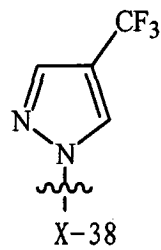
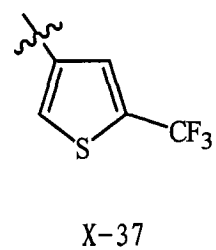
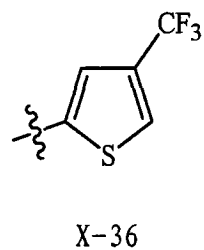
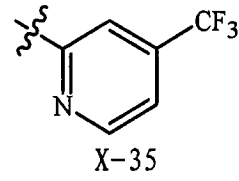
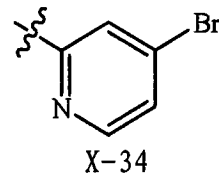
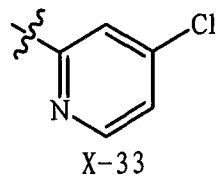
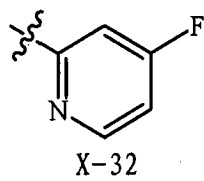
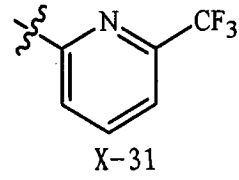
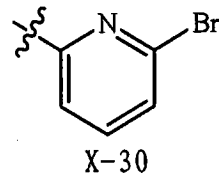
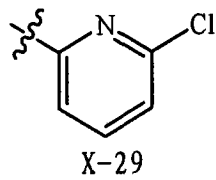
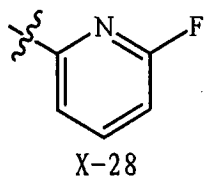
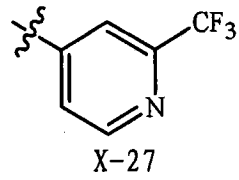
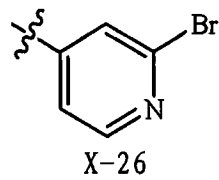
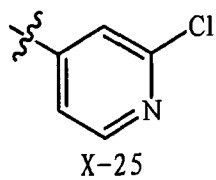
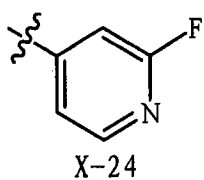
[0771] $^1\text{H NMR}$ (CDCl_3) δ 9.55 (dd, 1H), 8.47 (d, 1H), 8.04 (m, 1H), 7.98 (d, 2H), 7.70 (dd, 1H), 7.2-7.4 (m, 6H), 5.58 (s, 2H)。

[0772] 通过本文所述的方法以及本领域已知的方法, 可制得下表 1 至 8 中的化合物。表 1 至 8 中所用的缩写在下文显示为 X-1 至 X-128 以及 Y-1 至 Y-71。

[0773]

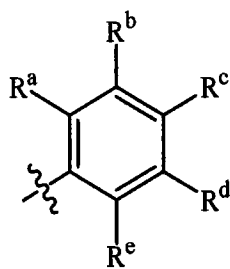
异丙基 X-1	异丁基 X-2	环丙基 X-3	环丁基 X-4	环戊基 X-5
环己基 X-6	CF_3 X-7	CH_2CF_3 X-8	C_2F_5 X-9	$\text{C}(\text{CF}_3)_2\text{F}$ X-10
1-萘基 X-11	2-萘基 X-12	4-氟-1-萘基 X-13	$\text{C}(\text{O})\text{Me}$ X-14	$\text{C}(\text{O})\text{CF}_3$ X-15
$\text{C}(\text{O})\text{Ph}$ X-16	$\text{C}(\text{O})\text{OMe}$ X-17	$\text{C}(\text{O})\text{OEt}$ X-18	$\text{C}(\text{O})\text{NHMe}$ X-19	$\text{C}(\text{O})\text{NHPh}$ X-20
$\text{C}(\text{S})\text{NHPh}$ X-21	$\text{C}(\text{O})\text{NH}(3\text{-甲氧基苯基})$ X-22	$\text{C}(=\text{NOEt})\text{CF}_3$ X-23		

[0774]



[0775] 缩写 X-50 至 X-128 涉及如下所示的取代的苯环。表中的空白项表示氢原子。

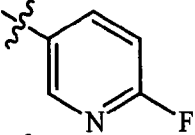
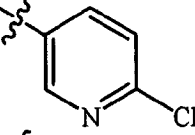
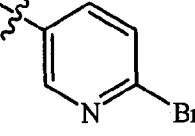
[0776]



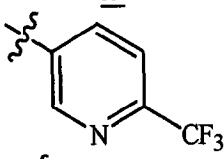
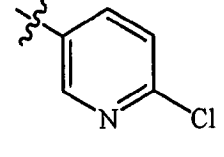
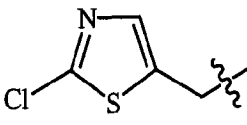
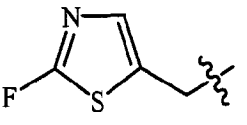
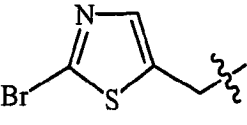
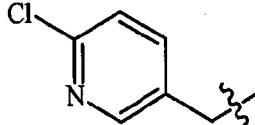
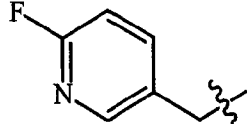
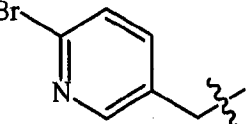
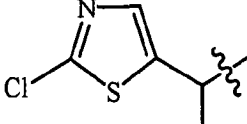
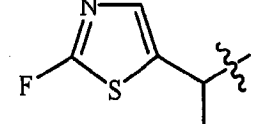
[0777]

	<u>R^a</u>	<u>R^b</u>	<u>R^c</u>	<u>R^d</u>	<u>R^e</u>
X-50	F				
X-51	OMe				
X-52	C1				
X-53		F			
X-54		OMe			
X-55		C1			
X-56			F		
X-57			OMe		
X-58			C1		
X-59		CF ₃			
X-60		OCF ₃			
X-61		SCF ₃			
X-62		SF ₃			
X-63		Br			
X-64			氟基		
X-65	F		CF ₃		
X-66	F		OCF ₃		
X-67	F		SCF ₃		
X-68	F		Br		
X-69	S (O) CF ₃				
X-70		S (O) CF ₃			
X-71			S (O) CF ₃		
X-72	C1		氟基		
X-73	C1		CF ₃		
X-74	C1		OCF ₃		
X-75	C1		SCF ₃		
X-76	C1		Br		
X-77		C1		CF ₃	
X-78		C1		OCF ₃	
X-79		C1		SCF ₃	
X-80		C1		Br	
X-81		Br		CF ₃	
X-82		Br		OCF ₃	
X-83		Br		SCF ₃	
X-84		Br		Br	
X-85	F			CF ₃	
X-86	F			OCF ₃	
X-87	F			SCF ₃	
X-88	F			Br	
X-89	F		F		F

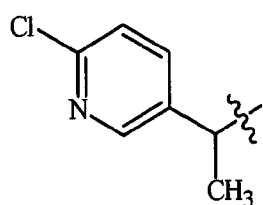
[0778]

	$\underline{R^a}$	$\underline{R^b}$	$\underline{R^c}$	$\underline{R^d}$	$\underline{R^e}$
X-90	F		F	F	
X-91		F		CF ₃	
X-92		F		OCF ₃	
X-93	F	CF ₃			
X-94	F	OCF ₃			
X-95		F		F	
X-96	OCHF ₂				
X-97		OCHF ₂			
X-98			OCHF ₂		
X-99	SCHF ₂				
X-100		SCHF ₂			
X-101			SCHF ₂		
X-102	F		F		
X-103	F	F			
X-104	F				F
X-105		CF ₃		CF ₃	
X-106	F			OMe	
X-107		OMe		OMe	
X-108	F	OMe			
X-109	F				OMe
X-110		OMe		CF ₃	
X-111		OMe		OCF ₃	
X-112		OMe		Cl	
X-113		OMe		Br	
X-114	OMe			CF ₃	
X-115	OMe			OCF ₃	
X-116	OMe			Cl	
X-117	OMe			Br	
X-118	OMe	F			
X-119	OMe	OMe			
X-120	OMe			F	
X-121					
X-122					
X-123					

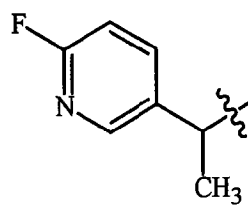
[0779]

	$\underline{R^a}$	$\underline{R^b}$	$\underline{R^c}$	$\underline{R^d}$	$\underline{R^e}$
X-124					
X-125				CF ₃	
X-126	OCHF ₂				
X-127		OCHF ₂			
X-128			OCHF ₂		
甲基	乙基	n-正丙基	n-正丁基		
Y-1	Y-2	Y-3	Y-4		
CHF ₂	CH ₂ CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CF ₂ Cl	异丙基		
Y-5	Y-6	Y-7	Y-8		
s-正丁基	i-正丁基	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	CH ₂ C(O)OCH ₃		
Y-9	Y-10	Y-11	Y-12		
CH ₂ CH ₂ SCH ₃	CH ₂ CH ₂ S(O)CH ₃	CH ₂ CH=CH ₂	CH ₂ C≡CH		
Y-13	Y-14	Y-15	Y-16		
环丙基	环丁基	CH ₂ CF ₃	CH(CH ₃)CF ₃		
Y-17	Y-18	Y-19	Y-20		
CH ₂ CF ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CHFCF ₂ Cl				
Y-21	Y-22				
					
Y-30	Y-31	Y-32	Y-33		
					
Y-34	Y-35	Y-36	Y-37		

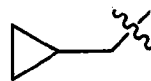
[0780]



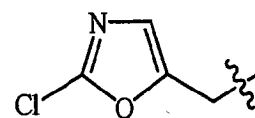
Y-38



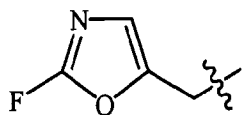
Y-39



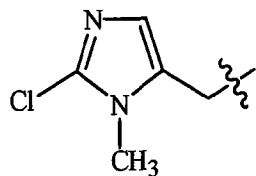
Y-40



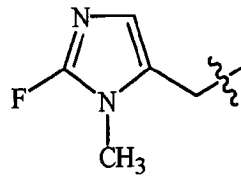
Y-41



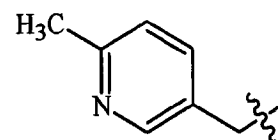
Y-42



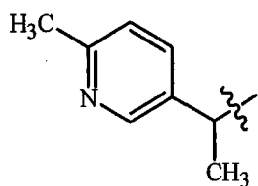
Y-43



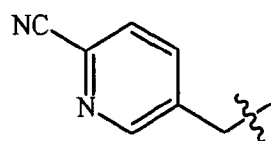
Y-44



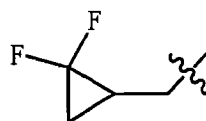
Y-45



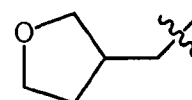
Y-46



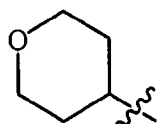
Y-47



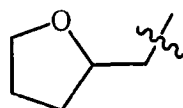
Y-48



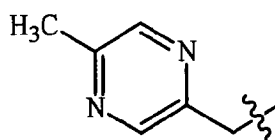
Y-49



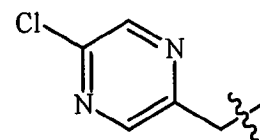
Y-50



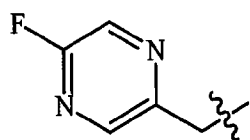
Y-51



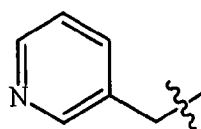
Y-52



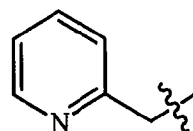
Y-53



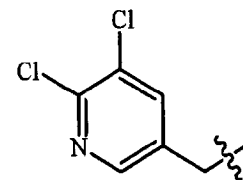
Y-54



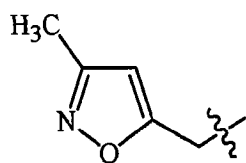
Y-55



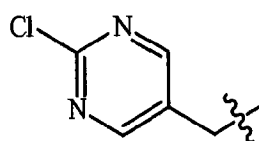
Y-56



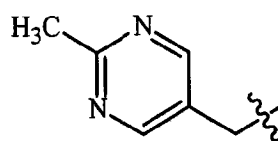
Y-57



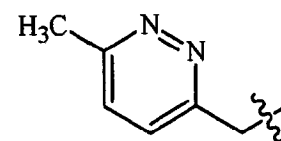
Y-58



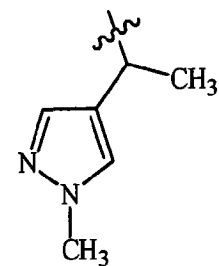
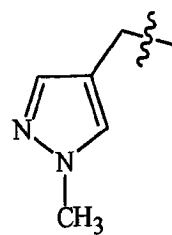
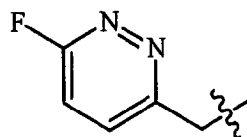
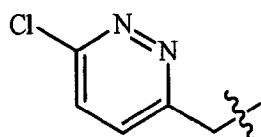
Y-59



Y-60

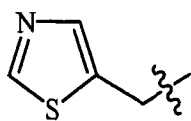


Y-61

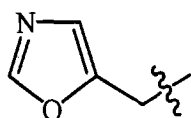


[0781]

Y-62

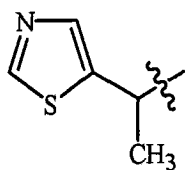


Y-66

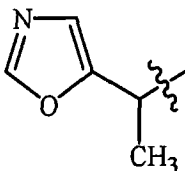


Y-70

Y-63

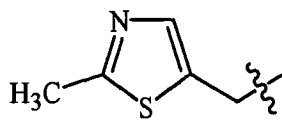


Y-67



Y-71

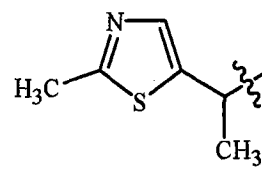
Y-64



Y-68



Y-65

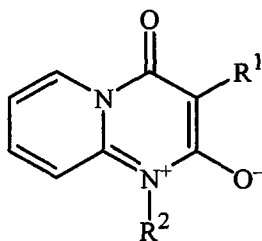


Y-69



表 1

[0782]

[0783] R^2 为 Y-1

[0784]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0785] R^2 为 Y-2

[0786]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57

X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0787] R^2 为 Y-3

[0788]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0789] R^2 为 Y-4

[0790]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0791] R^2 为 Y-5

[0792]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67

X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0793] R^2 为 Y-6

[0794]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0795] R^2 为 Y-7

[0796]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0797] R^2 为 Y-8

[0798]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57

X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0799] R^2 为 Y-9

[0800]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0801] R^2 为 Y-10

[0802]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0803] R^2 为 Y-11

[0804]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40

X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0805] R^2 为 Y-12

[0806]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0807] R^2 为 Y-13

[0808]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0809] R^2 为 Y-14

[0810]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57

X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0811] R^2 为 Y-15

[0812]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0813] R^2 为 Y-16

[0814]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0815] R^2 为 Y-17

[0816]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40

X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0817] R^2 为 Y-18

[0818]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0819] R^2 为 Y-19

[0820]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0821] R^2 为 Y-20

[0822]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30

X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0823] R^2 为 Y-21

[0824]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0825] R^2 为 Y-22

[0826]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0827] R^2 为 Y-30

[0828]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20

X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0829] R^2 为 Y-31

[0830]

R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10			
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20			
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30			
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40			
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57			
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67			
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77			
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87			
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97			
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107			
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117			
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127			
X-128												

[0831] R² 为 Y-32

[0832]

R ¹ ₁	R ¹ ₂	R ¹ ₃	R ¹ ₄	R ¹ ₅	R ¹ ₆	R ¹ ₇	R ¹ ₈	R ¹ ₉	R ¹ ₁₀
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0833] R² 为 Y-33

[0834]

R ¹ ₁	R ¹ ₂	R ¹ ₃	R ¹ ₄	R ¹ ₅	R ¹ ₆	R ¹ ₇	R ¹ ₈	R ¹ ₉	R ¹ ₁₀
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10

[0835] [0840]

X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0836] R^2 为 Y-34

[0837]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0838] R^2 为 Y-35

[0839]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0840] R^2 为 Y-36

[0841]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0842] R^2 为 Y-37

[0843]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0844] R^2 为 Y-38

[0845]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0846] R^2 为 Y-39

[0847]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0848] R^2 为 Y-40

[0849]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0850] R^2 为 Y-41

[0851]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0852] R^2 为 Y-42

[0853]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0854] R^2 为 Y-43

[0855]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0856] R^2 为 Y-44

[0857]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0858] R^2 为 Y-45

[0859]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0860] R^2 为 Y-46

[0861]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0862] R^2 为 Y-47

[0863]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127

X-128									
-------	--	--	--	--	--	--	--	--	--

[0864] R^2 为 Y-48

[0865]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0876] R^2 为 Y-49

[0866]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0867] R^2 为 Y-50

[0868]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0869] R^2 为 Y-51

[0870]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0871] R^2 为 Y-52

[0872]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0873] R^2 为 Y-53

[0874]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117

X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0875] R^2 为 Y-54

[0876]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0877] R^2 为 Y-55

[0878]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0879] R^2 为 Y-56

[0880]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107

X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0881] R^2 为 Y-57

[0882]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0897] R^2 为 Y-58

[0883]

R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10									
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20									
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30									
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40									
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57									
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67									
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77									
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87									
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97									
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107									
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117									
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127									
X-128																		

[0884] R² 为 Y-59

[0885]

R ¹ ₁	R ¹ ₂	R ¹ ₃	R ¹ ₄	R ¹ ₅	R ¹ ₆	R ¹ ₇	R ¹ ₈	R ¹ ₉	R ¹ ₁₀
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0886] R² 为 Y-60

[0887]

R ¹ ₁	R ¹ ₂	R ¹ ₃	R ¹ ₄	R ¹ ₅	R ¹ ₆	R ¹ ₇	R ¹ ₈	R ¹ ₉	R ¹ ₁₀
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10

[0888]

X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0889] R^2 为 Y-61

[0890]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0891] R^2 为 Y-62

[0892]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0893] R^2 为 Y-63

[0894]

R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0895] R² 为 Y-64

[0896]

R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0897] R² 为 Y-65

[0898]

R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹	R ¹
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0899] R² 为 Y-66

[0900]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0901] R^2 为 Y-67

[0902]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0903] R^2 为 Y-68

[0904]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0905] R^2 为 Y-69

[0906]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0907] R^2 为 Y-70

[0908]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0909] R^2 为 Y-71

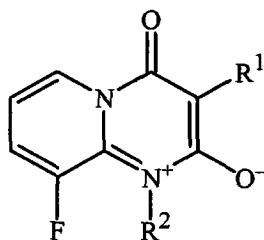
[0910]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-1	X-2	X-3	X-4	X-5	X-6	X-7	X-8	X-9	X-10
X-11	X-12	X-13	X-14	X-15	X-16	X-17	X-18	X-19	X-20
X-21	X-22	X-23	X-24	X-25	X-26	X-27	X-28	X-29	X-30
X-31	X-32	X-33	X-34	X-35	X-36	X-37	X-38	X-39	X-40
X-41	X-42	X-50	X-51	X-52	X-53	X-54	X-55	X-56	X-57
X-58	X-59	X-60	X-61	X-62	X-63	X-64	X-65	X-66	X-67
X-68	X-69	X-70	X-71	X-72	X-73	X-74	X-75	X-76	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-91	X-92	X-93	X-94	X-95	X-96	X-97
X-98	X-99	X-100	X-101	X-102	X-103	X-104	X-105	X-106	X-107
X-108	X-109	X-110	X-111	X-112	X-113	X-114	X-115	X-116	X-117
X-118	X-119	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125	X-126	X-127
X-128									

[0911] 表 2

[0912] 表 2 的构造与表 1 相同,不同的是表 1 标题下的化学结构被下列结构替代:

[0913]

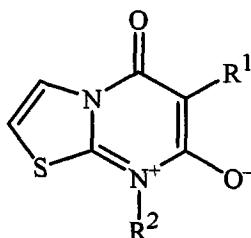


[0914] 例如,表 2 中的第一化合物是即上所示的结构,其中 R^1 为 X-1,并且 R^2 为 Y-1,如表 1 中所定义。

[0915] 表 3

[0916] 表 3 的构造与表 1 相同,不同的是表 1 标题下的化学结构被下列结构替代:

[0917]

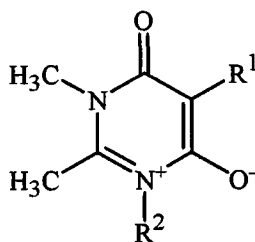


[0918] 例如,表 3 中的第一化合物是即上所示的结构,其中 R^1 为 X-1,并且 R^2 为 Y-1,如表 1 中所定义。

[0919] 表 4

[0920] 表 4 的构造与表 1 相同,不同的是表 1 标题下的化学结构被下列结构替代:

[0921]

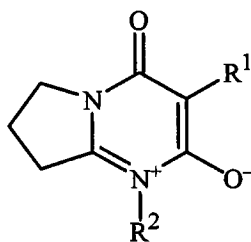


[0922] 例如,表 4 中的第一化合物是即上所示的结构,其中 R^1 为 X-1,并且 R^2 为 Y-1,如表 1 中所定义。

[0923] 表 5

[0924] 表 5 的构造与表 1 相同,不同的是表 1 标题下的化学结构被下列结构替代:

[0925]



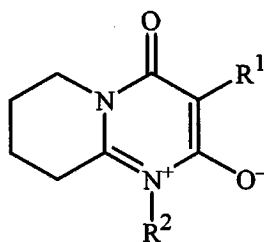
[0926] 例如,表 5 中的第一化合物是即上所示的结构,其中 R^1 为 X-1,并且 R^2 为 Y-1,如表

1 中所定义。

[0927] 表 6

[0928] 表 6 的构造与表 1 相同,不同的是表 1 标题下的化学结构被下列结构替代:

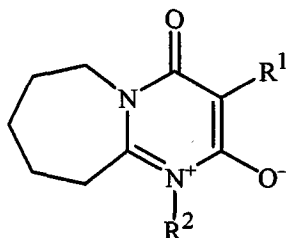
[0929]



[0930] 例如,表 6 中的第一化合物是即上所示的结构,其中 R^1 为 X-1,并且 R^2 为 Y-1,如表 1 中所定义。

[0931] 表 7

[0932]



[0933] R^2 为 Y-3

[0934]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0935] R^2 为 Y-19

[0936]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0937] R^2 为 Y-20

[0938]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0939] R^2 为 Y-22

[0940]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0941] R^2 为 Y-30

[0942]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0943] R^2 为 Y-31

[0944]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0945] R^2 为 Y-33

[0946]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0947] R^2 为 Y-34

[0948]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0949] R^2 为 Y-36

[0950]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87

X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0951] R^2 为 Y-37

[0952]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0953] R^2 为 Y-38

[0954]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0955] R^2 为 Y-39

[0956]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0957] R^2 为 Y-40

[0958]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0959] R^2 为 Y-45

[0960]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0961] R^2 为 Y-49

[0962]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0963] R^2 为 Y-52

[0964]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0965] R^2 为 Y-53

[0966]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0967] R^2 为 Y-55

[0968]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0969] R^2 为 Y-64

[0970]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0971] R^2 为 Y-65

[0972]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0973] R^2 为 Y-66

[0974]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0975] R^2 为 Y-67

[0976]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0977] R^2 为 Y-68

[0978]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0979] R^2 为 Y-69

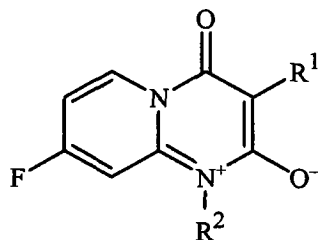
[0980]

R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1	R^1
X-15	X-17	X-25	X-26	X-27	X-31	X-35	X-50	X-51	X-52
X-53	X-54	X-55	X-56	X-57	X-59	X-60	X-61	X-63	X-77
X-78	X-79	X-80	X-81	X-82	X-83	X-84	X-85	X-86	X-87
X-88	X-89	X-90	X-93	X-94	X-97	X-100	X-102	X-103	X-105
X-106	X-107	X-108	X-118	X-120	X-121	X-122	X-123	X-124	X-125

[0981] 表 8

[0982] 表 8 的构造与表 7 相同,不同的是表 7 标题下的化学结构被下列结构替代:

[0983]

[0984] 例如,表 8 中的第一化合物是即上所示的结构,其中 R^1 为 X-15,并且 R^2 为 Y-3,如表 7 中所定义。

[0985] 本发明的化合物一般将用作组合物即制剂中的无脊椎害虫控制活性成分,所述组合物具有至少一种用作载体的附加组分,所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液

体稀释剂。选择所述制剂或组合物成分,以与所述活性成分的物理特性、应用方式和环境因素(如土壤类型、湿度和温度)相一致。

[0986] 有用的制剂包括液体和固体组合物。液体组合物包括溶液(包括乳油)、悬浮液、乳液(包括微乳液和/或悬乳液)等,它们可以任选地被稠化成凝胶。水性液体组合物的一般类型为可溶性浓缩物、悬浮液浓缩物、胶囊悬浮液、浓缩乳剂、微乳剂和悬乳剂。非水性液体组合物的一般类型为乳油、可微乳化的浓缩物、可分散浓缩物和油分散体。

[0987] 固体组合物的一般类型为粉剂、粉末、颗粒、粒料、小球、锭剂、片剂、填充膜(包括种子包衣)等,它们可以是水分散性的(“可润湿的”)或水溶性的。由成膜溶液或可流动悬浮液形成的膜和包衣尤其可用于种子处理。活性成分可被(微)胶囊包封,并且进一步形成悬浮液或固体制剂;作为另外一种选择,可将整个活性成分制剂胶囊包封(或“包覆”)。胶囊包封可以控制或延迟活性成分的释放。可乳化的颗粒结合了乳油制剂和干颗粒制剂两者的优点。高强度组合物主要用作其他制剂的中间体。

[0988] 可喷雾的制剂通常在喷雾之前分散在合适的介质中。将此类液体和固体制剂配制成为易于在喷雾介质(通常是水)中稀释的制剂。喷雾体积的范围可以为每公顷约一至数千升,更通常为每公顷约十至数百升。可喷雾的制剂可在水槽中与水或另一种合适的介质混合,用于通过空气或地面施用处理叶片,或者施用到植株的生长介质中。液体和干制剂可以直接定量加入到滴灌系统中,或者在栽培期间定量加入到垄沟中。液体和固体制剂可以在种植之前的种子处理时施用于作物和其他期望的植物的种子上,以便通过全身吸收来保护发育中的根和其他地面下的植物部分和/或叶。

[0989] 所述制剂通常将包含有效量的活性成分、稀释剂和表面活性剂,其在如下的大概的范围内,总和为按重量计 100%。

[0990]

	重量百分比		
	活性成分	稀释剂	表面活性剂
水分散性和水溶性的颗粒、 片剂和粉末	0.001-90	0-99.999	0-15
油分散体、悬浮液、乳液、 溶液(包括乳油)	1-50	40-99	0-50
粉剂	1-25	70-99	0-5
颗粒和粒料	0.001-95	5-99.999	0-15
高强度组合物	90-99	0-10	0-2

[0991] 固体稀释剂包括例如粘土例如膨润土、蒙脱石、绿坡缕石和高岭土、石膏、纤维素、二氧化钛、氧化锌、淀粉、糊精、糖(例如乳糖、蔗糖)、硅石、滑石、云母、硅藻土、尿素、碳酸钙、碳酸钠和碳酸氢钠以及硫酸钠。典型的固体稀释剂描述于 Watkins 等人的 Handbook of Insecticide Dust Diluents and Carriers 第 2 版(Dorland Books, Caldwell, New Jersey)中。

[0992] 液体稀释剂包括例如,水、N, N-二甲基烷酰胺(例如 N, N-二甲基甲酰胺)、柠檬烯、二甲基亚砷、N-烷基吡咯烷酮(例如 N-甲基吡咯烷酮)、乙二醇、三甘醇、丙二醇、双

丙二醇、聚丙二醇、碳酸亚丙酯、碳酸亚丁酯、石蜡（例如石蜡油、正链烷、异链烷烃）、烷基苯、烷基萘、甘油、三乙酸甘油酯、山梨醇、三乙酸甘油酯、芳族烃、脱芳构化脂族化合物、烷基苯、烷基萘、酮（诸如环己酮、2-庚酮、异佛尔酮和 4-羟基-4-甲基-2-戊酮）、乙酸酯（诸如乙酸异戊酯、乙酸己酯、乙酸庚酯、乙酸辛酯、乙酸壬酯、乙酸十三烷酯和乙酸异冰片酯）、其他酯（诸如烷基化的乳酸酯、二价酸酯和 γ -丁内酯）、以及可以是直链、支链、饱和或不饱和的醇（诸如甲醇、乙醇、正丙醇、异丙醇、正丁醇、异丁醇、正己醇、2-乙基己醇、正辛醇、癸醇、异癸醇、异十八醇、鲸蜡醇、月桂醇、十三烷醇、油醇、环己醇、四氢糠醇、双丙酮醇和苄醇。液体稀释剂还包括饱和的和不饱和的脂肪酸（通常为 C_6-C_{22} ）的甘油酯，如植物种子和果实的油（例如橄榄油、蓖麻油、亚麻籽油、芝麻油、玉米油、花生油、葵花籽油、葡萄籽油、红花油、棉籽油、豆油、油菜籽油、椰子油和棕榈仁油）、动物源脂肪（例如牛脂、猪脂、猪油、鳕鱼肝油、鱼油）、以及它们的混合物。液体稀释剂还包括烷基化（例如甲基化、乙基化、丁基化）的脂肪酸，其中脂肪酸可以通过源自植物和动物的甘油酯的水解获得，并且可通过蒸馏进行纯化。典型的液体稀释剂描述于 Marsden 的 *Solvents Guide* 第 2 版（Interscience, New York, 1950）中。

[0993] 本发明的固体和液体组合物通常包含一种或多种表面活性剂。当加进液体中时，表面活性剂（还被称为“表面活性试剂”）通常改变，最通常降低液体的表面张力。根据表面活性剂分子中的亲水基团和亲脂基团的性质，表面活性剂可用作润湿剂、分散剂、乳化剂或消泡剂。

[0994] 表面活性剂可分为非离子、阴离子或阳离子表面活性剂。可用于本发明的组合物的非离子表面活性剂包括但不限于：醇烷氧基化物，如基于天然醇和合成醇（其是支链或直链的）并且由醇和环氧乙烷、环氧丙烷、环氧丁烷或它们的混合物制得的醇烷氧基化物；胺乙氧基化物、链烷醇酰胺和乙氧基化链烷醇酰胺；烷氧基化甘油三酸酯，如乙氧基化豆油、蓖麻油和油菜籽油；烷基酚烷氧基化物，如辛基苯酚乙氧基化物、壬基苯酚乙氧基化物、二壬基苯酚乙氧基化物和十二烷基苯酚乙氧基化物（由苯酚和环氧乙烷、环氧丙烷、环氧丁烷或它们的混合物制得）；由环氧乙烷或环氧丙烷制得的嵌段聚合物，和其中末端嵌段由环氧丙烷制得的反式嵌段聚合物；乙氧基化脂肪酸；乙氧基化脂肪酯和油；乙氧基化甲基酯；乙氧基化三苯乙炔基苯酚（包括由环氧乙烷、环氧丙烷、环氧丁烷或它们的混合物制得的那些）；脂肪酸酯、甘油酯、基于羊毛脂的衍生物、多乙氧基化酯（如多乙氧基化脱水山梨糖醇脂肪酸酯、多乙氧基化山梨醇脂肪酸酯和多乙氧基化甘油脂肪酸酯）；其他脱水山梨糖醇衍生物，如脱水山梨糖醇酯；聚合物表面活性剂，如无规共聚物、嵌段共聚物、醇酸 peg（聚乙二醇）树脂、接枝或梳型聚合物以及星型聚合物；聚乙二醇（peg）；聚乙二醇脂肪酸酯；基于硅氧烷的表面活性剂；以及糖衍生物，如蔗糖酯、烷基多苷和烷基多糖。

[0995] 有用的阴离子表面活性剂包括但不限于：烷基芳基磺酸和它们的盐；羧化的醇或烷基苯酚乙氧基化物；二苯基磺酸酯衍生物；木质素和木质素衍生物，如木质素磺酸盐；马来酸或琥珀酸或它们的酸酐；烯基磺酸酯；磷酸酯，诸如醇烷氧基化物的磷酸酯、烷基酚烷氧基化物的磷酸酯和苯乙炔基苯酚乙氧基化物的磷酸酯；基于蛋白质的表面活性剂；肌氨酸衍生物；苯乙炔基苯酚醚硫酸盐；油和脂肪酸的硫酸盐和磺酸盐；乙氧基化烷基酚的硫酸盐和磺酸盐；醇的硫酸盐；乙氧基化醇的硫酸盐；胺和酰胺的磺酸盐，如 N,N-烷基牛磺酸盐；苯、异丙基苯、甲苯、二甲苯以及十二烷基苯和十三烷基苯的磺酸盐；缩聚萘的磺酸盐；

萘和烷基萘的磺酸盐 ; 石油馏分的磺酸盐 ; 磺基琥珀酰胺酸盐 ; 以及磺基琥珀酸盐和它们的衍生物, 如二烷基磺基琥珀酸盐。

[0996] 有用的阳离子表面活性剂包括但不限于 : 酰胺和乙氧基化酰胺 ; 胺, 如 N- 烷基丙二胺、三亚丙基三胺和二亚丙基四胺, 以及乙氧基化胺、乙氧基化二胺和丙氧基化胺 (由胺和环氧乙烷、环氧丙烷、环氧丁烷或它们的混合物制得) ; 胺盐, 如胺乙酸盐和二胺盐 ; 季铵盐, 如季盐、乙氧基化季盐和二季盐 ; 以及胺氧化物, 如烷基二甲基胺氧化物和二 - (2- 羟基乙基) - 烷基胺氧化物。

[0997] 还可用于本发明的组合物的是非离子表面活性剂和阴离子表面活性剂的混合物, 或非离子表面活性剂和阳离子表面活性剂的混合物。非离子、阴离子和阳离子表面活性剂及其推荐的应用公开于多种已公布的参考文献中, 包括由 McCutcheon's division (The Manufacturing Confectioner Publishing Co.) 公布的 McCutcheon 的 Emulsifiers and Detergents 北美和国际年鉴版 ; Sisely 和 Wood 的 Encyclopedia of Surface Active Agents (Chemical Publ. Co., Inc., New York, 1964) ; 以及 A. S. Davidson 和 B. Milwidsky 的 Synthetic Detergents 第七版 (John Wiley and Sons, New York, 1987)。

[0998] 本发明的组合物还可包含本领域技术人员已知为制剂助剂的制剂助剂和添加剂 (其中一些也可被认为是起到固体稀释剂、液体稀释剂或表面活性剂作用的)。此类制剂助剂和添加剂可控制 : pH (缓冲剂)、加工过程中的起泡 (消泡剂, 如聚有机硅氧烷)、活性成分的沉降 (悬浮剂)、粘度 (触变增稠剂)、容器内的微生物生长 (抗微生物剂)、产品冷冻 (防冻剂)、颜色 (染料 / 颜料分散体)、洗脱 (成膜剂或粘合剂)、蒸发 (防蒸发剂), 以及其他制剂属性。成膜剂包括例如聚乙酸乙烯酯、聚乙酸乙烯酯共聚物、聚乙烯吡咯烷酮 - 乙酸乙烯酯共聚物、聚乙烯醇、聚乙烯醇共聚物和蜡。制剂助剂和添加剂的实例包括由 McCutcheon's division, The Manufacturing Confectioner Publishing Co. 出版的 McCutcheon 的第 2 卷 : Functional Materials (北美和国际年鉴版) ; 和 PCT 公布 W003/024222 中所列的那些。

[0999] 通常通过将活性成分溶于溶剂中或通过液体或干稀释剂中研磨活性成分将式 1 的化合物和任何其他的活性成分掺入到本发明的组合物中。可通过简单地混合所述成分来制备溶液, 包括乳油。如果将用作乳油的液体组合物的溶剂是水不可混溶的, 则通常加入乳化剂使含有活性成分的溶剂在用水稀释时发生乳化。可使用介质磨来湿磨粒径为至多 2,000 μm 的活性成分浆液, 以获得平均直径低于 3 μm 的颗粒。可将含水浆液制备为成品悬浮液浓缩物 (参见例如 U. S. 3,060,084) 或通过喷雾干燥进一步加工以形成水分散性的颗粒。干制剂通常需要干研磨步骤, 其产生 2 至 10 μm 范围内的平均粒径。尘粉和粉末可以通过混合, 通常通过研磨 (例如用锤磨或流体磨) 制备。可通过将活性物质喷雾在预成形颗粒载体上或通过附聚技术来制备颗粒和粒料。参见 Browning 的 "Agglomeration" Chemical Engineering, 1967 年 12 月 4 日, 第 147-48 页, Perry 的 Chemical Engineer's Handbook 第 4 版 (McGraw-Hill, New York, 1963) 第 8-57 页及其后页, 以及 W091/13546。粒料可以如 U. S. 4,172,714 中所述来制备。可以如 U. S. 4,144,050、U. S. 3,920,442 和 DE 3,246,493 中所教导的来制备水分散性的和水溶性的颗粒。片剂可以如 U. S. 5,180,587、U. S. 5,232,701 和 U. S. 5,208,030 中所教导的来制备。膜剂可以如 GB 2,095,558 和 U. S. 3,299,566 中所教导的来制备。

[1000] 与配制领域相关的其他信息,参见 T.S.Woods 的“The Formulator’sToolbox-Product Forms for Modern Agriculture”(Pesticide Chemistry and Bioscience, The Food-Environment Challenge), T.Brooks 和 T.R.Roberts 编, Proceedings of the 9th International Congress on Pesticide Chemistry, The Royal Society of Chemistry, Cambridge,1999,第 120-133 页。还可参见 U.S. 3, 235, 361 第 6 栏第 16 行至第 7 栏第 19 行和实施例 10-41 ;U.S. 3, 309, 192 第 5 栏第 43 行至第 7 栏第 62 行和实施例 8、12、15、39、41、52、53、58、132、138-140、162-164、166、167 以及 169-182 ; U.S. 2, 891, 855 第 3 栏第 66 行至第 5 栏第 17 行和实施例 1-4 ;Klingman 的 Weed Control as a Science(John Wiley and Sons, Inc. , New York, 1961) 第 81-96 页 ;Hance 等人的 Weed Control Handbook 第 8 版 (Blackwell Scientific Publications, Oxford,1989) ; 和 Developments in formulation technology (PJB Publications, Richmond, UK, 2000)。

[1001] 在下列实施例中,所有制剂均以常规的方式制备。化合物编号与索引表 A 至 F 中的化合物相关。无需进一步详尽说明,据信本领域的技术人员使用以上所述内容可将本发明利用至最大限度。因此,以下实施例应理解为仅是例证性的,而不以任何方式限制本发明的公开内容。百分比为重量百分比,除非另外说明。

[1002] 实施例 A

[1003] 高强度浓缩物

[1004]	化合物 7	98.5%
[1005]	二氧化硅气凝胶	0.5%
[1006]	合成无定形精细二氧化硅	1.0%

[1007] 实施例 B

[1008] 可湿性粉末

[1009]	化合物 50	65.0%
[1010]	十二烷基苯酚聚乙二醇醚	2.0%
[1011]	木质素磺酸钠	4.0%
[1012]	硅酸铝钠	6.0%
[1013]	蒙脱石(锻烧过的)	23.0%

[1014] 实施例 C

[1015] 颗粒

[1016]	化合物 138	10.0%
[1017]	绿坡缕石颗粒(低挥发性物质,0.71/0.30mm ;	90.0%
[1018]	U.S.S.No. 25 至 50 目)	

[1019] 实施例 D

[1020] 挤出的粒料

[1021]	化合物 157	25.0%
[1022]	无水硫酸钠	10.0%
[1023]	粗木质素磺酸钙	5.0%
[1024]	烷基萘磺酸钠	1.0%
[1025]	钙/镁膨润土	59.0%

[1026]	实施例 E	
[1027]	<u>可乳化浓缩物</u>	
[1028]	化合物 7	10.0%
[1029]	聚氧乙烯山梨醇六油酸酯	20.0%
[1030]	C ₆ -C ₁₀ 脂肪酸甲酯	70.0%
[1031]	<u>实施例 F</u>	
[1032]	<u>微乳液</u>	
[1033]	化合物 50	5.0%
[1034]	聚乙烯吡咯烷酮 - 乙酸乙烯酯共聚物	30.0%
[1035]	烷基多苷	30.0%
[1036]	油酸单甘油酯	15.0%
[1037]	水	20.0%
[1038]	<u>实施例 G</u>	
[1039]	<u>种子处理剂</u>	
[1040]	化合物 138	20.00%
[1041]	聚乙烯吡咯烷酮 - 乙酸乙烯酯共聚物	5.00%
[1042]	褐煤酸蜡	5.00%
[1043]	木质素磺酸钙	1.00%
[1044]	聚氧乙烯 / 聚氧丙烯嵌段共聚物	1.00%
[1045]	硬脂醇 (POE 20)	2.00%
[1046]	聚有机硅	0.20%
[1047]	着色剂红色染料	0.05%
[1048]	水	65.75%
[1049]	<u>实施例 H</u>	
[1050]	<u>肥料棒</u>	
[1051]	化合物 157	2.50%
	吡咯烷酮-苯乙烯共聚物	4.80%
	三苯乙烯基苯基 16-乙氧基化物	2.30%
	滑石	0.80%
	玉米淀粉	5.00%
	硝基 phoska [®] Permanent 15-9-15 缓释肥料	36.00%
	(BASF)	
	高岭土	38.00%
	水	10.60%

[1052] 本发明的化合物表现出抗广谱无脊椎害虫活性。这些害虫包括栖息于多种环境诸如植物叶片、根茎、土壤、收割的作物或其他食品、建筑物或动物皮毛中的无脊椎害虫。这些害虫包括例如以叶片（包括叶片、茎秆、花朵 和果实）、种子、木材、纺织物纤维或动物血液或组织为食的无脊椎害虫，这些害虫对例如生长或储藏的农作物、森林作物、温室作物、观赏植物、苗圃作物、储藏的食品或纤维制品、或住房或其他结构或它们的内容物造成损坏或

损害,或对动物健康或公共卫生有害。本领域的技术人员将会知道,不是所有的化合物均对所有害虫的整个生长阶段具有同样的功效。

[1053] 因此,这些本发明的化合物和组合物在农业上可用于保护田地作物免受食植性无脊椎害虫的侵害,并且还可在非农业上用于保护其他园艺作物和植物免受食植性无脊椎害虫的侵害。该用途包括保护包含基因工程(即转基因)或诱变改性引入而提供有利特征的遗传物质的作物和其他植物(即农业和非农业)。此类特征的实例包括耐除草剂、耐食植性害虫(例如昆虫、螨虫、蚜虫、蜘蛛、线虫、蜗牛、植物病原真菌、细菌和病毒)、植物生长性改善、对不利生长环境(诸如高温或低温、低土壤湿度或高土壤湿度、和高盐度)的耐受性增强、开花或结果提高、收获量增大、成熟更快、所收获产品的质量和/或营养价值更高、或所收获产品的储藏或加工性改善。可将转基因植物改性,以表达多种特征。包含由基因工程或诱变提供的特征的植物实例包括表达除虫性苏云金芽孢杆菌毒素的各种玉米、棉花、大豆和马铃薯诸如 YIELD GARD[®]、KNOCKOUT[®]、STARLINK[®]、BOLLGARD[®]、NuCOTN[®]和 NEWLEAF[®],和各种耐除草剂的玉米、棉花、大豆和油菜籽诸如 ROUNDUP READY[®]、LIBERTY LINK[®]、IMI[®]、STS[®]和 CLEARFIELD[®],以及表达 N-乙酰转移酶(GAT) 以提供对草甘膦除草剂抗性的作物,或包含 HRA 基因、提供对除草剂的抗性、抑制乙酰乳酸合酶(ALS) 的作物。本发明的化合物和组合物可与由基因工程或诱变改性引入的特征协同相互作用,从而增强特征的表型表现或功效,或增强本发明的化合物和组合物的无脊椎害虫控制功效。具体地讲,本发明的化合物和组合物可与对无脊椎害虫具有毒性的蛋白质或其他天然产品的表型表现协同相互作用,以提供对这些害虫的大于累加的控制效果。

[1054] 本发明的组合物还可任选包含植物营养素,例如包含至少一种植物营养素的肥料组合物,所述植物营养素选自氮、磷、钾、硫、钙、镁、铁、铜、硼、锰、锌、和钼。值得注意的是包含至少一种肥料组合物的组合物,所述肥料组合物包含至少一种选自氮、磷、钾、硫、钙和镁的植物营养素。还包含至少一种植物营养素的本发明的组合物可为液体或固体形式。值得注意的是颗粒、小块或片剂形式的固体制剂。通过将本发明的化合物或组合物与肥料组合物以及配制成分一起混合,然后由诸如成粒或挤出的方法制得制剂,来制备包含肥料组合物的固体制剂。作为另外一种选择,通过将本发明的化合物或组合物在挥发性溶剂中的溶液或悬浮液喷雾到先前制得的尺寸稳定的混合物形式(例如颗粒、小块或片剂)的肥料组合物上,然后蒸发溶剂,制得固体制剂。

[1055] 农业或非农业无脊椎害虫的实例包括鳞翅目害虫的卵、幼虫和成虫,诸如夜蛾科粘虫、毛虫、尺蠖和棉铃虫(例如大螟(*SESAMIA INFERENS* WALKER)、玉米螟(*SESAMIA NONAGRIODES* LEFEBVRE)、南部灰翅夜蛾(*SPODOPTERA ERIDANIA* CRAMER)、秋粘虫(*SPODOPTERA FUGIPERDA* J.E. Smith)、甜菜夜蛾(*Spodoptera exigua* Hübner)、棉叶虫(*Spodoptera littoralis* Boisduval)、黄带粘虫(*Spodoptera ornithogalli* Guenée)、小地老虎(*Agrotis ipsilon* Hufnagel)、黎豆夜蛾(*Anticarsia gemmatilis* Hübner)、青虫(*Lithophane antennata* Walker)、甘蓝夜蛾(*Barathra brassicae* Linnaeus)、大豆夜蛾(*Pseudoplusia includens* Walker)、甘蓝银纹夜蛾(*Trichoplusia ni* Hübner)、烟草蚜虫(*Heliothis virescens* Fabricius));螟蛾科钻蛀虫、鞘蛾、结网毛虫、松果梢斑螟、菜青虫和雕叶虫(例如欧洲玉米螟(*Ostrinia nubilalis* Hübner)、脐橙螟(*Amyelois transitella* Walker)、玉米根部结网毛虫(*Crambus caliginosellus* Clemens)、草地螟

(螟蛾科 : 草螟亚科) 如稻切葉野螟 (*Herpetogramma licarsisalis* Walker)、甘蔗二点螟 (*Chilo infuscatellus* Snellen)、番茄小钻蛀虫 (*Neoleucinodes elegantalis* Guenée)、稻纵卷叶螟 (*Cnapha locerus medinalis*)、葡萄卷叶虫 (*Desmia funeralis* Hübner)、甜瓜野螟 (*Diaphania nitidalis* Stoll)、卷心菜芯蛱蛄 (*Helluala hydralis* Guenée)、三化螟 (*Scirpophaga incertulas* Walker)、幼嫩新梢钻蛀虫 (*Scirpophaga infuscatellus* Snellen)、稻白螟 (*Scirpophaga innotata* Walker)、甘蔗白禾螟蛾 (*Scirpophaga nivella* Fabricius)、黑头稻螟 (*Chilo polychrysus* Meyrick)、大菜螟 (*Crociodolomia binotalis* English)) ; 卷叶蛾科卷叶虫、蛱虫、种虫、和果虫 (例如苹果小卷蛾 (*Cydia pomonella* Linnaeus)、葡萄卷叶蛾 (*Endopiza viteana* Clemens)、梨小食心虫 (*Grapholita molesta* Busck)、苹果异形小卷蛾 (*Cryptophlebia leucotreta* Meyrick)、柑桔天牛 (*Ecdytolopha aurantiana* Lima)、红带卷蛾 (*Argyrotaenia velutinana* Walker)、玫瑰带纹卷叶蛾 (*Choristoneura rosaceana* Harris)、苹果浅褐卷叶蛾 (*Epiphyas postvittana* Walker)、女贞细卷蛾 (*Eupoecilia ambiguella* Hübner)、苹果顶芽卷叶蛾 (*Pandemis pyrusana* Kearfott)、杂食卷叶蛾 (*Platynota stultana* Walsingham)、葡萄褐卷蛾 (*Pandemis cerasana* Hübner)、苹褐卷叶蛾 (*Pandemis heparana* Denis & Schiffermüller)) ; 和许多其他经济上重要的鳞翅目昆虫 (例如小菜蛾 (*Plutella xylostella* Linnaeus)、棉红铃虫 (*Pectinophora gossypiella* Saunders)、舞毒蛾 (*Lymantria dispar* Linnaeus)、桃小食心虫 (*Carposina niponensis* Walsingham)、桃条麦蛾 (*Anarsia lineatella* Zeller)、马铃薯块茎蛾 (*Phthorimaea operculella* Zeller)、带状斑点潜叶虫 (*Lithocolletis blancardella* Fabricius)、苹果金纹细蛾 (*Lithocolletis ringoniella* Matsumura)、稻纵卷叶螟 (*Lerodea eufala* Edwards)、旋纹潜叶蛾 (*Leucoptera scitella* Zeller)) ; 蜚蠊目害虫的卵、蛹和成虫, 包括姬蠊科和蜚蠊科蟑螂 (例如东方蜚蠊 (*Blatta orientalis* Linnaeus)、亚洲蟑螂 (*Blattella asahinai* Mizukubo)、德国小蠊 (*Blattella germanica* Linnaeus)、褐带皮蠊 (*Supella longipalpa* Fabricius)、美洲大蠊 (*Periplaneta americana* Linnaeus)、褐色蜚蠊 (*Periplaneta brunnea* Burmeister)、马德拉蜚蠊 (*Leucophaea maderae* Fabricius)、黑胸大蠊 (*Periplaneta fuliginosa* Service)、澳洲大蠊 (*Periplaneta australasiae* Fabr.)、龙虾蟑螂 (*Nauphoeta cinerea* Olivier) 和 smooth cockroach (*Symploce pallens* Stephens)) ; 鞘翅目害虫的卵、以叶片、果实、根茎、种子、和泡囊组织为食的幼虫和成虫, 包括长角象鼻虫科、豆象科和象鼻虫科象鼻虫 (例如棉籽象鼻虫 (*Anthonomus grandis* Boheman)、稻水象甲 (*Lissorhoptrus oryzophilus* Kuschel)、谷象 (*Sitophilus granarius* Linnaeus)、米象 (*Sitophilus oryzae* Linnaeus)、早熟禾象鼻虫 (*Listronotus maculicollis* Dietz)、牧草长喙象 (*Sphenophorus parvulus* Gyllenhal)、猎长喙象 (*Sphenophorus venatus vestitus*)、丹佛长喙象 (*Sphenophorus cicatristriatus* Fahraeus)) ; 叶甲科跳甲、守瓜、根虫、叶甲、马铃薯甲虫、和潜叶虫 (例如科罗拉多马铃薯甲虫 (*Leptinotarsa decemlineata* Say)、西部玉米根虫 (*Diabrotica virgifera virgifera* LeConte)) ; 金龟子科金龟子和其他甲虫 (例如日本金龟子 (*Popillia japonica* Newman)、东方丽金龟 (*Anomala orientalis* Waterhouse、*Exomala orientalis* (Waterhouse) Baraud)、北方圆头犀金龟 (*Cyclocephala borealis* Arrow)、南方圆头犀金龟 (*Cyclocephala immaculata* Olivier 或 *C. lurida* Bland)、蜣螂和蛴螬 (蜉金

龟属)、草皮黑金龟 (*Ataenius spretulus* Haldeman)、绿金龟 (*Cotinis nitida* Linnaeus)、栗玛绒金龟 (*Maladera castanea* Arrow)、五月 / 六月鳃金龟 (鳃角金龟属) 和欧洲金龟子 (*Rhizotrogus majalis* Razoumowsky)); 皮蠹科皮蠹; 叩头虫科线虫; 小蠹虫科树皮甲虫和拟步行虫科面象虫。此外, 农业和非农业害虫包括: 革翅目害虫的卵、成虫和幼虫, 包括蠹蛾科蠹蛾 (例如欧洲球蛾 (*Forficula auricularia* Linnaeus)、黑蠹蛾 (*Chelisoches morio* Fabricius)); 半翅目和同翅目害虫的卵、幼虫、成虫和蛹, 诸如盲蝽科盲蝽、蝉科蝉、大叶蝉科叶蝉 (例如叶蝉属) 臭虫科臭虫 (例如温带臭虫)、蜡蝉科和稻虱科蜡蝉、角蝉科角蝉、木虱科木虱、粉虱科粉虱、蚜科蚜虫、根瘤蚜科根瘤蚜、粉蚧科粉蚧、介壳虫科、盾介壳虫科和硕介壳虫科蚧虫、网蝽科网蝽、蝽科椿象、长蝽科高粱长蝽 (例如毛长蝽 (*Blissus leucopterus hirtus* Montandon) 和南方麦小蝽 (*Blissus insularis* Barber)) 以及长蝽科其他长蝽、沫蝉科沫蝉、缘蝽科南瓜缘蝽、和红蝽科红蝽和污棉虫。还包括蜱螨目 (蜱) 害虫的卵、幼虫、蛹和成虫, 诸如叶螨科叶螨和红螨 (例如苹果红蜘蛛 (*Panonychus ulmi* Koch)、二斑叶螨 (*Tetranychus urticae* Koch)、McDaniel 叶螨 (*Tetranychus mcdanieli* McGregor)); 细须螨科短须螨 (例如荀短须螨 (*Brevipalpus lewisi* McGregor)); 瘿螨科锈瘿和芽瘿以及其他以叶片为食的螨虫和对人体健康和动物健康至关重要螨虫, 即蜻科尘螨、蠕形螨科腺囊螨、食甜螨科谷螨; 通常称为硬蜱的硬蜱科壁虱 (例如鹿蜱 (*Ixodes scapularis* Say)、澳洲致瘫蜱 (*Ixodes holocyclus* Neumann)、美洲犬蜱 (*Dermacentor variabilis* Say)、孤星虱 (*Amblyomma americanum* Linnaeus)) 和通常称为软蜱的隐喙蜱科壁虱 (例如回归热蜱 (*Ornithodoros turicata*)、常见鸡蜱 (*Argas radiatus*)); 痒螨科、蒲螨科和疥螨科痒螨和疥螨; 直翅目害虫的卵、成虫和幼虫, 包括蚱蜢、蝗虫和蟋蟀 (例如迁徙蚱蜢 (例如血黑蝗、殊种蝗)、美国蚱蜢 (例如南美沙漠蝗)、沙漠蝗 (*Schistocerca gregaria* Forskal)、飞蝗 (*Locusta migratoria* Linnaeus)、灌丛蝗 (腺蝗属)、家蟋 (*Acheta domesticus* Linnaeus)、蝼蛄 (例如黄褐色蝼蛄 (*Scapteriscus vicinus* Scudder) 和南部蝼蛄 (*Scapteriscus boreillii* Giglio-Tos)); 双翅目害虫的卵、成虫和幼虫, 包括潜叶虫 (例如斑潜蝇属, 如蔬菜斑潜蝇 (*Liriomyza sativae* Blanchard))、蠅、果蝇 (Tephritidae)、眼蝇 (例如瑞典麦秆蝇)、蛆、家蝇 (例如家蝇)、夏厕蝇 (例如黄腹厕蝇、*F. femoralis* Stein)、厩蝇 (例如厩螯蝇)、秋家蝇、螯蝇、丽蝇 (例如金蝇属、黑花蝇属) 以及其他蝇类害虫、马虻 (例如虻属)、肤蝇 (例如胃蝇属、狂蝇属)、牛皮蝇 (例如牛皮蝇属)、鹿虻 (例如斑虻属)、羊虻蝇 (例如羊虱蝇) 和其他短角亚目害虫、蚊 (例如伊蚊属、按蚊属、库蚊属)、墨蚊 (例如原蚋属、蚋属)、铁蠓、白蛉、尖眼蕈蚊以及其他长角亚目害虫; 缨尾目害虫的卵、成虫和幼虫, 包括葱蓟马 (*Thrips tabaci* Lindeman)、花蓟马 (花蓟马属) 以及其他以叶片为食的蓟马; 膜翅目昆虫害虫, 包括蚁科蚂蚁, 包括佛罗里达木蚁 (*Camponotus floridanus* Buckley)、红木蚁 (*Camponotus ferrugineus* Fabricius)、黑木蚁 (*Camponotus pennsylvanicus* De Geer)、白足蚁 (*Technomyrmex albipes* fr. Smith)、大头蚁 (大头蚁属)、黑头酸臭蚁 (*Tapinoma melanocephalum* Fabricius); 法老蚁 (*Monomorium pharaonis* Linnaeus)、小火蚁 (*Wasmannia auropunctata* Roger)、火蚁 (*Solenopsis geminata* Fabricius)、入侵红火蚁 (*Solenopsis invicta* Buren)、阿根廷蚁 (*Iridomyrmex humilis* Mayr)、疯蚁 (*Paratrechina longicornis* Latreille)、铺道蚁 (*Tetramorium caespitum* Linnaeus)、玉米毛蚁 (*Lasius alienus* **Förster**) 和臭家蚁 (*Tapinomasessile* Say)。其

他膜翅目害虫包括蜂（包括木匠蜂）、大胡蜂、胡蜂、黄蜂和锯蝇（新松叶蜂属；麦茎蜂属）；等翅目昆虫害虫，包括白蚁科白蚁（例如大白蚁属、胖土白蚁）、木白蚁科白蚁（例如白蚁属）、和犀白蚁科白蚁（例如散白蚁属、乳白蚁属、大别山散白蚁）、北美散白蚁（*Reticulitermes flavipes* Kollar）、西方散白蚁（*Reticulitermes hesperus* Banks）、乳白蚁（*Coptotermes formosanus* Shiraki）、西印度干木白蚁（*Incisitermes immigrans* Snyder）、麻头砂白蚁（*Cryptotermes brevis* Walker）、干木白蚁（*Incisitermes snyderi* Light）、南部散白蚁（*Reticulitermes virginicus* Banks）、西部干木白蚁（*Incisitermes minor* Hagen）、树白蚁如象白蚁属以及其他具有经济学重要性的白蚁；缨尾目昆虫害虫，如蠹虫（*Lepisma saccharina* Linnaeus）和家衣鱼（*Thermobia domestica* Packard）；食毛目昆虫害虫，并且包括头虱（*Pediculus humanus capitis* De Geer）、体虱（*Pediculus humanus* Linnaeus）、鸡虱（*Menacanthus stramineus* Nitzsch）、犬虱（*Trichodectes canis* De Geer）、绒毛虱（*Goniocotes gallinae* De Geer）、羊虱（*Bovicola ovis* Schrank）、犊短颚虱（*Haematopinus eurysternus* Nitzsch）、犊长颚虱（*Linognathus vituli* Linnaeus）以及其他攻击人类和动物的刺吸和叮咬型寄生虱；蚤目昆虫害虫包括东方具带病蚤（*Xenopsylla cheopis* Rothschild）、猫蚤（*Ctenocephalides felis* Bouche）、狗蚤（*Ctenocephalides canis* Curtis）、鸡蚤（*Ceratophyllus gallinae* Schrank）、吸着蚤（*Echidnophaga gallinacea* Westwood）、人蚤（*Pulex irritans* Linnaeus）以及其他困扰哺乳动物和禽类的跳蚤。涉及的其他节肢动物害虫包括：蜘蛛目蜘蛛诸如棕色隐士蛛（*Loxosceles reclusa* Gertsch & Mulaik）和黑寡妇毒蛛（*Latrodectus mactans* Fabricius），以及蛸目蜈蚣诸如蛸（*Scutigera coleoptrata* Linnaeus）。本发明的化合物对于线虫类、多节绦虫类、吸虫类和棘头虫类成员同样具有活性，包括具有经济重要性的圆线虫目、蛔虫目、尖尾目、小杆目、旋尾目和嘴刺目成员，如但不限于具有经济重要性的农业害虫（即根结线虫属根结线虫、根腐线虫属根腐线虫、轮胎虫属残根线虫等等）和危害动物和人类健康的害虫（即所有具有经济重要性的吸虫、绦虫和蛔虫，如马体内的寻常圆线虫、狗体内的犬弓蛔虫、羊体内的捻转血矛线虫、狗体内的犬恶丝虫、马体内的叶形裸头绦虫、反刍动物体内的肝片形吸虫等等）。

[1056] 本发明的化合物对鳞翅目害虫尤其表现出高度活性（例如 *Alabama argillacea* Hübner（衣蛾）、*Archips argyrospila* Walker（果树卷叶蛾）、*A. rosana* Linnaeus（欧洲卷叶蛾）、和其他黄卷蛾属物种、*Chilo suppressalis* Walker（水稻螟虫）、*Cnaphalocrosis medinalis* Guenée（稻纵卷叶螟）、*Crambus caliginosellus* Clemens（玉米根部结网毛虫）、*Crambus teterrellus* Zincken（蓝草草螟）、*Cydia pomonella* Linnaeus（苹果小卷蛾）、*Earias insulana* Boisduval（金刚钻）、*Earias vittella* Fabricius（翠纹棉铃虫）、*Helicoverpa armigera* Hübner（美洲棉铃虫）、*Helicoverpa zea* Boddie（棉铃虫）、*Heliothis virescens* Fabricius（烟草夜蛾幼虫）、*Herpetogramma licarsisalis* Walker（草地螟）、*Lobesia botrana* Denis & Schifferrmüller（葡萄卷叶蛾）、*Pectinophora gossypiella* Saunders（棉红铃虫）、*Phyllocnistis citrella* Stainton（柑橘潜叶蛾）、*Pieris brassicae* Linnaeus（大菜粉蝶）、*Pieris rapae* Linnaeus（菜白蛾）、*Plutella xylostella* Linnaeus（小菜蛾）、*Spodoptera exigua* Hübner（甜菜夜蛾）、*Spodoptera litura* Fabricius（斜纹夜蛾、茶蚕）*Spodoptera frugiperda* J.E. Smith（秋粘虫）、

Trichoplusia ni Hübner(甘蓝银纹夜蛾)和 *Tuta absoluta* Meyrick(番茄斑潜蝇))。

[1057] 本发明的化合物还对同翅目成员具有显著活性,其包括:*Acyrtosiphon pisum* Harris(豆长管蚜)、*Aphis craccivora* Koch(黑豆蚜)、*Aphis fabae* Scopoli(蚕豆蚜)、*Aphis gossypii* Glover(棉蚜、瓜蚜)、*Aphis pomi* De Geer(苹果蚜)、*Aphis spiraeicola* Patch(卷叶蚜)、*Aulacorthum solani* Kaltenbach(茄无网长管蚜)、*Chaetosiphon fragaefolii* Cockerell(草莓蚜)、*Diuraphis noxia* Kurdjumov/Mordvilko(俄罗斯小麦蚜)、*Dysaphis plantaginea* Paaserini(蔷薇长管蚜)、*Eriosoma lanigerum* Hausmann(苹果绵蚜)、*Hyalopterus pruni* Geoffroy(桃大尾蚜)、*Lipaphis erysimi* Kaltenbach(芜菁蚜)、*Metopolophium dirrhodum* Walker(麦蚜)、*Macrosiphum euphorbiae* Thomas(马铃薯蚜)、*Myzus persicae* Sulzer(桃蚜、桃蚜)、*Nasonovia ribisnigri* Mosley(莴苣蚜)、瘿绵蚜属(根蚜和瘿蚜)、*Rhopalosiphum maidis* Fitch(玉米叶蚜)、*Rhopalosiphum padi* Linnaeus(禾谷缢管蚜)、*Schizaphis graminum* Rondani(麦二叉蚜)、*Sitobion avenae* Fabricius(麦长管蚜)、*Therioaphis maculata* Buckton(苜蓿斑蚜)、*Toxoptera aurantii* Boyer de Fonscolombe(桔二盆蚜)、和 *Toxoptera citricida* Kirkaldy(褐色橘蚜);球蚜属(球蚜);*Phylloxera devastatrix* Pergande(美洲山核桃根瘤蚜);*Bemisia tabaci* Gennadius(烟粉虱、甘薯粉虱)、*Bemisia argentifolii* Bellows & Perring(银叶粉虱)、*Dialeurodes citri* Ashmead(柑桔白粉虱)和 *Triaieurodes vaporariorum* Westwood(温室粉虱);*Empoasca fabae* Harris(土豆叶蝉)、*Laodelphax striatellus* Fallen(灰飞虱)、*Macrolestes quadrilineatus* Forbes(二点叶蝉)、*Nephotettix cincticeps* Uhler(青叶蝉)、*Nephotettix nigropictus* **Stål**(黑尾叶蝉)、*Nilaparvata lugens* **Stål**(褐飞虱)、*Peregrinus maidis* Ashmead(玉米蜡蝉)、*Sogatella furcifera* Horvath(白背飞虱)、*Sogatodes orizicola* Muir(稻飞虱)、*Typhlocyba pomaria* McAtee(苹果白叶蝉)、葡萄斑叶蝉属(葡萄小叶蝉);*Magicidada septendecim* Linnaeus(晚秀蝉);*Icerya purchasi* Maskell(吹绵介壳虫)、*Quadraspidiotus perniciosus* Comstock(圣约瑟虫);*Planococcus citri* Risso(桔粉蚧);粉蚧属(其他粉蚧复合体);*Cacopsylla pyricola* Foerster(梨黄木虱)、*Trioza diospyri* Ashmead(柿木虱)。

[1058] 本发明的化合物还对半翅目成员具有活性,其包括:*Acrosternum hilare* Say(稻绿蝽)、*Anasa tristis* De Geer(南瓜缘蝽)、*Blissus leucopterus leucopterus* Say(高粱长蝽)、*Cimex lectularius* Linnaeus(臭虫)、*Corythuca gossypii* Fabricius(棉网蝽)、*Cyrtopeltis modesta* Distant(番茄蝽)、*Dysdercus suturellus* **Herrich-Schäffer**(污棉虫)、*Euchistus servus* Say(茶翅蝽)、*Euchistus variolarius* Palisot de Beauvois(单斑蝽)、长蝽属(长蝽复合体)、*Leptoglossus corculus* Say(缘蝽科松籽蝽)、*Lygus lineolaris* Palisot de Beauvois(牧草盲蝽)、*Nezara viridula* Linnaeus(南部稻绿蝽)、*Oebalus pugnax* Fabricius(稻褐蝽)、*Oncopeltus fasciatus* Dallas(大 mali 筋长蝽)、*Pseudatomoscelis seriatus* Reuter(棉盲蝽)。本发明的化合物可控制的其他昆虫目包括缨尾目(例如 *Frankliniella occidentalis* Pergande(西花蓟马)、*Scirtothrips citri* Moulton(柑桔蓟马)、*Sericothrips variabilis* Beach(大豆蓟马)、和 *Thrips tabaci* Lindeman(葱蓟马));和鞘翅目(例如 *Leptinotarsa decemlineata* Say(Colorado potato beetle)、*Epilachna varivestis* Mulsant(墨西哥豆瓢虫)和细胸叩头虫属、叩头虫

属或宽胸叩头虫属线虫)。

[1059] 应注意到,某些现代分类系统将同翅目归类于半翅目的亚目。

[1060] 值得注意的是,本发明的化合物在控制马铃薯小绿叶蝉 (*Empoasca fabae*) 方面的用途。值得注意的是,本发明的化合物在控制玉米蜡蝉 (*Peregrinus maidis*) 方面的用途。值得注意的是,本发明的化合物在控制棉蚜 (*Aphis gossypii*) 方面的用途。值得注意的是,本发明的化合物在控制桃蚜 (*Myzus persicae*) 方面的用途。值得注意的是,本发明的化合物在控制小菜蛾 (*Plutella xylostella*) 方面的用途。值得注意的是,本发明的化合物在控制秋粘虫 (*Spodoptera frugiperda*) 方面的用途。

[1061] 值得注意的是,本发明的化合物在控制南部稻绿蝽 (*Nezara viridula*)、豆荚盲蝽 (*Lygus hesperus*)、稻水象甲 (*Lissorhoptrus oryzophilus*)、褐飞虱 (*Nilaparvata lugens*)、二点黑尾叶蝉 (*Nephotettix virescens*) 和水稻二化螟 (*Chilo suppressalis*) 方面的用途。

[1062] 本发明的化合物还可与一种或多种其他生物活性化合物或试剂混合以形成多组分杀虫剂,赋予甚至更广谱的农业和非农业用途,所述化合物或试剂包括杀昆虫剂、杀真菌剂、杀线虫剂、杀菌剂、杀螨剂、除草剂、除草剂安全剂、生长调节剂如昆虫蜕皮抑制剂和生根刺激剂、化学不育剂、化学信息素、拒斥剂、诱虫剂、信息素、取食刺激剂、其他生物活性化合物或昆虫致病细菌、病毒或真菌。因此本发明还涉及由生物学有效量的式1化合物、至少一种附加组分和至少一种附加生物活性化合物或试剂组成的组合物,所述附加组分选自表面活性剂、固体稀释剂和液体稀释剂。就本发明的混合物而言,可将其他生物活性化合物或试剂与本发明的化合物(包括式1的化合物)配制在一起,以形成预混物,或者可将其他生物活性化合物或试剂与本发明的化合物(包括式1的化合物)分开配制,并且在施用前(例如在喷雾罐中)将两种制剂混合在一起,或者作为另外一种选择,将两种制剂依次施用。

[1063] 可与本发明化合物配制在一起的此类生物活性化合物或试剂的实例是杀昆虫剂如阿巴美丁、高灭磷、灭螨醌、啮虫脒、氟丙菊酯、磺胺螨酯、双甲脒、阿维菌素、印楝子素、甲基谷硫磷、联苯菊酯、联苯腈酯、双三氟虫脒、硼酸盐、3-溴-1-(3-氯-2-吡啶基)-N-[4-氰基-2-甲基-6-[(甲基氨基)羰基]苯基]-1H-吡唑-5-甲酰胺(氰虫酰胺)、扑虱灵、硫线磷、西维因、克百威、杀螟丹、伐虫脒、氯虫苯甲酰胺、溴虫腈、定虫隆、氯蜚硫磷、氯蜚硫磷-甲基、可芬诺、螨死净、可尼丁、丁氟螨酯、氟氯氰菊酯、 β -氟氯氰菊酯、三氟氯氰菊酯、 γ -三氟氯氰菊酯、高三氟氯氰菊酯、氯氰菊酯、 α -氯氰菊酯、 ζ -氯氰菊酯、赛灭净、溴氢菊酯、丁醚脒、敌匹硫磷、迪厄尔丁、除虫脒、四氟甲醚菊酯、杀虫双、乐果、呋虫胺、二苯丙醚、甲氨基阿维菌素、硫丹、顺式氰戊菊酯、乙虫腈、醚菊酯、乙螨唑、苯丁锡、苯硫威、苯氧威、甲氰菊酯、腈苯苯醚菊酯、氟虫腈、氟啶虫酰胺、氟虫酰胺、氟氰戊菊酯、噻虫胺、氟虫脒、氟胺氰菊酯、氟胺氰菊酯、大福松、伐虫脒、噻唑磷、氯虫酰胺、氟铃脒、噻螨酮、伏蚁腈、吡虫啉、茚虫威、杀虫皂、异柳磷、虱螨脒、马拉硫磷、氰氟虫腈、多聚乙醛、甲胺磷、杀扑磷、灭虫威、乙肟威、甲氧普烯、甲氧滴滴涕、甲氧卞氟菊酯、久效磷、甲氧虫酰胺、烯啶虫胺、硝乙脒噻唑、双苯氟脒、多氟虫酰胺、草氨酰、对硫磷、甲基对硫磷、扑灭司林、甲拌磷、伏杀硫磷、亚胺硫磷、磷胺、抗蚜威、丙溴磷、丙氟菊酯、克螨特、protrifenbute、吡蚜酮、pyrafluprole、除虫菊酯、哒螨酮、啮虫丙醚、pyrifluquinazon、pyriprole、蚊蝇醚、鱼藤酮、理阿诺碱、多菌虫素、多杀菌素、季酮螨酯、螺甲螨酯、螺虫乙酯、硫丙磷、N-[甲基

[1-[6-(三氟甲基)-3-吡啶基]乙基]- λ 4-硫酮] 氨脒、虫酰肼、吡螨胺、伏虫脲、七氟菊酯、特丁磷、杀虫畏、似虫菊、噻虫啉、噻虫嗪、硫双灭多威、杀虫双、啉虫酰胺、四溴菊酯、啉蚜威、敌百虫、杀虫脒、苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素、昆虫致病细菌、昆虫病原病毒和昆虫病原真菌。

[1064] 值得注意的是杀昆虫剂,如阿巴美丁、啉虫脒、氟丙菊酯、双甲脒、阿维菌素、印楝素、联苯菊酯、3-溴-1-(3-氯-2-吡啶基)-N-[4-氰基-2-甲基-6-[(甲基氨基)羰基]苯基]-1H-吡唑-5-甲酰胺(氰虫酰胺)、扑虱灵、硫线磷、西维因、杀螟丹、氯虫苯甲酰胺、溴虫脒、氯吡硫磷、可尼丁、氟氯氰菊酯、 β -氟氯氰菊酯、三氟氯氰菊酯、 γ -三氟氯氰菊酯、高三氟氯氰菊酯、氯氰菊酯、 α -氯氰菊酯、 ζ -氯氰菊酯、赛灭净、溴氢菊酯、迪厄尔丁、呋虫胺、二苯丙醚、甲氨基阿维菌素、硫丹、顺式氰戊菊酯、乙虫脒、醚菊酯、乙螨唑、苯硫威、苯氧威、腈苯苯醚菊酯、氟虫脒、氟啉虫酰胺、氟虫酰胺、氟虫脒、氟胺氰菊酯、伐虫脒、噻唑磷、氟铃脒、伏蚁脒、吡虫啉、茚虫威、虱螨脒、氰氟虫脒、灭虫威、乙肟威、甲氧普烯、甲氧虫酰肼、烯啉虫胺、硝乙脒噻唑、双苯氟脒、草氢酰、吡蚜酮、除虫菊酯、哒螨酮、啉虫丙醚、蚊蝇醚、理阿诺碱、多菌虫素、多杀菌素、季酮螨酯、螺甲螨酯、螺虫乙酯、虫酰肼、似虫菊、噻虫啉、噻虫嗪、硫双灭多威、杀虫双、四溴菊酯、啉蚜威、杀虫脒、苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素、苏云金芽孢杆菌的所有菌株和核型多角体病毒的所有菌株。

[1065] 用以与本发明化合物混合的一个生物制剂实施方案包括昆虫致病细菌如苏云金芽孢杆菌,和胶囊包封的苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素如由 **CellCap[®]** 法制得的 **MVP[®]** 和 **MVP[®]** 生物杀虫剂 (**CellCap[®]**、**MVP[®]** 和 **MVP[®]** 是 Mycogen Corporation(Indianapolis, Indiana, USA) 的商标);昆虫病原真菌如绿僵菌;和昆虫病原(天然存在的和遗传修饰的)病毒,包括杆状病毒、核型多角体病毒(NPV)如谷实夜蛾核型多角体病毒(HzNPV)、芹菜夜蛾核型多角体病毒(AfNPV);和颗粒体病毒(GV),如苹果蠹蛾颗粒体病毒(CpGV)。

[1066] 尤其值得注意的是其中其他无脊椎害虫控制活性成分属于与式 1 的化合物不同的化学类别或者具有与其不同作用位点的组合。在某些情况下,与至少一种具有类似控制范围但是不同作用位点的其他无脊椎害虫控制活性成分组合,对于抗性管理将是尤其有利的。因此,本发明的组合物还可包含生物学有效量的至少一种附加无脊椎害虫控制活性成分,所述活性成分具有类似控制范围,但是属于不同的化学类别或者具有不同的作用位点。这些附加生物活性化合物或试剂包括但不限于钠通道调节剂如联苯菊酯、氯氰菊酯、三氟氯氰菊酯、高三氟氯氰菊酯、氟氯氰菊酯、 β -氟氯氰菊酯、溴氢菊酯、四氟甲醚菊酯、顺式氰戊菊酯、腈苯苯醚菊酯、茚虫威、甲氧卞氟菊酯、丙氟菊酯、除虫菊酯和四溴菊酯;胆碱酯酶抑制剂,如氯吡硫磷、乙肟威、草氢酰、硫双灭多威和啉蚜威;新烟碱类,如啉虫脒、可尼丁、呋虫胺、吡虫啉、烯啉虫胺、硝乙脒噻唑、噻虫啉和噻虫嗪;大环内酯类杀虫剂,如多菌虫素、多杀菌素、阿巴美丁、阿维菌素和甲氨基阿维菌素;GABA(γ -氨基丁酸)-门控氯通道拮抗剂如阿维菌素或阻挡剂如乙虫脒和氟虫脒;甲壳质合成抑制剂例如扑虱灵、赛灭净、氟虫脒、氟铃脒、虱螨脒、双苯氟脒、多氟虫酰脲和杀虫脒;保幼激素模拟物,如二苯丙醚、苯氧威、甲氧普烯和蚊蝇醚;章鱼胺受体配体,如双甲脒;蜕皮抑制剂和蜕皮激素激动剂,如印楝素、甲氧虫酰肼和虫酰肼;鱼尼汀受体配体诸如理阿诺碱、氨基二酰胺诸如氯虫苯甲酰胺(参见美国专利公开 6,747,047、PCT 公开 WO 2003/015518 和 WO 2004/067528) 和氟

虫酰胺（参见美国专利公开6,603,044）；沙蚕毒素类似物，如杀螟丹；线粒体电子转运抑制剂，如溴虫腈、伏蚁脍和吡蚜酮；脂质生物合成抑制剂，如季酮酯和螺甲酯；环二烯类杀虫剂，如迪厄尔丁或硫丹；拟除虫菊酯；氨基甲酸酯；杀虫脒；和生物制剂，包括核型多角体病毒（NPV）、苏云金芽孢杆菌成员、胶囊包封的苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素、以及其他天然存在的或遗传修饰的杀虫病毒。

[1067] 可与本发明的化合物配制在一起的生物活性化合物或试剂其他实例是：杀真菌剂，如苯并噻二唑、杀螟丹、吡啶菌胺、戊环唑、嘧菌酯、苯霜灵、苯菌灵、苯噻菌胺、异丙基苯噻菌胺、苯菌灵、联苯、双苯三唑醇、杀稻瘟菌素-S、波尔多液（三元硫酸铜）、啉酰菌胺/啉酰菌胺、糠菌唑、乙嘧酚磺酸酯、丁赛特、萎锈灵、环丙酰菌胺、敌菌丹、克菌丹、多菌灵、地茂散、百菌清、乙菌利、克霉唑、王铜、铜盐诸如硫酸铜和氢氧化铜、赛座灭、cyflunamid、霜脍氰、环唑醇、嘧菌环胺、抑菌灵、双氯氰菌胺、吡菌清、氯硝胺、乙霉威、恶醚唑、烯酰吗啉、醚菌胺、烯唑醇、烯唑醇-M、敌螨普、discostrobin、二噻农、十二环吗啉、多果定、益康唑、乙环唑、敌瘟磷、氟环唑、噻唑菌胺、乙嘧酚、土菌灵、噁唑菌酮、咪唑菌酮、氯苯嘧啶醇、腈苯唑、缬霉威、甲呋酰苯胺、环酰菌胺、氰菌胺、拌种咯、苯锈啉、丁苯吗啉、三苯基乙酸锡、三苯基氢氧化锡、福美铁、ferfurazoate、嘧菌脒、氟啶胺、咯菌腈、氟酰菌胺、氟吡菌胺、氟嘧菌酯、氟唑唑、氟唑唑、氟硅唑、磺菌胺、氟酰胺、粉唑醇、灭菌丹、三乙膦酸铝、麦穗宁、呋霜灵、呋吡菌胺、己唑醇、恶霉灵、克热净、抑霉唑、酰胺唑、双胍辛胺、iodicarb、种菌唑、异稻瘟净、异菌脒、丙森锌、异康唑、稻瘟灵、春雷霉素、克收欣、代森锰锌、双炔酰菌胺、代森锰、mapanipyrin、精甲霜灵、灭锈胺、甲霜灵、叶菌唑、磺菌威、代森联、苯氧菌胺/苯氧菌胺、灭派林、苯菌酮、咪康唑、腈菌唑、新阿苏仁（甲基膦酸铁）、氟苯嘧啶醇、辛噻酮、呋酰胺、肟酰菌胺、恶霜灵、噁酸、噁咪唑、氧化萎锈灵、多效唑、戊菌唑、戊菌隆、吡噻菌胺、稻瘟酯、膦酸、苯酞、氟吡菌胺、啉氧菌酯、多抗霉素、烯丙异噻唑、咪鲜安、腐霉利、霜霉威、霜霉威盐酸盐、丙环唑、丙森锌、丙氧唑啉、丙硫菌唑、唑菌胺酯、白粉松、啉斑肟、嘧霉胺、啉斑肟、硝吡咯菌素、咯唑酮、唑唑、快诺芬、五氯硝基苯、硅噻菌胺、硅氟唑、螺环菌胺、链霉素、硫、戊唑醇、四氧硝基苯、克枯烂、四氯硝基苯、氟醚唑、噻苯唑唑、噻呋灭、托布津、甲基托布津、二硫四甲秋兰姆、噻酰菌胺、甲基立枯磷、甲苯氟磺胺、三唑酮、三唑醇、嘧菌醇、唑菌嗪、十三吗啉、垂吗酰胺、三环唑、肟菌酯、噻氨灵、灭菌唑、烯效唑、井冈霉素、乙烯菌核利、代森锌、福美锌和草酰胺；杀线虫剂，如涕灭威、imicyafos、草氢酰和苯线磷；杀菌剂，诸如链霉素；杀螨剂，如双甲脒、灭螨猛、克氯苯、三环锡、三氯杀螨醇、除螨灵、乙螨唑、啉螨醚、苯丁锡、甲氰菊酯、啉螨酯、噻螨酮、克螨特、吡蚜酮和吡蚜胺。

[1068] 在某些情况下，本发明的化合物与其他生物活性（尤其是无脊椎害虫控制）化合物或试剂（即活性成分）的组合可获得大于累加（即协同）的效应。降低释放到环境中的活性分量，同时确保有效的害虫控制，一直是所期望的。当在施用速率下发生无脊椎害虫控制活性成分协同作用，赋予农业上符合要求的无脊椎害虫控制度，此类组合可有利地用于降低作物生产成本，并且降低环境荷载。

[1069] 可将本发明的化合物及其组合物施用到植物上，所述植物经转基因以表达对无脊椎害虫有毒的蛋白质（诸如苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素）。此类施用可提供更广谱的植物保护性，并且可有利地用于抗性管理。外施控制无脊椎害虫的本发明的化合物的功效可与表达的毒素蛋白质协同作用。

[1070] 这些农业保护剂（即杀虫剂、杀真菌剂、杀线虫剂、杀螨剂、除草剂和生物制剂）的一般参考文献包括 The Pesticide Manual 第 13 版（C. D. S. Tomlin 编辑，British Crop Protection Council, Farnham, Surrey, U. K., 2003）和 The BioPesticide Manual 第 2 版（L. G. Copping 编，British Crop Protection Council, Farnham, Surrey, U. K., 2001）中。

[1071] 对于其中使用一种或多种这些不同混合组分的实施方案而言，这些不同混合组分（总量）与式 1 的化合物的重量比通常介于约 1 : 3000 和约 3000 : 1 之间。值得注意的是介于约 1 : 300 和约 300 : 1 之间的重量比（例如介于约 1 : 30 和约 30 : 1 之间的比率）。本领域的技术人员可易于通过简单的实验来确定获得所期望生物活性范围而需要的活性成分生物学有效量。显然，包含这些附加组分可使无脊椎害虫控制范围超出式 1 的化合物自身的控制范围。

[1072] 表 A 列出了式 1 的化合物与其他无脊椎害虫控制剂的具体组合，例证了本发明的混合物、组合物和方法。表 A 第一栏列出了具体的无脊椎害虫控制剂（例如第一栏中的“阿巴美丁”）。表 A 第二栏列出了无脊椎害虫控制剂的作用模式（如果已知的话）或化学类别。表 A 第三栏列出了在无脊椎害虫控制剂施用速率下，其相对于式 1 的化合物的重量比率范围实施方案（例如阿巴美丁相对于式 1 的化合物的比率按重量计为“50 : 1 至 1 : 50”）。因此例如表 A 第一行具体公开了可以 50 : 1 至 1 : 50 的重量比率施用式 1 的化合物与阿巴美丁的组合。表 A 的其余行可类似进行解释。还值得注意的是，表 A 列出了式 1 的化合物与其他无脊椎害虫控制剂的具体组合，例证了本发明的混合物、组合物和方法，并且包括适用于施用速率的重量比率范围的附加实施方案。

[1073] 表 A

[1074]

无脊椎害虫控制剂	作用模式或化学类别	典型的重量比
阿巴美丁	大环内酯类	50:1 至 1:50
啉虫脒	新烟碱类	150:1 至 1:200
双甲脒	章鱼胺受体配体	200:1 至 1:100
阿维菌素	大环内酯类	50:1 至 1:50
印苦楝子素	蜕皮激素激动剂	100:1 至 1:120
β -氟氯氟菊酯	钠通道调节剂	150:1 至 1:200
联苯菊酯	钠通道调节剂	100:1 至 1:10
扑虱灵	甲壳质合成抑制剂	500:1 至 1:50
杀螟丹	沙蚕毒素类似物	100:1 至 1:200
氯虫苯甲酰胺	鱼尼汀受体配体	100:1 至 1:120
溴虫腈	线粒体电子转运抑制剂	300:1 至 1:200
氯吡硫磷	胆碱酯酶抑制剂	500:1 至 1:200
可尼丁	新烟碱类	100:1 至 1:400
氟氯氟菊酯	钠通道调节剂	150:1 至 1:200
三氟氯氟菊酯	钠通道调节剂	150:1 至 1:200
氟氯菊酯	钠通道调节剂	150:1 至 1:200
赛灭净	甲壳质合成抑制剂	400:1 至 1:50
溴氢菊酯	钠通道调节剂	50:1 至 1:400
迪厄尔丁	环二烯类杀虫剂	200:1 至 1:100
呋虫胺	新烟碱类	150:1 至 1:200
二苯丙醚	蜕皮抑制剂	150:1 至 1:200
甲氨基阿维菌素	大环内酯类	50:1 至 1:10
硫丹	环二烯类杀虫剂	200:1 至 1:100
顺式氟戊菊酯	钠通道调节剂	100:1 至 1:400
乙虫腈	GABA 调节的氯离子通道阻隔剂	200:1 至 1:100
苯硫威		150:1 至 1:200
苯氧威	保幼激素模拟物	500:1 至 1:100
腈苯苯醚菊酯	钠通道调节剂	150:1 至 1:200
氟虫腈	GABA 调节的氯离子通道阻隔剂	150:1 至 1:100
氟啉虫酰胺		200:1 至 1:100
氟虫酰胺	鱼尼汀受体配体	100:1 至 1:120
氟虫脲	甲壳质合成抑制剂	200:1 至 1:100
氟铃脲	甲壳质合成抑制剂	300:1 至 1:50
伏蚁脲	线粒体电子转运抑制剂	150:1 至 1:250
吡虫啉	新烟碱类	1000:1 至 1:1000
茚虫威	钠通道调节剂	200:1 至 1:50

[1075]

无脊椎害虫控制剂	作用模式或化学类别	典型的重量比
高三氟氯氰菊酯	钠通道调节剂	50:1 至 1:250
虱螨脲	甲壳质合成抑制剂	500:1 至 1:250
氰氟虫腙		200:1 至 1:200
乙炔威	胆碱酯酶抑制剂	500:1 至 1:100
甲氧普烯	保幼激素模拟物	500:1 至 1:100
甲氧虫酰肼	蜕皮激素激动剂	50:1 至 1:50
烯啶虫胺	新烟碱类	150:1 至 1:200
硝乙脲噻唑	新烟碱类	150:1 至 1:200
双苯氟脲	甲壳质合成抑制剂	500:1 至 1:150
草氨酰	胆碱酯酶抑制剂	200:1 至 1:200
吡蚜酮		200:1 至 1:100
除虫菊酯	钠通道调节剂	100:1 至 1:10
哒螨酮	线粒体电子转运抑制剂	200:1 至 1:100
啶虫丙醚		200:1 至 1:100
蚊蝇醚	保幼激素模拟物	500:1 至 1:100
理阿诺碱	鱼尼汀受体配体	100:1 至 1:120
多菌虫素	大环内酯类	150:1 至 1:100
多杀菌素	大环内酯类	500:1 至 1:10
季酮螨酯	脂质生物合成抑制剂	200:1 至 1:200
螺甲螨酯	脂质生物合成抑制剂	200:1 至 1:200
虫酰肼	蜕皮激素激动剂	500:1 至 1:250
噻虫啉	新烟碱类	100:1 至 1:200
噻虫嗪	新烟碱类	1250:1 至 1:1000
硫双灭多威	胆碱酯酶抑制剂	500:1 至 1:400
杀虫双		150:1 至 1:100
四溴菊酯	钠通道调节剂	150:1 至 1:200
唑蚜威	胆碱酯酶抑制剂	250:1 至 1:100
杀虫脲	甲壳质合成抑制剂	200:1 至 1:100
苏云金芽孢杆菌	生物剂	50:1 至 1:10
苏云金芽孢杆菌 δ -内毒素	生物剂	50:1 至 1:10
NPV (例如 Gemstar)	生物剂	50:1 至 1:10
(a)	鱼尼汀受体配体	100:1 至 1:120

[1076] (a) 3-溴-1-(3-氯-2-吡啶基)-N-[4-氰基-2-甲基-6-[(甲基氨基)羰基]苯基]-1H-吡唑-5-甲酰胺(氰虫酰胺)

[1077] 值得注意的是本发明的组合物,其中所述至少一种附加生物活性化合物或试剂选自上表 A 中列出的无脊椎害虫控制剂。

[1078] 包括式 1 的化合物在内的化合物与附加无脊椎害虫控制剂的重量比率通常介于 1000 : 1 和 1 : 1000 之间,一个实施方案介于 500 : 1 和 1 : 500 之间,另一个实施方案介于 250 : 1 和 1 : 200 之间,并且另一个实施方案介于 100 : 1 和 1 : 50 之间。

[1079] 列于下表 B 中的是包含式 1 的化合物(化合物编号参见索引表 A-I 中的化合物)

和附加无脊椎害虫控制剂的具体组合物的实施方案。

[1080] 表 B

[1081]

混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂	混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂
A-1	7	和	阿巴美丁	B-1	50	和	阿巴美丁
A-2	7	和	啉虫脒	B-2	50	和	啉虫脒
A-3	7	和	双甲脒	B-3	50	和	双甲脒
A-4	7	和	阿维菌素	B-4	50	和	阿维菌素
A-5	7	和	印苦楝子素	B-5	50	和	印苦楝子素
A-6	7	和	β -氟氯氟菊酯	B-6	50	和	β -氟氯氟菊酯
A-7	7	和	联苯菊酯	B-7	50	和	联苯菊酯
A-8	7	和	扑虱灵	B-8	50	和	扑虱灵
A-9	7	和	杀螟丹	B-9	50	和	杀螟丹
A-10	7	和	氯虫苯甲酰胺	B-10	50	和	氯虫苯甲酰胺
A-11	7	和	溴虫脲	B-11	50	和	溴虫脲
A-12	7	和	氯吡硫磷	B-12	50	和	氯吡硫磷
A-13	7	和	可尼丁	B-13	50	和	可尼丁
A-14	7	和	氟氯氟菊酯	B-14	50	和	氟氯氟菊酯
A-15	7	和	三氟氯氟菊酯	B-15	50	和	三氟氯氟菊酯
A-16	7	和	氯氟菊酯	B-16	50	和	氯氟菊酯
A-17	7	和	赛灭净	B-17	50	和	赛灭净
A-18	7	和	溴氢菊酯	B-18	50	和	溴氢菊酯
A-19	7	和	迪厄尔丁	B-19	50	和	迪厄尔丁
A-20	7	和	呋虫胺	B-20	50	和	呋虫胺
A-21	7	和	二苯丙醚	B-21	50	和	二苯丙醚
A-22	7	和	甲氨基阿维菌素	B-22	50	和	甲氨基阿维菌素
A-23	7	和	硫丹	B-23	50	和	硫丹
A-24	7	和	顺式氰戊菊酯	B-24	50	和	顺式氰戊菊酯
A-25	7	和	乙虫脲	B-25	50	和	乙虫脲
A-26	7	和	苯硫威	B-26	50	和	苯硫威
A-27	7	和	苯氧威	B-27	50	和	苯氧威
A-28	7	和	脲苯苯醚菊酯	B-28	50	和	脲苯苯醚菊酯
A-29	7	和	氟虫脲	B-29	50	和	氟虫脲

[1082]

混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂	混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂
A-30	7	和	氟啶虫酰胺	B-30	50	和	氟啶虫酰胺
A-31	7	和	氟虫酰胺	B-31	50	和	氟虫酰胺
A-32	7	和	氟虫脲	B-32	50	和	氟虫脲
A-33	7	和	氟铃脲	B-33	50	和	氟铃脲
A-34	7	和	伏蚁脲	B-34	50	和	伏蚁脲
A-35	7	和	吡虫啉	B-35	50	和	吡虫啉
A-36	7	和	茚虫威	B-36	50	和	茚虫威
A-37	7	和	高三氟氯氟菊酯	B-37	50	和	高三氟氯氟菊酯
A-38	7	和	虱螨脲	B-38	50	和	虱螨脲
A-39	7	和	氟氟虫脲	B-39	50	和	氟氟虫脲
A-40	7	和	乙肟威	B-40	50	和	乙肟威
A-41	7	和	甲氧普烯	B-41	50	和	甲氧普烯
A-42	7	和	甲氧虫酰胺	B-42	50	和	甲氧虫酰胺
A-43	7	和	烯啶虫胺	B-43	50	和	烯啶虫胺
A-44	7	和	硝乙脲噻唑	B-44	50	和	硝乙脲噻唑
A-45	7	和	双苯氟脲	B-45	50	和	双苯氟脲
A-46	7	和	草氨酯	B-46	50	和	草氨酯
A-47	7	和	吡蚜酮	B-47	50	和	吡蚜酮
A-48	7	和	除虫菊酯	B-48	50	和	除虫菊酯
A-49	7	和	哒螨酮	B-49	50	和	哒螨酮
A-50	7	和	啉虫丙醚	B-50	50	和	啉虫丙醚
A-51	7	和	蚊蝇醚	B-51	50	和	蚊蝇醚
A-52	7	和	理阿诺碱	B-52	50	和	理阿诺碱
A-53	7	和	多菌虫素	B-53	50	和	多菌虫素
A-54	7	和	多杀菌素	B-54	50	和	多杀菌素
A-55	7	和	季酮螨酯	B-55	50	和	季酮螨酯
A-56	7	和	螺甲螨酯	B-56	50	和	螺甲螨酯
A-57	7	和	虫酰胺	B-57	50	和	虫酰胺
A-58	7	和	噻虫啉	B-58	50	和	噻虫啉
A-59	7	和	噻虫嗪	B-59	50	和	噻虫嗪
A-60	7	和	硫双灭多威	B-60	50	和	硫双灭多威
A-61	7	和	杀虫双	B-61	50	和	杀虫双
A-62	7	和	四溴菊酯	B-62	50	和	四溴菊酯
A-63	7	和	唑蚜威	B-63	50	和	唑蚜威
A-64	7	和	杀虫脲	B-64	50	和	杀虫脲
A-65	7	和	苏云金芽孢杆菌	B-65	50	和	苏云金芽孢杆菌
A-66	7	和	苏云金芽孢杆菌	B-66	50	和	苏云金芽孢杆菌
A-67	7	和	δ -内毒素 NPV (例如 Gemstar)	B-67	50	和	δ -内毒素 NPV (例如 Gemstar)

[1083]

混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂	混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂
A-68	7	和	(A)	B-68	50	和	(A)
C-1	138	和	阿巴美丁	D-1	157	和	阿巴美丁
C-2	138	和	啉虫脒	D-2	157	和	啉虫脒
C-3	138	和	双甲脒	D-3	157	和	双甲脒
C-4	138	和	阿维菌素	D-4	157	和	阿维菌素
C-5	138	和	印苦楝子素	D-5	157	和	印苦楝子素
C-6	138	和	β -氟氯氟菊酯	D-6	157	和	β -氟氯氟菊酯
C-7	138	和	联苯菊酯	D-7	157	和	联苯菊酯
C-8	138	和	扑虱灵	D-8	157	和	扑虱灵
C-9	138	和	杀螟丹	D-9	157	和	杀螟丹
C-10	138	和	氯虫苯甲酰胺	D-10	157	和	氯虫苯甲酰胺
C-11	138	和	溴虫脲	D-11	157	和	溴虫脲
C-12	138	和	氯吡硫磷	D-12	157	和	氯吡硫磷
C-13	138	和	可尼丁	D-13	157	和	可尼丁
C-14	138	和	氟氯氟菊酯	D-14	157	和	氟氯氟菊酯
C-15	138	和	三氟氯氟菊酯	D-15	157	和	三氟氯氟菊酯
C-16	138	和	氯氟菊酯	D-16	157	和	氯氟菊酯
C-17	138	和	赛灭净	D-17	157	和	赛灭净
C-18	138	和	溴氢菊酯	D-18	157	和	溴氢菊酯
C-19	138	和	迪厄尔丁	D-19	157	和	迪厄尔丁
C-20	138	和	呋虫胺	D-20	157	和	呋虫胺
C-21	138	和	二苯丙醚	D-21	157	和	二苯丙醚
C-22	138	和	甲氨基阿维菌素	D-22	157	和	甲氨基阿维菌素
C-23	138	和	硫丹	D-23	157	和	硫丹
C-24	138	和	顺式氟戊菊酯	D-24	157	和	顺式氟戊菊酯
C-25	138	和	乙虫脲	D-25	157	和	乙虫脲
C-26	138	和	苯硫威	D-26	157	和	苯硫威
C-27	138	和	苯氧威	D-27	157	和	苯氧威
C-28	138	和	脲苯苯醚菊酯	D-28	157	和	脲苯苯醚菊酯
C-29	138	和	氟虫脲	D-29	157	和	氟虫脲
C-30	138	和	氟啉虫酰胺	D-30	157	和	氟啉虫酰胺
C-31	138	和	氟虫酰胺	D-31	157	和	氟虫酰胺
C-32	138	和	氟虫脲	D-32	157	和	氟虫脲
C-33	138	和	氟铃脲	D-33	157	和	氟铃脲
C-34	138	和	伏蚁脲	D-34	157	和	伏蚁脲
C-35	138	和	吡虫啉	D-35	157	和	吡虫啉
C-36	138	和	茚虫威	D-36	157	和	茚虫威
C-37	138	和	高三氟氯氟菊酯	D-37	157	和	高三氟氯氟菊酯
C-38	138	和	虱螨脲	D-38	157	和	虱螨脲
C-39	138	和	氟氯虫脲	D-39	157	和	氟氯虫脲

[1084]

混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂	混合物 编号	组合物 编号	和	无脊椎害虫控制剂
C-40	138	和	乙肟威	D-40	157	和	乙肟威
C-41	138	和	甲氧普烯	D-41	157	和	甲氧普烯
C-42	138	和	甲氧虫酰肼	D-42	157	和	甲氧虫酰肼
C-43	138	和	烯啶虫胺	D-43	157	和	烯啶虫胺
C-44	138	和	硝乙脲噻唑	D-44	157	和	硝乙脲噻唑
C-45	138	和	双苯氟脲	D-45	157	和	双苯氟脲
C-46	138	和	草氨酰	D-46	157	和	草氨酰
C-47	138	和	吡蚜酮	D-47	157	和	吡蚜酮
C-48	138	和	除虫菊酯	D-48	157	和	除虫菊酯
C-49	138	和	哒螨酮	D-49	157	和	哒螨酮
C-50	138	和	啉虫丙醚	D-50	157	和	啉虫丙醚
C-51	138	和	蚊蝇醚	D-51	157	和	蚊蝇醚
C-52	138	和	理阿诺碱	D-52	157	和	理阿诺碱
C-53	138	和	多菌虫素	D-53	157	和	多菌虫素
C-54	138	和	多杀菌素	D-54	157	和	多杀菌素
C-55	138	和	季酮螨酯	D-55	157	和	季酮螨酯
C-56	138	和	螺甲螨酯	D-56	157	和	螺甲螨酯
C-57	138	和	虫酰肼	D-57	157	和	虫酰肼
C-58	138	和	噻虫啉	D-58	157	和	噻虫啉
C-59	138	和	噻虫嗪	D-59	157	和	噻虫嗪
C-60	138	和	硫双灭多威	D-60	157	和	硫双灭多威
C-61	138	和	杀虫双	D-61	157	和	杀虫双
C-62	138	和	四溴菊酯	D-62	157	和	四溴菊酯
C-63	138	和	唑蚜威	D-63	157	和	唑蚜威
C-64	138	和	杀虫脲	D-64	157	和	杀虫脲
C-65	138	和	苏云金芽孢杆菌	D-65	157	和	苏云金芽孢杆菌
C-66	138	和	苏云金芽孢杆菌 δ-内毒素	D-66	157	和	苏云金芽孢杆菌 δ-内毒素
C-67	138	和	NPV (例如 Gemstar)	D-67	157	和	NPV (例如 Gemstar)
C-68	138	和	(a)	D-68	157	和	(a)

[1085] (a) 3-溴-1-(3-氯-2-吡啶基)-N-[4-氰基-2-甲基-6-[(甲基氨基)羰基]苯基]-1H-吡唑-5-甲酰胺(氰虫酰胺)

[1086] 列于表 B 中的具体混合物通常以表 A 中指定的比率来组合式 1 的化合物和其他无脊椎害虫控制剂。

[1087] 在农业和非农业应用中,通过将生物学有效量的一种或多种通常为组合物形式的本发明的化合物施用到害虫环境中,包括侵害的农业和/或非农业场所,施用到要保护的区域中,或直接施用到要控制的害虫上,来控制无脊椎害虫。

[1088] 因此本发明包括在农业和/或非农业应用中控制无脊椎害虫的方法,所述方法包括使无脊椎害虫或其环境接触生物学有效量的一种或多种本发明的化合物,或接触包含至少一种此类化合物的组合物,或接触包含至少一种此类化合物和生物学有效量的至少一种

附加的生物活性化合物或试剂的组合物。包含本发明的化合物和生物学有效量的至少一种附加的生物活性化合物或试剂的适宜组合物的实例包括颗粒状组合物,其中所述附加活性化合物存在于与本发明的化合物颗粒相同的颗粒上,或者存在于与本发明的化合物的那些颗粒不相同的颗粒上。

[1089] 为实现与本发明的化合物或组合物接触以保护田地作物免受无脊椎害虫侵害,通常在种植之前将所述化合物或组合物施用到作物种子上,施用到作物植株的叶子(例如叶片、茎秆、花朵、果实)上,或在作物种植之前或之后施用到土壤或其他生长介质中。

[1090] 接触方法的一个实施方案是通过喷雾。作为另外一种选择,可将包含本发明的化合物的颗粒状组合物施用到植物叶子上或土壤中。还可通过使植物与以浸壤液体制剂形式、以施用到土壤中的颗粒状制剂形式、以育苗箱处理物或移植浸泡形式施用的包含本发明的化合物的组合物接触,经由植物摄入来有效递送本发明的化合物。值得注意的是浸壤液体制剂形式的本发明的组合物。还值得注意的是控制无脊椎害虫的方法,所述方法包括使无脊椎害虫或其环境接触生物学有效量的本发明的化合物,或接触包含生物学有效量的本发明的化合物的组合物。还值得注意的是这样的方法,其中环境为土壤并且将所述组合物作为浸壤制剂施用到土壤中。还值得注意的是,还可通过局部施用到所侵害的位置上来使本发明的化合物生效。其他接触方法包括经由直接喷雾和滞留喷雾、航空喷洒、凝胶、种子包覆、微胶囊化、全身吸收、饵料、耳标、大丸剂、喷雾、熏剂、气溶胶、粉剂以及其他许多方法,来施用本发明的化合物或组合物。接触方法的一个实施方案是尺寸上稳定的肥料颗粒、包含本发明的化合物或组合物的小块或片剂。本发明的化合物还可浸渍到用于组装无脊椎害虫控制装置(例如防昆虫网)的材料中。

[1091] 本发明的化合物还可用于向种子提供保护以避免无脊椎害虫侵害的种子处理物中。在本公开和权利要求上下文中,处理种子是指,使种子接触通常被配制成本发明的组合物的生物学有效量的本发明的化合物。这样的种子处理物保护种子以避免无脊椎地下害虫侵害,并且一般还可保护由发芽的种子发育成的秧苗根茎和其他接触土壤的植株部分。所述种子处理物还通过使本发明的化合物或第二活性成分在发育的植株中移动,向叶子提供保护。可将种子处理物施用到各类种子上,包括可发芽形成转基因植株以表达特定特征的那些种子。代表性实例包括表达对无脊椎害虫具有毒性的蛋白质的那些,如苏云金芽孢杆菌毒素,或表达抗除草剂性的那些,如提供草甘膦抗性的草甘膦乙酰转移酶。

[1092] 种子处理的一种方法是在播撒种子之前,用本发明的化合物(即作为配制好的组合物)喷雾或撒粉于种子上。配制用于处理种子的组合物一般包含成膜剂或粘合剂。因此,本发明的种子包衣组合物通常包含生物学有效量的式 1 的化合物和成膜剂或粘合剂。通过将可流动的悬浮浓缩液直接喷雾到种子滚动床中,然后将种子干燥,来将种子包衣。作为另外一种选择,可将其他制剂类型如湿粉、溶液、水悬乳剂、可乳化的浓缩液和乳液的水溶液喷雾到种子上。该方法尤其可用于将膜包衣施用到种子上。本领域技术人员可采用各种包衣设备和方法。适宜的方法包括 P. Kusters 等人在 *Seed Treatment: Progress and Prospects* (1994BCPC 专著 No. 57) 以及其中所列参考文献中列出的那些。

[1093] 处理过的种子通常包含本发明的化合物,其量为约 0.1g 至 1kg 每 100kg 种子(即处理前按所述种子重量计为约 0.0001 至 1%)。用于种子处理的可流动悬浮液制剂通常包含约 0.5 至约 70% 的活性成分,约 0.5 至约 30% 的成膜粘合剂,约 0.5 至约 20% 的分散剂,

0 至约 5% 的增稠剂, 0 至约 5% 的颜料和 / 或染料, 0 至约 2% 的消泡剂, 0 至约 1% 的防腐剂, 和 0 至约 75% 的挥发性液体稀释剂。

[1094] 本发明的化合物可被掺入到饵料组合物中, 所述饵料组合物可被无脊椎害虫食用, 或用于装置如诱捕器、饵料站等中。此类饵料组合物可为颗粒形式, 其包含 (a) 活性成分即生物学有效量的式 1 的化合物; (b) 一种或多种食物物料; 任选的 (c) 诱虫剂, 和任选的 (d) 一种或多种湿润剂。值得注意的是颗粒或饵料组合物, 其包含约 0.001-5% 的活性成分, 约 40-99% 的食物物料和 / 或诱虫剂; 以及任选约 0.05-10% 的湿润剂, 其可在非常低的施用速率下, 尤其是在摄取而不是直接接触时致命的活性成分剂量下, 有效控制土壤无脊椎害虫。某些食物物料既可用作食物源, 也可用作诱虫剂。食物物料包括碳水化合物、蛋白质和类脂。食物物料的实例是蔬菜粉、糖、淀粉、动物脂、植物油、酵母提取物和乳固形物。诱虫剂的实例是增味剂和香味剂, 如水果或植物提取物、香料、或其他动物或植物组分、信息素或已知用于吸引目标无脊椎害虫的其他试剂。湿润剂即保水剂实例是乙二醇和其他多元醇、甘油和山梨醇。值得注意的是用于控制至少一种选自蚂蚁、白蚁和蟑螂的无脊椎害虫的饵料组合物 (以及使用此类饵料组合物的方法)。用于控制无脊椎害虫的装置包括本发明的饵料组合物和适于容纳所述饵料组合物的外罩, 其中所述外罩具有至少一个开口, 所述开口的尺寸能够使无脊椎害虫通过, 以使无脊椎害虫能够从位于外罩外部的的位置触及所述饵料组合物, 并且其中所述外罩还适于放置在潜在或已知的无脊椎害虫活动场所之中或附近。

[1095] 可在无其他辅剂的情况下施用本发明的化合物, 但是最常见的施用是施用制剂, 所述制剂包含一种或多种具有适宜载体、稀释剂和表面活性剂的活性成分, 并且根据所设想的最终用途, 有可能与食物组合。一种施用方法涉及将本发明的化合物的水分散体或精炼油溶液进行喷雾。与喷雾油、喷雾油浓缩液、粘展剂、辅剂、其他溶剂以及增效剂如胡椒基丁醚的组合通常可增强化合物功效。就非农业用途而言, 此类喷剂可从喷雾容器如罐、瓶或其他容器中, 经由泵或通过将其从加压容器例如加压气溶胶喷雾罐中释出来施用。此类喷剂组合物可采取多种形式, 例如喷剂、薄雾、泡沫、烟雾或尘雾。因此, 此类喷剂组合物还可根据应用的需要, 包含推进剂、发泡剂等。值得注意的是喷剂组合物, 所述组合物包含生物学有效量的本发明的化合物或组合物, 以及载体。此类喷剂组合物的一个实施方案包含生物学有效量的本发明的化合物或组合物, 以及推进剂。代表性的推进剂包括但不限于甲烷、乙烷、丙烷、丁烷、异丁烷、丁烯、戊烷、异戊烷、新戊烷、戊烯、氢氟烃、氯氟烃、二甲基醚, 以及前述的混合物。值得注意的是用于控制至少一种无脊椎害虫的喷剂组合物 (以及使用由喷雾容器分配出的此类喷剂组合物的方法), 所述无脊椎害虫选自蚊子、墨蚊、厩蝇、鹿虻、马虻、黄蜂、胡蜂、大胡蜂、壁虱、蜘蛛、蚂蚁、蚋等等, 包括各种上述害虫或其组合。

[1096] 非农业用途是指在非农作物田地的区域中控制无脊椎害虫。本发明的化合物和组合物的非农业用途包括控制储藏的谷物、菜豆和其他食品中的以及纺织物如衣服和地毯中的无脊椎害虫。本发明的化合物和组合物的非农业用途还包括控制观赏植物、森林作物、庭院、沿路边和铁路的公用事业用地、以及草皮如草坪、高尔夫球场和牧场上的无脊椎害虫。本发明的化合物和组合物的非农业用途还包括控制由人和 / 或伴侣动物、家畜、农场动物、动物园动物或其他动物居住的居室和其他建筑物中的无脊椎害虫。本发明的化合物和组合物的非农业用途还包括控制会损坏用于建筑中的木头或其他建筑材料的害虫如白蚁。

[1097] 本发明的化合物和组合物的非农业用途还包括通过控制寄生或传播传染病的无脊椎害虫来护人和动物的健康。控制动物寄生物包括控制寄生在宿主动物身体表面（例如肩部、腋窝、腹部、大腿内侧）的体外寄生物以及寄生在宿主动物身体内部（例如胃、肠、肺、静脉、皮下、淋巴组织）中的体内寄生物。体外寄生性或疾病传播性害虫包括例如恙螨、壁虱、虱子、蚊子、苍蝇、螨虫和跳蚤。体内寄生物包括犬恶丝虫、钩虫和蠕虫。本发明的化合物和组合物尤其适于抗击体外寄生性或疾病传播性害虫。本发明的化合物和组合物适于全身和 / 或非全身性控制由寄生物对动物造成的侵染或感染。

[1098] 本发明的化合物和组合物适于抗击以动物为寄生对象的寄生物，所述动物包括那些野生动物、牲畜和农业役用动物，如牛、绵羊、山羊、马、猪、驴、骆驼、野牛、水牛、兔子、母鸡、火鸡、鸭和鹅（例如饲养以获得肉、奶、黄油、蛋、毛皮、皮革、羽毛和 / 或羊毛）。通过抗击寄生物，减少了死亡率并且缓解了收益降低（在肉、奶、羊毛、毛皮、蛋、蜂蜜等方面），使得包含本发明的化合物的组合物的施用能够更加经济并且使动物的饲养更加简便。

[1099] 本发明的化合物和组合物尤其适于抗击以伴侣动物和宠物（例如狗、猫、宠物鸟和观赏鱼）、研究和实验动物（例如仓鼠、豚鼠、大鼠和小鼠）以及饲养于动物园、野外栖息地和 / 或马戏团中的动物为寄生体的寄生物。

[1100] 在本发明的实施方案中，所述动物优选为脊椎动物，并且更优选为哺乳动物、禽类或鱼类。在特定实施方案中，动物对象为哺乳动物（包括大猿类，如人类）。其他哺乳类对象包括灵长目动物（例如猴子）、牛科动物（例如畜牛或奶牛）、猪科动物（例如家养猪或野猪）、羊科动物（例如山羊或绵羊）、马科动物（例如马）、犬科动物（例如狗）、猫科动物（例如屋猫）、骆驼、鹿、驴、野牛、水牛、羚羊、兔子和啮齿动物（例如豚鼠、松鼠、大鼠、小鼠、沙鼠和仓鼠）。禽类包括鸭科动物（天鹅、鸭和鹅）、鸠鸽科动物（例如斑鸠和家鸽）、雉科动物（例如鹌鹑、松鸡和火鸡）、鸡科动物（例如家鸡）、鸚鵡科动物（例如长尾小鸚鵡、金刚鸚鵡和鸚鵡）、猎禽和平胸鸟（例如鸵鸟）。

[1101] 由本发明的化合物处理或保护的鸟与商业或非商业鸟类饲养相关。这些包括鸭科动物如天鹅、鹅和鸭，鸠鸽科动物如斑鸠和家鸽，雉科动物如鹌鹑、松鸡和火鸡，鸡科动物如家鸡，以及鸚鵡科动物如长尾小鸚鵡、金刚鸚鵡和为宠物或收集市场饲养的鸚鵡等等。

[1102] 就本发明目的而言，术语“鱼”应被理解为无限制地包括真骨鱼类即硬骨鱼。鲑目（其包括鲑科）和鲈形目（其包括棘臀鱼科）均包含在真骨鱼类中。可能的鱼受体实例包括鲑科、鲈科、鲷科、丽鱼科和棘臀鱼科等等。

[1103] 还设想了受益于本发明方法的其他动物，包括有袋目哺乳动物（如袋鼠）、爬行动物（如养殖鳖）以及本发明方法可安全有效地为其处理或预防寄生物感染或侵染的其他具有经济重要性的家畜。

[1104] 通过向待保护动物施用杀寄生物有效量的本发明的化合物而受控的无脊椎寄生物实例包括体外寄生物（节肢类、螨类等）和体内寄生物（蠕虫类，例如线虫、吸虫、绦虫、棘头虫等）。

[1105] 一般描述为蠕虫病的疾病或一类疾病应归于动物宿主被称为蠕虫的寄生虫感染。术语“蠕虫”旨在包括线虫、吸虫、绦虫和棘头虫。蠕虫病是与驯养动物如猪、绵羊、马、牛、山羊、狗、猫和家禽相关的普遍并且严重的经济问题。

[1106] 在蠕虫中，描述为线虫的一类蠕虫可在多种类型动物中引发广泛并且有时严重的

感染。设想可用本发明化合物和本发明方法处理的线虫无限制地包括下列类属：棘唇线虫属、猫圆线虫属、钩口线虫属、血管圆线虫属、鸡蛔虫属、蛔虫属、布鲁格氏丝虫属、仰口线虫属、毛细线虫属、夏氏线虫属、古柏线虫属、环体线虫属、网尾线虫属、膨结线虫属、棘唇线虫属、裂头绦虫属、恶丝虫属、龙线虫属、蛲虫属、类丝虫属、血矛线虫属、异刺线虫属、

[1107] 兔唇蛔属、罗阿丝虫属、曼森线虫属、缪勒线虫属、板口线虫属、细颈线虫属、结节线虫属、胃线虫属、尖尾线虫属、副丝虫属、副蛔虫属、泡翼线虫属、原圆线虫属、鬃丝虫属、旋尾线虫属、冠丝虫属、类圆线虫属、圆线虫属、吸吮线虫属、弓蛔线虫属、弓蛔虫属、毛线虫属、毛线属、毛圆线虫属、鞭虫属、钩虫属和吴策线虫属。

[1108] 在上文中，可感染上述动物的最常见线虫属是血矛线虫属、毛圆线虫属、胃线虫属、细颈线虫属、古柏线虫属、蛔虫属、仰口线虫属、结节线虫属、夏氏线虫属、鞭虫属、圆线虫属、毛线属、网尾线虫属、毛细线虫属、异刺线虫属、弓蛔虫属、鸡蛔虫属、尖尾线虫属、钩口线虫属、钩虫属、弓蛔线虫属和副蛔虫属。这些中的某些如细颈线虫属、古柏线虫属和结节线虫属主要攻击肠道，而另一些如血矛线虫属和胃线虫属更盛行于胃部，而另一些如网尾线虫属存在于肺中。其他寄生物还位于其他组织中，如心脏和血管、皮下组织和淋巴组织等等。

[1109] 设想可用本发明化合物和本发明方法处理的吸虫无限制地包括下列类属：重翼吸虫属、片吸虫属、侏形吸虫属、后睾吸虫属、并殖吸虫属和血吸虫属。

[1110] 设想可用本发明化合物和本发明方法处理的绦虫无限制地包括下列类属：裂头绦虫属、复孔绦虫属、迭宫绦虫属和带绦虫属。

[1111] 人胃肠道的最常见寄生物类属是钩口线虫属、板口线虫属、蛔虫属、类圆线虫属、毛线虫属、毛细线虫属、鞭虫属和蛲虫属。其他存在于血液或胃肠道外其他组织和器官中的具有医学重要性的寄生物类属是丝虫如吴策线虫属、布鲁格氏丝虫属、旋盘尾丝虫和罗阿丝虫属以及龙线虫属丝虫，以及其他肠段蛔虫类圆线虫属和毛线虫属丝虫。

[1112] 众多其他蠕虫类属和物种是本领域已知的，并且也可设想用本发明的化合物处理。这些更详细地列举于 Textbook of Veterinary Clinical Parasitology 第一卷 Helminths (E. J. L. Soulsby, F. A. Davis Co., Philadelphia, Pa.) ; Helminths, Arthropods and Protozoa (Monnig 的 Veterinary Helminthology and Entomology 第 6 版, E. J. L. Soulsby, The Williams and Wilkins Co., Baltimore, Md) 中。

[1113] 还设想，本发明的化合物可有效地抵抗多种动物体外寄生物，例如哺乳动物和鸟类的节肢动物体外寄生物，然而也可设想，某些节肢动物还可以是体内寄生物。

[1114] 因此，昆虫和蜱螨害虫包括例如叮咬昆虫如苍蝇和蚊子、螨虫、壁虱、虱子、跳蚤、椿象、寄生蛆等等。

[1115] 苍蝇成虫包括，例如，角蝇或扰血蝇、马虻或马蝇、厩蝇或厩螫蝇、墨蚊或黑蝇、鹿虻或斑虻、虱蝇或飞虱、采采蝇或舌蝇。寄生性蝇蛆包括，例如，肤蝇（胃蝇和狂蝇）、绿头苍蝇或丽蝇、旋蝇蛆或旋丽蝇幼虫、牛皮蝇或足跟蝇、羊毛蝇蛆和马胃蝇蛆。蚊子包括例如库蚊属、按蚊属和伊蚊属。

[1116] 螨虫包括中气门亚目螨虫，例如中气刺螨如鸟螨、鸡皮刺螨；疥螨或痒螨，如疥螨科类型，例如人疥螨；畜痒螨如痒螨科类型，包括牛足螨和羊痒螨；恙螨，例如恙螨科类型，例如北美恙螨、阿氏真恙螨。

[1117] 壁虱包括例如软体壁虱,其包括隐喙蜱科类型,例如锐缘蜱属类型和钝缘蜱属类型;硬体壁虱,其包括硬蜱科类,例如血红扇头蜱、变异革蜱、安氏革蜱、美洲钝眼蜱、肩突硬蜱以及牛蜱属类型。

[1118] 虱包括,例如,吸血虱例如短羽虱属类型和牛羽虱属类型;叮咬虱例如血虱属类型、颚虱属类型和盲虱属类型。

[1119] 跳蚤包括,例如,栲头蚤属类型如犬蚤 (*Ctenocephalides canis*) 和猫蚤 (*Ctenocephalides felis*);客蚤属类型如东方具带病蚤 (*Xenopsylla cheopis*);和蚤属类型如人蚤 (*Pulex irritans*)。

[1120] 椿象包括例如臭虫属椿象或例如常见的臭虫 (*Cimex lectularius*);椎猎蝽亚科类型,包括还被称为猎蝽的猎蝽;例如长红猎蝽和锥蝽属类型。

[1121] 一般来讲,苍蝇、跳蚤、虱子、蚊子、蚋、螨虫、壁虱和蠕虫对对牲畜和伴侣动物领域造成了巨大的损失。节肢动物寄生物还对人造成麻烦,并且可以是人和动物致病生物体的载体。

[1122] 众多其他节肢动物害虫和体外寄生物是本领域已知的,并且也可设想用本发明的化合物处理。这些更详细地列举于 *Medical and Veterinary Entomology* (D. S. Kettle, John Wiley & Sons, New York and Toronto); *Control of Arthropod Pests of Livestock: A Review of Technology* (R. O. Drummand, J. E. George 和 S. E. Kunz, CRC Press, Boca Raton, Fla) 中。

[1123] 本发明的化合物和组合物还可有效抵抗众多动物原虫体内寄生物,包括下表 1 中总结的那些。

[1124]

表 1			
示例性寄生原生动物和相关的人体疾病			
门	亚门	代表性类属	人体疾病或不适
肉足鞭毛虫门 (带有鞭毛、伪足 或两者)	鞭毛虫亚门 (鞭毛)	利什曼原虫属	内脏、皮肤和粘膜皮肤 感染
		锥虫属	昏睡病
			恰加斯氏病
		梨形鞭毛虫属	痢疾
		毛滴虫属	阴道炎
	肉足虫纲(伪 足)	内阿米巴属	痢疾、肝脓肿
		双核阿米巴属	结肠炎
		纳氏虫属和棘阿米巴属	中枢神经系统和角膜溃 瘍
		巴贝虫属	巴贝西虫病
顶复门 (顶复体)		疟原虫属	疟疾
		等孢子球虫属	
		肉孢子虫属	
		隐孢子虫属	
		弓首线虫属	弓形体病
		艾美虫属	鸡球虫病
微孢子门		肠胞虫属	
纤毛门 (具有纤毛)		肠袋虫属	痢疾
未分类		肺囊虫属	肺炎

[1125] 具体地讲,本发明的化合物可有效地抵抗体外寄生物,包括:跳蚤如 *Ctenocephalides felis*(猫蚤)和 *Ctenocephalides canis*(犬蚤)。

[1126] 本发明的化合物还可有效地抵抗其它体外寄生物,包括飞虫如 *Haematobia (Lyperosia) irritans*(角蝇)、*Stomoxys calcitrans*(厩蝇)、*Simulium* 属(墨蚊)、*Glossina* 属(采采蝇)、*Hydrotaea irritans*(大头苍蝇)、*Musca autumnalis*(秋家蝇)、*Musca domestica*(家蝇)、*Morellia simplex*(简莫蝇)、*Tabanus* 属(马虻)、*Hypoderma bovis*、*Hypoderma lineatum*、*Lucilia sericata*、*Lucilia cuprina*(丝光绿蝇)、*Calliphora* 属(丽蝇)、*Protophormia* 属、*Oestrus ovis*(羊鼻蝇)、*Culicoides* 属(蠓)、*Hippobosca equina*、*Gastrophilus instestinalis*、*Gastrophilus haemorrhoidalis* 和 *Gastrophilus nasalis*; 虱子,如 *Bovicola (Damalinia) bovis*、*Bovicola equi*、*Haematopinus asini*、*Felicola subrostratus*、*Heterodoxus spiniger*、*Lignonathus setosus* 和 *Trichodectes canis*; 羊蜱蝇,如 *Melophagus ovinus*; 螨虫如 *Psoroptes* 属、*Sarcoptes scabiei*、*Chorioptes bovis*、*Demodex equi*、*Cheyletiella* 属、*Notoedres cati*、*Trombicula* 属和 *Otodectes cyanotis*(耳螨); 以及壁虱,如 *Ixodes* 属、*Boophilus* 属、*Rhipicephalus* 属、*Amblyomma* 属、*Dermacentor* 属、*Hyalomma* 属以及 *Haemaphysalis* 属。

[1127] 可用于本发明的组合物中的生物活性化合物或试剂包括有机磷酸酯杀虫剂。此类杀虫剂作为杀昆虫剂具有非常广泛的活性,并且在某些情况下,具有驱虫活性。有机磷酸酯杀虫剂包括例如百治磷、特丁磷、乐果、敌匹硫磷、乙拌磷、敌百虫、谷硫磷、氯蜚硫磷、马拉硫磷、乙酰甲胺磷、甲胺磷、高灭磷、乙基对硫磷、甲基对硫磷、速灭磷、甲拌磷、三硫磷和伏杀硫磷。还设想包括本发明的方法和组合物与氨基甲酸酯型杀虫剂的组合,以及与有机氯型杀虫剂的组合,所述氨基甲酸酯型杀虫剂包括例如西维因、克百威、涕灭威、禾草特、乙肟威、克百威等。还设想包括与生物杀虫剂的组合,所述生物杀虫剂包括拒斥剂、除虫菊酯(以及其合成变体,例如丙烯除虫菊酯、灭虫菊、扑灭司林、四溴菊酯)和通常用作杀螨剂的尼古丁。其他设想的组合是与杂项杀虫剂的组合,包括:苏云金芽孢杆菌、克氯苯、甲脒(例如双甲脒)、铜化合物(例如氢氧化铜和氧氯化硫酸铜)、氟氯氰菊酯、氯氰菊酯、三氯杀螨醇、硫丹、顺式氰戊菊酯、腈苯苯醚菊酯、高三氟氯氰菊酯、甲氧滴滴涕和硫。

[1128] 值得注意的是附加生物活性化合物或试剂,其选自本领域已知的驱肠虫剂,如阿维菌素(例如伊维菌素、莫西菌素、米尔倍霉素)、苯并咪唑(例如阿苯达唑、三氯苯咪唑)、N-水杨酰苯胺(例如氯生太尔、羟氯扎胺)、取代的苯酚(例如硝羟碘苄腈)、嘧啶(例如噻嘧啶)、咪唑噻唑(例如左咪唑)和吡喹酮。

[1129] 可用于本发明的组合物中的其他生物活性化合物或试剂可选自昆虫生长调节剂(IGR)和保幼激素类似物(JHA),如除虫脲、杀虫脲、氟佐隆、赛灭净、甲氧普烯等,从而向动物对象以及动物对象的环境提供对寄生虫的初始和持续控制(在昆虫生长的所有阶段,包括卵)。

[1130] 值得注意的是可用于本发明的组合物中的生物活性化合物或试剂,其选自抗寄生物类阿维菌素化合物。如上所述,阿维菌素类化合物是已知可用于抵抗广谱哺乳动物体内寄生物和体外寄生物的一系列强效抗寄生物剂。

[1131] 可用于本发明范畴内的值得注意的化合物是伊维菌素。伊维菌素是阿维菌素的半合成衍生物,并且一般被制成至少 80% 22,23-二氢阿维菌素 B_{1a} 和小于 20% 22,23-二氢阿维菌素 B_{1b} 的混合物。伊维菌素公开于 U. S. 4, 199, 569 中。

[1132] 阿巴美丁是在 U. S. 4, 310, 519 中作为除虫菌素 B_{1a}/B_{1b} 公开的阿维菌素。阿巴美丁包含至少 80% 的阿维菌素 B_{1a} 和不超过 20% 的阿维菌素 B_{1b}。

[1133] 另一种值得注意的阿维菌素是多拉菌素,其还被称为 25-环己基阿维菌素 B₁。多拉菌素的结构和制备公开于 U. S. 5, 089, 480 中。

[1134] 另一种值得注意的阿维菌素是莫西菌素。莫西菌素还被称为 LL-F28249 α, 由 U. S. 4, 916, 154 中获知。

[1135] 另一种值得注意的阿维菌素是塞拉菌素。塞拉菌素是 25-环己基-25-脱(1-甲基丙基)-5-脱氧-22,23-二氢-5-(异亚硝基)-阿维菌素 B₁ 单糖。

[1136] 米尔倍霉素或 B41 是从产生米尔倍霉素的链霉菌属菌株发酵液中分离出的物质。微生物、发酵条件和分离方法更完备地描述于 U. S. 3, 950, 360 和 U. S. 3, 984, 564 中。

[1137] 按照 U. S. 5, 288, 710 或 U. S. 5, 399, 717 所述制得的甲氨基阿维菌素(4''-脱氧-4''-表-甲基氨基除虫菌素 B₁)是两种同系物 4''-脱氧-4''-表-甲基氨基除虫菌素 B_{1a} 和 4''-脱氧-4''-表-甲基氨基除虫菌素 B_{1b} 的混合物。优选施用甲氨基阿维菌素的盐。可用于本发明中的甲氨基阿维菌素盐的非限制性实例包括 U. S. 5, 288, 710 中所述的

盐,例如衍生自苯甲酸、取代的苯甲酸、苯磺酸、柠檬酸、磷酸、酒石酸、马来酸等的盐。可用于本发明中的甲氨基阿维菌素盐最优选为甲氨基阿维菌素苯甲酸盐。

[1138] 依立诺克丁在化学上被称为 4''-表-乙酰基氨基-4''-脱氧阿维菌素 B1。特别研制依立诺克丁,以用于所有牛类别和年龄组。它是对体内和体外寄生物显示出广谱活性,同时还在肉和奶中留有极少残留物的第一阿维菌素。当局部递送时,它具有高效的附加优点。

[1139] 本发明的组合物任选包含一种或多种下列抗寄生物化合物的组合:如提交于 2004 年 12 月 22 日的美国专利申请系列号 11/019,597 中所述的咪唑并 [1,2-b] 哒嗪化合物;提交于 2004 年 12 月 21 日的美国专利申请系列号 11/018,156 中所述的 1-(4-一卤代甲基磺酰基苯基和二卤代甲基磺酰基苯基)-2-酰氨基-3-氟丙醇化合物;提交于 2005 年 9 月 21 日的美国专利申请系列号 11/231,423 中所述的三氟甲磺酰苯胺衍生物;和提交于 2005 年 6 月 9 日的美国临时申请系列号 60/688,898 中所述的 n-[(苯氧基)苯基]-1,1,1-三氟甲磺酰胺和 n-[(苯硫基)苯基]-1,1,1-三氟甲磺酰胺衍生物。

[1140] 本发明的组合物还可包含杀吸虫剂。适宜的杀吸虫剂包括例如三氯苯咪唑、芬苯哒唑、阿苯达唑、氯舒隆和奥苯达唑。应当理解,上文的组合还可包括抗生素、抗寄生物和抗吸虫活性化合物的组合。

[1141] 除了上述组合以外,还设想提供如本文所述的本发明的方法和化合物与其他动物健康药物的组合,所述动物健康药物如痕量元素、抗炎剂、抗感染剂、激素、皮肤病制剂(包括防腐剂和消毒剂)和免疫制剂如用于预防疾病的疫苗和抗血清。

[1142] 例如,此类抗感染剂包括在使用本发明的化合物或方法处理期间,任选可以例如组合的组合物形式和/或分开的剂型同时施用的一种或多种抗生素。适用于此目的的本领域已知的抗生素包括例如下列那些。

[1143] 一种可用的抗生素是氟苯尼考,其还被称为 D-(苏式)-1-(4-甲磺酰苯基)-2-二氯乙酰氨基-3-氟-1-丙醇。另一种值得注意的抗生素化合物是 D-(苏式)-1-(4-甲磺酰苯基)-2-二氟乙酰氨基-3-氟-1-丙醇。另一种可用的抗生素是甲砒氯霉素。制备这些抗生素化合物的方法以及用于此类方法中的中间体描述于 U. S. 4,311,857、U. S. 4,582,918、U. S. 4,973,750、U. S. 4,876,352、U. S. 5,227,494、U. S. 4,743,700、U. S. 5,567,844、U. S. 5,105,009、U. S. 5,382,673、U. S. 5,352,832 和 U. S. 5,663,361 中。其他氟苯尼考类似物和/或药物前体已被公开,并且此类类似物也被用于本发明组合物和方法中(参见例如美国专利申请公布 No. 2004/0082553 和美国专利申请系列号 11/016,794)。

[1144] 另一种可用的抗生素化合物是替米考星。替米考星是大环内酯抗生素,其在化学上被定义为 20-二氢-20-脱氧-20-(顺式-3,5-二甲基哌啶-1-基)-脱碳酶糖泰乐菌素,并且据报道,其公开于 U. S. 4,820,695 中。

[1145] 另一种可用于本发明中的有用抗生素是土拉霉素。土拉霉素还被称为 (2R,3S,4R,5R,8R,10R,11R,12S,13S,14R)13-[(2,6-二脱氧-3-C-甲基-3-O-甲基-4-C-[(丙基氨基)甲基]- α -L-核-己吡喃糖基]氧基]-2-乙基-3,4,10-三羟基-3,5,8,10,12,14-六甲基-11-[[3,4,6-三脱氧-3-(二甲基氨基)- β -D-木-己吡喃糖基]氧基]-1-氧杂-6-氮杂环十五烷-15-酮。土拉霉素可根据美国专利公布 No. 2003/0064939 A1 中所述的方法制得。

[1146] 可用于本发明中的其他抗生素包括先锋霉素如头孢噻吩、头孢唑肟等。先锋霉素在本发明制剂中的浓度任选在约 1mg/mL 至 500mg/mL 之间变化。

[1147] 另一种可用的抗生素包括氟喹诺酮,如恩诺沙星、达氟沙星、二氟沙星、奥比沙星和马波沙星。恩诺沙星的施用浓度通常为约 100mg/mL。达氟沙星的施用浓度通常为约 180mg/mL。

[1148] 其他可用的大环内酯抗生素包括酮内酯类、或更具体地讲氮杂内酯类化合物。此类化合物描述于例如 U. S. 6, 514, 945、U. S. 6, 472, 371、U. S. 6, 270, 768、U. S. 6, 437, 151、U. S. 6, 271, 255、U. S. 6, 239, 112、U. S. 5, 958, 888、U. S. 6, 339, 063 和 U. S. 6, 054, 434 中。

[1149] 其他可用的抗生素包括四环素,尤其是氯四环素和氧四环素。其他抗生素可包括 β -内酰胺如青霉素,例如青霉素、氨苄青霉素、阿莫西林、或阿莫西林与棒酸或其他 β -内酰胺酶抑制剂的组合。

[1150] 兽医领域内的非农业应用可通过常规的方法,如通过以例如片剂、胶囊、饮剂、浸液制剂、颗粒、糊剂、大丸剂、喂入操作或栓剂形式的肠道给药;或通过非肠道给药,如通过注射(包括肌内注射、皮下注射、静脉注射、腹膜内注射)或植入;通过经鼻给药;局部施用,例如以浸入或浸渍、喷雾、洗涤、用粉末涂覆的形式,或施用到动物身体的小面积上,以及通过包含本发明的化合物或组合物的制品如颈圈、耳标、尾带、肢带、或缰绳的施用。

[1151] 本发明的任一种化合物或此类化合物的适宜组合可被直接施用到动物受体上,和/或通过将其施用到动物所居住的局部环境(如垫草、围栏等等)中来非直接施用。直接施用包括使动物受体的皮肤、毛皮或羽毛接触所述化合物,或将所述化合物给料于动物或注射到动物体内。

[1152] 本发明的化合物可以受控释放形式施用,例如为皮下缓慢释放制剂,或为固定在动物上的受控释放装置形式如灭蚤项圈。用于受控释放杀昆虫剂以长期保护伴侣动物避免跳蚤侵染的项圈是本领域已知的,并且被描述于例如 U. S. 3, 852, 416、U. S. 4, 224, 901、U. S. 5, 555, 848 和 U. S. 5, 184, 573 中。

[1153] 通常如本发明所述的杀寄生物组合物包含式 1 化合物与一种或多种药学或兽医学可接受的载体的混合物,所述载体包含赋形剂和助剂,其根据期望的给药途径(例如口腔给药、局部给药或非肠道给药如注射)并且根据标准操作来选择。此外,根据与所述组合物中一种或多种活性成分的相容性,包括如对 pH 和含水量的相对稳定性的考虑,来选择适宜的载体。因此,值得注意的是用于保护动物免受无脊椎寄生害虫侵害的组合物,所述组合物包含杀寄生物有效量的本发明的化合物和至少一种载体。

[1154] 就非肠道给药(包括静脉注射、肌内注射和皮下注射)而言,本发明的化合物可在油性或水性载体中被配制成悬浮液、溶液或乳液,并且可包含助剂,如悬浮剂、稳定剂和/或分散剂。还可配制本发明的化合物,以供快速浓注或连续滴注。供注射的药物组合物包括水溶性形式的活性成分(例如活性化合物的盐)水溶液,优选在如药物制剂领域已知的包含其他赋形剂或助剂的生理相容缓冲液中。此外,可在亲脂性载体中制备活性化合物的悬浮液。适宜的亲脂性载体包括脂肪油如芝麻油,合成脂肪酸酯如油酸乙酯和甘油三酯,或如脂质体的物质。含水注射悬浮液可包含增加所述悬浮液粘度的物质,如羧甲基纤维素钠、山梨醇或葡聚糖。用于注射的制剂可以单位剂型存在于例如安瓿容器或多剂量容器中。作为另外一种选择,所述活性成分可为粉末形式,在使用前与适宜载体例如不含热原的无菌

水组合。

[1155] 除了上述制剂以外,本发明的化合物还可被配制成长效制剂。此类长效制剂可通过植入(例如皮下或肌内)或通过肌内注射或皮下注射来给药。就此给药途径而言,可将本发明化合物与适宜的聚合材料或疏水材料(例如在含有药物药学可接受的油的乳液中),与离子交换树脂配制在一起,或将所述化合物配制成微溶衍生物,如但不限于微溶性盐。

[1156] 就通过吸入来给药而言,使用加压包装或喷雾器以及适宜的推进剂例如(无限制)二氯二氟甲烷、三氯氟甲烷、二氯四氟乙烷或二氧化碳,可以气溶胶喷雾形式递送本发明的化合物。就加压气溶胶而言,可通过提供阀门来控制剂量单位,以递送定量的量。可配制用于吸入机或吹药器的明胶胶囊和药筒,以包含所述化合物的粉末混合物和适宜的粉末基料如乳糖或淀粉。

[1157] 已发现,本发明的化合物具有有利的药动学和药效动力学特性,由口服和摄取提供全身利用度。因此,在要保护的动物摄取后,本发明的化合物在血液中的杀寄生物有效浓度可保护被治疗的动物免受吸血性害虫如跳蚤、壁虱和虱子的侵害。因此值得注意的是保护动物免受无脊椎寄生害虫侵害的口服形式的组合物(即除了杀寄生物有效量的本发明的化合物以外,还包含一种或多种载体,所述载体选自适于口服的粘合剂和填料以及浓缩饲料载体)。

[1158] 就以溶液(最易得的吸收形式)、乳液、悬浮液、糊剂、凝胶、胶囊、片剂、大丸剂、粉末、颗粒、瘤胃保留物和食料/水/舔砖形式口服而言,可用本领域已知的适用于口服组合物的粘合剂/填料来配制本发明的化合物,如糖和糖衍生物(例如乳糖、蔗糖、甘露醇、山梨糖醇)、淀粉(例如玉米淀粉、小麦淀粉、米淀粉、马铃薯淀粉)、纤维素及衍生物(例如甲基纤维素、羧甲基纤维素、乙基羟基纤维素)、蛋白质衍生物(例如玉米蛋白、凝胶)、和合成聚合物(例如聚乙烯醇、聚乙烯吡咯烷酮)。如果需要,可加入润滑剂(例如硬脂酸镁)、崩解剂(例如交联聚乙烯吡咯烷酮、琼脂、藻酸)以及染料或颜料。糊剂和凝胶通常还包含粘合剂(例如金合欢、藻酸、膨润土、纤维素、黄原胶、胶态硅酸铝镁),以有助于使组合物保持与口腔接触,并且不易被排出。

[1159] 如果杀寄生物组合物为浓缩饲料形式,则所述载体通常选自高性能饲料、饲料用谷类或浓缩蛋白质。除了杀寄生物活性成分以外,此类包含浓缩饲料的组合物还包含可促进动物健康或生长、改善来自宰杀动物的肉质或可用于畜牧业的添加剂。这些添加剂包括例如维生素、抗生素、化疗剂、抑菌剂、抑真菌剂、抗球虫药和激素。

[1160] 使用例如常规的栓剂基料如椰子油或其他甘油酯,还可将式1的化合物配制到直肠给药组合物中,如栓剂或保留灌肠剂。

[1161] 用于局部给药的制剂通常为粉末、霜膏、悬浮液、喷雾剂、乳液、泡沫、糊剂、气溶胶、油膏剂、软膏或凝胶形式。局部用制剂更典型为水溶性溶液,其可为使用前稀释的浓缩物形式。适于局部给药的杀寄生物组合物通常包含本发明的化合物和一种或多种局部用适宜载体。在将杀寄生物组合物以线或点的形式(即准确疗法)局部施用到动物体外部时,活性成分在动物体表上迁移,以覆盖其大部分或所有的外表面积。因此,被治疗的动物可尤其对从动物表皮取食的无脊椎害虫如壁虱、跳蚤和虱子免疫。因此,用于局部给药的制剂通常包含至少一种有机溶剂,以有利于活性成分在动物皮肤上传递和/或渗透到动物表皮中。此类制剂中的载体包括丙二醇、石蜡、芳族化合物、酯(如肉豆蔻酸异丙酯)、乙二醇

醚、醇（如乙醇、正丙醇、2-辛基十二烷醇或油醇）；一羧酸酯的溶液，如肉豆蔻酸异丙酯、棕榈酸异丙酯、月桂酸草酸酯、油酸油基酯、油酸癸酯、月桂酸己酯、油酸油基酯、油酸癸酯、链长 C_{12} - C_{18} 的饱和脂肪醇的己酸酯；二羧酸酯的溶液，如邻苯二甲酸二丁酯、间苯二甲酸二异丙酯、己二酸二异丙酯、己二酸二正丁酯，或脂族酸的（例如乙二醇）酯溶液。存在药物或化妆品产业已知的结晶抑制剂或分散剂也可能是有利的。

[1162] 还可配制浇淋制剂，以控制具有农业价值动物的寄生物。本发明的浇淋制剂可为液体、粉末、乳液、泡沫、糊剂、气溶胶、油膏剂、软膏或凝胶形式。浇淋制剂通常为液体。这些浇淋制剂可有效地施用于绵羊、牛、山羊、其他反刍动物、骆驼科哺乳动物、猪和马。通常通过将浇淋制剂以一条或多条细线的形式，或准确浇淋在动物背部中线（背部）或肩部来施用所述浇淋制剂。更典型通过将所述制剂沿着动物背部，顺着脊椎浇淋来施用。还可经由其他常规方法来施用所述制剂，包括用浸渍过的材料在动物的至少一小块面积上擦拭，或者使用可商购获得的施用装置来将其施用，通过注射器施用，通过喷雾施用或通过使用喷雾栅栏过道来施用。浇淋制剂包括载体，并且还可包含一种或多种附加成分。适宜的附加成分的实例是稳定剂如抗氧化剂、铺展剂、防腐剂、粘附促进剂、活性增溶剂如油酸、粘度调节剂、紫外线阻隔剂或吸收剂、以及着色剂。表面活性剂也可包含于这些制剂中，包括阴离子、阳离子、非离子和两性表面活性剂。

[1163] 本发明的制剂通常包含抗氧化剂，如 BHT（丁基化羟基甲苯）。所述抗氧化剂的含量一般为 0.1-5%（重量/体积）。某些制剂需要增溶剂，如油酸，以溶解活性剂，尤其是在使用多杀菌素时。用于这些浇淋制剂中的常见铺展剂是：IPM、IPP、饱和 C_{12} - C_{18} 脂肪醇的辛酸/癸酸酯、油酸、油醇酯、油酸乙酯、甘油三酯、硅油和 DPM。可根据已知的技术来制备本发明的浇淋制剂。当浇淋剂为溶液时，采用加热和搅拌（如果需要），将“杀寄生物剂”/杀昆虫剂与载体或媒介物混合。可将辅助或附加成分加入到活性剂和载体的混合物中，或者在加入载体前将它们与活性剂混合。如果浇淋剂为乳液或悬浮液，则可类似地采用已知技术来制备这些制剂。

[1164] 可使用用于较疏水的药物化合物的其他递送体系。脂质体和乳液是用于疏水性药物的熟知递送媒介物或载体的实例。此外，如果需要，可使用有机溶剂如二甲基亚砜。

[1165] 就农业施用而言，有效控制所需的施用量（即“生物学有效量”）将取决于如下列因素：待控制的无脊椎害虫种类、害虫的生命周期、生命阶段、其大小、位置、一年中的时期、宿主作物或动物、摄食行为、交配行为、环境水分、温度等等。在正常情况下，约 0.01 至 2kg 活性成分每公顷的施用量足以控制农业生态系统内的害虫，但是低至 0.0001kg 每公顷的施用量可能也是足够的，或者高达 8kg 每公顷的施用量可能也是需要的。就非农业施用而言，有效用量将在约 1.0 至 50mg 每平方米范围内，但是低至 0.1mg 每平方米的施用量可能也是足够的，或者高达 150mg 每平方米的施用量可能也是需要的。本领域的技术人员易于确定为达到期望的无脊椎害虫控制制度所需的生物学有效量。

[1166] 一般来讲，就兽医应用而言，以杀寄生物有效量将式 1 的化合物施用于待保护以免受无脊椎寄生害虫侵害的动物。杀寄生物有效量是为达到观察得到的目标无脊椎寄生害虫出现率或活跃度降低的效果所需的活性分量。本领域的技术人员将会知道，杀寄生物有效剂量可根据本发明的化合物和组合物、所需的杀寄生物效应和持续时间、目标无脊椎害虫物种、要保护的动物、施用模式等的不同而变化，并且达到具体效果所需的量可通过简

单的实验来确定。

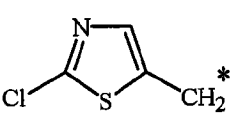
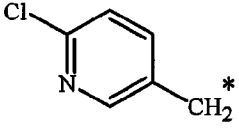
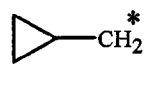
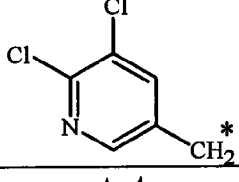
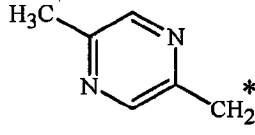
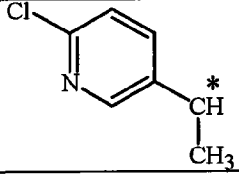
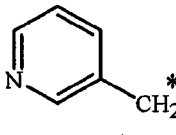
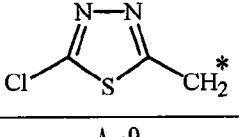
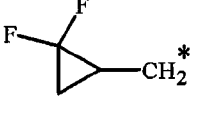
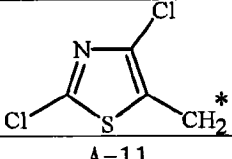
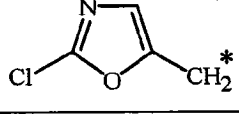
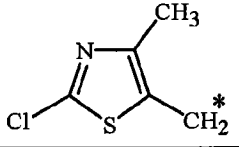
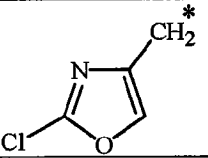
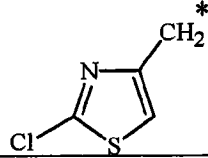
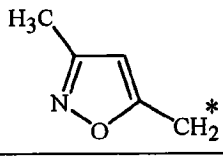
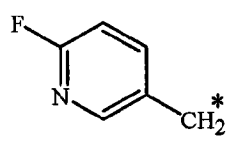
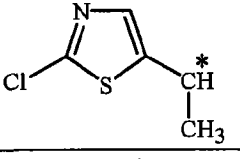
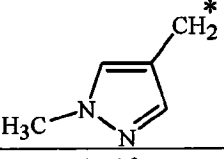
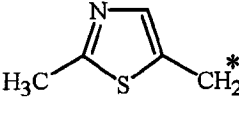
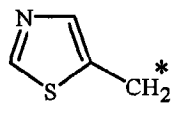
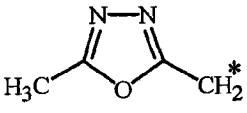
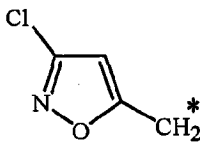
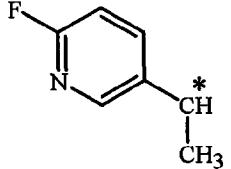
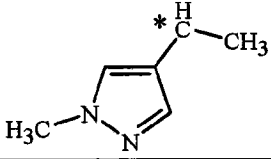
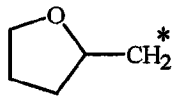
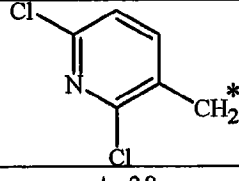
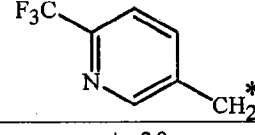
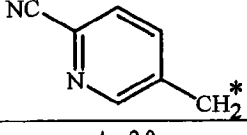
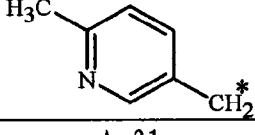
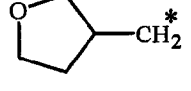
[1167] 就向恒温动物口腔给药而言,本发明的化合物的日剂量通常在 0.01mg/kg 动物体重至约 100mg/kg 动物体重,更典型约 0.5mg/kg 动物体重至约 100mg/kg 动物体重范围内。就局部(例如皮肤)给药而言,蘸料和喷剂通常包含约 0.5ppm 至约 5000ppm,更典型约 1ppm 至约 3000ppm 的本发明的化合物。

[1168] 由本文所述方法制得的本发明化合物示于索引表 A-F 中。¹H NMR 数据参见索引表 G。就质谱数据(AP⁺(M+1))而言,记录的数值是采用大气压化学电离(AP⁺),由质谱观测到的 H⁺(分子量为 1)加在所述分子上获得 M+1 峰所形成的母分子离子的分子量(M)。没有报导包含多个卤素的化合物出现的间隔分子离子峰(例如 M+2 或 M+4)。索引表 C 中的变量“R^a”代表如索引表 C 中所列的一个取代基或取代基的组合。

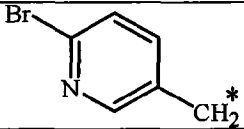
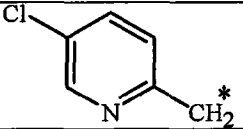
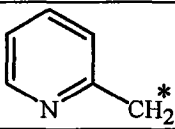
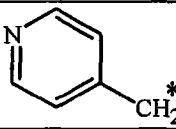
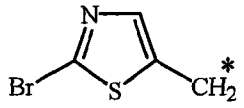
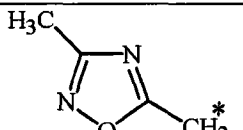
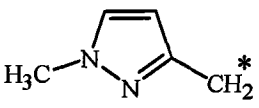
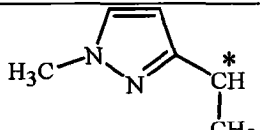
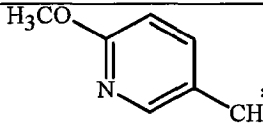
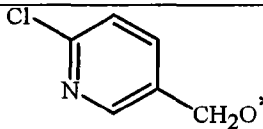
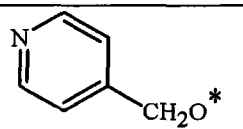
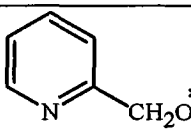
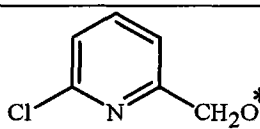
[1169] 下列附加缩写用于索引表中,如下所示:Cmpd 表示化合物,Me 为甲基,Et 为乙基,i-Pr 为异丙基,n-Bu 为正丁基,t-Bu 为叔丁基,Ph 为苯基,CHO 为甲酰基,Ac 为乙酰基(即 C(O)CH₃),并且 SO₂Me 为甲磺酰基。

[1170] 索引表中涉及下文所示片段 A-1 至 A-42 以及 B-1 至 B-4。星号*代表片段与分子其余部分的连接点。

[1171]

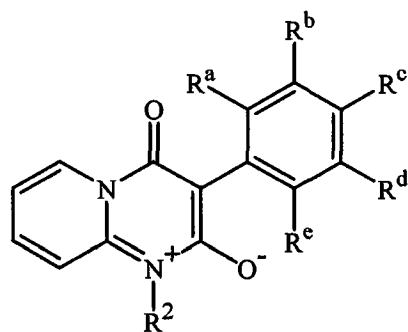
			
A-1	A-2	A-3	A-4
			$\text{ClCF}_2\text{CHFCH}_2\text{CH}_2^*$
A-5	A-6	A-7	A-8
			
A-9	A-10	A-11	A-12
			
A-13	A-14	A-15	A-16
			
A-17	A-18	A-19	A-20
			
A-21	A-22	A-23	A-24
	$\text{ClCF}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2^*$		
A-25	A-26	A-27	A-28
			
A-29	A-30	A-31	A-32

[1172]

			
A-33	A-34	A-35	A-36
			
A-37	A-38	A-39	A-40
			
A-41			
			
B-1	B-2	B-3	B-4

[1173] 索引表 A

[1174]



[1175]

Cmpd	$\underline{R^2}$	$\underline{R^a}$	$\underline{R^b}$	$\underline{R^c}$	$\underline{R^d}$	$\underline{R^e}$	m. p. (°C)	$\frac{AP+}{(M+1)}$
1	CH ₂ CF ₃	H	Br	H	H	H	233-234	
2	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₃	H	H	H	124-125	
3	CH ₂ CF ₃	H	Cl	H	H	H	*	
5	CH ₂ CF ₃	H	H	F	H	H	205-206	
6	CH ₂ CF ₃	H	CF ₃	H	H	H	178-179	
7	CH ₂ CF ₃	H	H	H	H	H	**	
8	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	OCF ₃	H	H	H	*	
9	CH ₂ CF ₃	Cl	Cl	H	H	H	*	
10	CH ₂ CF ₃	F	H	F	H	H	*	
11	CH ₂ CF ₃	F	H	H	H	H	211-212	

[1176]

<u>Cmpd</u>	<u>R²</u>	<u>R^a</u>	<u>R^b</u>	<u>R^c</u>	<u>R^d</u>	<u>R^e</u>	<u>m. p. (°C)</u>	<u>AP+ (M+1)</u>
12	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CF ₃	H	H	H	*	
13	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₂ CF ₃	H	H	H	162-163	
14	CH ₂ CF ₃	F	H	H	OCF ₃	H	*	
15	CH ₂ CF ₃	H	Cl	H	Cl	H	*	
16	CH ₂ CF ₃	H	CH ₃	F	H	H	239-240	
17	CH ₂ CF ₃	OCH ₃	H	H	H	H	*	
18	A-3	H	OCF ₃	H	H	H	*	
19	A-3	H	H	F	H	H	188-189	
20	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	F	H	F	H	*	
21	CH ₂ CF ₃	F	H	Cl	H	H	*	
22	A-8	H	OCF ₃	H	H	H	*	
23	CH ₂ CF ₃	H	F	F	H	H	118-119	
24	CH ₂ CF ₃	H	Br	F	H	H	213-214	
25	CH ₂ CF ₃	OCH ₃	H	H	Cl	H	*	
26	CH ₂ CF ₃	H	H	Cl	H	H	226-227	
27	A-8	H	H	F	H	H	*	
28	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	H	H	H	*	
29	A-3	Cl	H	F	H	H	191-192	
30	A-8	F	H	F	H	H	*	
31	A-3	F	H	F	H	H	204-205	
32	CH ₂ CF ₃	H	F	H	F	H	*	
33	CH ₂ CF ₂ CF ₃	H	OCF ₃	H	H	H	*	
34	CH ₂ CF ₂ CF ₃	H	H	H	H	H	*	
35	CH ₂ CF ₂ CF ₃	H	H	F	H	H	*	
36	CH ₂ CF ₂ CF ₃	F	H	F	H	H	*	
37	CH ₂ CF=CF ₂	H	H	H	H	H	*	
38	CH ₂ CH ₂ CF ₃	H	H	H	H	H	*	
39	A-3	H	H	H	H	H	*	
40	CH ₂ CF ₃	H	OCF ₃	H	H	H	140-141	
41	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	氨基	H	H	*	
122	CH ₂ CH=CH ₂	H	H	H	H	H	**	
42	A-1	H	H	F	H	H	*	
43	A-1	H	H	H	H	H	233-235	
44	A-1	F	H	F	H	H	*	
45	A-1	H	OCF ₃	H	H	H	123-125	
46	A-1	H	CF ₃	H	H	H	152-153	
47	A-1	H	Cl	H	H	H	235-237	
48	A-1	H	H	OCHF ₂	H	H	182-183	
49	A-1	H	H	OCH ₃	H	H	215-217	
50	A-1	F	H	H	H	H	*	

[1177]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
51	A-2	H	Br	H	H	H	*	
52	A-2	H	Cl	H	CF ₃	H	*	
53	A-2	H	CF ₃	H	H	H	*	
54	A-2	H	OCF ₃	H	H	H	*	
55	A-2	H	Br	H	OCF ₃	H	*	
56	A-2	H	Cl	H	H	H	*	
57	A-2	H	H	F	H	H	*	
58	A-2	F	H	H	OCF ₃	H	**	
59	A-2	H	H	H	H	H	**	
60	A-2	H	H	OCHF ₂	H	H	*	
61	A-2	H	F	H	H	H	*	
62	A-2	F	H	H	Br	H	*	
63	A-2	F	H	F	H	H	*	
64	A-2	Cl	H	F	H	H	*	
65	A-2	H	H	F	H	H	211-213	
66	A-2	F	H	H	CF ₃	H	*	
67	A-2	Cl	H	H	OCF ₃	H	*	
68	A-2	F	CF ₃	H	H	H	*	
70	A-2	F	H	H	Cl	H	*	
71	A-2	F	H	F	H	H	226-228	
72	A-2	F	H	H	H	H	*	
73	A-2	H	H	OCF ₃	H	H	*	
74	A-2	H	CF ₃	F	H	H	*	
75	A-2	H	H	OCH ₃	H	H	*	
76	A-2	H	H	CF ₃	H	H	*	
77	A-2	Cl	H	Cl	H	H	*	
78	A-2	F	H	F	F	H	*	
79	A-2	F	H	CF ₃	H	H	*	
80	A-2	F	F	F	H	H	*	
81	A-2	H	H	H	H	H	241-243	
82	A-2	H	F	F	H	H	*	
83	A-2	H	OCH ₃	H	H	H	*	
84	A-2	H	H	CH ₃	H	H	*	
85	A-2	F	H	Br	H	H	*	
86	A-2	H	CH ₂ CH ₂ O		H	H	*	
87	A-4	H	H	F	H	H	*	
88	A-2	F	H	H	F	H	*	
89	A-2	F	F	H	H	H	*	
90	A-2	CH ₃	H	氟基	H	H	*	
91	A-2	CH ₃	H	Br	H	H	*	

[1178]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
92	A-2	H	Br	F	H	H	*	
93	A-2	H	Br	H	CF ₃	H	*	
94	A-2	F	H	氟基	H	H	*	
95	A-2	F	H	OCH ₃	H	H	*	
96	A-2	CH ₃	H	F	H	H	*	
97	A-5	H	OCF ₃	H	H	H	*	
98	A-2	H	OCH ₂ O		H	H	*	
99	A-2	Br	H	F	H	H	*	
100	A-4	H	H	H	H	H	*	
101	A-2	H	OCH ₃	F	H	H	*	
102	A-2	H	F	OCH ₃	H	H	*	
103	A-7	H	Br	H	OCF ₃	H	*	
104	A-2	H	H	Br	H	H	*	
105	A-2	H	H	氟基	H	H	*	
106	A-2	H	H	Cl	H	H	*	
107	A-2	H	氟基	H	H	H	*	
108	A-2	F	H	F	H	F	*	
109	A-6	H	H	F	H	H	*	
123	A-1	H	OCH ₃	H	H	H	184-186	
124	A-1	H	Br	H	H	H	224-226	
161	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	Br	H	H	H		359
162	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	F	H	H	H		317
163	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	F	H	H		317
164	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	<i>i</i> -Pr	H	H		323
165	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	Ph	H	H		357
166	A-1	F	H	H	CF ₃	H		456
167	A-2	F	H	H	CF ₃	H		434
168	A-1	F	H	H	H	F		406
169	A-1	H	Cl	H	Cl	H		438
170	A-9	H	H	H	H	H	208-210	
171	A-3	F	H	氟基	H	H	*	
172	A-10	F	H	F	H	H		365
173	A-1	F	H	H	Cl	H		422
174	A-11	H	H	H	H	H		404
175	A-11	H	H	F	H	H		422
176	A-11	F	H	F	H	H		440
177	A-11	H	CF ₃	H	H	H		472
178	A-12	H	H	H	H	H		354
179	A-1	H	OCH ₃	H	Br	H		478
180	A-1	H	OCH ₃	H	H	F		418

[1179]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
181	A-13	H	H	H	H	H		384
182	A-13	H	H	F	H	H		402
183	A-13	F	H	F	H	H		420
184	A-13	H	CF ₃	H	H	H		452
185	A-1	H	OCH ₃	H	OCH ₃	H		430
186	A-1	H	CF ₃	H	CF ₃	H		506
187	A-3	H	CF ₃	H	CF ₃	H		429
188	A-3	H	CF ₃	H	Br	H		439
189	CH ₂ CF ₃	H	CF ₃	H	Br	H	189-190	
190	A-14	H	H	H	H	H		354
191	A-14	H	H	F	H	H		372
192	A-1	F	OCH ₃	H	H	H		418
193	A-1	H	OCF ₃	H	H	F		472
194	A-15	H	H	H	H	H		370
195	A-15	H	H	F	H	H		388
196	A-16	H	H	H	H	H		334
197	A-16	H	H	F	H	H	175-177	
198	A-2	H	OCH ₃	H	OCH ₃	H		424
199	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₃	H	OCH ₃	H		381
200	A-1	OCH ₃	H	H	H	H		400
201	A-1	OCH ₃	H	OCH ₃	H	H		430
202	A-17	H	OCH ₃	H	OCH ₃	H		408
203	A-17	H	CF ₃	H	H	H		416
204	A-17	F	H	F	F	H	215-217	
205	CH ₂ CF=CH ₂	H	H	F	H	H		315
206	CH ₂ CF=CH ₂	H	OCF ₃	H	H	H		381
207	A-17	H	H	氧基	H	H		373
208	A-17	H	OCH ₃	H	H	H		378
209	CH ₂ CF ₃	F	OCH ₃	H	H	H	*	
210	A-2	F	OCH ₃	H	H	H		412
211	A-18	H	H	H	H	H		384
212	A-18	H	H	F	H	H		402
213	A-19	H	H	H	H	H		333
214	A-19	H	H	F	H	H	210-211	
215	A-1	H	CF ₃	H	F	H		456
216	CH(CH ₃)CF ₃	H	H	F	H	H		353
217	CH(CH ₃)CF ₃	H	OCF ₃	H	H	H		419
218	A-20	H	H	H	H	H		350
219	A-20	H	H	F	H	H		368
220	A-21	H	H	H	H	H		336

[1180]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
221	A-21	H	H	F	H	H		354
222	CH(CH ₃)CF ₃	F	H	F	H	H		371
223	CH ₂ CF ₃	F	H	氟基	H	H		364
224	A-16	F	H	H	H	H		352
225	A-17	F	H	H	H	H		366
226	A-17	H	OCF ₃	H	H	H		432
227	CH ₂ CHF ₂ CF ₂ Cl	H	H	F	H	H		387
228	CH ₂ CHF ₂ CF ₂ Cl	F	H	F	H	H		405
229	A-18	F	H	H	H	H	*	
230	A-19	H	H	氟基	H	H		358
231	A-19	F	H	F	H	H		369
232	A-19	H	OCF ₃	H	H	H		417
233	A-19	F	H	H	H	H		431
234	A-19	OCH ₃	H	H	H	H		363
235	A-2	OCH ₃	H	H	Br	H		474
236	A-2	Cl	H	H	CF ₃	H		466
237	CH(CH ₃)CF ₃	F	H	H	H	H		353
238	A-19	F	H	H	CF ₃	H		419
239	A-19	F	H	氟基	H	H		376
240	CH(CH ₃)CF ₃	H	Br	H	H	H		353
241	A-22	H	H	H	H	H		335
242	CH(CH ₃)CF ₃	H	Br	H	CF ₃	H		481
243	CH(CH ₃)CF ₃	H	OCH ₃	H	H	H		365
244	CH(CH ₃)CF ₃	OCH ₃	H	H	H	H		365
245	A-1	H	SF ₅	H	H	Cl		530
246	A-2	OCH ₃	H	H	CF ₃	H		549
247	A-2	OCH ₃	H	H	Cl	H		428
248	A-23	H	OCF ₃	H	H	H		438
249	A-17	OCH ₃	H	H	H	H		378
250	A-2	CH ₃	H	CH ₃	H	CH ₃		406
251	A-1	CH ₃	H	CH ₃	H	CH ₃		412
252	CH(CH ₃)CF ₃	Cl	H	H	OCF ₃	H		453
253	CH(CH ₃)CF ₃	H	Br	H	OCF ₃	H		497
254	A-2	H	SF ₅	H	H	H		490
255	CH ₂ CF ₃	H	SF ₅	H	H	H		447
256	A-19	H	Br	H	OCF ₃	H		495
257	A-24	F	H	H	H	H		380
258	A-24	OCH ₃	H	H	H	H		392
259	A-24	H	OCF ₃	H	H	H		446
260	A-24	F	H	F	H	H		398

[1181]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
261	A-6	H	Br	H	CF ₃	H		524
262	A-6	OCH ₃	H	H	H	H		408
263	A-1	H	SF ₅	H	H	H		497
264	A-17	Cl	H	H	OCF ₃	H		466
265	A-25	H	H	H	H	H	181-183	
266	A-17	F	CF ₃	H	H	H		434
267	A-25	H	OCF ₃	H	H	H		431
268	A-17	OCF ₃	H	H	H	H		432
269	A-17	CF ₃	H	H	H	H		416
270	A-1	OCF ₃	H	H	H	H		454
271	A-1	CF ₃	H	H	H	H		438
272	A-6	H	OCF ₃	H	H	H		462
273	A-6	F	H	H	H	H		396
274	A-1	I	H	H	H	H		496
275	A-1	H	I	H	H	H		496
276	A-1	H	Br	OCH ₃	H	H		478
277	A-1	OCH ₃	H	H	Br	H		478
278	CH ₂ CH ₃	H	H	H	H	H		267
279	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	H	H	H	H	H		295
280	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	H	H	H		299
281	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	F	H	H		299
282	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	氟基	H	H	H		306
283	CH ₂ CH ₂ CH ₃	氟基	H	H	H	H		306
284	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	F	H	H	H		299
285	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₃	H	H	H	H		295
286	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	CH ₃	H	H		295
287	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CF ₃	H	CF ₃	H		417
288	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	CF ₃	H	H		349
289	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CH ₃	H	H	H		295
290	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	H	H	H		295
291	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	H	H	H	H	H		297
292	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	H	H	H	H		311
293	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	OCH ₃	H	H		311
294	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	Cl	H	H		315
295	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	OCH ₃	H	H	H		311
296	CH ₂ CO ₂ Et	H	H	H	H	H		325
297	CH(CH ₃) ₂	H	H	H	H	H		281
298	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	F	F	F	H		335
299	CH ₂ (CH ₂) ₃ CH ₃	H	H	H	H	H		309
300	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	硝基	H	H	H		326

[1182]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
301	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	Cl	H	H	H		315
302	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	OCF ₃	H	H		365
303	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	NHAc	H	H	H		338
304	CH ₂ CO ₂ CH ₃	H	H	H	H	H		311
305	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CHO	H	H	H		309
306	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	Ac	H	H	H		323
307	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CO ₂ Et	H	H	H		353
308	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CF ₃	H	H	H	H	**	349
309	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	H	F	H		317
310	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	Cl	H	Cl	H		349
311	CH ₂ CF ₃	H	H	CF ₃	H	H		389
312	CH ₂ CF ₃	H	CF ₃	H	CF ₃	H		457
313	CH ₂ CF ₃	H	F	H	F	H		357
314	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	H	Br	H		377
315	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	OCH ₃	H	Br	H		389
316	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	H	H		341
317	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	H	H	F	H		329
318	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	H	H	Cl	H		345
319	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	CH ₃	H	Cl	H		347
320	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₃	H	Br	H		429
321	CH ₂ CF ₃	CF ₃	H	H	H	H		389
322	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCF ₃	H	H	H	H		365
323	CH ₂ CF ₃	OCF ₃	H	H	H	H		405
324	CH ₂ CF ₃	H	H	OCF ₃	H	H		405
325	CH ₂ CF ₃	H	H	氨基	H	H		346
326	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	OCH ₃	H	H	H		341
327	A-8	H	H	H	H	H		383
328	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₃	OCH ₃	H	H		381
329	CH ₂ CF ₃	F	CH ₃	H	Cl	H		387
330	CH ₂ CF ₃	F	F	H	H	H		357
331	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	SCH ₃	H	H		327
332	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	OCH ₃	Cl	H	F		363
333	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	<i>t</i> -Bu	H	H		337
334	CH ₂ CH ₂ CH ₃	NHCO <i>t</i> - Bu	H	H	CH ₃	H		394
335	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	SO ₂ Me	H	H		359
336	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₃	Cl	H	F		403
337	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CF ₃	OCH ₃	H	H		379
338	CH ₂ CF ₃	H	CF ₃	OCH ₃	H	H		419
339	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	<i>n</i> -Bu	H	H	H		337

[1183]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
340	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	CF ₃	H	H		367
341	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	OCF ₃	H	H	F		383
342	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	CO ₂ Et	H	H		353
343	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CH ₃	H	CH ₃	H		309
344	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	H	H	CF ₃	H		379
345	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₂ CH ₃	H	H	CF ₃	H	*	
346	CH ₂ CF ₃	OCH ₂ CH ₃	H	H	CF ₃	H	*	
347	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	CF ₃	H	H	H		367
348	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	Br	H	CH ₃	H	*	
349	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	H	*	
350	CH ₂ CF ₃	F	CF ₃	H	H	H		407
351	A-8	H	H	氨基	H	H	*	
352	CH ₂ CF ₃	F	H	H	F	H	*	
353	CH ₂ CF ₃	H	Cl	F	H	H		373
354	CH ₂ CF ₃	H	H	<i>n</i> -Bu	H	H		377
355	CH ₂ CF ₃	H	CF ₃	F	H	H		407
356	CH ₂ CF ₃	H	F	氨基	H	H		338
357	CH ₂ CF ₃	Cl	H	F	H	H		373
358	CH ₂ CF ₃	OCH ₃	H	F	H	H		368
359	CH ₂ CF ₃	OCH ₃	H	H	CF ₃	H		419
360	CH ₂ CF ₃	H	F	H	H	H		339
361	CH ₂ CF ₃	H	H	CH ₃	H	H		335
362	CH ₂ CF ₃	H	H	OCH ₃	H	H		351
363	CH ₂ CF ₃	H	CH ₃	H	H	H		335
364	CH ₂ CF ₃	H	H	Br	H	H		399
365	CH ₂ CH ₂ CF ₃	H	H	F	H	H		353
366	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	H	H	F	H	H		365
367	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	H	OCF ₃	H	H	H		431
368	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	F	H	F	H	H		383
369	CH ₂ CF ₃	H	氨基	F	H	H	*	
370	CH ₂ CF ₂ CF ₃	H	CF ₃	H	H	H		439
371	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	H	CF ₃	H	H	H		415
372	A-8	H	CF ₃	H	H	H		451
373	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	Cl	H	Cl	H	H		415
374	A-8	Cl	H	Cl	H	H		451
375	CH ₂ CF ₂ CF ₃	Cl	H	Cl	H	H		439
376	CH ₂ CF ₃	CH ₃	H	H	H	H		335
377	CH ₂ CF ₃	Br	H	H	H	H		399
378	CH ₂ CF ₃	Cl	H	H	H	H		355
379	CH ₂ CF ₃	H	<i>n</i> -Bu	I	H	H		503

[1184]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
380	CH ₂ CF ₃	H	<i>n</i> -Bu	H	H	H		377
381	CH ₂ CF ₃	Cl	H	Cl	H	Cl		423
382	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	Cl	H	Cl	H	Cl		449
383	A-8	Cl	H	Cl	H	Cl		485
384	CH ₂ CF ₃	Cl	H	H	H	Cl		389
385	CH ₂ CF ₃	CH ₃	H	CH ₃	H	H		349
386	CH ₂ CF ₃	H	氰基	H	H	H		346
387	CH ₂ CF ₃	<i>n</i> -Bu	H	H	H	H		377
388	CH ₂ CF ₂ CF ₃	Cl	H	Cl	H	Cl		473
389	A-26	H	H	F	H	H		383
390	A-26	F	H	F	H	H		401
391	A-26	H	OCF ₃	H	H	H		449
392	CH ₂ CF ₃	F	F	F	H	H		375
393	CH ₂ CF ₃	F	H	F	F	H		375
394	CH ₂ CF ₃	F	H	F	H	F		375
395	CH ₂ CF ₃	H	F	F	F	H		375
396	CH ₂ CF ₃	CF ₃	H	F	H	H		407
397	CH ₂ CF ₃	H	OCF ₃	H	H	Cl		439
398	CH ₂ CF ₃	H	CHO	F	H	H		367
399	CH ₂ CF ₃	氰基	H	H	H	H		346
400	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	Br	F	H	H		377
401	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	CF ₃	F	H	H		367
402	CH ₂ CO ₂ CH ₃	H	H	F	H	H		329
403	CH ₂ CF ₃	F	H	Br	H	H		417
404	CH ₂ CF ₃	F	H	F	H	Br		435
405	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	F	F	H	H		317
406	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	Cl	F	H	H		333
407	CH ₂ CH ₂ CH ₃	Cl	H	F	H	H		333
408	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	F	H	H		317
409	CH ₂ CH ₂ CH ₃	OCH ₃	H	F	H	H		329
410	A-8	H	氰基	F	H	H		426
411	A-7	H	OCF ₃	H	H	H		414
412	A-7	H	H	F	H	H		348
413	A-7	F	H	F	H	H		365
414	A-7	H	H	H	H	H		330
415	A-2	CF ₃	H	F	H	H		450
416	A-34	H	H	H	H	H	*	
417	A-2	H	H	SCH ₃	H	H		410
418	A-2	H	Cl	H	Cl	H	*	
419	A-2	Cl	H	F	H	H		398

[1185]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
420	A-2	CH ₃	H	H	H	H		378
421	A-2	OCF ₃	H	H	H	H		448
422	A-2	氨基	H	H	H	H		389
423	A-2	OCH ₃	H	H	H	H		394
424	A-3	H	OCH ₃	H	H	H		323
425	A-2	H	SCH ₃	H	H	H	*	
426	CH ₂ CF ₃	H	硝基	H	H	H	*	
427	A-2	H	Si (CH ₃) ₃	H	H	H	*	
428	A-27	H	H	H	H	H		323
429	A-27	F	H	F	H	H		359
430	A-2	H	H	Si (CH ₃) ₃	H	H	*	
431	CH ₂ CF ₃	H	OCH ₂ O		H	H		365
432	CH ₂ CF ₃	H	OH	H	H	H		337
433	CH ₂ CF ₃	CH ₃	H	F	H	H	*	
434	CH ₂ CF ₃	H	OAc	H	H	H		379
435	CH ₂ CF ₃	H	CH ₂ CH ₂ O		H	H		363
436	A-4	H	OCF ₃	H	H	H	*	
437	A-4	F	H	F	H	H		434
438	CH ₂ CF ₃	H	OCF ₂ O		H	H		401
439	A-27	H	H	F	H	H		341
440	A-2	H	CF ₃	H	CF ₃	H		500
441	A-2	H	硝基	H	H	H		409
442	A-2	OCH ₃	H	OCH ₃	H	H		424
443	A-4	H	H	OCH ₃	H	H	*	
444	A-4	F	H	H	H	H		416
445	A-2	H	CF ₃	OCH ₃	H	H		462
446	A-2	H	OCF ₂ O		H	H		444
447	A-2	H	OAc	H	H	H		422
448	A-2	F	F	OCH ₃	H	H		430
449	A-5	H	H	F	H	H		363
450	A-5	H	H	H	H	H		345
451	A-28	H	H	F	H	H		416
452	A-29	H	H	H	H	H		398
453	A-28	H	OCF ₃	H	H	H	*	
454	A-29	H	H	F	H	H		416
455	A-29	F	H	F	H	H		434
456	A-30	H	H	H	H	H		355
457	A-30	H	H	F	H	H		373
458	A-30	F	H	F	H	H		391
459	A-2	H	OCH ₂ CF ₃	H	H	H	*	

[1186]

Cmpd	R ²	R ^a	R ^b	R ^c	R ^d	R ^e	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
460	A-6	H	H	H	H	H		378
461	A-2	F	H	H	H	F		400
462	A-17	F	H	氟基	H	H		391
463	A-31	H	H	H	H	H		344
464	A-31	H	H	F	H	H		362
465	A-31	F	H	F	H	H		380
466	A-32	H	H	H	H	H		323
467	A-32	H	H	F	H	H		341
468	A-32	F	H	F	H	H		359
469	A-1	F	H	氟基	H	H		413
470	A-33	H	H	H	H	H		408
471	A-33	H	H	F	H	H		426
472	A-33	F	H	F	H	H		444
473	A-1	H	CF ₃	F	H	H		455
474	A-1	Cl	H	F	H	H		422
475	A-1	H	H	氟基	H	H		395
476	A-2	H	F	H	F	H		400
477	A-1	H	F	H	H	H		388
478	A-1	H	H	CF ₃	H	H		438
479	A-1	H	H	OCF ₃	H	H		454
480	A-1	H	H	CH ₃	H	H		384
481	A-1	氟基	H	H	H	H		395
482	A-1	H	F	F	H	H		406
483	A-10	H	H	F	H	H	*	
484	A-10	H	OCF ₃	H	H	H		413
485	A-10	H	H	H	H	H		329
486	A-1	H	OCH ₃	F	H	H	*	
487	A-1	Br	H	F	H	H		466
488	A-1	CH ₃	H	氟基	H	H		409
489	A-1	Cl	H	Cl	H	H		438
490	A-1	H	OCF ₃	H	H	Cl		488
491	A-1	H	OCF ₃	H	Br	H	209-210	
492	A-1	F	F	F	H	H	196-198	424
493	A-1	F	H	F	F	H	195-197	424
494	A-1	H	OCH ₂ O		H	H	>250	414
495	A-1	H	CH ₂ CH ₂ O		H	H	188-190	412
496	A-1	F	H	H	Br	H		466
497	A-6	F	H	F	H	H		414
498	A-1	H	CF ₃	H	Br	H	188-190	516
499	A-1	H	F	H	F	H		406

[1187]

<u>Cmpd</u>	<u>R²</u>	<u>R^a</u>	<u>R^b</u>	<u>R^c</u>	<u>R^d</u>	<u>R^e</u>	<u>m. p. (°C)</u>	<u>AP+ (M+1)</u>
500	A-1	H	F	OCH ₃	H	H	205-207	418
501	A-1	F	H	F	H	F	*	
502	A-33	H	OCF ₃	H	H	H	153-155	504
503	A-33	H	OCH ₃	H	H	H		438
604	A-35	H	H	H	H	H		330
605	A-36	H	H	H	H	H		330
606	A-35	H	H	F	H	H	*	
618	A-1	F	F	H	H	F		424
619	A-1	H	CF ₃	H	Cl	F		490
621	A-2	H	SF ₅	H	H	Cl		524
622	A-1	H	OCF ₃	H	Cl	H		488
623	A-37	F	H	H	H	H		432
624	A-37	H	H	F	H	H		432
625	A-37	H	OCF ₃	H	H	H		498
627	A-37	H	CF ₃	H	Br	H		560
629	CH ₂ CO ₂ H	H	H	H	H	H		297
631	A-38	H	H	H	H	H		335
632	A-2	I	H	H	H	H		490
634	A-1	H	CF ₃	H	Cl	H		472
642	A-40	F	H	F	H	H	159-160	
648	A-40	OCH ₃	H	H	H	H	*	
649	CH ₂ CH ₂ CH (OMe) ₂	H	H	H	H	H		341
650	CH ₂ CH (OMe) ₂	H	H	H	H	H		327
651	A-2	F	F	H	H	F		418
652	A-2	H	CF ₃	H	Cl	F		484
654	A-1	F	H	OCH ₃	H	H		418
663	A-1	F	Cl	H	H	F		440
664	A-1	OCH ₃	H	H	F	F		436
665	A-2	OCH ₃	H	H	F	F		430
666	A-2	F	Cl	H	H	F		434
673	A-41	H	H	H	H	H		360
674	A-41	F	H	H	H	H		378
675	A-40	F	H	H	H	H		365
676	A-41	H	H	F	H	H		378
677	A-17	H	H	F	H	H		372
678	A-41	F	H	F	H	H		396
679	A-41	H	OCF ₃	H	H	H		444
720	CH ₂ CF ₃	H	H	SF ₅	H	H		447
721	A-1	H	H	SF ₅	H	H		496
722	A-2	H	H	SF ₅	H	H		490

[1188]

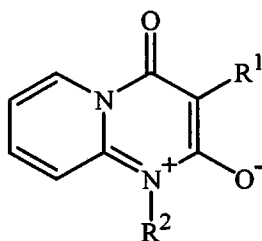
Cmpd	R^2	R^a	R^b	R^c	R^d	R^e	m. p. (°C)	$\frac{AP+}{(M+1)}$
737	A-37	H	Br	H	OCF ₃	H		576
740	A-2	OCH ₃	F	H	F	H		430
741	A-2	F	OCH ₃	H	H	F		430
742	A-1	OCH ₃	F	H	F	H		436
743	A-1	F	OCH ₃	H	H	F		436
744	A-2	F	H	H	OCH ₃	H		412
745	CH ₂ CF ₃	F	H	H	OCH ₃	H		369
746	A-17	F	F	H	H	H		384

[1189] *¹H NMR 数据参见索引表 G。

[1190] ** 对于 ¹H NMR 数据, 参见合成实施例。

[1191] 索引表 B

[1192]



[1193]

化合物	R^1	R^2	m. p. (°C)	$\frac{AP+}{(M+1)}$
110	Br	CH ₂ CH ₂ CH ₃	*	
111	I	CH ₂ CF ₃	*	
112	I	CH ₂ CH ₂ CH ₃	*	
113	I	A-8	*	
114	I	CH ₂ CF ₂ CF ₃	*	
115	CH(CH ₃) ₂	CH ₂ CF ₃	*	
116	CH ₂ CH(CH ₃) ₂	CH ₂ CF ₃	*	
117	CH ₂ CH ₂ CF=CF ₂	CH ₂ CF ₃	*	
118	I	A-2	**	
125	H	A-1	**	
119	6-氟-3-吡啶基	A-2	*	
120	6-甲基-3-吡啶基	A-2	*	
121	3-甲基-4-吡啶基	CH ₂ CF ₃	248-249	
521	4-三氟甲基-2-吡啶基	CH ₂ CF ₃	*	
522	4-三氟甲基-2-吡啶基	A-17		417
537	2-溴-4-吡啶基	A-2		443

[1194]

化合物	R ¹	R ²	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
540	2-溴-4-吡啶基	A-1		449
547	6-三氟甲基-2-吡啶基	A-17	*	
550	2-氟基-4-吡啶基	A-1		396
552	2-吡啶基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		282
553	3-吡啶基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		282
554	萘基	CH ₂ CO ₂ CH(CH ₃) ₂		339
555	2-萘基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		331
556	1-萘基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		331
561	4-吡啶基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		282
562	2-甲基-4-吡啶基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		316
564	4-氟-1-萘基	CH ₂ CH ₂ CH ₃	*	
570	6-甲基-3-吡啶基	CH ₂ CF ₃		356
571	6-氟-3-吡啶基	CH ₂ CF ₃		340
573	4-氟-1-萘基	A-2		432
574	6-甲氧基-2-萘基	A-2		444
575	6-甲氧基-3-吡啶基	A-2		395
576	5-氟-2-吡啶基	A-2		383
577	5-三氟甲基-3-吡啶基	A-2		433
579	2-氟-3-吡啶基	A-2		383
584	3-氟-4-吡啶基	A-2		383
585	5-甲氧基-2-吡啶基	A-2		395
586	3-氟-2-吡啶基	A-2		383
587	3-甲基-2-吡啶基	A-2		399
591	4-三氟甲基-2-吡啶基	A-2		433
593	6-三氟甲基-2-吡啶基	A-2		433
597	4-三氟甲基-2-吡啶基	A-1	225-227	439
598	2-氯-4-吡啶基	A-1	242-243	405
600	6-三氟甲基-2-吡啶基	A-1	*	
608	I	A-1	**	
609	H	CH ₂ CH ₂ CH ₃	**	
610	H	CH ₂ CF ₃	214-215	
611	H	A-2	**	
612	H	A-7	*	
628	2-溴-4-吡啶基	A-37		493
636	2-甲氧基-4-吡啶基	A-1		401
637	C(=NOCH ₃)CF ₃	CH ₂ CF ₃	**	
638	C(=NOCH ₂ CH ₃)CF ₃	CH ₂ CF ₃	*	
653	2-三氟甲基-4-吡啶基	A-1		439
656	C(=NOCH ₂ CHMe ₂)CF ₃	CH ₂ CF ₃	*	
657	C(=NOCMe ₃)CF ₃	CH ₂ CF ₃	*	

[1195]

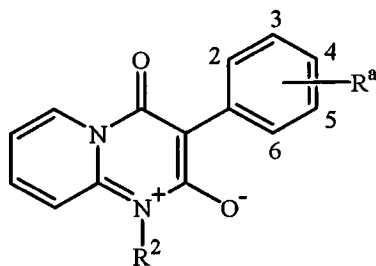
化合物	R ¹	R ²	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
658	C (=NOCH ₂ CMe ₃) CF ₃	CH ₂ CF ₃	*	
659	C (=NOCH ₂ CO ₂ Et) CF ₃	CH ₂ CF ₃	*	
660	C (O) NH 苯基	A-1		413
661	C (O) NH (3-甲氧基苯基)	A-1		443
687	C (O) OEt	CH ₂ CH ₂ CH ₃		277
688	C (O) NH (4-氟苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		342
689	C (O) NH (2-氯苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		358
690	C (O) NH (3-氯苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		358
691	C (O) NH (4-氯苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		358
692	C (O) NH 苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		324
693	C (O) O (4-硝基苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		370
694	C (O) 苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		309
695	C (O) (2-氟苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		327
696	C (O) (3-氟苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		327
697	C (O) (4-氟苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		327
698	C (O) (2-甲基苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		323
699	C (O) (3-甲基苯基)	CH ₂ CH ₂ CH ₃		323
700	C (O) OEt	A-1	*	
701	C (O) 苯基	A-1	*	
702	C (O) CF ₃	A-1	236-238	
703	C (O) (4-氟苯基)	A-1	235-237	
704	C (O) (3-氟苯基)	A-1	226-228	
706	C (O) (2-氟苯基)	A-1	190-192	
707	C (O) [3-(三氟甲基)苯基]	A-1	225-226	
708	C (O) (2-噻吩基)	A-1	214-216	
709	C (O) [4-(三氟甲基)苯基]	A-1	242-243	
710	C (O) CH ₃	A-1	183-185	
711	C (O) CF ₃	CH ₂ CF ₃	202-203	
712	C (O) CF ₃	A-2	209-210	
713	C (O) CF ₂ CF ₃	A-1	204-205	
714	C (O) CF ₂ CF ₃	A-2	189-190	
715	C (O) CF ₂ CF ₂ CF ₃	A-1	156-157	
716	C (O) CF ₂ CF ₂ CF ₃	A-2	134-135	
729	C (=NOC (CH ₃) ₃) H	CH ₂ CF ₃	*	
730	C (=NOCH ₂ CH ₃) H	CH ₂ CF ₃	*	
731	C (=NOCH ₂ C (CH ₃) ₃) H	CH ₂ CF ₃	*	
758	C (=NOCH ₃) H	CH ₂ CF ₃	*	
759	C (=NOCH ₂ Ph) H	CH ₂ CF ₃	*	

* ¹H NMR 数据参见索引表 G。

[1196] ** 对于 ¹H NMR 数据, 参见合成实施例。

[1197] 索引表 C

[1198]



[1199]

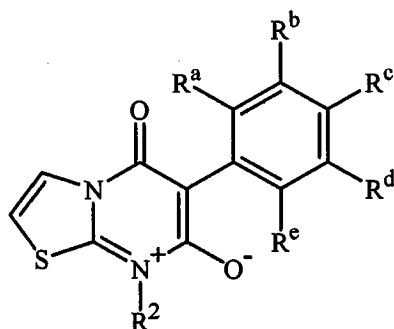
化合物	R^a	R^2	$\frac{m. p.}{(^{\circ}C)}$	$\frac{AP+}{(M+1)}$
523	3-(3-吡啶基)	A-2		441
524	3-(6-氟-3-吡啶基)	A-2		474
525	3-(6-氟-3-吡啶基),	A-2		459
527	3-(6-氟-3-吡啶基), 6-氟	A-2		477
528	4-(6-氟-3-吡啶基)	A-2		475
529	3-(6-甲氧基-3-吡啶基)	A-2		471
530	3-(6-氟-3-吡啶基)	A-1		481
531	3-(6-氟-3-吡啶基), 5-三氟甲基	A-2		527
534	3-(6-氟-3-吡啶基)	CH(CH ₃)CF ₃		446
536	3-(6-氟-3-吡啶基), 4-氟	A-2		
539	3-(6-氟-3-吡啶基), 6-甲氧基	A-2		505
541	3-(6-氟-3-吡啶基), 4-氟	A-1		499
542	3-(6-氟-3-吡啶基),	A-1		465
543	3-(6-氟-3-吡啶基), 5-三氟甲基	A-1		549
544	3-(6-氟-3-吡啶基), 5-三氟甲基	A-1		533
545	3-(6-氟-3-吡啶基)	A-19		428
546	3-(6-氟-3-吡啶基)	A-6		473
549	3-(6-氟-3-吡啶基), 5-三氟甲基	A-1		549
551	3-(6-氟-3-吡啶基)	A-1		481
557	3-苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		357
558	4-苯氧基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		373
559	2-苯氧基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		373
560	2-苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		357
563	3-苯氧基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		373
565	3-苄氧基	CH ₂ CH ₂ CH ₃		387
566	3-苄氧基	CH ₂ CF ₃	178-179	427

[1200]

化合物	R ^a	R ²	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
567	4-苄氧基	CH ₂ CF ₃	203-204	427
568	2-苄氧基	CH ₂ CF ₃	165-166	427
578	2-(B-1), 4-氟	CH ₂ CF ₃		480
580	3-(B-2)	CH ₂ CF ₃	223-225	428
581	3-(B-1)	CH ₂ CF ₃		462
582	3-(B-1)	A-2		505
594	3-(B-3), 4-氟	A-2		446
595	3-(B-3), 4-氟	CH ₂ CF ₃		446
596	3-(B-2)	CH ₂ CF ₃	170-172	462
616	3-(6-溴-3-吡啶基)	A-1		525
617	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基)	A-1		515
626	3-(6-氯-3-吡啶基)	A-37		525
635	3-(6-氯-3-吡啶基), 5-三氟甲氧基	A-1		565
655	3-(6-氯-3-吡啶基), 5-甲氧基	A-1		511
682	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基), 5-三氟甲氧基	A-1		599
684	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基), 5-三氟甲氧基	A-1		583
685	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基), 4-甲氧基	A-1		545
717	3-(6-氯-3-吡啶基), 4-甲氧基	A-1		511
734	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基)	A-17		493
735	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基)	A-2		509
736	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基)	A-37		559
738	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基), 6-氟	A-1		533
739	3-(6-三氟甲基-3-吡啶基), 6-氟	A-37		577

[1201] 索引表 D

[1202]



[1203]

<u>Cmpd</u>	<u>R²</u>	<u>R^a</u>	<u>R^b</u>	<u>R^c</u>	<u>R^d</u>	<u>R^e</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
126	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	H	H	H	161-168	
127	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	H	H	C1	216-219	
128	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	C1	H	C1	H	180-183	
129	CH ₂ CH ₂ CH ₃	C1	C1	H	H	H	188-192	
130	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	H	H	F	207-210	
131	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₃	H	H	H	H	223-225	
132	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	<i>i</i> -Pr	H	H	*	
133	CH ₂ CF ₃	F	H	F	H	H	*	
134	CH ₂ CF ₃	H	H	H	H	H	*	
135	CH ₂ CF ₃	H	OCF ₃	H	H	H	*	
136	A-2	H	H	H	H	H	*	
137	A-2	H	H	F	H	H	*	
138	A-2	H	OCF ₃	H	H	H	**	
139	A-1	H	H	H	H	H	*	
140	A-1	H	H	F	H	H	*	
141	A-1	H	OCF ₃	H	H	H	*	
142	CH ₂ CH ₂ CH ₃	F	H	F	H	H	*	
143	CH ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	Ph	H	H		363
144	CH ₂ CO ₂ CH ₂ CH ₃	H	H	H	H	H		331
145	A-1	H	OCF ₃	H	Br	H		538
146	A-1	F	H	F	H	H		412
147	A-1	H	OCH ₃	H	H	H	*	
148	A-1	F	H	H	C1	H		428
149	A-2	H	OCH ₃	H	H	H		400
150	A-2	H	OCH ₃	H	OCH ₃	H		430
151	A-2	F	H	F	H	H		406
152	A-1	F	H	H	CF ₃	H	*	
153	A-2	F	H	H	CF ₃	H		456
154	A-2	F	H	H	C1	H		422
155	A-2	H	OCF ₃	H	Br	H		532
156	A-1	H	OCH ₃	H	OCH ₃	H		436
157	A-2	F	H	H	H	H	216-218	388
158	A-2	OCH ₃	H	H	H	H	99-100	
159	A-1	F	H	H	H	H	192-194	
160	A-1	OCH ₃	H	H	H	H	*	
630	A-17	H	H	H	H	H	223-225	
633	A-2	I	H	H	H	H		496
639	A-17	H	OCF ₃	H	H	H	*	
640	A-39	H	OCF ₃	H	H	H	147-149	
641	A-17	F	H	F	H	H	235-237	

[1204]

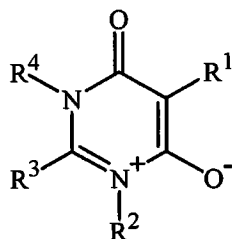
<u>Cmpd</u>	<u>R²</u>	<u>R^a</u>	<u>R^b</u>	<u>R^c</u>	<u>R^d</u>	<u>R^e</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
643	A-17	F	H	H	H	H	223-225	
644	A-39	F	H	H	H	H	169-171	
645	A-39	H	H	H	H	H	190-192	
646	A-17	OCH ₃	H	H	H	H	*	
647	A-39	OCH ₃	H	H	H	H	*	
747	A-17	H	OCH ₃	H	H	H		384
748	A-2	F	F	H	H	H		406
749	A-1	F	F	H	H	H		412
750	A-17	F	F	H	H	H		390

[1205] *¹H NMR 数据参见索引表 G。

[1206] ** 对于 ¹H NMR 数据, 参见合成实施例。

[1207] 索引表 E

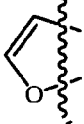
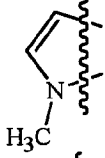
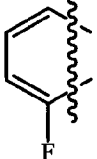
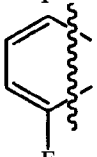
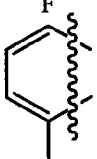
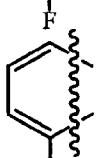
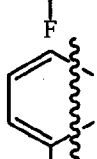
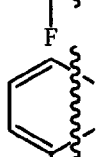
[1208]



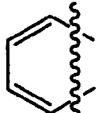
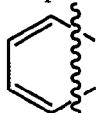
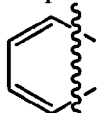
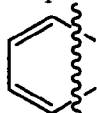
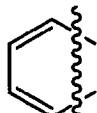
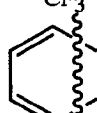
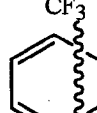
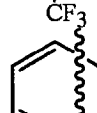
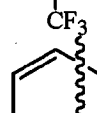
[1209]

<u>Cmpd</u>	<u>R¹</u>	<u>R²</u>	<u>R³ **</u>	<u>R⁴ **</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
504	苯基	A-2	CH ₃	苯基		404
505	苯基	A-2	苯基	CH ₃		404
506	4-氟苯基	A-2	CH ₃	苯基		422
507	苯基	CH ₂ CF ₃	苯基	CH ₃		361
508	4-氟苯基	CH ₂ CF ₃	苯基	CH ₃		379
509	苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₃	CH ₃		259
510	4-氟苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₃	CH ₃		276
511	苯基	A-2	CH ₃	CH ₃	*	
512	苯基	CH ₂ CF ₃	CH ₃	CH ₃		299
513	4-氟苯基	A-2	CH ₃	CH ₃		360
514	苯基	A-1	CH ₃	CH ₃	222-224	388
515	3-(三氟甲氧基)-苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂			369
516	4-氟苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂			303

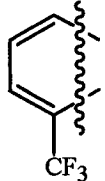
[1210]

<u>Cmpd</u>	<u>R¹</u>	<u>R²</u>	<u>R³ **</u>	<u>R⁴ **</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
517	苯基	A-2				354
518	3-(三氟甲氧基)-苯基	A-2			*	
519	苯基	CH ₂ CH ₂ CH ₃				284
588	4-氟苯基	A-2				400
589	3-(三氟甲氧基)-苯基	A-2				466
590	2,4-二氟苯基	A-2				418
592	苯基	A-2				382
667	2-氟苯基	A-1				406
668	2-氟苯基	A-2				400
669	2-甲氧基苯基	A-2				412

[1211]

Cmpd	R ¹	R ²	R ³ **	R ⁴ **	m. p. (°C)	AP+ (M+1)
670	2-甲氧基苯基	A-1				418
671	4-氟苯基	A-1				406
672	3-(三氟甲氧基)-苯基	A-1				472
683	3-溴- 5-(三氟甲氧基) 苯基	A-1				550
718	2-氟苯基	A-2	CH ₃	CH ₃	360	
719	2-氟苯基	A-1	CH ₃	CH ₃	366	
751	2-氟苯基	A-2				450
752	4-氟苯基	A-2				450
753	3-(三氟甲氧基)-苯基	A-2				516
754	3-(三氟甲氧基)-苯基	A-1				522
755	2-氟苯基	A-1				456

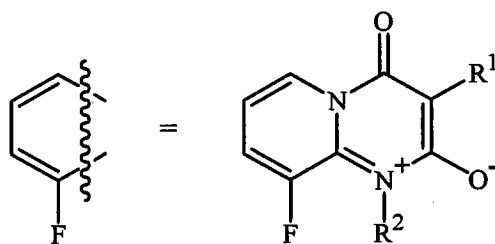
[1212]

<u>Cmpd</u>	<u>R¹</u>	<u>R²</u>	<u>R³ **</u>	<u>R⁴ **</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
756	4-氟苯基	A-1				456

[1213] *¹H NMR 数据参见索引表 G。

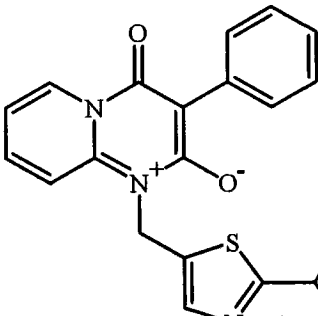
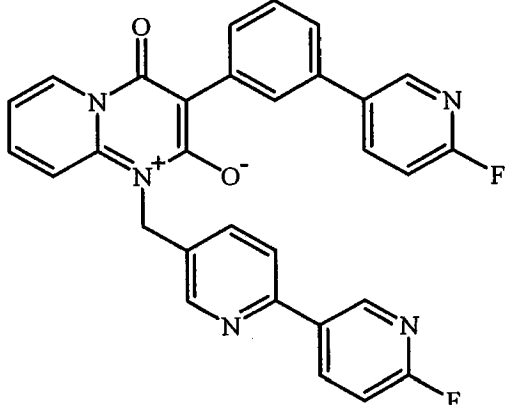
[1214] ** 当 R³ 和 R⁴ 与邻接的连接氮和碳原子合在一起形成环时,波形线表示所述环以下示取向连接到所述分子的其余部分上。

[1215]

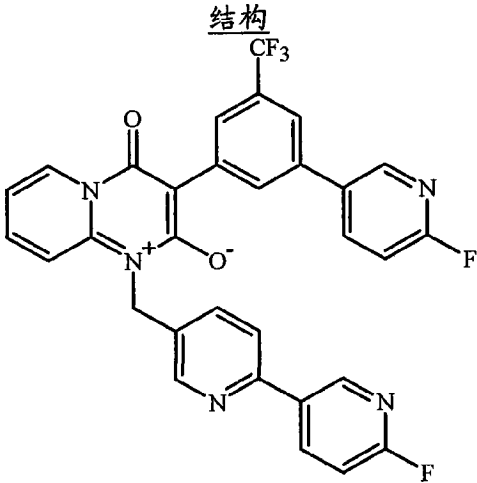
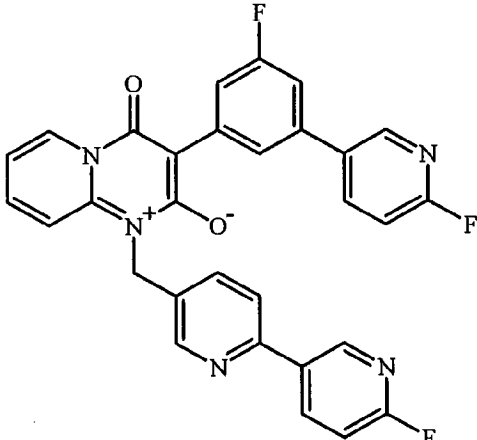
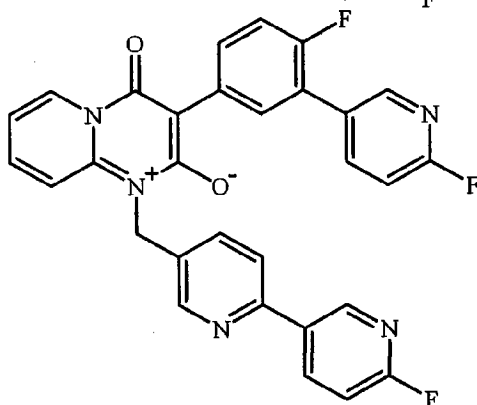
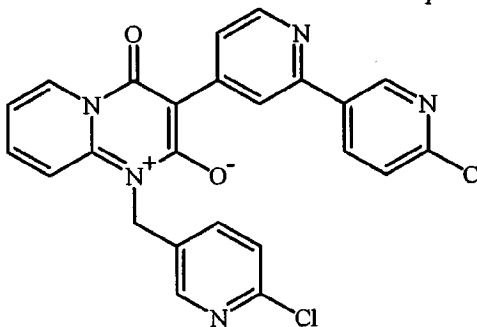


[1216] 索引表 F

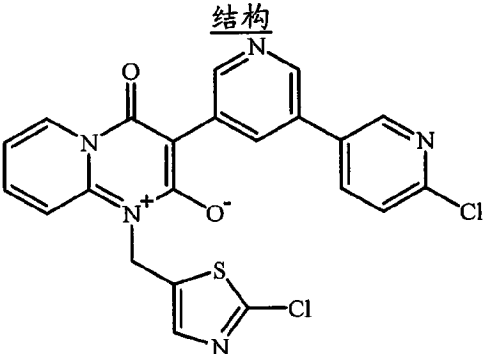
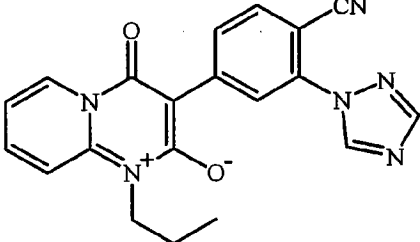
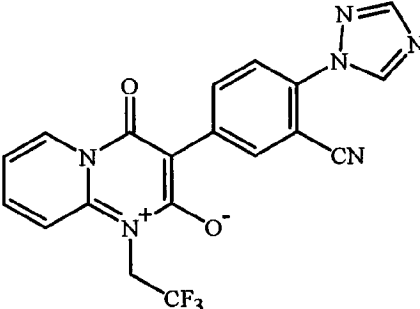
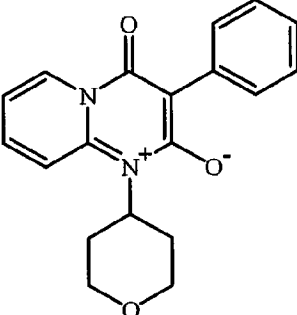
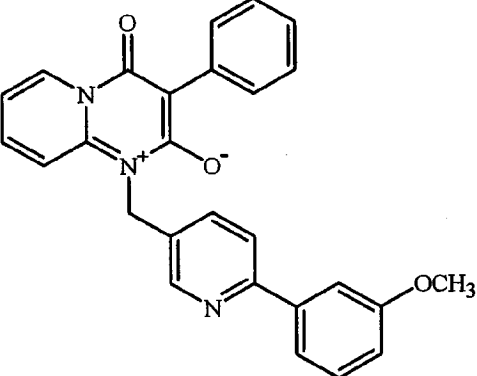
[1217]

<u>Cmpd</u>	<u>结构</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
520			442
526			520

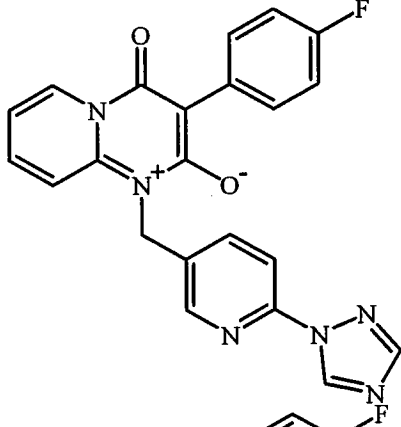
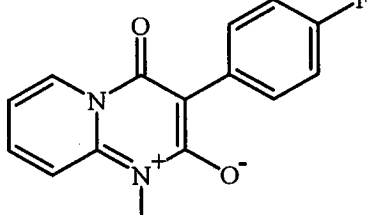
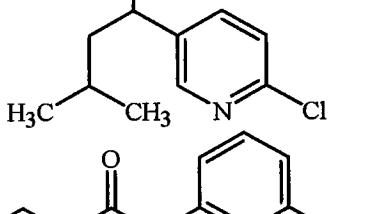
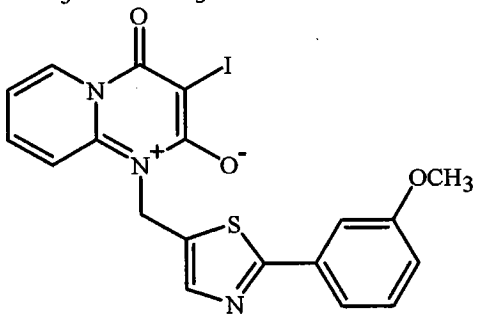
[1218]

<u>Cmpd</u>	<u>结构</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
532			588
533			538
535			538
538			476

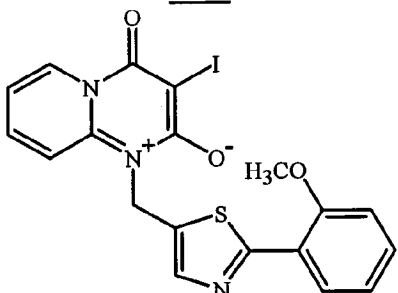
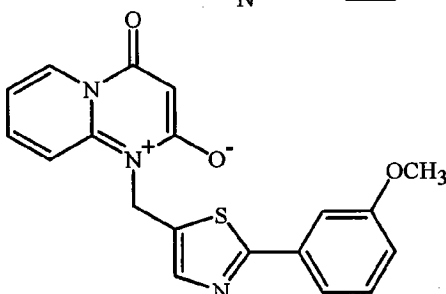
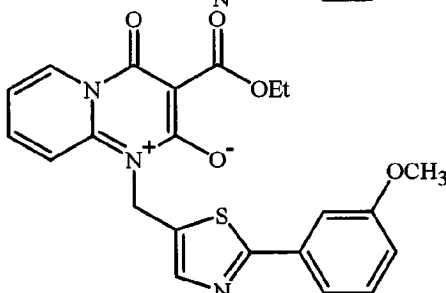
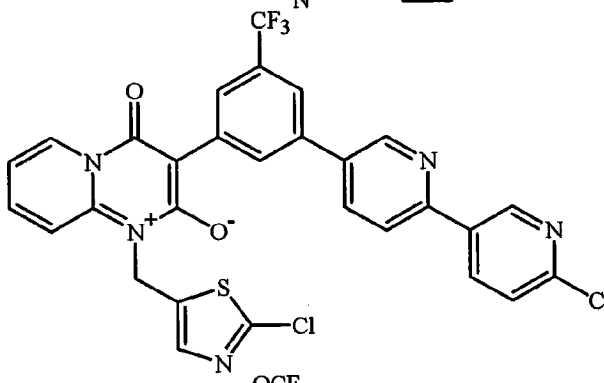
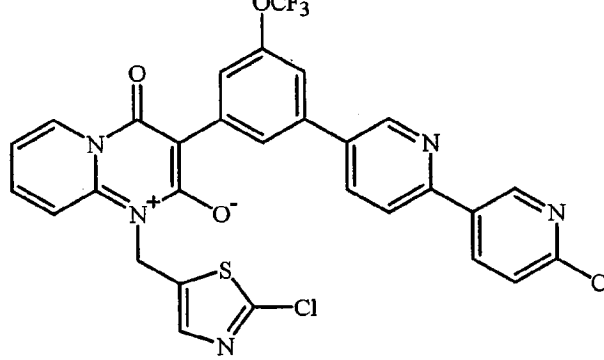
[1219]

<u>Cmpd</u>	<u>结构</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
548			482
569		*	
572			413
583		*	
599		*	

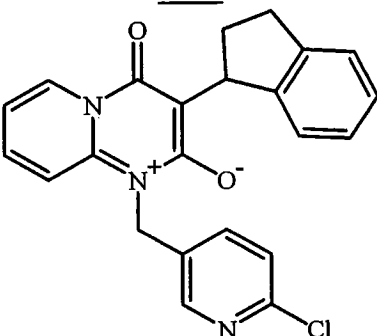
[1220]

<u>Cmpd</u>	<u>结构</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
601		*	
602			438
603			504
613		**	

[1221]

<u>Cmpd</u>	<u>结构</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
614			492
615			366
705			438
732			626
733			642

[1222]

<u>Cmpd</u>	<u>结构</u>	<u>m. p.</u> <u>(°C)</u>	<u>AP+</u> <u>(M+1)</u>
757			404

[1223] *¹H NMR 数据参见索引表 G。

[1224] ** 对于 ¹H NMR 数据, 参见合成实施例。

[1225] 索引表 G

[1226]

Cmpd No.	¹ H NMR 数据 ^{a, b}
3	δ (丙酮-d ₆) 9.5 (m, 1H), 8.5 (m, 1H), 8.1 (m, 1H), 7.97 (s, 1H), 7.75 (dd, 1H), 7.69 (m, 1H), 7.31 (t, 1H), 7.15 (m, 1H), 5.35 (br s, 2H).
8	δ 9.51 (d, 1H), 8.09 (m, 1H), 7.85-7.69 (m, 2H), 7.45 (d, 1H), 7.38 (t, 1H), 7.32 (t, 1H), 7.07 (d, 1H), 4.29 (t, 2H), 1.87-1.75 (m, 2H), 1.08 (t, 3H).
9	δ 9.57 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.49 (t, 2H), 7.41 (d, 1H), 7.29 (d, 1H), 5.2 (br s, 2H).
10	δ 9.57 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.49 (m, 2H), 6.8-6.95 (m, 2H), 5.2 (br s, 2H).
12	δ 9.52 (dd, 1H), 8.15-8.07 (m, 2H), 8.03-7.98 (m, 1H), 7.47 (t, 3H), 7.34 (m, 1H), 4.30 (t, 2H), 1.91-1.74 (m, 2H), 1.09 (t, 3H).
14	δ 9.58 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.51 (t, 1H), 7.48 (d, 1H), 7.14 (m, 2H).
15	δ 9.60 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.75 (d, 2H), 7.59 (d, 1H), 7.51 (t, 2H), 7.24 (m, 2H).
17	δ (丙酮-d ₆) 9.45 (d, 1H), 8.45 (m, 1H), 8.1 (d, 1H), 7.63 (t, 1H), 7.3 (d, 1H), 7.22 (m, 1H), 7.95 (dd, 1H), 6.9 (t, 1H), 5.35 (br s, 2H), 3.73 (s, 3H).
18	δ 9.5 (m, 1H), 8.1 (m, 1H), 7.75 (m, 2H), 7.63 (dd, 1H), 7.4-7.3 (m, 2H), 7.05 (m, 1H), 4.30 (m, 2H), 1.2 (m, 1H), 0.62 (m, 4H).

[1227]

- 20 δ 9.51 (dd, 1H), 8.12 (ddd, 2H), 7.51-7.42 (m, 3H), 7.38-7.31 (m, 1H), 6.72-6.60 (m, 1H), 4.29 (t, 2H), 1.93-1.68 (m, 2H), 1.09 (t, 3H).
- 21 δ 9.56 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.59 (d, 1H), 7.49 (m, 2H), 7.16 (t, 2H), 5.2 (br s, 2H).
- 22 δ 9.57 (d, 1H), 8.19 (t, 1H), 7.78 (dd, 1H), 7.67 (dd, 1H), 7.35-7.55 (m, 3H), 7.09 (d, 1H), 4.7-5.05 (m, 2H), 4.37 (m, 1H), 2.2-2.55 (m, 2H).
- 25 δ 9.57 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.58 (d, 1H), 7.46 (t, 2H), 7.38 (s, 1H), 6.90 (d, 1H), 3.79 (s, 3H).
- 27 δ 9.57 (d, 1H), 8.17 (t, 1H), 7.74 (m, 2H), 7.49 (d, 1H), 7.41 (t, 1H), 7.08 (t, 2H), 4.7-5.05 (m, 2H), 4.37 (m, 1H), 2.2-2.55 (m, 2H).
- 28 δ 9.53 (dd, 1H), 8.07 (ddd, 1H), 7.81-7.72 (m, 2H), 7.45 (d, 1H), 7.42-7.36 (m, 2H), 7.31 (m, 1H), 7.25-7.20 (m, 1H), 4.30 (d, 1H), 1.90-1.73 (m, 2H), 1.08 (t, 3H).
- 30 δ 9.54 (d, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.51 (m, 2H), 7.42 (t, 1H), 6.9 (m, 2H), 4.7-5.05 (m, 2H), 4.37 (m, 1H), 2.2-2.55 (m, 2H).
- 32 δ 9.61 (d, 1H), 8.24 (t, 1H), 7.78 (dd, 1H), 7.67 (d, 1H), 7.50 (t, 1H), 7.44 (d, 2H), 6.69 (t, 1H).
- 33 δ 9.61 (d, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.76 (d, 1H), 7.71 (s, 1H), 7.55 (dt, 1H), 7.49 (t, 1H), 7.39 (t, 1H), 7.10 (d, 1H).
- 34 δ 9.59 (d, 1H), 8.15 (t, 1H), 7.72 (d, 2H), 7.52 (d, 1H), 7.44 (t, 1H), 7.38 (t, 2H), 7.23 (t, 1H), 5.5 (br s, 2H).
- 35 δ 9.61 (d, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.73 (m, 2H), 7.56 (d, 1H), 7.49 (t, 1H), 7.08 (t, 2H).
- 36 δ 9.59 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.58 (d, 1H), 7.50 (m, 2H), 7.50 (t, 1H), 6.85-6.95 (m, 2H).
- 37 δ 9.57 (d, 1H), 8.13 (t, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.49 (d, 1H), 7.40 (m, 3H), 7.26 (m, 1H), 4.54 (t, 2H), 2.85 (m, 2H).
- 38 δ 9.58 (d, 1H), 8.16 (t, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.49 (d, 1H), 7.40 (t, 3H), 7.25 (m, 1H), 4.58 (dd, 2H), 2.85 (m, 2H).
- 39 δ 9.49 (dd, 1H), 8.03 (ddd, 1H), 7.73 (d, 2H), 7.58 (d, 1H), 7.36 (t, 2H), 7.28 (m, 1H), 7.23-7.17 (m, 1H), 4.28 (d, 2H), 1.24-1.09 (m, 1H), 0.69-0.45 (m, 4H).
- 41 δ 9.51 (dd, 1H), 8.13 (ddd, 1H), 8.03-7.97 (m, 2H), 7.68-7.62 (m, 2H), 7.48 (d, 1H), 7.39-7.33 (m, 1H), 4.29 (t, 2H), 1.90-1.72 (m, 2H), 1.09 (t, 3H).
- 42 δ 9.55 (m, 1H), 8.15 (m, 1H), 7.75 (m, 2H), 7.67 (s, 1H), 7.6 (dd, 1H), 7.42 (m, 1H), 7.1 (m, 2H), 5.58 (br s, 2H).
- 44 δ 9.5 (m, 1H), 8.15 (m, 1H), 7.65 (s, 1H), 7.6 (dd, 1H), 7.5 (m, 1H), 7.4 (m, 1H), 6.9 (m, 2H), 5.55 (br s, 2H).

[1228]

- 50 δ (丙酮- d_6) 9.4 (m, 1H), 8.45 (m, 1H), 8.1 (dd, 1H), 7.95 (s, 1H), 7.6 (m, 1H), 7.55 (m, 1H), 7.3 (m, 1H), 7.1 (m, 2H), 5.74 (d, 2H).
- 51 δ 9.54 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.07 (dd, 1H), 7.99 (s, 1H), 7.76 (d, 1H), 7.68 (d, 1H), 7.25-7.45 (m, 5H), 5.58 (br s, 2H).
- 52 δ 9.55 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (m, 3H), 7.67 (d, 1H), 7.48 (s, 1H), 7.42 (m, 2H), 7.36 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 53 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.14 (s, 1H), 8.09 (dd, 1H), 8.07 (d, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.51 (m, 2H), 7.40 (m, 2H), 5.6 (br s, 2H).
- 54 δ 9.56 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.81 (d, 1H), 7.77 (s, 1H), 7.68 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 7.12 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 55 δ 9.52 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 8.04 (s, 1H), 7.78 (s, 1H), 7.66 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 5.57 (br s, 2H).
- 56 δ 9.55 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.83 (d, 1H), 7.77 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 7.24 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 57 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.05 (dd, 1H), 7.79 (d, 1H), 7.77 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 7.24 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 59 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.05 (dd, 1H), 7.79 (d, 2H), 7.70 (dd, 1H), 7.2-7.45 (m, 6H), 5.59 (br s, 2H).
- 60 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.05 (dd, 1H), 7.81 (d, 2H), 7.69 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 3H), 7.17 (d, 2H), 6.52 (t, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 61 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.70 (dd, 1H), 7.63 (d, 1H), 7.58 (m, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 6.95 (td, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 62 δ 9.51 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.10 (m, 2H), 7.3-7.45 (m, 4H), 7.03 (dd, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 63 δ 9.51 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.69 (ddd, 1H), 7.54 (q, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 6.85-7.0 (m, 2H), 5.57 (br s, 2H).
- 64 δ 9.52 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.70 (d, 1H), 7.48 (dd, 1H), 7.42 (m, 2H), 7.34 (d, 1H), 7.25 (d, 1H), 7.06 (td, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 66 δ 9.53 (d, 1H), 8.49 (s, 1H), 8.12 (dd, 1H), 7.90 (d, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.65 (m, 1H), 7.2-7.45 (m, 4H), 5.59 (br s, 2H).

- 67 δ 9.53 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.79 (d, 1H), 7.70 (dd, 1H), 7.51 (d, 1H), 7.4 (m, 3H), 7.35 (d, 1H), 7.15 (d, 1H), 5.75 (br d, 1H), 5.4 (br d, 1H).
- 68 δ 9.53 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.79 (t, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.25-7.45 (m, 4H), 5.58 (br s, 2H).
- 70 δ 9.52 (d, 1H), 8.49 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.56 (dd, 1H), 7.4 (m, 2H), 7.09 (t, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 72 δ 9.50 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.03 (dd, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.57 (td, 1H), 7.26-7.45 (m, 4H), 7.19 (t, 1H), 7.12 (dd, 1H), 5.56 (br s, 2H).
- 73 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.86 (d, 2H), 7.69 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 3H), 7.26 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 74 δ 9.54 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.0-8.15 (m, 3H), 7.67 (dd, 1H), 7.4 (m, 2H), 7.33 (d, 1H), 7.21 (dd, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 75 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.03 (dd, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.69 (dd, 1H), 7.3-7.4 (m, 3H), 6.97 (d, 2H), 5.59 (br s, 2H).
- 76 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.97 (d, 2H), 7.6-7.75 (m, 3H), 7.41 (m, 2H), 7.33 (d, 1H), 5.60 (br s, 2H).
- 77 δ 9.50 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.68 (dd, 1H), 7.50 (d, 1H), 7.3-7.45 (m, 5H), 5.7 (br d, 1H), 5.4 (br d, 1H).
- 78 δ 9.52 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.68 (dd, 2H), 7.35-7.45 (m, 3H), 7.34 (d, 1H), 6.95-7.05 (m, 1H), 5.57 (br s, 2H).
- 79 δ 9.52 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.12 (dd, 1H), 7.65-7.75 (m, 2H), 7.47 (d, 1H), 7.42 (t, 2H), 7.37 (d, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 80 δ 9.51 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.12 (dd, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.4-7.5 (m, 2H), 7.33 (d, 1H), 7.27 (m, 1H), 7.02 (dd, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 82 δ 9.55 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.09 (dd, 1H), 7.65-7.75 (m, 2H), 7.6 (m, 1H), 7.41 (m, 2H), 7.33 (d, 1H), 7.17 (q, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 83 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.05 (dd, 1H), 7.70 (d, 1H), 7.28-7.40 (m, 6H), 6.84 (m, 1H), 5.59 (br s, 2H), 3.84 (s, 3H).
- 84 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.03 (dd, 1H), 7.68 (m, 3H), 7.36 (m, 1H), 7.31 (d, 1H), 7.23 (d, 1H), 5.58 (br s, 2H), 2.37 (s, 3H).

- 85 δ 9.52 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.68 (dd, 2H), 7.3-7.5 (m, 6H), 5.57 (br s, 2H).
- 86 δ (丙酮- d_6) 9.45 (d, 1H), 8.55 (d, 1H), 8.25 (m, 1H), 7.9-7.8 (m, 2H), 7.75 (s, 1H), 7.6 (dd, 1H), 7.5 (m, 1H), 7.4 (d, 1H), 6.65 (d, 1H), 5.72 (br s, 2H), 4.53 (m, 2H), 3.2 (m, 2H).
- 87 δ 9.59 (d, 1H), 8.38 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.8 (m, 3H), 7.42 (t, 1H), 7.36 (d, 1H), 7.11 (t, 2H), 5.59 (br s, 2H).
- 88 δ 9.53 (d, 1H), 8.49 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.70 (dd, 1H), 7.26-7.45 (m, 4H), 7.10 (td, 1H), 7.00 (m, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 89 δ 9.51 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.70 (dd, 1H), 7.28-7.45 (m, 4H), 7.12 (m, 2H), 5.57 (br s, 2H).
- 90 δ 9.53 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.13 (dd, 1H), 7.68 (d, 1H), 7.60 (s, 1H), 7.53 (s, 2H), 7.43 (m, 2H), 7.35 (d, 1H) 5.60 (br d, 2H).
- 91 δ 9.52 (d, 1H), 8.46 (s, 1H), 8.06 (dd, 1H), 7.68 (d, 1H), 7.3-7.55 (m, 5H), 7.25 (d, 1H), 5.6 (br dd, 2H), 2.26 (s, 3H).
- 92 δ 9.54 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.1 (m, 2H), 7.75 (m, 1H), 7.68 (dd, 1H), 7.4 (m, 3H), 7.37 (d, 1H), 7.15 (t, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 93 δ 9.55 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.25 (s, 1H), 8.14 (s, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.66 (m, 2H), 7.4 (m, 2H), 7.34 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 94 δ 9.53 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.14 (t, 1H), 7.75 (t, 1H), 7.68 (dd, 1H), 7.51 (d, 1H), 7.4 (m, 3H), 7.34 (d, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 95 δ 9.53 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.07 (t, 1H), 7.71 (d, 1H), 7.47 (t, 1H), 7.38 (m, 2H), 7.32 (d, 1H), 6.75 (m, 2H), 5.58 (br s, 2H).
- 96 δ 9.53 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.69 (t, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 6.9-7.05 (m, 2H), 5.6 (br dd, 2H), 2.28 (s, 3H).
- 97 δ 9.52 (d, 1H), 8.77 (s, 1H), 8.34 (t, 1H), 8.08 (dd, 1H), 7.98 (d, 1H), 7.78 (m, 2H), 7.4 (m, 2H), 7.10 (d, 1H), 5.67 (br s, 2H), 2.55 (s, 3H).
- 98 δ 9.55 (dd, 1H), 8.48 (d, 1H), 8.04 (ddd, 1H), 7.69 (dd, 1H), 7.40-7.34 (m, 2H), 7.32 (d, 1H), 7.29-7.26 (m, 2H), 6.88 (d, 1H), 5.95 (s, 2H), 5.58 (br s, 2H).
- 99 δ 9.52 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.10 (dd, 1H), 7.72 (dd, 1H), 7.3-7.5 (m, 5H), 7.11 (td, 1H), 5.8 (br d, 1H), 5.4 (br d, 1H).

[1231]

- 100 δ 9.58 (d, 1H), 8.38 (s, 1H), 8.07 (dd, 1H), 7.8 (m, 3H), 7.3–7.45 (m, 4H), 7.26 (m, 1H), 5.57 (br s, 2H).
- 101 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.07 (dd, 1H), 7.69 (d, 1H), 7.49 (d, 1H), 7.3–7.45 (m, 4H), 7.12 (dd, 1H), 5.59 (br s, 2H), 3.93 (s, 3H).
- 102 δ 9.55 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.05 (dd, 1H), 7.55–7.95 (m, 3H), 7.3–7.45 (m, 3H), 7.02 (dd, 1H), 5.58 (br s, 2H), 3.91 (s, 3H).
- 103 δ 9.53 (d, 1H), 8.69 (s, 1H), 8.60 (d, 1H), 8.07 (m, 2H), 7.80 (s, 1H), 7.66 (d, 1H), 7.4 (m, 2H), 7.25 (m, 2H), 5.63 (br s, 2H).
- 104 δ 9.55 (d, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.07 (dd, 1H), 7.65–7.75 (m, 3H), 7.53 (d, 2H), 7.51 (d, 1H), 7.4 (m, 2H), 7.32 (d, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 105 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.12 (dd, 1H), 8.02 (d, 2H), 7.67 (d, 2H), 7.4 (m, 3H), 7.34 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 106 δ 9.55 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.07 (dd, 1H), 7.78 (d, 2H), 7.69 (dd, 1H), 7.4 (m, 4H), 7.32 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 107 δ 9.53 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.20 (s, 1H), 8.11 (m, 2H), 7.68 (dd, 1H), 7.4–7.55 (m, 4H), 7.34 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H).
- 108 δ 9.51 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.68 (dd, 1H), 7.4 (m, 3H), 7.34 (d, 1H), 6.76 (dd, 2H), 5.58 (br s, 2H).
- 109 δ 9.57 (d, 1H), 8.46 (s, 1H), 7.88 (dd, 1H), 7.77 (m, 2H), 7.57 (dd, 1H), 7.3 (m, 3H), 7.1 (m, 3H), 5.35 (br m, 1H), 2.00 (s, 3H).
- 110 δ 9.46 (dd, 1H), 8.14 (ddd, 1H), 7.47 (d, 1H), 7.36 (m, 1H), 4.31 (t, 2H), 1.87–1.70 (m, 2H), 1.07 (t, 3H).
- 111 δ 9.54 (d, 1H), 8.26 (dd, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.49 (t, 1H), 5.12 (br s, 2H).
- 112 δ 9.45 (d, 1H), 8.14 (dd, 1H), 7.49 (d, 1H), 7.33 (t, 1H), 4.32 (t, 2H), 1.78 (m, 2H), 1.07 (t, 3H).
- 113 δ 9.50 (d, 1H), 8.23 (dd, 1H), 7.52 (d, 1H), 7.41 (t, 1H), 4.96 (m, 1H), 4.77 (m, 1H), 4.40 (m, 1H), 2.40 (m, 1H), 2.25 (m, 1H).
- 114 δ (丙酮- d_6) 9.42 (d, 1H), 8.53 (m, 1H), 8.09 (d, 1H), 7.69 (t, 1H), 5.42 (br s, 2H).
- 115 δ 8.12 (d, 1H), 7.45 (dd, 1H), 6.68 (dd, 1H), 6.48 (d, 1H), 4.6 (br s, 2H), 2.4 (m, 1H), 1.01 (d, 6H).
- 116 δ 8.12 (d, 1H), 7.45 (dd, 1H), 6.68 (dd, 1H), 6.49 (d, 1H), 4.6 (br s, 2H), 1.6 (m, 1H), 0.92 (d, 6H).

[1232]

- 117 δ 9.51 (d, 1H), 8.18 (dd, 1H), 7.58 (d, 1H), 7.46 (t, 1H), 5.10 (br s, 2H), 2.91 (t, 2H), 2.60 (m, 2H).
- 118 δ 9.49 (d, 1H), 8.45 (s, 1H), 8.12 (dd, 1H), 7.65 (dd, 1H), 7.4 (m, 2H), 7.32 (d, 1H), 5.60 (br s, 2H).
- 119 δ 9.55 (d, 1H), 8.71 (s, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.30 (dd, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.67 (dd, 1H), 7.42 (m, 2H), 7.33 (d, 1H), 5.60 (br s, 2H).
- 120 δ 9.56 (d, 1H), 8.92 (s, 1H), 8.47 (s, 1H), 8.21 (dd, 1H), 8.11 (dd, 1H), 7.3-7.45 (m, 4H), 5.59 (br s, 2H).
- 132 δ 8.23 (d, 1H), 7.64 (d, 2H), 7.23 (d, 2H), 4.06 (dd, 2H), 2.89 (m, 1H), 1.89 (q, 2H), 1.25 (d, 6H), 1.06 (t, 3H).
- 133 δ 8.30 (d, 1H), 7.46 (m, 1H), 7.16 (d, 1H), 6.8-6.9 (m, 2H), 4.8 (br s, 2H).
- 134 δ 8.32 (d, 1H), 7.72 (d, 2H), 7.38 (dd, 2H), 7.23 (dd, 1H), 7.13 (d, 1H), 4.81 (q, 2H).
- 135 δ 8.32 (d, 1H), 7.73 (d, 1H), 7.69 (s, 1H), 7.37 (t, 1H), 7.15 (d, 1H), 7.08 (d, 1H), 4.81 (q, 2H).
- 136 δ 8.52 (d, 1H), 8.28 (d, 1H), 7.91 (dd, 1H), 7.72 (d, 2H), 7.35-7.4 (m, 3H), 7.25 (m, 1H, 被溶剂峰部分遮盖), 7.03 (d, 1H), 5.31 (s, 2H).
- 137 δ (丙酮- d_6) 8.61 (d, 1H), 8.20 (d, 1H), 7.98 (d, 1H), 7.89 (m, 2H), 7.55 (dd, 1H), 7.47 (m, 1H), 7.03 (dd, 2H), 5.46 (s, 2H).
- 138 δ 8.49 (d, 1H), 8.23 (d, 1H), 7.86 (dd, 1H), 7.75 (d, 1H), 7.70 (s, 1H), 7.37 (dd, 2H), 7.08 (d, 1H), 7.03 (d, 1H), 5.29 (s, 2H).
- 139 δ 8.29 (d, 1H), 7.67-7.72 (m, 3H), 7.25 (m, 1H, 被溶剂峰部分遮盖), 7.09 (d, 1H), 5.34 (s, 2H).
- 140 δ 8.28 (d, 1H), 7.67-7.73 (m, 3H), 7.04-7.11 (m, 3H), 5.33 (s, 2H).
- 141 δ 8.25 (s, 1H), 7.65-7.75 (m, 3H), 7.38 (dd, 1H), 7.08 (d, 1H), 5.32 (d, 1H).
- 142 δ 8.01 (d, 1H), 7.39 (m, 1H), 6.95 (d, 1H), 6.92-6.88 (m, 2H), 4.31 (m, 2H), 1.70 (m, 2H), 0.92 (t, 3H).
- 147 δ 8.27 (d, 1H), 7.67 (s, 1H), 7.31 (m, 3H), 7.07 (d, 1H), 6.80 (m, 1H), 5.33 (s, 2H), 3.82 (s, 3H).
- 152 δ 8.27 (d, 1H), 7.82 (m, 1H), 7.69 (s, 1H), 7.56 (m, 1H), 7.23 (m, 1H), 7.14 (d, 1H), 5.35 (s, 2H).
- 160 δ (丙酮- d_6) 8.17 (d, 1H), 7.88 (s, 1H), 7.59 (d, 1H), 7.21-7.29 (m, 2H), 6.99 (d, 1H), 6.88 (t, 1H), 5.45 (d, 2H), 3.76 (s, 3H).

- 171 δ 9.49 (dd, 1H), 8.18 (t, 1H), 7.65-7.75 (m, 2H), 7.38-7.49 (m, 2H), 4.31 (d, 2H), 1.15-1.22 (m, 1H), 0.62 (m, 4H).
- 209 δ (丙酮- d_6) 9.45 (d, 1H), 8.48 (t, 1H), 8.13 (d, 1H), 7.63 (t, 1H), 6.98-7.08 (m, 3H), 5.38 (br d, 2H), 3.87 (s, 3H).
- 229 δ 9.58 (d, 1H), 8.02 (t, 1H), 7.47-7.59 (m, 3H), 7.38 (t, 1H), 7.15-7.35 (m, 4H), 2.01 (d, 3H).
- 345 δ 9.47 (dd, 1H), 8.08 (d, 1H), 7.68 (m, 1H), 7.45-7.55 (m, 3H), 7.31 (t, 2H), 7.00 (d, 2H), 4.15-4.4 (m, 2H), 4.11 (q, 2H), 1.7-1.85 (m, 2H), 1.31 (t, 3H), 1.07 (t, 3H).
- 346 δ 9.55 (dd, 1H), 8.17 (t, 1H), 7.67 (d, 1H), 7.59 (d, 1H), 7.52 (dd, 1H), 7.45 (t, 1H), 6.99 (d, 1H), 5.3 (br s, 1H), 4.9 (br s, 1H), 4.10 (q, 2H), 1.31 (t, 3H).
- 348 δ 9.49 (dd, 1H), 8.11 (t, 1H), 7.48 (d, 1H), 7.34 (m, 2H), 7.13 (s, 1H), 4.32 (m, 2H), 3.71 (s, 3H), 2.29 (s, 3H), 1.7-1.85 (m, 2H), 1.06 (t, 3H).
- 349 δ 9.49 (d, 1H), 8.05 (t, 1H), 7.48 (d, 1H), 7.29 (t, 1H), 7.16 (m, 2H), 7.01 (d, 1H), 4.31 (m, 2H), 2.31 (s, 3H), 2.20 (s, 3H), 1.7-1.85 (m, 2H), 1.06 (t, 3H).
- 351 δ 9.55 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.98 (d, 2H), 7.66 (d, 2H), 7.52 (d, 1H), 7.44 (t, 1H), 4.85-5.05 (m, 1H), 4.75 (m, 1H), 4.40 (m, 1H), 2.2-2.6 (m, 2H).
- 352 δ 9.59 (dd, 1H), 8.25 (t, 1H), 7.59 (d, 1H), 7.50 (t, 1H), 7.23-7.28 (m, 1H), 7.07 (td, 1H), 7.04 (m, 1H), 5.10 (br s, 2H).
- 369 δ 9.60 (dd, 1H), 8.26 (t, 1H), 8.16 (d, 1H), 8.12 (m, 1H), 7.62 (d, 1H), 7.53 (t, 1H), 7.20 (t, 1H), 5.10 (br s, 2H).
- 416 δ 9.51 (d, 1H), 8.50 (s, 1H), 8.08 (d, 2H), 7.75 (d, 2H), 7.66 (dd, 2H), 7.3-7.45 (m, 3H), 7.2-7.25 (m, 1H), 5.69 (s, 2H).
- 418 δ 9.54 (dd, 1H), 8.47 (d, 1H), 8.10 (m, 1H), 7.79 (d, 1H), 7.67 (dd, 1H), 7.33-7.43 (m, 2H), 7.2-7.3 (m, 3H), 5.58 (br s, 2H).
- 425 δ 9.56 (d, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.06 (t, 1H), 7.74 (s, 1H), 7.66 (dd, 2H), 7.3-7.4 (m, 3H), 7.19 (d, 1H), 5.59 (br s, 1H), 2.51 (s, 3H).
- 426 δ 9.62 (dd, 1H), 8.75 (t, 1H), 8.26 (m, 1H), 8.20 (d, 1H), 7.63 (d, 1H), 7.53 (m, 2H), 5.3 (br s, 2H).
- 427 δ 9.57 (dd, 1H), 8.48 (s, 1H), 8.04 (m, 1H), 7.93 (s, 1H), 7.70 (dd, 2H), 7.42 (s, 2H), 7.35 (m, 3H), 5.60 (br s, 2H), 0.29 (s, 9H).

[1234]

- 430 δ 9.56 (dd, 1H), 8.76 (s, 1H), 8.04 (m, 1H), 7.93 (d, 1H), 7.7-7.8 (m, 3H), 7.60 (m, 3H), 7.34 (m, mH), 5.65 (br s, 2H), 0.28 (s, 9H).
- 433 δ 9.58 (d, 1H), 8.22 (m, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.48 (t, 1H), 7.30 (m, 1H), 6.98 (d, 1H), 6.93 (m, 1H), 5.2 (br s, 2H), 2.24 (s, 3H).
- 436 δ 9.58 (dd, 1H), 8.38 (s, 1H), 8.11 (t, 1H), 7.80 (m, 3H), 7.42 (m, 2H), 7.36 (d, 1H), 7.11 (d, 1H), 5.58 (br s, 2H).
- 443 δ 9.59 (dd, 1H), 8.38 (s, 1H), 8.07 (t, 1H), 7.82 (s, 1H), 7.74 (d, 2H), 7.40 (t, 1H), 7.37 (d, 1H), 6.98 (d, 2H), 5.58 (br s, 2H), 3.84 (s, 3H).
- 453 δ 9.58 (dd, 1H), 8.12 (m, 1H), 7.82 (d, 1H), 7.78 (s, 1H), 7.49 (d, 1H), 7.42 (m, 2H), 7.26 (m, 2H), 7.12 (d, 1H), 5.67 (br s, 2H).
- 459 δ 9.55 (d, 1H), 8.45 (d, 1H), 8.05 (t, 1H), 7.66 (dd, 1H), 7.52 (d, 1H), 7.42 (s, 1H), 7.31-7.39 (m, 4H), 6.85 (d, 1H), 5.59 (br s, 2H), 4.38 (q, 2H).
- 483 δ 9.57 (dd, 1H), 8.15 (m, 1H), 7.74 (m, 2H), 7.59 (d, 1H), 7.40 (t, 1H), 7.08 (t, 2H), 5.0 (m, 1H), 4.0 (m, 1H), 2.07 (m, 1H), 1.5-1.65 (m, 4H).
- 486 δ (丙酮- d_6) 9.43 (d, 1H), 8.41 (t, 1H), 8.18 (d, 1H), 7.96 (s, 1H), 7.75 (d, 1H), 7.59 (t, 1H), 7.50-7.56 (m, 1H), 7.05 (dd, 1H), 5.77 (s, 2H), 3.88 (s, 3H).
- 501 δ 9.51 (d, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.67 (s, 1H), 7.62 (d, 1H), 7.42 (t, 1H), 6.75 (t, 2H), 5.59 (s, 2H).
- 511 δ (丙酮- d_6) 7.87 (dd, 1H), 7.84-7.82 (m, 2H), 7.50 (d, 1H), 7.45 (d, 1H), 7.25-7.21 (m, 2H), 7.10-7.05 (m, 1H), 5.58 (s, 2H), 3.64 (s, 3H), 2.29 (s, 3H).
- 518 δ (丙酮- d_6) 8.60 (d, 1H), 8.13 (s, 1 H), 8.04 (s, 1H), 8.00 (d, 1H), 7.92-7.97 (m, 2H), 7.43 (d, 1H), 7.38 (t, 1H), 7.03 (d, 1H), 5.42 (s, 2H).
- 521 δ (丙酮- d_6) 9.50 (d, 1H), 8.85 (d, 1 H), 8.55 (t, 1H), 8.17 (d, 1H), 7.92 (s, 1H), 7.71 (t, 1H), 7.45 (d, 1H), 5.39 (br d, 2H).
- 547 δ (丙酮- d_6) 9.41 (d, 1H), 8.35-8.43 (m, 2H), 7.98-8.05 (m, 2H), 7.88-7.92 (m, 2H), 7.63 (d, 1H), 7.59 (t, 1H), 7.05 (d, 1H), 5.74 (s, 2H).
- 564 δ 9.53 (dd, 1H), 8.14 (m, 1H), 7.73 (m, 2H), 7.4-7.6 (m, 4H), 7.36 (t, 2H), 7.20 (m, 1H), 5.58 (br s, 2H), 4.32 (m, 2H), 1.84 (m, 2H), 1.09 (t, 3H).

[1235]

- 569 δ 9.48 (dd, 1H), 8.70 (s, 1H), 8.43 (d, 1H), 8.22 (d, 1H), 8.17 (m, 2H), 7.78 (d, 1H), 7.52 (d, 1H), 7.37 (t, 1H) 4.3 (t, 2H), 1.83 (m, 2H), 1.09 (t, 3H).
- 583 δ (丙酮- d_6) 9.42 (dd, 1H), 8.35 (t, 1H), 8.15 (d, 1H), 7.82 (d, 2H), 7.52 (t, 1H), 7.25-7.31 (m, 2H), 7.13 (t, 1H), 5.34 (Br s, 1H), 4.05 (dd, 2H), 3.58 (td, 2H), 2.91 (qd, 2H), 1.80 (dd, 2H).
- 599 δ 9.57 (dd, 1H), 8.76 (d, 1H), 8.03 (m, 1H), 7.7-7.83 (m, 4H), 7.34-7.57 (m, 6H), 7.2-7.3 (m, 2H), 6.98 (dd, 1H), 5.65 (br s, 2H).
- 600 δ (丙酮- d_6) 9.41 (d, 1H), 8.45 (t, 1H), 8.20 (d, 1H), 7.95-8.05 (m, 2H), 7.88 (d, 1H), 7.59-7.65 (m, 2H), 5.75 (br s, 2H).
- 601 δ 9.57 (dd, 1H), 9.14 (s, 1H), 8.52 (s, 1H), 8.05-8.10 (m, 2H), 7.91 (s, 26H), 7.78-7.82 (m, 2H), 7.38-7.43 (d, 2H), 7.11 (t, 2H), 5.67 (Br s, 2H).
- 606 δ 9.49 (d, 1H), 8.53 (d, 1H), 8.05 (s, 2H), 7.78 (m, 2H), 7.68 (t, 1H), 7.55 (d, 1H), 7.33 (m, 1H), 7.09 (t, 2H), 5.68 (br s, 2H).
- 612 δ 9.44 (dd, 1H), 8.65 (d, 1H), 8.57 (dd, 1H), 8.03 (m, 1H), 7.62 (dt, 1H), 7.27-7.37 (m, 3H), 5.55 (br s, 2H), 5.47 (s, 1H).
- 638 δ 9.49 (d, 0.5H), 9.47 (d, 0.5H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.50 (m, 1H), 5.00 (m, 2H), 4.35 (q, 1H), 4.32 (q, 1H), 1.35 (t, 1.5H), 1.28 (t, 1.5H) (E 和 Z 异构体的混合 1:1).
- 639 δ (丙酮- d_6) 8.45 (d, 1H), 8.19 (m, 1H), 8.10 (m, 1H), 8.00 (m, 2H), 7.53 (m, 1H), 7.38 (m, 1H), 7.10-7.00 (m, 2H), 5.45 (s, 2H).
- 646 δ (丙酮- d_6) 8.45 (s, 1H), 8.10 (m, 2H), 7.50 (m, 1H), 7.30 (m, 1H), 7.20 (m, 1H), 7.15 (m, 1H), 6.95 (m, 1H), 6.90 (m, 1H), 5.50-5.30 (dd, 2H), 3.76 (s, 3H).
- 647 δ (丙酮- d_6) 8.10 (m, 1H), 7.70 (s, 1H), 7.55 (s, 1H), 7.50 (d, 1H), 7.25 (m, 1H), 7.20 (m, 1H), 6.95 (m, 1H), 6.90 (m, 1H), 5.13 (m, 2H), 3.83 (s, 3H), 3.74 (s, 3H).
- 648 δ (丙酮- d_6) 9.40 (m, 1H), 8.10 (m, 1H), 7.70 (m, 1H), 7.60 (dd, 1H), 7.45-7.35 (m, 3H), 7.20 (m, 1H), 7.05 (m, 1H), 6.95 (m, 1H), 6.90 (m, 1H), 3.83 (m, 3H), 3.75 (m, 3H), 1.90 (m, 3H).
- 656 δ 9.50 (m, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.50 (m, 1H), 5.00 (m, 2H), 4.09 (d, 2H), 2.00 (m, 1H), 0.98 (d, 4H), 0.89 (d, 2H) (E 和 Z 异构体的混合 2:1).

[1236]

- 657 δ 9.50 (d, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.50 (t, 1H), 5.00 (m, 2H), 1.38 (s, 9H) (单一异构体)。
- 658 δ 9.50 (m, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.50 (m, 1H), 5.00 (m, 2H), 4.00 (s, 2H), 0.99 (s, 6H), 0.89 (s, 3H) (E 和 Z 异构体的混合 2:1)。
- 659 δ 9.50 (m, 1H), 8.23 (t, 1H), 7.61 (d, 1H), 7.50 (m, 1H), 5.00 (m, 2H), 4.82 (s, 0.66H), 4.76 (s, 1.34H), 4.22 (q, 0.66H), 4.20 (q, 1.34H), 1.29 (t, 1H), 1.27 (t, 2H) (E 和 Z 异构体的混合 2:1)。
- 700 δ 9.44 (d, 1H), 8.22 (t, 1H), 7.64 (s, 1H), 7.58 (d, 1H), 7.42 (t, 1H), 5.55 (br s, 2H), 4.42 (q, 2H), 1.04 (t, 3H)。
- 701 δ 9.44 (d, 1H), 8.26 (t, 1H), 7.91 (d, 2H), 7.65 (s, 1H), 7.63 (d, 1H), 7.55 (t, 1H), 7.44 (m, 3H), 5.56 (br s, 2H)。
- 729 δ 9.49 (d, 1H), 8.23 (s, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.52 (d, 1H), 7.47 (t, 1H), 5.05 (br m, 2H), 1.38 (s, 9H)。
- 730 δ 9.53 (d, 1H), 8.42 (s, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.53 (d, 1H), 7.46 (t, 1H), 5.05 (br m, 2H), 4.22 (q, 2H), 1.32 (t, 3H)。
- 731 δ 9.53 (d, 1H), 8.44 (s, 1H), 8.21 (t, 1H), 7.53 (d, 1H), 7.49 (t, 1H), 5.05 (br m, 2H), 3.93 (s, 2H), 0.98 (s, 9H)。
- 758 δ 9.53 (d, 1H), 8.40 (s, 1H), 8.22 (t, 1H), 7.54 (d, 1H), 7.50 (t, 1H), 5.05 (br m, 2H), 3.91 (s, 3H)。
- 759 δ 9.53 (d, 1H), 8.41 (s, 1H), 8.18 (t, 1H), 7.47 (m, 3H), 7.37 (m, 3H), 7.30 (t, 1H), 5.24 (s, 2H), 5.05 (br m, 2H)。

[1237] ^1H NMR 数据以距四甲基硅烷的低场 ppm 数为单位。除非另外指明, 为 CDCl_3 溶液; “丙酮- d_6 ”为 $\text{CD}_3\text{C}(=\text{O})\text{CD}_3$ 。偶合由下列标明: (s)-单峰, (d)-双重峰, (t)-三重峰, (m)-多重峰, (dd)-双重双重峰, (ddd)-两个双重双重峰, (dt)-双重三重峰, (td)-三重三重峰, (br)-宽峰。

[1238] 其中 R^2 为 CH_2CF_3 的化合物 ^1H NMR 光谱通常不显示出与 CH_2CF_3 质子相对应的峰。

[1239] 下列测试证明了本发明的化合物对具体害虫的控制功效。“控制功效”表示抑制无脊椎害虫发育、导致摄食显著降低的功效(包括死亡)。然而, 由所述化合物提供的害虫控制保护不限于这些物种。化合物的描述参见索引表 A-F。

[1240] 本发明的生物学实施例

[1241] 测试 A

[1242] 为评价对小菜蛾 (*Plutella xylostella*) 的控制, 试验单元由内有 12-14 天龄萝卜植物的小开口容器构成。使用带有螺旋输送器的接种器, 用经由玉米棒屑分布在试验单元中的约 50 条新生幼虫将其预先侵害。在分布到试验单元中后, 所述幼虫在试验植物上移动。

[1243] 使用包含 10% 丙酮、90% 水和 300ppm **X-77[®]** Spreader Lo-FoamFormula 非离子表面活性剂的溶液来配制受试化合物, 所述非离子表面活性剂包含烷基芳基聚环氧乙烷、游离脂肪酸、乙二醇和异丙醇 (Loveland Industries, Inc. Greeley, Colorado, USA)。通过放置在每个试验单元顶部上方 1.27cm (0.5 英寸) 处的具有 1/8JJ 定制主体的 SUJ2 喷雾器喷

嘴 (Spraying Systems Co. Wheaton, Illinois, USA), 以 1mL 液体形式施用配制好的化合物。将受试化合物以 250ppm 的浓度喷雾, 并且将试验平行测定三次。在将配制好的受试化合物喷雾后, 使每个试验单元干燥 1h, 然后将黑色网盖放置在顶部。使试验单元在 25℃ 和 70% 相对湿度的生长室中保持 6 天。然后根据所摄食的叶子视觉评定植物摄食损害。

[1244] 在所测的式 1 的化合物中, 下列这些提供了极好至优异的控制功效 (40% 或更小的摄食损害, 和 / 或 100% 的死亡率): 1, 2, 3, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 32, 33, 37, 39, 40, 42, 43, 44, 45, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61, 62, 63, 64, 65, 66, 67, 68, 70, 72, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 79, 80, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 87, 88, 89, 90, 91, 92, 93, 95, 97, 98, 100, 101, 102, 103, 104, 106, 107, 108, 109, 120, 121, 122, 123, 128, 135, 136, 137, 138, 139, 140, 141, 145, 146, 147, 148, 149, 150, 152, 153, 154, 155, 156, 159, 161, 162, 164, 166, 167, 168, 169, 170, 173, 178, 179, 180, 185, 186, 187, 188, 189, 190, 192, 193, 196, 197, 198, 199, 200, 201, 202, 203, 205, 206, 207, 208, 209, 210, 211, 212, 215, 216, 217, 218, 219, 220, 221, 222, 226, 227, 229, 232, 235, 236, 237, 240, 242, 243, 245, 246, 247, 248, 252, 253, 254, 255, 256, 257, 259, 261, 262, 263, 264, 266, 267, 270, 271, 272, 273, 274, 275, 276, 277, 278, 279, 281, 282, 284, 286, 287, 288, 289, 290, 291, 293, 294, 295, 297, 298, 299, 300, 301, 302, 307, 310, 311, 312, 313, 314, 319, 321, 323, 324, 327, 330, 332, 339, 340, 341, 342, 343, 347, 350, 351, 352, 353, 355, 359, 361, 362, 363, 364, 366, 367, 370, 371, 372, 374, 377, 379, 380, 386, 389, 391, 400, 401, 405, 406, 412, 414, 418, 421, 422, 424, 426, 427, 431, 436, 438, 440, 441, 446, 459, 460, 461, 463, 469, 470, 471, 472, 473, 474, 475, 476, 477, 478, 479, 480, 481, 482, 483, 484, 485, 486, 487, 488, 489, 490, 491, 492, 493, 494, 495, 496, 498, 499, 500, 501, 502, 503, 511, 515, 524, 525, 527, 528, 529, 530, 531, 532, 534, 536, 537, 539, 540, 541, 542, 544, 545, 546, 548, 549, 550, 551, 557, 562, 563, 566, 567, 575, 581, 582, 589, 596, 597, 598, 600, 603, 608, 609, 613, 616, 617, 618, 619, 620, 621, 622, 623, 624, 625, 626, 627, 628, 630, 632, 634, 635, 636, 639, 640, 651, 652, 653, 654, 655, 663, 664, 666, 667, 670, 671, 672, 679, 682, 683, 684, 685, 701, 702, 713, 715, 717, 732, 733, 753, 754, 755 和 756。

[1245] 测试 B

[1246] 为评价对秋粘虫 (*Spodoptera frugiperda*) 的控制, 试验单元由内有 4-5 天龄玉米 (玉蜀黍) 植物的小开口容器构成。用一片昆虫食物上的 10 至 15 条 1 天龄幼虫对其进行预先侵害 (使用芯取样器)。

[1247] 如测试 A 所述配制受试化合物, 并且以 250ppm 的浓度喷雾。将施用平行进行三次。喷雾后, 使试验单元保留在 25℃ 和 70% 相对湿度的生长室中, 然后如测试 A 所述进行视觉评定。

[1248] 在所测的式 1 的化合物中, 下列这些提供了极好至优异的控制功效 (40% 或更小的摄食损害, 和 / 或 100% 的死亡率): 1, 3, 8, 15, 18, 22, 40, 42, 43, 44, 45, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 53, 54, 55, 56, 58, 59, 60, 62, 65, 66, 68, 70, 73, 74, 75, 76, 79, 81, 83, 84, 92, 93, 95, 103, 123, 141, 145, 166, 168, 169, 173, 179, 180, 185, 186, 187, 188, 189, 192, 193, 196, 200, 215, 217, 226, 232, 240, 242, 245, 252, 253, 254, 255, 256, 261, 270, 272, 275, 276, 277, 310, 312, 372, 418, 427, 436, 440, 451, 461, 473, 475, 476, 477, 478, 479, 480, 481, 482, 484, 486, 489,

490, 491, 493, 495, 496, 498, 499, 500, 501, 502, 524, 525, 530, 531, 534, 540, 541, 542, 544, 549, 550, 574, 598, 609, 616, 617, 618, 619, 620, 622, 623, 624, 625, 626, 627, 628, 634, 635, 636, 652, 653, 654, 655, 663, 671, 672, 682, 683, 684, 685, 717, 733 和 754。

[1249] 测试 C

[1250] 为评价通过接触和 / 或全身方式进行的对桃蚜 (*Myzus persicae*) 的控制效果, 试验单元由内有 12 至 15 天龄萝卜植物的小开口容器构成。通过在试验植物的一片叶片上, 放置 30 至 40 条位于一片从栽培植物上切下的叶片上的蚜虫 (切叶方法), 将所述植物预先侵害。随着叶片脱水, 蚜虫在试验植物上移动。预先侵害后, 用一层砂覆盖试验单元的土壤。

[1251] 如测试 A 所述配制受试化合物, 并且以 250ppm 的浓度喷雾。将施用平行进行三次。在将配制好的受试化合物喷雾后, 使每个试验单元干燥 1h, 然后将黑色网盖放置在顶部。使试验单元在 19℃ -21℃ 和 50% -70% 相对湿度的生长室中保持 6 天。然后视觉评价每个试验单元的昆虫死亡率。

[1252] 在所测的式 1 的化合物中, 下列这些获得至少 80% 的死亡率: 5, 10, 19, 29, 30, 31, 42, 43, 44, 49, 50, 53, 57, 59, 60, 63, 64, 65, 66, 68, 71, 72, 74, 75, 77, 78, 79, 80, 82, 83, 87, 94, 99, 100, 101, 102, 105, 108, 109, 111, 118, 119, 120, 123, 139, 140, 151, 153, 157, 166, 171, 172, 173, 178, 180, 185, 192, 193, 196, 197, 198, 200, 203, 207, 213, 214, 216, 218, 220, 224, 231, 232, 238, 256, 277, 357, 365, 373, 389, 390, 394, 396, 397, 404, 407, 411, 422, 437, 443, 444, 445, 463, 464, 469, 471, 472, 476, 477, 481, 482, 483, 486, 491, 492, 493, 495, 496, 498, 499, 500, 501, 503, 513, 530, 531, 536, 537, 540, 544, 549, 550, 575, 577, 590, 593, 597, 598, 600, 608, 617, 623, 626, 627, 628, 636, 651, 653, 654, 655, 660, 700, 714 和 717。

[1253] 测试 D

[1254] 为评价通过接触和 / 或全身方式进行的对棉蚜 (*Aphis gossypii*) 的控制效果, 试验单元由内有 6 至 7 天龄棉属植物的小开口容器构成。根据测试 C 中所述的切叶方法将 30 至 40 条昆虫放置在一片叶片上来将所述植物预先侵害, 并且用一层砂覆盖试验单元的土壤。

[1255] 如测试 C 所述配制受试化合物, 并且以 250ppm 的浓度喷雾。将施用平行进行三次。喷雾后, 使试验单元保留在生长室中, 然后如测试 C 所述进行视觉评定。

[1256] 在所测的式 1 的化合物中, 下列这些获得至少 80% 的死亡率: 5, 10, 30, 31, 49, 54, 66, 75, 87, 94, 95, 166, 167, 192, 193, 198, 204, 210, 213, 214, 220, 230, 231, 235, 238, 264, 277, 486, 490, 540, 544, 550, 617, 619, 623, 627, 636, 653 和 654。

[1257] 测试 E

[1258] 为评价通过接触和 / 或全身方式进行的对玉米蜡蝉 (*Peregrinus maidis*) 的控制效果, 试验单元由内有 3 至 4 天龄玉米植物 (刺突) 的小开口容器构成。在施用之前将白砂加在土壤上方。如测试 A 所述配制受试化合物, 并且以 250 和 50ppm 的浓度喷雾, 并且将其平行进行三次。喷雾后, 使试验单元干燥 1h, 之后用约 15-20 只蛹 (18 至 21 天龄), 通过用盐瓶将它们撒在砂上, 将所述植物后侵害。将黑色网盖放置在圆柱体顶部。使试验单元在 22℃ -24℃ 和 50% -70% 相对湿度的生长室中保持 6 天。然后视觉评价每个试验单元的昆虫死亡率。

[1259] 在 250ppm 下测定的式 1 的化合物中, 下列这些获得至少 80% 的死亡率: 1, 2, 3, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 29, 30, 31, 32, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40, 41, 42, 43, 44, 45, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61, 62, 63, 64, 65, 66, 67, 68, 70, 71, 72, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 79, 80, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 87, 88, 89, 90, 91, 93, 94, 95, 96, 97, 98, 99, 100, 101, 103, 104, 105, 106, 107, 108, 109, 111, 114, 115, 116, 118, 119, 120, 121, 122, 123, 161, 162, 163, 237, 278, 279, 280, 281, 282, 283, 284, 285, 289, 290, 291, 292, 293, 294, 295, 296, 297, 298, 299, 301, 302, 304, 306, 308, 309, 314, 317, 318, 319, 320, 321, 322, 323, 324, 325, 327, 329, 330, 336, 340, 341, 343, 344, 345, 346, 347, 348, 349, 350, 351, 352, 353, 356, 357, 358, 359, 360, 361, 362, 363, 364, 365, 366, 368, 375, 376, 377, 378, 384, 386, 389, 390, 392, 393, 394, 396, 397, 399, 400, 402, 403, 404, 406, 407, 408, 409, 411, 412, 413, 414, 415, 416, 419, 420, 421, 422, 423, 424, 425, 426, 428, 431, 433, 435, 436, 437, 438, 441, 442, 443, 444, 445, 446, 447, 449, 450, 459, 460, 461, 462, 463, 464, 465, 466, 467, 468, 469, 470, 471, 472, 474, 475, 476, 477, 479, 481, 482, 483, 484, 485, 519, 556, 562, 564, 568, 570, 571, 573, 574, 575, 576, 577, 579, 582, 583, 584, 586, 587, 588, 590, 591, 592, 593, 594, 604, 606, 608, 611, 612, 613, 687 和 757。

[1260] 在 50ppm 下测定的式 1 的化合物中, 下列这些提供了极好至优异的控制功效 (80% 或更大的死亡率): 1, 2, 3, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 29, 30, 31, 32, 36, 38, 39, 40, 42, 43, 44, 45, 46, 47, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61, 62, 63, 64, 65, 66, 67, 68, 70, 71, 72, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 79, 80, 81, 82, 83, 84, 85, 86, 87, 88, 89, 90, 91, 92, 93, 94, 95, 96, 97, 98, 99, 100, 101, 102, 103, 104, 105, 107, 108, 109, 111, 118, 119, 120, 121, 123, 124, 125, 134, 136, 137, 138, 139, 140, 141, 146, 147, 148, 149, 150, 151, 154, 156, 157, 161, 166, 167, 168, 171, 172, 173, 180, 185, 192, 193, 196, 197, 198, 199, 200, 201, 202, 203, 204, 207, 208, 209, 210, 212, 213, 214, 215, 216, 217, 218, 219, 220, 221, 222, 223, 224, 225, 226, 229, 230, 231, 232, 233, 234, 235, 236, 237, 238, 239, 240, 241, 243, 244, 245, 246, 247, 248, 249, 252, 254, 255, 256, 257, 259, 260, 262, 264, 266, 278, 280, 284, 289, 290, 291, 292, 293, 295, 297, 301, 304, 314, 318, 319, 320, 321, 323, 324, 325, 327, 330, 343, 344, 345, 346, 347, 348, 349, 350, 351, 352, 357, 359, 360, 361, 362, 363, 365, 376, 377, 378, 390, 392, 393, 394, 399, 400, 403, 404, 408, 411, 412, 413, 414, 419, 420, 421, 422, 423, 424, 425, 426, 431, 433, 435, 436, 437, 438, 441, 442, 443, 444, 446, 448, 449, 450, 456, 459, 460, 461, 462, 463, 464, 466, 468, 469, 470, 471, 472, 473, 474, 475, 476, 477, 481, 482, 483, 485, 486, 487, 488, 489, 490, 491, 492, 493, 495, 496, 497, 498, 499, 500, 501, 502, 503, 511, 513, 514, 522, 523, 524, 525, 527, 530, 531, 536, 537, 539, 540, 542, 544, 546, 547, 570, 571, 573, 574, 575, 576, 577, 579, 584, 586, 587, 588, 591, 592, 593, 597, 598, 599, 600, 604, 608, 613, 621, 622, 623, 625, 626, 630, 631, 632, 634, 636, 637, 639, 640, 641, 643, 645, 651, 652, 663, 664, 665, 666, 677, 700, 701, 702, 708, 713, 718, 751, 752, 756 和 757。

[1261] 测试 F

[1262] 为评价通过接触和 / 或全身方式进行的对土豆叶蝉 (*Empoasca fabae*) 的控制效果, 试验单元由内有 5 至 6 天龄大豆植物 (显出初生叶) 的小开口容器构成。将白砂加在

土壤上方,并且在施用前切除一片初生叶。

[1263] 如测试 A 所述配制受试化合物,并且以 250 和 50ppm 的浓度喷雾,并且将测试平行进行三次。喷雾后,使试验单元干燥 1h,之后用 5 条土豆叶蝉(18-21 天龄成虫)对它们后侵害。将黑色网盖放置在圆柱体顶部。使试验单元在 24℃和 70%相对湿度的生长室中保持 6 天。然后视觉评价每个试验单元的昆虫死亡率。

[1264] 在 250ppm 下测定的式 1 的化合物中,下列这些提供了极好至优异的控制功效(80%或更大的死亡率):1,2,3,5,6,7,8,9,10,11,12,13,14,16,17,18,19,21,23,24,25,26,27,28,29,30,31,3637,38,39,40,41,42,43,44,45,46,47,48,49,50,51,52,5354,55,56,57,57,58,59,60,61,62,63,64,65,66,67,67,6870,71,72,73,73,74,75,76,77,78,79,80,81,82,83,84,8687,88,89,90,91,92,93,94,95,96,97,98,99,100,101,102,104,105,106,108,109,111,113,116,117,118,120,120,122,123,163,163,237,278,279,280,281,283,285,286,288,289,291,292,295,297,302,308,311,314,315,317,318,324,325,327,328,330,340,341,343,344,345,347,349,352,357,358,359,360,361,362,363,364,365,369,375,376,377,378,381,385,389,390,392,393,394,396,397,399,400,403,404,405,406,407,408,409,410,411,415,416,417,419,422,423,424,425,426,431,433,435,437,438,443,444,445,446,449,450,459,460,461,462,463,464,465,466,467,468,469,470,471,472,473,474,475,476,477,478,479,480,481,482,483,484,485,515,568,570,571,573,574,575,581,588,591,593,604,606,608,609 和 613。

[1265] 在 50ppm 下测定的式 1 的化合物中,下列这些提供了极好至优异的控制功效(80%或更大的死亡率):1,2,3,5,6,7,9,10,11,12,13,14,16,17,19,21,23,24,25,26,27,28,29,30,31,40,41,42,43,44,45,46,47,48,49,50,51,52,53,54,55,56,57,58,59,60,61,62,63,64,65,67,68,70,71,72,73,74,75,76,77,78,79,80,81,82,83,84,85,86,87,88,89,90,91,92,93,94,95,96,97,98,99,100,101,102,104,105,106,108,109,111,118,119,120,123,124,136,137,138,139,140,141,146,147,151,153,155,156,157,160,166,167,168,171,172,173,178,180,185,186,189,192,193,194,196,197,198,199,200,201,202,203,204,207,208,209,210,211,212,213,214,215,216,217,218,219,220,222,223,224,225,226,232,233,235,236,237,238,240,243,244,245,246,247,252,254,255,256,258,259,260,261,262,264,266,273,274,277,280,318,324,327,330,340,341,357,359,361,362,363,364,369,374,377,381,389,390,392,394,396,397,399,403,404,407,408,411,416,417,423,424,431,433,435,437,449,460,461,462,463,464,466,467,469,470,471,472,473,474,475,476,477,479,480,481,482,483,486,487,488,489,490,491,492,493,494,495,496,497,498,500,501,502,503,514,515,524,525,530,531,534,536,537,539,540,541,542,544,545,551,570,575,591,597,598,600,608,609,617,618,619,620,621,622,623,624,627,634,635,641,645,651,652,653,654,663,666,671,672,682,702,711,713,715,717,753,755 和 756。

[1266] 测试 G

[1267] 为评价通过接触和/或内吸方式进行的对西花蓟马(*Frankliniella occidentalis*)的控制效果,试验单元由内有 5-7 天龄大豆植物的小开口容器构成。

[1268] 如测试 A 所述配制受试化合物,并且以 250ppm 的浓度喷雾,并且将其平行进行三

次。喷雾后,使试验单元干燥 1h,之后将 22-27 条花蓟马成虫加入到单元中,然后将黑色网盖放置在顶部。使试验单元在 25℃和 45%至 55%相对湿度下保持 7 天。

[1269] 在式 1 受试化合物中,下列这些提供了极好至优异的控制功效(30%或更小的摄食损害,和 / 或 100%的死亡率):158、211、212、229、235、257、258、262、273、497、528、531、544、549、579、608、617、635 和 682。

[1270] 测试 H

[1271] 为评价对猫蚤 (*Ctenocephalides felis*) 的控制效果,将受试化合物溶解于丙二醇 / 环亚甲基甘油醚 (60 : 40) 中,然后稀释于牛血液中,至 30ppm 的最终测试浓度。将处理过的血液放于管中,所述管的底部用薄膜覆盖。使大约 10 只成年猫蚤透过薄膜以处理过的血液为食。在 72 小时后评价成年猫蚤的死亡率。

[1272] 在所测的式 1 的化合物中,下列这些化合物获得 50%或更大的死亡率:1,2,3,5,6,8,9,10,12,14,16,17,19,21,26,29,34,36,37,38,39,41,42,43,44,45,46,47,48,49,50,52,53,54,55,56,57,58,59,61,62,65,66,71,72,75,76,78,81,82,83,88,90,92,98,100,101,103,104,105,106,107,114,118,119,120,121,123,124,125,134,135,136,137,138,149,150,153,154,155,156,157,161,166,167,169,172,179,186,188,189,190,191,192,193,196,199,203,204,206,207,208,210,211,216,217,218,219,223,224,225,230,280,281,289,290,294,295,301,312,314,318,319,323,324,327,331,343,346,348,350,360,361,362,363,364,369,371,372,373,374,378,382,383,385,389,391,393,406,411,420,421,422,423,431,435,438,440,461,466,468,469,470,471,473,475,476,477,478,479,480,490,491,492,493,494,495,496,497,498,500,503,511,513,521,528,589,590,592,596,597,599,604 和 606。

[1273] 测试 I

[1274] 为评价对猫蚤 (*Ctenocephalides felis*) 的控制效果,将受试化合物溶于丙酮 : 水 (75 : 25) 中,至 500ppm 的最终测试浓度。然后将 20 μ L500ppm 的溶液施加到管底部的滤纸上。使管干燥 3 小时。然后将大约 10 只成年跳蚤加入到管中,并且将管封口。48 小时后评价跳蚤的死亡率。

[1275] 在所测的式 1 的化合物中,下列这些化合物获得 50%或更大的死亡率:5,6,10,12,19,21,22,23,26,27,28,38,39,40,41,42,43,44,45,47,48,50,54,56,57,59,61,62,63,65,70,71,72,75,81,82,83,102,107,108,114,115,121,124,136,138,141,151,154,161,166,173,186,193,196,197,203,204,208,211,216,218,224,229,232,281,290,291,295,301,310,321,343,350,353,357,360,361,364,408,419,424,437,446,450,461,464,466,468,470,471,474,476,483,485,487,490,491,492,493,494,496,498,501,507,520,521,576,597 和 599。

[1276] 测试 J

[1277] 为评价向小鼠口腔施用受试化合物后对猫蚤 (*Ctenocephalides felis*) 的控制效果,使 CD-1[®]小鼠 (约 30g,雄性,得自 Charles River Laboratories, Wilmington, MA) 以 10mg/kg 的量口服溶于丙二醇 / 环亚甲基甘油醚 (60 : 40) 中的受试化合物。在口服受试化合物两小时后,向每只小鼠施加大约 8 至 16 只成年跳蚤。然后在向小鼠施加跳蚤 48 小时后,评价跳蚤的死亡率。

[1278] 在所测的式 1 的化合物中, 下列这些化合物获得 20% 或更大的死亡率: 2, 10, 19, 41, 42, 43, 44, 45, 46, 47, 51, 56, 57, 59, 61, 63, 72, 75, 80, 81, 82, 83, 88, 92, 96, 101, 104, 105, 106, 107, 111, 119, 120, 121, 123, 124, 136, 137, 140, 148, 151, 154, 169, 186, 319, 461, 475, 476, 477, 493, 497, 498, 588 和 599。