(19)中华人民共和国国家知识产权局

(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 101044128 B
(45)授权公告日 2012.04.18

(21)申请号 200580036135.2

(22)申请日 2005.08.13

(30)优先权数据
102004041532.3 2004.08.27 DE

(85)PCT申请进入国家阶段日
2007.04.20

(86)PCT申请的申请数据
PCT/EP2005/008839 2005.08.13

(87)PCT申请的公布数据
WO2006/024389 DE 2006.03.09

(73)专利权人 拜尔农作物科学股份公司
地址 德国蒙海姆

(72)发明人 R·东克尔 H-L·埃尔贝 J·N·格罗伊 B·哈特曼 H·盖尔 T·塞茨 U·瓦切恩多尔夫-诺伊曼 P·丹门 K-H·库克

(74)专利代理机构 北京北翔知识产权代理有限公司 11285
代理人 唐铁军 钟守期

(51)Int.Cl.
C07D 277/56(2006.01)
A01N 43/78(2006.01)

(56)对比文件
WO 03066610 A1,2003.08.14, 权利要求1-21.
WO 2004035555 A1,2004.04.29, 权利要求1-17.
PHILLIPS, W. GARY等.Thiazole carboxanilide fungicides: a new structure-activityrelationship for succinate dehydrogenase inhibitors. PESTICIDE SCIENCE38 1.1993,38(1),38(1),1-7.

审查员 何小平

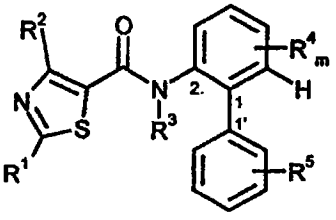
权利要求书 6 页 说明书 34 页

(54)发明名称

联苯基噻唑甲酰胺

(57)摘要

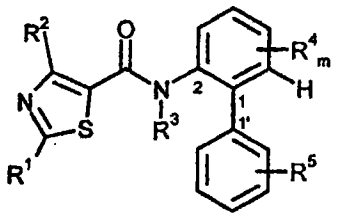
本发明公开了式(I)的新的联苯基噻唑甲酰胺，其中R^1、R^2、R^3、R^4、m和R^5具有说明书中所示含义；本发明还公开了制备所述物质的多种方法及其用于防治不想要的微生物的用途，以及新的中间产物及其制备。



(I)

CN 101044128 B

1. 式 (I) 的联苯基噻唑甲酰胺



(I)

，

其中

R^1 代表氢、卤素、氨基、C_1-C_4 烷基氨基、二 -(C_1-C_4 烷基）氨基、氰基、C_1-C_4 烷基或者具有 1 至 5 个卤素原子的 C_1-C_4 卤代烷基，

R^2 代表卤素、C_1-C_4 烷基或者具有 1 至 5 个卤素原子的 C_1-C_4 卤代烷基，

R^3 代表氢、C_1-C_8 烷基、C_1-C_6 烷基亚磺酰基、C_1-C_6 烷基磺酰基、C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷硫基、C_1-C_4 卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4 卤代烷基磺酰基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，甲酰基、甲酰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷基）羰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷氧基）羰基 -C_1-C_3 烷基，各自具有 1 至 13 个氟、氯和 / 或溴原子的卤代 -(C_1-C_3 烷基）羰基 -C_1-C_3 烷基、卤代 -(C_1-C_3 烷氧基）羰基 -C_1-C_3 烷基，

(C_1-C_8 烷基）羰基、(C_1-C_8 烷氧基）羰基、(C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基）羰基、(C_3-C_8 环烷基）羰基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 (C_1-C_6 卤代烷基）羰基、(C_1-C_6 卤代烷氧基）羰基、（卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基）羰基、(C_3-C_8 卤代环烷基）羰基，或 -C(＝O)C(＝O)R^6、-CONR^{7}R^8 或 -CH$_2$NR^{9}R^{10}，

R^4 代表卤素、C_1-C_4 烷基、C_1-C_4 烷氧基、C_1-C_4 烷硫基或者具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基，

m 代表 1 或 2，其中若 m 代表 2，则 R^4 基团可相同或不同，

R^5 代表卤素、氰基、硝基、氨基、羟基、甲酰基、羧基、氨基甲酰基、氨基硫羰基、C_1-C_8 烷基、C_2-C_6 烯基、C_1-C_8 烷氧基、C_2-C_6 烯氧基、C_1-C_8 烷硫基、C_1-C_8 烷基亚磺酰基、C_1-C_8 烷基磺酰基、C_1-C_8 羟基烷基、C_1-C_8 氧代烷基、C_1-C_8 烷氧基烷基、C_1-C_8 烷硫基烷基、C_1-C_8 二烷氧基烷基、C_1-C_6 烷基氨基、二 (C_1-C_6 烷基）氨基、(C_1-C_6 烷基）羰基、(C_1-C_6 烷基）羰基氧基、(C_1-C_6 烷氧基）羰基、(C_1-C_6 烷基）氨基羰基、二 (C_1-C_6 烷基）氨基羰基、(C_1-C_6 烷基）羰基氨基、(C_1-C_6 烷基）羰基 (C_1-C_6 烷基）氨基、(C_2-C_6 烯基）羰基、(C_2-C_6 炔基）羰基、C_3-C_6 环烷基、C_3-C_6 环烷基氧基，或者代表各自具有 1 至 13 个卤素原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_6 卤代烷氧基、C_1-C_6 卤代烷硫基、C_1-C_6 卤代烷基亚磺酰基或 C_1-C_6 卤代烷基磺酰基，各自具有 1 至 11 个相同或不同的卤素原子的 C_2-C_6 卤代烯基、C_2-C_6 卤代烯氧基，

R^6 代表氢、C_1-C_8 烷基、C_1-C_8 烷氧基、C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_6 卤代烷氧基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，

R^7 和 R^8 彼此独立地各自代表氢、C_1-C_8 烷基、C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_8 卤代烷基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，

R^7 和 R^8 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 至 8 个环原子的饱和杂环，所述饱和

杂环可被相同或不同的选自卤素和 C_1-C_4 烷基的取代基单取代或多取代，其中所述杂环还可再另外含有 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫或 NR^{11} 的杂原子，

R^9 和 R^{10} 彼此独立地代表氢、C_1-C_8 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_8 卤代烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，

R^9 和 R^{10} 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 至 8 个环原子的饱和杂环，所述饱和杂环可被相同或不同的选自卤素或 C_1-C_4 烷基的取代基单取代或多取代，其中所述杂环还可再另外含有 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫或 NR^{11} 的杂原子，

R^{11} 代表氢或 C_1-C_6 烷基，

并且，若 R^3 代表氢并且 R^4 代表氟并且 m 代表 1，则排除这样的式 (I) 的化合物，其中

R^1 代表氢或甲基，

R^2 代表氯、甲基、二氟甲基或三氟甲基，

R^5 代表卤素、C_1-C_4 烷基、三氟甲基、C_1-C_4 烷氧基或 C_1-C_4 烷硫基。

2. 权利要求 1 的式 (I) 的联苯基噻唑甲酰胺，其中

R^1 代表氢、氟、氯、溴、氨基、C_1-C_4 烷基氨基、二 (C_1-C_4 烷基) 氨基、氰基、甲基、乙基或者具有 1 至 5 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_2 卤代烷基，

R^2 代表氟、氯、溴、甲基、乙基或者具有 1 至 5 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_2 卤代烷基，

R^3 代表氢、C_1-C_6 烷基、C_1-C_4 烷基亚磺酰基、C_1-C_4 烷基磺酰基、C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷硫基、C_1-C_4 卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4 卤代烷基磺酰基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，甲酰基、甲酰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷基) 羰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷氧基) 羰基 -C_1-C_3 烷基，各自具有 1 至 13 个氟、氯和 / 或溴原子的卤代 -(C_1-C_3 烷基) 羰基 -C_1-C_3 烷基、卤代 -(C_1-C_3 烷氧基) 羰基 -C_1-C_3 烷基，

(C_1-C_6 烷基) 羰基、(C_1-C_4 烷氧基) 羰基、(C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基) 羰基、(C_3-C_6 环烷基) 羰基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 (C_1-C_4 卤代烷基) 羰基、(C_1-C_4 卤代烷氧基) 羰基、(卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基) 羰基、(C_3-C_6 卤代环烷基) 羰基，或 -C(= O)C(= O)R^6、-CONR^7R^8 或 -$CH_2NR^9R^{10}$，

R^4 代表氟、氯、甲基、异丙基、甲氧基、甲硫基或三氟甲基，

m 代表 1 或 2，其中若 m 代表 2，则 R^4 基团可相同或不同，

R^5 代表氟、氯、溴、氰基、硝基、氨基、羟基、甲酰基、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、乙烯基、烯丙基、甲氧基、乙氧基、正丙氧基或异丙氧基、乙烯氧基、烯丙氧基、甲硫基、乙硫基、正丙硫基或异丙硫基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正丙基亚磺酰基或异丙基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正丙基磺酰基或异丙基磺酰基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、甲硫基甲基、甲硫基乙基、乙硫基甲基、乙硫基乙基、甲氨基、乙氨基、异丙氨基、二甲氨基、二乙氨基、二丙氨基、二异丙氨基、甲基羰基、乙基羰基、甲基氨基羰基、二甲基氨基羰基、甲基羰基氨基、甲基羰基甲基氨基、环丙基、环丙基氧基、三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、二氟甲氧基、三氟甲氧基、二氟一氯甲氧基、三氟乙氧基、二氟甲硫基、二氟一氯甲硫基或三氟甲硫基，

R^6 代表氢、C_1-C_6 烷基、C_1-C_4 烷氧基、C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷氧基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3

烷基、C_3-C_6 卤代环烷基，

R^7 和 R^8 彼此独立地各自代表氢、C_1-C_6 烷基、C1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 卤代环烷基，

R^7 和 R^8 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环，所述饱和杂环可被相同或不同的选自卤素和 C_1-C_4 烷基的取代基单取代至四取代，其中所述杂环还可再另外含有 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫或 NR^{11} 的杂原子，

R^9 和 R^{10} 彼此独立地代表氢、C_1-C_6 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_3-C_6 卤代环烷基，

R^9 和 R^{10} 还与它们所连接的氮原子一起形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环，所述杂环可被相同或者不同的卤素或 C_1-C_4 烷基单取代至四取代，其中所述杂环还可再另外包含 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫和 NR^{11} 的杂原子。

R^{11} 代表氢或 C_1-C_4 烷基，

并且，若 R^3 代表氢并且 R^4 代表氟并且 m 代表 1，则排除这样的式 (I) 化合物，其中

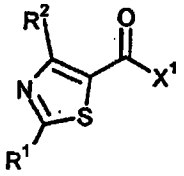
R^1 代表氢或甲基，

R^2 代表氯、甲基、二氟甲基或三氟甲基，

R^5 代表卤素、C_1-C_4 烷基、三氟甲基、C_1-C_4 烷氧基或 C_1-C_4 烷硫基。

3. 制备权利要求 1 的式 (I) 联苯基噻唑甲酰胺的方法，其特征在于

(a) 如果合适在催化剂的存在下，如果合适在缩合剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (II) 的羧酸衍生物与式 (III) 的联苯胺反应，

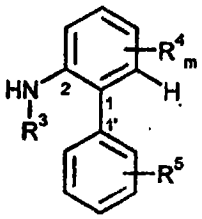


(II)

其中

R^1 和 R^2 具有权利要求 1 所述的含义，并且

X^1 代表卤素或羟基，

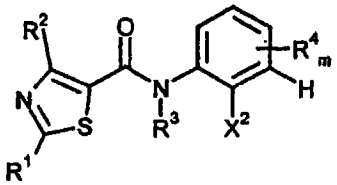


(III)

其中 R^3、R^4、m 和 R^5 具有权利要求 1 所述的含义，

或者

(b) 在催化剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (IV) 的卤代甲酰胺与式 (V) 的硼酸衍生物反应

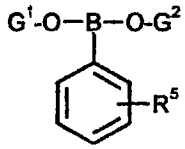


(IV)

其中

R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有权利要求 1 所述的含义，

X^2 代表溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，



(V)

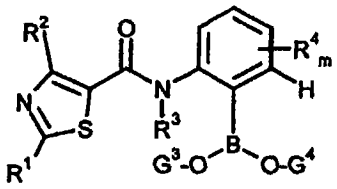
其中

R^5 具有权利要求 1 所述的含义，并且

G^1 和 G^2 各自代表氢，或一起代表四甲基亚乙基，

或者，

(c) 在催化剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (VI) 的硼酸衍生物与式 (VII) 的苯基衍生物反应，

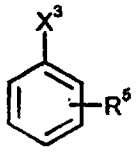


(VI)

其中

R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有权利要求 1 所述的含义，

G^3 和 G^4 各自代表氢，或一起代表四甲基亚乙基，



(VII)

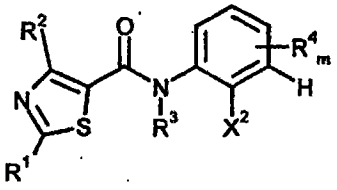
其中

R^5 具有权利要求 1 所述的含义，并且

X^3 代表氯、溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，

或者，

(d) 在钯或镍催化剂的存在下，并且在 4,4,4',4',5,5,5',5' - 八甲基 -2,2' - 双 -1,3,2- 二氧杂硼杂环戊烷的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (IV) 的卤代甲酰胺与式 (VII) 的苯基衍生物反应，

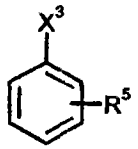


(IV)

其中

R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有权利要求 1 所述的含义，

X^2 代表溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，



(VII)

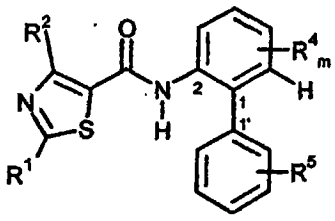
其中

R^5 具有权利要求 1 所述的含义，并且

X^3 代表氯、溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，

或者，

(e) 在碱的存在下并且在稀释剂的存在下，式 (I-a) 的联苯基噻唑甲酰胺与式 (VIII) 的卤化物反应，



(I-a)

其中

R^1、R^2、R^4、m 和 R^5 具有权利要求 1 所述的含义，

R^{3A}—X^4 (VIII)

其中

R^{3A} 代表 C_1-C_8 烷基、C_1-C_6 烷基亚磺酰基、C_1-C_6 烷基磺酰基、C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷硫基、C_1-C_4 卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4 卤代烷基磺酰基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，甲酰基、甲酰基 -C_1-C_3 烷基、(C1-C_3 烷基) 羰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷氧基) 羰基 -C_1-C_3 烷基 ；各自具有 1 至 13 个氟、氯和 / 或溴原子的卤代 -(C_1-C_3 烷基) 羰基 -C_1-C_3 烷基、卤代 -(C_1-C_3 烷氧基) 羰基 -C_1-C_3 烷基 ；

(C_1-C_8 烷基) 羰基、(C_1-C_8 烷氧基) 羰基、(C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基) 羰基、(C_3-C_8 环烷基) 羰基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 (C_1-C_6 卤代烷基) 羰基、(C_1-C_6 卤代烷氧基) 羰基、(卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基) 羰基、(C_3-C_8 卤代环烷基) 羰基，或 -C(= O)C(= O)R^6、-CONR^7R^8 或 -$CH_2NR^9R^{10}$，

R^6、R^7、R^8、R^9 和 R^{10} 具有权利要求 1 所述的含义，

X^4 代表氯、溴或碘。

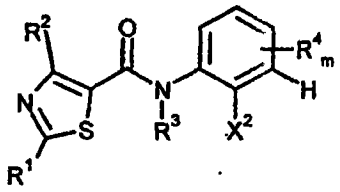
4. 防治不想要的微生物的药剂，其特征在于所述药剂包含至少一种权利要求 1 的式 (I) 联苯基噻唑甲酰胺以及填充剂和 / 或表面活性物质。

5. 权利要求 1 的式 (I) 联苯基噻唑甲酰胺用于防治不想要的微生物的用途。

6. 防治不想要的微生物的方法，其特征在于将权利要求 1 的式 (I) 联苯基噻唑甲酰胺施用于微生物和 / 或其生境。

7. 制备用于防治不想要的微生物的药剂的方法，其特征在于将权利要求 1 的式 (I) 联苯基噻唑甲酰胺与填充剂和 / 或表面活性物质混合。

8. 式 (IV) 的卤代甲酰胺



(IV)

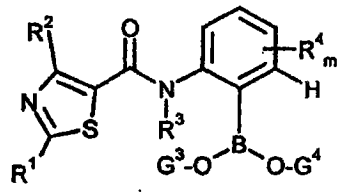
，

其中

R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有权利要求 1 所述的含义，

X^2 代表溴、碘或三氟甲基磺酸酯基。

9. 式 (VI) 的硼酸衍生物



(VI)

，

其中

R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有权利要求 1 所述的含义，

G^3 和 G^4 各自代表氢，或一起代表四甲基亚乙基。

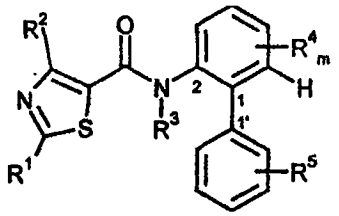
联苯基噻唑甲酰胺

[0001] 本发明涉及新的联苯基噻唑甲酰胺、其多种制备方法及其用于防治不想要的微生物的用途。

[0002] 已知多种甲酰胺具有杀真菌性能（参见WO03/070705、WO97/08148和JP-A2001-302605）。因此，已确定了多种其联苯基部分可被取代的联苯基甲酰胺，例如已知于WO03/070705的N-(3',4'-二氯-3-氟-1,1'-联苯-2-基)-1-甲基-3-(三氟甲基)-1H-吡唑-4-甲酰胺、已知于WO97/08148的N-(5-氟-4'-甲基联苯-2-基)-2-甲基-4-(三氟甲基)-1,3-噻唑-5-甲酰胺和已知于JP2001-302605的N-(4'-甲氧基-6-甲基联苯-2-基)-2-甲基-4-(三氟甲基)-1,3-噻唑-5-甲酰胺。这些物质的药效良好，然而在大多数情况下，例如在低施用率时，还有一些方面尚需改进。

[0003] 已发现式(I)的新的联苯基噻唑甲酰胺，

[0004]



(I)

[0005] 其中

[0006] R^1代表氢、卤素、氨基、C_1-C_4烷基氨基、二-(C_1-C_4烷基)氨基、氰基、C_1-C_4烷基或者具有1至5个卤素原子的C_1-C_4卤代烷基，

[0007] R^2代表卤素、C_1-C_4烷基或者具有1至5个卤素原子的C_1-C_4卤代烷基，

[0008] R^3代表氢、C_1-C_8烷基、C_1-C_6烷基亚磺酰基、C_1-C_6烷基磺酰基、C_1-C_4烷氧基-C_1-C_4烷基、C_3-C_8环烷基，各自具有1至9个氟、氯和/或溴原子的C_1-C_6卤代烷基、C_1-C_4卤代烷硫基、C_1-C_4卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4卤代烷基磺酰基、卤代-C_1-C_4烷氧基-C_1-C_4烷基、C_3-C_8卤代环烷基，甲酰基、甲酰基-C_1-C_3烷基、(C_1-C_3烷基)羰基-C_1-C_3烷基、(C_1-C_3烷氧基)羰基-C_1-C_3烷基，各自具有1至13个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C_1-C_3烷基)羰基-C_1-C_3烷基、卤代-(C_1-C_3烷氧基)羰基-C_1-C_3烷基，

[0009] (C_1-C_8烷基)羰基、(C_1-C_8烷氧基)羰基、(C_1-C_4烷氧基-C_1-C_4烷基)羰基、(C_3-C_8环烷基)羰基，各自具有1至9个氟、氯和/或溴原子的(C_1-C_6卤代烷基)羰基、(C_1-C_6卤代烷氧基)羰基、(卤代-C_1-C_4烷氧基-C_1-C_4烷基)羰基、(C_3-C_8卤代环烷基)羰基，或-C(=O)C(=O)R^6、-CONR^7R^8或-$CH_2NR^9R^{10}$，

[0010] R^4代表卤素、C_1-C_4烷基、C_1-C_4烷氧基、C_1-C_4烷硫基或者具有1至9个氟、氯和/或溴原子的C_1-C_4卤代烷基，

[0011] m代表1或2，其中m代表2时R^4基团可相同或不同，

[0012] R^5代表卤素、氰基、硝基、氨基、羟基、甲酰基、羧基、氨基甲酰基、氨基硫羰基、C_1-C_8烷基、C_2-C_6烯基、C_1-C_8烷氧基、C_2-C_6烯氧基、C_1-C_8烷硫基、C_1-C_8烷基亚磺酰基、C_1-C_8烷基磺酰基、C_1-C_8羟基烷基、C_1-C_8氧代烷基、C_1-C_8烷氧基烷基、C_1-C_8烷硫基烷基、C_1-C_8二烷氧基烷基、C_1-C_6烷基氨基、二(C_1-C_6烷基)氨基、(C_1-C_6烷基)羰基、(C_1-C_6烷基)羰基氧基、

(C_1-C_6 烷氧基）羰基、(C_1-C_6- 烷基）氨基羰基、二（C_1-C_6 烷基）氨基羰基、(C_1-C_6 烷基）羰基氨基、(C_1-C_6 烷基）羰基（C_1-C_6 烷基）氨基、(C_2-C_6 烯基）羰基、(C_2-C_6 炔基）羰基、C_3-C_6 环烷基、C_3-C_6 环烷基氧基，或者代表各自具有 1 至 13 个卤素原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_6 卤代烷氧基、C_1-C_6 卤代烷硫基、C_1-C_6 卤代烷基亚磺酰基或 C_1-C_6 卤代烷基磺酰基，各自具有 1 至 11 个相同或不同的卤素原子的 C_2-C_6 卤代烯基、C_2-C_6 卤代烯氧基，

[0013] R^6 代表氢、C_1-C_8 烷基、C_1-C_8 烷氧基、C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_6 卤代烷氧基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，

[0014] R^7 和 R^8 彼此独立地各自代表氢、C_1-C_8 烷基、C1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_8 卤代烷基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，

[0015] R^7 和 R^8 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 至 8 个环原子的饱和杂环，所述饱和杂环可被相同或不同的选自卤素和 C_1-C_4 烷基的取代基单取代或多取代，其中所述杂环还可再另外含有 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫或 NR^{11} 的杂原子，

[0016] R^9 和 R^{10} 彼此独立地代表氢、C_1-C_8 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_8 卤代烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，

[0017] R^9 和 R^{10} 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 至 8 个环原子的饱和杂环，所述饱和杂环可被相同或不同的选自卤素或 C_1-C_4 烷基的取代基单取代或多取代，其中所述杂环还可再另外含有 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫或 NR^{11} 的杂原子，

[0018] R^{11} 代表氢或 C_1-C_6 烷基，

[0019] 并且，若 R^3 代表氢并且 R^4 代表氟并且 m 代表 1，则排除这样的式 (I) 化合物，其中

[0020] R^1 代表氢或甲基，

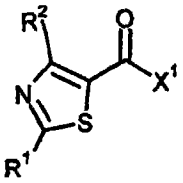
[0021] R^2 代表氯、甲基、二氟甲基或三氟甲基，

[0022] R^5 代表卤素、C_1-C_4 烷基、三氟甲基、C_1-C_4 烷氧基或 C_1-C_4 烷硫基。

[0023] 此外，还发现式 (I) 的联苯基噻唑甲酰胺可通过以下反应获得：

[0024] (a) 如果合适在催化剂的存在下，如果合适在缩合剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (II) 的羧酸衍生物与式 (III) 的联苯胺反应，

[0025]



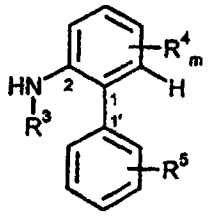
(II)

[0026] 其中

[0027] R^1 和 R^2 具有上述含义，并且

[0028] X^1 代表卤素或羟基，

[0029]



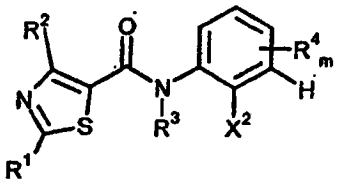
(III)

[0030] 其中 R^3、R^4、m 和 R^5 具有上述含义，

[0031] 或者

[0032] (b) 在催化剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (IV) 的卤代甲酰胺与式 (V) 的硼酸衍生物反应

[0033]



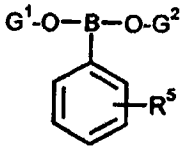
(IV)

[0034] 其中

[0035] R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有上述含义，

[0036] X^2 代表溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，

[0037]



(V)

[0038] 其中

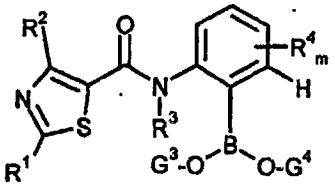
[0039] R^5 具有上述含义，并且

[0040] G^1 和 G^2 各自代表氢，或一起代表四甲基亚乙基，

[0041] 或者，

[0042] (c) 在催化剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (VI) 的硼酸衍生物与式 (VII) 的苯基衍生物反应，

[0043]



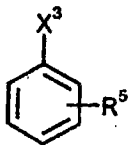
(VI)

[0044] 其中

[0045] R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有上述含义，

[0046] G^3 和 G^4 各自代表氢，或一起代表四甲基亚乙基，

[0047]



(VII)

[0048] 其中

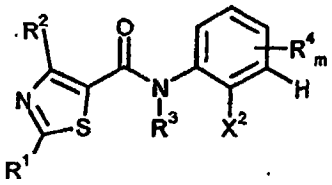
[0049] R^5 具有上述含义，并且

[0050] X^3 代表氯、溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，

[0051] 或者，

[0052] (d) 在钯或镍催化剂的存在下，并且在 4,4,4',4',5,5,5',5' - 八甲基 -2,2' - 双 -1,3,2- 二氧杂硼杂环戊烷 (dioxaborolane) 的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (IV) 的卤代甲酰胺与式 (VII) 的苯基衍生物反应，

[0053]



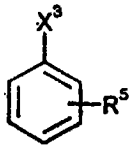
(IV)

[0054] 其中

[0055] R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 具有上述含义，

[0056] X^2 代表溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，

[0057]



(VII)

[0058] 其中

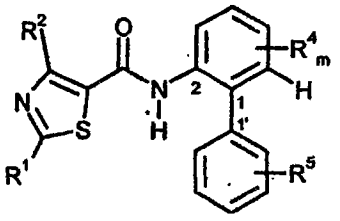
[0059] R^5 具有上述含义，并且

[0060] X^3 代表氯、溴、碘或三氟甲基磺酸酯基，

[0061] 或者，

[0062] (e) 在碱的存在下并且在稀释剂的存在下，式 (I-a) 的联苯基噻唑甲酰胺与式 (VIII) 的卤化物反应，

[0063]



(I-a)

[0064] 其中

[0065] R^1、R^2、R^4、m 和 R^5 具有上述含义，

[0066] R^{3A}—X^4 (VIII)

[0067] 其中

[0068] R^{3A} 代表 C_1-C_8 烷基、C_1-C_6 烷基亚磺酰基、C_1-C_6 烷基磺酰基、C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_6 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷硫基、C_1-C_4 卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4 卤代烷基磺酰基、卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基、C_3-C_8

卤代环烷基，甲酰基、甲酰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷基）羰基 -C_1-C_3 烷基、(C1-C_3 烷氧基）羰基 -C_1-C_3 烷基，各自具有 1 至 13 个氟、氯和 / 或溴原子的卤代 -(C_1-C_3 烷基）羰基 -C_1-C_3 烷基、卤代 -(C_1-C_3 烷氧基）羰基 -C_1-C_3 烷基，

[0069] (C_1-C_8 烷基）羰基、(C_1-C_8 烷氧基）羰基、(C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基）羰基、(C_3-C_8 环烷基）羰基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 (C_1-C_6 卤代烷基）羰基、(C_1-C_6 卤代烷氧基）羰基、(卤代 -C_1-C_4 烷氧基 -C_1-C_4 烷基）羰基、(C_3-C_8 卤代环烷基）羰基，或 -C(= O)C(= O)R^6、-$CONR^7R^8$ 或 -$CH_2NR^9R^{10}$，

[0070] R^6、R^7、R^8、R^9 和 R^10 具有上述含义，

[0071] X^4 代表氯、溴或碘。

[0072] 最后，还发现式 (I) 的新的联苯基噻唑甲酰胺具有非常好的杀微生物特性，可用于防治不想要的微生物以及用于植物保护领域和材料保护领域。

[0073] 本发明的化合物可以不同可能的异构体形式的混合物存在，所述异构体形式特别是立体异构体，例如 E 型异构体和 Z 型异构体、苏型异构体和赤型异构体，以及旋光异构体；然而它们也可以互变异构体形式存在。本专利要求保护的范围包括 E 型异构体和 Z 型异构体、苏型异构体和赤型异构体、旋光异构体以及这些异构体的任何混合物、以及可能的互变异构体形式。

[0074] 式 (I) 宽泛地定义了本发明的联苯基噻唑甲酰胺。下文具体说明了以上及以下结构式的优选基团定义。这些定义对式 (I) 最终产物以及对所有的中间产物同样有效。

[0075] R^1 优选代表氢、氟、氯、溴、氨基、C_1-C_4 烷基氨基、二 (C_1-C_4 烷基）氨基、氰基、甲基、乙基或者具有 1 至 5 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_2 卤代烷基。

[0076] R^1 特别优选代表氢、氟、氯、溴、氨基、甲基氨基、二甲基氨基、氰基、甲基、乙基、三氟甲基、二氟甲基、二氟一氯甲基或三氯甲基。

[0077] R^1 **极特别优选**代表氢、氟、氯、溴、氨基、甲基氨基、二甲基氨基、甲基、三氟甲基、二氟甲基或三氯甲基。

[0078] R^1 **尤其优选**代表氨基、甲基氨基、二甲基氨基、氯、甲基或三氟甲基。

[0079] R^2 优选代表氟、氯、溴、甲基、乙基或者具有 1 至 5 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_2 卤代烷基。

[0080] R^2 特别优选代表氟、氯、溴、甲基、乙基、1- 氟乙基、三氟甲基、二氟甲基、二氟一氯甲基或三氯甲基。

[0081] R^2 **极特别优选**代表氟、氯、溴、甲基、三氟甲基、二氟甲基或三氯甲基。

[0082] R^2 **尤其优选**代表甲基、三氟甲基或二氟甲基。

[0083] R^3 优选代表氢、C_1-C_6 烷基、C_1-C_4 烷基亚磺酰基、C_1-C_4 烷基磺酰基、C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷硫基、C_1-C_4 卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4 卤代烷基磺酰基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，甲酰基、甲酰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷基）羰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷氧基）羰基 -C_1-C_3 烷基，各自具有 1 至 13 个氟、氯和 / 或溴原子的卤代 -(C_1-C_3 烷基）羰基 -C_1-C_3 烷基、卤代 -(C_1-C_3 烷氧基）羰基 -C_1-C_3 烷基，

[0084] (C_1-C_6 烷基）羰基、(C_1-C_4 烷氧基）羰基、(C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基）羰基、(C_3-C_6

环烷基）羰基，各自具有1至9个氟、氯和/或溴原子的（C_1-C_4卤代烷基）羰基、（C_1-C_4卤代烷氧基）羰基、（卤代-C_1-C_3烷氧基-C_1-C_3烷基）羰基、（C_3-C_6卤代环烷基）羰基，或-C(=O)C(=O)R^6、-$CONR^7R^8$或-$CH_2NR^9R^{10}$。

[0085] R^3特别优选代表氢、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、戊基或己基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正丙基亚磺酰基或异丙基亚磺酰基、正丁基亚磺酰基、异丁基亚磺酰基、仲丁基亚磺酰基或叔丁基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正丙基磺酰基或异丙基磺酰基、正丁基磺酰基、异丁基磺酰基、仲丁基磺酰基或叔丁基磺酰基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基、三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、二氟甲硫基、二氟一氯甲硫基、三氟甲硫基、三氟甲基亚磺酰基、三氟甲基磺酰基、三氟甲氧基甲基，甲酰基、-CH_2-CHO、-$(CH_2)_2$-CHO、-CH_2-CO-CH_3、-CH_2-CO-CH_2CH_3、-CH_2-CO-$CH(CH_3)_2$、-$(CH_2)_2$-CO-CH_3、-$(CH_2)_2$-CO-CH_2CH_3、-$(CH_2)_2$-CO-$CH(CH_3)_2$、-CH_2-CO_2CH_3、-CH_2-$CO_2CH_2CH_3$、-CH_2-$CO_2CH(CH_3)_2$、-$(CH_2)_2$-CO_2CH_3、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH_2CH_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH(CH_3)_2$、-CH_2-CO-CF_3、-CH_2-CO-CCl_3、-CH_2-CO-CH_2CF_3、-CH_2-CO-CH_2CCl_3、-$(CH_2)_2$-CO-CH_2CF_3、-$(CH_2)_2$-CO-CH_2CCl_3、-CH_2-$CO_2CH_2CF_3$、-CH_2-$CO_2CF_2CF_3$、-CH_2-$CO_2CH_2CCl_3$、-CH_2-$CO_2CCl_2CCl_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH_2CF_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CF_2CF_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH_2CCl_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CCl_2CCl_3$，甲基羰基、乙基羰基、正丙基羰基、异丙基羰基、叔丁基羰基、甲氧基羰基、乙氧基羰基、叔丁氧基羰基、环丙基羰基，三氟甲基羰基、三氟甲氧基羰基，或-C(=O)C(=O)R^6、-$CONR^7R^8$或-$CH_2NR^9R^{10}$。

[0086] R^3**极特别优选**代表氢、甲基、甲氧基甲基、甲酰基、-CH_2-CHO、-$(CH_2)_2$-CHO、-CH_2-CO-CH_3、-CH_2-CO-CH_2CH_3、-CH_2-CO-$CH(CH_3)_2$、-C(=O)CHO、-C(=O)C(=O)CH_3、-C(=O)C(=O)CH_2OCH_3、-C(=O)CO_2CH_3、-C(=O)$CO_2CH_2CH_3$。

[0087] R^4优选代表氟，其中氟特别优选在各化合物的3-位或5-位，**极特别优选**在5-位[见例如式(I)]。

[0088] R^4优选代表氯，其中氯特别优选在各化合物的4-位或5-位，**极特别优选**在4-位，还**极特别优选**在5-位。

[0089] R^4还优选代表三氟甲基，其中三氟甲基特别优选在各化合物的4-位或5-位。

[0090] R^4还优选代表甲氧基或甲硫基，其中甲氧基或甲硫基特别优选在各化合物的3-位或5-位，**极特别优选**在5-位。

[0091] R^4还优选代表甲基，其中甲基特别优选在各化合物的4-位或5-位，**极特别优选**在4-位。

[0092] R^4还优选代表异丙基，其中异丙基特别优选在各化合物的4-位或5-位，**极特别优选**在5-位。

[0093] m优选代表1。

[0094] m还优选代表2，其中R^4基团可相同或不同。

[0095] R^5优选代表氟、氯、溴、氰基、硝基、氨基、羟基、甲酰基、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、乙烯基、烯丙基、甲氧基、乙氧基、正丙氧基或异丙氧基、乙烯氧基、烯丙氧基、甲硫基、乙硫基、正丙硫基或异丙硫基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正丙基亚磺酰基或异丙基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正丙基磺酰基或异丙基

磺酰基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、甲硫基甲基、甲硫基乙基、乙硫基甲基、乙硫基乙基、甲氨基、乙氨基、异丙氨基、二甲氨基、二乙氨基、二丙氨基、二异丙氨基、甲基羰基、乙基羰基、甲基氨基羰基、二甲基氨基羰基、甲基羰基氨基、甲基羰基甲基氨基、环丙基、环丙基氧基、三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、二氟甲氧基、三氟甲氧基、二氟一氯甲氧基、三氟乙氧基、二氟甲硫基、二氟一氯甲硫基或三氟甲硫基。

[0096] R^5 特别优选代表氟、氯、溴、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、甲氧基、乙氧基、正丙氧基或异丙氧基、甲硫基、乙硫基、正丙硫基或异丙硫基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正丙基磺酰基或异丙基磺酰基、甲氧基甲基、甲硫基甲基、甲氨基、乙氨基、异丙氨基、二甲氨基、二乙氨基、二异丙氨基、甲基羰基、甲基氨基羰基、二甲基氨基羰基、甲基羰基氨基、环丙基、三氟甲基、三氟乙基、二氟甲氧基、三氟甲氧基、二氟甲硫基或三氟甲硫基。

[0097] R^5 **极特别优选**代表氟、氯、溴、甲基、异丙基、叔丁基、甲氧基、异丙氧基、甲硫基、异丙硫基、甲氧基甲基、甲硫基甲基、甲氨基、二甲氨基、甲基氨基羰基、甲基羰基氨基、环丙基、三氟甲基、三氟乙基、二氟甲氧基、三氟甲氧基、二氟甲硫基或三氟甲硫基。

[0098] R^5 **尤其优选**代表氟、氯、溴、甲基、三氟甲基、二氟甲氧基或三氟甲氧基。

[0099] R^6 优选代表氢、C_1-C_6 烷基、C_1-C_4 烷氧基、C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷氧基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 卤代环烷基。

[0100] R^6 特别优选代表氢、甲基、乙基、正丙基或异丙基、叔丁基、甲氧基、乙氧基、正丙氧基或异丙氧基、叔丁氧基、甲氧基甲基、环丙基，三氟甲基、三氟甲氧基。

[0101] R^7 和 R^8 彼此独立地优选代表氢、C_1-C_6 烷基、C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 卤代环烷基。

[0102] R^7 和 R^8 还和与它们相连的氮原子一起优选形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环，所述饱和杂环可被相同或不同的选自卤素和 C_1-C_4 烷基的取代基单取代至四取代，其中所述杂环还可再另外含有 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫或 NR^{11} 的杂原子。

[0103] R^7 和 R^8 彼此独立地特别优选代表氢、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基，三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、三氟甲氧基甲基。

[0104] R^7 和 R^8 还和与它们相连的氮原子一起特别优选形成选自吗啉、硫代吗啉或哌嗪的饱和杂环，所述杂环可被相同或者不同的氟、氯、溴或甲基单取代至四取代，其中哌嗪可在第二个氮原子上被 R^{11} 取代。

[0105] R^9 和 R^{10} 彼此独立地优选代表氢、C_1-C_6 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_3-C_6 卤代环烷基。

[0106] R^9 和 R^{10} 还与它们所连接的氮原子一起优选形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环，所述杂环可被相同或者不同的卤素或 C_1-C_4 烷基单取代至四取代，其中所述杂环还可再另外包含 1 或 2 个不相邻的选自氧、硫和 NR^{11} 的杂原子。

[0107] R^9 和 R^{10} 彼此独立地特别优选代表氢、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、

环己基，三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、三氟甲氧基甲基。

[0108] R^9 和 R^{10} 还与它们所连接的氮原子一起特别优选形成选自吗啉、硫代吗啉或哌嗪的饱和杂环，所述杂环可被相同或者不同的氟、氯、溴或甲基单取代至四取代，其中哌嗪可在第二个氮原子上被 R^{11} 取代。

[0109] R^{11} 优选代表氢或 C_1-C_4 烷基。

[0110] R^{11} 特别优选代表氢、甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基。

[0111] 若 R^3 代表氢并且 R^4 代表氟并且 m 代表 1，则特别地排除这样的各种式 (I) 化合物，其中

[0112] R^1 代表氢或甲基，

[0113] R^2 代表氯、甲基、二氟甲基或三氟甲基，

[0114] R^5 代表氟、氯、溴、甲基、三氟甲基、甲氧基、异丙氧基或甲硫基。

[0115] 优选这样的式 (I) 化合物，其中所有基团各自具有上述优选的定义。

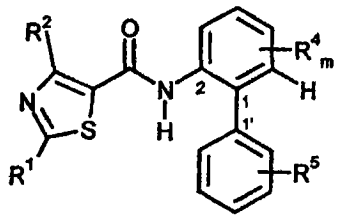
[0116] 特别优选这样的式 (I) 化合物，其中所有基团各自具有上述特别优选的定义。

[0117] 极特别优选这样的式 (I) 化合物，其中所有基团各自具有上述极特别优选的定义。

[0118] 优选以下各组的新的甲酰胺，并且各组应理解为上述式 (I) 化合物的各自的子集：

[0119] 第 1 组：式 (I-a) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0120]



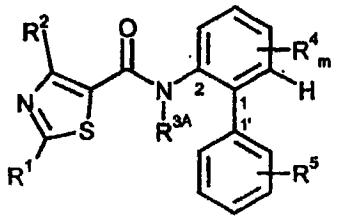
(I-a)

，

[0121] 其中 R^1、R^2、R^4、m 和 R^5 具有上述含义。

[0122] 第 2 组：式 (I-b)) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0123]



(I-b)

，

[0124] 其中 R^1、R^2、R^{3A}、R^4、m 和 R^5 具有上述含义。

[0125] R^{3A} 优选代表 C_1-C_6 烷基、C_1-C_4 烷基亚磺酰基、C_1-C_4 烷基磺酰基、C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_6 环烷基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基、C_1-C_4 卤代烷硫基、C_1-C_4 卤代烷基亚磺酰基、C_1-C_4 卤代烷基磺酰基、卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基、C_3-C_8 卤代环烷基，甲酰基、甲酰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷基) 羰基 -C_1-C_3 烷基、(C_1-C_3 烷氧基) 羰基 -C_1-C_3 烷基，各自具有 1 至 13 个氟、氯和 / 或溴原子的卤代 -(C_1-C_3 烷基) 羰基 -C_1-C_3 烷

基、卤代 -(C_1-C_3 烷氧基) 羰基 -C_1-C_3 烷基，

[0126] (C_1-C_6 烷基) 羰基、(C_1-C_4 烷氧基) 羰基、(C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基) 羰基、(C_3-C_6 环烷基) 羰基，各自具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 (C_1-C_4 卤代烷基) 羰基、(C_1-C_4 卤代烷氧基) 羰基、(卤代 -C_1-C_3 烷氧基 -C_1-C_3 烷基) 羰基、(C_3-C_6 卤代环烷基) 羰基，或 -C(=O)C(=O)R^6、-CONR^{7}R^8 或 -CH_2NR^{9}R^{10}。

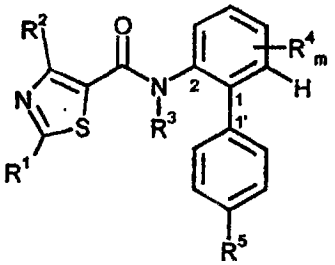
[0127] R^{3A} 特别优选代表甲基、乙基、正丙基或异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基或叔丁基、戊基或己基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正丙基亚磺酰基或异丙基亚磺酰基、正丁基亚磺酰基、异丁基亚磺酰基、仲丁基亚磺酰基或叔丁基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正丙基磺酰基或异丙基磺酰基、正丁基磺酰基、异丁基磺酰基、仲丁基磺酰基或叔丁基磺酰基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基、三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、二氟甲硫基、二氟一氯甲硫基、三氟甲硫基、三氟甲基亚磺酰基、三氟甲基磺酰基、三氟甲氧基甲基，甲酰基、-CH_2-CHO、-$(CH_2)_2$-CHO、-CH_2-CO-CH_3、-CH_2-CO-CH_2CH_3、-CH_2-CO-$CH(CH_3)_2$、-$(CH_2)_2$-CO-CH_3、-$(CH_2)_2$-CO-CH_2CH_3、-$(CH_2)_2$-CO-$CH(CH_3)_2$、-CH_2-CO_2CH_3、-CH_2-$CO_2CH_2CH_3$、-CH_2-$CO_2CH(CH_3)_2$、-$(CH_2)_2$-CO_2CH_3、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH_2CH_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH(CH_3)_2$、-CH_2-CO-CF_3、-CH_2-CO-CCl_3、-CH_2-CO-CH_2CF_3、-CH_2-CO-CH_2CCl_3、-$(CH_2)_2$-CO-CH_2CF_3、-$(CH_2)_2$-CO-CH_2CCl_3、-CH_2-$CO_2CH_2CF_3$、-CH_2-$CO_2CF_2CF_3$、-CH_2-$CO_2CH_2CCl_3$、-CH_2-$CO_2CCl_2CCl_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH_2CF_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CF_2CF_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CH_2CCl_3$、-$(CH_2)_2$-$CO_2CCl_2CCl_3$，

[0128] 甲基羰基、乙基羰基、正丙基羰基、异丙基羰基、叔丁基羰基、甲氧基羰基、乙氧基羰基、叔丁氧基羰基、环丙基羰基，三氟甲基羰基、三氟甲氧基羰基，或 -C(=O)C(=O)R^6、-CONR^{7}R^8 或 -CH_2NR^{9}R^{10}。

[0129] R^{3A} **极特别优选**代表甲基、甲氧基甲基、甲酰基、-CH_2-CHO、-$(CH_2)_2$-CHO、-CH_2-CO-CH_3、-CH_2-CO-CH_2CH_3、-CH_2-CO-$CH(CH_3)_2$、-C(=O)CHO、-C(=O)C(=O)CH_3、-C(=O)C(=O)CH_2OCH_3、-C(=O)CO_2CH_3、-C(=O)$CO_2CH_2CH_3$。

[0130] 第 3 组 :式 (I-c) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0131]

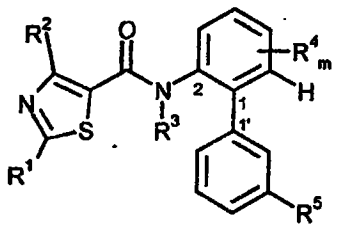


(I-c)

[0132] 其中 R^1、R^2、R^3、R^4、m 和 R^5 具有上述含义。

[0133] 第 4 组 :式 (I-d) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0134]

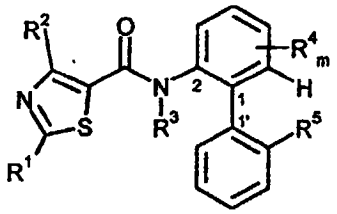


(I-d)

[0135] 其中 R^1、R^2、R^3、R^4、m 和 R^5 具有上述含义。

[0136] 第 5 组 :式 (I-e) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0137]



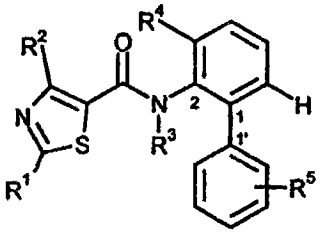
(I-e)

,

[0138] 其中 R^1、R^2、R^3、R^4、m 和 R^5 具有上述含义。

[0139] 第 6 组 :式 (I-f) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0140]



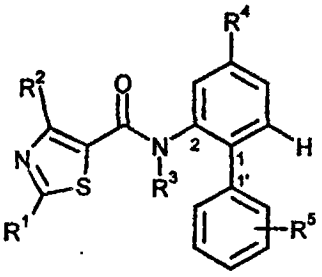
(I-f)

,

[0141] 其中 R^1、R^2、R^3、R^4 和 R^5 具有上述含义。

[0142] 第 7 组 :式 (I-g) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0143]



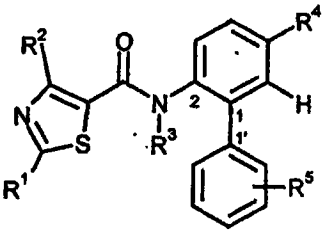
(I-g)

,

[0144] 其中 R^1、R^2、R^3、R^4 和 R^5 具有上述含义。

[0145] 第 9 组 :式 (I-h) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0146]



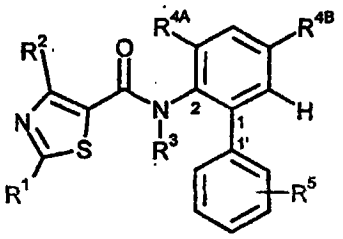
(I-h)

,

[0147] 其中 R^1、R^2、R^3、R^4 和 R^5 具有上述含义。

[0148] 第 9 组 :式 (I-i) 的联苯基噻唑甲酰胺

[0149]



(I-i)

[0150] 其中 R^1、R^2、R^3 和 R^5 具有上述含义，并且 R^{4A} 和 R^{4B} 彼此独立地具有 R^4 的含义。

[0151] 强调这样的式 (I) 化合物（即第 1 至 9 组的化合物），其中 R^1 代表甲基。

[0152] 强调这样的式 (I) 化合物（即第 1 至 9 组的化合物），其中 R^2 代表二氟甲基或三氟甲基。

[0153] 强调这样的式 (I) 化合物（即第 1 至 9 组的化合物），其中 R^4 代表氯、溴、C_1-C_4 烷基、C_1-C_4 烷氧基、C_1-C_4 烷硫基或者具有 1 至 9 个氟、氯和 / 或溴原子的 C_1-C_4 卤代烷基。

[0154] 强调这样的式 (I) 化合物（即第 1 至 9 组的化合物），其中 R^4 代表氯、甲基、三氟甲基、甲氧基或甲硫基，尤其代表氯。

[0155] 强调这样的式 (I) 化合物（即第 1 至 9 组的化合物），其中 R^3 代表甲酰基。

[0156] 此外，还强调这样的式 (I) 化合物（即第 1 至 9 组的化合物），其中 R^3 代表 -C(=O)C(=O)R^6，其中 R^6 具有上述含义。

[0157] 饱和或不饱和的烃基如烷基或烯基——如果可能，包括与杂原子的组合如烷氧基中——均可以各自为直链的或带有支链的。

[0158] 可被取代的基团可为单取代的或多取代的，且为多取代时，取代基可以相同或不同。例如，二烷基氨基的定义还包括被烷基不对称取代的氨基，例如，甲基乙基氨基。

[0159] 被卤素取代的基团，例如，卤代烷基，可为单卤代或多卤代的。为多卤代时，卤素原子可以相同或不同。在这种情况下，卤素代表氟、氯、溴和碘，特别是氟、氯和溴。

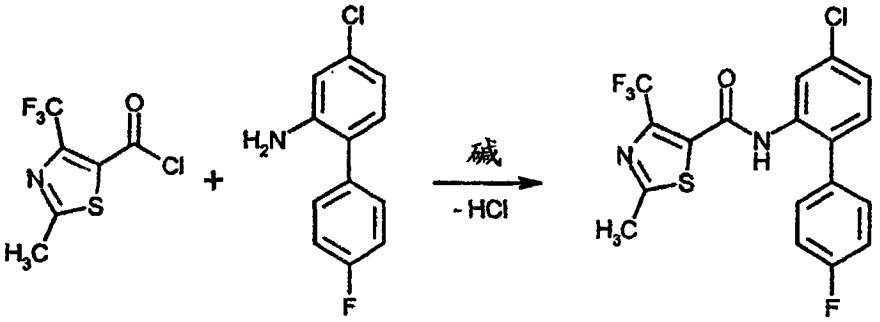
[0160] 上述宽泛的定义和优选的基团定义和说明可以任何方式在各组和优选组之间相互组合。它们对最终产物、前体和中间产物均有效。特别地，在第 1 至 6 组中提出的化合物可与宽泛的、优选的、特别优选的等定义相组合，其中优选定义之间的所有各组合也都是可能的。

[0161] 对本发明的制备式 (I) 联苯基噻唑甲酰胺及中间产物的方法的说明

[0162] 方法 (a)

[0163] 若采用 2- 甲基 -4-(三氟甲基)-1,3- 噻唑 -5- 碳酰氯和 4- 氯 -4'- 氟联苯基 -2- 胺作原料，则本发明的方法 (a) 可通过以下反应路线图示例表示：

[0164]



[0165] 式 (II) 宽泛地定义了实施本发明方法 (a) 所需的羧酸衍生物原料。在式 (II) 中，

R^1 和 R^2 优选、特别优选和极特别优选代表上述关于本发明式 (I) 化合物的叙述中作为这些基团的优选、特别优选和极特别优选含义。X^1 优选代表氯、溴或羟基。

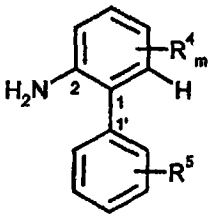
[0166] 式 (II) 的羧酸衍生物是已知的和 / 或可根据已知的方法制备 (见 WO 03/066609、WO 03/066610、EP-A 0 545 099、EP-A 0 589 301、EP-A 0 589 313 和 US3,547,917)。

[0167] 式 (III) 宽泛地定义了实施本发明方法 (a) 所需的另一种原料联苯胺。在式 (III) 中,R^3、R^4、m 和 R^5 优选、特别优选和极特别优选具有上述关于本发明式 (I) 化合物的叙述中作为这些基团和符号的优选、特别优选和极特别优选含义。

[0168] 式 (III) 的联苯胺部分已知或可根据已知的方法获得 (见例如 WO03/070705、WO 99/09013、WO 97/08148 和 JP 2001-302605)。

[0169] 还可先制备出式 (III-a) 的联苯胺

[0170]



(III-a)

[0171] 其中 R^{3A}、R^4、m 和 R^5 具有上述含义。然后,在碱的存在下并且在稀释剂的存在下,使其与式 (VIII) 的卤化物反应

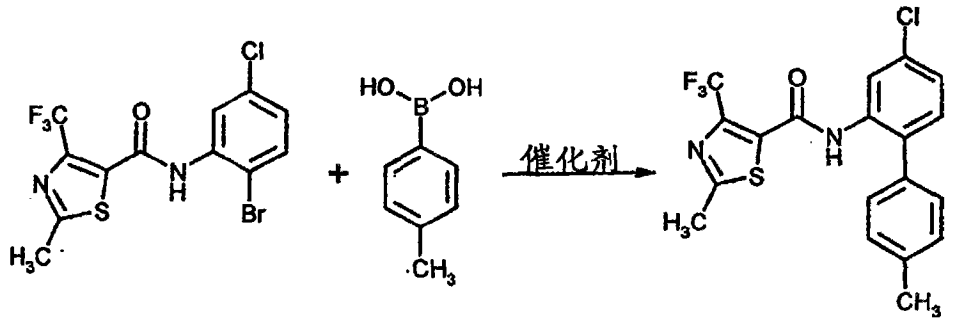
[0172] R^{3A}—X^4 (VIII),

[0173] 其中 R^{3A} 和 X^4 具有上述含义。[相应地,适用本发明 (e) 的反应条件。]

[0174] 方法 (b)

[0175] 若采用 N-(2- 溴 -5- 氯苯基)-2- 甲基 -4-(三氟甲基)-1,3- 噻唑 -5- 甲酰胺和 (4- 甲基苯基) 硼酸作为原料并采用催化剂,则本发明方法 (b) 的过程可由下述反应路线图示例表示 :

[0176]



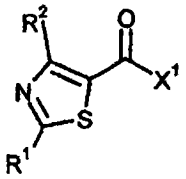
[0177] 式 (IV) 宽泛地定义了实施本发明方法 (b) 所需的原料卤代甲酰胺。在式 (IV) 中,R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 优选、特别优选和极特别优选具有上述关于本发明式 (I) 化合物的叙述中作为这些基团和符号的优选、特别优选和极特别优选含义。X^2 代表溴或碘。

[0178] 式 (IV) 的卤代甲酰胺尚未知。作为新的化合物,它们为本专利申请的另一主题。所述卤代甲酰胺可通过以下反应获得 :

[0179] (f) 如果合适在催化剂的存在下,如果合适在缩合剂的存在下,如果合适在酸结合剂的存在下,并且如果合适在稀释剂的存在下,式 (II) 的羧酸衍生物与式 (IX) 的卤代苯胺

反应，

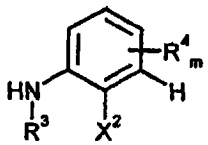
[0180]



(II)

[0181] 其中 R^1、Hal 和 X^1 具有上述含义，

[0182]



(IX)

[0183] 其中 R^3、R^4、m 和 X^2 具有上述含义。

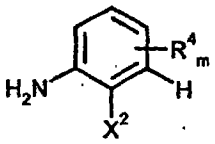
[0184] 实施本发明方法 (f) 所需的原料式 (II) 羧酸衍生物已在本发明方法 (a) 部分描述。

[0185] 式 (IX) 宽泛地定义了实施本发明方法 (f) 所需的另一种原料卤代苯胺。在式 (IX) 中，R^3、R^4、m 和 X^2 优选、特别优选和极特别优选具有就本发明式 (I) 化合物和式 (IV) 前体进行描述时所示的这些基团和符号的优选、特别优选和极特别优选的含义。

[0186] 式 (IX) 的卤代苯胺是市售的合成化学品，或者可通过已知方法获得。

[0187] 还可先制备出式 (IX-a) 的卤代苯胺

[0188]



(IX-a)

，

[0189] 其中 R^4 和 X^2 具有上述含义。随后在碱的存在下并且在稀释剂的存在下，使其与式 (VIII) 的卤化物反应

[0190] R^{3A}—X^4 (VIII)，

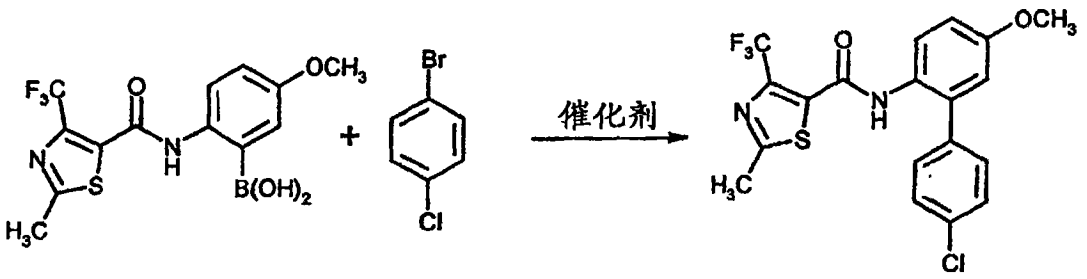
[0191] 其中 R^{3A} 和 X^4 具有上述含义。[相应地，适用本发明 (i) 的反应条件。]

[0192] 式 (V) 宽泛地定义了实施本发明方法 (b) 所需的另一种原料硼酸衍生物。在式 (V) 中，R^5 优选、特别优选和极特别优选具有就本发明式 (I) 化合物进行描述时所示的该基团的优选、特别优选和极特别优选的含义。G^1 和 G^2 各自代表氢，或者一起代表四甲基亚乙基。式 (V) 的硼酸衍生物是已知的，并且 / 或者可通过已知方法制备 (见，例如 WO01/90084、JP-A2001-302605 和 US5,633,218)。

[0193] 方法 (c)

[0194] 若采用 [5- 甲氧基 -2-({[2- 甲基 -4-(三氟甲基)-1,3- 噻唑 -5- 基] 羰基) 氨基) 苯基] 硼酸和 1- 溴 -4- 氯苯作为原料并采用催化剂，则本发明方法 (c) 的过程可由下述反应路线图示例表示 ：

[0195]

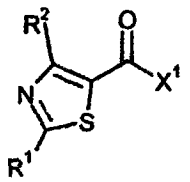


[0196] 式 (VI) 宽泛地定义了实施本发明方法 (c) 所需的原料硼酸衍生物。在式 (VI) 中，R^1、R^2、R^3、R^4 和 m 优选、特别优选和极特别优选具有就上述关于本发明式 (I) 化合物的叙述时所示的作为这些基团和符号的优选、特别优选和极特别优选含义。G^3 和 G^4 各自代表氢，或者一起代表四甲基亚乙基。

[0197] 式 (VI) 的硼酸衍生物尚未知。作为新的化合物，它们为本专利申请的另一主题。所述硼酸衍生物可通过以下反应获得：

[0198] (g) 如果合适在催化剂的存在下，如果合适在缩合剂的存在下，如果合适在酸结合剂的存在下，并且如果合适在稀释剂的存在下，式 (II) 的羧酸衍生物与式 (X) 的苯胺硼酸衍生物反应，

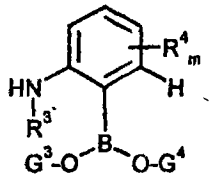
[0199]



(II)，

[0200] 其中 R^1、R^2 和 X^1 具有上述含义，

[0201]



(X)，

[0202] 其中 R^3、R^4、m、G^3 和 G^4 具有上述含义。

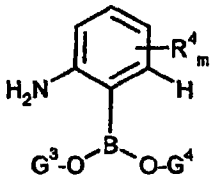
[0203] 实施本发明方法 (g) 所需的原料式 (II) 羧酸衍生物已在本发明方法 (a) 部分描述。

[0204] 式 (X) 宽泛地定义了实施本发明方法 (g) 所需的另一种原料苯胺硼酸衍生物。在式 (X) 中，R^3、R^4 和 m 优选、特别优选和极特别优选具有就本发明式 (I) 化合物进行描述时所示的这些基团和符号的优选、特别优选和极特别优选的含义。G^3 和 G^4 各自代表氢，或者一起代表四甲基亚乙基。

[0205] 式 (X) 的苯胺硼酸衍生物是已知的合成化学品，或者可通过已知方法获得。

[0206] 还可先制备出式 (X-a) 的苯胺硼酸衍生物

[0207]



(X-a)

，

[0208] 其中 R^4、m、G^3 和 G^4 具有上述含义。随后在碱的存在下并且在稀释剂的存在下，使其与式 (VIII) 的卤化物反应

[0209] R^{3A}—X^4 (VIII)

[0210] 其中 R^{3A} 和 X^4 具有上述含义。[相应地，适用本发明 (i) 的反应条件。]

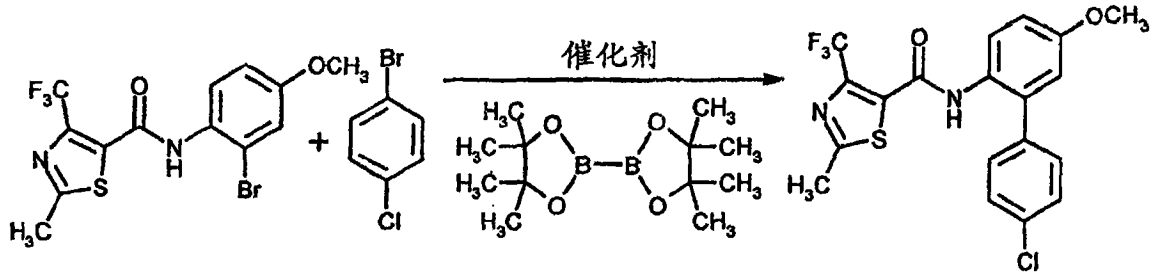
[0211] 式 (VII) 宽泛地定义了实施本发明方法 (c) 所需的另一种原料苯基衍生物。在式 (VII) 中，R^5 优选、特别优选和极特别优选具有就本发明式 (I) 化合物进行描述时所示的该基团和符号的优选、特别优选和极特别优选的含义。X^3 代表氯、溴、碘或三氟甲基磺酸酯基。

[0212] 式 (VII) 的苯基衍生物是已知的合成化学品。

[0213] 方法 (d)

[0214] 若采用 N-(2- 溴 -4- 甲氧基苯基)-2- 甲基 -4-(三氟甲基)-1,3- 噻唑 -5- 甲酰胺和 1- 溴 -4- 氯苯作为原料，并采用催化剂和 4,4,4',4',5,5,5',5'- 八甲基 -2,2'- 双 -1,3,2- 二氧杂硼杂环戊烷，则本发明方法 (d) 的过程可由下述反应路线图示例表示 ：

[0215]



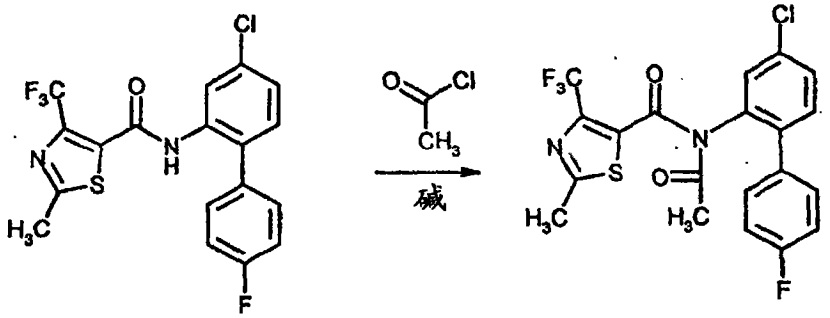
[0216] 实施本发明方法 (d) 所需的原料式 (IV) 卤代甲酰胺以及式 (VII) 苯基衍生物已在本发明的方法 (b) 和 (c) 部分中描述。

[0217] 实施本发明方法 (d) 另外所需的 4,4,4',4',5,5,5',5'- 八甲基 -2,2'- 双 -1,3,2- 二氧杂硼杂环戊烷是市售的合成化学品。

[0218] 方法 (e)

[0219] 若使用 N-(4- 氯 -4'- 氟联苯 -2- 基)-2- 甲基 -4-(三氟甲基)-1,3- 噻唑 -5- 甲酰胺和乙酰氯作为原料，则本发明方法 (e) 的过程可由下述反应路线图示例表示 ：

[0220]



[0221] 式 (I-a) 宽泛地定义了实施本发明方法 (e) 所需的原料联苯基噻唑甲酰胺。在式

(I-a) 中，R^1、R^2、R^4、R^5 和 n 优选、特别优选和极特别优选具有就本发明式 (I) 化合物进行描述时所示的这些基团和符号的优选、特别优选和极特别优选的含义。

[0222] 式 (I-a) 化合物是本发明所涉及的化合物，并且可通过方法 (a) 至 (d) 制备。

[0223] 式 (VIII) 宽泛地定义了实施本发明方法 (e) 所需的另一种原料卤化物。在式 (VIII) 中，R^{3A} 优选、特别优选和极特别优选代表上述式 (I-b) 化合物所示的该基团的优选、特别优选和极特别优选的含义。X^4 优选代表氯、溴或碘。

[0224] 式 (VIII) 的卤化物是已知的。

[0225] 反应条件

[0226] 所有惰性有机溶剂均可考虑用作实施本发明方法 (a)、(f) 和 (g) 的稀释剂。优选的实例为：脂族烃、脂环烃或芳香烃，例如石油醚、己烷、庚烷、环己烷、甲基环己烷、苯、甲苯、二甲苯或萘烷；卤化烃，例如氯苯、二氯苯、二氯甲烷、氯仿、四氯化碳、二氯乙烷或三氯乙烷；醚，例如二乙醚、二异丙醚、甲基叔丁基醚、甲基叔戊基醚、二噁烷、四氢呋喃、1,2- 二甲氧基乙烷、1,2- 二乙氧基乙烷或茴香醚；酮，例如丙酮、丁酮、甲基异丁基酮或环己酮；腈，例如乙腈、丙腈、正丁腈、异丁腈或苄腈；酰胺，例如 N,N- 二甲基甲酰胺、N,N- 二甲基乙酰胺、N- 甲基甲酰苯胺、N- 甲基吡咯烷酮或六甲基磷酰三胺；它们与水或纯水的混合物。

[0227] 如果需要，本发明方法 (a)、(f) 和 (g) 可在适宜的酸受体存在下实施。所有的常规无机碱或有机碱均可考虑用作酸受体。优选的实例为：碱土金属或碱金属的氢化物、氢氧化物、氨基化物、醇盐、乙酸盐、碳酸盐或碳酸氢盐，例如，氢化钠、氨基钠、二异丙基氨基锂、甲醇钠、乙醇钠、叔丁醇钾、氢氧化钠、氢氧化钾、乙酸钠、碳酸钠、碳酸钾、碳酸氢钾、碳酸氢钠或碳酸铵；以及叔胺，例如三甲胺、三乙胺、三丁胺、N,N- 二甲基苯胺、N,N- 二甲基苄胺、吡啶、N- 甲基哌啶、N- 甲基吗啉、N,N- 二甲基氨基吡啶、二氮杂双环辛烷 (DABCO)、二氮杂双环壬烯 (DBN) 或者二氮杂双环十一碳烯 (DBU)。

[0228] 如果需要，本发明方法 (a)、(f) 和 (g) 可在缩合剂存在下实施。所有常用缩合剂均可考虑用作缩合剂。实例为：酰基卤形成剂，例如光气、三溴化磷、三氯化磷、五氯化磷、磷酰氯或亚硫酰氯；酸酐形成剂，例如氯甲酸乙酯、氯甲酸甲酯、氯甲酸丙酯、氯甲酸丁酯或甲磺酰氯；碳化二亚胺，例如 N,N'- 二环己基碳化二亚胺 (DCC)；或者其它的常规缩合剂，例如五氧化二磷、多磷酸、N,N'- 羰基二咪唑、2- 乙氧基 -N- 乙氧基羰基 -1,2- 二氢喹啉 (EEDQ)、三苯基膦 / 四氯化碳或溴代三吡咯烷鏻六氟磷酸盐。

[0229] 如果需要，本发明方法 (a)、(f) 和 (g) 可在催化剂存在下实施。实例为：4- 二甲基氨基吡啶、1- 羟基苯并三唑或二甲基甲酰胺。

[0230] 当实施本发明方法 (a)、(f) 和 (g) 时，反应温度可在较宽范围内变化。通常，在 0℃至 150℃，优选 0℃至 80℃的温度下实施。

[0231] 为了实施本发明方法 (a) 以制备式 (I) 的化合物，每 Mol 的式 (II) 羧酸衍生物通常使用 0.8 至 15Mol，优选 0.8 至 8Mol 的式 (III) 苯胺衍生物。

[0232] 为了实施本发明方法 (f) 以制备式 (IV) 的化合物，每 Mol 的式 (II) 羧酸衍生物通常使用 0.8 至 15mol，优选 0.8 至 8mol 的式 (IX) 卤代苯胺。

[0233] 为了实施本发明方法 (g) 以制备式 (VI) 的化合物，每 Mol 的式 (II) 羧酸衍生物通常使用 0.8 至 15mol，优选 0.8 至 8mol 的式 (X) 苯胺硼酸衍生物。

[0234] 所有惰性有机溶剂均可考虑作为实施方法 (b)、(c) 和 (d) 的稀释剂。优选实例为：

脂族烃、脂环烃或芳香烃，例如石油醚、己烷、庚烷、环己烷、甲基环己烷、苯、甲苯、二甲苯或萘烷；醚，例如二乙醚、二异丙醚、甲基叔丁基醚、甲基叔戊基醚、二噁烷、四氢呋喃、1,2- 二甲氧基乙烷、1,2- 二乙氧基乙烷或茴香醚；腈，例如乙腈、丙腈、正丁腈、异丁腈或苄腈；酰胺，例如 N,N- 二甲基甲酰胺、N,N- 二甲基乙酰胺、N- 甲基甲酰苯胺、N- 甲基吡咯烷酮或六甲基磷酰三胺；酯，例如乙酸甲酯或乙酸乙酯；亚砜，例如二甲基亚砜；砜，例如环丁砜；醇，例如甲醇、乙醇、正丙醇、异丙醇、正丁醇、异丁醇、仲丁醇或叔丁醇、乙二醇、1,2- 丙二醇、乙氧基乙醇、甲氧基乙醇、二甘醇单甲基醚、二甘醇单乙基醚；它们与水或纯水的混合物。

[0235] 当实施本发明方法 (b)、(c) 和 (d) 时，反应温度可在较宽范围内变化。通常，在 0℃至 180℃，优选 20℃至 150℃的温度下实施。

[0236] 如果需要，本发明方法 (b)、(c) 和 (d) 可在适宜的酸受体存在下实施。所有的常规无机碱或有机碱均可考虑用作酸受体。优选实例为：碱土金属或碱金属的氢化物、氢氧化物、氨基化物、醇盐、乙酸盐、氟化物、磷酸盐、碳酸盐或碳酸氢盐，例如，氢化钠、氨基钠、二异丙基氨基锂、甲醇钠、乙醇钠、叔丁醇钾、氢氧化钠、氢氧化钾、乙酸钠、磷酸钠、磷酸钾、氟化钾、氟化铯、碳酸钠、碳酸钾、碳酸氢钾、碳酸氢钠或碳酸铯；以及叔胺，例如三甲胺、三乙胺、三丁胺、N,N- 二甲基苯胺、N,N- 二甲基苄胺、吡啶、N- 甲基哌啶、N- 甲基吗啉、N,N- 二甲基氨基吡啶、二氮杂双环辛烷 (DABCO)、二氮杂双环壬烯 (DBN) 或者二氮杂双环十一碳烯 (DBU)。

[0237] 如果需要，本发明方法 (b)、(c) 和 (d) 在催化剂存在下实施，所述催化剂例如钯盐或钯络合物。优选实例为：氯化钯、乙酸钯、四（三苯基膦）合钯、二氯化二（三苯基膦）合钯或 (1,1'- 二（二苯基膦基）二茂铁氯化钯 (II))。

[0238] 如果向反应中分别加入钯盐和络合配体，则反应混合物中也可产生钯络合物，所述络合配体例如，三乙基膦 (triethylphosphane)、三叔丁基膦、三环己基膦、2-（二环己基膦）联苯、2-（二叔丁基膦）联苯、2-（二环己基膦）-2'-(N,N- 二甲基氨基）联苯、三苯基膦、三邻甲苯基膦、3-（二苯基膦）苯磺酸钠、三 -2-（甲氧基苯基）膦、2,2'- 双 -（二苯基膦）-1,1'- 联萘、1,4- 双 -（二苯基膦）丁烷、1,2- 双 -（二苯基膦）乙烷、1,4- 双 -（二环己基膦）丁烷、1,2- 双 -（二环己基膦）乙烷、2-（二环己基膦）-2'-(N,N- 二甲基氨基）联苯、双 -（二苯基膦）二茂铁或亚磷酸 - 三 -(2,4- 叔丁基苯基）酯。

[0239] 为了实施本发明方法 (b) 以制备式 (I) 的化合物，每 Mol 的式 (IV) 卤代甲酰胺通常使用 1 至 15Mol，优选 2 至 8Mol 的式 (V) 硼酸衍生物。

[0240] 为了实施本发明方法 (c) 以制备式 (I) 的化合物，每 Mol 的式 (VI) 硼酸衍生物通常使用 0.8 至 15mol，优选 0.8 至 8mol 的式 (VII) 苯基衍生物。

[0241] 为了实施本发明方法 (d) 以制备式 (I) 的化合物，每 Mol 的式 (IV) 卤代甲酰胺通常使用 0.8 至 15mol，优选 0.8 至 8mol 的式 (VII) 苯基衍生物以及 0.8 至 15mol，优选 0.8 至 8mol 的 4,4,4',4',5,5,5',5'- 八甲基 -2,2'- 双 -1,3,2- 二氧杂硼杂环戊烷。

[0242] 所有惰性有机溶剂均可考虑作为实施本发明方法 (e) 的稀释剂。优选的实例为：脂族烃、脂环烃或芳香烃，例如石油醚、己烷、庚烷、环己烷、甲基环己烷、苯、甲苯、二甲苯或萘烷；卤化烃，例如氯苯、二氯苯、二氯甲烷、氯仿、四氯化碳、二氯乙烷或三氯乙烷；醚，例如二乙醚、二异丙醚、甲基叔丁基醚、甲基叔戊基醚、二噁烷、四氢呋喃、1,2- 二甲氧基乙烷、1,2- 二乙氧基乙烷或茴香醚；或者酰胺，例如 N,N- 二甲基甲酰胺、N,N- 二甲基乙酰胺、

N- 甲基甲酰苯胺、N- 甲基吡咯烷酮或六甲基磷酰三胺。

[0243] 本发明方法 (e) 在碱存在下实施。所有的常规无机碱或有机碱均可考虑作为所述碱。优选的实例为 :碱土金属或碱金属的氢化物、氢氧化物、氨基化物、醇盐、乙酸盐、碳酸盐或碳酸氢盐,例如,氢化钠、氨基钠、甲醇钠、乙醇钠、叔丁醇钾、氢氧化钠、氢氧化钾、氢氧化铵、乙酸钠、乙酸钾、乙酸钙、乙酸铵、碳酸钠、碳酸钾、碳酸氢钾、碳酸氢钠或碳酸铯 ;以及叔胺,例如三甲胺、三乙胺、三丁胺、N, N- 二甲基苯胺、N, N- 二甲基苄胺、吡啶、N- 甲基哌啶、N- 甲基吗啉、N,N- 二甲基氨基吡啶、二氮杂双环辛烷 (DABCO)、二氮杂双环壬烯 (DBN) 或者二氮杂双环十一碳烯 (DBU)。

[0244] 当实施本发明方法 (e) 时,反应温度可在较宽范围内变化。通常,在 0℃至 150℃,优选 20℃至 110℃的温度下实施。

[0245] 为了实施本发明方法 (e) 以制备式 (I) 化合物,每 Mol 的式 (I-a) 联苯基噻唑甲酰胺通常使用 0.2 至 5mol,优选 0.5 至 2mol 的式 (VIII) 卤化物。

[0246] 若无另外说明,本发明的所有方法通常均在常压下实施。然而,也可在升高或者降低的压力下实施——一般为 0.1 巴至 10 巴。

[0247] 本发明所涉及的物质显示出强的杀微生物药效,可在植物保护和材料保护领域中用于防治不想要的微生物,例如真菌和细菌。

[0248] 杀真菌剂可在植物保护领域中用于防治根肿菌 (Plasmodiophoromycete)、卵菌 (Oomycete)、壶菌 (Chytridiomycete)、接合菌 (Zygomycete)、子囊菌 (Ascomycete)、担子菌 (Basidiomycete) 和半知菌 (Deuteromycete)。

[0249] 杀细菌剂可在植物保护领域中用于防治假单胞菌科 (Pseudomonadaceae)、根瘤菌科 (Rhizobiaceae)、肠杆菌科 (Enterobacteriaceae)、丛毛单胞菌科 (Corynebacteriaceae) 和链霉菌科 (Streptomycetaceae)。

[0250] 作为实例提出归入上述属的以下真菌和细菌病害的病原体,然而不应认为它们是穷举的 :

[0251] 黄单胞 (Xanthomonas) 菌种,例如野油菜黄单胞菌水稻致病变种 (Xanthomonas campestris pv.oryzae) ;

[0252] 假单胞 (Pseudomonas) 菌种,例如丁香假单胞菌黄瓜致病变种 (Pseudomonas syringae pv.lachrymans) ;

[0253] 欧文氏 (Erwinia) 菌种,例如解淀粉欧文氏菌 (Erwiniaamylovora) ;

[0254] 腐霉 (Pythium) 菌种,例如终极腐霉 (Pythium ultimum) ;

[0255] 疫霉 (Phytophthora) 菌种,例如致病疫霉 (Phytophthorainfestans) ;

[0256] 假霜霉 (Pseudoperonospora) 菌种,例如草假霜霉 (Pseudoperonospora humuli) 或古巴假霜霉 (Pseudoperonosporacubensis) ;

[0257] 轴霜霉 (Plasmopara) 菌种,例如葡萄生轴霜霉 (Plasmoparaviticola) ;

[0258] 盘霜霉 (Bremia) 菌种,例如莴苣盘霜霉 (Bremia lactucae) ;

[0259] 霜霉 (Peronespora) 菌种,例如豌豆霜霉 (Peronospora pisi) 或十字花科霜霉 (P.brassicae) ;

[0260] 白粉菌 (Erysiphe) 菌种,例如禾谷白粉菌 (Erysiphe graminis) ;

[0261] 单囊壳属 (Sphaerotheca) 菌种,例如凤仙花单囊壳 (Sphaerothecafuliginea) ;

[0262] 叉丝单囊壳属(Podosphaera)菌种,例如白叉丝单囊壳(Podosphaera leucotricha);

[0263] 黑星菌属(Venturia)菌种,例如苹果黑星病菌(Venturiainaequalis);

[0264] 核腔菌属(Pyrenophora)菌种,例如圆核腔菌(Pyrenophorateres)或麦类核腔菌(P.graminea)(分生孢子形式:德氏霉菌属(Drechslera),syn:长蠕孢菌(Helminthosporium));

[0265] 旋孢腔菌属(Cochliobolus)菌种,例如禾旋孢腔菌(Cochliobolussativus)(分生孢子形式:德氏霉菌属,syn:长蠕孢菌);

[0266] 单胞锈菌属(Uromyces)菌种,例如疣顶单胞锈菌(Uromycesappendiculatus);

[0267] 柄锈菌(Puccinia)菌种,例如隐匿柄锈菌(Puccinia recondita);

[0268] 核盘菌属(Sclerotinia)菌种,例如核盘菌(Sclerotiniasclerotiorum);

[0269] 腥黑粉菌属(Tilletia)菌种,例如小麦网腥黑粉菌(Tilletiacaries);

[0270] 黑粉菌(Ustilago)菌种,例如裸黑粉菌(Ustilagonuda)或燕麦黑粉菌(Ustilago avenae);

[0271] 薄膜革菌属(Pellicularia)菌种,例如佐佐木薄膜革菌(Pellicularia sasakii);

[0272] 梨孢(Pyricularia)菌种,例如稻梨孢(Pyricularia oryzae);

[0273] 镰孢属(Fusarium)菌种,例如黄色镰孢(Fusarium culmorum);

[0274] 葡萄孢属(Botrytis)菌种,例如灰葡萄孢(Botrytis cinerea);

[0275] 针孢属(Septoria)菌种,例如颖枯壳针孢(Septoria nodorum);

[0276] 小球腔菌属(Leptosphaeria)菌种,例如Leptosphaeria nodorum;

[0277] 尾孢属(Cercospora)菌种,例如变灰尾孢(Cercosporacanescens);

[0278] 链格孢属(Alternaria)菌种,例如芸薹链格孢(Alternariabrassicae);

[0279] 假小尾孢属(Pseudocercosporella)菌种,例如小麦基腐病菌(Pseudocercosporella herpotrichoides);

[0280] 丝核菌属(Rhizoctonia)菌种,例如立枯丝核菌(Rhizoctoniasolani)。

[0281] 本发明所涉及的物质在植物中表现出较强的强化药效。因此,它们适用于调动植物本身的抵抗力对抗不想要的微生物的污染。

[0282] 在本发明中,植物强化(抗性诱导)物质应理解为这样一些物质,它们能够激发植物中的防御系统,从而使经过处理的植物针对随后接入的微生物产生显著的抗性。

[0283] 在本发明中,不想要的微生物应理解为植物致病真菌、细菌和病毒。本发明所涉及的物质也可用于在处理后的一段时间内保护植物抵抗所述病原体的污染。在用活性化合物处理植物后,提供这种保护的时间一般持续1至10天,优选1至7天。

[0284] 本发明活性化合物在防治植物病害所需的浓度下的良好的植物耐受性,使得能够对植物的地上部位、离体繁殖株(propagation stock)和种子以及土壤进行处理。

[0285] 本发明的活性化合物可特别成功地防治谷物病害——例如抵抗由柄锈菌菌种引起的病害,以及葡萄栽培、水果和蔬菜种植中的病害——例如由葡萄孢属、黑星菌属或链格孢属菌种引起的病害。

[0286] 本发明的活性化合物也适用于提高采收产量。而且,它们还显示出较低的毒性,并

表现出良好的植物耐受性。

[0287] 如果合适，在特定的浓度和特定的施用率下，本发明的活性化合物也可用作除草剂、用于影响植物生长速率、以及用于防治动物害虫。如果合适，它们还可用作合成其它活性化合物的中间产物及前体。

[0288] 所有的植物及植物部位均可用本发明物质处理。本发明中，植物是指所有的植物及植物种群，例如需要的和不需要的野生植物或作物植物（包括自然存在的作物植物）。作物植物可以是通过常规育种及优选法、或通过生物技术及基因工程方法、或通过所述方法的结合而获得的植物，包括转基因植物，也包括受或不受植物种苗权保护的植物品种。植物部位应理解为植物所有的地上和地下部位及植物器官，例如芽、叶、花及根；可提及的实例为叶、针叶 (needle)、茎、干、花、子实体、果实、种子、根、块茎及根茎。植物部位也包括采收物及无性与有性繁殖物，例如插条、块茎、根茎、短匐茎和种子。

[0289] 本发明的使用活性化合物对植物及植物部位进行的处理，依据常规处理方法直接进行或通过影响其环境、生境或贮存区域来进行，所述常规处理方法包括例如浸泡、喷雾、蒸发、弥雾 (atomisi ng)、撒播、刷涂 (brushing-on)，并且在繁殖物、特别是种子的情况下，还包括包衣一层或多层。

[0290] 在材料保护领域中，本发明的化合物可用于保护工业材料抵抗不想要的微生物的侵染和破坏。

[0291] 本发明中工业材料应理解为拟用于工业而制备的非活体 (non-living) 材料。例如，拟由本发明的活性化合物保护以免受微生物改变或破坏的工业材料可以是胶粘剂、胶液、纸张及板材、纺织品、皮革、木材、涂料及合成制品、冷却润滑剂 (cooling lubricant) 及其它可受微生物侵染或破坏的材料。可由微生物繁殖损害的生产设备部件，例如冷却水回路，亦在待保护材料的范围内提及。本发明范围内的可被提及的工业材料优选为胶粘剂、胶液、纸张及板材、皮革、木材、涂料、冷却润滑剂和传热流体，特别优选木材。

[0292] 可使工业材料发生分解或改变的微生物的实例如下提及：细菌、真菌、酵母菌、藻类及粘液生物。本发明的活性化合物优选作用于真菌，特别是霉菌、木材退色真菌及木腐真菌（担子菌），以及粘液生物及藻类。

[0293] 作为实例可提出以下属微生物：

[0294] 链格孢属、例如链格孢 (Alternaria tenuis)，

[0295] 曲霉属 (Aspergillus)、例如黑曲霉 (Aspergillus niger)，

[0296] 毛壳菌 (Chaetomium)、例如球毛壳菌 (Chaetomium globosum)，

[0297] 桦粉孢革菌 (Coniophora)、例如 Coniophora puetana，

[0298] 香菇属 (Lentinus)、例如虎皮香菇菌 (Lentinus tigrinus)，

[0299] 青霉属 (Penicillium)、例如灰绿青霉 (Penicillium glaucum)，

[0300] 多孔菌 (Polyporus)、例如杂色多孔菌 (Polyporus versicol or)，

[0301] 短梗霉属 (Aureobasidium)、例如出芽短梗霉 (Aureobasidiumpullulans)，

[0302] 核茎点属 (Sclerophoma)、例如 Sclerophoma pityophila，

[0303] 木霉属 (Trichoderma)、例如绿色木霉 (Trichoderma viride)，

[0304] 埃希氏菌属 (Escherichia)、例如大肠埃希氏菌 (Escherichiacoli)，

[0305] 假单胞菌属、例如铜绿假单胞菌 (Pseudomona saeruginosa)，

[0306] 葡萄球菌属(Staphylococcus)、例如金黄色葡萄球菌(Staphylococcus aureus)。

[0307] 活性化合物可依据其各自的物理和/或化学特性而转化为常规制剂，例如溶液剂、乳剂、悬浮剂、粉剂、泡沫剂、膏剂、颗粒剂、气雾剂、聚合物中与种子包衣中的微胶囊剂，以及ULV冷却与加温弥雾制剂。

[0308] 这些制剂以已知的方式制备，例如将活性化合物与填充剂混合，或者与液体溶剂、加压液化气和/或固体载体物质混合，如果合适可同时使用表面活性剂，或者乳化剂和/或分散剂和/或发泡剂。如使用水作为填充剂，还可使用例如有机溶剂作为辅助溶剂。可主要考虑以下液体溶剂：芳香族化合物，例如二甲苯、甲苯或烷基萘；氯化芳香族化合物或氯化脂族烃，例如氯苯、氯乙烯或二氯甲烷；脂族烃，例如环己烷或石蜡，如石油馏分；醇，例如丁醇或乙二醇及其醚及酯；酮，例如丙酮、甲乙酮、甲基异丁基酮或环己酮；强极性溶剂，例如二甲基甲酰胺和二甲基亚砜；以及水。液化气填充剂或载体物质是常温常压下为气体的液体，例如气溶胶推进剂，例如卤代烃，以及丁烷、丙烷、氮气及二氧化碳。合适的固体载体为：例如粉碎的天然矿物，例如高岭土、粘土、滑石、白垩、石英、凹凸棒石、蒙脱石或硅藻土；以及粉碎的合成矿物，例如高度分散的硅酸、氧化铝及硅酸盐。合适的用于颗粒剂的固体载体为：例如粉碎并分级的天然岩石，例如方解石、大理石、浮石、海泡石及白云石；以及合成的无机及有机粉末颗粒和有机物颗粒，例如锯木屑、椰壳、玉米穗轴及烟草茎。合适的乳化剂和/或发泡剂为：例如非离子及阴离子乳化剂，例如聚氧乙烯脂肪酸酯、聚氧乙烯脂肪醇醚——例如烷基芳基聚乙二醇醚、烷基磺酸盐、烷基硫酸盐、芳基磺酸盐和蛋白质水解产物。合适的分散剂为：例如木素亚硫酸盐废液及甲基纤维素。

[0309] 制剂中可使用粘合剂，例如羧甲基纤维素，粉末、颗粒或胶乳形式的天然和合成聚合物——例如阿拉伯树胶、聚乙烯醇和聚乙酸乙烯酯，以及天然磷脂——例如脑磷脂和卵磷脂，和合成磷脂。其它添加剂可为矿物油和植物油。

[0310] 可使用着色剂，例如无机颜料——例如氧化铁、氧化钛和普鲁士蓝；以及有机染料——例如茜素染料、偶氮染料和金属酞菁染料；以及微量营养物——例如铁盐、锰盐、硼盐、铜盐、钴盐、钼盐和锌盐。

[0311] 制剂通常包含0.1至95重量百分比的活性化合物，优选0.5至90%。

[0312] 本发明的活性化合物也可以其本身或在其制剂中与已知的杀真菌剂、杀细菌剂、杀螨剂、杀线虫剂或杀昆虫剂混合使用，以便例如拓宽作用谱或防止产生抗性。在许多情况下获得协同效应，即，混合物的活性大于单独组分的活性。

[0313] 混合物中合适组分的实例如下：

[0314] 杀真菌剂：

[0315] 联苯酚(2-phenyl phenol)、8-羟基喹啉硫酸酯(8-hydroxyquinoline sulphate)、活化酯-S-甲基(acibenzolar-S-methyl)、4-十二烷基-2,6-二甲基吗啉(aldimorph)、amidoflumet、氨丙膦酸(ampropylfos)、氨丙膦酸钾(ampropylfos-potassium)、andoprim、敌菌灵(anilazin)、氧环唑(azaconazole)、嘧菌酯(azoxystrobin)、

[0316] 苯霜灵(benalaxyl)、苯霜灵-M(benalaxyl-M)、麦锈灵(benodanil)、苯菌灵(benomyl)、苯噻菌胺(benthiavalicarb-isopropyl)、苄烯酸(benzamacril)、异丁基苄烯酸(benzamacril-isobutyl)、双丙氨酰膦(bilanafos)、乐杀螨(binapacryl)、联苯、

联苯三唑醇(bitertanol)、灭瘟素(blasticidin-S)、啶酰菌胺(bosacalid)、糠菌唑(bromuconazole)、乙嘧酚磺酸酯(bupirimate)、丁硫啶(buthiobate)、丁胺、

[0317] 石硫合剂(calcium polysulphide)、卡巴西霉素(capsimycin)、敌菌丹(captafol)、克菌丹(captan)、多菌灵(carbendazim)、萎锈灵(carboxin)、环丙酰菌胺(carpropamide)、香芹酮(carvone)、灭螨猛(quinomethionate)、灭瘟唑(chlobenthiazone)、苯咪唑菌(chlorfenazole)、地茂散(chloroneb)、百菌清(chlorothalonil)、乙菌利(chlozolinate)、clozylacon、氰霜唑(cyazofamid)、环氟菌胺(cyflufenamid)、霜脲氰(cymoxanil)、环丙唑醇(cyproconazole)、嘧菌环胺(cyprodinil)、酯菌胺(cyprofuram)、

[0318] 咪草酸G(DaggerG)、咪菌威(debacarb)、苯氟磺胺(dichlofluanid)、二氯萘醌(dichlone)、双氯酚(dichlorophen)、双氯氰菌胺(diclocymet)、哒菌酮(diclomezine)、氯硝胺(dicloran)、乙霉威(diethofencarb)、苯醚甲环唑(difenoconazole)、氟嘧菌胺(diflumetorim)、二甲嘧酚(dimethirimol)、烯酰吗啉(dimethomorph)、醚菌胺(dimoxystrobin)、烯唑醇(diniconazole)、烯唑醇-M(diniconazole-M)、敌螨普(dinocap)、二苯胺(diphenylamine)、双吡硫翁(dipyrithione)、灭菌磷(ditalimfos)、二氰蒽醌(dithianon)、多果定(dodine)、肼菌酮(drazoxolon)、

[0319] 敌瘟磷(edifenphos)、氧环唑(epoxiconazole)、噻唑菌胺(ethaboxam)、乙嘧酚(ethirimol)、土菌灵(etridiazole)、

[0320] 恶唑菌酮(famoxadon)、咪唑菌酮(fenamidone)、咪菌腈(fenapanil)、氯苯嘧啶醇(fenarimol)、腈苯唑(fenbuconazole)、甲呋酰胺(fenfuram)、环酰菌胺(fenhexamid)、种衣酯(fenitropan)、氰菌胺(fenoxanil)、拌种咯(fenpiclonil)、苯锈啶(fenpropidin)、丁苯吗啉(fenpropimorph)、福美铁(ferbam)、氟啶胺(fluazinam)、噻唑螨(flubenzimine)、咯菌腈(fludioxonil)、氟酰菌胺(flumetover)、氟吗啉(flumorph)、氟氯菌核利(fluoromide)、氟嘧菌酯(fluoxastrobin)、氟喹唑(fluquinconazole)、呋嘧醇(flurprimidol)、氟硅唑(flusilazole)、磺菌胺(flusulphamide)、氟酰胺(flutolanil)、粉唑醇(flutriafol)、灭菌丹(folpet)、三乙膦酸铝(fosetyl-Al)、藻菌磷钠(fosetyl-sodium)、麦穗宁(fuberidazole)、呋霜灵(furalaxyl)、呋吡唑灵(furametpyr)、二甲呋酰胺(furcarbanil)、拌种胺(furmecyclox)、

[0321] 双胍盐(guazatine)、

[0322] 六氯苯(hexachlorobenzene)、己唑醇(hexaconazole)、恶霉灵(hymexazole)、

[0323] 抑霉唑(imazalil)、亚胺唑(imibenconazole)、双胍辛胺乙酸盐(iminoctadine triacetate)、双八胍盐(iminoctadinetris(albesilate))、iodocarb、种菌唑(ipconazole)、异稻瘟净(iprobenfos)、异菌脲(iprodione)、异丙菌胺(iprovalicarb)、人间霉素(irumamycin)、稻瘟灵(isoprothiolane)、氯苯咪菌酮(isovaledione)、

[0324] 春雷霉素(kasugamycin)、醚菌酯(kresoxim-methyl)、

[0325] 代森锰锌(mancozeb)、代森锰(maneb)、meferimzone、嘧菌胺(mepanipyrim)、灭锈胺(mepronil)、甲霜灵(metalaxyl)、高效甲霜灵(metalaxyl-M)、叶菌唑(metconazole)、磺菌威(methasulphocarb)、呋菌胺(methfuroxam)、代森联(metiram)、苯氧菌胺(metominostrobin)、噻菌胺(metsulphovax)、米多霉素(mildiomycin)、腈菌唑

(myclobutanil)、甲菌利 (myclozolin)、

[0326] 多马霉素 (natamycin)、BAS510(nicobifen)、酞菌酯 (nitrothal-isopropyl)、多氟脲 (noviflumuron)、氟苯嘧啶醇 (nuarimol)、

[0327] 呋酰胺 (ofurace)、肟醚菌胺 (orysastrobin)、恶霜灵 (oxadixyl)、喹菌酮 (oxolinic acid)、恶咪唑 (oxpocona zole)、氧化萎锈灵 (oxycarboxin)、oxyfenthiin、

[0328] 多效唑 (paclobutrazol)、稻瘟酯 (pefurazoate)、戊菌唑 (penconazole)、戊菌隆 (pencycuron)、氯瘟磷 (phosdiphen)、四氯苯酞 (phthalide)、啶氧菌酯 (picoxystrobin)、病花灵 (piperalin)、多抗霉素 (polyoxins)、多氧霉素 (polyoxorim)、烯丙苯噻唑 (probenazole)、咪鲜胺 (prochloraz)、腐霉利 (procymidone)、霜霉威 (propamocarb)、propanosine-sodium、丙环唑 (propiconazole)、丙森锌 (propineb)、丙氧喹啉 (proquinazid)、丙硫菌唑 (prothioconazole)、吡唑醚菌酯 (pyraclostrobin)、吡菌磷 (pyrazophos)、啶斑肟 (pyrifenox)、嘧霉胺 (pyrimethanil)、咯喹酮 (pyroquilon)、氯吡呋醚 (pyroxyfur)、硝吡咯菌素 (pyrrolnitrine)、

[0329] 唑喹菌酮 (quinconazole)、苯氧喹啉 (quinoxyfen)、五氯硝基苯 (quintozene)、

[0330] 硅氟唑 (simeconazole)、螺环菌胺 (spiroxamine)、硫磺 (sulphur)、

[0331] 戊唑醇 (tebuconazole)、叶枯酞 (tecloftalam)、四氯硝基苯 (tecnazene)、四环唑 (tetcyclacis)、四氟醚唑 (tetraconazole)、噻菌灵 (thiabendazole)、噻菌腈 (thicyofen)、噻氟菌胺 (thifluzamide)、甲基硫菌灵 (thiophanate-methyl)、福美双 (thiram)、硫氰苯甲酰胺 (tioxymid)、甲基立枯磷 (tolclofos-methyl)、甲苯氟磺胺 (tolylfluanid)、三唑酮 (triadimefon)、三唑醇 (triadimenol)、丁三唑 (triazbutil)、咪唑嗪 (triazoxide)、tricyclamide、三环唑 (tricyclazole)、十三吗啉 (tridemorph)、肟菌酯 (trifloxystrobin)、氟菌唑 (triflumizole)、嗪胺灵 (triforine)、灭菌唑 (triticonazole)、

[0332] 烯效唑 (uniconazole)、

[0333] 有效霉素 A(validamycinA)、乙烯菌核利 (vinclozolin)、

[0334] 代森锌 (zineb)、福美锌 (ziram)、苯酰菌胺 (zoxamide)、

[0335] (2S)-N-[2-[4-[[3-(4- 氯苯基)-2- 丙炔基] 氧]-3- 甲氧基苯基] 乙基]-3- 甲基 -2-[(甲磺酰基) 氨基]- 丁酰胺、

[0336] 1-(1- 萘基)-1H- 吡咯 -2,5- 二酮、

[0337] 2,3,5,6- 四氯 -4-(甲磺酰基)- 吡啶、

[0338] 2- 氨基 -4- 甲基 -N- 苯基 -5- 噻唑甲酰胺、

[0339] 2- 氯 -N-(2,3- 二氢 -1,1,3- 三甲基 -1H- 茚 -4- 基)-3- 吡啶甲酰胺、

[0340] 3,4,5- 三氯 -2,6- 吡啶二腈、

[0341] actinovate、

[0342] 顺 -1-(4- 氯苯基)-2-(1H-1,2,4- 三唑 -1- 基)- 环庚醇、

[0343] 1-(2,3- 二氢 -2,2- 二甲基 -1H- 茚 -1- 基)-1H- 咪唑 -5- 羧酸甲酯、

[0344] 碳酸氢钾、

[0345] N-(6- 甲氧基 -3- 吡啶基)- 环丙烷甲酰胺、

[0346] N- 丁基 -8-(1,1- 二甲基乙基)-1- 氧杂螺 [4.5] 癸 -3- 胺、

[0347] sodiumtetracarbonate、

[0348] 以及铜盐及铜制剂，例如波尔多液 (Bordeaux mixture)、氢氧化铜、环烷酸铜、氯氧化铜 (copper oxychloride)、硫酸铜、硫杂灵 (cufraneb)、氧化亚铜、代森锰铜 (mancopper)、喹啉铜 (oxinecopper)。

[0349] 杀细菌剂：

[0350] 溴硝丙二醇 (bronopol)、双氯酚、三氯甲基吡啶 (nitrapyrin)、福美镍 (nickel-dimethyldithiocarbamate)、春雷霉素、异噻菌酮 (octhilinone)、羧酸呋喃 (fufancarboxylic acid)、土霉素 (oxytetracycline)、烯丙苯噻唑、链霉素 (streptomycin)、叶枯酞、硫酸铜和其它铜制剂。

[0351] 杀昆虫剂 / 杀螨剂 / 杀线虫剂：

[0352] 1. 乙酰胆碱酯酶 (AChE) 抑制剂

[0353] 1.1 氨基甲酸酯类

[0354] (例如棉铃威 (alanycarb)、涕灭威 (aldicarb)、砜灭威 (aldoxycarb)、除害威 (allyxycarb)、灭害威 (aminocarb)、唑啶磷 (azamethiphos)、噁虫威 (bendiocarb)、丙硫克百威 (benfuracarb)、合杀威 (bufencarb)、畜虫威 (butacarb)、丁叉威 (butocarboxim)、丁酮砜威 (butoxycarboxim)、西维因 (carbaryl)、虫螨威 (carbofuran)、丁硫克百威 (carbosulphan)、chloethocarb、蝇毒磷 (coumaphos)、苯腈磷 (cyanofenphos)、杀螟腈 (cyanophos)、敌蝇威 (dimetilan)、苯虫威 (ethiofencarb)、仲丁威 (fenobucarb)、苯硫威 (fenothiocarb)、伐虫脒 (formetanate)、呋线威 (furathiocarb)、异丙威 (isoprocarb)、威百亩 (metam-sodium)、灭虫威 (methiocarb)、灭多虫 (methomyl)、速灭威 (metolcarb)、甲氨叉威 (oxamyl)、抗蚜威 (pirimicarb)、猛杀威 (promecarb)、残杀威 (propoxur)、硫双灭多威 (thiodicarb)、特氨叉威 (thiofanox)、唑蚜威 (triazamate)、混杀威 (trimethacarb)、XMC、灭杀威 (xylylcarb))

[0355] 1.2 有机磷酸酯类

[0356] (例如高灭磷 (acephate)、甲基吡恶磷 (azamethiphos)、谷硫磷 (-M、-A) (azinphos(-methyl，-ethyl))、乙基溴硫磷 (bromophos-ethyl)、溴苯烯磷 (- 甲基) (bromfenvinfos(-methyl))、特嘧硫磷 (butathiofos)、硫线磷 (cadusafos)、三硫磷 (carbophenothion)、壤虫氯磷 (chlorethoxyfos)、毒虫畏 (chlorfenvinphos)、氯甲磷 (chlormephos)、毒死蜱 (- 甲基、- 乙基)(chlorpyrifos(-methyl/-ethyl))、蝇毒磷 (coumaphos)、苯腈磷 (cyanofenphos)、杀螟腈 (cyanophos)、毒虫畏 (chlorfenvinphos)、甲基内吸磷 (demeton-S-methyl)、砜吸磷 (demeton-S-methylsulphon)、氯亚胺硫磷 (dialifos)、二嗪农 (diazinon)、除线磷 (dichlofenthion)、敌敌畏 (dichlorvos)/DDVP、百治磷 (dicrotophos)、乐果 (dimethoate)、甲基毒虫畏 (dimethylvinphos)、蔬果磷 (dioxabenzofos)、乙拌磷 (disulphoton)、EPN、乙硫磷 (ethion)、灭克磷 (ethoprophos)、氧嘧啶磷 (etrimfos)、伐灭磷 (famphur)、克线磷 (fenamiphos)、杀螟松 (fenitrothion)、丰索磷 (fensulphothion)、倍硫磷 (fenthion)、吡氟硫磷 (flupyrazofos)、地虫磷 (fonofos)、安硫磷 (formothion)、丁苯硫磷 (fosmethilan)、噻唑酮磷 (fosthiazate)、庚虫磷 (heptenophos)、碘硫磷 (iodofenphos)、异稻瘟净 (iprobenfos)、氟唑磷 (isazofos)、丙胺磷 (isofenphos)、邻 - 水杨酸异丙酯 (isopropyl

O-salicylate)、异噁唑啉 (isoxathion)、马拉松 (malathion)、灭蚜磷 (mecarbam)、虫螨畏 (methacrifos)、甲胺磷 (methamidophos)、杀扑磷 (methidathion)、速灭磷 (mevinphos)、久效磷 (monocrotophos)、二溴磷 (naled)、氧化乐果 (omethoate)、亚砜磷 (oxydemeton-methyl)、对硫磷 (-甲基、-乙基)(parathion(-methyl/-ethyl))、稻丰散 (phenthoate)、甲拌磷 (phorate)、伏杀磷 (phosalone)、亚胺硫磷 (phosmet)、磷胺 (phosphamidon)、乙丙磷威 (phosphocarb)、腈肟磷 (phoxim)、嘧啶磷 (-甲基、-乙基)(pirimiphos(-methyl/-ethyl))、丙溴磷 (profenofos)、丙虫磷 (propaphos)、胺丙畏 (propetamphos)、丙硫磷 (prothiofos)、发果 (prothoate)、吡唑硫磷 (pyraclofos)、哒嗪硫磷 (pyridaphenthion)、pyridathion、喹噁磷 (quinalphos)、硫线磷 (sebufos)、硫特普 (sulfotep)、乙丙硫磷 (sulprofos)、丁基嘧啶磷 (tebupirimifos)、双硫磷 (temephos)、特丁磷 (terbufos)、杀虫畏 (tetrachlorvinphos)、甲基乙拌磷 (thiometon)、三唑磷 (triazophos)、敌百虫 (triclorfon)、蚜灭多 (yamidothion))

[0357] 2. 钠通道调节剂 / 取决于电位的钠通道阻断剂

[0358] 2.1 拟除虫菊酯类

[0359] (例如氟酯菊酯 (acrinathrin)、烯丙菊酯 (d-顺-反、d-反)(allethrin(d-cis-trans, d-trans))、β-氟氯氰菊酯 (beta-cyfluthrin)、氟氯菊酯 (bifenthrin)、生物烯丙菊酯 (bioallethrin)、生物烯丙菊酯 -S- 环戊基异构体 (bioallethrin-S-cyclopentyl-isomer)、bioethanomethrin、生物氯菊酯 (biopermethrin)、生物苄呋菊酯 (bioresmethrin)、二氯炔戊菊酯 (chlovaporthrin)、顺-氯氰菊酯 (cis-cypermethrin)、顺-苄呋菊酯 (cis-resmethrin)、顺-氯菊酯 (cis-permethrin)、功夫菊酯 (clocythrin)、乙氰菊酯 (cycloprothrin)、氟氯氰菊酯 (cyfluthrin)、氯氟氰菊酯 (cyhalothrin)、氯氰菊酯 (甲体、乙体、辛体、己体)(cypermethrin(alpha-, beta-, theta-, zeta-))、苯醚氰菊酯 (cyphenothrin)、DDT、溴氰菊酯 (deltamethrin)、烯炔菊酯 (1R- 异构体)(empenthrin(1R-isomer))、高氰戊菊酯 (esfenvalerate)、醚菊酯 (etofenprox)、五氟苯菊酯 (fenfluthrin)、甲氰菊酯 (fenpropathrin)、吡氯氰菊酯 (fenpyrithrin)、灭杀菊酯 (fenvalerate)、溴氟菊酯 (flubrocythrinate)、氟氰戊菊酯 (flucythrinate)、三氟醚菊酯 (flufenprox)、氟氯苯菊酯 (flumethrin)、氟胺氰菊酯 (fluvalinate)、fubfenprox、精高效氯氟氰菊酯 (gamma-cyhalothrin)、咪炔菊酯 (imiprothrin)、噻嗯菊酯 (kadethrin)、高效氯氟氰菊酯 (lambda-cyhalothrin)、甲氧苄氟菊酯 (metofluthrin)、氯菊酯 (顺-、反-)(permethrin(cis-, trans-))、苯醚菊酯 (1R-) 顺式异构体)(phenothrin(1R-transisomer))、右旋炔丙菊酯 (prallethrin)、profluthrin、protrifenbute、反灭虫菊 (pyresmethrin)、苄呋菊酯 (resmethrin)、RU15525、灭虫硅醚 (silafluofen)、氟胺氰菊酯 (tau-fluvalinate)、七氟菊酯 (tefluthrin)、环戊烯丙菊酯 (terallethrin)、胺菊酯 (1R- 异构体)(tetramethrin(1R-isomer))、四溴菊酯 (tralomethrin)、四氟苯菊酯 (transfluthrin)、ZXI8901、除虫菊素 (pyrethrins, pyrethrum)

[0360] 2.2 噁二嗪 (oxadiazine) 类

[0361] (例如噁二唑虫 (indoxacarb))

[0362] 3. 乙酰胆碱受体激动剂 / 乙酰胆碱受体拮抗剂

[0363] 3.1 氯代烟碱基 (chloronicotinyl)/ 新烟碱类 (neonicotinoid)

[0364] (例如吡虫清 (acetamiprid)、噻虫胺 (clothianidin)、呋虫胺 (dinotefuran)、吡虫磷 (imidacloprid)、烯啶虫胺 (nitenpyram)、硝虫噻嗪 (nithiazine)、噻虫啉 (thiacloprid)、噻虫嗪 (thiamethoxam))

[0365] 3.2 烟碱 (nicotine)、杀虫磺 (bensultap)、杀螟丹 (cartap)

[0366] 4. 乙酰胆碱受体调节剂

[0367] 4.1Spinosyn 类

[0368] (例如多杀菌素 (spinosad))

[0369] 5.GABA 控制氯离子通道拮抗剂

[0370] 5.1 环二烯有机氯

[0371] (例如毒杀芬 (camphechlor)、氯丹 (chlordane)、硫丹 (endosulphan)、林丹 (gamma-HCH)、HCH、七氯 (heptachlor)、林丹 (lindane)、甲氧滴滴涕 (methoxychlor)

[0372] 5.2Fiprol 类

[0373] (例如 acetoprole、乙虫腈 (ethiprole)、锐劲特 (fipronil)、氟吡唑虫 (vanilipfole))

[0374] 6. 氯离子通道激活剂

[0375] 6.1Mectin 类

[0376] (例如齐墩螨素 (abamectin)、阿维菌素 (avermectin)、埃玛菌素 (emamectin)、甲氨基阿维菌素苯甲酸盐 (emamectin-benzoate)、伊维菌素 (ivermectin)、米尔螨素 (milbemectin)、米尔倍霉素 (milbemycin))

[0377] 7. 保幼激素模拟物

[0378] (例如噁茂醚 (diofenolan)、保幼醚 (epofenonane)、双氧威 (fenoxycarb)、烯虫乙酯 (hydroprene)、烯虫炔酯 (kinoprene)、烯虫酯 (methoprene)、吡丙醚 (pyriproxifen)、烯虫硫酯 (triprene))

[0379] 8. 蜕皮激素激动剂 / 干扰剂 (disruptor)

[0380] 8.1 二酰基肼

[0381] (例如环虫酰肼 (chromafenozide)、特丁苯酰肼 (halofenozide)、甲氧苯酰肼 (methoxyfenozide)、双苯酰肼 (tebufenozide))

[0382] 9. 几丁质生物合成抑制剂

[0383] 9.1 苯甲酰脲化合物 (例如双三氟虫脲 (bistrifluron)、定虫隆 (chlorfluazuron)、氟脲杀 (diflubenzuron)、氟啶蜱脲 (fluazuron)、氟螨脲 (flucycloxuron)、氟虫脲 (flufenoxuron)、氟铃脲 (hexaflumuron)、氟丙氧脲 (lufenuron)、双苯氟脲 (novaluron)、多氟脲 (noviflumuron)、氟幼脲 (penfluron)、伏虫磷 (teflubenzuron)、杀铃脲 (triflumuron))

[0384] 9.2 噻嗪酮 (buprofezin)

[0385] 9.3 灭蝇胺 (cyromazine)

[0386] 10. 氧化磷酸化抑制剂,ATP 干扰剂

[0387] 10.1 丁醚脲 (diafenthiuron)

[0388] 10.2 有机锡类

[0389] (例如三唑锡(azocyclotin)、三环锡(cyhexatin)、苯丁锡(fenbutatin oxide))

[0390] 11. 通过中断 H- 质子梯度的氧化磷酸化解偶联剂

[0391] 11.1 吡咯类

[0392] (例如虫螨腈(chlorfenapyr))

[0393] 11.2 二硝基苯酚类

[0394] (例如乐杀螨(binapacryl)、消螨通(dinobuton)、敌螨普(dinocap)、DNOC)

[0395] 12.I 位点电子转移抑制剂

[0396] 12.1METI 类

[0397] (例如喹螨醚(fenazaquin)、唑螨酯(fenpyroximate)、嘧胺苯醚(pyrimidifen)、哒螨酮(pyridaben)、吡螨胺(tebufenpyrad)、唑虫酰胺(tolfenpyrad))

[0398] 12.2 灭蚁腙(hydramethylnone)

[0399] 12.3 开乐散(dicofol)

[0400] 13.II 位点电子转移抑制剂

[0401] 13.1 鱼藤酮(rotenone)

[0402] 14.III 位点电子转移抑制剂

[0403] 14.1 灭螨醌(acequinocyl)、嘧螨酯(fluacrypyr im)

[0404] 15. 昆虫中肠膜的微生物干扰剂

[0405] 苏云金杆菌株(Bacillus thuringiensis strain)

[0406] 16. 脂类合成抑制剂

[0407] 16.1 特窗酸类

[0408] (例如螺螨酯(spirodiclofen)、螺甲螨酯(spiromesifen))

[0409] 16.2 特特拉姆酸类

[0410] [例如 3-(2,5- 二甲基苯基)-8- 甲氧基 -2- 氧代 -1- 氮杂螺 [4.5] 癸 -3- 烯 -4- 基乙基碳酸酯(别名:碳酸 3-(2,5- 二甲基苯基)-8- 甲氧基 -2- 氧代 -1- 氮杂螺 [4.5] 癸 -3- 烯 -4- 基乙酯,CAS 注册号:382608-10-8) 和碳酸顺 -3-(2,5- 二甲基苯基)-8- 甲氧基 -2- 氧代 -1- 氮杂螺 [4.5] 癸 -3- 烯 -4- 基乙酯(CAS 注册号:203313-25-1)]

[0411] 17. 甲酰胺类

[0412] (例如 flonicamide)

[0413] 18. 章鱼胺能激动剂

[0414] (例如双甲脒(amitraz))

[0415] 19. 镁刺激 ATP 酶(magnesium-stimula tedATPase) 抑制剂

[0416] (例如炔螨特(propargite))

[0417] 20. 邻苯二酰胺类

[0418] (例如 N^2-[1,1- 二甲基 -2-(甲磺酰基)乙基]-3- 碘 -N^1-[2- 甲基 -4-[1,2,2,2- 四氟 -1-(三氟甲基)乙基] 苯基]-1,2- 苯二甲酰胺(CAS 注册号:272451-65-7)、flubendiamide)

[0419] 21. 沙蚕毒素类似物

[0420] (例如杀虫环草酸盐(thiocyclam hydrogen oxalate)、杀虫双(thiosultap-sodium))

[0421] 22. 生物制剂、激素或信息素

[0422] (例如印楝素(azadirachtin)、芽孢杆菌种(Bacillusspec.)、白僵菌种(Beauveria spec.)、十二碳二烯醇(codlemone)、绿僵菌种(Metarrhizium spec.)、拟青霉种(Paecilomyces spec.)、敌贝特(thuringiensin)、轮枝菌种(Verticilliumspec.)

[0423] 23. 作用机理未知或不明确的活性化合物

[0424] 23.1 熏蒸剂(fumigant)

[0425] (例如磷化铝、溴代甲烷、硫酰氟)

[0426] 23.2 选择性拒食剂

[0427] (例如冰晶石(cryolite)、氟啶虫酰胺(flonicamid)、吡蚜酮(pymetrozine))

[0428] 23.3 螨虫生长抑制剂

[0429] (例如四螨嗪(clofentezine)、乙螨唑(etoxazole)、噻螨酮(hexythiazox))

[0430] 23.4amidoflumet、benclothiaz、苯螨特(benzoximate)、联苯肼酯(bifenazate)、溴螨酯(bromopropylate)、噻嗪酮(buprofezin)、灭螨猛(quinomethionate)、杀虫脒(chlordimeform)、乙酯杀螨醇(chlorobenzilate)、氯化苦(chloropicrin)、clothiazoben、cycloprene、cyflumetofen、环虫腈(dicyclanil)、fenoxacrim、氟硝二苯胺(fentrifanil)、噻唑螨(flubenzimine)、flufenerim、氟螨嗪(fluternzin)、诱虫十六酯(gossyplure)、伏蚁腙(hydramethylnone)、japonilure、恶虫酮(metoxadiazone)、石油、胡椒基丁醚、油酸钾、pyrafluprole、啶虫丙醚(pyridalyl)、pyriprole、氟虫胺(sulphluramide)、三氯杀螨砜(tetradifon)、杀螨硫醚(tetrasul)、苯赛螨(triarathene)、增效炔醚(verbutin),

[0431] 还有化合物3-甲基-苯基-丙基氨基甲酸酯(速灭威Z(tsumacideZ))、化合物3-(5-氯-3-吡啶基)-8-(2,2,2-三氟乙基)-8-氮杂双环[3.2.1]辛-3-腈(CAS注册号185982-80-3)及相应的3-内型异构体(CAS注册号185984-60-5)(见WO96/37494、WO98/25923),以及含有可杀虫的植物提取物、线虫、真菌或病毒的制剂。

[0432] 也可与其它已知的活性化合物例如除草剂混合,或与肥料及生长调节剂、安全剂或信息化合物混合。

[0433] 此外,本发明的式(I)化合物也具有非常好的抗真菌和霉菌活性。它们具有非常宽的抗真菌和霉菌活性谱,特别是针对皮肤真菌(dermatophyte)及酵母菌、霉菌及双相性(diphasic)真菌(例如针对念珠菌属(Candida)菌种——例如白色念珠菌(Candidaalbicans)、光滑念珠菌(Candida glabrata))以及絮状表皮癣菌(Epidermophyton floccosum),曲霉菌种——例如黑曲霉和烟曲霉(Aspergillus fumigatus),毛癣菌属(Trichophyton)菌种——例如须癣毛癣菌(Trichophyton mentagrophytes),小孢霉属(Microsporon)菌种——例如犬小孢霉(Microsporon canis)和Microsporon audouinii。列举这些真菌决不限制所覆盖的抗真菌及霉菌谱,而仅是用于示例说明。

[0434] 活性化合物可以其本身、其制剂形式或由其制备的使用形式来使用,例如即用(ready-to-use)的溶液剂、悬浮剂、可湿性粉剂、膏剂、可溶性粉剂、粉尘剂(dust)和颗粒剂。施用按常规方式进行,例如通过浇灌、喷雾、雾化(atomising)、撒播、喷粉、发泡、撒布(spreading)等。此外,还可通过超低量法施用活性化合物,或者将活性化合物制剂或活性

化合物本身注射到土壤中。还可处理植物种子。

[0435] 本发明的活性化合物用作杀真菌剂时，施用率可依据施用类型在相对宽的范围内变化。对于处理植物部位而言，活性化合物的施用率一般为0.1至10,000g/ha（公顷），优选10至1000g/ha。对于拌种而言，活性化合物的施用率一般为0.001至50g每千克种子，优选0.01至10g每千克种子。对于土壤处理而言，活性化合物的施用率一般为0.1至10,000g/ha，优选1至5000g/ha。

[0436] 如上所述，可依据本发明处理所有的植物及其部位。在一个优选实施方案中，处理了野生植物种和植物栽培种，或由常规生物育种方法——例如杂交或原生质体融合——获得的植物种和植物栽培种，以及所述植物种和栽培种的部位。在进一步优选实施方案中，处理了由基因工程——如果合适还可与常规方法相结合——而获得的转基因植物和植物栽培种（遗传修饰生物）及其部位。术语“部位”或“植物的部位”或“植物部位”解释如上。

[0437] 特别优选地，各自市售的或使用的植物栽培种的植物均依据本发明进行处理。植物栽培种应理解为通过常规栽培得到的、以及通过诱变或者通过重组DNA技术得到的、具有新的特性（“特征”）的植物。这些可以是纯的品种、栽培种、生物型(biotype)或基因型。

[0438] 依据植物品种或植物栽培种、其种植地点和生长条件（土壤、气候、植物生长期、营养），本发明的处理也可产生超加和性(superadditive)（“协同”）效应。由此，例如，可获得超过实际预期的以下效果：降低本发明使用的物质和组合物的施用率和/或加宽其活性谱和/或提高其活性、改善植物生长、提高高温或低温耐受性、提高对干旱或对水或土壤含盐量耐受性、提高开花品质、使采收更简易、加速成熟、提高产量、改善采收产品的质量和/或提高其营养价值、改善采收产品的贮存稳定性和/或其加工性能。

[0439] 优选根据本发明处理的转基因植物或植物栽培种（即通过遗传工程获得）包括在基因修饰中接受了遗传物质的所有植物，所述遗传物质将特别有利的有用特性（“特征”）赋予所述植物。所述特性的实例为改善植物生长、提高高温或低温耐受性、提高对干旱或对水或土壤含盐量耐受性、提高开花品质、使采收更简易、加速成熟、提高产量、改善采收产品的质量和/或提高其营养价值、改善采收产品的贮存稳定性和/或其加工性能。需进一步和特别强调的所述特性的实例为改善植物对动物害虫和微生物害虫的抵抗力，例如对昆虫、螨虫、植物致病真菌、细菌和/或病毒的抵抗力，以及提高植物对某些除草活性化合物的耐受性。可提及的转基因植物的实例为重要的作物植物，例如谷物（小麦、稻）、玉米、大豆、马铃薯、棉花、油菜和果实植物（果实为苹果、梨、柑橘类水果以及葡萄），特别强调的为玉米、大豆、马铃薯、棉花、烟草和油菜。强调的特性特别是通过在植物体内形成毒素，特别是由苏云金杆菌(Bacillus thuringiensis)的遗传物质（例如基因CryIA(a)、CryIA(b)、CryIA(c)、CryIIA、CryIIIA、cryIIIB2、cry9c cry2Ab、Cry3Bb和CryIF及其结合）在植物体内形成的毒素，来提高植物对昆虫、蛛形纲动物、线虫和蜗牛的抵抗力（以下简称为“Bt植物”）。特别强调的特征还包括通过系统获得性抗性(SAR)、系统素、植物抗毒素、引发物以及抗性基因和相应的表达蛋白质和毒素来提高植物对真菌、细菌和病毒的抵抗力。进一步特别强调的特性为提高植物对某些除草活性化合物的耐受性，例如咪唑啉酮类、磺酰脲类、草甘膦(glyphosate)或膦基麦黄酮(phosphinotricin)（例如“PAT”基因）。赋予所述所需要特性的基因也可在转基因植物体内相互结合存在。可提及的“Bt植物”的实例有市售的商标名

称为YIELD GARD®（例如玉米、棉花、大豆）、KnockOut®（例如玉米）、StarLink®（例如玉米）、Bollgard®（棉花）、Nucoton®（棉花）及NewLeaf®（马铃薯）的玉米品种、棉花品种、大豆品种和马铃薯品种。可提及的具有除草剂耐受性的植物的实例有市售的商标名称为Roundup Ready®（具有草甘膦耐受性，例如玉米、棉花、大豆）、Liberty Link®（具有膦基麦黄酮耐受性，例如油菜）、IMI®（具有咪唑啉酮耐受性）和STS®（具有磺酰脲耐受性，例如玉米）的玉米品种、棉花品种和大豆品种。可提及的具有除草剂抗性的植物（以常规方式育种的除草剂耐受性植物）包括名称为Clearfield®的市售品种（例如玉米）。当然，以上叙述也适用于具有所述基因特性的或仍待开发基因特性的植物栽培种，所述植物栽培种将在未来进行开发和/或上市。

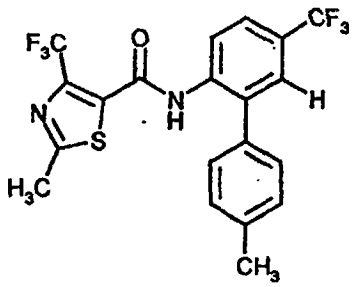
[0440] 所列植物可根据本发明以特别有利的方式用本发明的式（I）化合物或活性化合物混合物处理。上述活性化合物或混合物的优选范围也适用于这些植物的处理。特别强调用本说明书中所明确提出的化合物或混合物对植物进行处理。

[0441] 本发明的活性化合物的制备及用途由下列实施例示例说明。

[0442] 制备实施例

[0443] 实施例1（化合物1.15）

[0444]

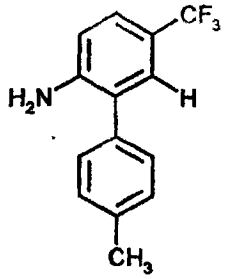


[0445] 室温下将2.5ml甲苯中的500mg(2.3mmol)2-甲基-4-（三氟甲基）-1,3-噻唑-5-羰基氯滴加至230mg(2.3mmol)三乙胺和600mg(2.3mmol)4'-甲基-5-三氟甲基-联苯-2-胺的10ml甲苯溶液中。将反应混合物在50℃下搅拌2小时，冷却至室温并随后用10ml水洗涤。将有机相用硫酸钠干燥并在真空下浓缩。粗产物通过色谱（正己烷/乙酸乙酯2：1，硅胶）。

[0446] 该反应得到650mg（理论产量的66％）纯度为89％的2-甲基-N-[4'-甲基-5-（三氟甲基）联苯-2-基]-4-（三氟甲基）-1,3-噻唑-5-甲酰胺[log P(pH2.3) = 4.48]。

[0447] 式（III）原料的制备

[0448]



[0449] 4'-甲基-5-（三氟甲基）联苯-2-胺

[0450] 在无氧气氛下，使5.2g(0.037mol)4-甲基苯基硼酸、5.0g(0.020mol)2-溴-4-三

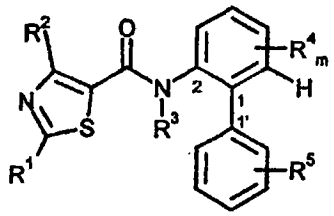
氟甲基苯胺和9.7g(0.092mol)碳酸钠悬浮于氩气气氛中的45ml1,2-二甲氧基乙烷和45ml水的混合物中。将反应混合物与0.85g四(三苯基膦)合钯(0)混合并在80℃下搅拌12小时。分离出有机相并用乙酸乙酯萃取水相。将合并的有机相用硫酸钠干燥并在真空下浓缩。剩余物通过色谱(正己烷/甲基叔丁基醚3 : 1,硅胶)。

[0451] 该反应得到3.3g(理论产量的62.5%)纯度为96.3%的4'-甲基-5-(三氟甲基)联苯-2-胺[log P(pH2.3) = 3.98]。

[0452] 通过与上述实施例相似的方式,并按照一般制备步骤,可获得以下表1中所列化合物。

[0453] 表1

[0454]



(I)

[0455]

编号	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	LogP /熔点(°C)
1.01	CH_3	CF_3	H	4-Cl	4'-F	3,90
1.02	CH_3	CF_3	H	4-Cl	4'-CH_3	4,30
1.03	CH_3	CF_3	H	4-Cl	4'-SCH_3	4,30
1.04	CH_3	CF_3	H	4-Cl	3'-CF_3	4,30
1.05	CH_3	CF_3	H	4-Cl	3'-NHC(O)CH_3	2,90
1.06	CH_3	CF_3	H	4-Cl	2'-CF_3	4,30
1.07	CH_3	CF_3	H	4-Cl	4'-CF_3	4,30
1.08	CH_3	CF_3	H	4-Cl	3'-OCH_3	3,90
1.09	CH_3	CF_3	H	4-Cl	3'-OC_2H_5	4,30
1.10	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	3'-NHC(O)CH_3	2,30
1.11	CH_3	CF_3	H	5-F	4'-OCF_3	4,44
1.12	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	2'-CH_3	2,30
1.13	CH_3	CF_3	H	5-CH_3	4'-CH_3	3,92 / 95-96°C
1.14	CH_3	CF_3	H	5-$CH(CH_3)_2$	4'-CH_3	4,59
1.15	CH_3	CF_3	H	5-CF_3	4'-CH_3	4,48
1.16	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	2'-OCH_3	3,20
1.17	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	2'-CF_3	3,10
1.18	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	3'-OC_2H_5	3,10
1.19	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	3'-C(O)CH_3	3,10
1.20	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	2'-Cl	3,20
1.21	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	3'-NO_2	3,50
1.22	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	4'-Br	3,50
1.23	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	4'-Cl	3,50
1.24	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	4'-CH_3	3,50
1.25	CH_3	CF_3	H	5-OCH_3	3'-CH_3	3,60

[0456] ogP 值的测定方法如下：按照 EEC 第 79/831 号手册附录 V.A8(EECDirective 79/831, Annex V.A8)，使用反相柱 (C18)HPLC（高效液相色谱）进行测定。温度：43℃。

[0457] 在酸性范围 (pH2.3) 内测定所用的洗脱剂：0.1％的磷酸水溶液，乙腈；线形梯度从 10％乙腈至 90％乙腈。

[0458] 用 logP 值已知的无支链的烷 -2- 酮（具有 3 至 16 个碳原子）标定（基于保留时间，通过在两个连续的烷酮之间线形插值的方式确定 logP 值）。

[0459] λ 最大值在 200nm 至 400nm UV 光谱的基础上在色谱信号最大值处计算。

[0460] 用途实施例

[0461] 实施例 A

[0462] 叉丝单囊壳试验（苹果）/ 保护性

[0463] 溶剂： 24.5 重量份丙酮

[0464] 24.5 重量份二甲基乙酰胺

[0465] 乳化剂： 1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

[0466] 为制备适合的活性化合物制剂，将 1 重量份的活性化合物与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将浓液用水稀释至所需浓度。

[0467] 将幼年的植株用活性化合物制剂以所述施用率喷洒，以测试保护活性。喷洒薄层变干后，将植株用白叉丝单囊壳 (Podosphaeraleucotricha) 的孢子水悬浮液接种。然后将植株放入约 23℃、相对湿度约 70％的温室中。

[0468] 接种 10 天后评估结果。0％药效表示与对照组药效相等，而 100％药效表示未观察到侵染。

[0469] 实施例 B

[0470] 黑星菌试验（苹果）/ 保护性

[0471] 溶剂： 24.5 重量份丙酮

[0472] 24.5 重量份二甲基乙酰胺

[0473] 乳化剂： 1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

[0474] 为制备适合的活性化合物制剂，将 1 重量份的活性物质与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将浓液用水稀释至所需浓度。

[0475] 将幼年的植株用活性化合物制剂以所述施用率喷洒，以测试保护活性。喷洒薄层变干后，将植株用苹果黑星病 (apple scab) 真菌苹果黑星病菌 (Venturia inaequalis) 的分生孢子水悬浮液接种，然后在约 20℃、100％相对湿度的培养室中放置 1 天。

[0476] 然后将植株放入约 21℃、相对湿度约 90％的温室中。

[0477] 接种 10 天后评估结果。0％药效表示与对照组药效相等，而 100％药效表示未观察到侵染。

[0478] 实施例 C

[0479] 葡萄孢试验（豆）/ 保护性

[0480] 溶剂： 24.5 重量份丙酮

[0481] 24.5 重量份二甲基乙酰胺

[0482] 乳化剂： 1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

[0483] 为制备适合的活性化合物制剂，将 1 重量份的活性化合物与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将浓液用水稀释至所需浓度。

[0484] 将幼年的植株用活性化合物制剂以所述施用率喷洒，以测试保护活性。喷洒薄层变干后，将 2 小片侵染了灰葡萄孢 (Botrytiscinera) 的琼脂放在每片叶子上。将接种后的植株放入 20℃、100％相对湿度的暗室中。

[0485] 接种 2 天后评估叶子上侵染斑的大小。0％药效表示与对照组药效相等，100％表示未观察到侵染。

[0486] 实施例 D

[0487] 圆核腔菌试验（大麦）/ 保护性

[0488] 溶剂： 50 重量份 N,N- 二甲基乙酰胺

[0489] 乳化剂： 1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

[0490] 为制备适合的活性化合物制剂，将 1 重量份的活性化合物与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将浓液用水稀释至所需浓度。

[0491] 将幼年的植株用活性化合物制剂以所述施用率喷洒，以测试保护活性。喷洒薄层变干后，将植株用圆核腔菌 (Pyrenophora teres) 的分生孢子悬浮液喷洒。将植株放在 20℃、100％相对湿度的培养室中 48 小时。

[0492] 然后将植株放在约 20℃、80％相对湿度的温室中。

[0493] 接种 7 天后评估结果。0％药效表示与对照组药效相等，而 100％药效表示未观察到侵染。

[0494] 实施例 E

[0495] 链格孢试验（番茄）/ 保护性

[0496] 溶剂： 49 重量份 N，N- 二甲基甲酰胺

[0497] 乳化剂： 1 重量份烷基芳基聚乙二醇醚

[0498] 为制备适合的活性化合物制剂，将 1 重量份的活性化合物与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将浓液用水稀释至所需浓度。

[0499] 将幼年的番茄植株用活性化合物制剂以所述施用率喷洒，以测试保护活性。处理一天后，用索兰尼式链格孢 (Alternariasolani) 的孢子悬浮液对植株进行接种，然后在 20℃、100％相对湿度下放置 24 小时。然后，将植株放置在 96％相对湿度、20℃温度的环境中。

[0500] 接种 7 天后评估结果。0％药效表示与对照组药效相等，100％药效表示未观察到侵染。