

(12) 按照专利合作条约所公布的国际申请

(19) 世界知识产权组织
国际局

(43) 国际公布日
2020年2月20日 (20.02.2020)

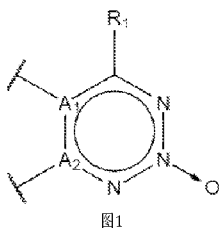


(10) 国际公布号
WO 2020/034601 A1

- (51) 国际专利分类号:
C07D 487/04 (2006.01) *C06B 25/34* (2006.01)
- (21) 国际申请号: PCT/CN2019/073473
- (22) 国际申请日: 2019年1月28日 (28.01.2019)
- (25) 申请语言: 中文
- (26) 公布语言: 中文
- (30) 优先权:
201810929060.X 2018年8月15日 (15.08.2018) CN
- (71) 申请人: 中国工程物理研究院化工材料研究所 (INSTITUTE OF CHEMICAL MATERIALS OF CHINA ACADEMY OF ENGINEERING AND PHYSICS) [CN/CN]; 中国四川省绵阳市绵山路64号, Sichuan 621000 (CN)。
- (72) 发明人: 张庆华 (ZHANG, Qinghua); 中国四川省绵阳市绵山路64号, Sichuan 621000 (CN)。邓沐聪 (DENG, Mucong); 中国四川省绵阳市绵山路64号, Sichuan 621000 (CN)。冯永安 (FENG, Yongan); 中国四川省绵阳市绵山路64号, Sichuan 621000 (CN)。
- (74) 代理人: 北京市万慧达律师事务所 (BEIJING WANHUIDA LAW FIRM); 中国北京市海淀区中关村南大街1号友谊宾馆颐园写字楼2楼, Beijing 100873 (CN)。
- (81) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的国家保护): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW。
- (84) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的地区保护): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT,

(54) Title: COMPOUND AND PREPARATION AND APPLICATION THEREOF

(54) 发明名称: 化合物及其制备和应用



(57) Abstract: Disclosed is a compound with the structure comprising the structure shown in the drawing of the abstract. Also disclosed are a preparation method for the compound, a precursor used in the preparation method, an explosive comprising the compound, and an application of the compound in the field of explosives, particularly an application in the green and environment-friendly initiating explosive. The compound can provide a green and environment-friendly initiating explosive, so as to satisfy the demand of the green and environment-friendly initiating explosive in many fields such as the military industry, fire engineering, and civil explosion engineering. Moreover, the preparation method for the compound is simple, and the compound can be prepared only through simple reaction steps and conditions. No pollution is produced in the reaction process and the using process. The compound structure does not require metal, and thus is environment-friendly and reliable, has good stability, high impact sensitivity and friction sensitivity, and high initiating ability, and has appropriate limit priming charge.

(57) 摘要: 本发明公开了一种化合物, 其结构包括摘要附图中所示的结构。本发明又公开了此化合物的制备方法、制备方法中所用的前体物质, 包括此化合物的炸药以及此化合物在炸药领域上的应用, 特别是在绿色环保型起爆药上的应用。本发明所公开的化合物, 能够提供一种绿色环保型的起爆药, 满足军工、火工、民爆工程等众多领域亟需绿色环保型起爆药的问题。而且, 本发明所公开的化合物, 其制备方法简单, 只需简单的反应步骤及条件即可制得; 反应过程及使用过程中无污染; 化合物结构中不需要金属, 绿色可靠; 稳定性佳, 撞击感度、摩擦感度高; 起爆能力高, 并具备合适使用的极限起爆药量。

WO 2020/034601 A1

RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI,
CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

本国际公布：

- 包括国际检索报告(条约第21条(3))。

化合物及其制备和应用

技术领域

本发明涉及化学领域，更具体涉及一种化合物、其制备方法及其中的前体物质、其应用和具备该化合物的炸药。

背景技术

起爆药作为火工品和武器中的重要组成部分，对它的研究一直是一个重要的科学课题。但相对于现代火工品和武器的发展而言，它的研究长期以来进展缓慢。一百多年来，叠氮化铅、斯蒂芬酸铅仍然是主要应用于军用火工品的两个起爆药品种。随着武器弹药用火工品安全性的要求越来越高，叠氮化铅、斯蒂芬酸铅在性能上的缺陷也越来越明显。

叠氮化铅机械感度过高，无约束条件下受轻微刺激直接产生爆轰，火焰针刺感度也较差。斯蒂芬酸铅对静电极为敏感，静电放电起爆能量仅 10^{-4} J。这些常常导致火工品及药剂勤务处理和使用中发生重大事故，也阻碍了先进火工品的发展。

从环保角度来看，火工品当前面临没有绿色环保型起爆药可选的困境。据统计，在现有已生产定性的二十余种单质起爆药中，只有二硝基重氮酚(DDNP)、四氮烯两种起爆药不含金属成分，二硝基苯并氧化吡啶钾(KDNBF)含有轻金属钾。其它起爆药均含汞、铅、钡、镉等有毒金属成分。而 DDNP 由于极限药量大而仅限于在民爆工程雷管中应用，且合成过程中产生大量废水污染环境。四氮烯仅作为机械感度敏化剂使用，用量仅为配方的 5%，不能单独使用。二硝基苯并氧化吡啶钾由于起爆能力、感度性能、流散性等多方面的缺陷而极少地应用于动力源火工品的电点火头。

随着现代战争环境的恶劣和火工品新起爆技术的发展，现役起爆药难以满足先进火工品技术指标要求。特别是精确打击与速射武器弹药引信火工品、耐高过载火工品、激光、半导体桥、冲击片火工品几乎没有适用性的含能材料可选。

因此，在军工、火工、民爆工程等众多领域中，亟需一种绿色环保型的起爆药。

发明内容

为了克服现有技术的不足，本发明所解决的技术问题是：提供一种绿色环保型的起爆药，满足军工、火工、民爆工程等众多领域亟需绿色环保型起爆药的问题。

为解决上述技术问题，本发明所采用的技术方案如下：

一种化合物，其结构包括图1所示的结构。

优选地是，此化合物为稠环化合物，稠环化合物至少包括图1所示的结构及多元环。更优选地，图1所示的结构中， A_1 及 A_2 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。其中优选地，图1所示的结构中， A_1 及 A_2 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。更优选地，图1所示的结构中， A_1 及 A_2 为碳原子。同样优选地，图1所示的结构中， A_1 及 A_2 其中之一者为氮原子，另一者为碳原子。更优选地，图1所示的结构中， A_1 为氮原子， A_2 为碳原子。

优选地，此化合物为包括二个至三个环的稠环化合物。其中优选地，化合物为包括二个环的稠环化合物。同样优选地，化合物为包括三个环的稠环化合物。优选地，此稠环化合物为图1所示的结构与此多元环的稠环化合物。优选地，此稠环化合物中，图1所示的结构及此多元环共用两个碳原子。

其中优选地，多元环由碳原子所组成。又优选地，多元环为选自三元环、四元环、五元环、六元环、七元环及八元环的其中一种或多种。其中优选地，多元环为选自五元环、六元环及七元环的其中一种或多种。更优选地，多元环为五元环及六元环的其中一种或多种。更优选地，多元环为五元环。同样优选地，多元环为六元环。另一方面优选地，此多元环为多个多元环。其中优选地，多个多元环包括五元环及六元环。更优选地，多个多元环为五元环及六元环。

优选地，多元环为选自茂环、苯环及萘环的其中一种。其中优选地，多元环为苯环。或优选地，此多元环为杂环，杂环的杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中一种。优选地，杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中二种。更优选地，杂原子为氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子或碲原子中的其中一种。更优选地，杂原子为氮原子或氧原子。更优选地，杂原子为选自氮原子及氧原子的其中一种。更优选地，杂原子为氮原子。同样优选地，杂原子为氧原子。优选地，杂环包括1个、2个、3个、4个或5个杂原子。其中优选地，杂环包括1个、2个、3个、4个或5个氮原子。同样优选地，杂环包括1个氧原子。其中优选地，此多元环为选自咪唑、吡咯、噻吩、咪唑、吡唑、噁唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种。更优选地，多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种。更优选地，多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶及吡嗪的其中一种。更优选地，多元环为选自咪唑及吡唑的其中一种。更优选

地,多元环为吡唑。或优选地,多元环为咪唑。同样优选地,多元环为选自吡嗪、吡啶及吡嗪的其中一种。更优选地,多元环为吡嗪。或优选地,多元环为吡啶。或优选地,多元环为吡嗪。同样优选地,多元环为三唑类。更优选地,多元环为1,2,4-三唑。同样优选地,多元环为三唑类。更优选地,多元环为1,2,3-三唑。或优选地,多元环为1,2,4-三唑。同样优选地,多元环为选自呋喃、呋喃及噻唑的其中一种。更优选地,多元环为呋喃。或优选地,多元环为呋喃。

优选地,此多元环上包括取代基。更优选地,取代基为选自:饱和烃烷基,包括烷基;官能团化饱和烃烷基,包括硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基、卤代烷基;醇基;醚基;硫醚基;羧酸基、酯基、硝酸酯基、磺酸基、磺酸酯基;酮基、酰胺基、酰肼基;醛基;不饱和脂肪族烷基,包括烯基、炔基、卤代烯基、硝基炔基;不饱和芳香烃基,包括单环芳基、多环芳基、稠环芳基和官能团化的单环芳基、官能团化的多环芳基、官能团化的稠环芳基;杂环芳香基,包括噻吩、吡啶、呋喃、咪唑、噻吩、咪唑、噻吩及其对应的单官能团化或多官能团化基团;杂环非芳香基,包括氮杂桥环、氧杂桥环;卤原子;氧基、肟基;氨基、亚氨基、偶氨基、氧化偶氨基、叠氨基、肼基;羟基、羟氨基、烷氧基;硝氨基;及硝基及亚硝基的其中一种。其中优选地,取代基为选自硝基、亚硝基、硝氨基、羟氨基、氧基、肟基、氨基、亚氨基、偶氨基、氧化偶氨基、叠氨基、肼基、氮杂桥环、吡啶咪唑、噻吩、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基及硝基炔基的其中一种。同样优选地,取代基为选自羟基、羟氨基、烷氧基、醇基、醚基、硫醚基、羧酸基、酯基、硝酸酯基、磺酸基、磺酸酯基、酮基、酰胺基、酰肼基、醛基、硝基炔基、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基、呋喃、噻吩类环及氧杂桥环的其中一种。更优选地,取代基为选自硝基、亚硝基、硝氨基、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基及硝基炔基的其中一种。更优选地,取代基为选自硝基及亚硝基的其中一种。更优选地,取代基为硝基。同样优选地,取代基为选自氨基、亚氨基、硝氨基、羟氨基及肼基的其中一种。更优选地,取代基为选自氨基及亚氨基的其中一种。更优选地,取代基为氨基。其中优选地,取代基为硝氨基。同样优选地,取代基为选自叠氨基、偶氨基、氧化偶氨基及肼基的其中一种。更优选地,取代基为叠氨基。同样优选地,取代基为卤原子。更优选地,取代基为选自氟、氯、溴及碘的其中一种。更优选地,取代基为氯。另一方面优选地,取代基位于多元环的碳原子上。

优选地,图1所示的结构中的取代基 R_1 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 、图2所示的结构中的其中一种,其中 $m+p=2n+1$ 。更优选地,图1所示的结构中的取代基 R_1 为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种。更优选地, R_1 为叠氨基。更优选地, R_1 为氨基。更优选地, R_1 为硝基。更优选地, R_1 为硝氨基。同样优选地, R_1 为选自氟、氯、溴、碘中的其中一种。更优选地, R_1 为氯。另外优选地, R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 n 、 p 为正整数。更优选地, R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数。更优选地, R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数,且 $n=1$ 、2、3或4。

另一方面优选地,图2所示的结构中, A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。更优选地,图2所示的结构中, A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种。更优选地,图2所示的结构中, A_1 至 A_5 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。更优选地,图2所示的结构中, A_1 至 A_5 为碳原子。另一方面优选地,图2所示的结构中, A_1 至 A_5 的取代基数为0、1、2、3或4个。并且优选地, R_2 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及图2所示的结构中的其中一或多个,其中 $m+p=2n+1$ 。另外优选地, R_2 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 n 、 p 为正整数。更优选地, R_2 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数。更优选地, R_2 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数,且 $n=1$ 、2、3或4。

优选地,此稠环化合物至少包括图3所示的结构,其中 A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。更优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种。更优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。另优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_2 为碳原子。与此同时优选地,图3所示的结构中, A_3 至 A_5 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种。更优选地,图3所示的结构中, A_3 至 A_5 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。其中优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 包括0、1、2、3、4或5个氮原子,其余为碳原子。其中优选地,图3所示的结构中, A_3 至 A_5 包括0、1、2或3个氮原子,其他的是碳原子。其中优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 组成一个呋喃环。更优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_2 为碳原子, A_3 及 A_5 为氮原子,且 A_4 为氧原子。更优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_2 为碳原子, A_3 及 A_5 为氮原子, A_4 为氧原子,且 A_3 有一个氧取代基, A_3 与氧取代基形成配位键。同样优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 组成一个二唑环。其中优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 组成一个吡唑环。更优选地,图3所示的结构中, A_1 、 A_2 及 A_5 为碳原子,且 A_3 及 A_4 为氮原子。其中优选地,图3所示的结构中, A_5 上有硝基取代基。特别优选地,图3所示的结构中, A_1 、 A_2 及 A_5 为碳原子, A_3 及 A_4 为氮原子,且图3所示的结构中, A_5 上有硝基取代基。同样优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 组成一个咪唑环。其中优选地,图3所示的结构中, A_1 、 A_2 及 A_4 为碳原子,且 A_3 及 A_5 为氮原子。另一方面优选地,图3所示的结构中, A_1 至 A_5 上的取代基数为0、1、2、3或4个。并且优选地, R_3 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、氧、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及图2所示的结构中的其中一或多个,其中 $m+p=2n+1$ 。另外优选地, R_3 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 n 、 p 为正整数。更优选地, R_3 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数。更优选地, R_3 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数,且 $n=1$ 、2、3或4。

优选地,此稠环化合物至少包括图4所示的结构,其中 A_1 至 A_6 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。更优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_6 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。另优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_2 为碳原子。与此同时优选地,图4所示的结构中, A_3 至 A_6 选自

碳原子及氮原子中的一种或二种。其中优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_6 包括0、1、2、3、4、5或6个氮原子,其余为碳原子。其中优选地,图4所示的结构中, A_3 至 A_6 包括0、1、2、3或4个氮原子,其余为碳原子。特别优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_6 为碳原子。同样优选地,图4所示的结构中, A_4 、 A_5 为氮原子。更优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_3 、 A_6 为碳原子,且 A_4 、 A_5 为氮原子。同样优选地,图4所示的结构中, A_3 至 A_5 为氮原子。更优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_2 、 A_6 为碳原子,且 A_3 至 A_5 为氮原子。特别优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_2 、 A_6 为碳原子, A_3 至 A_5 为氮原子, A_4 有一个氧取代基, A_4 与氧取代基形成配位键,且 A_6 有一个叠氮取代基。另一方面优选地,图4所示的结构中, A_1 至 A_6 上的取代基数合计为0、1、2、3、4或5个。并且优选地, R_4 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、氧、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及图2所示的结构中的其中一或多个,其中 $m+p=2n+1$ 。另外优选地, R_4 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 n 、 p 为正整数。更优选地, R_4 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数。更优选地, R_4 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数,且 $n=1$ 、2、3或4。

优选地,稠环化合物至少包括图5所示的结构,其中 A_1 至 A_9 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。更优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_9 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种。更优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_9 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。另优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_2 为碳原子。与此同时优选地,图5所示的结构中, A_3 至 A_9 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种。更优选地,图5所示的结构中, A_3 至 A_9 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。其中优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_9 包括0、1、2、3、4、5、6、7、8或9个氮原子,其余为碳原子。其中优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_6 包括0、1、2、3、4、5或6个氮原子,其余为碳原子。同样优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 包括0、1、2、3、4或5个氮原子,其余为碳原子。其中优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 组成一个呋喃环。同样优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 组成一个三唑环。更优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 组成一个1,2,4-三唑环。同样优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_6 组成一个二噁环。更优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_6 组成一个吡嗪环。同样优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_6 组成一个三嗪环。更优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_6 组成一个1,2,4-三嗪环。更优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 组成一个呋喃环,且 A_1 至 A_6 组成一个二噁环。特别优选地,图5所示的结构中, A_1 、 A_2 、 A_4 、 A_5 为碳原子, A_3 、 A_6 、 A_7 、 A_9 为氮原子,且 A_8 为氧原子。同样优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 组成一个三唑环,且 A_1 至 A_6 组成一个三嗪环。更优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 组成一个1,2,4-三唑环,且 A_1 至 A_6 组成一个1,2,4-三嗪环。特别优选地,图5所示的结构中, A_2 、 A_3 、 A_5 、 A_8 为碳原子,且 A_1 、 A_4 、 A_6 、 A_7 、 A_9 为氮原子。另一方面优选地,图5所示的结构中, A_1 至 A_6 上的取代基数合计为0、1、2、3、4或5个。更优选地,图5所示的结构中, A_4 、 A_5 、 A_7 至 A_9 上的取代基数合计为0、1、2、3或4个。并且优选地, R_5 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、氧、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及图2所示的结构中的其中一或多个,其中 $m+p=2n+1$ 。另外优选地, R_5 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 n 、 p 为正整数。更优选地, R_5 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数。更优选地, R_5 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数,且 $n=1$ 、2、3或4。

优选地,此稠环化合物包括图1所示的结构及3-硝基吡嗪。更优选地,此化合物的结构包括图8所示的结构。更优选地,此化合物的结构包括图7所示的结构。更优选地,此化合物的结构为图7所示的结构。更优选地,图7所示的结构分析测定结果如下: DSC(160°C, 50°C-250°C, 5°C·min⁻¹); ¹H NMR(400MHz, DMSO-d₆, 25°C) δ(ppm): 14.51(brs, 1H, NH); ¹³C NMR(100MHz, DMSO-d₆, 25°C) δ(ppm): 157.95, 157.31, 148.07, 90.03; IR(KBr, γ/cm⁻¹): 3414(m); 3231(m); 2154(s); 1600(s); 1543(s); 1403(s); 1384(s); 1313(m); 1209(m); 1131(m); 元素分析 C₄H₃N₃O₃(%): 实测值(计算值) C: 21.62(21.53), H: 0.47(0.45), N: 56.61(56.50), O: 21.22(21.51)。

或优选地,此化合物的结构包括图13所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图15所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图17所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图19所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图21所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图23所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图25所示的结构;或优选地,此化合物的结构包括图27所示的结构。其中优选地,上述图所示的结构中的取代基 R_1 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 、图2所示的结构中的其中一种,其中 $m+p=2n+1$ 。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氮基中的其中一种。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为叠氮基。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为氨基。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为硝基。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为硝氨基。同样优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为选自氟、氯、溴、碘中的其中一种。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为氯。另外优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 n 、 p 为正整数。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数。更优选地,上述图所示的结构中的 R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种,其中 m 、 n 、 p 为正整数,且 $n=1$ 、2、3或4。另外优选地,优选地,图8所示的结构中的 R_3 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、氧、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及所述式(B)结构中的其中一或多个,其中 $m+p=2n+1$ 。更优选地,图8所示的结构中的所述 R_3 为硝基。

或优选地,此稠环化合物包括图1所示的结构及2-氧化呋喃。或优选地,此稠环化合物包括二个图1所示的结构;更优选地,此稠环化合物包括二个相同的图1所示的结构;更优选地,此稠环化合物包括二个图1所示的结构,二个图1所示的结构共用 A_1 及 A_2 。

或优选地,此化合物的结构包括图12、图14、图16、图18、图20、图22、图24或图26所示的结构;更优选地,此化合物的结构为图12、图14、图16、图18、图20、图22、图24或图26所示的结构。

本发明更公开了此化合物在其制备方法中的一种前体物质。具体来说,此前体物质是包括图6所示的结构的一种化合物。

优选地,图6所示的结构中, A_{10} 及 A_{11} 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。更优选地,图6所示的结构中, A_{10} 及 A_{11} 选自碳原子及氮原子中的一种或二种。更优选地,图6所示的结构中, A_{10} 及 A_{11} 为碳原子。同样优选地,图6所示的结构中, A_{10} 及 A_{11} 的其中之一者为氮原子,另一者为碳原子。

优选地是,此化合物包括多元环。更优选地,多元环为选自三元环、四元环、五元环、六元环、七元环及八元环的其中一种或多种。更优选地,多元环为选自五元环、六元环及七元环的其中一种或多种。更优选地,多元环为五元环及六元环的其中一种或多种。更优选地,多元环为五元环。同样优选地,多元环为六元环。

优选地,多元环由碳原子所组成。更优选地,多元环为选自茂环、苯环及萘环的其中一种。更优选地,多元环为苯环。或优选地,多元环为杂环,杂环的杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中一种。更优选地,杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中二种。或优选地,杂原子为氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子或碲原子中的其中一种。更优选地,杂原子为氮原子或氧原子。优选地,杂原子为选自氮原子及氧原子的其中一种。更优选地,杂原子为氮原子。其中优选地,多元环为选自咪唑、吡咯、噻吩、咪唑、吡唑、噁唑、噻唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种。更优选地,多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种。更优选地,多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种。更优选地,多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶及吡嗪的其中一种。更优选地,多元环为选自咪唑及吡唑的其中一种。更优选地,多元环为吡唑。或优选地,多元环为选自哒嗪、吡啶及吡嗪的其中一种。更优选地,多元环为哒嗪。或优选地,多元环为四唑类。

优选地,多元环上包括取代基。更优选地,取代基为选自:饱和烃基,包括烷基;官能团化饱和烃基,包括硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基、卤代烷基;醇基;醚基;硫醚基;羧基;酯基;硝酸酯基;磺酸基;磺酯基;酮基;酰胺基;酰肼基;醛基;不饱和脂肪族烃基,包括烯基、炔基、卤代烯基、硝基炔基;不饱和芳香烃基,包括单环芳基、多环芳基、稠环芳基和官能团化的单环芳基、官能团化的多环芳基、官能团化的稠环芳基;杂芳香基,包括噻吩、吡啶、呋喃、唑类环、噻吩环、噁唑类环及其对应的单官能团化或多官能团化基团;杂非芳香基,包括氮杂桥环烃、氧杂桥环烃;卤原子;氰基;肟基;氨基、亚氨基、偶氨基、氧化偶氨基、叠氨基、肼基;羟基、羟氨基、烷氧基;硝氨基;及硝基及亚硝基的其中一种。更优选地,取代基为选自硝基、亚硝基、硝氨基、羟氨基、氰基、肟基、氨基、亚氨基、偶氨基、氧化偶氨基、叠氨基、肼基、氮杂桥环烃、吡啶唑类环、噻吩环、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基及硝基炔基的其中一种。更优选地,取代基为选自氧基及肟基的其中一种。或优选地,取代基为选自氨基、亚氨基、硝氨基、羟氨基及肼基的其中一种。更优选地,取代基为选自氨基及亚氨基的其中一种。更优选地,取代基为氨基。另一方面优选地,取代基位于多元环的碳原子上。

优选地,化合物包括3-氨基-4-氧基吡唑的结构。同样优选地,化合物包括4-氨基-5-氧基咪唑的结构。同样优选地,化合物包括1-氨基-2-氧基苯的结构。同样优选地,化合物包括4-氨基-5-氧基哒嗪的结构。同样优选地,化合物包括3,3'-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈的结构。特别优选地,化合物为3-氨基-4-氧基吡唑。同样优选地,化合物为4-氨基-5-氧基咪唑。同样优选地,化合物为1-氨基-2-氧基苯。同样优选地,化合物为4-氨基-5-氧基哒嗪。同样优选地,化合物为3,3'-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈。

本发明更公开了一种化合物的制备方法,包括:将前体物质(即前述包括图6所示的结构的化合物)分散于溶剂中;加入盐类及叠氮化物,在第一反应温度下反应第一反应时间;加入酸,进行纯化,得到中间产物;将中间产物加入硝化体系当中,在第二温度下硝化反应第二反应时间;终止硝化反应;进行纯化。

优选地是,此包括图6所示的结构的化合物为上述优选的前体物质化合物。另一方面优选地,中间产物为3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑。优选地是,此化合物制备方法为本发明所公开的,包括图1所示的结构的化合物的制备方法。更优选地是,此化合物制备方法为本发明所公开的,上述优选的包括图1所示的结构的化合物的制备方法。

优选地,溶剂为NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砷、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的其中一种,或二种或多种的混合物。其中优选地,溶剂的用量体积与包括图6所示的结构的化合物质量的比值为2 mL/g至2 mL/mg。

优选地,盐类为通式 M_nX_m 的化合物,其中M为Fe、Co、Ni、Mn、Zn、Cd、Au、Ag、Cu、Cr、Al、V、 NH_4 、 $(CH_3)_2NH_2$ 、 $(CH_3)_3NH$ 、 $(CH_3CH_2)_2NH_2$ 及 $(CH_3CH_2)_3NH$ 的其中一种,或二种或多种的混合,而X为F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 $HCOO$ 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(COO)_2$ 及 $CH_2(COO)_2$ 的

其中一种,或二种或多种的混合。其中优选地,盐类与包括图6所示的结构的化合物的摩尔比为1:1至6:1。更优选地,盐类与包括图6所示的结构的化合物的摩尔比为20:9至50:9。另一方面优选地,叠氮化物为通式 $R_n(N_3)_6$ 的化合物,其中R为选自Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni及H的其中一种,或二种或多种的混合。更优选地,叠氮化物与包括图6所示的结构的化合物的摩尔比为1:1至6:1。另一方面优选地,第一温度为介于-20℃至130℃之间的温度。更优选地,第一温度为介于-10℃至130℃之间的温度。另优选地,第一反应时间为介于2小时至24小时。更优选地,第一反应时间为介于2小时至10小时。更优选地,第一反应时间为介于2小时至8小时。

优选地,酸为:硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸及三氟乙酸中的任意一者或多者。此外优选地,其中加入酸为加入酸将反应体系调整至第一pH值,第一pH值介于1-4之间。更优选地,第一pH值介于1.0至3.5之间。更优选地,第一pH值介于2.0至3.0之间。

优选地,硝化体系为发烟硝酸、100%硝酸、五氧化二氮、四氟硼酸、100%硝酸/三氟乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、100%硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、发烟硝酸/乙酸酐、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸或发烟硫酸/100%硝酸。其中优选地,硝化体系为100%硝酸、100%硝酸/乙酸酐、100%硝酸/三氟乙酸酐、硝酸/乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、五氧化二氮、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸或发烟硫酸/100%硝酸,且中间产物质量与硝化体系体积的比为1g:5mL至1g:50mL。同时优选地,硝化体系为四氟硼酸,且中间产物与硝化体系体积的摩尔比为1:1至1:50。另一方面优选地,第二温度为介于-20℃至130℃之间的温度。更优选地,第二温度为-20℃至110℃之间的温度。更优选地,第二温度为-20℃至100℃之间的温度。更优选地,第二温度为-20℃至室温之间的温度。更优选地,第二温度为室温。同样优选地,第二温度为40℃至80℃之间的温度。更优选地,第二温度为50℃至70℃之间的温度。另外优选地,第二反应时间为0.5至48小时。更优选地,第二反应时间为0.5至12小时。更优选地,第二反应时间为1至4小时。此外优选地,终止硝化反应为将所得产物加入冰水中。

优选地,此制备方法更包括将终止硝化反应后的所得产物分散于溶剂中,通入氯气气流。更优选地,氯气气流不溶或难溶于溶剂。另优选地,通入氯气气流反应温度为介于30℃至100℃。更优选地,通入氯气气流反应温度为介于50℃至90℃。更优选地,通入氯气气流反应温度为介于60℃至70℃。另优选地,通入氯气气流反应时间为介于1小时至10小时。更优选地,通入氯气气流反应时间为介于1小时至5小时。更优选地,通入氯气气流反应时间为介于1小时至3小时。

优选地,此制备方法更包括将终止硝化反应后的所得产物分散于溶剂中,加入浓氨水,并进行回流反应。更优选地,浓氨水溶于溶剂。另优选地,浓氨水的浓度为介于10%至32%。另优选地,终止硝化反应后的所得产物的质量和浓氨水的体积的比介于1g:1mL至1g:100mL。更优选地,终止硝化反应后的所得产物的质量和浓氨水的体积的比介于1g:5mL至1g:20mL。更优选地,终止硝化反应后的所得产物的质量和浓氨水的体积的比介于1g:6mL至1g:12mL。另优选地,回流反应的反应时间为介于0.5小时至24小时。更优选地,回流反应的反应时间为介于1小时至12小时。更优选地,回流反应的反应时间为介于2小时至8小时。

优选地,此制备方法更包括将加入浓氨水并进行回流反应的所得产物加入氧化性溶液。其中优选地,氧化性溶液为选自浓硫酸与30%双氧水的混合溶液、浓硫酸与50%双氧水的混合溶液、浓硫酸与三氟乙酸的混合溶液、浓硫酸与过氧乙酸的混合溶液及浓硫酸与乙酸酐混合溶液中的一种或多种。另优选地,加入氧化性溶液的反应时间为介于0.5至12小时。所述优选地,加入氧化性溶液的反应时间为介于0.5至4小时。

优选地,此制备方法更包括在加入浓氨水并进行回流反应之后,将所得到的产物加入另一个硝化体系当中,在另一个第二温度下硝化反应另一个第二反应时间。

优选地,此制备方法更包括将丙二腈和亚硝酸盐分散于溶剂中。其中优选地,亚硝酸盐为通式 MNO_2 的化合物,其中M为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb及Cs的其中一种,或二种或多种的混合。另优选地,此处的溶剂为N,N-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种,或二种或多种的混合物。

优选地,此制备方法更包括加入羟胺化合物。其中优选地,羟胺化合物为羟胺盐类。其中优选地,羟胺盐类为通式 $(NH_2OH)_nX_n$ 的化合物,其中X为选自F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 $HCOO$ 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(COO)_2$ 及 $CH_2(COO)_2$ 的其中一种,或二种或多种的混合。更优选地,羟胺化合物为羟胺卤代盐类。更优选地,羟胺化合物为盐酸羟胺。另优选地,加入羟胺化合物的反应温度为介于-20℃至130℃之间的温度。更优选地,加入羟胺化合物的反应温度为介于-20℃至40℃之间的温度。更优选地,加入羟胺化合物的反应温度为介于-10℃至40℃之间的温度。另优选地,加入羟胺化合物的反应时间为介于2-24小时的时间。更优选地,加入羟胺化合物的反应时间为介于2-10小时的时间。更优选地,加入羟胺化合物的反应时间为介于3-5小时的时间。

优选地,此制备方法更包括在加入羟胺化合物后,加入碱及酯类化合物。其中优选地,碱为通式 $M_n(OH)_m$ 的化合物,其中M为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb、Cs、Ca、Sr、Ba的其中一种,或二种或多种的混合。另一方面优选地,酯类化合物为通式 R^1COOR^2 的化合物,其中 R^1 、 R^2 为选自甲基、乙基、丙基、异丙基、

伯丁基、仲丁基、叔丁基以及各种烷基、各种己基的其中一种，或二种或多种的混合。

优选地，此制备方法更包括在加入碱及酯类化合物后，加入酸及二氧化铅。优选地，此制备方法更包括加入浓盐酸，进行回流反应。优选地，此制备方法更包括将所得产物溶于二氯亚砷并加入 NN-二甲基甲酰胺，进行回流反应。优选地，此制备方法更包括加入氮化物。其中优选地，氮化物为通式 $R_n(N)_m$ 的化合物，其中 R 为选自 Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni 及 H 的其中一种，或二种或多种的混合。优选地，此制备方法更包括加入硝基乙腈化合物。其中优选地，硝基乙腈化合物为硝基乙腈盐类。其中优选地，硝基乙腈化合物为通式 $M_n(CH(NO_2)CN)_m$ 的化合物，其中 M 为选自 Li、Na、K、Rb、Cs 的其中一种，或二种或多种的混合。其中优选地，硝基乙腈化合物为硝基乙腈钠盐。

优选地，此制备方法包括以下步骤：

步骤一：合成 3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑

在一定温度下，将 3-氨基-4-氧基吡唑分散于溶剂中，接着分批加入特定的盐 (M_nX_m)、叠氮化物，然后在一定温度下继续反应，再向其中滴加酸，而后过滤，洗涤，将固体干燥，得到白色粉末，即 3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑。优选地，步骤一中反应温度为 -10°C - 130°C 。优选地，步骤一溶剂是 NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砷、四氢吡喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯中的任意一种，溶剂体积用量与 3-氨基-4-氧基吡唑投料质量比为 2mL/g - 20mL/g 。优选地，步骤一中盐的物质的量之比为 $n(M_nX_m)$: $n(3\text{-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑}) = 1:1-6:1$ 。盐的组成为：M = Fe、Co、Ni、Mn、Zn、Cd、Au、Ag、Cu、Cr、Al、V、NH₄、(CH₃)₂NH₂、(CH₃)₃NH、(CH₃CH₂)₂NH₂ 或 (CH₃CH₂)₃NH，X = F、Cl、Br、I、NO₃、SO₄、HSO₄、CO₃、HCO₃、HCOO、CH₃COO、CF₃COO、(COO)₂ 或 CH₂(COO)₂。优选地，步骤一中所用叠氮化物物质的量之比为 $n(R_n(N_3)_m)$: $n(3\text{-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑}) = 1:1-6:1$ 。叠氮化物中 R 是：R = Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni 或 H。优选地，步骤一中酸的种类为：硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸或三氟乙酸中的任意一种或几种混合，用量以将溶液 pH 调整至 1-4 为准。

步骤二：合成 4-叠氨基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪-2-氧化物将 3-氨基-4-1H-四氮唑吡唑缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化 0.5h-48h，接着将反应体系倾入冰中，依次经过滤洗涤、干燥，得到米白色 4-叠氨基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪-2-氧化物粉末。优选地，步骤二中所用硝化体系为市售发烟硝酸或 100% 硝酸，或其他硝化体系，包括五氧化二氮、四氟硼酸、100% 硝酸/三氟乙酸酐、100% 硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、100% 硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、发烟硝酸/乙酸酐、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100% 硝酸。当采用的硝化体系为 100% 硝酸、100% 硝酸/乙酸酐、100% 硝酸/三氟乙酸酐、硝酸/乙酸酐、100% 硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、五氧化二氮、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100% 硝酸时，3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑与硝化体系的质量体积比为 $1\text{g}:(5-50)\text{mL}$ 。当采用的硝化体系为四氟硼酸时，3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑与四氟硼酸的用量摩尔比为 $1:(1-50)$ 。优选地，步骤二中反应温度为 -20°C 至 130°C ，步骤二中反应时间为 0.5 小时至 48 小时。

本发明更公开了如上述的化合物，或以上述的前体物质制备的化合物，或以上述的制备方法所制备的化合物，其在炸药领域的应用，以及包括其的炸药。其中优选地，此处所述的炸药为起爆药。优选地，此处所述的炸药为绿色环保型起爆药。优选地，此处所述的炸药为无金属起爆药。

本发明的化合物、制备方法及应用能够带来以下有益效果：

- 1、制备方法简单，只需简单的反应步骤及条件即可制得。
- 2、反应过程及使用过程中无污染。
- 3、化合物结构中不需要金属，绿色可靠。
- 4、化合物稳定性佳，撞击感度、摩擦感度高。
- 5、起爆能力高，并具备合适使用的极限起爆药量。

附图说明

图 1 为本发明的一种化合物的部份结构的化学结构图。

图 2 为本发明的一种化合物的一类实施方式的部份结构的化学结构图。

图 3 至图 5 为本发明的一种化合物的一类实施方式的化学结构图。

图 6 为本发明的一种化合物的合成方法中，前体物质的部份结构的化学结构图。

图 7 为本发明的一种化合物的一种实施方式的化学结构图。

图8为本发明的一种化合物的一种实施方式的部分结构的化学结构图。

图9为图7所示的化合物的具体合成方法的化学反应式。

图10为图7所示的化合物的核磁共振谱。图29为本发明的一种化合物进行安息角测定所用的漏斗的示意图。

图11为图7所示的化合物的核磁共振谱。图30为本发明的一种化合物进行安息角测定所用的三支架的示意图。

图12、14、16、18、20、22、24、26为本发明的一种化合物的多种实施方式的化学结构图。

图13、15、17、19、21、23、25、27为本发明的一种化合物的多种实施方式的部分结构的化学结构图。

图28为本发明的一种化合物进行极限起爆药量测定的装置图。

其中，图1至图30的附图标记说明如下：

A₁至A₁₁：原子；I、II、III：化合物；1：电点火头；2：试样；3：铅板；4：电源；5：开关

具体实施方式

为进一步阐述本发明为了达成预定发明目的所采取的技术手段及功效，以下结合附图及较佳实施例，对依据本发明的具体实施方式、结构、特征及其功效，详细说明如下：

图1为本发明的一种化合物的部份结构的化学结构图。其中可以看到，此结构中至少包括了一组三个氮相连的结构，中间的氮原子则通过氮-氧的配位键连接一个氧原子。

通过具备以上的图1所示的结构，能够具有强起爆力、稳定性佳等优点。另一方面，本结构仅由碳、氮、氧、氢……等非金属原子构成，不含金属，因此随之可以制造出不含金属的用于作为炸药、起爆药的化合物，从而可以制备绿色、环保的炸药、起爆药。

更进一步，通过图1所示的结构，可以衍生出多种不同的化合物。由于这些化合物均具有图1所示的结构，因此均具有上述的技术效果。

举例来说，在一个实施例当中，在图1所示的结构当中，原子A₁、A₂为碳原子。在这样的实施例中，也就至少包括了一个2-氧化-1,2,3-三嗪的结构。不过，值得注意的是，在图1所示的结构当中，原子A₁、A₂并不限定为碳原子。在一个实施例中，原子A₁、A₂也可以选自于碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种。举例来说，原子A₁、A₂可以选自于碳原子、氮原子中的一种或多种。在一个实施例当中，原子A₁、A₂可以分别为碳原子及氮原子。在一个实施例当中，原子A₁为碳原子，原子A₂为氮原子。

在另一个方面，举例来说，在图1所示的结构中的5,6号位（图1所示杂环的左上、左下两个位置，即原子A₁、A₂所在位置），可以形成其他的键结以形成环，从而形成稠环（并环）化合物，即稠合在一起的多环化合物。例如是，此稠环化合物可以为二环、三环甚至是三环以上的多环化合物。

这些与图1所示的结构稠合的一个或多个单环，其可为三元环、四元环、五元环、六元环、七元环、八元环乃至更多元的多元环。举例来说，可以是一个五元环与图1所示的结构稠合，共用图1所示的结构中5,6号位的两个原子，例如是共用两个碳原子。或者是，也可以是一个六元环与图1所示的结构稠合，共用图1所示的结构中5,6号位的两个原子，例如是共用两个碳原子。又或者是，可以是一个五元环与六元环的稠环与图1所示的结构稠合，共用图1所示的结构中5,6号位的两个原子，例如是共用两个碳原子。

这些与图1所示的结构稠合的一个或多个单环，可以全部由碳原子组成，举例来说，可以是苯环；但也可以包括一个、二个、三个或多个杂原子，甚至是全部由杂原子组成。这些杂原子可以包括硼原子、氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子、碲原子……以及可得到合理化学结构的元素周期表中其他的原子。同一个环上所含原子的种类可以是一种（整个环上都由同一种原子构成）、二种、三种或更多种，甚至是整个环上的原子种类都不同。

这些环上除了与图1所示的结构共用的原子外，其他部分的多个原子，其间可以单键或双键，甚至是三键来相互连接；可以是多个共轭双键，可以使得这些环为芳香环。具体来说，这些环可以是芳香杂环，例如是呋喃、吡咯、噻吩、咪唑、吡唑、噁唑、嘧啶、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、咪唑、或其他三唑类、四唑类、三嗪类、四嗪类……等等。举例来说，与图1所示的结构稠合的芳香环可以是吡唑，其4号位、5号位的两个碳原子，分别同时为图1所示的结构中的5号位、6号位的两个碳原子。或者是，与图1所示的结构稠合的芳香环可以是呋喃，其2号位、3号位的两个碳原子，分别同时为图1所示的结构中的5号位、6号位的两个碳原子。或者是，与图1所示的结构稠合的芳香环可以是哒嗪，其4号位、5号位的两个碳原子，分别同时为图1所示的结构中的5号位、6号位的两个碳原子。或者是，与图1所示的结构稠合的芳香环可以是噁唑，其4号位、5号位的两个碳原子，分别同时为图1所示的结构中的5号位、6号位的两个碳原子。或者是，与图1所示的结构稠合的芳香环可以是吡嗪，其2号位、3号位的两个碳原子，分别同时为图1所示的结构中的5号位、6号位的两个碳原子。

而这些与图1所示的结构稠合的一个或多个单环，其上可以没有取代基，或是具有一个或多个取代基。这些取代基可以是：(1)饱和烷基基，如烷基基等；(2)官能团化的饱和烷基基，如硝基烷基基、偕二硝基烷基基、硝仿基烷基基、卤代烷基基等；(3)醇基；(4)醚基、硫醚基；(5)羧酸基、酯基、硝酸酯基、磺酸基、磺酸酯基等；(6)酮基、酰胺基、酰肼基等；(7)醛基；(8)不饱和脂肪族烷基基，如烯基基、炔基基、卤代烯基基、硝基炔基基等；(9)不饱和芳香烷基基，如单环芳香基、多环芳香基、稠环芳香基和官能团化的单环芳香基、官能团化的多环芳香基、官能团化的稠环芳香基；(10)杂环芳香基，如噻吩、

吡啶、呋喃、咪唑类环、噻吩类环、噁唑类环等及其对应的单官能团化或多官能团化基团；(11) 杂环非芳香烃基，如氮杂桥环烃、氧杂桥环烃等；(12) 卤原子；(13) 氰基、肟基；(14) 氨基、亚氨基、偶氮基、氧化偶氮基、叠氮基、胍基；(15) 羟基、羟胺基、烷氧基；(16) 硝基、亚硝基。举例来说，可以是硝基，更具体来说可以在吡啶的5号碳上有一个硝基。或者是，这些与图1所示的结构耦合的一个或多个单环上的原子也可以与取代基形成配位键。举例来说，可以是其上的氮原子与取代基氧原子形成配位键。具体来说，可以是呋喃上的氮原子与取代基氧原子形成配位键。

在图1所示的结构上，图1所示的结构4号位（图1中杂环的上方位置）上还可以具有一个取代基，在图1上标示为 R_1 。具体来说， R_1 可为氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ （其中 $m+p=2n+1$ ），或者是如图2所示结构。在图2所示结构中， A_1 至 A_5 等原子可为碳原子、氮原子、氧原子、磷原子或硫原子，可以是同一种或是不同的多种。在图2所示结构中， A_1 至 A_5 等原子上的取代基数可为0、1、2、3、4或5个。在图2所示结构中，可包括取代基 R_2 。取代基 R_2 可为氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ ，或图2所示结构。

具体来说，如图1所示的通式化合物，具体又可例如图3、4、5所示的通式化合物。

图3为本发明的一种化合物的其中一类实施方式的化学结构图。请参照图3所示，其中图1所示的结构与一个五元环耦合，并至少具有一个取代基 R_3 。在图3所示结构中， A_1 至 A_5 等原子可为碳原子、氮原子、氧原子、磷原子或硫原子，可以是同一种或是不同的多种。在图3所示结构中， A_1 至 A_5 等原子上的取代基数可为0、1、2、3、4或5个。在图3所示结构中，取代基 R_3 可为氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ （其中 $m+p=2n+1$ ），或图2所示结构。取代基 R_3 可为一个，或相同或不同的多个。

图4为本发明的一种化合物的其中另一类实施方式的化学结构图。请参照图4所示，其中图1所示的结构与一个六元环耦合，并至少具有一个取代基 R_4 。在图4所示结构中， A_1 至 A_6 等原子可为碳原子、氮原子、氧原子、磷原子、硫原子，可以是同一种或是不同的多种。在图4所示结构中， A_1 至 A_6 等原子上的取代基数可为0、1、2、3、4、5或6个。在图4所示结构中，取代基 R_4 可为氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ （其中 $m+p=2n+1$ ），或图2所示结构。取代基 R_4 可为一个，或相同或不同的多个。

图5为本发明的一种化合物的其中又一类实施方式的化学结构图。请参照图5所示，其中图1所示的结构与一个六元环耦合，此六元环又与一个五元环耦合，在此五元环上至少具有一个取代基 R_5 。在图5所示结构中， A_1 至 A_9 等原子可为碳原子、氮原子、氧原子、磷原子、硫原子，可以是同一种或是不同的多种。在图5所示结构中， A_4 至 A_5 、 A_7 至 A_9 等原子上的取代基数可为0、1、2、3、4或5个。在图5所示结构中， A_1 至 A_6 等原子上的取代基数可为0、1、2、3、4、5或6个。在图5所示结构中，取代基 R_5 可为氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ （其中 $m+p=2n+1$ ），或图2所示结构。取代基 R_5 可为一个，或相同或不同的多个。

以上图3至图5所示结构及其所衍生的化合物，其性质各异，不过由于都具有类似的结构，因此也都具有本申请所述的有强起爆力、稳定性佳等等技术效果。

另一方面，如图1所示的结构其通用合成方式可为如下步骤：

【步骤一】

合成前体物质，即具有图6所示通式的结构。

具体来说，此处所要合成的前体物质，即图6所示通式的结构，可包括两个原子 A_{10} 、 A_{11} ，其中 A_{10} 可至少连接一个氰基， A_{11} 则可至少连接一个氨基。在接下来的关四氮唑环反应当中，这些氰基及氨基会参与反应，使得两个原子 A_{10} 、 A_{11} 成为例如是图1所示结构中的 A_1 、 A_2 ，或者是例如是图3至图5所示结构中的 A_1 至 A_6 的其中二者。

在一个实施例当中， A_{10} 、 A_{11} 等原子可为碳原子、氮原子、氧原子、磷原子、硫原子，可以是同一种或是不同的二种。在一个实施例当中， A_{10} 、 A_{11} 等原子为碳原子。 A_{10} 、 A_{11} 等原子分别为碳原子及氮原子。

在一个实施例当中，前体物质包括一个多元环。在一个实施例当中， A_{10} 、 A_{11} 为多元环的一部分。这里的多元环可为三元环、四元环、五元环、六元环、七元环、八元环乃至更多元的多元环。举例来说，可以是一个五元环。或者是，也可以是一个六元环。又或者是，可以是一个五元环与六元环的稠环。在一个实施例当中，前体物质包括一个芳香环。在一个实施例当中， A_{10} 、 A_{11} 为芳香的一部分。在另一个实施例当中，前体物质包括一个多元环，但 A_{10} 、 A_{11} 等原子并不是这个多元环的一部分。

这些环可以全部由碳原子组成，举例来说，可以是苯环；但也可以包括一个、二个、三个或多个杂原子，甚至是全部由杂原子组成。这些杂原子可以包括硼原子、氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子、碲原子……以及可得到合理化学结构的元素周期表中其他的原子。同一个环上所含原子的种类可以是一种（整个环上都由同一种原子构成）、二种、三种或更多种，甚至是整个环上的原子种类都不同。

这些环可以是芳香杂环，例如是呋喃、吡咯、噻吩、咪唑、吡啶、噁唑、噻唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃，或其他三唑类、四唑类、三嗪类、四嗪

类.....等等。

而这些环上可以没有取代基,或是具有一个或多个取代基。这些取代基可以是:(1)饱和烃基,如烷基等;(2)官能团化饱和烃基,如硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基、卤代烷基等;(3)醇基;(4)醚基、硫醚基;(5)羧基、酯基、硝酸酯基、磺酸基、磺酰胺基等;(6)酮基、酰胺基、酰肼基等;(7)醛基;(8)不饱和脂肪族烃基,如烯基、炔基、卤代烯基、硝基炔基等;(9)不饱和芳香烃基,如单环芳基、多环芳基、稠环芳基和官能团化的单环芳基、官能团化的多环芳基、官能团化的稠环芳基;(10)杂环芳香基,如噻吩、吡啶、咪唑、唑类、噻唑、噻吩、噻唑、噻吩等及其对应的单官能团化或多官能团化基团;(11)杂环非芳香基,如氮杂桥环、氧杂桥环等;(12)卤原子;(13)氰基、肟基;(14)氨基、亚氨基、偶氮基、氧化偶氮基、叠氮基、肼基;(15)羟基、羟胺基、烷氧基;(16)硝基、亚硝基,或者是这些官能基的组合。在一个实施例中,这些取代基可以是 A_{10} 、 A_{11} 等原子所在的结构。

在步骤一中,可以根据所要合成的产物不同,选择不同的所要合成的前体物质、其合成方式及其合成条件。不过,若是可以直接取得所需要合成的产物的前体物质,也可以直接取得,并跳过此步骤。

【步骤二】

对前体物质进行关四氮唑环反应,得到第一中间产物。

具体来说,可以为:

- (1) 将前体物质分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物,在一定的反应温度下反应一定时间。
- (3) 加入酸,纯化并得到第一中间产物。

步骤二(1)中的溶剂可为 NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种,或合适的两种及多种溶剂的混合物,例如可为水、乙醇、二甲基亚砜、NN-二甲基甲酰胺,或是丙酮与甲醇体积比 4:1 的混合溶液。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的溶剂。

步骤二(1)中溶剂的用量体积与前体物质的质量比值,例如可为溶剂体积/前体物质质量 = 2mL/g - 2mL/mg; 例如可为 10mL/g、15mL/g、35mL/g、75mL/g 或 400mL/g。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的溶剂比例。

在步骤二(2)中的反应温度,可以是-20℃至 130℃,例如可为 70℃至 120℃,例如可为 70℃、110℃、120℃。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的反应温度。

在步骤二(2)中的反应时间,可以为 2 小时至 24 小时,例如可为 2 小时至 10 小时,例如可为 2 小时至 8 小时,例如可以是 2 小时、3 小时、4 小时、5 小时、7 小时、10 小时、24 小时。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的反应时间。

在步骤二(2)中,所加入的盐类,其摩尔比可为盐类:前体物质 = 1:1 至 6:1,例如可为 20:9 至 50:9,例如可为 1:1、20:9、40:9、50:9,或是其他任意合适的比例。此处盐类可例如具有通式 M_aX_b , 其中: M 可为 Fe、Co、Ni、Mn、Zn、Cd、Au、Ag、Cu、Cr、Al、V、 NH_4 、 $(CH_3)_2NH_2$ 、 $(CH_3)_3NH$ 、 $(CH_3CH_2)_2NH_2$ 、 $(CH_3CH_2)_3NH$ 等,而 X 可为 F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 $HCOO$ 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(COO)_2$ 、 $CH_2(COO)_2$ 等。举例来说, M 可为 NH_4 、Al、 $(CH_3CH_2)_3NH$ 、Co 等, X 可为 F、Cl 等,并选择对应的 a 与 b。举例来说,此处盐类可以是氟化铵、氯化铵、硝酸铵、氯化亚钴、二甲胺盐酸盐等。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的盐类。

在步骤二(2)中,所加入的叠氮化物,其摩尔比可为所用叠氮化物:前体物质 = 1:1 至 6:1。所用叠氮化物可以表示为通式 $R_a(N_3)_b$, 其中 R 可为 Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni、H、 NH_4 等,并选择对应的 a 与 b。举例来说,此处叠氮化物可以是叠氮化钠、叠氮化铵等。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的叠氮化物。

在步骤二(3)中,所加入的酸的种类可以为:硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸、三氟乙酸等,可以使用如上单独一种酸,也可两种或多种酸混合使用。举例来说,可以为盐酸、甲酸、乙酸酐、三氟乙酸;但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的酸。

在步骤二(3)中,滴加酸的用量可为以将溶液 pH 值调整至 1.0 至 4.0,例如可以是 1.0 至 3.5,例如可为 2.0 至 3.0,例如可为 1.4、2.0、2.4、2.5、3.0、3.1、3.3 等,但本发明并不以此为限,应视为滴加酸的用量可将溶液调整为所需要的任何 pH 值。

【步骤三】

对步骤二所得的第一中间产物进行重排环反应,并在图1所示结构中对应 R_1 部分的位置反应产生叠氮基(-N₃),得到产物(所要合成的产物如图1所示结构中对应 R_1 部分的基团为叠氮基时)或第二中间产物(所要合成的产物如图1所示结构中对应 R_1 部分的基团不是叠氮基时)。

具体来说,可以为:

- (1) 将第一中间产物加入硝化体系当中,加完后控制反应体系温度,保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (2) 终止反应,过滤、纯化,得到产物或第二中间产物。

在步骤三(1)中的反应温度,可为-20℃至130℃,例如可为-20℃至110℃,例如可为-20℃至100℃,例如可为-20℃至室温,例如可为-20℃、-10℃、-5℃、0℃、4℃或室温,或也可为例如40℃至80℃,例如是50℃至70℃,例如是50℃,或例如是60℃等。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应温度。

在步骤三(1)中的反应时间,可为0.5至48小时,例如可为0.5至12小时,例如可为0.5至4小时,例如可为0.5小时、1小时、2小时、3小时、4小时,或也可以是7小时。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应时间。

在步骤三(1)中,硝化体系可以为市售发烟硝酸或100%硝酸,也可以是其他硝化体系,例如五氧化二氮、四氟硼酸、100%硝酸/三氟乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、100%硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、发烟硝酸/乙酸酐、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100%硝酸等。

当采用的硝化体系为100%硝酸、100%硝酸/乙酸酐、100%硝酸/三氟乙酸酐、硝酸/乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、五氧化二氮、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100%硝酸等时,第一中间产物与硝化体系的质量体积比可为1g:5mL至1g:50mL;硝化体系的各成分的比例例如可为体积比1:1至3:1,例如可为体积比1:1。举例来说,可以采用体积比为1:1的100%硝酸/三氟乙酸酐,或是体积比为1:1的100%硝酸/浓硫酸作为硝化体系。

当采用的硝化体系为四氟硼酸时,第一中间产物与四氟硼酸的用量摩尔比可为1:1至1:50;所用的溶剂可为不与硝化体系或第一中间产物、第二中间产物反应的溶剂,例如可为乙腈。

在步骤三(2)中终止反应的具体方法,例如可为将反应体系倒入冰或冰水中,使得硝化体系被稀释且冷却,反应停止,产物析出。

【步骤四】

若所要合成的产物,其如图1所示结构中对应 R_1 部分的基团不是叠氮基,则进行取代基置换反应。以下列举 R_1 部分的基团为氯、氨基、硝基、硝氨基时的对应反应步骤如下:

[甲、 R_1 部分为氯(-Cl)时]

- (1) 将第二中间产物分散于溶剂中。
- (2) 通入氯气流,在一定温度下反应一段时间。
- (3) 过滤、纯化,得到最终产物。

在步骤四甲(1)中,所用的溶剂可为各种常见的有机溶剂,只要不与第二中间产物或氯气发生反应,致使后续反应无法进行即可。举例来说,在在步骤四甲(1)中,所用的溶剂可为二氯甲烷。

在步骤四甲(2)中,氯气流流量可以是介于每分钟1mL至5mL之间,例如是每分钟2mL至5mL,例如是每分钟3mL至4mL,或者例如是每分钟5mL。

在步骤四甲(2)中的反应温度可以为30℃至100℃,例如是50℃至90℃,例如是60℃至70℃,例如是60℃,或例如是70℃。

在步骤四甲(2)中的反应时间例如是1小时至10小时,例如是1小时至5小时,例如是1小时至3小时,例如是1小时,或例如是2小时。

[乙、 R_1 部分为氨基(-NH₂)时]

- (1) 将第二中间产物分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的浓氨水,回流反应一段时间,反应完后冷却。
- (3) 过滤、纯化,得到最终产物。

在步骤四乙(1)中,所用的溶剂可为各种常见的有机溶剂,只要不与第二中间产物或浓氨水发生反应,致使后续反应无法进行即可。举例来说,在在步骤四乙(1)中,所用的溶剂可为甲醇。

在步骤四乙(2)中,浓氨水的浓度例如可以是10%至32%。

在步骤四乙(2)中,第二中间产物的质量和浓氨水的体积的比,例如可以是1g:1mL至1g:100mL,例如可以是1g:5mL至1g:20mL,例如可以是1g:6mL至1g:12mL。

在步骤四乙(2)中,回流反应的时间例如是0.5小时至24小时,例如是1小时至12小时,例如是2小时至8小时,例如是2小时,或例如是4小时。

[丙、R₁部分为硝基(-NO₂)时]

- (1) 将第二中间产物分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的浓氨水,回流反应一段时间,冷却过滤得到固体。
- (3) 将此固体加入氧化性溶液,反应一段时间。
- (4) 终止反应,纯化,得到最终产物。

在步骤四丙(1)中,所用的溶剂可为各种常见的有机溶剂,只要不与第二中间产物或浓氨水发生反应,致使后续反应无法进行即可。举例来说,在在步骤四丙(1)中,所用的溶剂可为甲醇。

在步骤四丙(2)中,浓氨水的浓度例如可以是10%至32%。

在步骤四丙(2)中,第二中间产物的质量和浓氨水的体积的比,例如可以是1g:1mL至1g:100mL,例如可以是1g:5mL至1g:20mL,例如可以是1g:6mL至1g:12mL。

在步骤四丙(2)中,回流反应的时间例如是0.5小时至24小时,例如是1小时至12小时,例如是2小时至8小时,例如是2小时,或例如是4小时。

在步骤四丙(3)中,氧化性溶液可以是:浓硫酸与30%双氧水的混合溶液、浓硫酸与50%双氧水的混合溶液、浓硫酸与三氟乙酸的混合溶液、浓硫酸与过氧乙酸的混合溶液,或浓硫酸与乙酸酐混合溶液。氧化性溶液中各成分的体积比可以例如是1:1,举例来说,可以是浓硫酸与30%双氧水体积比1:1的混合溶液。

在步骤四丙(3)中的反应时间,例如可为0.5至12小时,例如可为0.5至4小时,例如可为0.5小时、1小时、2小时、4小时。

[丁、R₁部分为硝氨基(-NHNO₂)时]

- (1) 将第二中间产物分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的浓氨水,回流反应一段时间。
- (3) 冷却过滤得固体。
- (4) 将所得到的固体加入硝化体系中,反应一段时间。
- (5) 终止反应,过滤、纯化,得到最终产物。

在步骤四丁(1)中,所用的溶剂可为各种常见的有机溶剂,只要不与第二中间产物或浓氨水发生反应,致使后续反应无法进行即可。举例来说,在在步骤四丁(1)中,所用的溶剂可为甲醇。

在步骤四丁(2)中,浓氨水的浓度例如可以是10%至32%。

在步骤四丁(2)中,第二中间产物的质量和浓氨水的体积的比,例如可以是1g:1mL至1g:100mL,例如可以是1g:5mL至1g:20mL,例如可以是1g:6mL至1g:12mL。

在步骤四丁(2)中,回流反应的时间例如是0.5小时至24小时,例如是1小时至12小时,例如是2小时至8小时,例如是2小时,或例如是4小时。

在步骤四丁(4)中的反应温度,可为-20℃至130℃,例如可为-20℃至110℃,例如可为-20℃至100℃,例如可为-20℃至室温,例如可为-20℃、10℃、4℃或室温等。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的反应温度。

在步骤四丁(4)中的反应时间,可为0.5至12小时,例如可为0.5至4小时,例如可为0.5小时、1小时、2小时、4小时。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合于本反应的反应时间。

在步骤四丁(4)中,硝化体系可以为市售发烟硝酸或100%硝酸,也可以是其他硝化体系,例如五氧化二氮、四氟硼酸、100%硝酸/三氟乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、100%硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、发烟硝酸/乙酸酐、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100%硝酸等。

当采用的硝化体系为100%硝酸、100%硝酸/乙酸酐、100%硝酸/三氟乙酸酐、硝酸/乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、五氧化二氮、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100%硝酸等时,步骤四丁(3)所得固

体与硝化体系的质量体积比为1g:5 mL至1g:50 mL。

当采用的硝化体系为四氟硼硝时,步骤四丁(3)所得固体与四氟硼硝的用量摩尔比可为1:1至1:50。

在步骤四丁(4)中采用的硝化体系,可以是与步骤三相同的硝化体系,或者是不同的硝化体系。

在步骤四丁(5)中终止反应的具体方法,例如可为将反应体系倒入冰或冰水中,使得硝化体系被稀释且冷却,反应停止,产物析出。

根据上述的多种化合物通式及上述的通用合成方法,在此举多个详细实施例,并详细说明如下:

实施例1

图7为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图。图7所示的化合物,其具体的名称为:2-氧化-4-叠氨基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪,具有如图1所示的结构,具体来说具有如图3所示的结构,更具体来说具有如图8所示的结构。

此化合物为一种白色至黄绿色的粉末状固体,重结晶析出的纯物质则为白色针状晶体。其晶体密度为1.5-1.9 g/cm³,经70°C至90°C恒温脱水处理后,室温下实测密度为1.6-2.0 g/cm³。流散性较好,不易黏附于玻璃类容器。热分解温度高于150°C,对光、水、汽等均不敏感,太阳直射下长时间未观察到明显颜色变化。性质稳定,与强酸不发生反应。75°C下持续加热48小时,失重0.8%,100°C条件下失重增加,分解2%左右,表现颜色变化明显。与铜、铁等在环境条件下不反应,与塑料、纸张接触,不发生反应。

【合成方法】

实施例1的化合物的合成方法,为采用3-氨基-4-氰基吡唑作为前体物质进行合成。具体的反应例如可以是图9所示:

第一步反应:由前体物质3-氨基-4-氰基吡唑(图9中式I化合物)合成第一中间产物3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑(图9中式II化合物)

第二步反应:由第一中间产物3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑(式II化合物)合成产物2-氧化-4-叠氨基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪(图9中式III化合物,即图7所示的化合物)

具体的合成步骤与反应条件,在此详述如下:

第一步反应:合成第一中间产物3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑(图9中式II化合物)

- (1) 在一定温度下,将实施例1的前体物质3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑,即图9中式I化合物分散于溶剂中。
- (2) 在反应液中加入盐类及叠氮化物,在一定温度下继续反应。
- (3) 在反应液中加入酸。
- (4) 过滤,洗涤,将固体干燥,得到实施例1的第一中间产物,即图9中式II化合物。

本部分步骤(1)所用的溶剂、步骤(2)所加入的盐类、叠氮化物,反应温度及反应时间,以及步骤(3)中所加入的酸,可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第二步反应:合成产物2-氧化-4-叠氨基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪(式III化合物,图7所示化合物)

- (5) 将实施例1的第一中间产物,即图9中式II化合物缓慢加入硝化体系,加完后控制反应体系温度,保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (6) 终止反应,过滤、洗涤、干燥,得到实施例1的产物,即图9中式III化合物(图7所示化合物)。

本部分步骤(5)所加入的硝化体系及反应温度,以及步骤(6)中终止反应的方式,可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例,请参照以下实施例1A-1D。

[实施例1A]

在室温下,将3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑1g(9 mmol)分散于10 mL水中,接着分批加入氯化铵0.48g(9 mmol)、叠氮化钠0.59g(9 mmol),然后在70°C下继续反应5小时,冷却至室温,再向其中滴加盐酸,直至溶液pH值为2,而后过滤,以5 mL冰水洗涤,将固体干燥,得到白色粉末0.68g,得率50%。

接着取0.3g(2 mmol)所得白色粉末,加入到100%硝酸/三氯乙酸酐按照一比一的体积比配置的6 mL混合液中,而后在室温下反应1小时,将反应液倒入50g冰水中,搅拌0.5小时后,过滤,用冰水10 mL洗涤,干燥之后得到0.31g黄色粉末状固体,得率70%。

[实施例1B]

在冰水浴下,将3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑2g(18mmol)分散于70mL乙醇中,接着分批加入氯化铝5.34g(40mmol)、叠氮化钠1.95g(30mmol),然后在120℃下继续反应2小时,冷却至室温,再向其中滴加乙酸而后滴加甲酸,直至溶液pH值为3.3,而后过滤,以20mL冰水洗涤,将固体干燥,得到白色粉末2.20g,得率81%。

接着取0.5g(3.3mmol)所得白色粉末,加入到100%硝酸/三氟乙酸酐按照一比一的体积比配置的20mL混合液中,而后在-10℃下反应4小时,将反应液倒入50g冰水中,搅拌0.5小时后,过滤,用冰水20mL洗涤,干燥之后得到0.28g黄绿色粉末状固体,得率30%。

[实施例1C]

在冰水浴下,将3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑2g(18mmol)分散于150mL的二甲基亚砜中,接着分批加入三乙胺盐酸盐11g(80mmol)、叠氮化钠6.5g(100mmol),然后在110℃下继续反应24小时,再向其中滴加乙酸酐,直至溶液pH值为2.5,而后过滤,以20mL冰水洗涤,而后以10mL乙醚洗涤,将固体干燥,得到白色粉末0.81g,得率30%。

接着取0.5g(3.3mmol)所得白色粉末,加入到加有1.1g四氟硼酸的20mL乙腈中,而后在4℃下反应4小时,将反应液倒入50g冰水中,搅拌0.5小时后,过滤,用冰水20mL洗涤,而后以10mL石油醚洗涤,干燥之后得到0.55g米白色粉末状固体,得率75%。

[实施例1D]

在室温下,将3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑2g(18mmol)分散于800mL由丙酮和甲醇按照体积比为4:1混合而成的溶剂中,接着分批加入氯化亚砷13g(100mmol)、叠氮化钠5.2g(80mmol),然后在回流条件下继续反应10小时,再向其中滴加三氟乙酸,直至溶液pH值为1.4,而后过滤,以30mL冰水洗涤,而后以30mL乙醚洗涤,将固体干燥,得到白色粉末2.26g,得率83%。

接着取0.5g(3.3mmol)所得白色粉末,加入到加有0.9g五氧化二氮的30mL乙腈中,而后在-20℃下反应5小时,将反应液倒入50g冰水中,搅拌0.5小时后,过滤,用冰水20mL洗涤,干燥之后得到0.58g白色粉末状固体,得率79%。

【产物测定结果】

实施例1A-1D制备得到的式III化合物(即图7所示化合物)的核磁共振谱如图10所示,其特征核磁共振谱的位移为: $^1\text{H NMR}$ (400MHz, DMSO- d_6 , 25℃) δ (ppm): 14.51(brs, 1H, NH)。

实施例1A-1D制备得到的式III化合物(即图7所示化合物)的核磁共振谱如图11所示,其特征核磁共振谱的位移为: $^{13}\text{C NMR}$ (100MHz, DMSO- d_6 , 25℃) δ (ppm): 157.95, 157.31, 148.07, 90.03。

实施例1A-1D制备得到的式III化合物(即图7所示化合物)的红外吸收光谱的波长为: IR(KBr, ν/cm^{-1}): 3414(m), 3231(m), 2154(s), 1600(s), 1543(s), 1403(s), 1384(s), 1313(m), 1209(m), 1131(m)。

实施例1A-1D制备得到的式III化合物(即图7所示化合物)的粉末分析测定结果为: DSC(160℃, 50℃-250℃, 5℃ min^{-1})。

实施例1A-1D制备得到的式III化合物(即图7所示化合物)(分子式 $\text{C}_4\text{HN}_6\text{O}_3$)的元素分析结构为(实测值(计算值)): C: 21.62% (21.53%), H: 0.47% (0.45%), N: 56.61% (56.50%), O: 21.22% (21.51%)。

实施例2

图12为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图,其具体的名称为:5-氧化-7-硝基[1,2,5]噁二唑[3,4-d][1,2,3]三嗪,具有如图1所示的结构,具体来说具有如图3所示的结构,更具体来说具有如图13所示的结构。

【合成方法】

实施例2的化合物具体的合成方法,在此详述如下:

第一步反应:合成前体物质

(1) 将丙二腈和亚硝酸盐分散于溶剂中。

- (2) 在反应液中加入羟胺化合物。
- (3) 加入羟胺化合物完后, 加入碱及酯类化合物, 继续反应。
- (4) 将所得化合物加入酸及二氧化铅, 加热回流。
- (5) 过滤、将母液旋干, 得到实施例 2 的前体物质。

步骤 (1) 至 (3) 中, 反应的温度可以是-20 °C 至 130 °C, 例如可为-20 °C、至 40 °C, 例如可为-20 °C、-10 °C、40 °C。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应温度。

步骤 (1) 中亚硝酸盐可为通式 MNO_2 的化合物, 其中 M 为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb 及 Cs 的其中一种, 或二种或多种的混合。举例来说, 可以是亚硝酸钠。

步骤 (1) 中的溶剂可为 NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢吡喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种, 或二种或多种的混合物。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的溶剂。

步骤(1)中溶剂的用量体积与反应物的质量比, 例如可为溶剂体积: 丙二腈 = 2mL/g-2mL/mg; 例如可为 10mL/g、15mL/g、35mL/g、75mL/g 或 400mL/g。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的溶剂比例。

步骤 (2) 中, 羟胺化合物可为羟胺盐类。举例来说, 羟胺盐类可为通式 $(NH_2OH)_x X_n$ 的化合物, 其中 X 为选自 F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 $HCOO$ 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(COO)_2$ 及 $CH_2(COO)_2$ 的其中一种, 或二种或多种的混合。举例来说, 所述羟胺化合物可为羟胺卤化盐类; 举例来说, 所述羟胺化合物可为盐酸羟胺。

步骤 (2) (3) 中的反应时间可以为 2 小时至 24 小时, 例如可以是 2 小时、3 小时、4 小时、5 小时、10 小时、24 小时。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应时间。

步骤 (3) 中的酯类化合物可为通式 R^1COOR^2 的化合物, 其中 R^1 、 R^2 为选自甲基、乙基、丙基、异丙基、伯丁基、仲丁基、叔丁基以及各种戊基、各种己基的其中一种, 或二种或多种的混合。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用适当的酯类。

步骤 (3) 中的碱可为通式 $M_n(OH)_m$ 的化合物, 其中 M 为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb、Cs、Ca、Sr、Ba 的其中一种, 或二种或多种的混合。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用适当的碱。

步骤 (4) 中, 所加入的酸的种类可以为: 硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸、三氟乙酸等, 可以使用如上单独一种酸, 也可两种或多种酸混合使用。举例来说, 可以为盐酸、甲酸、乙酸酐、三氟乙酸; 但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的酸。

步骤 (4) 中, 反应的温度可以是-20 °C 至 130 °C, 例如可为 40 °C、70 °C、100 °C (加热回流)、110 °C、120 °C。但本发明并不以此为限, 应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应温度。

第二步反应: 合成第一中间产物

- (6) 将实施例 2 的前体物质分散于溶剂中。
- (7) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物, 在一定的反应温度下反应一定时间。
- (8) 加入酸, 纯化并得到实施例 2 的第一中间产物。

本部分步骤 (6) 所用的溶剂、步骤 (7) 所加入的盐类、叠氮化物, 反应温度及反应时间, 以及步骤 (8) 中所加入的酸, 可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第三步反应: 合成第二中间产物

- (9) 将实施例 2 的第一中间产物缓慢加入硝化体系, 加完后控制反应体系温度, 保持硝化反应进行。
- (10) 终止反应, 过滤。
- (11) 纯化、干燥, 得到实施例 2 的第二中间产物。

本部分步骤 (9) 所加入的硝化体系及反应温度, 以及步骤 (10) 中终止反应的方式, 可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

第四步反应: 合成产物

- (12) 将实施例2的第二中间产物分散于溶剂中。
- (13) 加入一定量的浓氨水，回流反应一段时间，冷却过滤得到固体。
- (14) 将此固体投入氧化性溶液中，反应一段时间。
- (15) 终止反应，过滤、纯化，得到实施例2的产物，即图11所示的化合物。

本部分步骤(12)中所用的溶剂，步骤(13)所用的浓氨水浓度、用量比例及反应时间，以及步骤(14)中的氧化性溶液选择及反应时间，可参照通用合成方式步骤四丙部分中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例2A。

[实施例2A]

将丙二腈6.66g和亚硝酸钠20.7g分散在100mL水中，冰水浴冷却，而后滴加含27.8g盐酸羟胺的200mL水溶液（半小时加完），滴加完毕后置于-10℃下，加入氢氧化钠（10.1g）的100mL水溶液，加乙酸乙酯100mL，搅拌反应10小时，而后过滤。将所得固体溶于乙醚200mL，加入乙酸20mL，二氧化铅17.2g，加热回流，过滤，将母液旋干。

将所得固体与3.6g氟化铵、12g叠氮化钠一起分散于10mL水中，之后在75℃下反应7小时，冷却至室温再向其中滴加盐酸，直至溶液pH值为3.1，而后过滤，以5mL冰水洗涤，将固体干燥，得到橙色粉末12.2g。

接着取0.4g所得橙色粉末，加入到100%硝酸/三氟乙酸酐按照一比一的体积比配置的6mL混合液中，而后在室温下反应1小时，将反应液倒入50g冰水中，搅拌0.5小时后，过滤，用冰水10mL洗涤，干燥之后得到0.51g黄色粉末状固体。

而后将所得固体溶于5mL甲醇，加入浓氨水4mL，回流反应2小时，冷却过滤得到淡黄色粉末状产物。将此产物投入浓硫酸与30%双氧水以1:1体积比混合的5mL溶剂中，搅拌反应1小时，而后倾入20g冰中，过滤得到橘黄色固体0.44g，得率69%。

【产物测定结果】

元素分析EA：测量值（理论值）C 19.59% (19.58%); N 45.67% (45.66%); O 34.74% (34.77%)

红外光谱IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3019(m), 2790(s), 1598 (s), 1535 (s), 1371 (s), 1341 (m), 1209 (m), 871 (m), 827 (m), 740 (s), 688 (m), 540 (w)

实施例3

图14为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图，其具体的名称为：2-氧化-4-氯-7H-咪唑[4,5-d][1,2,3]三嗪，具有如图1所示的结构，具体来说具有如图3所示的结构，更具体来说具有如图15所示的结构。

【合成方法】

实施例3的化合物具体的合成方法，具体为采用4-氨基-5-氧基咪唑作为前体物质进行合成。在此详述如下：

第一步反应：合成第一中间物质

- (1) 将4-氨基-5-氧基咪唑分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物，在一定的反应温度下反应一定时间。
- (3) 加入酸，纯化并得到实施例3的第一中间产物。

本部分步骤(1)所用的溶剂、(2)所加入的盐类、叠氮化物，反应温度及反应时间，以及步骤(3)中所加入的酸，可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第二步反应：合成第二中间产物

- (4) 将实施例3的第一中间产物缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (5) 终止反应，纯化，得到实施例3的第二中间产物。

本部分步骤(4)所加入的硝化体系及反应温度，以及步骤(5)中终止反应的方式，可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

第三步反应：合成产物

- (6) 将实施例3的第二中间产物分散于溶剂中。
- (7) 通入氯气气流，在一定温度下反应一段时间。
- (8) 纯化、干燥，得到实施例3的产物，即图12所示的化合物。

本部分步骤(6)中所用的溶剂，步骤(7)所用的氯气流量、反应温度及反应时间，可参照通用合成方式步骤四甲部分中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例3A。

[实施例3A]

取4-氨基-5-氧咪唑108g，与3.6g氟化铵、12g叠氮化钠一起分散于10mL水中，之后在75℃下反应7小时，冷却至室温再向其中滴加盐酸，直至溶液pH值为3.1，而后过滤，以5mL冰水洗涤，将固体干燥，得到褐色粉末11.3g。

接着取0.5g所得褐色粉末，加入到100%硝酸/三氟乙酸酐按照一比一的体积比配置的20mL混合液中，而后在-10℃下反应4小时，将反应液倒入50g冰水中，搅拌0.5小时后，过滤，用冰水20mL洗涤，干燥之后得到0.28g黄绿色粉末状固体，得率30%。

将所得固体溶于8mL二氯甲烷，通入氯气气流（流量5mL/min），在70℃反应1小时，过滤，得到白色粉末状产物0.17g，收率为30%。

【产物测定结果】

元素分析EA：测量值（理论值）C:27.79% (28.01%); H:1.12% (1.18%); Cl:20.61% (20.67%); N:40.77% (40.83%); O:9.29% (9.33%)

红外光谱IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3321(s), 3290(m), 1577 (s), 1555 (s), 1366 (s), 1332 (m), 1220(m), 996(w), 871 (m), 827 (m), 765(w), 621 (m)

实施例4

图16为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图，其具体的名称为：3, 5-二氧化-7-氨基-[1,2,5] 噁二唑[3,4-d][1,2,3]三嗪，具有如图1所示的结构，具体来说具有如图3所示的结构，更具体来说具有如图17所示的结构。

【合成方法】

实施例4的化合物具体的合成方法，在此详述如下：

第一步反应：合成前体物质

- (1) 将丙二腈和亚硝酸盐分散于溶剂中。
- (2) 在反应液中加入酸。反应结束后，纯化并取得产物。
- (3) 将所得产物分散于溶剂中。
- (4) 加入羟胺化合物，回流反应。
- (5) 过滤、将母液旋干，得到实施例4的前体物质。

步骤(1)至步骤(4)中，反应的温度可以是-20℃-130℃，例如可为-20℃、-10℃、40℃。但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合于本反应的反应温度。

步骤(1)中的溶剂可为NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砷、四氢吡喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种，或二种或多种的混合物。但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合于本反应的溶剂。

步骤(1)中溶剂的用量体积与反应物的质量比，例如可为溶剂体积：丙二腈=2mL/g-2mL/mg；例如可为10mL/g、15mL/g、35mL/g、75mL/g或400mL/g。但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合于本反应的溶剂比例。

步骤(1)中亚硝酸盐可为通式 MNO_2 的化合物，其中M为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb及Cs的其中一种，或二种或多种的混合。举例来说，可以是亚硝酸钠。

步骤(2)中，所加入的酸的种类可以为：硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸、三氟乙酸等，可以使用如

上单独一种酸，也可两种或多种酸混合使用。举例来说，可以为盐酸、甲酸、乙酸酐、三氟乙酸；但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的酸。

步骤(4)中，羟胺化合物可为羟胺盐类。举例来说，羟胺盐类可为通式 $(\text{NH}_3\text{OH})_x\text{X}_x$ 的化合物，其中X为选自F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 HCOO 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(\text{COO})_2$ 及 $\text{CH}_2(\text{COO})_2$ 的其中一种，或二种或多种的混合。举例来说，所述羟胺化合物可为羟胺卤化盐类；举例来说，所述羟胺化合物可为盐酸羟胺。

步骤(2)、(4)中的反应时间可以为2小时至24小时，例如可以是2小时、3小时、4小时、5小时、10小时、24小时。但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应时间。

第二步反应：合成第一中间产物

- (6) 将实施例4的前体物质分散于溶剂中。
- (7) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物，在一定的反应温度下反应一定时间。
- (8) 加入酸，纯化并得到实施例4的第一中间产物。

本部分步骤(6)所用的溶剂、步骤(7)所加入的盐类、叠氮化物，反应温度及反应时间，以及步骤(8)中所加入的酸，可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第三步反应：合成第二中间产物

- (9) 将实施例4的第一中间产物缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (10) 终止反应，过滤、纯化，得到实施例4的第二中间产物。

本部分步骤(9)所加入的硝化体系及反应温度，以及步骤(10)中终止反应的方式，可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

第四步反应：合成产物

- (11) 将实施例4的第二中间产物分散于溶剂中。
- (12) 加入一定量的浓氨水，回流反应一段时间，反应完后冷却。
- (13) 过滤、纯化，得到实施例4的产物，即图13所示的化合物。

本部分步骤(11)中所用的溶剂以及步骤(12)所用的浓氨水浓度、用量比例及反应时间，可参照通用合成方式步骤四乙部分中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例4A。

[实施例4A]

将丙二腈6.66g和亚硝酸钠20.7g分散在100mL水中，滴加5mL乙酸，室温反应3小时，以200mL乙酸乙酯萃取，之后将乙酸乙酯层旋干。将所得物质分散于200mL乙醇中，加入盐酸羟胺27.8g，回流反应4小时，过滤，将母液旋干。

在室温下，将式所得固体分散于300mL由丙酮和甲醇按照体积比为4:1混合而成的溶剂中，接着分批加入氯化亚钴13g、叠氮化钠15.2g，然后在回流条件下继续反应10小时，再向其中滴加三氟乙酸，直至溶液pH值为2.4，而后过滤，以30mL冰水洗涤，而后以30mL乙醚洗涤，将固体干燥，得到白色粉末。

接着取所得白色粉末，加入到加有11.1g四氟硼酸的200mL乙腈中，而后在4°C下反应4小时，将反应液倒入50g冰水中，搅拌0.5小时后，过滤，用冰水20mL洗涤，而后以10mL石油醚洗涤，干燥之后得到12.1g米白色粉末状固体，得率75%。

而后将所得固体溶于150mL甲醇，加入浓氨水140mL，回流反应2小时，冷却过滤得到最终淡黄色粉末状产物6.97g，收率为40%。

【产物测定结果】

元素分析EA：测量值（理论值）C 21.19% (21.18%); H 1.16% (1.19%); N 49.33% (49.41%); O 28.19% (28.22%)

红外光谱IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3434(s), 3134(m), 3019(m), 2790(s), 2321(m), 1571(s), 1512(s), 1380(s), 1321(m), 836(m), 721(s), 644(m)

实施例5

图 18 为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图，其具体的名称为：2-氧化-4-硝氨基苯并[d][1,2,3]三嗪，具有如图 1 所示的结构，具体来说具有如图 4 所示的结构，更具体来说具有如图 19 所示的结构。

【合成方法】

实施例 5 的化合物具体的合成方法，具体为采用 1-氨基-2-氰基-苯作为前体物质进行合成。在此详述如下：

第一步反应：合成第一中间产物

- (1) 将 1-氨基-2-氰基-苯分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物，在一定的反应温度下反应一定时间。
- (3) 加入酸，纯化并得到实施例 5 的第一中间产物。

本部分步骤 (1) 所用的溶剂、步骤 (2) 所加入的盐类、叠氮化物，反应温度及反应时间，以及步骤 (3) 中所加入的酸，可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第二步反应：合成第二中间产物

- (4) 将实施例 5 的第一中间产物缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (5) 终止反应，过滤、纯化，得到实施例 5 的第二中间产物。

本部分步骤 (4) 所加入的硝化体系及反应温度，以及步骤 (5) 中终止反应的方式，可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

第三步反应：合成产物

- (6) 将第二中间产物分散于溶剂中。
- (7) 加入一定量的浓氨水，回流反应一段时间。
- (8) 冷却过滤得固体。
- (9) 将所得到的固体加入硝化体系中，搅拌一段时间。
- (10) 终止反应，过滤、纯化，得到实施例 5 的产物，即图 14 所示的化合物。

本部分步骤 (6) 中所用的溶剂，步骤 (7) 所用的浓氨水浓度、用量比例及反应时间，步骤 (9) 所加入的硝化体系及反应温度，以及步骤 (10) 中终止反应的方式，可参照通用合成方式步骤四丁部分中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例 5A。

[实施例 5A]

将 1-氨基-2-氰基苯 11.8 g 分散于 300 mL 由丙酮和甲醇按照体积比为 4:1 混合而成的溶剂中，接着分批加入氯化亚钴 13g、叠氮化钠 15.2g，然后在回流条件下继续反应 10 小时，再向其中滴加三氟乙酸，直至溶液 pH 值为 3，而后过滤，以 30 mL 冰水洗涤，而后以 30 mL 乙醚洗涤，将固体干燥，得到灰色粉末。

接着取所得灰色粉末，加入到加有 13.3 g 四氟硼酸的 180 mL 乙腈中，而后在 5 °C 下反应 7 小时，将反应液倒入 50g 冰水中，搅拌 0.5 小时后，过滤，用冰水 20 mL 洗涤，而后以 10 mL 石油醚洗涤，干燥之后得到米黄色粉末状固体。

而后将所得固体溶于 150 mL 甲醇，加入浓氨水 140 mL，回流反应 2 小时，冷却过滤得到淡黄色粉末状固体。将所得固体加入 100 mL 发烟硝酸中，搅拌 2 小时，倾入 300 g 冰中，过滤，水洗得到黄色固体 11.5 g。

【产物测定结果】

元素分析 EA：测量值（理论值）C 40.51% (40.59%); H 2.39(2.43); N 33.86% (33.81%); O 23.27% (23.17%)

红外光谱 IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3435(m), 3021(w), 2824(s), 2708(s), 1602(s), 1581(s), 1535 (s), 1500(s), 1453(m), 1369 (s), 1323 (m), 908(w), 701(m), 634(m)

实施例 6

图 20 为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图，其具体的名称为：2-氧化-4-硝基哒嗪[4,5-d][1,2,3]三嗪，具有如图 1 所示的结构，具体来

说具有如图4所示的结构,更具体来说具有如图21所示的结构。

【合成方法】

实施例6的化合物具体的合成方法,具体为采用4-氨基-5-氰基吡嗪作为前体物质进行合成。在此详述如下:

第一步反应:合成第一中间产物

- (1) 将4-氨基-5-氰基吡嗪分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物,在一定的反应温度下反应一定时间。
- (3) 加入酸,纯化并得到实施例6的第一中间产物。

本部分步骤(1)所用的溶剂、步骤(2)所加入的盐类、叠氮化物,反应温度及反应时间,以及步骤(3)中所加入的酸,可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第二步反应:合成第二中间产物

- (4) 将实施例6的第一中间产物缓慢加入硝化体系,加完后控制反应体系温度,保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (5) 终止反应、过滤、纯化,得到实施例6的第二中间产物。

本部分步骤(4)所加入的硝化体系及反应温度,以及步骤(5)中终止反应的方式,可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

第三步反应:合成产物

- (6) 将实施例6的第二中间产物分散于溶剂中。
- (7) 加入一定量的浓氨水,回流反应一段时间,冷却过滤得到固体。
- (8) 将此固体投入氧化性溶液中,反应一段时间。
- (9) 终止反应,过滤、纯化,得到实施例2的产物,即图11所示的化合物。

本部分步骤(6)中所用的溶剂,步骤(7)所用的浓氨水浓度、用量比例及反应时间,以及步骤(8)中的氧化性溶液选择及反应时间,可参照通用合成方式步骤四丙部分中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例,请参照以下实施例6A。

[实施例6A]

取4-氨基-5-氰基吡嗪11.1g与5.1g氯化铵、11g叠氮化铵一起分散于50mL水中,之后在85℃下反应7小时,冷却至室温再向其中滴加盐酸,直至溶液pH值为1,而后过滤,以15mL冰水洗涤,将固体干燥,得到褐色粉末12.8g。

接着取0.4g所得褐色粉末,加入到100%硝酸/三氟乙酸按照一比一的体积比配置的6mL混合液中,而后在室温下反应1小时,将反应液倒入50g冰水中,搅拌0.5小时后,过滤,用冰水10mL洗涤,干燥之后得到0.55g黄褐色粉末状固体。

而后将所得到的固体溶于5mL甲醇,加入浓氨水4mL,回流反应2小时,冷却过滤得到淡黄色粉末状产物。将此产物投入浓硫酸与30%双氧水以1:1体积比混合的5mL溶剂中,搅拌反应1小时,而后倾入20g冰中,过滤得到黄色固体。

【产物测定结果】

元素分析EA: 测量值(理论值) C: 30.91%(30.94%); H: 1.01%(1.04%); N: 43.12%(43.30%); O: 24.63%(24.73%)

红外光谱IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3091 (s), 1592 (s), 1541 (s), 1366 (s), 1339 (m), 881 (m), 831 (m), 712 (s)

实施例7

图22为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图,其具体的名称为:2,7-氧化-4,5-二叠氮-[1,2,3]三嗪[4,5-d][1,2,3]三嗪,具有如图1所示的结构,具体来说具有如图4所示的结构,更具体来说具有如图23所示的结构。

【合成方法】

实施例7的化合物具体的合成方法，具体为采用3,3'-二氨基-2-(1H-四唑5-基)丙腈作为前体物质进行合成。在此详述如下：

第一步反应：合成第一中间产物

- (1) 将4-氨基-5-氧基咪唑分散于溶剂中。
- (2) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物，在一定的反应温度下反应一定时间。
- (3) 加入酸，纯化并得到实施例7的第一中间产物。

本部分步骤(1)所用的溶剂、步骤(2)所加入的盐类、叠氮化物，反应温度及反应时间，以及步骤(3)中所加入的酸，可参照通用合成方式步骤二中所述的反应条件。

第二步反应：合成产物

- (4) 将实施例7的第一中间产物缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (5) 终止反应、过滤、纯化，得到实施例7的产物，即图16所示的化合物。

本部分步骤(4)所加入的硝化体系及反应温度，以及步骤(5)中终止反应的方式，可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例7A。

[实施例7A]

取3,3'-二氨基-2-(1H-四唑5-基)丙腈15.3g，与5.1二甲胺盐酸盐、11g叠氮化铵一起分散于50mLDMF中，之后在85℃下反应3小时，过滤，将母液浓缩至10mL，再向其中加入50mL水，继而滴加盐酸，直至溶液pH值为2，而后过滤，以15mL冰水洗涤，将固体干燥，得到灰白色粉末14.1g。

接着取0.4g所得灰白色粉末，加入到3mL100%硝酸与3mL浓H₂SO₄组成的混合溶液中，而后在60℃下反应4小时，将反应液倒入20g冰水中，搅拌0.5小时后，以100mL乙酸乙酯萃取，而后将有几层旋干，干燥之后得到0.50g黄褐色粉末状固体。

【产物测定结果】

元素分析EA：测量值（理论值）C:19.38% (19.38%); H:0.01% (0.00%); N:67.77% (67.74%); O:12.93% (12.90%)

红外光谱IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3110 (s), 2163(s), 1855(m), 1313 (s), 899 (m), 842 (m), 659(s)

实施例8

图24为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图，其具体的名称为：6-氧化-8-硝氨基[1,2,5]噁二唑[3',4':5,6]吡啶[2,3-d][1,2,3]三嗪，具有如图1所示的结构，具体来说具有如图5所示的结构，更具体来说具有如图25所示的结构。

【合成方法】

实施例8的化合物具体的合成方法，在此详述如下：

第一步反应：合成前体物质

- (1) 将3,4'-二氨基吡啶及乙二酸分散于溶剂中。
- (2) 加入酸，进行反应。
- (3) 将所得产物溶于二氯亚砷，滴加N,N'-二甲基甲酰胺，回流进行反应。
- (4) 终止反应，过滤，得到固体。
- (5) 将所得固体分散于溶剂中，加入氯化物，回流进行反应。
- (6) 冷却、过滤，将母液旋干。
- (7) 将所得固体分散于溶剂中，加入浓氨水或通入氨气流，回流进行反应。
- (8) 冷却、过滤，将母液旋干，得到实施例8的前体物质。

步骤(1)至步骤(3)中,反应的温度可以是-20℃-130℃,例如可为40℃、70℃、100℃(加热回流)、110℃、120℃。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应温度。

步骤(1)或(5)中的溶剂可为N,N-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种,或二种或多种的混合物。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的溶剂。

步骤(1)中溶剂的用量体积与反应物的质量比,例如可为溶剂体积:3,4-二氨基呋喃=2mL/g-2mL/mg;例如可为9.9mL/g、10mL/g、15mL/g、35mL/g、75mL/g或400mL/g。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的溶剂比例。

步骤(2)中,所加入的酸的种类可以为:浓盐酸、浓氢溴酸、浓氢氟酸、浓氢碘酸等,可以使用如上单独一种酸,也可两种或多种酸混合使用;但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的酸。

在步骤(3)中的反应时间,可为0.5至12小时,例如可为0.5至4小时,例如可为1至4小时,例如可为0.5小时、1小时、2小时、4小时。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应时间。

在步骤(5)中的氮化物,可为通式 $R_a(N)_b$ 的化合物,其中R为选自Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni及H的其中一种,或二种或多种的混合,并选择对应的a与b。

在步骤(5)中的反应时间,可为0.5至12小时,例如可为0.5至4小时,例如可为1至4小时,例如可为0.5小时、1小时、2小时、4小时。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应时间。

在步骤(7)中的溶剂,可以是氨气流不溶或难溶的溶剂,或是浓氨水可溶的溶剂。举例来说,当步骤(7)采用氨气流时,溶剂可为二氯甲烷、氯仿、丙酮、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种,或二种或多种的混合物;当步骤(7)采用浓氨水时,溶剂可为甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、甘油、丙酮等中的任意一种,或二种或多种的混合物。举例来说,步骤(7)可采用氨气流,其溶剂可为二氯甲烷。

在步骤(7)中的反应时间,可为0.5至12小时,例如可为0.5至4小时,例如可为1至4小时,例如可为0.5小时、1小时、2小时、4小时。但本发明并不以此为限,应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的反应时间。

第二步反应:合成第一中间产物

(9) 将实施例8的前体物质分散于溶剂中。

(10) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物,在一定的反应温度下反应一定时间。

(11) 加入酸,纯化并得到实施例8的第一中间产物。

本部分步骤(9)所用的溶剂、步骤(10)所加入的盐类、叠氮化物,反应温度及反应时间,以及步骤(11)中所加入的酸,可参照通用合成方式步骤二中所所述的反应条件。

第三步反应:合成第二中间产物

(12) 将实施例8的第一中间产物缓慢加入硝化体系,加完后控制反应体系温度,保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。

(13) 终止反应,过滤、纯化,得到实施例8的第二中间产物。

本部分步骤(12)所加入的硝化体系及反应温度,以及步骤(13)中终止反应的方式,可参照通用合成方式步骤三中所所述的反应条件。

第四步反应:合成产物

(14) 将第二中间产物分散于溶剂中。

(15) 加入一定量的浓氨水,回流反应一段时间。

(16) 冷却过滤得固体。

(17) 将所得到的固体加入硝化体系中,搅拌一段时间。

(18) 终止反应,过滤、纯化,得到实施例8的产物,即图17所示的化合物。

本部分步骤(14)中所用的溶剂,步骤(15)所用的浓氨水浓度、用量比例及反应时间,步骤(17)所加入的硝化体系及反应温度,以及步骤(18)中终止反应的方式,可参照通用合成方式步骤四丁部分中所所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例8A。

[实施例8A]

3,4-二氨基呋喃 10.1g 与 15.1g 乙酸分散于 100 mL 水中，而后在冰水浴下加入 20 mL 浓盐酸，升温至回流反应 4 小时，冷却、过滤，得到固体产物。

将该固体溶于二氯亚砷 70 mL，滴加 5 mL N,N-二甲基甲酰胺，升温至回流反应 4 小时，倒入 200 g 冰水中，过滤得到固体。而后将其溶于 50 mL 丙酮中，加入 3.9 g 氯化钠，升温至回流反应 1 小时，冷却、过滤，将母液旋干。将所得固体溶于 60 mL 二氯甲烷，通入氨气流（流量 5 mL/min），回流反应 4 h，冷却、过滤，将母液旋干。

将所得固体分散于 300 mL 由丙酮和甲醇按照体积比为 4:1 混合而成的溶剂中，接着分批加入氯化亚钴 13 g、叠氮化钠 15.2 g，然后在回流条件下继续反应 10 小时，再向其中滴加稀硫酸，直至溶液 pH 值为 3.3，而后过滤，以 30 mL 冰水洗涤，而后以 30 mL 乙醚洗涤，将固体干燥，得到粉色粉末。

接着取所得粉色粉末，加入到加有 13.3 g 四氟硼酸的 180 mL 乙腈中，而后在 0°C 下反应 3 小时，将反应液倒入 50 g 冰水中，搅拌 0.5 小时后，过滤，用冰水 20 mL 洗涤，而后以 10 mL 石油醚洗涤，干燥之后得到淡黄色粉末状固体。

而后将所得固体溶于 90 mL 甲醇，加入浓氨水 900 mL，回流反应 2 小时，冷却过滤得到桔黄色粉末状固体。将所得固体加入 60 mL 发烟硝酸中，搅拌 2 小时，倾入 200 g 冰中，过滤，水洗得到黄色固体 7.7 g。

【产物测定结果】

元素分析 EA: 测量值 (理论值) C 23.89% (23.91%); H 0.35% (0.40%); N 50.23% (50.20%); O 25.44% (25.48%)

红外光谱 IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3011 (s), 2182 (w), 2147 (m), 1591 (s), 1522 (s), 1331 (s), 1304 (m), 851 (m), 671 (s)

实施例 9

图 26 为本发明的一种化合物的其中一种实施方式的化学结构图，其具体的名称为：2-氧化-4-氯-9H-[1,2,4]三唑[5'-1':3,4][1,2,4]三唑[6,1-d][1,2,3,5]四唑，具有如图 1 所示的结构，具体来说具有如图 5 所示的结构，更具体来说具有如图 27 所示的结构。

【合成方法】

实施例 9 的化合物具体的合成方法，在此详述如下：

第一步反应：合成前体物质

- (1) 将 3-氨基-1,2,4-三氮唑分散于溶剂中。
- (2) 加入硝基乙腈钠盐，回流反应。
- (3) 冷却、过滤，将母液旋干，得到实施例 9 的前体物质。

步骤 (1) 中的溶剂可为 NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砷、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的任意一种，或二种或多种的混合物。举例来说，可以是乙腈。但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的溶剂。

步骤 (1) 中溶剂的用量体积与反应物的质量比，例如可为溶剂体积：3-氨基-1,2,4-三氮唑 = 2 mL/g - 2 mL/mg；例如可为 5.95 mL/g、10 mL/g、15 mL/g、35 mL/g、75 mL/g 或 400 mL/g。但本发明并不以此为限，应视为本发明可以采用任意适合用于本反应的溶剂比例。

步骤 (2) 中硝基乙腈化合物可为硝基乙腈盐类，举例来说，所述硝基乙腈化合物可为通式 $M_n(\text{CH}(\text{NO}_2)\text{CN})_n$ 的化合物，其中 M 为选自 Li、Na、K、Rb、Cs 的其中一种，或二种或多种的混合。具体来说，所述硝基乙腈化合物可为硝基乙腈钠盐。

第二步反应：合成第一中间物质

- (4) 将实施例 9 的前体物质分散于溶剂中。
- (5) 加入一定量的盐类及一定量的叠氮化物，在一定的反应温度下反应一定时间。
- (6) 加入酸，纯化并得到实施例 3 的第一中间产物。

本部分步骤 (4) 所用的溶剂、步骤 (5) 所加入的盐类、叠氮化物，反应温度及反应时间，以及步骤 (6) 中所加入的酸，可参照通用合成方式步骤二中

所述的反应条件。

第三步反应：合成第二中间产物

- (7) 将实施例3的第一中间产物缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化反应在一定温度下进行一定时间。
- (8) 终止反应，纯化，得到实施例3的第二中间产物。

本部分步骤(7)所加入的硝化体系及反应温度，以及步骤(8)中终止反应的方式，可参照通用合成方式步骤三中所述的反应条件。

第三步反应：合成产物

- (9) 将实施例3的第二中间产物分散于溶剂中。
- (10) 通入氯气气流，在一定温度下反应一段时间。
- (11) 纯化、干燥，得到实施例3的产物，即图12所示的化合物。

本部分步骤(9)中所用的溶剂，步骤(10)所用的氯气流量、反应温度及反应时间，可参照通用合成方式步骤四甲部分中所述的反应条件。

关于上述反应的具体范例，请参照以下实施例9A。

[实施例9A]

3-氨基-1,2,4-三氮唑8.4g分散于50mL乙腈中，再加入12.1g硝基乙腈钠盐，升温至回流反应3小时，冷却、过滤，将母液旋干。

将所得固体与3.6g硝酸铵和15.1g叠氮化钠分散在100mL水中，之后在75℃下反应7小时，冷却至室温再向其中滴加盐酸，直至溶液pH值为3.1，而后过滤，以5mL冰水洗涤，将固体干燥，得到褐色粉末11.3g。

接着取0.5g所得褐色粉末，加入到100%硝酸/三氟乙酸按照一比一的体积比配置的20mL混合液中，而后在-10℃下反应4小时，将反应液倒入50g冰水中，搅拌0.5小时后，过滤，用冰水20mL洗涤，干燥之后得到0.28g黄绿色粉末状固体，得率30%。

将所得固体溶于20mL二氯甲烷，通入氯气气流（流量5mL/min），在60℃反应1小时，过滤，得到白色粉末状产物0.17g，收率为30%。

【产物测定结果】

元素分析EA：测量值（理论值）C:26.41% (26.50%); H:1.28% (1.33%); Cl:15.59% (15.65%); N:49.42% (49.45%); O:7.10% (7.06%)

红外光谱IR (KBr, γ/cm^{-1}): 3011 (s), 2280(w), 2096(m), 1571(s), 1379(s), 901 (m), 735 (s), 610(w)

起爆药性质测定

【极限起爆药量测定1】

依照GJB 5891.19-2006所规定的标准执行。具体来说，依照以下步骤：

- (1) 将被测起爆药（例如是实施例1-9的化合物中的待测定者）、三硝基间苯二酚铅（符合WJ 617规范）、黑索今（符合GJB 296A-1995标准）分别放入水浴或油浴烘箱中，在 $60^{\circ}\text{C}\pm 2^{\circ}\text{C}$ 的温度下烘2小时，取出，放入干燥器中冷却至室温，备用。
- (2) 用分析天平称取经步骤(1)处理的黑索今0.030g，准确至0.0002g，置于铜管壳（直径5.1mm，高8.2mm）中，以117.6MPa的压力压药。
- (3) 分别称取经步骤(1)处理的三硝基间苯二酚铅（对于直接能被电点火头点燃的被测药剂，可以不用三硝基间苯二酚铅作点火药）0.030g，黑索今0.020g和待测药量的被测起爆药，准确至0.0002g，依次置于带有绸垫（符合FZ 66201标准的规格401平纹绸）的铝加强帽（可与铜管壳紧密配合）内，以49.0MPa的压力压药，并做好记录。
- (4) 称取黑索今0.020g，准确至0.0002g，并依次将此步骤称取的黑索今和经步骤(3)中压好药的铝加强帽装入步骤(2)中的铜管壳内，以49.0MPa的压力压制成试样10发，并编号，记录每一编号的被测起爆药质量，备用。
- (5) 如图28所示，将装好的试样2置于铅板3（符合WJ 580规范，直径为35mm，厚2mm）上，另一方面连接电点火头1，连接至包括电源4、开关5的直流电源电路中。
- (6) 打开开关5以接通电源4，起爆试样。检查雷管是否被成功引爆，且铅板是否被击穿。
- (7) 测量试样在铅板上的炸孔：炸孔直径不小于试样外径时为全爆，小于试样外径时为半爆。若连续试验的数发试样均全爆，则可适当减少被测起爆药的药量再进行试验；若试样有半爆，则可适当增加被测药剂的药量；直至找到数发试样连续试验均为全爆时被测起爆药的最小药量。

(8) 依照找出的极限起爆药量, 压制试样 50 发进行试验以进行复核。此时, 试样均应全爆。

举例来说, 实施例 1 的极限起爆药量测定结果如表 1:

起爆药装药量	起爆结果	全爆或半爆比例
150 mg	全爆	10/10
140 mg	全爆	10/10
130 mg	全爆	10/10
125 mg	全爆	10/10
120 mg	半爆或不爆	6/10

表 1

由上述表 1, 可以得到实施例 1 的极限起爆药量在上述的测试条件下为 120 mg。本测定中, 进行了实施例 1-9 的极限起爆药量测定, 每个实施例选取至少 5 种起爆药装药量, 每一种起爆药量装填 10 发, 结果如后述表 2。

【热分解温度测定】

使用梅特勒托利多公司的 TGA/DSC 3+ 型同步热分析仪, 在 $10\text{ }^{\circ}\text{Cmin}^{-1}$ 升温速率和 20 mLmin^{-1} 的氮气流量下, 在 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ 至 $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的温度范围内测得实施例 1-9 的化合物的热分解温度, 结果如后述表 2。

【密度测定】

利用 Micromeritics Accucyc II 1340 比重瓶自动真密度计在 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下测量实施例 1-9 的化合物的密度, 结果如后述表 2。

【安息角测定】

依照以下步骤进行试验准备:

- (1) 准备如图 29 所示, 金属 (例如铜 H62) 制, 表面光滑、角度为 30° 的漏斗, 其出口处内径为 4 mm , 外表面去毛刺、内表面镀铬, 余角角为 $R=1\sim 2$; 并准备如图 30 所示, 金属材料的三支架, 其高度的设计应使漏斗的出口端面到测量面的距离为 36 mm 。
- (2) 将被测药剂 (实施例 1-9 的化合物的待测试者) 按相应规定进行干燥, 达到技术要求后, 在干燥器中自然冷却 30 min 备用。
- (3) 在防护板后的平面上, 放上测量坐标纸 (例如是尺寸 $150\text{ mm}\times 150\text{ mm}$)。将漏斗套在支架上后, 将其放在测量坐标纸的正中间。
- (4) 用架盘天平 (例如是最大称量为 200 g , 分度值为 0.1 g) 称取经处理的被测药剂 3 g , 准确至 0.1 g , 置于纸质簸箕中备用。

接着依照以下步骤进行试验:

- (1) 在防护板后, 将纸质簸箕中的被测药剂沿漏斗壁缓慢倒入漏斗中, 使药剂自由落到测量坐标纸上, 形成锥体。
- (2) 移开漏斗及其支架, 用高度游标卡尺 (例如是测量范围为 0 mm 至 150 mm , 分度值 0.02 mm) 测量圆锥体高度, 准确至 1 mm 。
- (3) 用铅笔在测量坐标纸上标出圆锥体底面互相垂直的两个直径的端点。
- (4) 将测量坐标纸上的药剂倒回纸质簸箕中, 读出测量坐标纸上标出的两个互相垂直的直径长度, 准确至 1 mm 取其算术平均值。
- (5) 用毛刷将漏斗和测量坐标纸上的浮药扫至废药杯中。

如此可通过以下式 (1) 以圆锥体的高度及其两个直径长度算出安息角:

$$\theta = \tan^{-1}(2h/D) \quad \text{式 (1)}$$

其中, θ 为被测药剂的安息角, h 为圆锥体高度, D 圆锥体底面互相垂直的两个直径的算术平均值。算出的安息角的结果如后述表 2。

上述极限起爆药量测定、热分解温度测定、密度测定、安息角测定中所得各实施例的极限起爆药量、热分解温度、密度及安息角如下表 2:

	极限起爆药量	热分解温度	密度	安息角
实施例 1	125 mg	$161\text{ }^{\circ}\text{C}$	1.83 g/cm^3	31.2°
实施例 2	120 mg	$182\text{ }^{\circ}\text{C}$	1.83 g/cm^3	32.2°

实施例3	125mg	190℃	1.89 g/cm ³	32.5°
实施例4	130mg	197℃	1.82 g/cm ³	31.7°
实施例5	120mg	180℃	1.87 g/cm ³	33.3°
实施例6	135mg	184℃	1.83 g/cm ³	32.1°
实施例7	100mg	160℃	1.88 g/cm ³	30.2°
实施例8	120mg	163℃	1.81 g/cm ³	31.8°
实施例9	140mg	188℃	1.87 g/cm ³	34.1°

表2

一般来说,具有较高的分解温度、较大的密度及较小的安息角为较佳。但本发明并不以此为限。

【极限起爆药量测定II】

依照 GB5891-2006 所规定的标准执行。具体来说,依照以下步骤:

- (1) 将 600 mg 黑索金分三次以不同的压力压入标准 8# 雷管中,每次药量约为 200 mg、200 mg、200 mg, 使得其装药密度由下而上分别为 1.65-1.75 g/cm³、1.6-1.68 g/cm³ 和 1.5-1.6 g/cm³。
- (2) 以 14.28 MPa 的压力将一定量的实施例 1 的化合物作为起爆药, 压入该雷管的最上层。
- (3) 将加强帽压入其上, 装入电点火头, 进行封口。
- (4) 将装好的雷管置于约 5mm 厚的铅板上, 而后连接电点火装置。
- (5) 启动点火, 观测雷管是否被成功引爆, 且铅板是否被击穿。此处的“成功引爆”是指三层黑索金装药均被引爆, 且无白色药粉残留, 下部铅板被击穿, 穿孔直径大于雷管直径。

其中, 本测定中, 针对实施例 1 总共选取至少 5 种起爆药装药量, 每一种起爆药量装填 10 发。因此可以得到实施例 1 的化合物其极限起爆药量为 50mg (52.11 MPa, 1.75 g/cm³, 8# 雷管)

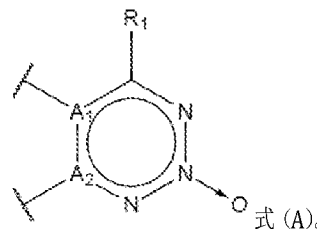
【其他起爆测试】

实施例 1 的化合物作为起爆药, 在 15 MPa - 50 MPa 压力下, 于 8# 雷管压装后得到的样品, 小于 150 mg 即可稳定起爆 500 mg 的 RDX 和 PETN, 并在 5 mm 铅板上形成直径为 8-15 mm 的穿孔。也就是说, 其起爆能力约为 DDNP 的 2-3 倍, 具有强起爆能力。

此外, 实施例 1 的化合物, 在装药密度 1.85 g/cm³ 时的计算爆速、爆压与 HMX 相当, 具有强爆轰能力。

上述实施方式仅为本发明的优选实施方式, 不能以此来限定本发明保护的范围, 本领域的技术人员在本发明的基础上所做的任何非实质性的变化及替换均属于本发明所要求保护的范畴。

权利要求书



1、一种化合物，其特征在于，所述化合物的结构包括式(A)结构，

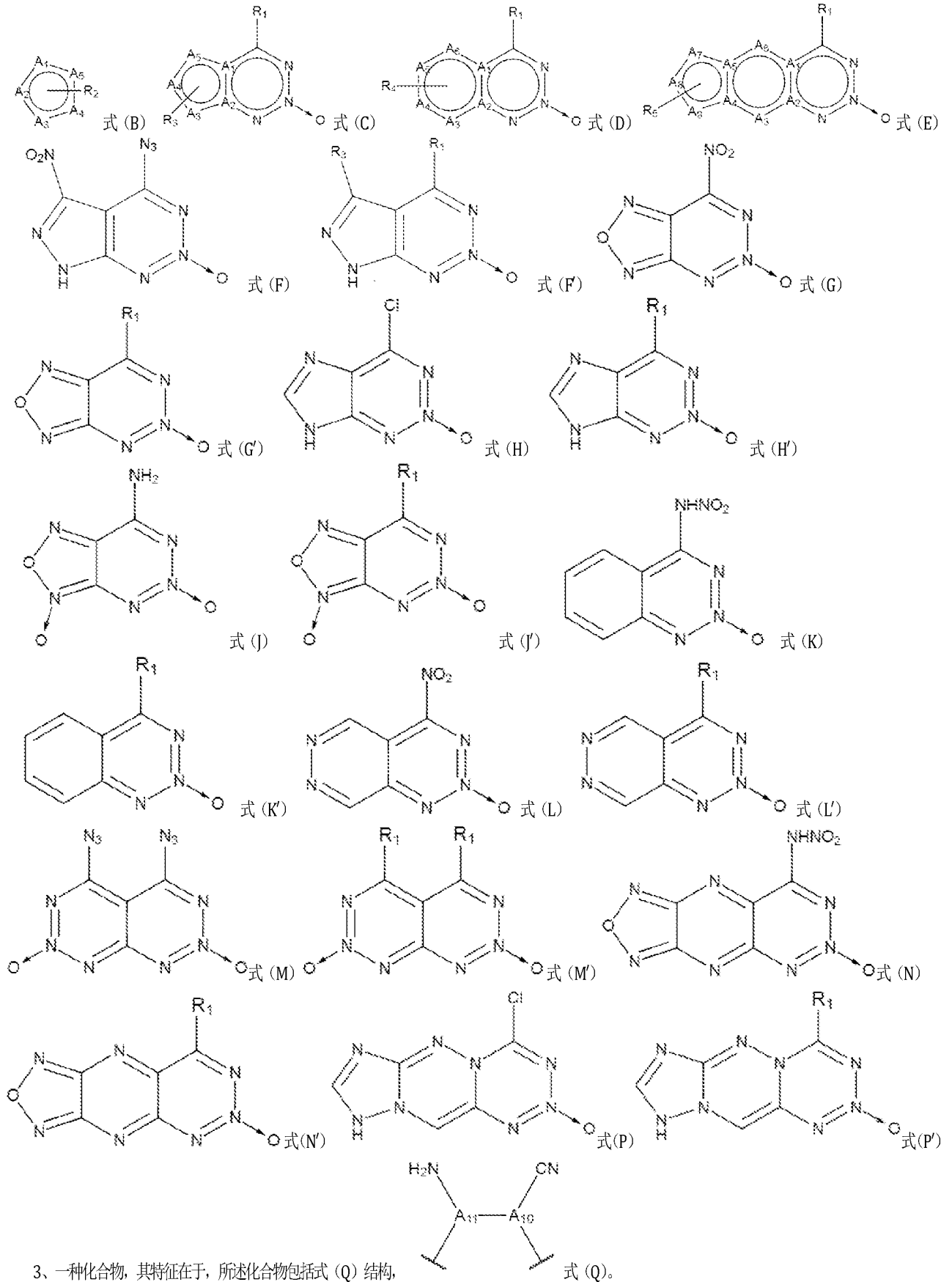
2、如权利要求1所述的化合物，其特征在于，所述化合物为稠环化合物，所述稠环化合物至少包括所述式(A)结构及多元环；

优选地，所述式(A)结构中， A_1 及 A_2 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种；优选地，所述式(A)结构中， A_1 及 A_2 选自碳原子及氮原子中的一种或二种；优选地，所述式(A)结构中， A_1 及 A_2 为碳原子；优选地，所述式(A)结构中， A_1 及 A_2 其中一者为氮原子，另一者为碳原子；优选地，所述式(A)结构中， A_1 为氮原子， A_2 为碳原子；优选地，所述化合物为包括二个至三个环的稠环化合物；优选地，所述化合物为包括二个环的稠环化合物；优选地，所述化合物为包括三个环的稠环化合物；优选地，所述稠环化合物为所述式(A)结构与所述多元环的稠环化合物；优选地，所述稠环化合物中，所述式(A)结构及所述多元环共用两个碳原子；优选地，所述多元环为选自三元环、四元环、五元环、六元环、七元环及八元环的其中一种或多种；优选地，所述多元环为选自五元环、六元环及七元环的其中一种或多种；优选地，所述多元环为五元环及六元环的其中一种或多种；优选地，所述多元环为五元环；优选地，所述多元环为六元环；优选地，所述多元环为多个多元环；优选地，所述多个多元环包括五元环及六元环；优选地，所述多个多元环为五元环及六元环；优选地，所述多元环由碳原子所组成；优选地，所述多元环为选自茂环、苯环及草环的其中一种；优选地，所述多元环为苯环；优选地，所述多元环为杂环，所述杂环的杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中一种；优选地，所述杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中二种；优选地，所述杂原子为氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子或碲原子中的其中一种；优选地，所述杂原子为氮原子或氧原子；优选地，所述杂原子为选自氮原子及氧原子的其中一种；优选地，所述杂原子为氮原子；优选地，所述杂原子为氧原子；优选地，所述杂环包括1个、2个、3个、4个或5个所述杂原子；优选地，所述杂环包括1个、2个、3个、4个或5个氮原子；优选地，所述杂环包括1个氧原子；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡咯、噻吩、咪唑、吡唑、噁唑、噻唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三唑类及四唑类的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三唑类及四唑类的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三唑类及四唑类的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶及吡嗪的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑及吡唑的其中一种；优选地，所述多元环为吡唑；优选地，所述多元环为咪唑；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡啶及吡嗪的其中一种；优选地，所述多元环为哒嗪；优选地，所述多元环为吡啶；优选地，所述多元环为吡嗪；优选地，所述多元环为三唑类；优选地，所述多元环为1,2,4-三唑；优选地，所述多元环为三唑类；优选地，所述多元环为1,2,3-三唑；优选地，所述多元环为1,2,4-三唑；优选地，所述多元环为选自咪唑、呋喃及噁唑的其中一种；优选地，所述多元环为呋喃；优选地，所述多元环为咪唑；优选地，所述多元环上包括取代基；优选地，所述取代基为选自：饱和烃基，包括烷基；官能团化饱和烃基，包括硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基、卤代烷基；醇基；醚基；硫醚基；羧基；酯基；硝酸酯基；磺酸基；磺酸酯基；酮基；酰胺基；酰肼基；醛基；不饱和脂肪族烃基，包括烯基、炔基、卤代烯基、硝基炔基；不饱和芳香烃基，包括单环芳基、多环芳基、稠环芳基和官能团化的单环芳基、官能团化的多环芳基、官能团化的稠环芳基；杂环芳香烃基，包括噻吩、吡啶、呋喃、咪唑类、噻唑类、噁唑类及其对应的单官能团化或多官能团化基团；杂环非芳香烃基，包括氮杂桥环烃、氧杂桥环烃；卤原子；氰基、肟基；氨基、亚氨基、偶氮基、氧化偶氮基、叠氮基、肼基；羧基、羟氨基、烷氧基；硝基；及硝基及亚硝基的其中一种；优选地，所述取代基为选自硝基、亚硝基、硝氨基、羟氨基、肟基、肟基、氨基、亚氨基、偶氮基、氧化偶氮基、叠氮基、肼基、氮杂桥环烃、吡啶咪唑类、噻唑类、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基及硝基炔基的其中一种；优选地，所述取代基为选自羟基、羟胺基、烷氧基、醇基、醚基、硫醚基、羧基、酯基、硝酸酯基、磺酸基、磺酸酯基、酮基、酰胺基、酰肼基、醛基、硝基炔基、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基、呋喃、噁唑类环及氧杂桥环烃的其中一种；优选地，所述取代基为选自硝基、亚硝基、硝氨基、硝基烷基、偕二硝基烷基、硝仿基烷基及硝基炔基的其中一种；优选地，所述取代基为选自硝基及亚硝基的其中一种；优选地，所述取代基为硝基；优选地，所述取代基为选自氨基、亚氨基、硝氨基、羟氨基及肼基的其中一种；优选地，所述取代基为选自氨基及亚氨基的其中一种；优选地，所述取代基为氨基；优选地，所述取代基为硝氨基；优选地，所述取代基为选自叠氮基、偶氮基、氧化偶氮基及肼基的其中一种；优选地，所述取代基为叠氮基；优选地，所述取代基为卤原子；优选地，所述取代基为选自氟、氯、溴及碘的其中一种；优选地，所述取代基为氯；优选地，所述取代基位于所述多元环的碳原子上；优选地，所述式(A)结构中的所述取代基 R_1 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 、式(B)结构中的其中一种，其中 $m+p=2n+1$ ；优选地，所述式(A)结构中的所述取代基 R_1 为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氮基中的其中一种；优选地，所述 R_1 为叠氮基；

优选地, 所述 R_1 为氨基; 优选地, 所述 R_1 为硝基; 优选地, 所述 R_1 为硝氨基; 优选地, 所述 R_1 为选自氟、氯、溴、碘中的其中一种; 优选地, 所述 R_1 为氟; 优选地, 所述 R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 n 、 p 为正整数; 优选地, 所述 R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m 、 n 、 p 为正整数; 优选地, 所述 R_1 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m 、 n 、 p 为正整数, 且 $n=1, 2, 3$ 或 4 ; 优选地, 所述式(B)结构中, 所述 A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种; 优选地, 所述式(B)结构中, 所述 A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种; 优选地, 所述式(B)结构中, 所述 A_1 至 A_5 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(B)结构中, 所述 A_1 至 A_5 为碳原子; 优选地, 所述式(B)结构中, 所述 A_1 至 A_5 上的取代基数为 $0, 1, 2, 3$ 或 4 个; 优选地, 所述 R_2 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及所述式(B)结构中的其中一或多个, 其中 $m+p=2n+1$; 优选地, 所述 R_2 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 n, p 为正整数; 优选地, 所述 R_2 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m, n, p 为正整数; 优选地, 所述 R_2 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m, n, p 为正整数, 且 $n=1, 2, 3$ 或 4 ; 优选地, 所述稠环化合物至少包括式(C)结构, 其中 A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_2 为碳原子; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_3 至 A_5 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_3 至 A_5 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 包括 $0, 1, 2, 3, 4$ 或 5 个氮原子, 其余为碳原子; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_3 至 A_5 包括 $0, 1, 2$ 或 3 个氮原子, 其他的是碳原子; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 组成一个呋喃环; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_2 为碳原子, 所述 A_3 及 A_5 为氮原子, 且所述 A_4 为氧原子; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_2 为碳原子, 所述 A_3 及 A_5 为氮原子, 所述 A_4 为氧原子, 且所述 A_3 有一个氧取代基, 所述 A_3 与所述氧取代基形成配位键; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 组成一个二噁环; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 组成一个吡啶环; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1, A_2 及 A_5 为碳原子, 且所述 A_3 及 A_4 为氮原子; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_5 上有硝基取代基; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1, A_2 及 A_5 为碳原子, 所述 A_3 及 A_4 为氮原子, 且所述式(C)结构中, 所述 A_5 上有硝基取代基; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1 至 A_5 组成一个咪唑环; 优选地, 所述式(C)结构中, 所述 A_1, A_2 及 A_4 为碳原子, 且所述 A_3 及 A_5 为氮原子; 优选地, 所述式(C)结构中, A_1 至 A_5 上的取代基数为 $0, 1, 2, 3$ 或 4 个; 优选地, 所述 R_3 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、氧、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及所述式(B)结构中的其中一或多个, 其中 $m+p=2n+1$; 优选地, 所述 R_3 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 n, p 为正整数; 优选地, 所述 R_3 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m, n, p 为正整数; 优选地, 所述 R_3 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m, n, p 为正整数, 且 $n=1, 2, 3$ 或 4 ; 优选地, 所述稠环化合物至少包括式(D)结构, 其中 A_1 至 A_6 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_6 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_2 为碳原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_3 至 A_6 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_6 包括 $0, 1, 2, 3, 4, 5$ 或 6 个氮原子, 其余为碳原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_3 至 A_6 包括 $0, 1, 2, 3$ 或 4 个氮原子, 其余为碳原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_6 为碳原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_4, A_5 为氮原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_3, A_6 为碳原子, 且 A_4, A_5 为氮原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_3 至 A_5 为氮原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_2, A_6 为碳原子, 且 A_3 至 A_5 为氮原子; 优选地, 所述式(D)结构中, 所述 A_1 至 A_2, A_6 为碳原子, A_3 至 A_5 为氮原子, 所述 A_4 有一个氧取代基, 所述 A_4 与所述氧取代基形成配位键, 且所述 A_6 有一个叠氮取代基; 优选地, 所述式(D)结构中, A_1 至 A_6 上的取代基数合计为 $0, 1, 2, 3, 4$ 或 5 个; 优选地, 所述 R_4 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、氧、 $C_nH_m(NO_2)_p$ 及所述式(B)结构中的其中一或多个, 其中 $m+p=2n+1$; 优选地, 所述 R_4 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 n, p 为正整数; 优选地, 所述 R_4 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m, n, p 为正整数; 优选地, 所述 R_4 为选自硝基、硝氨基或 $C_nH_m(NO_2)_p$ 中的其中一种, 其中 m, n, p 为正整数, 且 $n=1, 2, 3$ 或 4 ; 优选地, 所述稠环化合物至少包括式(E)结构, 其中 A_1 至 A_9 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_9 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_9 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_2 为碳原子; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_3 至 A_9 选自碳原子、氮原子及氧原子中的一种、二种或三种; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_3 至 A_9 选自碳原子及氮原子中的一种或二种; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_9 包括 $0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8$ 或 9 个氮原子, 其余为碳原子; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_6 包括 $0, 1, 2, 3, 4, 5$ 或 6 个氮原子, 其余为碳原子; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_4, A_5, A_7 至 A_9 包括 $0, 1, 2, 3, 4$ 或 5 个氮原子, 其余为碳原子; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_4, A_5, A_7 至 A_9 组成一个呋喃环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_4, A_5, A_7 至 A_9 组成一个三唑环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_4, A_5, A_7 至 A_9 组成一个1,2,4-三唑环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_6 组成一个二噁环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_6 组成一个吡啶环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_6 组成一个三嗪环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1 至 A_6 组成一个1,2,4-三嗪环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_4, A_5, A_7 至 A_9 组成一个呋喃环, 且所述 A_1 至 A_6 组成一个二噁环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述 A_1, A_2, A_4, A_5 为碳原子, 所述 A_3, A_6, A_7, A_9 为氮原子, 且所述 A_8 为氧原子; 优选地, 所述式(E)

结构中, 所述A₄、A₅、A₇至A₉组成一个三唑环, 且所述A₁至A₆组成一个三嗪环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述A₄、A₅、A₇至A₉组成一个1,2,4-三唑环, 且所述A₁至A₆组成一个1,2,4-三嗪环; 优选地, 所述式(E)结构中, 所述A₂、A₃、A₅、A₆为碳原子, 且所述A₁、A₄、A₆、A₇、A₉为氮原子; 优选地, 所述式(E)结构中, A₁至A₆上的取代基数合计为0、1、2、3、4或5个; 优选地, 所述式(E)结构中, A₄、A₅、A₇至A₉上的取代基数合计为0、1、2、3或4个; 优选地, 所述R₅为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、氧、C_nH_m(NO₂)_p及所述式(B)结构中的其中一或多个, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述R₅为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中n、p为正整数; 优选地, 所述R₅为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数; 优选地, 所述R₅为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数, 且n=1、2、3或4; 优选地, 所述稠环化合物包括所述式(A)结构及3-硝基吡唑; 优选地, 所述化合物的结构为式(F)结构; 优选地, 所述式(F)结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(F)结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(F)结构中的所述R₁为叠氨基; 优选地, 所述式(F)结构中的所述R₃为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、氧、C_nH_m(NO₂)_p及所述式(B)结构中的其中一或多个, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(F)结构中的所述R₃为硝基; 优选地, 所述化合物的结构为式(F)结构; 优选地, 所述式(F)结构的分析测定结果如下: DSC(160°C, 50°C-250°C, 5°C·min⁻¹); ¹H NMR(400MHz, DMSO-d₆, 25°C) δ(ppm): 14.51(brs, 1H, NH); ¹³C NMR(100MHz, DMSO-d₆, 25°C) δ(ppm): 157.95, 157.31, 148.07, 90.03; IR(KBr, γ/cm⁻¹): 3414(m); 3231(m); 2154(s); 1600(s); 1543(s); 1403(s); 1384(s); 1313(m); 1209(m); 1131(m); 元素分析C₄H₉N₉O₃(%); 实测值(计算值)C: 21.62(21.53), H: 0.47(0.45), N: 56.61(56.50), O: 21.22(21.51); 优选地, 所述化合物的结构包括式(G')结构; 优选地, 所述式(G')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(G')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(G')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中n、p为正整数; 优选地, 所述式(G')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数; 优选地, 所述式(G')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数, 且n=1、2、3或4; 优选地, 所述式(G')结构中的所述R₁为硝基; 优选地, 所述化合物的结构为式(G)结构; 优选地, 所述化合物的结构包括式(H')结构; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为叠氨基; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为氨基; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为硝基; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为硝氨基; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为选自氟、氯、溴、碘中的其中一种; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为氯; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中n、p为正整数; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数; 优选地, 所述式(H')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数, 且n=1、2、3或4; 优选地, 所述化合物的结构为式(H)结构; 优选地, 所述稠环化合物包括所述式(A)结构及2-氧化咪唑; 优选地, 所述化合物的结构包括式(J')结构; 优选地, 所述式(J')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(J')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(J')结构中的所述R₁为氨基; 优选地, 所述化合物的结构为式(J)结构; 优选地, 所述化合物的结构包括式(K')结构; 优选地, 所述式(K')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(K')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(K')结构中的所述R₁为硝氨基; 优选地, 所述化合物的结构为式(K)结构; 优选地, 所述化合物的结构包括式(L')结构; 优选地, 所述式(L')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(L')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(L')结构中的所述R₁为硝基; 优选地, 所述式(L')结构中的所述R₁为硝氨基; 优选地, 所述化合物的结构为式(L)结构; 优选地, 所述稠环化合物包括二个所述式(A)结构; 优选地, 所述稠环化合物包括二个相同的所述式(A)结构; 优选地, 所述稠环化合物包括二个所述式(A)结构, 所述二个所述式(A)结构共用A₁及A₂; 优选地, 所述化合物的结构包括式(M')结构; 优选地, 所述式(M')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(M')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(M')结构中的所述R₁为叠氨基; 优选地, 所述式(M')结构中的所述二个R₁为二个相同的基团; 优选地, 所述化合物的结构为式(M)结构; 优选地, 所述化合物的结构包括式(N')结构; 优选地, 所述式(N')结构中的所述R₁为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氨基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式(B)结构中的其中一种, 其中m+p=2n+1; 优选地, 所述式(N')结构中的所述R₁为选自氨基、硝基、硝氨基、叠氨基中的其中一种; 优选地, 所述式(N')结构中的所述R₁为硝氨基; 优选地, 所述式(N')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中n、p为正整数; 优选地, 所述式(N')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数; 优选地, 所述式(N')结构中的所述R₁为选自硝基、硝氨基或C_nH_m(NO₂)_p中的其中一种, 其中m、n、p为正整数, 且n=1、2、3或4; 优选地, 所述化合物的结构为式(N)结构; 优选地, 所述化合物的结构包括式(P')结构, 优

选地, 所述式 (P') 结构中的所述 R₁ 为选自氢、氨基、硝基、硝氨基、叠氮基、氟、氯、溴、碘、C_nH_m(NO₂)_p、式 (B) 结构中的其中一种, 其中 m+p=2n+1; 优选地, 所述式 (P') 结构中的所述 R₁ 为选自氟、氯、溴、碘中的其中一种; 优选地, 所述式 (P') 结构中的所述 R₁ 为氯; 优选地, 所述化合物的结构为式 (P) 结构。



4、如权利要求3所述的化合物，其特征在于，所述化合物包括多元环；

优选地，所述式(Q)结构中， A_{10} 及 A_{11} 选自碳原子、氮原子、氧原子、磷原子及硫原子中的一种或多种；优选地，所述式(Q)结构中， A_{10} 及 A_{11} 选自碳原子及氮原子中的一种或二种；优选地，所述式(Q)结构中， A_{10} 及 A_{11} 为碳原子；优选地，所述式(Q)结构中， A_{10} 及 A_{11} 的其中之一者为氮原子，另一者为碳原子；优选地，所述多元环为选自三元环、四元环、五元环、六元环、七元环及八元环的其中一种或多种；优选地，所述多元环为选自五元环、六元环及七元环的其中一种或多种；优选地，所述多元环为五元环及六元环的其中一种或多种；优选地，所述多元环为五元环；优选地，所述多元环为六元环；优选地，所述多元环由碳原子所组成；优选地，所述多元环为选自茂环、苯环及草环的其中一种；优选地，所述多元环为苯环；优选地，所述多元环为杂环，所述杂环的杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中一种；优选地，所述杂原子包括选自氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子及碲原子的其中二种；优选地，所述杂原子为氮原子、氧原子、硅原子、磷原子、硫原子、砷原子、硒原子或碲原子中的其中一种；优选地，所述杂原子为氮原子或氧原子；优选地，所述杂原子为选自氮原子及氧原子的其中一种；优选地，所述杂原子为氮原子；优选地，所述多元环为选自咪喃、吡咯、噻吩、咪唑、吡唑、噁唑、噻唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、嘧啶、哒嗪、呋喃、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶、吡嗪、咪唑、三唑类、四唑类、三嗪类及四嗪类的其中一种；优选地，所述多元环为选自咪唑、吡唑、吡啶及吡嗪的其中一种；优选地，所述多元环为咪唑；优选地，所述多元环为吡唑；优选地，所述多元环为选自哒嗪、吡啶及吡嗪的其中一种；优选地，所述多元环为哒嗪；优选地，所述多元环为四唑类；优选地，所述多元环上包括取代基；优选地，所述取代基为选自：饱和烃基，包括烷基基；官能团化饱和烃基，包括硝基烷基基、偕二硝基烷基基、硝仿基烷基基、卤代烷基基；醇基；醚基、硫醚基；羧基、酯基、硝酸酯基、磺酸基、磺酸酯基；酮基、酰胺基、酰肼基；醛基；不饱和脂肪族烃基，包括烯基、炔基、卤代烯基、硝基炔基；饱和芳香烃基，包括单环芳烃基、多环芳烃基、稠环芳烃基和官能团化的单环芳烃基、官能团化的多环芳烃基、官能团化的稠环芳烃基；杂环芳香烃基，包括噻吩、吡啶、呋喃、唑类环、嗪类环、噁唑类环及其对应的单官能团化或多官能团化基团；杂环非芳香烃基，包括氮杂桥环烃、氧杂桥环烃；卤原子；氰基、肟基、氨基、亚氨基、偶氮基、氧化偶氮基、叠氮基、肼基；羟基、羟氨基、烷氧基、硝氨基；及硝基及亚硝基的其中一种；优选地，所述取代基为选自硝基、亚硝基、硝氨基、羟氨基、氰基、肟基、氨基、亚氨基、偶氮基、氧化偶氮基、叠氮基、肼基、氮杂桥环烃、吡啶唑类环、嗪类环、硝基烷基基、偕二硝基烷基基、硝仿基烷基基及硝基炔基的其中一种；优选地，所述取代基为选自氰基及肟基的其中一种；优选地，所述取代基为选自氨基、亚氨基、硝氨基、羟氨基及肼基的其中一种；优选地，所述取代基为选自氨基及亚氨基的其中一种；优选地，所述取代基为氨基；优选地，所述取代基位于所述多元环的碳原子上；优选地，所述化合物包括3-氨基-4-氧基吡唑的结构；优选地，所述化合物包括4-氨基-5-氧基咪唑的结构；优选地，所述化合物包括1-氨基-2-氧基苯的结构；优选地，所述化合物包括4-氨基-5-氧基哒嗪的结构；优选地，所述化合物包括3,3-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈的结构；优选地，所述化合物为3-氨基-4-氧基吡唑；优选地，所述化合物为4-氨基-5-氧基咪唑；优选地，所述化合物为1-氨基-2-氧基苯；优选地，所述化合物为4-氨基-5-氧基哒嗪；优选地，所述化合物为3,3-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈。

5、一种化合物的制备方法，其特征在于，包括：

将包括式(Q)结构的化合物分散于溶剂中；

加入盐类及叠氮化物，在第一反应温度下反应第一反应时间；

加入酸；

进行纯化，得到中间产物；

将所述中间产物加入硝化体系当中，在第二温度下硝化反应第二反应时间；

终止所述硝化反应；以及

进行纯化。

6、如权利要求5所述的化合物的制备方法，其特征在于，所述包括式(Q)结构的化合物为如权利要求3所述的化合物；

优选地，所述包括式(Q)结构的化合物为如权利要求4所述的化合物；优选地，所述包括式(Q)结构的化合物为3-氨基-4-氧基吡唑；优选地，所述包括式(Q)结构的化合物为4-氨基-5-氧基咪唑；优选地，所述包括式(Q)结构的化合物为1-氨基-2-氧基苯；优选地，所述包括式(Q)结构的化合物为4-氨基-5-氧基哒嗪；优选地，所述包括式(Q)结构的化合物为3,3-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈；优选地，所述中间产物为3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑；优选地，所述溶剂为NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯等中的其中一种，或二种或多种的混合物优选地，所述溶剂的用量体积与所述包括式(Q)

结构的化合物质量的比值为2 mL/g至2 mL/mg; 优选地, 所述盐类为通式 M_nX_m 的化合物, 其中M为Fe、Co、Ni、Mn、Zn、Cd、Au、Ag、Cu、Cr、Al、V、 NH_4 、 $(CH_3)_2NH_2$ 、 $(CH_3)_3NH$ 、 $(CH_3CH_2)_2NH_2$ 及 $(CH_3CH_2)_3NH$ 的其中一种, 或二种或多种的混合, 而X为F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 $HCOO$ 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(COO)_2$ 及 $CH_2(COO)_2$ 的其中一种, 或二种或多种的混合; 优选地, 所述盐类与所述包括式(Q)结构的化合物的摩尔比为1:1至6:1; 优选地, 所述盐类与所述包括式(Q)结构的化合物的摩尔比为20:9至50:9; 优选地, 所述叠氮化物为通式 $R_n(N_3)_m$ 的化合物, 其中R为选自Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni及H的其中一种, 或二种或多种的混合; 优选地, 所述叠氮化物与所述包括式(Q)结构的化合物的摩尔比为1:1至6:1; 优选地, 所述第一温度为介于-20℃至130℃之间的温度; 优选地, 所述第一温度为介于-10℃至130℃之间的温度; 优选地, 所述第一反应时间为介于2小时至24小时; 优选地, 所述第一反应时间为介于2小时至10小时; 优选地, 所述第一反应时间为介于2小时至8小时; 优选地, 所述酸为: 硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸及三氟乙酸中的任意一者或更多者; 优选地, 其中所述加入所述酸为加入所述酸将反应体系调整至第一pH值, 所述第一pH值介于1-4之间; 优选地, 所述第一pH值介于1.0至3.5之间; 优选地, 所述第一pH值介于2.0至3.0之间; 优选地, 所述硝化体系为发烟硝酸、100%硝酸、五氧化二氮、四氟硼酸、100%硝酸/三氟乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、100%硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、发烟硝酸/乙酸酐、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸或发烟硫酸/100%硝酸; 优选地, 所述硝化体系为100%硝酸、100%硝酸/乙酸酐、100%硝酸/三氟乙酸酐、硝酸/乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、五氧化二氮、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸或发烟硫酸/100%硝酸, 所述中间产物质量与所述硝化体系体积的比为1g:5 mL至1g:50 mL; 优选地, 所述硝化体系为四氟硼酸, 所述中间产物与所述硝化体系体积的摩尔比为1:1至1:50; 优选地, 所述第二温度为介于-20℃至130℃之间的温度; 优选地, 所述第二温度为-20℃至110℃之间的温度; 优选地, 所述第二温度为-20℃至100℃之间的温度; 优选地, 所述第二温度为-20℃至室温之间的温度; 优选地, 所述第二温度为室温; 优选地, 所述第二温度为40℃至80℃之间的温度; 优选地, 所述第二温度为50℃至70℃之间的温度; 优选地, 所述第二反应时间为0.5至48小时; 优选地, 所述第二反应时间为0.5至12小时; 优选地, 所述第二反应时间为1至4小时; 优选地, 所述终止所述硝化反应为将所得产物加入冰水中; 优选地, 所述方法更包括将所述终止所述硝化反应后的所得产物分散于溶剂中, 通入氯气气流; 优选地, 所述氯气气流不溶或难溶于所述溶剂; 优选地, 所述通入氯气气流的反应温度为介于30℃至100℃; 优选地, 所述通入氯气气流的反应温度为介于50℃至90℃; 优选地, 所述通入氯气气流的反应温度为介于60℃至70℃; 优选地, 所述通入氯气气流的反应时间为介于1小时至10小时; 优选地, 所述通入氯气气流的反应时间为介于1小时至5小时; 优选地, 所述通入氯气气流的反应时间为介于1小时至3小时; 优选地, 所述方法更包括将所述终止所述硝化反应后的所得产物分散于溶剂中, 加入浓氨水, 并进行回流反应; 优选地, 所述浓氨水溶于所述溶剂; 优选地, 所述浓氨水的浓度为介于10%至32%; 优选地, 所述终止所述硝化反应后的所得产物的质量和浓氨水的体积的比介于1g:1 mL至1g:100 mL; 优选地, 所述终止所述硝化反应后的所得产物的质量和浓氨水的体积的比介于1g:5 mL至1g:20 mL; 优选地, 所述终止所述硝化反应后的所得产物的质量和浓氨水的体积的比介于1g:6 mL至1g:12 mL; 优选地, 所述回流反应的反应时间为介于0.5小时至24小时; 优选地, 所述回流反应的反应时间为介于1小时至12小时; 优选地, 所述回流反应的反应时间为介于2小时至8小时; 优选地, 所述方法更包括将所述加入所述浓氨水并进行所述回流反应的所得产物加入氧化性溶液; 优选地, 所述氧化性溶液为选自浓硫酸与30%双氧水的混合溶液、浓硫酸与50%双氧水的混合溶液、浓硫酸与三氟乙酸的混合溶液、浓硫酸与过氧乙酸的混合溶液及浓硫酸与乙酸酐混合溶液中的一种或多种; 优选地, 所述加入所述氧化性溶液的反应时间为介于0.5至12小时; 优选地, 所述加入所述氧化性溶液的反应时间为介于0.5至4小时; 优选地, 所述方法更包括在所述加入所述浓氨水并进行所述回流反应之后, 将所得到的产物加入另一个所述硝化体系当中, 在另一个所述第二温度下硝化反应另一个所述第二反应时间; 优选地, 所述方法更包括将丙二腈和亚硝酸盐分散于溶剂中; 优选地, 所述亚硝酸盐为通式 MNO_2 的化合物, 其中M为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb及Cs的其中一种, 或二种或多种的混合; 优选地, 所述溶剂为N,N-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯中的任意一种, 或二种或多种的混合物; 优选地, 所述方法更包括加入羟胺化合物; 优选地, 所述羟胺化合物为羟胺盐类; 优选地, 所述羟胺盐类为通式 $(NH_2OH)_nX_m$ 的化合物, 其中X为选自F、Cl、Br、I、 NO_3 、 SO_4 、 HSO_4 、 CO_3 、 HCO_3 、 $HCOO$ 、 CH_3COO 、 CF_3COO 、 $(COO)_2$ 及 $CH_2(COO)_2$ 的其中一种, 或二种或多种的混合; 优选地, 所述羟胺化合物为羟胺卤盐类; 优选地, 所述羟胺化合物为盐酸羟胺; 优选地, 所述加入羟胺化合物的反应温度为介于-20℃至130℃之间的温度; 优选地, 所述加入羟胺化合物的反应温度为介于-20℃至40℃之间的温度; 优选地, 所述加入羟胺化合物的反应温度为介于-10℃至40℃之间的温度; 优选地, 所述加入羟胺化合物的反应时间为为介于2-24小时的时间; 优选地, 所述加入羟胺化合物的反应时间为为介于2-10小时的时间; 优选地, 所述加入羟胺化合物的反应时间为为介于3-5小时的时间; 优选地, 所述方法更包括在加入所述羟胺化合物后, 加入碱及酯类化合物; 优选地, 所述碱为通式 $M_n(OH)_m$ 的化合物, 其中M为选自 NH_4 、Li、Na、K、Rb、Cs、Ca、Sr、Ba的其中一种, 或二种或多种的混合; 优选地, 所述酯类化合物为通式 R^1COOR^2 的化合物, 其中 R^1 、 R^2 为选自甲基、乙基、丙基、异丙基、伯丁基、仲丁基、叔丁基以及各种戊基、各种己基的其中一种, 或二种或多种的混合; 优选地, 所述方法更包括在加入所述碱及酯类化合物后, 加入酸及二氧化铅; 优选地, 所述方法更包括加入浓盐酸, 进行回流反应; 优选地, 所述方法更包括将所得产物溶于二氯亚砷并加入N,N-二甲基甲酰胺, 进行回流反应; 优选地, 所述方法更包括加入氯化物; 优选地, 所述氯化物为通式 $R_n(N)_m$ 的化合物, 其中R为选自Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni及H的其中一种, 或二

种或多种的混合；优选地，所述方法更包括加入硝基乙腈化合物；优选地，所述硝基乙腈化合物为硝基乙腈盐类；优选地，所述硝基乙腈化合物为通式 $M_n(\text{CH}(\text{NO}_2)\text{CN})_n$ 的化合物，其中 M 为选自 Li、Na、K、Rb、Cs 的其中一种，或二种或多种的混合；优选地，所述硝基乙腈化合物为硝基乙腈钠盐；优选地，所述化合物的制备方法为权利要求 1 所述的化合物的制备方法；优选地，所述化合物的制备方法为权利要求 2 所述的化合物的制备方法；优选地，所述方法包括以下步骤：步骤一：合成 3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑：在一定温度下，将 3-氨基-4-氰基吡唑分散于溶剂中，接着分批加入特定的盐(M_nX_n)、叠氮化物，然后在一定温度下继续反应，再向其中滴加酸，而后过滤，洗涤，将固体干燥，得到白色粉末，即 3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑；步骤二：合成 4-叠氮基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪-2-氧化物：将 3-氨基-4-1H-四氮唑-吡唑缓慢加入硝化体系，加完后控制反应体系温度，保持硝化 0.5h-48h，接着将反应体系倾入冰中，依次经过滤洗涤、干燥，得到米白色 4-叠氮基-5-硝基-7H-吡唑并[3,4-d][1,2,3]三嗪-2-氧化物粉末；优选地，所述步骤一中反应温度为 10°C - 130°C ；优选地，所述步骤一溶剂是 NN-二甲基甲酰胺、二甲基亚砜、四氢呋喃、乙腈、二氯甲烷、氯仿、甲醇、乙醇、水、异丙醇、乙二醇、乙二醇单甲醚、乙二醇单乙醚、乙二醇单丁醚、甘油、丙酮、三乙醇胺、吡啶、苯、甲苯、二甲苯中的任意一种，溶剂体积用量与 3-氨基-4-氰基吡唑投料质量比为 2mL/g - 20mL/g；优选地，所述步骤一中盐的物质的量之比为 $n(M_nX_n)$ ： $n(3\text{-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑})=1:1-6:1$ ；盐的组成为：M=Fe、Co、Ni、Mn、Zn、Cd、Au、Ag、Cu、Cr、Al、V、NH₄、(CH₃)₂NH₂、(CH₃)₃NH、(CH₃CH₂)₂NH₂或(CH₃CH₂)₃NH，X=F、Cl、Br、I、NO₃、SO₄、HSO₄、CO₃、HCO₃、HCOO、CH₃COO、CF₃COO、(COO)₂或CH₂(COO)₂；优选地，所述步骤一中所用叠氮化物物质的量之比为 $n(R_n(N_3)_n)$ ： $n(3\text{-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑})=1:1-6:1$ ；叠氮化物中 R 是：R=Li、Na、K、Rb、Cu、Fe、Ag、Au、Pb、Cd、Ni 或 H；优选地，所述步骤一中酸的种类为：硝酸、硫酸、盐酸、氢溴酸、氢氟酸、氢碘酸、甲酸、乙酸、乙酸酐、草酸、丙二酸或三氟乙酸中的任意一种或几种混合，用量以将溶液 pH 调整至 1 - 4 为准；优选地，所述步骤二中所用硝化体系为市售发烟硝酸或 100%硝酸，或其他硝化体系，包括五氧化二氮、四氟硼酸、100%硝酸/三氟乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、100%硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、发烟硝酸/乙酸酐、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100%硝酸；当采用的硝化体系为 100%硝酸、100%硝酸/乙酸酐、100%硝酸/三氟乙酸酐、硝酸/乙酸酐、100%硝酸/浓硫酸、发烟硝酸、发烟硝酸/浓硫酸、发烟硝酸/乙酸酐、发烟硝酸/三氟乙酸酐、五氧化二氮、三氧化硫/硝酸、五氧化二磷/硝酸、发烟硫酸/发烟硝酸、发烟硫酸/100%硝酸时，3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑与硝化体系的质量体积比为 1g：(5-50)mL；当采用的硝化体系为四氟硼酸时，3-氨基-4-[1H-四氮唑]-1H-吡唑与四氟硼酸的用量摩尔比为 1：(1-50)；优选地，所述步骤二中所述反应温度为 20°C 至 130°C ，步骤二中所述反应时间为 0.5 小时至 48 小时。

7、一种如权利要求 1-2 其中一者所述的化合物，或一种如权利要求 3-4 其中一者所述的化合物为前体物质制备的化合物，或一种如权利要求 5-6 其中一者所述的制备方法所制备的化合物，其在炸药领域的应用；

优选地，所述炸药为起爆药；优选地，所述炸药为绿色环保型起爆药；优选地，所述炸药为无金属起爆药。

8、一种炸药，包括如权利要求 1-2 其中一者所述的化合物，或包括一种如权利要求 3-4 其中一者所述的化合物为前体物质制备的化合物，或包括一种如权利要求 5-6 其中一者所述的制备方法所制备的化合物；

优选地，所述炸药为起爆药；优选地，所述炸药为绿色环保型起爆药；优选地，所述炸药为无金属起爆药。

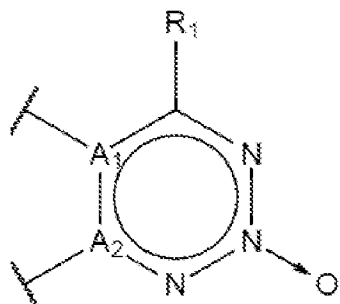


图1

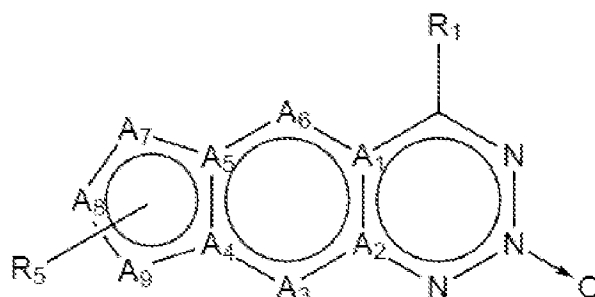


图5



图2

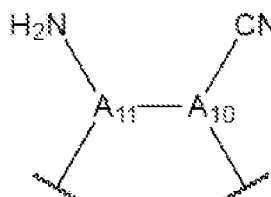


图6

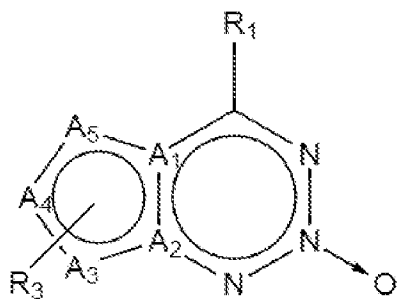


图3

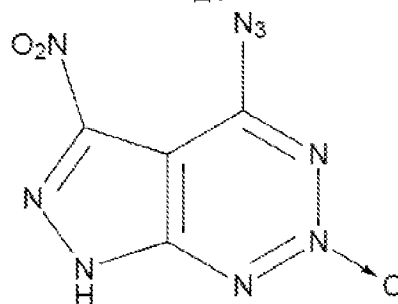


图7

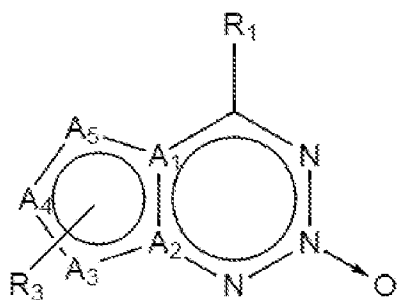


图4

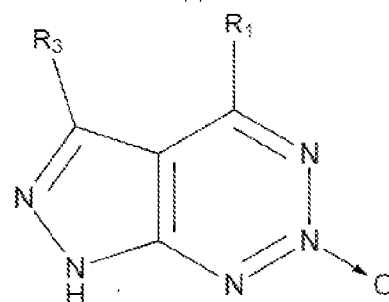
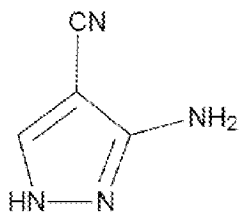
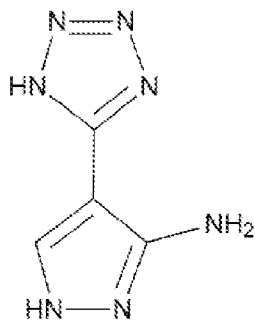
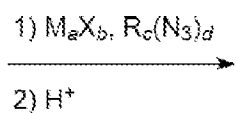


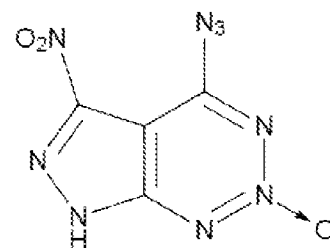
图8



I



II



III

图9

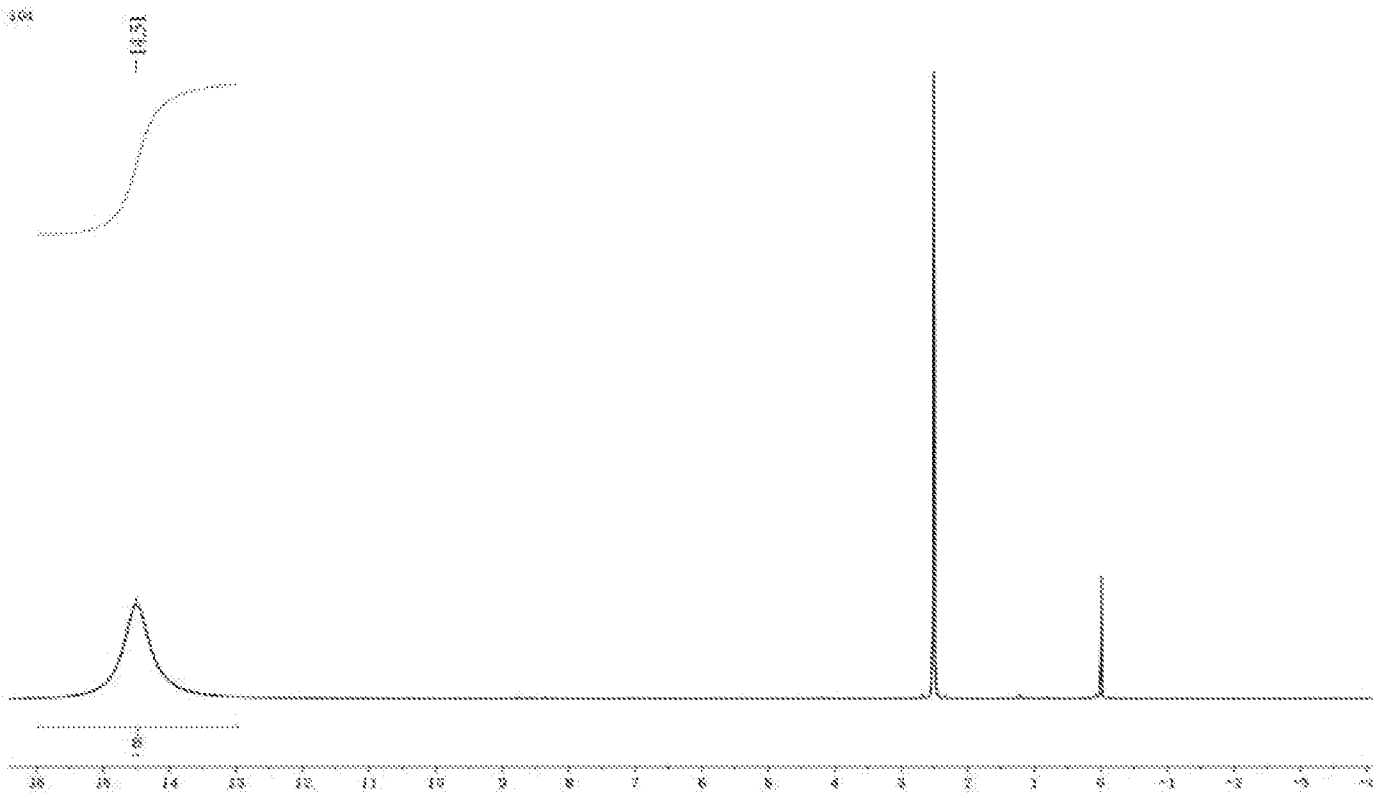


图10

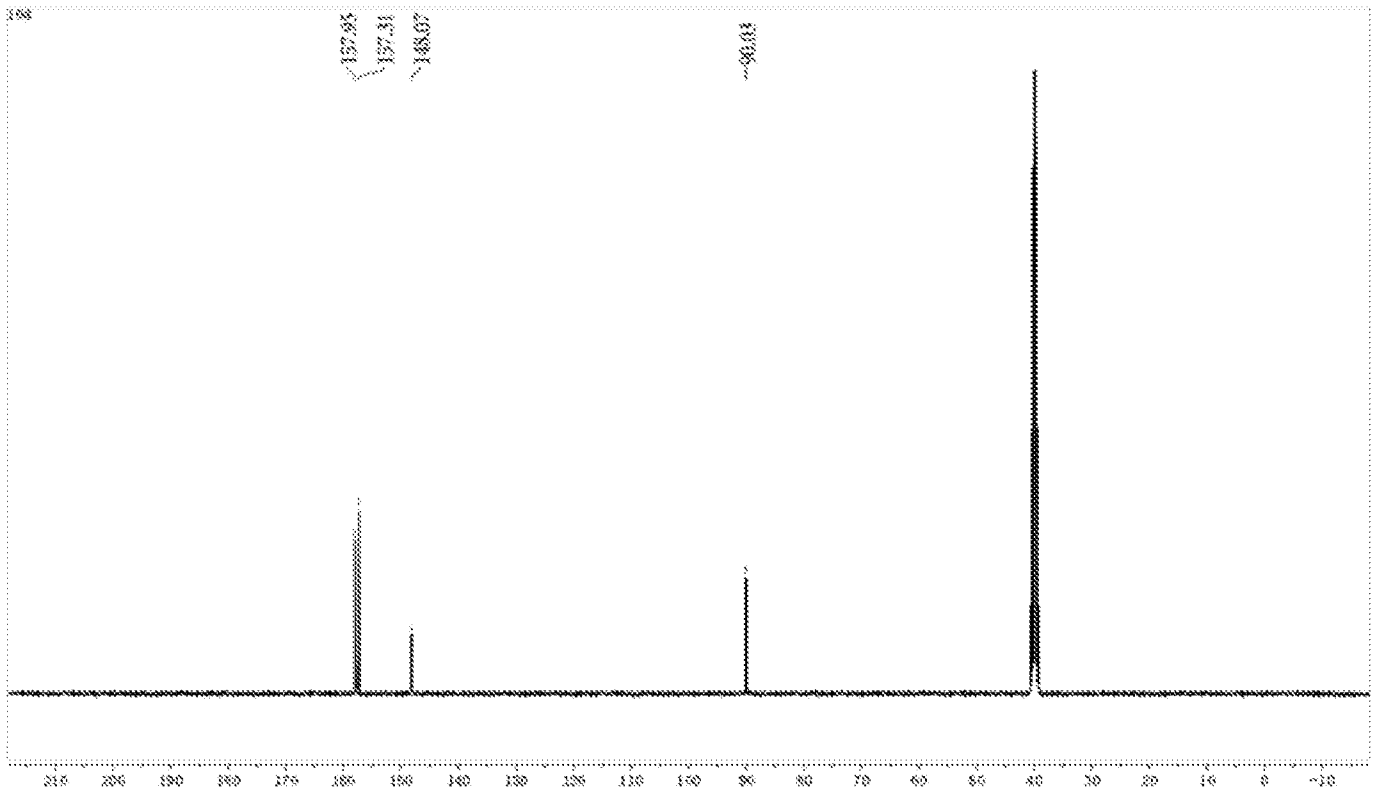


图11

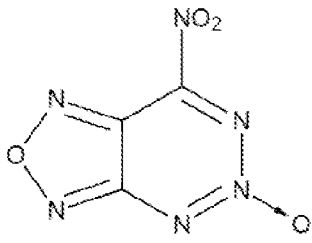


图12

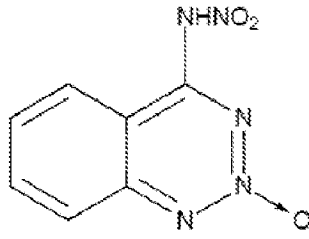


图18

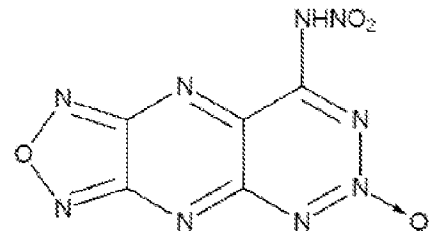


图24

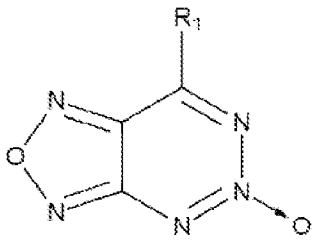


图13

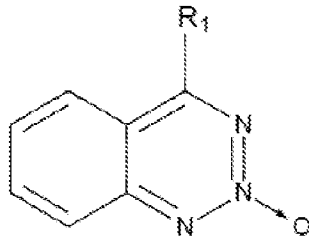


图19

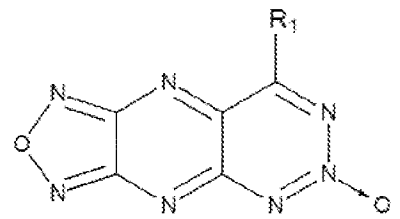


图25

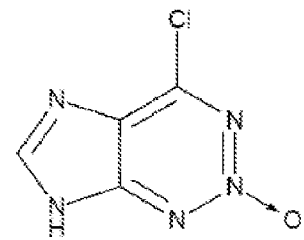


图14

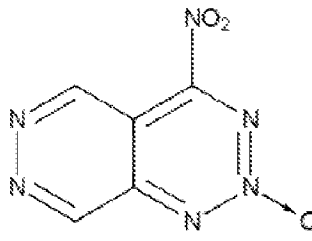


图20

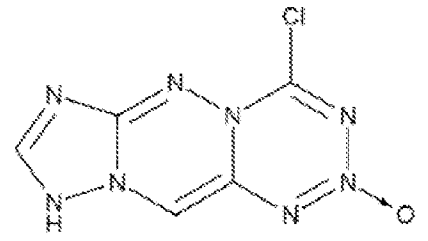


图26

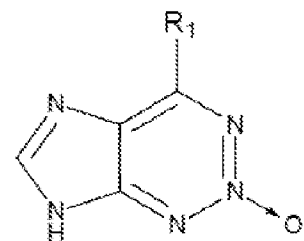


图15

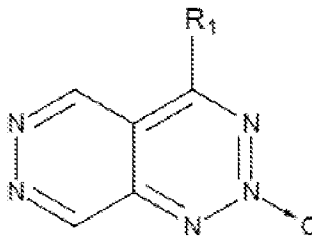


图21

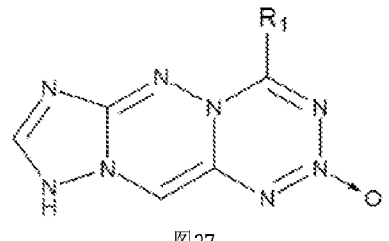


图27

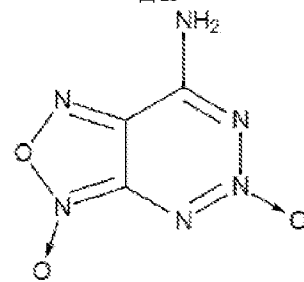


图16

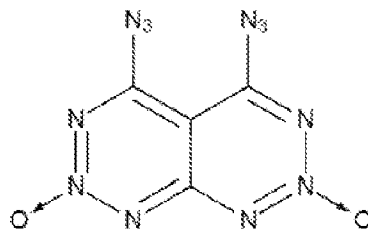


图22

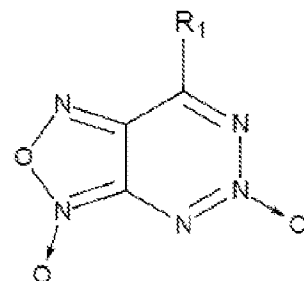


图17

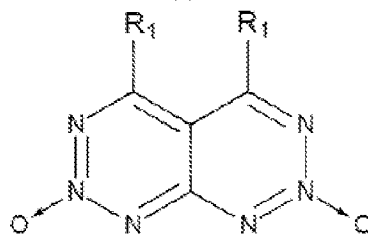


图23

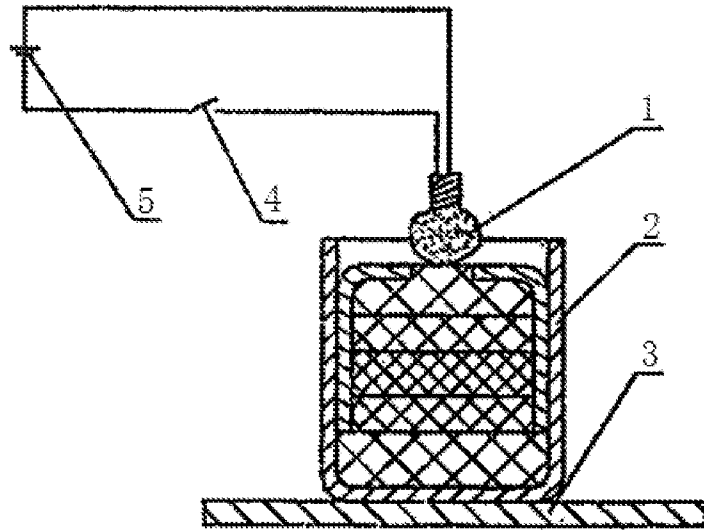


图28

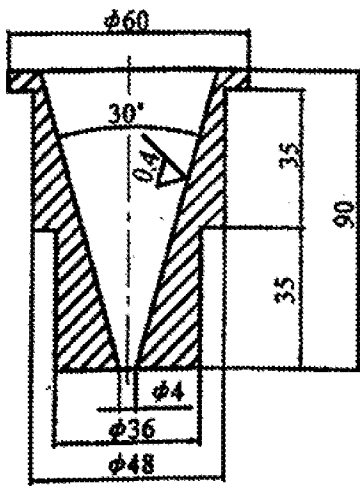


图29

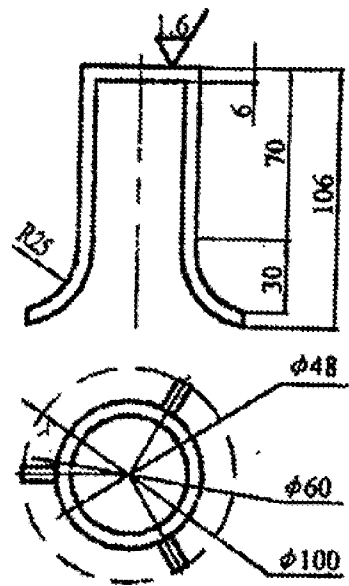


图30

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2019/073473

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07D 487/04(2006.01)i; C06B 25/34(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07D, C06B

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

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

CNABS, CNTXT, VEN, USTXT, EPTXT, WOTXT, CNKI, 万方, WANFANG, Web of Science, 百度学术, BAIDU XUESHU, Registry, Caplus, 中国工程物理研究院化工材料研究所, 邓沐聪, 冯永安, 张庆华, 起爆, 炸药, 三嗪, 爆炸, 含能材料, 氧化物, explosive, primary, primer, triazine, oxide, energetic material

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
PX	CN 108752349 A (INSTITUTE OF CHEMICAL MATERIALS, CHINA ACADEMY OF ENGINEERING PHYSICS) 06 November 2018 (2018-11-06) claims 1-10	2, 4-8
X	Lech Stefaniak. "Nitrogen-14 Nuclear Magnetic Resonance of Azine-N-oxides" <i>Spectrochimica Acta, Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy</i> , Vol. 32A, No. 2, 31 December 1976 (1976-12-31), pp. 345-349	2
X	Boulton, A.J. et al. "1, 2, 3-Benzotriazine 2-oxides" <i>J. CHEM. SOC. PERKIN TRANS.</i> , Vol. 6, No. 6, 31 December 1988 (1988-12-31), pp. 1509-1512	2
X	CN 105622615 A (SHANGHAI TIANCI INTERNATIONAL PHARMACEUTICAL CO., LTD.) 01 June 2016 (2016-06-01) claim 1	4
X	CN 101591356 A (HEFEI UNIVERSITY OF TECHNOLOGY) 02 December 2009 (2009-12-02) description, page 2, paragraphs 1 and 2	4

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

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

04 April 2019

Date of mailing of the international search report

07 May 2019

Name and mailing address of the ISA/CN

**China National Intellectual Property Administration (ISA/
CN)**
No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao, Haidian District, Beijing
100088
China

Authorized officer

Facsimile No. (86-10)62019451

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2019/073473

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CN 101492424 A (BEIJING UNIVERSITY OF TECHNOLOGY) 29 July 2009 (2009-07-29) description, page 2, paragraphs 1 and 2	4
X	"1784648-12-9" <i>Registry</i> , 19 June 2015 (2015-06-19),	4
A	CN 105949219 A (XI'AN MODERN CHEMISTRY RESEARCH INSTITUTE) 21 September 2016 (2016-09-21) description, paragraphs [0019]-[0045]	2, 4-8

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: 权利要求1,3,4-8(部分)
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
 - [1] Claim 1 relates to the structure of the formula (A), however, claim 1 does not specify the selection of A1, A2 and R1, so that the scope of protection of claim 1 is unclear. Claim 3 sets forth a compound, which does not define A 10 and A 11, with the result that the scope of protection of claim 3 is unclear. Therefore, claims 1 and 3 do not meet the requirements of PCT Article 6.
 - [2] Claim 4 citing claim 3 further defines the compound, and the compound is used to prepare a primary explosive. Claim 4 has "preferred", which leads to the unclear scope of protection of claim 4, even if it is understood on the basis of the maximum protection scope, that is, regardless of the preferred content, the following problems exist: A10, A11 and substituents in claim 4 comprise a plurality of structures such that the claim comprises a large number of different types of compounds, but the description records embodiments 1-9, preparation of 9 compounds, characterization and application test. The precursor compounds involved in embodiments 1-9 are limited, and in the case that the structures of the precursor compounds are different, it can not be foreseen by a person skilled in the art that whether or not the reaction in the embodiments can occur to obtain the corresponding products acting as a primary explosive. Therefore, claim 4 does not meet the requirements of PCT Article 6.
 - [3] Claim 5 sets forth a preparation method of a compound in which the structure of formula (Q) is not recited; therefore claim 5 does not meet the requirements of PCT Article 6.
 - [4] Claim 6 sets forth a preparation method of a compound which cites the compound of the formula (Q) of claim 3, and since claim 3 is unclear, the scope of protection of claim 6 is unclear, and the presence of "preferred" therein also results in the unclear scope of protection of claim 6; therefore, claim 6 does not meet the requirements of PCT Article 6.
 - [5] Claim 7 relates to the use of a compound in an explosive. In the case that claim 7 cites claim 1, 3 or 5, since claim 1, 3 or 5 is unclear, the scope of protection of claim 7 is unclear; in the case that claim 7 cites claim 4, which only defines the precursor material and does not define the method, the structures of the product prepared from the compound of claim 4 as a precursor compound is very many, and whether the product can be used in an explosive is also unpredictable; and in the case that claim 7 cites claim 6, based on the same reason as claim 6, claim 7 does not meet the requirements of PCT Article 6. Accordingly, in the case that claim 7 cites a compound of claim 1, a compound prepared from the precursor compound of claims 3 and 4, and a product prepared by the method of claims 5 and 6, claim 7 does not meet the requirements of PCT Article 6.
 - [6] For the same reason as claim 7, claim 8 does not meet the requirements of PCT Article 6.
 - [7] The present international search report is made on the basis of the subject matter that is reasonably expected, as follows:
 - [8] Claim 4 sets forth a compound which is 3-Aminopyrazole-4-carbonitrile, 4-amino-5-cyanoimidazole, 1-amino-2-cyanobenzene, 4-amino-5-cyanopyridazine, 3,3-diamino-2-(1H-tetrazol-5-yl) propanenitrile.
 - [9] Claim 5 sets forth a preparation method of a compound, characterized in comprising: dispersing a compound of the formula (Q) in a solvent;
 - [10] adding a salt and an azide, reacting for a first reaction time at a first reaction temperature;
 - [11] adding acid;
 - [12] purifying and obtaining an intermediate product;

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

- [13] adding the intermediate product to the nitrification system, and nitrating for a second reaction time at a second temperature;
- [14] terminating the nitrification reaction; and
- [15] purifying, wherein the compound of the formula (Q) is 3-Aminopyrazole-4-carbonitrile, 4-amino-5-cyanoimidazole, 1-amino-2-cyanobenzene, 4-amino-5-cyanopyridazine, 3,3-diamino-2-(1H-tetrazol-5-yl) propanenitrile.
- [16] Claim 6 sets forth a solution: considering the compound of the structure of the formula (Q) being 3-Aminopyrazole-4-carbonitrile, 4-amino-5-cyanoimidazole, 1-amino-2-cyanobenzene, 4-amino-5-cyanopyridazine, 3,3-diamino-2-(1H-tetrazol-5-yl) propanenitrile, the intermediate obtained after reacting with a salt and an azide, all the reaction conditions of the intermediate nitration, optionally making subsequent substitution reaction, and taking 3-Aminopyrazole-4-carbonitrile as the raw material, through the specific steps 1 and 2.
- [17] Claim 7 sets forth a compound according to claim 2, or the use of a compound prepared by the preparation method according to any one of claims 5 and 6 in the field of explosives, characterized in that the explosive is a primary explosive.
- [18] Claim 8 sets forth a primary explosive, characterized in comprising a compound according to claim 2 or a compound prepared by the preparation method according to any one of claims 5 and 6.

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

- [1] This international application contains four technical solutions.
- [2] The first group is claims 2 (in part) and 5-8 (in part), relating to formula (A) in part, formula (C), formula (F'), formula (F), formula (G'), formula (G), formula (H'), formula (H), formula (J'), formula (J) compounds, preparation methods, use, and explosives containing the compounds.
- [3] The second group is claims 2 (in part) and 5-8 (in part), relating to formula (A) in part, formula (D), formula (K'), formula (K), formula (L'), formula (L), formula (M'), formula (M) compounds, preparation methods, use, and explosives containing the compounds.
- [4] The third group is claims 2 (in part) and 5-8 (in part), relating to formula (A) in part, formula (E), formula (N'), formula (N), formula (P'), formula (P) compounds, preparation methods, use, and explosives containing the compounds.
- [5] The fourth group is claim 4, relating to the precursor compound represented by formula (Q).
- [6] The fourth group is a precursor compound, which is not a precursor compound directly obtained by one step, the fourth group and the first group to the third group do not form a single general inventive concept, and the solutions of the first group to the third group do not share a same or corresponding technical feature, and do not form a single general inventive concept; therefore the international application do not meet the requirements of PCT Rule 13.1.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2019/073473

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/CN2019/073473

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
CN	108752349	A	06 November 2018	None		
CN	105622615	A	01 June 2016	None		
CN	101591356	A	02 December 2009	None		
CN	101492424	A	29 July 2009	None		
CN	105949219	A	21 September 2016	CN	105949219 B	03 November 2017

国际检索报告

国际申请号

PCT/CN2019/073473

<p>A. 主题的分类</p> <p>C07D 487/04(2006.01)i; C06B 25/34(2006.01)i</p> <p>按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和IPC两种分类</p>																							
<p>B. 检索领域</p> <p>检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号)</p> <p>C07D, C06B</p> <p>包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献</p> <p>在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称, 和使用的检索词(如使用))</p> <p>CNABS, CNTXT, VEN, USTXT, EPTXT, WOTXT, CNKI, 万方, Web of Science, 百度学术, Registry, Caplus, 中国工程物理研究院化工材料研究所, 邓沐聪, 冯永安, 张庆华, 起爆, 炸药, 三嗪, 爆炸, 含能材料, 氧化物, explosive, primary, primer, triazine, oxide, energetic material.</p>																							
<p>C. 相关文件</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>类型*</th> <th>引用文件, 必要时, 指明相关段落</th> <th>相关的权利要求</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>PX</td> <td>CN 108752349 A (中国工程物理研究院化工材料研究所) 2018年 11月 6日 (2018 - 11 - 06) 权利要求1-10</td> <td>2, 4-8</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>Lech Stefaniak. "Nitrogen-14 nuclear magnetic resonance of azine-N-oxides" Spectrochimica Acta, Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 第32A卷, 第2期, 1976年 12月 31日 (1976 - 12 - 31), 第345-349页</td> <td>2</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>Boulton, A. J. 等. "1, 2, 3-Benzotriazine 2-oxides" J. CHEM. SOC. PERKIN TRANS., 第6卷, 第6期, 1988年 12月 31日 (1988 - 12 - 31), 第1509-1512页</td> <td>2</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>CN 105622615 A (上海天慈国际药业有限公司) 2016年 6月 1日 (2016 - 06 - 01) 权利要求1</td> <td>4</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>CN 101591356 A (合肥工业大学) 2009年 12月 2日 (2009 - 12 - 02) 说明书第2页第1-2段</td> <td>4</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>CN 101492424 A (北京工业大学) 2009年 7月 29日 (2009 - 07 - 29) 说明书第2页第1-2段</td> <td>4</td> </tr> </tbody> </table>			类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求	PX	CN 108752349 A (中国工程物理研究院化工材料研究所) 2018年 11月 6日 (2018 - 11 - 06) 权利要求1-10	2, 4-8	X	Lech Stefaniak. "Nitrogen-14 nuclear magnetic resonance of azine-N-oxides" Spectrochimica Acta, Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 第32A卷, 第2期, 1976年 12月 31日 (1976 - 12 - 31), 第345-349页	2	X	Boulton, A. J. 等. "1, 2, 3-Benzotriazine 2-oxides" J. CHEM. SOC. PERKIN TRANS., 第6卷, 第6期, 1988年 12月 31日 (1988 - 12 - 31), 第1509-1512页	2	X	CN 105622615 A (上海天慈国际药业有限公司) 2016年 6月 1日 (2016 - 06 - 01) 权利要求1	4	X	CN 101591356 A (合肥工业大学) 2009年 12月 2日 (2009 - 12 - 02) 说明书第2页第1-2段	4	X	CN 101492424 A (北京工业大学) 2009年 7月 29日 (2009 - 07 - 29) 说明书第2页第1-2段	4
类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求																					
PX	CN 108752349 A (中国工程物理研究院化工材料研究所) 2018年 11月 6日 (2018 - 11 - 06) 权利要求1-10	2, 4-8																					
X	Lech Stefaniak. "Nitrogen-14 nuclear magnetic resonance of azine-N-oxides" Spectrochimica Acta, Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 第32A卷, 第2期, 1976年 12月 31日 (1976 - 12 - 31), 第345-349页	2																					
X	Boulton, A. J. 等. "1, 2, 3-Benzotriazine 2-oxides" J. CHEM. SOC. PERKIN TRANS., 第6卷, 第6期, 1988年 12月 31日 (1988 - 12 - 31), 第1509-1512页	2																					
X	CN 105622615 A (上海天慈国际药业有限公司) 2016年 6月 1日 (2016 - 06 - 01) 权利要求1	4																					
X	CN 101591356 A (合肥工业大学) 2009年 12月 2日 (2009 - 12 - 02) 说明书第2页第1-2段	4																					
X	CN 101492424 A (北京工业大学) 2009年 7月 29日 (2009 - 07 - 29) 说明书第2页第1-2段	4																					
<p><input checked="" type="checkbox"/> 其余文件在C栏的续页中列出。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 见同族专利附件。</p>																							
<p>* 引用文件的具体类型:</p> <p>"A" 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件</p> <p>"E" 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利</p> <p>"L" 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件 (如具体说明的)</p> <p>"O" 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件</p> <p>"P" 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件</p> <p>"T" 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件</p> <p>"X" 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性</p> <p>"Y" 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性</p> <p>"&" 同族专利的文件</p>																							
<p>国际检索实际完成的日期</p> <p>2019年 4月 4日</p>	<p>国际检索报告邮寄日期</p> <p>2019年 5月 7日</p>																						
<p>ISA/CN的名称和邮寄地址</p> <p>中国国家知识产权局 (ISA/CN) 中国北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 100088</p> <p>传真号 (86-10)62019451</p>	<p>受权官员</p> <p>吴昊</p> <p>电话号码 86-(20)-28950523</p>																						

C. 相关文件		
类型*	引用文件，必要时，指明相关段落	相关的权利要求
X	"1784648-12-9" Registry, 2015年 6月 19日 (2015 - 06 - 19),	4
A	CN 105949219 A (西安近代化学研究所) 2016年 9月 21日 (2016 - 09 - 21) 说明书第19-45段	2, 4-8

第II栏 某些权利要求被认为是不能检索的意见(续第1页第2项)

根据条约第17条(2)(a), 对某些权利要求未做国际检索报告的理由如下:

1. 权利要求:
因为它们涉及不要求本单位进行检索的主题, 即:

2. 权利要求: 权利要求1, 3, 4-8(部分)
因为它们涉及国际申请中不符合规定的要求的部分, 以致不能进行任何有意义的国际检索, 具体地说:
 - [1] 权利要求1涉及式(A)结构, 然而其并没有指明A1, A2和R1的选择, 导致权利要求1的保护范围不清楚。权利要求3保护一种化合物, 其并没有限定A₁₀和A₁₁, 导致权利要求3的保护范围不清楚。因此, 权利要求1, 3不符合PCT条约第6条的规定。
 - [2] 权利要求4引用权利要求3, 进一步限定了该化合物, 所述化合物用于制备起爆药。权利要求4存在“优选”, 其导致权利要求4的保护范围不清楚, 即使基于最大保护范围来理解, 即不考虑优选的内容, 还存在以下问题, 权利要求4涉及的A10和A11以及取代基包括了多种结构, 使得该权利要求涵盖了大量的不同类型的化合物, 而说明书中记载了实施例1-9, 对9种化合物进行了制备, 表征和应用试验。实施例1-9涉及的前体化合物有限, 而前体化合物的结构不同时, 是否能够发生实施例的反应并且得到相应的产物, 作为起爆药是本领域技术人员无法预见的。因此, 权利要求4不符合PCT条约第6条的规定。
 - [3] 权利要求5保护一种化合物的制备方法, 其中并没有记载式(Q)的结构, 权利要求5不符合PCT条约第6条的规定。
 - [4] 权利要求6保护一种化合物的制备方法, 其引用权利要求3的式(Q)化合物, 由于权利要求3不清楚, 导致权利要求6的保护范围不清楚, 而且其中存在“优选”, 也导致权利要求6的保护范围不清楚, 权利要求6不符合PCT条约第6条的规定。
 - [5] 权利要求7涉及化合物在炸药中的应用。其引用权利要求1, 3或5时, 由于权利要求1, 3或5不清楚, 权利要求7的保护范围不清楚; 权利要求7引用权利要求4时, 其仅仅限定了前体物质, 并没有限定方法, 权利要求4的化合物作为前体化合物制备得到的产物的结构是非常多的, 产物是否能够在炸药中有用途也是无法预期的; 权利要求7引用权利要求6时, 基于与权利要求6相同的理由, 权利要求7不符合PCT条约第6条的规定。因此, 权利要求7引用权利要求1的化合物, 权利要求3-4的前体化合物制备的化合物, 权利要求5-6的方法制备的产物时, 权利要求7不符合PCT条约第6条的规定。
 - [6] 基于与权利要求7相同的理由, 权利要求8不符合PCT条约第6条的规定。
 - [7] 本国际检索报告是基于合理预期的技术主题做出的, 即:
 - [8] 权利要求4为: 一种化合物, 其为3-氨基-4-氰基吡唑, 4-氨基-5-氰基咪唑, 1-氨基-2-氰基苯, 4-氨基-5-氰基吡嗪, 3,3-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈。
 - [9] 权利要求5为: 一种化合物的制备方法, 其特征在于, 包括: 将式(Q)结构的化合物分散于溶剂中;
 - [10] 加入盐类及叠氮化物, 在第一反应温度下反应第一反应时间;
 - [11] 加入酸;
 - [12] 进行纯化, 得到中间产物;
 - [13] 将所述中间产物加入硝化体系当中, 在第二温度下硝化反应第二反应时间;
 - [14] 终止所述硝化反应; 以及
 - [15] 进行纯化, 其中, 式(Q)结构的化合物为3-氨基-4-氰基吡唑, 4-氨基-5-氰基咪唑, 1-氨基-2-氰基苯, 4-氨基-5-氰基吡嗪, 3,3-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈。
 - [16] 权利要求6为: 考虑式(Q)结构的化合物为3-氨基-4-氰基吡唑, 4-氨基-5-氰基咪唑, 1-氨基-2-氰基苯, 4-氨基-5-氰基吡嗪, 3,3-二氨基-2-(1H-四唑-5-基)丙腈, 经过与盐类以及叠氮化合物反应后得到中间体, 中间体硝化的所有的反应条件, 任选发生后续取代反应, 以及以3-氨基-4-氰基吡唑为原料经过具体步骤一、步骤二的方案。

第II栏 某些权利要求被认为是不能检索的意见(续第1页第2项)

[17] 权利要求7为：一种如权利要求2中的化合物，或一种如权利要求5-6其中一种的制备方法所制备的化合物在炸药领域的应用，其特征在于：所述炸药为起爆药。

[18] 权利要求8为：一种起爆药，其特征在于：包括如权利要求2中的化合物或一种如权利要求5-6其中一种的制备方法所制备的化合物。

3. 权利要求：
因为它们是从属权利要求，并且没有按照细则6.4(a)第2句和第3句的要求撰写。

第III栏 缺乏发明单一性的意见(续第1页第3项)

本国际检索单位在该国际申请中发现多项发明，即：

[1] 本国际申请包含四组技术方案，

[2] 第一组为权利要求2(部分), 5-8(部分)，关于式(A)部分, 式(C), 式(F'), 式(F), 式(G'), 式(G), 式(H'), 式(H), 式(J'), 式(J)化合物，制备方法，用途和包含化合物的炸药。

[3] 第二组为权利要求2(部分), 5-8(部分)，涉及式(A)部分, 式(D), 式(K'), 式(K), 式(L'), 式(L), 式(M'), 式(M) 化合物，制备方法，用途和包含化合物的炸药。

[4] 第三组为权利要求2(部分), 5-8(部分)，关于式(A)部分, 式(E), 式(N'), 式(N), 式(P'), 式(P)化合物，制备方法，用途和包含化合物的炸药。

[5] 第四组为权利要求4，涉及前体化合物式(Q)。

[6] 第四组为前体化合物，而其并非通过一步直接得到产物的前体化合物，其与涉及产物的第一组至第三组不属于一个总的发明构思，而且第一组至第三组的技术方案之间没有相同或者相应的技术特征，不属于一个总的发明构思，从而使得本国际申请不符合PCT实施细则13.1的规定。

1. 由于申请人按时缴纳了被要求缴纳的全部附加检索费，本国际检索报告涉及全部可作检索的权利要求。
2. 由于无需付出有理由要求附加费的劳动即能对全部可检索的权利要求进行检索，本单位未通知缴纳任何加费。
3. 由于申请人仅按时缴纳了部分被要求缴纳的附加检索费，本国际检索报告仅涉及已缴费的那些权利要求，具体地说，是权利要求：
4. 申请人未按时缴纳被要求缴纳的附加检索费。因此，本国际检索报告仅涉及权利要求书中首先提及的发明；包含该发明的权利要求是：

对异议的意见

- 申请人缴纳了附加检索费，同时提交了异议书，适用时，缴纳了异议费。
- 申请人缴纳了附加检索费，同时提交了异议书，但未在通知书规定的时间期限内缴纳异议费。
- 缴纳附加检索费时未提交异议书。

国际检索报告
关于同族专利的信息

国际申请号

PCT/CN2019/073473

检索报告引用的专利文件			公布日 (年/月/日)	同族专利			公布日 (年/月/日)
CN	108752349	A	2018年 11月 6日	无			
CN	105622615	A	2016年 6月 1日	无			
CN	101591356	A	2009年 12月 2日	无			
CN	101492424	A	2009年 7月 29日	无			
CN	105949219	A	2016年 9月 21日	CN	105949219	B	2017年 11月 3日

表 PCT/ISA/210 (同族专利附件) (2015年1月)