[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl[7]
C07D239/54
C07D409/12 A01N 43/54

[12] 发明专利说明书

[21] ZL 专利号 96195071.4

[43] 授权公告日 2003 年 5 月 28 日

[11] 授权公告号 CN 1109676C

[22] 申请日 1996.4.25 [21] 申请号 96195071.4

[30] 优先权

[32] 1995. 5. 8 [33] DE [31] 19516785.6

[86] 国际申请 PCT/EP96/01722 1996.4.25

[87] 国际公布 WO96/35679 德 1996.11.14

[85] 进入国家阶段日期 1997.12.26

[71] 专利权人 拜尔公司

地址 联邦德国莱沃库森

[72] 发明人 R·安德烈 M·W·德鲁斯
M·多林格 H·J·桑特尔
C·厄尔德列恩

[56] 参考文献

EP-A1-0438209 1991.07.24 C07D239/54

EP-A1-0563384 1993.10.06 C07D239/54

审查员 姚 云

[74] 专利代理机构 中国专利代理(香港)有限公司

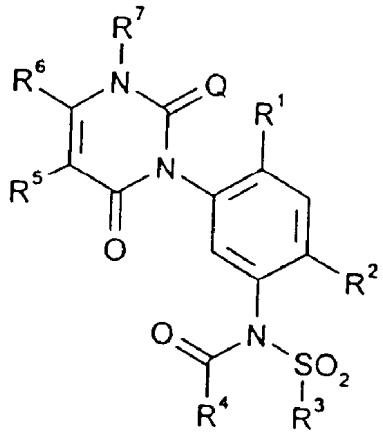
代理人 钟守期 王景朝

权利要求书 3 页 说明书 29 页

[54] 发明名称 作为除草剂和杀虫剂的取代的氨基苯基尿嘧啶

[57] 摘要

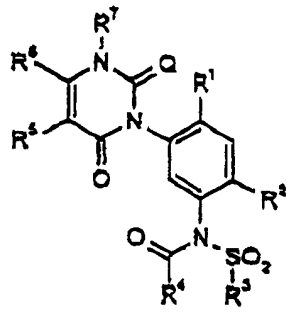
本发明涉及新的通式(I)的取代的氨基苯基尿嘧啶，其制法及其作为除草剂和杀虫剂的应用。



(I)

ISSN1008-4274

1. 通式(I)的取代的氨基苯基尿嘧啶



(I),

其特征在于

其中

Q 代表氧,

R^1 代表氟,

R^2 代表氰基,

R^3 代表甲基或乙基,

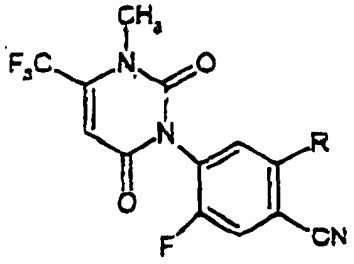
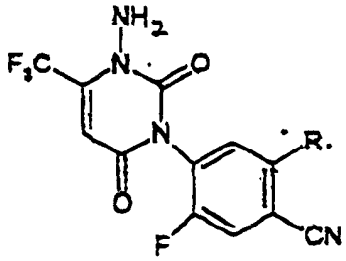
R^4 代表环丙基、环丁基、环戊基、环己基、苯基、4－甲氧基苯基、4－正丙氧基苯基、4－异丙氧基苯基、2，4－二氯苯基、3，4－二氯苯基、2，4－二氟苯基、2－氯苯基、3－氯苯基、4－氯苯基、2－氟苯基、3－氟苯基、4－氟苯基、2－溴苯基、4－甲基苯基、4－N，N－二甲基氨基苯基、4－甲氧羰基苯基、萘基、噻吩－2－基、3－甲基－噻吩－2－基、2，4－二甲基噁唑－3－基,

R^5 代表氢,

R^6 代表三氟甲基，且

R^7 代表氢、氨基或甲基;

但排除以下通式的化合物

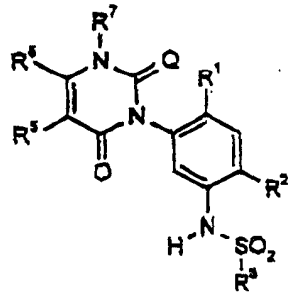
其中 R 表示 $N(SO_2Me)CO$(环丙基)，

$N(SO_2Me)COPh$，

$N(SO_2Et)CO$(环丙基)，

$N(SO_2Et)COPh$。

2. 一种制备权利要求 1 的取代的氨基苯基尿嘧啶的方法，其特征在于，任选在反应助剂存在下以及任选在稀释剂存在下，使通式(II)磺酰氨基苯基尿嘧啶与通式(III)的酸衍生物反应，



(II)

其中

Q、R^1、R^2、R^3、R^4、R^5、R^6 和 R^7 分别如权利要求 1 中所定义，

$$R^4\text{-}CO\text{-}X \qquad (III)$$

其中

R^4 如权利要求 1 中所定义，且

X 代表卤素或基团 $-O-CO-R^4$。

3. 防治不希望有的植物的方法，其特征在于，使权利要求 1 的取代氨基苯基尿嘧啶作用于不希望有的植物和/或其栖生地。

4. 权利要求 1 的取代氨基苯基尿嘧啶在防治不希望有的植物和有害昆虫

中的应用。

5.制备除草剂和杀虫剂的方法，其特征在于，将权利要求 1 的取代氨基苯基尿嘧啶与填充剂和/或表面活性剂混合。

6. 除草剂和杀虫剂，其特征在于，它们包含至少一种权利要求 1 的取代氨基苯基尿嘧啶。

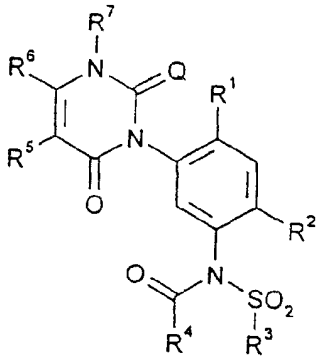
7.防治不希望有的昆虫的方法，其特征在于，使权利要求 1 的取代氨基苯基尿嘧啶作用于昆虫和/或其栖生地。

作为除草剂和杀虫剂的取代的氨基苯基尿嘧啶

本发明涉及新颖的取代氨基苯基尿嘧啶，其制备方法及其作为除草剂和杀虫剂的应用。

已知某些取代的氨基苯基尿嘧啶具有除草性能(参见 EP408 382/US 5 084 084/US 5 127 935/US 5 154 755、EP 563 384、DE 4 412 079)，但它们作为除草剂或作为杀虫剂迄今未获得任何重要意义。

现已发现通式(I)的新颖的取代氨基苯基尿嘧啶:



(I)

其中

Q 代表氧或硫，

R^1 代表氢、氰基、卤素，

R^2 代表氰基、硫代氨基甲酰基、卤素或代表任选取代的烷基，

R^3 代表各任选取代的烷基、环烷基、芳基、芳烷基或杂芳基，

R^4 代表各任选取代的环烷基、芳基或杂芳基，

R^5 代表氢、卤素或代表各任选取代的烷基或烷氧基，

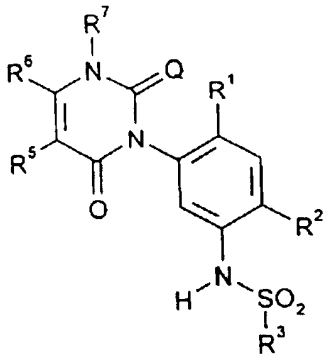
R^6 代表任选取代的烷基，且

R^7 代表氢、羟基、氨基或代表各任选取代的烷基、烷氧基、链烯基或炔基。

新颖的通式(I)的取代氨基苯基尿嘧啶是如下获得的:

任选在反应助剂存在下，且任选在稀释剂存在下，

使适宜的通式(II)磺酰氨基苯基尿嘧啶与通式(III)的酸衍生物反应，



(II)

其中

Q、 R^1、R^2、R^3、R^5、R^6和R^7各如上所定义，

R^4-CO-X (III)

其中

R^4如上所定义，且

X代表卤素或基团-O-CO-R^4.

新颖的通式(I)的取代氨基苯基尿嘧啶具有强的除草和杀虫活性。

在定义中，饱和或不饱和的烃链如烷基、链烯基或炔基各是直链或支链.

卤素通常代表氟、氯、溴或碘，优选氟、氯或溴，特别是氟或氯.

本发明优选提供这样的式(I)的化合物，其中

Q 代表氧或硫，

R^1 代表氢、氰基、氟或氯，

R^2 代表氰基、硫代氨基甲酰基、氟、氯、溴，或代表任选被氟/和或氯取代的具有1至4个碳原子的烷基，

R^3 代表任选被氰基、氟、氯、溴或C_1-C_4-烷氧基或C_1-C_4-烷硫基取代的具有1至6个碳原子的烷基，

R^3 还代表任选被氰基、氟、氯、溴或C_1-C_4-烷基取代的具有3至8个碳原子的环烷基，

R^3 还代表苯基、萘基、苄基、苯乙基、噻吩基、吡唑基、吡啶基或喹啉基，

每一种情况下，可能的取代基是:

氟、氯、溴、氰基、硝基、羧基、氨基甲酰基、硫代氨基甲酰基、C_1-C_4-烷基、C_1-C_4-烷氧基、C_1-C_4-烷硫基、二甲基氨基

磺酰基、二乙基氨基磺酰基，各任选被氟和/或氯取代的 C_1 - C_4 -烷基亚磺酰基或 C_1 - C_4 -烷基磺酰基，各任选被氟、氯、溴、氰基、甲氧基或乙氧基取代的 C_1 - C_4 -烷氧羰基或各任选被氟、氯、溴、氰基、甲基、甲氧基、三氟甲基和/或三氟甲氧基取代的苯基、苯氧基或苯硫基；

R^4 代表任选被氰基、氟、氯、溴或 C_1-C_4-烷基取代的具有 3 至 8 个碳原子的环烷基，

R^4 还代表各任选取代的苯基、萘基、呋喃基、噻吩基、噁唑基、异噁唑基、吡唑基、吡啶基、嘧啶基或喹啉基，在每一种情况下，可能的取代基是：

氟、氯、溴、氰基、硝基、羧基、氨基甲酰基、硫代氨基甲酰基、二甲基氨基、二甲基氨基磺酰基、二乙基氨基磺酰基，各任选被氟和/或氯取代的 C_1-C_4-烷基、C_1-C_4-烷氧基、C_1-C_4-烷硫基、C_1-C_4-烷基亚磺酰基或 C_1-C_4-烷基磺酰基，或各任选被氟、氯、溴、氰基、甲氧基或乙氧基取代的 C_1-C_4-烷氧羰基；

R^5 代表氢、氟、氯溴或代表各任选被氟和/或氯取代的具有 1 至 4 个碳原子的烷基或烷氧基，

R^6 代表任选被氟和/或氯取代的具有 1 至 4 个碳原子的烷基，且

R^7 代表氢、羟基、氨基或代表各任选被氟、氯或 C_1-C_4-烷氧基取代的各最多达 6 个碳原子的烷基、烷氧基、链烯基或炔基。

本发明特别优选提供这样的式(I)的化合物，其中

Q 代表氧或硫，

R^1 代表氢、氰基、氟或氯，

R^2 代表氰基、硫代氨基甲酰基、氟、氯、溴、甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基或三氟甲基，

R^3 代表任选被氰基、氟、氯、甲氧基或乙氧基-取代的甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基，

R^3 还代表任选被氰基、氟、氯、溴、甲基、乙基、正或异丙基取代的环丙基、环丁基、环戊基或环己基，

R^3 还代表任选取代的苯基、萘基、苄基、苯乙基、噻吩基、吡唑基、吡啶基或喹啉基，

可能的取代基是：

氟、氯、溴、氰基、硝基、羧基、氨基甲酰基、硫代氨基甲酰基、甲基、乙基、正或异丙基、三氟甲基、甲氧基、乙氧基、正或异丙氧基、二氟甲氧基、三氟甲氧基、甲硫基、乙硫基、正或异丙硫基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正或异丙基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正或异丙基磺酰基、二甲基氨基磺酰基、二乙基氨基磺酰基、甲氧羰基、乙氧羰基、正或异丙氧羰基，

R^4 代表任选被氰基、氟、氯、溴、甲基、乙基、正或异丙基-取代的环丙基、环丁基、环戊基或环己基，

R^4 还代表各任选取代的苯基、萘基、呋喃基、噻吩基、噁唑基、异噁唑基、吡唑基、吡啶基或嘧啶基，可能的取代基是：

氟、氯、溴、氰基、硝基、羧基、氨基甲酰基、硫代氨基甲酰基、二甲基氨基、二甲基氨基磺酰基或二乙基氨基磺酰基，各任选被氟-和/或氯-取代的甲基、乙基、正或异丙基、甲氧基、乙氧基、正或异丙氧基、甲硫基、乙硫基、正或异丙硫基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正或异丙基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正或异丙基磺酰基，各任选被氟、氯、溴、氰基、甲氧基或乙氧基取代的甲氧羰基、乙氧羰基、正或异丙氧羰基，各任选被氟、氯、溴、氰基、甲基、甲氧基、三氟甲基和/或三氟甲氧基-取代的苯基、苯氧基或苯硫基，

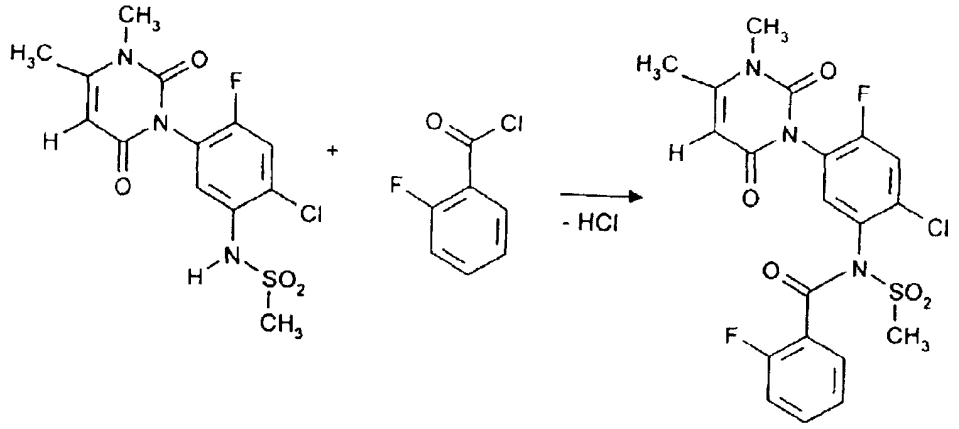
R^5 代表氢、氟、氯、溴或代表各任选被氟和/或氯取代的甲基、乙基、正或异丙基，

R^6 代表任选被氟和/或氯取代的甲基、乙基、正或异丙基，且

R^7 代表氢、氨基或代表各任选被氟和/或氯取代的甲基、乙基、正或异丙基、正、异、或仲丁基、甲氧基、乙氧基、正或异丙氧基、正、异或仲丁氧基、丙烯基、丁烯基、丙炔基或丁炔基。

上面所列的一般或优选的基团定义适合于式(I)终产物，且以同样的方式适合于每种制备中所需的起始原料或中间体。这些基团的定义可以按需要相互组合，即在给出的优选范围也可以组合。

如使用例如 1-(4-氯-2-氟-5-甲基磺酰氨基苯基)-3,6-二氢-2,6-二氧代-3,4-二甲基-1(2H)-嘧啶和 2-氟-苯甲酰基氯为起始原料，则本发明方法中的反应途径可以用下列反应式来说明：



式(II)提供在本发明制备式(I)化合物的方法中用作起始原料的磺酰氨基苯基尿嘧啶的一般定义.在式(II)中， Q、 R^1、 R^2、 R^3、 R^5、 R^6和R^7各优选或特别是具有这样的含意，即与本发明式(I)化合物的相关的描述中业已提到的对于Q、 R^1、 R^2、 R^3、 R^5、 R^6和R^7而言是优选或特别优选的含意.

式(II)的起始原料是已知的和/或可以通过本身已知的方法制备(参见 EP408 382/US 5 084 084/US 5 127 935/US 5 154 755、 EP 563 384、 DE 4 412 079).

式(III)提供在本发明制备式(I)化合物的方法中用作另一种起始原料的酰基氯的一般定义. 在此式(III)中， R^4优选或特别是具有这样的含意，即与本发明式(I)化合物的相关的描述中业已提到的对于R^4而言是优选或特别优选的含意； X优选代表氟、氯或溴，特别是氯.

式(III)的起始原料是对于合成而言是已知的化合物.

本发明制备式(I)化合物的方法优选在适合的反应助剂存在下进行. 适合的反应辅助剂一般是常规的无机或有机碱或酸受体. 这些反应助剂包括碱金属或碱土金属乙酸盐、氢化物、碳酸盐、碳酸氢盐、氢化物、氢氧化物和醇盐，例如乙酸钠、乙酸钾或乙酸钙、氢化锂、氢化钠、氢化钾或氢化钙、碳酸钠、碳酸钾或碳酸钙、碳酸氢钠、碳酸氢钾或碳酸氢钙、氢化锂、氢化钠、氢化钾或氢化钙、氢氧化锂、氢氧化钠、氢氧化钾或氢氧化钙、甲醇钠或甲醇钾、乙醇钠或乙醇钾、正或异丙醇钠、正或异丙醇钾、正、异、仲或叔丁醇钠、正、异、仲或叔丁醇钠钾，以及碱有机氮化合物，例如三甲胺、三乙胺、三丙胺、三丁胺、乙基二异

丙基胺、 N,N-二甲基环己基胺、二环己基胺、己基二环乙基胺、 N,N-二甲基苯胺、 N,N-二甲基苄基胺、吡啶、 2-甲基-、 3-甲基-、 4-甲基-、 2,4-二甲基-、 2,6-二甲基-、 2,6-二甲基-、 3,4-二甲基-和 3,5-二甲基-吡啶、 5-己基-2-甲基-吡啶、 4-甲基氨基-吡啶、 N-甲基哌啶、 1,4-二氮杂二环[2.2.2]辛烷(DABCO)、 1,5-二氮杂二环[4.3.0]-壬-5-烯(DBN)或 1,8-二氮杂二环[5.4.0]十一碳-7-烯(DBU).

制备式(I)化合物的本发明方法优选是在稀释剂存在下进行的。适合的稀释剂通常是常规的有机溶剂. 这些溶剂包括: 特别是脂族、脂环或芳族，任选卤代的烃类，如戊烷、己烷、庚烷、石油醚、轻石油、汽油、苯、甲苯、二甲苯，氯苯、二氯苯、环己烷、甲基环己烷、二氯甲烷、氯仿或四氯化碳; 醚类，如乙醚、二异丙醚、甲基叔丁基醚、己基叔丁基醚、甲基叔戊基醚(MTBE)、四氢呋喃(THF)、 1,4-二恶烷或乙二醇二甲基醚和二乙二醇二甲基醚、二乙二醇二甲基醚或二乙二醇二乙基醚; 二烷基酮类如丙酮、丁酮或甲基异丙酮或甲基异丁酮; 腈类如乙腈、丙腈、丁腈或苯甲腈; 酰胺类如 N,N-二甲基甲酰胺(DMF)、 N,N-二乙基甲酰胺、 N-甲基甲酰苯胺、 N-甲基吡咯烷酮或六甲基磷酰三胺或酯类如乙酸甲酯、乙酸乙酯、乙酸正或异丙基酯、乙酸正、异或叔丁基酯; 或亚砜类如二甲基亚砜; 烷醇类如甲醇、乙醇、正或异丙醇、正、异、仲或叔丁醇，乙二醇单甲基醚或乙二醇单乙基醚、二乙二醇单甲基醚或二乙二醇单乙基醚; 它们与水的混合物或单纯的水.

实施本发明方法时，反应温度可以在相当宽的范围内变化. 通常，反应是在-10 ℃至+150 ℃间，优选在 0 ℃至+100 ℃间的温度下进行的.

本发明方法通常在常压下进行. 然而，也可以在增高或降低的压力下—一般是在 0.1 巴和 10 巴间进行.

实施本发明方法时，起始原料通常以大致等摩尔量采用. 然而，也可以相对大量的过量使用其中的一种组分. 反应通常是在适合的稀释剂下在反应助剂存在下进行，且反应混合物通常在所需的温度下搅拌几小时. 后处理是用常规方法来进行的(参见制备实施例).

本发明活性化合物可以用作落叶剂、干燥剂、杀茎杆剂，且特别是作为除草剂. 对于杂草，就其最广义而言，应理解为所有生长在其所不期望处的植物. 本发明化合物是作为灭生性除草剂或选择性除草剂，基本上取决于所用的量.

发明化合物可以与下列植物相关使用:

下列属的双子叶杂草: 芥属、独行草属、猪殃殃属、繁缕属、母草属、春黄菊属、牛膝属、藜属、苘麻属、千里光属、苋属、马齿苋路、苍耳属、旋花属、甘薯属、蓼属、田菁属、豚草属、蓟属、飞廉属、苦苣菜属、茄属、焊菜属、节节草属、母草属、野芝麻属、婆婆纳属、苘麻属、刺酸模属、曼陀罗属、堇菜属、鼬瓣花属、罂粟属、矢车菊属、三叶草属、毛茛属、蒲公英属,

下列属的双子叶作物: 棉属、大豆属、甜菜属、胡萝卜属、菜豆属、豌豆属、茄属、亚麻属、甘薯属、野豌豆属、烟草属、蕃茄属、花生属、芸苔属、莴苣属、黄瓜属和南瓜属,

下列属的单子叶杂草: 稗属、狗尾草属、黍属、马唐、梯牧草属、早熟禾属、羊茅属、蟋蟀草属、臂形草属、黑麦草属、雀麦属、燕麦属、莎草属、高粱属、冰草属、狗牙根属、雨久花属、飘拂草属、慈菇属、荸荠属、 草属、雀稗属、鸭嘴草属、尖瓣花属、龙爪茅属、剪股颖属、看麦娘属和风草属,

下列属的单子叶作物: 稻属、玉米属、小麦属、大麦属、燕麦属、黑麦属、高粱属、黍属、甘蔗属、凤梨属、天门冬属和葱属.

然而,本发明化合物的应用决不限于这些属,且也可以相同的方式延伸至其它作物.

取决于其浓度,式(I)化合物灭生性防治例如工业区和铁路线,以及有或无种植树林的道路或广场. 同样,本发明化合物可以采用来防治多年生栽培物例如森林、观赏树林、果园、葡萄园、桔园、坚果园、蕉种植园、咖啡种植园、茶种植园、橡胶种植园、油棕种植园、可可种植园、浆果种植园和啤酒园、草坪、草皮和牧草中的杂草,和用来选择性地防治一年生作物的杂草.

本发明化合物(I)特别适合于以芽前或芽后的方法选择性地防治单子叶作物中的单子叶和双子叶杂草.

本发明式(I)活性化合物适合于防治动物害虫,优选防治出现在农业、森林、贮藏产品和材料保护以及卫生方面上的昆虫、蜱螨和线虫. 它们对正常的敏感和抗性种类和对所有或某些生长发育阶段有活性. 上述害虫包括:

等足纲,例如,潮虫(Oniscus asellus)、鼠妇(Armadillidium vulgare)

和斑鼠妇(Porcellio scaber).

倍足纲，例如，Blaniulus guttulatus .

唇足纲，例如，地蜈蚣(Geophilus carpophagus)和蚰蜒(Scutigera spec).

综合纲，例如，洁幺蚰(Scutigerella immaculata).

缨尾目，例如，西洋衣鱼(Lepisma saccharina).

弹尾目，例如，棘跳虫(Onychiurus armatus).

直翅目，例如，东方蜚蠊(Blatta orientalis)、美洲大蠊(Periplaneta americana)、马德拉蜚蠊(Leucophaea maderae)、德国小蠊(Blattella germanica)、家蟋蟀(Acheta domesticus)、蝼蛄属(Gryllotalpa spp.)、热带飞蝗(Locusta migratoria migratorioids)、殊种蚱蜢(Melanoplus differentialis)和沙漠蝗(Schistocerca gregaria).

革翅目，例如，欧洲球螋(Forficula auricularia).

等翅目，例如，犀白蚁属(Reticulitermes spp.).

虱目，例如，体虱(Pediculus humanus corporis)、血虱属(Haematopinus spp.)和颚虱属(Linognathus spp.).

食毛目，例如，啮毛虱属(Trichodectes spp.)和 Damalinea spp..

缨翅目，例如，温室条蓟马(Hercinothrips femoralis)和棉蓟马(Thrips tabaci).

半翅目，例如，扁盾蝽属(Eurygaster spp.)、中棉红蝽(Dysdercus intermedius)、甜菜拟网蝽(Piesma quadrata)、温带臭蝽(Cimex lectularius)、红腹猎蝽(Phodnius prolixus)和锥蝽属(Triatoma spp.).

同翅目，例如，甘蓝粉虱(Aleurodes brassicae)、甘薯粉虱(Bemisia tabaci)、温室粉虱(Trialeurodes vaporariorum)、棉蚜(Aphis gossypii)、甘蓝蚜(Brevicoryne brassicae)、茶蔗隐瘤蚜(Cryptomyzus ribis)、甜菜蚜(Aphis fabae)、苹果蚜(Aphis pomi)、苹果绵蚜(Eriosoma lanigerum)、桃大尾蚜(Hyalopterus arundinis)、麦长管蚜(Macrosiphum avenae)、瘤额蚜属(Myzus spp.)、瘿绵蚜属(Pemphigus spp.)、忽布疣蚜(Phorodon humili)、美核桃根瘤蚜(Phylloxera vastatix)、禾谷缢管蚜(Rhopalosiphum padi)、微叶蝉属(Empoasca spp.)、Euscelis bilobatus、黑尾叶蝉(Nephotettix cincticeps)、水土

坚蚧(Lecanium corni)、油橄黑盔蚧(Saissetia oleae)、灰稻虱(Laodelphax striatellus)、稻褐飞虱(Nilaparvata lugens)、红园蚧(Aonidiella aurantii)、夹竹桃园蚧(Aspidiotus hederae)、粉蚧属(Pseudococcus spp.)和木虱属(Psylla spp.).

鳞翅目，例如，棉红铃虫(Pectinophora gossypiella)、松天蛾(Bupalus piniarius)、冬尺蛾(Cheimatobia brumata)、Lithocolletis blancardella、苹果巢蛾(Hyponomeuta padella)、小菜蛾(Plutella maculipennis)、天幕毛虫(Malacosoma neustris)、黄毒蛾(Euproctis chrysorrhoea)、毒蛾属(Lymantria spp.)、棉潜蛾(Bucculatrix thurberiella)、桔潜叶蛾(Phyllocnistis citrella)、Agrotis spp.、Euxoa spp.、Feltia spp.、棉斑实蛾(Earias insulana)、棉铃虫属(Heliothis spp.)、甜菜夜蛾((Spodoptera exigua)、甘蓝夜蛾(Mamestra brassicae)、小眼夜蛾(Panolis flammea)、斜纹夜蛾(Prodenia litura)、粘虫属(Spodoptera spp.)、粉纹夜蛾(Trichoplusia ni)、苹蠹蛾(Carpocapsa pomonella)、粉蝶属(Pieris spp.)、禾草螟属(Chilo spp.)、Pyrausta nubilalis、Ephestia kuehniella、蜡螟(Galleria mellonella)、幕衣蛾(Tineola bisselliella)、袋衣蛾(Tinea pellionella)、褐织蛾(Hofmannophila pseudospretella)、Cacoecia podana、Capua reticulana、枞色卷蛾(Choristoneura fumiferana)、葡萄果蠹蛾(Clysia ambiguella)、茶长卷蛾(Homona magnanima)和栎绿卷蛾(Tortrix viridana).

鞘翅目，例如，具斑窃蠹(Anobium punctatum)、谷蠹(Rhizopertha dominica)、大豆象(Acanthoscelides obtectus)、Bruchidius obtectus、家天牛(Hylotrupes bajulus)、赤杨紫跳甲(Agelasrtica alni)、马铃薯甲虫(Leptinotarsa decemlineata)、辣根猿叶甲(Phaedon cochleariae)、条叶甲属(Diabrotica spp.)、油菜蓝跳甲(Psylliodes chrysocephala)、墨西哥豆甲(Epilachna varivestis)、隐翅甲属(Atomaria spp.)、锯谷盗(Oryzaephilus surinamensis)、花象甲属(Anthonomus spp.)、米象属(Sitophilus spp.)、葡萄黑耳喙象(Otiorrhynchus sulcatus)、香蕉根象甲(Cosmopolites sordidus)、甘蓝芙象甲(Ceuthorrhynchus assimilis)、苜蓿叶象虫(Hypera postica)、皮蠹属(Dermestes spp.)、斑皮蠹属(Trogoderma spp.)、圆

皮蠹属(Anthrenus spp.)、毛蠹属(Attagenus spp.)、粉蠹属(Lyctus spp.)、油菜花露尾甲(Meligethes aeneus)、蛛甲属(Ptinus spp.)、全黄蛛甲(Niptus hololeucus)、裸蛛甲(Gibbium psylloides)、拟谷盗属(Tribolium spp.)、黄粉虫(Tenebrio molitor)、Agriotes spp.、Conoderus spp.、鳃角金龟(Melolontha melolontha)、六月金龟(Amphimallon sostitialis)和Costelytra zealandica.

膜翅目，例如，Diprion spp.、Hoplocampa spp.、田蚁属(Lasius spp.)、小家蚁(Monomorium pharaonis)和胡蜂(Vespa spp.).

双翅目，例如，伊蚊属(Aedes spp.)、按蚊属(Anopheles spp.)、库蚊属(Culex spp.)、黄猩猩果蝇(Drosophila melanogaster)、蝇属(Musca spp.)、厕蝇属(Fannia spp.)、红头丽蝇(Callophora erythrocephala)、绿蝇属(Lucilia spp.)、金蝇属(Chrysomyia spp.)、疽蝇属(Cuterebra spp.)、胃蝇属(Gastrophilus spp.)、虱蝇属(Hyppobosca spp.)、螯蝇属(Stomoxys spp.)、狂蝇属(Oestrus spp.)、皮蝇属(Hypoderma spp.)、虻属(Tabanus spp.)、Tannia spp.、Bibio hortulanus、瑞典麦杆蝇(Oscinella frit)、Phorbia spp.、菠菜潜叶花蝇(Pegomyia hyoscyami)、地中海实蝇(Ceratitis capitata)、油橄实蝇(Dacus oleae)和沼泽大蚊(Tipula paludosa).

蚤目，例如，印鼠客蚤(Xenopsylla cheopis)和毛列蚤属(Ceratophyllus spp.)、蚤属(Pulex spp.)和栉头蚤属(Ctenocephalides spp.).

蛛形纲，例如，蝎(Scorpio maurus)和毒寇蛛(Latrodectus mactans).

蜱螨目，例如，粗脚粉螨(Acarus siro)、隐喙蜱属(Argas spp.)、钝喙蜱属(Ornithodoros spp.)、鸡皮刺螨(Dermanyssus gallinae)、茶瘿瘿螨(Eriophyes ribis)、柑桔锈螨(Phyllocoptruta oleivora)、牛蜱属(Boophilus spp.)、扇头蜱属(Rhipicephalus spp.)、花蜱属(Amblyomma spp.)、玻眼蜱属(Hyalomma spp.)、硬蜱属(Ixodes spp.)、痒螨属(Psoroptes spp.)、皮螨属(Chorioptes spp.)、疥螨属(Sarcoptes spp.)、跗线螨属(Tarsonemus spp.)、苔蛨螨(Bryobia praetiosa)、全爪螨属(Panonychus spp.)和叶螨属(Tetranychus spp.).

植物寄生线虫包括例如草地垫刃线虫(Pratylenchus spp.)、内侵线虫(Radopholus spp.)、双垫刃属Ditylenchus spp.、Tylenchulus spp.、异皮线虫属(Heterodera spp.)、囊线虫(Globodera spp.)、

Meloidogyne spp.、滑刃线虫(Aphelechoides spp.)、Longidorus spp.、剑线虫(Xiphinema spp.)、毫根线虫(Trichodorus spp.)、Tylenchus spp.、Heliotylenchus spp.、轮转线虫属(Rotylenchus spp.)和Tylenchulus spp.。

活性化合物可以转化成常规剂型，如溶液、乳剂、悬浮剂、可湿性粉剂、粉剂、膏剂、可溶性粉剂、颗粒剂、悬乳剂、用活性化合物浸渍的天然和合成物质和在用聚合物制成的微胶囊。

这些型剂可以用已知的方式生产，例如，将活性化合物与填充剂，即液体和/或与固体载体混合，并任选使用表面活性剂，即乳化剂和/或分散剂和/或起泡剂。

在用水作填充剂的情况下，也可以用有机溶剂作助溶剂。作为液体溶剂，适合的主要有：芳族化合物，如二甲苯，甲苯或烷基萘，氯代芳族化合物或氯代脂肪烃，如氯代苯类、氯乙烯类或二氯甲烷，脂族烃，如环己烷或石蜡，例如矿物油馏份、矿物和植物油，醇类，如丁醇或乙二醇以及其醚和酯，酮类，如丙酮、甲乙酮、甲基异丁基酮或环己酮，强极性溶剂，如二甲基甲酰胺或二甲基亚砜，以及水。

适合的固体载体是：

例如铵盐和磨碎的天然矿物质如高岭土、粘土、滑石、白垩、石英、硅镁土、蒙脱石或硅藻土，和磨碎的合成矿物质，如高分散二氧化硅、矾土和硅酸盐；用于颗粒剂的固体载体适合的有：例如压碎并分级的天然矿物质如方解石、大理石、浮石、海泡石和白云石，以及有机和无机粉的合成颗粒，和如下有机物的颗粒：锯木屑、椰壳、玉米穗轴和烟茎；适合的乳化剂和/或起泡剂是：例如非离子和阴离子乳化剂，如聚氧乙烯脂肪酸酯、聚氧乙烯脂肪醇醚，例如，烷芳基聚乙二醇醚，烷基磺酸盐，烷基硫酸盐，芳基磺酸盐以及白蛋白水解产物；适合的分散剂是：例如，木素亚硫酸废液和甲基纤维素。

制剂中可以使用粘合剂如粉状、颗粒或乳胶形式的羧甲基纤维素和天然和合成聚合物，如阿拉伯胶、聚乙烯醇和聚乙酸乙烯酯，以及天然磷脂，如脑磷脂和卵磷脂，和合成磷脂。其它的粘合剂可以是矿物油和植物油。

也可能使用染料，如无机颜料，例如氧化铁、氧化钛和普鲁士蓝，和有机染料，如茜素染料、偶氮染料和金属酞菁染料，和微量营养素如

铁、锰、硼、铜、钴、钼和锌盐。

制剂中通常含有按重量计 0.1 至 95 % 的活性化合物，优选 0.5 至 90 %。

本发明活性化合物可以以其本身或以其制剂使用，所述的制剂为与防治杂草的已知除草剂的混合物，在混合物的情况下，可以是直接可用制剂或桶混物。

适合用作混合物的共同组分是已知的除草剂，例如酰苯胺类如吡氟草胺、敌稗；芳基羧酸类如二氯吡啶甲酸、麦草畏和毒草定；芳氧羧酸类如 2,4-滴、2,4-滴丁酸、2,4-滴丙酸、氯草烟、2 甲 4 氯、2 甲 4 氯丙酸和绿草定；芳氧基苯氧羧酸类如禾草灵、恶唑禾草灵、吡氟禾草灵、吡氟氯禾灵和喹禾灵；连氮酮类如杀草敏、哒草伏；氨基甲酸酯类如氯苯胺灵、甜菜安、甜菜宁和苯胺灵；氯乙酰苯胺类如甲草胺、乙草胺、丁草胺、吡草胺、异丙草胺、丙草胺和毒草胺；二硝基苯胺类如安磺灵、二甲戊乐灵和氟乐灵；二苯醚类如三氟羧草醚、甲羧除草醚、乙羧氟草醚、氟黄胺草醚、halosafen、乳氟禾草灵和乙氧氟草醚；脲类如绿麦隆、敌草隆、伏草隆、异丙隆、利谷隆和甲基苯噻隆；羟胺类如禾草灭、烯草酮、噻草酮、稀禾定和肟草酮；咪唑啉酮类如咪草烟、咪草酯、灭草烟和灭草喹；腈类如溴苯腈、敌草腈和碘苯腈；氧乙酰胺类如苯噻草胺；磺酰脲类如 amidosufuron、苄嘧黄隆、氯嘧黄隆、绿黄隆、醚黄隆、甲黄隆、烟嘧黄隆、氟嘧黄隆、吡嘧黄隆、噻黄隆、醚苯黄隆和苯黄隆；硫代氨基甲酸酯类如丁草特、灭草特、燕麦敌、茵达灭、禾草畏、草达灭、苄草丹、杀草丹和野麦畏；三嗪类如莠去津、氰草津、西玛津、西草净和特丁净；噻嗪酮类如环嗪酮、苯嗪草酮和嗪草酮；其它除草剂如杀草强、呋草黄、灭草松、环庚草醚、异恶草酮、二氯吡啶酸、双苯唑快、氟硫草定、乙呋草黄、氟咯草酮、草铵膦、草甘膦、isoxaben、哒草特、二氯喹啉酸、喹草酸、草硫膦和灭草环。

也可以是与其它已知活性化合物的混合物，其它已知化合物如杀真菌剂、杀虫剂、杀螨剂、驱鸟剂、植物生长调节剂和土壤结构改良剂。

活性化合物可以以其本身使用，或是以其制剂或由制剂进一步稀释而制备的使用形式如直接可用溶液、悬浮液、乳液、粉、膏和颗粒来使用。它们用常规的方式使用，例如通过浇水、喷雾、弥雾或撒施使用。

本发明活性化合物可以在植物萌发前或后使用。它们也可以在播种

前掺入土壤。

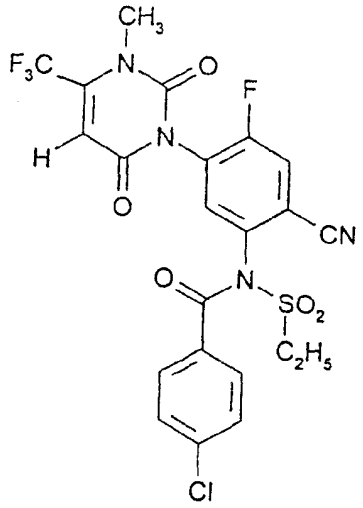
所用的活性化合物量可以在相当宽的范围内变化。通常，所用的量是在 1 克至 10 千克活性化合物每公顷土壤表面，任选在 5 克至 5 千克每公顷。

具体实施方式

本发明活性化合物的制备和应用可见于下列实施例。

制备实施例:

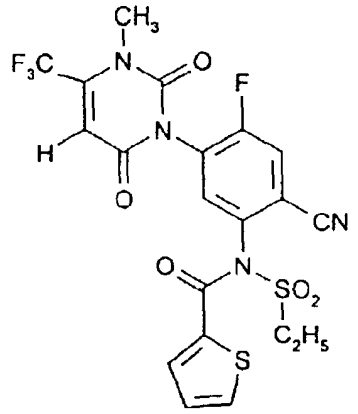
实施例 1



在约 20℃，将 0.90 克(5 毫摩尔)4-氯苯甲酰氯加入到 2.1 克(5 毫摩尔) 1-(4-氰基-5-乙基磺酰氨基-2-氟-苯基)-3,6-二氢-2,6-二氧代-3-甲基-4-三氟甲基-1(2H)-嘧啶、0.60 克(6 毫摩尔)三乙胺和 50 毫升乙腈的混合物，且将混合物在 20℃搅拌 2 小时。之后将混合物用水泵真空浓缩，残留物用氯仿消化，用 2N 盐酸洗涤，用硫酸钠干燥并过滤。滤液用水泵真空浓缩，残留物用乙醚消化，且所得的晶体产物用抽吸过滤分离。

获得 1.5 克(理论值的 54%)1-[4-氰基-5-(N-乙基磺酰基-N-(4-氯苯甲酰基)氨基)-2-氟苯基]-3,6-二氢-2,6-二氧代-3-甲基-4-三氟甲基-1(2H)-嘧啶，熔点 138℃。

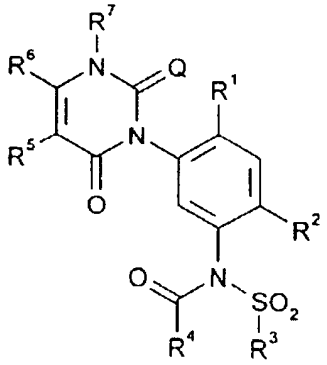
实施例 2



在约 20 ℃，将 1.8 克(12 毫摩尔)噻吩-2-酰基氯加入到 2.1 克(5 毫摩尔) 1-(4-氰基-5-乙基磺酰氨基-2-氟-苯基)-3,6-二氢-2,6-二氧代-3-甲基-4-三氟甲基-1(2H)-嘧啶、 1.5 毫升吡啶和 50 毫升二氯甲烷的混合物，且将混合物在 20 ℃搅拌一周．溶液用 1N 盐酸盐洗涤，用硫酸钠干燥并过滤．滤液用水泵真空浓缩，残留物用乙醚消化，且所得的晶体产物用抽吸过滤分离．

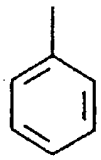
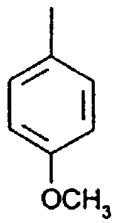
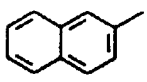
获得 2.1 克(理论值的 84%)1-[4-氰基-5-(N-乙基磺酰基-N-(噻吩-2-基羰基)氨基)-2-氟苯基]-3,6-二氢-2,6-二氧代-3-甲基-4-三氟甲基-1(2H)-嘧啶，熔点 192 ℃．

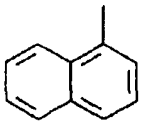
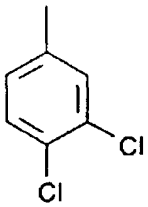
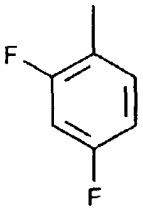
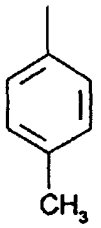
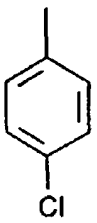
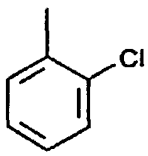
通过类似于实施例 1 和 2 的方法，且根据本发明制备方法的一般描述，也可以制备例如列于表 1 中的式(I)化合物．

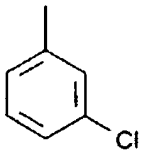
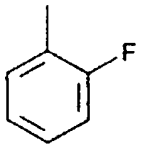
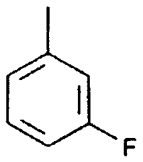
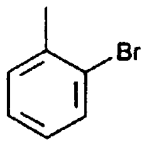
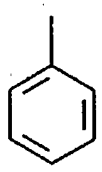
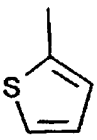
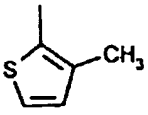


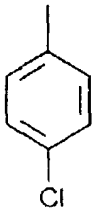
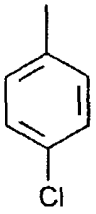
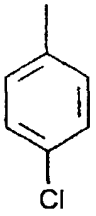
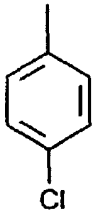
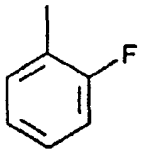
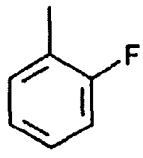
(I)

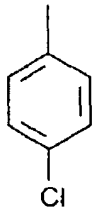
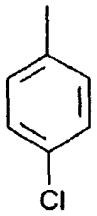
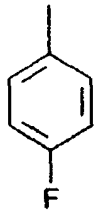
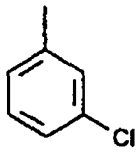
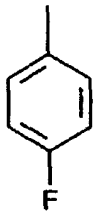
表 1 式（ I ）化合物实例

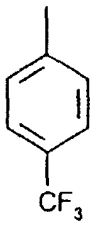
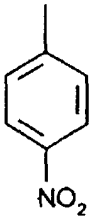
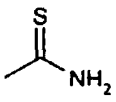
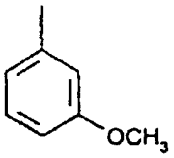
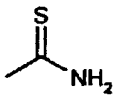
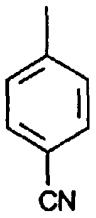
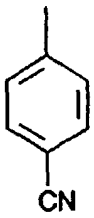
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
3	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	93
4	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	108
5	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	157
6	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	190

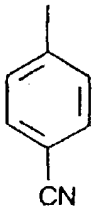
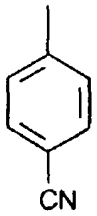
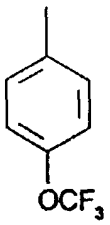
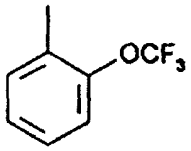
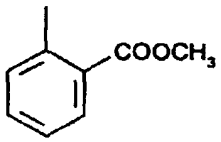
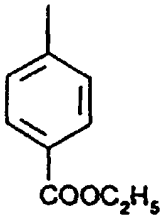
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
7	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	186
8	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	206
9	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	123
10	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	191
11	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	215
12	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	189

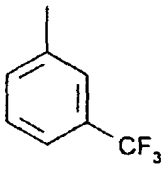
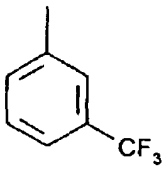
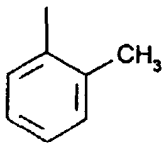
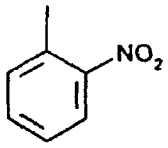
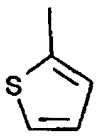
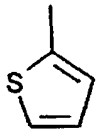
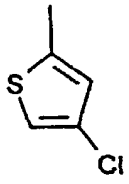
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
13	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	189
14	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	201
15	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	175
16	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	184
17	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	193
18	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	203
19	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	202

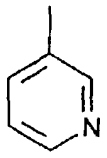
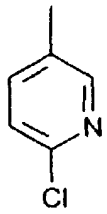
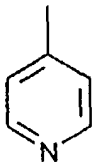
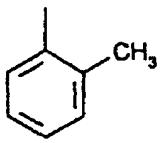
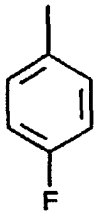
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
20	O	H	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
21	O	Cl	Cl	CH_3		H	CF_3	CH_3	
22	O	H	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	
23	O	F	CN	n-C_3H_7		H	CF_3	CH_3	
24	O	F	CN	n-C_4H_9		H	CF_3	CH_3	
25	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	C_2H_5	

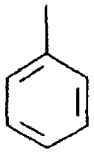
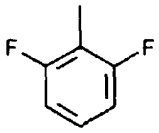
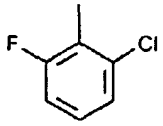
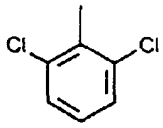
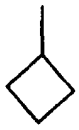
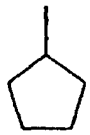
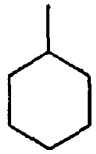
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
26	O	Cl	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
27	O	Cl	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
28	O	Cl	CN	n-C_3H_7		H	CF_3	CH_3	
29	O	F	CN	i-C_3H_7		CH_3	CF_3	C_2H_5	
30	O	F	CN			H	CF_3	CH_3	

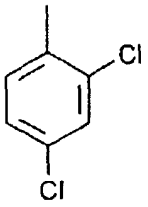
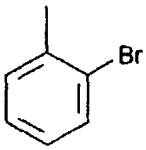
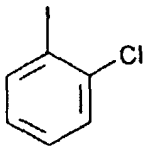
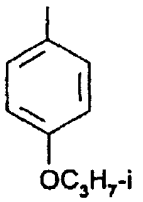
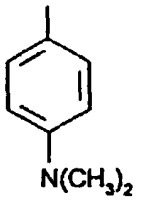
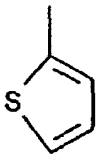
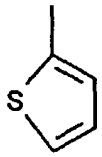
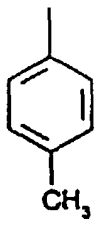
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
31	O	F	CN	n-C_4H_9		H	CF_3	NH_2	
32	O	F	CN	i-C_4H_9		H	CF_2Cl	CH_3	
33	O	Cl		CH_3		H	CF_3	CH_3	
34	O	F		CH_3		H	C_2F_5	CH_3	
35	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	

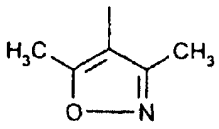
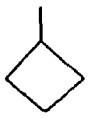
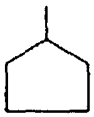
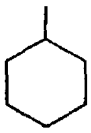
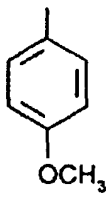
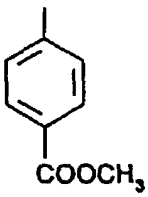
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (℃)
36	O	F	CN	CH_3		H	CHF_2	CH_3	
37	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	
38	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
39	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
40	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
41	O	F	CN	C_2H_5		H	CHF_2	CH_3	

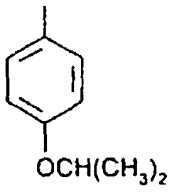
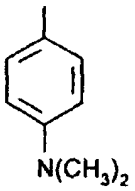
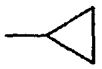
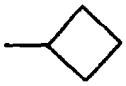
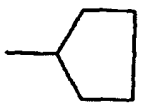
实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
42	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	
43	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
44	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
45	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
46	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	NH_2	268
47	S	F	CN	C_2H_5		CH_3	CF_3	CH_3	
48	O	F	CN	n-C_3H_7		H	CF_3	CH_3	

实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
49	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
50	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
51	S	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
52	S	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
53	S	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
54	S	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	

实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
55	S	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
56	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
57	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
58	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	
59	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	173
60	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	192
61	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	188
62	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	188

实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
63	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	122
64	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	164
65	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	159
66	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	107
67	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	CH_3	198
68	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	H	187
69	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	NH_2	120
70	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	227

实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
71	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	241
72	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	219
73	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	199
74	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	178
75	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	222
76	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	225

实施例号	Q	R^1	R^2	R^3	R^4	R^5	R^6	R^7	熔点 (°C)
77	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	195
78	O	F	CN	CH_3		H	CF_3	CH_3	216
79	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	NH_2	89
80	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	NH_2	105
81	O	F	CN	C_2H_5		H	CF_3	NH_2	>200

应用实施例:

实施例 A

芽前试验

溶剂: 5 份重量丙酮

乳化剂: 1 份重量的烷芳基聚乙二醇

制备适合的活性化合物制剂时，将 1 份重量的活性化合物与所述量的溶剂混合，将所述量的乳化剂加入，并用水将此乳油稀释至所需浓度.

将试验植物的种子播入通常的土壤中， 24 小时后，用活性化合物制剂浇水或喷雾. 最好使每单位面积的水量保持恒定. 制剂中活性化合物的浓度是不重要的，只有每单位施用的活性化合物的量是关键的。三周后，将植物的损害程度与未处理对照的发育相比较，定出损害 % .

数值的含意如下:

0 % =无作用(与未处理相同)

100 % =完全损害

在此实验中，例如制备实施例 1 和 2 的化合物，在 60 克/公顷的施用量下，对莎草(60-100%)、黑麦草(70-90%)、黍(70-95%)、苘麻(100%)、藜(100%)和曼陀罗(100%)有好的作用，而作物如玉米对之则有良好的耐受性（ 0 % ）.

实施例 B

芽后试验

溶剂: 5 份重量丙酮

乳化剂: 1 份重量的烷芳基聚乙二醇

制备适合的活性化合物制剂时，将 1 份重量的活性化合物与所述量的溶剂混合，将所述量的乳化剂加入，并用水将此乳油稀释至所需浓度.

向株高 5-15 厘米的试验植物按单位面积喷雾施用一定量的所需活性化合物制剂. 选择喷雾液的浓度，使所需化合物的特定量以 2,000 升水/公顷的量施用. 三周后，将植物的损害程度与未处理对照的发育相比较，定出损害 % .

数值的含意如下:

0 % =无作用(与未处理相同)

100 %=完全损害

在此实验中，例如制备实施例 1 和 2 的化合物，在 30 克/公顷的施用量下，对稗(95%)、蜀黍(70-80%)、苘麻(100%)、藜(100%)、曼陀罗(100%)和龙葵(100%)有好的作用，而作物如大麦(0-10%)对之则有良好的耐受性.

实施例 C

辣根猿叶甲幼虫试验

溶剂: 7 份重量的二甲基甲酰胺

乳化剂: 1 份重量的烷芳基聚乙二醇醚

制备活性化合物的合适制剂时，将 1 份重量的活性化合物与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将该乳油用水稀释至所需浓度.

将甘蓝(Brassica oleracea)叶片通过浸入所需浓度的活性化合物制剂中来处理，当叶片仍湿润时，放入辣根猿叶甲(Phaedon cochleariae)幼虫，让其取食.

经过一定的时间后，确定杀死%. 100 %是指所有的幼虫均被杀死; 0 %是指没有幼虫被杀死.

在此试验中，在实施活性化合物浓度为 0.1 %的条件下，7 天后，杀死 80-100%的有例如制备实施例化合物 1 和 2 .

实施例 D

黑尾叶蝉试验

溶剂: 7 份重量的二甲基甲酰胺

乳化剂: 1 份重量的烷芳基聚乙二醇醚

制备活性化合物的合适制剂时，将 1 份重量的活性化合物与所述量的溶剂和乳化剂混合，并将该乳油用水稀释至所需浓度.

将稻秧(Oryza sativa)通过浸入所需浓度的活性化合物制剂中来处理，当叶片仍润湿时，放上黑尾叶蝉.

经过了所需的时间后，确定杀死%. 100 %是指所有的黑尾叶蝉均被杀死; 0 %是指没有黑尾叶蝉被杀死.

在此试验中，在实施活性化合物浓度为 0.1 %的条件下，6 天后,杀死 100%的有制备实施例化合物 1 和 2 .