

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl.
C07F 7/08 (2006.01)



[12] 发明专利说明书

专利号 ZL 200480034187.1

[45] 授权公告日 2009 年 12 月 9 日

[11] 授权公告号 CN 100567306C

[22] 申请日 2004.11.6

[21] 申请号 200480034187.1

[30] 优先权

[32] 2003.11.21 [33] DE [31] 10354607.3

[86] 国际申请 PCT/EP2004/012590 2004.11.6

[87] 国际公布 WO2005/049624 德 2005.6.2

[85] 进入国家阶段日期 2006.5.19

[73] 专利权人 拜尔农作物科学股份公司

地址 德国蒙海姆

[72] 发明人 R·东克尔 H·L·埃尔比

B·哈特曼 A·克劳森

J·N·格罗尔

U·瓦克亨多夫-诺伊曼 P·丹门

K-H·库克

[56] 参考文献

WO03080628A1 2003.10.2

a new approach to the synthesis of 2-substituted indoles; reaction of demetallated ortho-trimethylsilylmethylanilides with esters. giuseppe bartoli *, et al. tetrahedron, Vol. 46 No. 4. 1990

carbanionically induced 1,3!-migrations of . pi.- and coordinatively unsaturated groups. dieter hellwinkel *, et al. chemische berichte, Vol. 116 No. 10. 1983

审查员 解佳烨

[74] 专利代理机构 北京北翔知识产权代理有限公司

代理人 钟守期 唐铁军

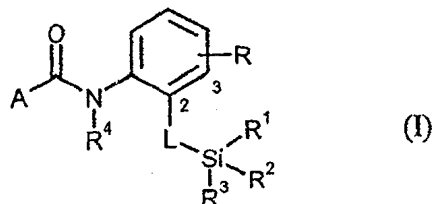
权利要求书 7 页 说明书 47 页

[54] 发明名称

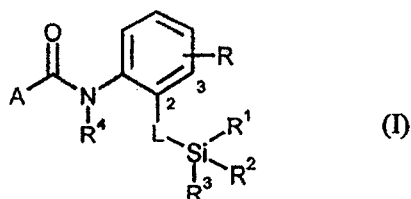
甲硅烷基化甲酰胺

[57] 摘要

新的式(I)的甲硅烷基化甲酰胺、制备这些化合物的多种方法,以及其用于防治不想要的微生物的应用,其中 R、L、R¹、R²、R³和 R⁴的定义如说明书中所述。



1. 式(I)的甲硅烷基化甲酰胺,



其中

R 代表氢、氟、氯、甲基、异丙基、甲硫基或三氟乙基,

L 代表直接键或各自任选被取代的直链或带支链的亚烷基(烷二基)、亚烯基(烯二基)或亚炔基(炔二基),

R^1 和 R^2 相互独立, 代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_8 -烷氧基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_1-C_4 -烷硫基- C_1-C_4 -烷基或 C_1-C_6 -卤代烷基,

R^3 代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_8 -烷氧基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_1-C_4 -烷硫基- C_1-C_4 -烷基、 C_2-C_8 -烯基、 C_2-C_8 -炔基、 C_1-C_6 -卤代烷基、 C_2-C_6 -卤代烯基、 C_2-C_6 -卤代炔基、 C_3-C_6 -环烷基, 或代表各自任选被取代的苯基或苯烷基,

R^4 代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_6 -烷基亚磺酰基、 C_1-C_6 -烷基磺酰基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -环烷基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_6 -卤代烷基、 C_1-C_4 -卤代烷硫基、 C_1-C_4 -卤代烷基亚磺酰基、 C_1-C_4 -卤代烷基磺酰基、卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -卤代环烷基, 甲酰基、甲酰基- C_1-C_3 -烷基、(C_1-C_3 -烷基)羰基- C_1-C_3 -烷基、(C_1-C_3 -烷氧基)羰基- C_1-C_3 -烷基, 分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C_1-C_3 -烷基)羰基- C_1-C_3 -烷基、卤代-(C_1-C_3 -烷氧基)羰基- C_1-C_3 -烷基,

(C_1-C_8 -烷基)羰基、(C_1-C_8 -烷氧基)羰基、(C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基)羰基、(C_3-C_8 -环烷基)羰基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 (C_1-C_6 -卤代烷基)羰基、(C_1-C_6 -卤代烷氧基)羰基、(卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基)羰基、(C_3-C_8 -卤代环烷基)羰基, 或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或 $-CH_2NR^8R^9$,

R^5 代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_8 -烷氧基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷

基、 C_3-C_8 -环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的
 C_1-C_6 -卤代烷基、 C_1-C_6 -卤代烷氧基、卤代- C_1-C_4 -烷氧基
 $-C_1-C_4$ -烷基、 C_3-C_8 -卤代环烷基，

R^6 和 R^7 相互独立，各自代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -
 烷基、 C_3-C_8 -环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的
 C_1-C_8 -卤代烷基、卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -
 卤代环烷基，

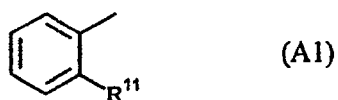
R^6 和 R^7 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 至 8 个环原子的
 饱和杂环，所述杂环任选由选自卤素或 C_1-C_4 -烷基的相同或
 不同的取代基单取代或多取代，其中，杂环还可另外含有 1
 或 2 个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子，

R^8 和 R^9 相互独立，代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_3-C_8 -环烷基，分别具有
 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_8 -卤代烷基、 C_3-C_8 -卤代环
 烷基，

R^8 和 R^9 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 至 8 个环原子的
 饱和杂环，所述杂环任选由选自卤素或 C_1-C_4 -烷基的相同或
 不同的取代基单取代或多取代，其中，杂环还可另外含有 1
 或 2 个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子，

R^{10} 代表氢或 C_1-C_6 -烷基，

A 代表式 (A1) 的基团

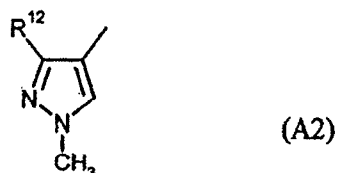


其中

R^{11} 代表卤素、羟基、氰基、 C_1-C_6 -烷基、分别具有 1 至 5
 个卤素原子的 C_1-C_4 -卤代烷基、 C_1-C_4 -卤代烷氧基或
 C_1-C_4 -卤代烷硫基，

或者

A 代表式 (A2) 的基团

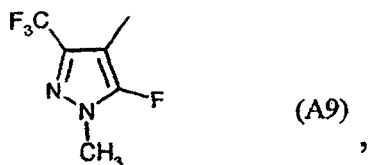


其中

R^{12} 代表氯、碘或二氯甲基,

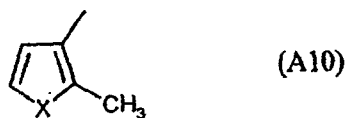
或者

A 代表式 (A9) 的基团



或者

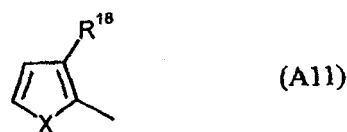
A 代表式 (A10) 的基团



其中 X 代表 O (氧) 或 S (硫),

或者

A 代表式 (A11) 的基团



其中

X 代表 O (氧) 或 S (硫),

R^{18} 代表碘或甲基。

2. 权利要求 1 的式 (I) 的甲硅烷基化甲酰胺, 其特征在于

R 代表氢、氟、氯、甲基或三氟甲基,

L 代表直接键, 或代表各自任选地被卤素取代的直链或带支链的 C_1-C_6 -亚烷基、 C_2-C_6 -亚烯基或 C_2-C_6 -亚炔基,

R^1 和 R^2 相互独立, 代表 C_1-C_6 -烷基、 C_1-C_6 -烷氧基、 C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基或 C_1-C_3 -烷硫基- C_1-C_3 -烷基,

R^3 代表 C_1-C_6 -烷基、 C_1-C_6 -烷氧基、 C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基、 C_1-C_3 -烷硫基- C_1-C_3 -烷基、 C_3-C_6 -环烷基、苯基或苯甲基,

R^4 代表氢、 C_1-C_6 -烷基、 C_1-C_4 -烷基亚磺酰基、 C_1-C_4 -烷基磺酰基、

C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-环烷基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₄-卤代烷基、C₁-C₄-卤代烷硫基、C₁-C₄-卤代烷基亚磺酰基、C₁-C₄-卤代烷基磺酰基、卤代-C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-卤代环烷基, 甲酰基、甲酰基-C₁-C₃-烷基、(C₁-C₃-烷基)羰基-C₁-C₃-烷基、(C₁-C₃-烷氧基)羰基-C₁-C₃-烷基, 分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C₁-C₃-烷基)羰基-C₁-C₃-烷基、卤代-(C₁-C₃-烷氧基)羰基-C₁-C₃-烷基,

(C₁-C₆-烷基)羰基、(C₁-C₄-烷氧基)羰基、(C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基)羰基、(C₃-C₆-环烷基)羰基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 (C₁-C₄-卤代烷基)羰基、(C₁-C₄-卤代烷氧基)羰基、(卤代-C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基)羰基、(C₃-C₆-卤代环烷基)羰基, 或 -C(=O)C(=O)R⁵、-CONR⁶R⁷ 或 -CH₂NR⁸R⁹,

R⁵ 代表氢、C₁-C₆-烷基、C₁-C₄-烷氧基、C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-环烷基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₄-卤代烷基、C₁-C₄-卤代烷氧基、卤代-C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-卤代环烷基,

R⁶ 和 R⁷ 相互独立, 各自代表氢、C₁-C₆-烷基、C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-环烷基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₄-卤代烷基、卤代-C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-卤代环烷基,

R⁶ 和 R⁷ 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环, 所述杂环任选由选自卤素或 C₁-C₄-烷基的相同或不同的取代基单取代至四取代, 其中, 杂环还可另外含有 1 或 2 个选自氧、硫和 NR¹⁰ 的不相邻的杂原子,

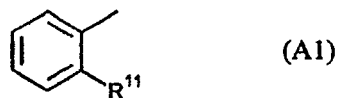
R⁸ 和 R⁹ 相互独立, 代表氢、C₁-C₆-烷基、C₃-C₆-环烷基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₄-卤代烷基、C₃-C₆-卤代环烷基,

R⁸ 和 R⁹ 还和与它们相连的氮原子一起形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环, 所述杂环任选由选自卤素或 C₁-C₄-烷基的相同或不同的取代基单取代或多取代, 其中, 杂环还可另外含有 1

或 2 个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子，

R^{10} 代表氢或 $\text{C}_1\text{-C}_4$ -烷基，

A 代表式 (A1) 的基团

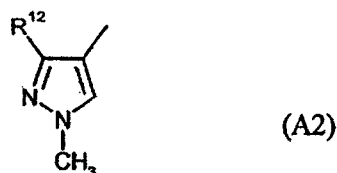


其中

R^{11} 代表氟、氯、溴、碘、羟基、氰基、 $\text{C}_1\text{-C}_4$ -烷基、分别具有 1 至 5 个氟、氯和/或溴原子的 $\text{C}_1\text{-C}_2$ -卤代烷基、 $\text{C}_1\text{-C}_2$ -卤代烷氧基或 $\text{C}_1\text{-C}_2$ -卤代烷硫基，

或者

A 代表式 (A2) 的基团

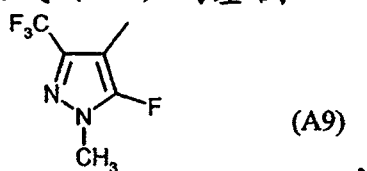


其中

R^{12} 代表氯、碘或二氯甲基，

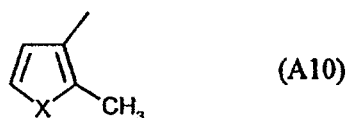
或者

A 代表式 (A9) 的基团



或者

A 代表式 (A10) 的基团

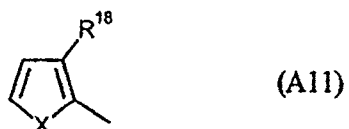


其中

X 代表 O (氧) 或 S (硫)，

或者

A 代表式 (A11) 的基团



其中

X 代表 O (氧) 或 S (硫),

R¹⁸ 代表碘或甲基。

3. 制备权利要求 1 的式 (I) 的甲硅烷基化甲酰胺的方法, 其特征在于

a) 如合适, 在存在催化剂时, 如合适, 在存在缩合剂时, 如合适, 在存在酸结合剂时, 以及如合适, 在存在稀释剂时,

式 (II) 的羧酸衍生物

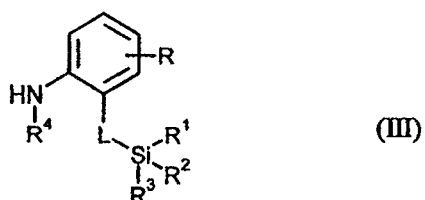


其中

X' 代表卤素或羟基

A 的定义如权利要求 1 所述,

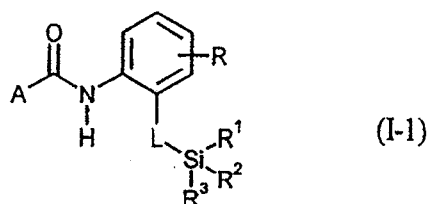
与式 (III) 的胺反应



其中 R、L、R¹、R²、R³ 和 R⁴ 的定义如权利要求 1 所述,
或者

b) 在存在碱及存在稀释剂时,

式 (I-1) 的甲硅烷基化甲酰胺



其中 R、L、R¹、R²、R³ 和 A 的定义如权利要求 1 所述,

与式(VIII)的卤化物反应,



其中

X^2 代表氯、溴或碘,

R^{4a} 代表 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_6 -烷基亚磺酰基、 C_1-C_6 -烷基磺酰基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -环烷基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_6 -卤代烷基、 C_1-C_4 -卤代烷硫基、 C_1-C_4 -卤代烷基亚磺酰基、 C_1-C_4 -卤代烷基磺酰基、卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -卤代环烷基, 甲酰基、甲酰基- C_1-C_3 -烷基、(C_1-C_3 -烷基)羰基- C_1-C_3 -烷基、(C_1-C_3 -烷氧基)羰基- C_1-C_3 -烷基, 分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C_1-C_3 -烷基)羰基- C_1-C_3 -烷基、卤代-(C_1-C_3 -烷氧基)羰基- C_1-C_3 -烷基,

(C_1-C_8 -烷基)羰基、(C_1-C_8 -烷氧基)羰基、(C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基)羰基、(C_3-C_8 -环烷基)羰基, 分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的(C_1-C_6 -卤代烷基)羰基、(C_1-C_6 -卤代烷氧基)羰基、(卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基)羰基、(C_3-C_8 -卤代环烷基)羰基, 或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或 $-CH_2NR^8R^9$, 其中 R^5 、 R^6 、 R^7 和 R^8 的定义如权利要求 1 所述。

4. 用于防治不想要的微生物的组合物, 其特征在于, 所述组合物除填料和/或表面活性剂外, 还含有至少一种权利要求 1 的式(I)的甲硅烷基化甲酰胺。

5. 权利要求 1 的甲硅烷基化甲酰胺用于防治不想要的微生物的应用。

6. 防治不想要的微生物的方法, 其特征在于, 将权利要求 1 的甲硅烷基化甲酰胺施用于微生物和/或其生境。

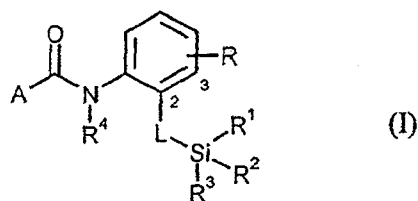
7. 制备防治不想要的微生物的组合物的方法, 其特征在于, 将权利要求 1 的式(I)的甲硅烷基化甲酰胺与填料和/或表面活性剂混合。

甲硅烷基化甲酰胺

本发明涉及新的甲硅烷基化甲酰胺，其多种制备方法及其用于防治不想要的微生物的应用。

已知多种甲酰胺具有杀真菌性能（参见 WO 03/080628、WO 03/010149、EP-A 0 589 301、EP-A 0 545 099）。这些化合物的活性良好；但有时，例如在低施用率时，则不令人满意。

本发明现提供式 (I) 的新的甲硅烷基化甲酰胺，



其中

- R 代表氢、氟、氯、甲基、异丙基、甲硫基或三氟乙基，
 L 代表直接键或各自任选被取代的直链或带支链的亚烷基（烷二基）、亚烯基（烯二基）或亚炔基（炔二基），
 R^1 和 R^2 相互独立，代表氢、 C_1 - C_8 -烷基、 C_1 - C_8 -烷氧基、 C_1 - C_4 -烷氧基- C_1 - C_4 -烷基、 C_1 - C_4 -烷硫基- C_1 - C_4 -烷基或 C_1 - C_6 -卤代烷基，
 R^3 代表氢、 C_1 - C_8 -烷基、 C_1 - C_8 -烷氧基、 C_1 - C_4 -烷氧基- C_1 - C_4 -烷基、 C_1 - C_4 -烷硫基- C_1 - C_4 -烷基、 C_2 - C_8 -烯基、 C_2 - C_8 -炔基、 C_1 - C_6 -卤代烷基、 C_2 - C_6 -卤代烯基、 C_2 - C_6 -卤代炔基、 C_3 - C_6 -环烷基，或代表各自任选被取代的苯基或苯烷基，
 R^4 代表氢、 C_1 - C_8 -烷基、 C_1 - C_6 -烷基亚磺酰基、 C_1 - C_6 -烷基磺酰基、 C_1 - C_4 -烷氧基- C_1 - C_4 -烷基、 C_3 - C_8 -环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1 - C_6 -卤代烷基、 C_1 - C_4 -卤代烷硫基、 C_1 - C_4 -卤代烷基亚磺酰基、 C_1 - C_4 -卤代烷基磺酰基、卤代- C_1 - C_4 -烷氧基- C_1 - C_4 -烷基、 C_3 - C_8 -卤代环烷基，甲酰基、甲酰基- C_1 - C_3 -烷基、 $(C_1-C_3-烷基)羰基-C_1-C_3-烷基$ 、 $(C_1-C_3-烷氧基)羰基-C_1-C_3-烷基$ ，分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代- $(C_1-C_3-烷基)羰基-C_1-C_3-烷基$ 、卤代- $(C_1-C_3-烷氧基)羰基-C_1-C_3-烷基$ ，

(C_1-C_8 -烷基)羰基、(C_1-C_8 -烷氧基)羰基、(C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基)羰基、(C_3-C_8 -环烷基)羰基, 分别具有1至9个氟、氯和/或溴原子的(C_1-C_6 -卤代烷基)羰基、(C_1-C_6 -卤代烷氧基)羰基、(卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基)羰基、(C_3-C_8 -卤代环烷基)羰基, 或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或 $-CH_2NR^8R^9$,

R^5 代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_8 -烷氧基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -环烷基, 分别具有1至9个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_6 -卤代烷基、 C_1-C_6 -卤代烷氧基、卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -卤代环烷基,

R^6 和 R^7 相互独立, 各自代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -环烷基, 分别具有1至9个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_8 -卤代烷基、卤代- C_1-C_4 -烷氧基- C_1-C_4 -烷基、 C_3-C_8 -卤代环烷基,

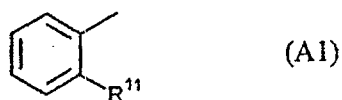
R^6 和 R^7 还和与它们相连的氮原子一起形成具有5至8个环原子的饱和杂环, 所述杂环任选由选自卤素或 C_1-C_4 -烷基的相同或不同的取代基单取代或多取代, 其中, 杂环还可另外含有1或2个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子,

R^8 和 R^9 相互独立, 代表氢、 C_1-C_8 -烷基、 C_3-C_8 -环烷基, 分别具有1至9个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_8 -卤代烷基、 C_3-C_8 -卤代环烷基,

R^8 和 R^9 还和与它们相连的氮原子一起形成具有5至8个环原子的饱和杂环, 所述杂环任选由选自卤素或 C_1-C_4 -烷基的相同或不同的取代基单取代或多取代, 其中, 杂环还可另外含有1或2个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子,

R^{10} 代表氢或 C_1-C_6 -烷基,

A 代表式(A1)的基团



其中

R^{11} 代表氢、卤素、羟基、氰基、 C_1-C_6 -烷基、分别具有1

至 5 个卤素原子的 C₁-C₄-卤代烷基、C₁-C₄-卤代烷氧基
或 C₁-C₄-卤代烷硫基，

或者

A 代表式 (A2) 的基团

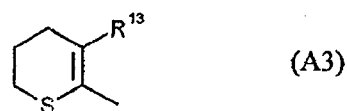


其中

R¹² 代表氯、碘或二氯甲基，

或者

A 代表式 (A3) 的基团

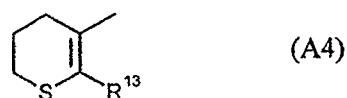


其中

R¹³ 代表 C₁-C₄-烷基或具有 1 至 5 个卤素原子的 C₁-C₄-卤代
烷基，

或者

A 代表式 (A4) 的基团

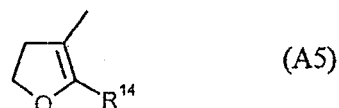


其中

R¹³ 代表 C₁-C₄-烷基或具有 1 至 5 个卤素原子的 C₁-C₄-卤代
烷基，

或者

A 代表式 (A5) 的基团

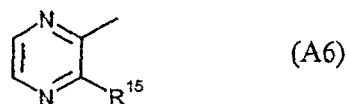


其中

R^{14} 代表 C_1-C_4 -烷基或具有 1 至 5 个卤素原子的 C_1-C_4 -卤代烷基,

或者

A 代表式 (A6) 的基团

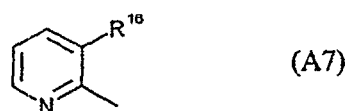


其中

R^{15} 代表氢、卤素、 C_1-C_4 -烷基或具有 1 至 5 个卤素原子的 C_1-C_4 -卤代烷基,

或者

A 代表式 (A7) 的基团

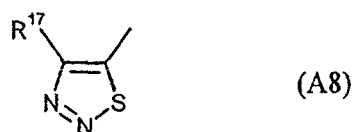


其中

R^{16} 代表卤素、羟基、 C_1-C_4 -烷基、 C_1-C_4 -烷氧基、 C_1-C_4 -烷硫基、或各自具有 1 至 5 个卤素原子的 C_1-C_4 -卤代烷基、 C_1-C_4 -卤代烷硫基或 C_1-C_4 -卤代烷氧基,

或者

A 代表式 (A8) 的基团

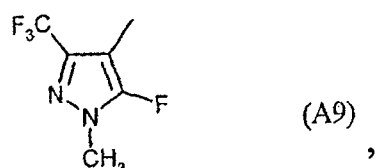


其中

R^{17} 代表 C_1-C_4 -烷基,

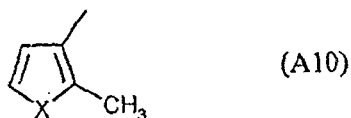
或者

A 代表式 (A9) 的基团



或者

A 代表式 (A10) 的基团

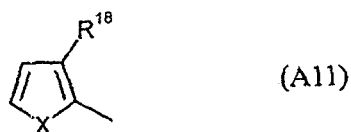


其中

X 代表 O (氧) 或 S (硫),

或者

A 代表式 (A11) 的基团



其中

X 代表 O (氧) 或 S (硫),

R¹⁸ 代表碘或甲基。

如合适, 本发明的化合物可以以多种可能异构体的混合物的形式存在, 所述异构体特别指立体异构体, 例如 E 异构体和 Z 异构体、苏式和赤式异构体以及旋光异构体, 如果合适还可以是互变异构体。要求保护的有 E 异构体和 Z 异构体、苏式和赤式异构体以及旋光异构体、这些异构体的任何混合物以及可能的互变异构体。

此外, 已发现式 (I) 的甲硅烷基化甲酰胺可通过如下方式获得:

a) 如合适, 在存在催化剂时, 如合适, 在存在缩合剂时, 如合适, 在存在酸结合剂时, 以及如合适, 在存在稀释剂时,

式 (II) 的羧酸衍生物

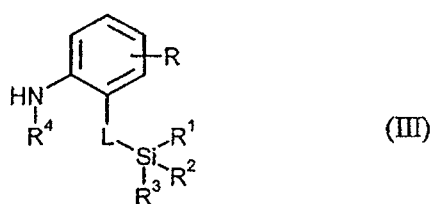


其中

X¹ 代表卤素或羟基

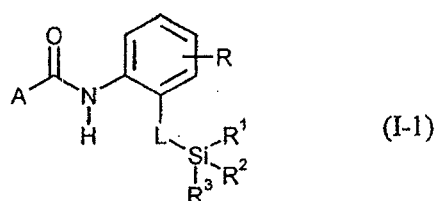
A 的定义如上,

与式 (III) 的胺反应



其中 R、L、R¹、R²、R³ 和 R⁴ 的定义如上，
或者

b) 在存在碱及存在稀释剂时，
式 (I-1) 的甲硅烷基化甲酰胺



其中 R、L、R¹、R²、R³ 和 A 的定义如上，
与式 (VIII) 的卤化物反应，



其中

X² 代表氯、溴或碘，

R^{4a} 代表 C₁-C₈-烷基、C₁-C₆-烷基亚磺酰基、C₁-C₆-烷基磺酰基、C₁-C₄-烷氧基-C₁-C₄-烷基、C₃-C₈-环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₆-卤代烷基、C₁-C₄-卤代烷基、C₁-C₄-卤代烷基亚磺酰基、C₁-C₄-卤代烷基磺酰基、卤代-C₁-C₄-烷氧基-C₁-C₄-烷基、C₃-C₈-卤代环烷基，甲酰基、甲酰基-C₁-C₃-烷基、(C₁-C₃-烷基)羰基-C₁-C₃-烷基、(C₁-C₃-烷氧基)羰基-C₁-C₃-烷基，分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C₁-C₃-烷基)羰基-C₁-C₃-烷基、卤代-(C₁-C₃-烷氧基)羰基-C₁-C₃-烷基，

(C₁-C₈-烷基)羰基、(C₁-C₈-烷氧基)羰基、(C₁-C₄-烷氧基-C₁-C₄-烷基)羰基、(C₃-C₈-环烷基)羰基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 (C₁-C₆-卤代烷基)羰基、(C₁-C₆-卤代烷氧基)羰基、(卤代-C₁-C₄-烷氧基-C₁-C₄-烷基)羰基、

(C_3-C_8 -卤代环烷基)羰基, 或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或 $-CH_2NR^8R^9$, 其中 R^5 、 R^6 、 R^7 和 R^8 的定义如上。

最后, 已发现式(I)的新的甲硅烷基化甲酰胺具有非常好的杀微生物性能, 可在作物保护和材料保护中用于防治不想要的微生物。

式(I)提供了本发明的甲硅烷基化甲酰胺的总体定义。上文及下文所示结构式的基团的优选定义如下。这些定义适用于式(I)的最终产物及所有中间体。

- R 优选代表氢。
- R 还优选代表氟, 其中氟尤其优选位于酰苯胺基团[参见上文式(I)]的4-、5-或6-位, 特别尤其优选位于4-或6-位, 最优选位于4-位。
- R 还优选代表氯, 其中氯尤其优选位于酰苯胺基团[参见上文式(I)]的5-位。
- R 还优选代表甲基, 其中甲基尤其优选位于酰苯胺基团[参见上文式(I)]的3-位。
- R 还优选代表三氟甲基, 其中三氟甲基尤其优选位于酰苯胺基团[参见上文式(I)]的4-或5-位。
- L 优选代表直接键, 或优选代表任选地被卤素取代的直链或带支链的 C_1-C_6 -亚烷基、 C_2-C_6 -亚烯基或 C_2-C_6 -亚炔基。
- L 尤其优选代表直接键, 或代表 $-CH_2-$ 、 $-(CH_2)_2-$ 、 $-(CH_2)_3-$ 、 $-CH(Me)-$ (即 $-CH(甲基)-$)、 $-CH(Me)CH_2-$ 、 $-CH_2CH(Me)-$ 、 $-CH(Me)CH(Me)-$ 、 $-C(Me)_2CH_2-$ 、 $-CH(Me)-(CH_2)_2-$ 、 $-CH(Me)-(CH_2)_3-$ 、 $-CH=CH-$ 、 $-C(Me)=CH-$ 或 $-C\equiv C-$ 。
- L 特别尤其优选代表 $-(CH_2)_2-$ 、 $-(CH_2)_3-$ 、 $-CH(Me)-$ 、 $-CH(Me)CH_2-$ 、 $-CH(Me)-(CH_2)_2-$ 、 $-CH(Me)-(CH_2)_3-$ 、 $-CH=CH-$ 、 $-C(Me)=CH-$ 或 $-C\equiv C-$ 。

R^1 和 R^2 相互独立, 优选代表 C_1-C_6 -烷基、 C_1-C_6 -烷氧基、 C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基或 C_1-C_3 -烷硫基- C_1-C_3 -烷基。

R^1 和 R^2 相互独立, 尤其优选代表甲基、乙基、甲氧基、乙氧基、甲氧基甲基、乙氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基乙基、甲硫

基甲基、乙硫基甲基、甲硫基乙基或乙硫基乙基。

R^1 和 R^2 相互独立，特别尤其优选代表甲基、甲氧基、甲氧基甲基或甲硫基甲基。

R^1 和 R^2 分别最优选代表甲基。

R^3 优选代表 C_1-C_6 -烷基、 C_1-C_6 -烷氧基、 C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基、 C_1-C_3 -烷硫基- C_1-C_3 -烷基、 C_3-C_6 -环烷基、苯基或苄基。

R^3 尤其优选代表甲基、乙基、正或异丙基、正、仲、异或叔丁基、甲氧基、乙氧基、正或异丙氧基、正、仲、异或叔丁氧基、甲氧基甲基、乙氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基乙基、甲硫基甲基、乙硫基甲基、甲硫基乙基、乙硫基乙基、环丙基、苯基或苄基。

R^3 特别尤其优选代表甲基、乙基、正或异丙基、异或叔丁基、甲氧基、异丙氧基、异或叔丁氧基、甲氧基甲基、甲硫基甲基或苯基。

R^3 最优选代表甲基、乙基、正或异丙基、异或叔丁基、甲氧基、异丙氧基、异或叔丁氧基。

R^3 进一步最优选代表甲基。

R^4 优选代表氢、 C_1-C_6 -烷基、 C_1-C_4 -烷基亚磺酰基、 C_1-C_4 -烷基磺酰基、 C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基、 C_3-C_6 -环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1-C_4 -卤代烷基、 C_1-C_4 -卤代烷硫基、 C_1-C_4 -卤代烷基亚磺酰基、 C_1-C_4 -卤代烷基磺酰基、卤代- C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基、 C_3-C_6 -卤代环烷基，甲酰基、甲酰基- C_1-C_3 -烷基、(C_1-C_3 -烷基)羰基- C_1-C_3 -烷基、(C_1-C_3 -烷氧基)羰基- C_1-C_3 -烷基，分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C_1-C_3 -烷基)羰基- C_1-C_3 -烷基、卤代-(C_1-C_3 -烷氧基)羰基- C_1-C_3 -烷基，

(C_1-C_6 -烷基)羰基、(C_1-C_4 -烷氧基)羰基、(C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基)羰基、(C_3-C_6 -环烷基)羰基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的(C_1-C_4 -卤代烷基)羰基、(C_1-C_4 -卤代烷氧基)羰基、(卤代- C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基)羰基、(C_3-C_6 -卤代环烷基)羰基，或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或

$-\text{CH}_2\text{NR}^8\text{R}^9$ 。

R^4 尤其优选代表氢、甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基、戊基、己基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正或异丙基亚磺酰基、正、异、仲或叔丁基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正或异丙基磺酰基、正、异、仲或叔丁基磺酰基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基、三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、二氟甲硫基、二氟氯甲硫基、三氟甲硫基、三氟甲基亚磺酰基、三氟甲基磺酰基、三氟甲氧基甲基、甲酰基、
 $-\text{CH}_2-\text{CHO}$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CHO}$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CH}_3$ 、
 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}-\text{CH}_3$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CH}_3$ 、
 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 、
 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CH}_3$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 、
 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CF}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CCl}_3$ 、
 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CF}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CCl}_3$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CF}_3$ 、
 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CCl}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CF}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$ 、
 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CCl}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}_2-\text{CCl}_2\text{CCl}_3$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CF}_3$ 、
 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CCl}_3$ 、 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CO}_2\text{CCl}_2\text{CCl}_3$ ，
 甲基羰基、乙基羰基、正丙基羰基、异丙基羰基、叔丁基羰基、甲氧基羰基、乙氧基羰基、叔丁氧基羰基、环丙基羰基、三氟甲基羰基、三氟甲氧基羰基、或 $-\text{C}(=\text{O})\text{C}(=\text{O})\text{R}^5$ 、 $-\text{CONR}^6\text{R}^7$ 或 $-\text{CH}_2\text{NR}^8\text{R}^9$ 。

R^4 特别尤其优选代表氢、甲基、甲氧基甲基、甲酰基、 $-\text{CH}_2-\text{CHO}$ 、
 $-(\text{CH}_2)_2-\text{CHO}$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{CH}_2-\text{CO}-\text{CH}(\text{CH}_3)_2$ 、
 $-\text{C}(=\text{O})\text{CHO}$ 、 $-\text{C}(=\text{O})\text{C}(=\text{O})\text{CH}_3$ 、 $-\text{C}(=\text{O})\text{C}(=\text{O})\text{CH}_2\text{OCH}_3$ 、
 $-\text{C}(=\text{O})\text{CO}_2\text{CH}_3$ 、 $-\text{C}(=\text{O})\text{CO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$ 。

R^4 最优选代表氢。

R^5 优选代表氢、 C_1 - C_6 -烷基、 C_1 - C_4 -烷氧基、 C_1 - C_3 -烷氧基- C_1 - C_3 -烷基、 C_3 - C_6 -环烷基，分别具有1至9个氟、氯和/或溴原子的 C_1 - C_4 -卤代烷基、 C_1 - C_4 -卤代烷氧基、卤代- C_1 - C_3 -烷氧基- C_1 - C_3 -烷基、 C_3 - C_6 -卤代环烷基。

R^5 尤其优选代表氢、甲基、乙基、正或异丙基、叔丁基、甲氧基、乙氧基、正或异丙氧基、叔丁氧基、甲氧基甲基、环丙基、三氟甲基、三氟甲氧基。

R^6 和 R^7 相互独立，各自优选代表氢、 C_1 - C_6 -烷基、 C_1 - C_3 -烷氧基- C_1 - C_3 -烷基、 C_3 - C_6 -环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1 - C_4 -卤代烷基、卤代- C_1 - C_3 -烷氧基- C_1 - C_3 -烷基、 C_3 - C_6 -卤代环烷基。

R^6 和 R^7 还和与它们相连的氮原子一起优选形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环，所述杂环任选由选自卤素或 C_1 - C_4 -烷基的相同或不同的取代基单取代至四取代，其中，杂环还可另外含有 1 或 2 个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子。

R^6 和 R^7 相互独立，尤其优选代表氢、甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基，三氟甲基、三氟乙基、三氟甲氧基甲基。

R^6 和 R^7 还尤其优选和与它们相连的氮原子一起形成选自吗啉、硫代吗啉 (thiomorpholine) 和哌嗪的饱和杂环，所述杂环任选由选自氟、氯、溴或甲基的相同或不同的取代基单取代至四取代，其中，哌嗪可在第二个氮原子上被 R^{10} 取代。

R^8 和 R^9 相互独立，优选代表氢、 C_1 - C_6 -烷基、 C_3 - C_6 -环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C_1 - C_4 -卤代烷基、 C_3 - C_6 -卤代环烷基。

R^8 和 R^9 还和与它们相连的氮原子一起优选形成具有 5 或 6 个环原子的饱和杂环，所述杂环任选由选自卤素或 C_1 - C_4 -烷基的相同或不同的取代基单取代或多取代，其中，杂环还可另外含有 1 或 2 个选自氧、硫和 NR^{10} 的不相邻的杂原子。

R^8 和 R^9 相互独立，尤其优选代表氢、甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基，三氟甲基、三氟乙基、三氟甲氧基甲基。

R^8 和 R^9 还尤其优选和与它们相连的氮原子一起形成选自吗啉、硫代吗啉和哌嗪的饱和杂环，所述杂环任选由选自氟、氯、溴或甲基的相同或不同的取代基单取代至四取代，其中，哌嗪可在第二个氮原子上被 R^{10} 取代。

R^{10} 优选代表氢或 C_1 - C_4 -烷基。

R^{10} 尤其优选代表氢、甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基。

A 优选代表上述 A1、A2、A5 或 A7 基团中的一种。

A 还优选代表 A6、A10 或 A11。

A 尤其优选代表 A1 基团。

A 还尤其优选代表基团 A2。

A 还尤其优选代表基团 A5。

A 还尤其优选代表基团 A6。

A 还尤其优选代表基团 A7。

A 还尤其优选代表基团 A10。

A 还尤其优选代表基团 A11。

R^{11} 优选代表氢、氟、氯、溴、碘、羟基、氰基、 C_1 - C_4 -烷基、分别具有 1 至 5 个氟、氯和/或溴原子的 C_1 - C_2 -卤代烷基、 C_1 - C_2 -卤代烷氧基或 C_1 - C_2 -卤代烷硫基。

R^{11} 尤其优选代表氢、氟、氯、溴、碘、羟基、氰基、甲基、乙基、正丙基、异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基、叔丁基、二氟甲基、三氟甲基、二氟氯甲基、三氯甲基、三氟甲氧基、二氟甲氧基、二氟氯甲氧基、三氯甲氧基、三氟甲硫基、二氟甲硫基、二氟氯甲硫基或三氯甲硫基。

R^{11} 特别尤其优选代表氢、氟、氯、溴、碘、甲基、二氟甲基、三氟甲基或三氯甲基。

R^{11} 最优选代表氯、溴、碘、甲基、二氟甲基或三氟甲基。

R^{12} 优选代表碘。

- R¹² 还优选代表氯。
- R¹² 还优选代表二氯甲基。
- R¹³ 优选代表甲基、乙基或具有 1 至 5 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₂-卤代烷基。
- R¹³ 尤其优选代表甲基、乙基、三氟甲基、二氟甲基、二氟氯甲基或三氯甲基。
- R¹³ 特别尤其优选代表甲基、三氟甲基、二氟甲基或三氯甲基。
- R¹⁴ 优选代表甲基、乙基或具有 1 至 5 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₂-卤代烷基。
- R¹⁴ 尤其优选代表甲基、乙基、三氟甲基、二氟甲基、二氟氯甲基或三氯甲基。
- R¹⁴ 特别尤其优选代表甲基、三氟甲基、二氟甲基或三氯甲基。
- R¹⁴ 最优选代表甲基或三氟甲基。
- R¹⁵ 优选代表氢、氟、氯、溴、甲基、乙基或具有 1 至 5 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₂-卤代烷基。
- R¹⁵ 尤其优选代表氢、氟、氯、溴、甲基或三氟甲基。
- R¹⁶ 优选代表氟、氯、溴、碘、羟基、C₁-C₄-烷基、甲氧基、乙氧基、甲硫基、乙硫基、二氟甲硫基、三氟甲硫基，具有 1 至 5 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₂-卤代烷基或 C₁-C₂-卤代烷氧基。
- R¹⁶ 尤其优选代表氟、氯、溴、碘、甲基、乙基、正丙基、异丙基、正丁基、异丁基、仲丁基、叔丁基、三氟甲基、二氟甲基、二氟氯甲基、三氯甲基。
- R¹⁶ 特别尤其优选代表氟、氯、溴、碘、甲基、三氟甲基、二氟甲基或三氯甲基。
- R¹⁷ 优选代表甲基、乙基、正丙基或异丙基。
- R¹⁷ 尤其优选代表甲基或乙基。

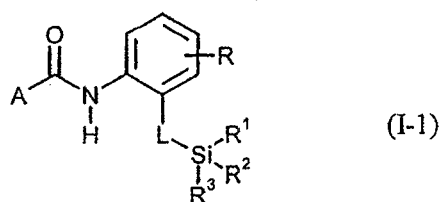
X 优选代表 O (氧)。

X 还优选代表 S (硫)。

R¹⁸ 优选代表碘。

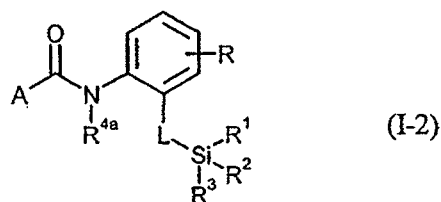
R¹⁸ 还优选代表甲基。

还强调式 (I-1) 的化合物



其中 R、L、R¹、R²、R³ 和 A 的定义如上。

还强调式 (I-2) 的化合物



其中 R、L、R¹、R²、R³、R^{4a} 和 A 的定义如上。

R^{4a} 优选代表 C₁-C₆-烷基、C₁-C₄-烷基亚磺酰基、C₁-C₄-烷基磺酰基、C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₆-环烷基，分别具有 1 至 9 个氟、氯和/或溴原子的 C₁-C₄-卤代烷基、C₁-C₄-卤代烷基硫基、C₁-C₄-卤代烷基亚磺酰基、C₁-C₄-卤代烷基磺酰基、卤代-C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基、C₃-C₈-卤代环烷基，甲酰基、甲酰基-C₁-C₃-烷基、(C₁-C₃-烷基)羰基-C₁-C₃-烷基、(C₁-C₃-烷氧基)羰基-C₁-C₃-烷基，分别具有 1 至 13 个氟、氯和/或溴原子的卤代-(C₁-C₃-烷基)羰基-C₁-C₃-烷基、卤代-(C₁-C₃-烷氧基)羰基-C₁-C₃-烷基，

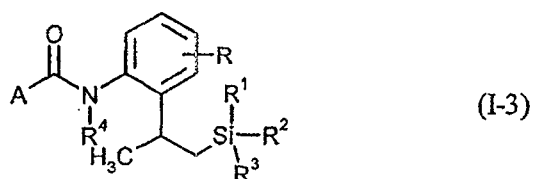
(C₁-C₆-烷基)羰基、(C₁-C₄-烷氧基)羰基、(C₁-C₃-烷氧基-C₁-C₃-烷基)羰基、(C₃-C₆-环烷基)羰基，分别具有 1 至 9

个氟、氯和/或溴原子的 (C_1-C_4 -卤代烷基) 羰基、(C_1-C_4 -卤代烷氧基) 羰基、(卤代- C_1-C_3 -烷氧基- C_1-C_3 -烷基) 羰基、(C_3-C_6 -卤代环烷基) 羰基, 或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或 $-CH_2NR^8R^9$, 其中 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 和 R^9 的定义如上。

R^{4a} 尤其优选代表甲基、乙基、正或异丙基、正、异、仲或叔丁基、戊基、己基、甲基亚磺酰基、乙基亚磺酰基、正或异丙基亚磺酰基、正、异、仲或叔丁基亚磺酰基、甲基磺酰基、乙基磺酰基、正或异丙基磺酰基、正、异、仲或叔丁基磺酰基、甲氧基甲基、甲氧基乙基、乙氧基甲基、乙氧基乙基、环丙基、环戊基、环己基、三氟甲基、三氯甲基、三氟乙基、二氟甲硫基、二氟氯甲硫基、三氟甲硫基、三氟甲基亚磺酰基、三氟甲基磺酰基、三氟甲氧基甲基、甲酰基、 $-CH_2-CHO$ 、 $-(CH_2)_2-CHO$ 、 $-CH_2-CO-CH_3$ 、 $-CH_2-CO-CH_2CH_3$ 、 $-CH_2-CO-CH(CH_3)_2$ 、 $-(CH_2)_2-CO-CH_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO-CH_2CH_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO-CH(CH_3)_2$ 、 $-CH_2-CO_2CH_3$ 、 $-CH_2-CO_2CH_2CH_3$ 、 $-CH_2-CO_2CH(CH_3)_2$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CH_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CH_2CH_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CH(CH_3)_2$ 、 $-CH_2-CO-CF_3$ 、 $-CH_2-CO-CCl_3$ 、 $-CH_2-CO-CH_2CF_3$ 、 $-CH_2-CO-CH_2CCl_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO-CH_2CF_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO-CH_2CCl_3$ 、 $-CH_2-CO_2CH_2CF_3$ 、 $-CH_2-CO_2CF_2CF_3$ 、 $-CH_2-CO_2CH_2CCl_3$ 、 $-CH_2-CO_2CCl_2CCl_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CH_2CF_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CF_2CF_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CH_2CCl_3$ 、 $-(CH_2)_2-CO_2CCl_2CCl_3$, 甲基羰基、乙基羰基、正丙基羰基、异丙基羰基、叔丁基羰基、甲氧基羰基、乙氧基羰基、叔丁氧基羰基、环丙基羰基、三氟甲基羰基、三氟甲氧基羰基、或 $-C(=O)C(=O)R^5$ 、 $-CONR^6R^7$ 或 $-CH_2NR^8R^9$, 其中 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 和 R^9 的定义如上。

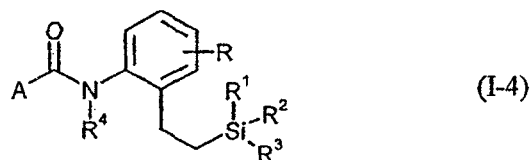
R^{4a} 特别尤其优选代表甲基、甲氧基甲基、甲酰基、 $-CH_2-CHO$ 、 $-(CH_2)_2-CHO$ 、 $-CH_2-CO-CH_3$ 、 $-CH_2-CO-CH_2CH_3$ 、 $-CH_2-CO-CH(CH_3)_2$ 、 $-C(=O)CHO$ 、 $-C(=O)C(=O)CH_3$ 、 $-C(=O)C(=O)CH_2OCH_3$ 、 $-C(=O)CO_2CH_3$ 、 $-C(=O)CO_2CH_2CH_3$ 。

还强调式 (I-3) 的化合物



其中 R 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 和 A 的定义如上。

还强调式 (I-4) 的化合物



其中 R 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 和 A 的定义如上。

饱和或不饱和的烃基，例如烷基或烯基，可分别为直链的或带支链的，在可能的情况下，还包括具有杂原子的基团，例如烷氧基。

任选被取代的基团可以是被单取代的或被多取代的，其中在多取代的情况下，取代基可以相同或不同。

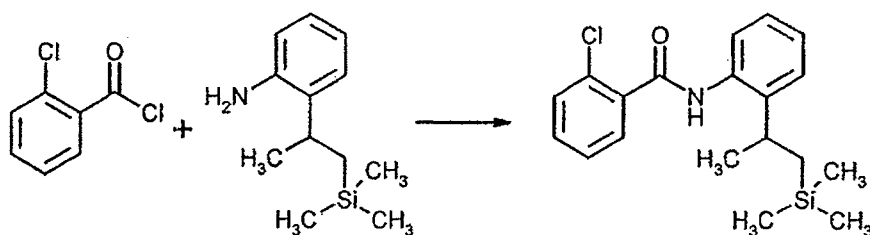
被卤素取代的基团，例如卤代烷基，是被单取代的或被多取代的。在多取代的情况下，卤素原子可以相同或不同。在此，卤素是指氟、氯、溴及碘，尤其是指氟、氯和溴。

上述总体或优选的基团定义或说明可根据需要在各自范围内及优选范围内结合。所述定义适用于最终产物，并相应地适用于前体化合物和中间产物。

方法及中间产物的说明

方法 (a)

采用例如 2-氯苯甲酰氯和 {2-[1-甲基-2-(三甲基甲硅烷基)乙基]苯基}胺作为起始原料，本发明的方法 (a) 的过程可由下式表示。



式(II)提供了用于实施本发明的方法(a)而需作为起始化合物的羧酸衍生物的总体定义。在该式(II)中, A分别优选、尤其优选以及特别尤其优选具有本发明结构式(I)化合物的有关说明中已分别提及的优选的、尤其优选的以及特别尤其优选的这些基团的定义。 X^1 优选是指氯、溴或羟基。

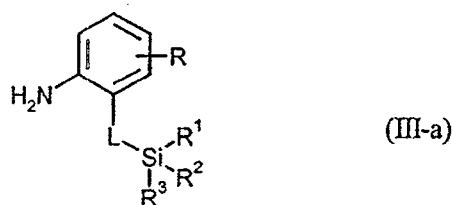
式(II)的羧酸衍生物是已知的, 并且/或者可由已知方法获得(参见 WO 93/11117、EP-A 0 545 099、EP-A 0 589 301、EP-A 0 589 313 以及 DE-A 103 25 439.0)。

式(III)提供了用于实施本发明的方法(a)而需作为起始化合物的胺的总体定义。在该式(III)中, R 、 L 、 R^1 、 R^2 、 R^3 及 R^4 分别优选、尤其优选以及特别尤其优选具有本发明结构式(I)化合物的有关说明中已分别提及的优选的、尤其优选的以及特别尤其优选的这些基团的定义。

式(III)的胺是已知的, 并且/或者可由已知方法获得(参见 WO 03/080628 以及制备例)。

其中 R^4 不代表氢的式(III)的胺例如可通过如下方式获得,

式(III-a)的胺



其中 R 、 L 、 R^1 、 R^2 及 R^3 的定义如上,

与式(VIII)的卤化物反应

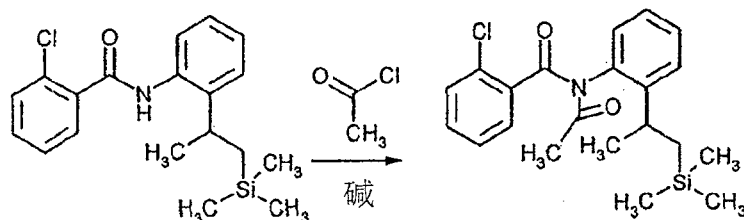


其中 X^2 和 R^{4a} 的定义如上[也相应地适用于本发明方法(b)的反应条

件]。

方法 (b)

采用 2-氯-N-[2-[1-甲基-2-(三甲基甲硅烷基)乙基]苯基]苯甲酰胺和乙酰氯作为起始原料, 本发明的方法 (b) 的过程可由下式表示。



式 (I-1) 提供了用于实施本发明的方法 (b) 而需作为起始化合物的甲硅烷基化甲酰胺的总体定义。在该式 (I-1) 中, R、L、R¹、R²、R³、R⁴ 及 A 分别优选、尤其优选以及特别尤其优选具有本发明结构式 (I) 化合物的有关说明中已分别提及的优选的、尤其优选的以及特别尤其优选的这些基团的定义。

式 (I-1) 的化合物为本发明的化合物, 可由方法 (a) 制备。

反应条件

适于实施本发明方法 (a) 的稀释剂为所有惰性有机溶剂。所述有机溶剂优选包括: 脂族烃、脂环烃或芳香烃, 例如石油醚、己烷、庚烷、环己烷、甲基环己烷、苯、甲苯、二甲苯或萘烷; 卤代烃, 例如氯苯、二氯苯、二氯甲烷、氯仿、四氯化碳、二氯乙烷或三氯乙烷; 醚, 例如二乙醚、二异丙醚、甲基叔丁基醚、甲基叔戊基醚、二噁烷、四氢呋喃、1,2-二甲氧基乙烷、1,2-二乙氧基乙烷或苯甲醚; 腈, 例如乙腈、丙腈、正或异丁腈或苄腈; 酰胺, 例如 N,N-二甲基甲酰胺、N,N-二甲基乙酰胺、N-甲基碳酰苯胺、N-甲基吡咯烷酮或六甲基磷酰三胺; 上述化合物与水或纯水的混合物。

适于实施本发明方法 (b) 的稀释剂为所有惰性有机溶剂。所述有机溶剂优选包括: 脂族烃、脂环烃或芳香烃, 例如石油醚、己烷、庚烷、环己烷、甲基环己烷、苯、甲苯、二甲苯或萘烷; 卤代烃, 例如氯苯、二氯苯、二氯甲烷、氯仿、四氯化碳、二氯乙烷或三氯乙烷; 醚, 例如

二乙醚、二异丙醚、甲基叔丁基醚、甲基叔戊基醚、二噁烷、四氢呋喃、1,2-二甲氧基乙烷、1,2-二乙氧基乙烷或苯甲醚；酰胺，例如N,N-二甲基甲酰胺、N,N-二甲基乙酰胺、N-甲基碳酰苯胺、N-甲基吡咯烷酮或六甲基磷酰三胺。

如果合适，本发明的方法(a)可在合适的酸受体存在时实施。合适的酸受体为所有常规的无机或有机碱。所述酸受体优选包括碱土金属或碱金属的氢化物、氢氧化物、氮化物、醇盐、乙酸盐、碳酸盐或碳酸氢盐，例如氢化钠、氨基钠、二异丙基氨基锂、甲醇钠、乙醇钠、叔丁醇钾、乙酸钠、乙酸钾、乙酸钙、氢氧化钠、氢氧化钾、碳酸钠、碳酸钾、碳酸氢钾、碳酸氢钠或碳酸铵，以及叔胺，例如三甲胺、三乙胺、三丁胺、N,N-二甲基苯胺、N,N-二甲基苄胺、吡啶、N-甲基哌啶、N-甲基吗啉、N,N-二甲基氨基吡啶、二氮杂双环辛烷(DABCO)、二氮杂双环壬烯(DBN)或二氮杂双环十一碳烯(DBU)。

本发明的方法(b)可在合适的碱存在时实施。合适的碱为所有常规的无机或有机碱。所述酸受体优选包括碱土金属或碱金属的氢化物、氢氧化物、氮化物、醇盐、乙酸盐、碳酸盐或碳酸氢盐，例如氢化钠、氨基钠、二异丙基氨基锂、甲醇钠、乙醇钠、叔丁醇钾、乙酸钠、乙酸钾、乙酸钙、乙酸铵、氢氧化钠、氢氧化钾、氢氧化铵、碳酸钠、碳酸钾、碳酸氢钾、碳酸氢钠或碳酸铯，以及叔胺，例如三甲胺、三乙胺、三丁胺、N,N-二甲基苯胺、N,N-二甲基苄胺、吡啶、N-甲基哌啶、N-甲基吗啉、N,N-二甲基氨基吡啶、二氮杂双环辛烷(DABCO)、二氮杂双环壬烯(DBN)或二氮杂双环十一碳烯(DBU)。

如果合适，本发明的方法(a)可在合适的缩合剂存在时实施。合适的缩合剂为所有通常用于这类酰胺化反应的缩合剂。可以提及的实例有酰卤形成剂，例如碳酰氯、三溴化磷、三氯化磷、五氯化磷、氯氧化磷或亚硫酸氯；酸酐形成剂，例如氯甲酸乙酯、氯甲酸甲酯、氯甲酸异丙酯、氯甲酸异丁酯或甲磺酰氯；碳化二亚胺，例如N,N'-二环己基碳化二亚胺(DCC)，或其他常规缩合剂，例如五氧化二磷、多磷酸、N,N'-羰基碳化二亚胺、2-乙氧基-N-乙氧基羰基-1,2-二氢喹啉(EEDQ)、三苯膦/四氯化碳或六氟磷酸溴三吡咯烷磷鎓

(bromotripyrrolidinophosphonium hexafluorophosphate)。

如果合适，本发明的方法(a)在催化剂的存在下实施。可提及的实

例有 4-二甲基氨基吡啶、1-羟基苯基三唑或二甲基甲酰胺。

当实施本发明的方法(a)时,反应温度可在较宽范围内变化。通常,该方法在 0℃至 150℃的温度下进行,优选在 0℃至 120℃的温度下进行,更优选在 10℃至 80℃的温度下进行。

当实施本发明的方法(b)时,反应温度可在较宽范围内变化。通常,该方法在 0℃至 150℃的温度下进行,优选在 20℃至 110℃的温度下进行。

实施本发明的方法(a)以制备式(I)的化合物时,通常,每摩尔式(II)的羧酸衍生物使用 0.8至 15摩尔,优选 0.8至 8摩尔的式(III)的胺,以及 1至 3摩尔的酸结合剂。

实施本发明的方法(b)时,通常,每摩尔式(I-1)的甲硅烷基化甲酰胺使用 0.2至 5摩尔,优选 0.5至 2摩尔的式(VIII)的卤化物。

除非特别指出,所有本发明的方法都在大气压下实施。然而,还可在升高或降低的压力下实施,通常在 0.1bar与 10bar之间。

本发明的物质具有有效的杀微生物活性,可在作物保护和材料保护中用于防治不想要的微生物,例如真菌和细菌。

杀真菌剂在农作物保护中用于防治根肿菌

(Plasmodiophoromycete)、卵菌(Oomycete)、壶菌(Chytridiomycete)、接合菌(Zygomycete)、子囊菌(Ascomycete)、担子菌(Basidiomycete)及半知菌(Deuteromycete)。

杀细菌剂可在农作物保护中用于防治假单胞菌

(Pseudomonadaceae)、根瘤菌(Rhizobiaceae)、Enterobacteriaceae、Corynebacteriaceae以及链霉菌(Streptomycetaceae)。

以示例而非限制的方式列举一些归入以上所列菌类的引起真菌及细菌疾病的病原体:

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

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

欧文氏(Erwinia)菌种,例如解淀粉欧文氏菌(Erwinia amylovora);

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

疫霉(Phytophthora)菌种,例如致病疫霉(Phytophthora infestans);

假霜霉 (*Pseudoperonospora*) 菌种, 例如草假霜霉 (*Pseudoperonospora humuli*) 或古巴假霜霉 (*Pseudoperonospora cubensis*);

轴霜霉 (*Plasmopara*) 菌种, 例如葡萄生轴霜霉 (*Plasmopara viticola*);

盘霜霉 (*Bremia*) 菌种, 例如莴苣盘霜霉 (*Bremia lactucae*);

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

白粉菌 (*Erysiphe*) 菌种, 例如禾谷白粉菌 (*Erysiphe graminis*);

单囊壳属 (*Sphaerotheca*) 菌种, 例如凤仙花单囊壳 (*Sphaerotheca fuliginea*);

叉丝单囊壳属 (*Podosphaera*) 菌种, 例如白叉丝单囊壳 (*Podosphaera leucotricha*);

黑星菌属 (*Venturia*) 菌种, 例如苹果黑星病菌 (*Venturia inaequalis*);

核腔菌属 (*Pyrenophora*) 菌种, 例如圆核腔菌 (*Pyrenophora teres*) 或麦类核腔菌 (*P. graminea*) (分生孢子形式: *Drechslera*, syn: *Helminthosporium*);

旋孢腔菌属 (*Cochliobolus*) 菌种, 例如禾旋孢腔菌 (*Cochliobolus sativus*) (分生孢子形式: *Drechslera*, syn: *Helminthosporium*);

单胞锈菌属 (*Uromyces*) 菌种, 例如疣顶单胞锈菌 (*Uromyces appendiculatus*);

柄锈菌 (*Puccinia*) 菌种, 例如隐匿柄锈菌 (*Puccinia recondita*);

核盘菌属 (*Sclerotinia*) 菌种, 例如核盘菌 (*Sclerotinia sclerotiorum*);

腥黑粉菌属 (*Tilletia*) 菌种, 例如小麦网腥黑粉菌 (*Tilletia caries*);

黑粉菌 (*Ustilago*) 菌种, 例如裸黑粉菌 (*Ustilago nuda*) 或燕麦黑粉菌 (*Ustilago avenae*);

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

梨孢 (*Pyricularia*) 菌种, 例如稻梨孢 (*Pyricularia oryzae*);

镰孢属 (*Fusarium*) 菌种, 例如黄色镰孢 (*Fusarium culmorum*); 葡萄孢属 (*Botrytis*) 菌种, 例如灰葡萄孢 (*Botrytis cinerea*); 壳针孢属 (*Septoria*) 菌种, 例如颖枯壳针孢 (*Septoria nodorum*); 小球腔菌属 (*Leptosphaeria*) 菌种, 例如 *Leptosphaeria nodorum*; 尾孢属 (*Cercospora*) 菌种, 例如变灰尾孢 (*Cercospora canescens*); 链格孢属 (*Alternaria*) 菌种, 例如芸薹链格孢 (*Alternaria brassicae*);

假小尾孢属 (*Pseudocercospora*) 菌种, 例如小麦基腐病菌 (*Pseudocercospora herpotrichoides*)

Rhizoctonia 菌种, 例如立枯丝核菌 (*Rhizoctonia solani*)。

本发明的活性化合物还在植物中显示出强烈的强化作用。因此, 它们适于活化植物内部的防御性能以抵抗不想要的微生物的侵袭。

在本发明中, 植物强化 (抗性诱发) 化合物应被理解为这样的物质, 它们可以刺激植物的防御系统, 从而, 当经处理的植物之后被不想要的微生物接种时, 所述植物表现出对上述微生物显著的抵抗性。

在本发明中, 不想要的微生物应被理解为植物致病真菌、细菌以及病毒。因此, 本发明的化合物可用于在处理后的某段时间内保护植物抵抗所述病原体的侵袭。所获得的保护作用的时间通常为自以活性化合物处理植物起 1 至 10 天, 优选 1 至 7 天。

本发明的活性化合物在防治植物病害所需浓度下具有的良好植物耐受性, 这就使得可对植物的地上部分、离体繁殖株 (propagation stock)、种子以及土壤进行处理。

本发明的活性化合物用于防治谷类疾病时具有特别好的效果, 例如防治柄锈菌属种 (*Puccinia*), 以及葡萄栽培和水果、蔬菜栽培中出现的疾病, 例如防治葡萄孢属种 (*Botrytis*)、黑星菌属种 (*Venturia*) 或链格孢属种 (*Alternaria*)。

本发明的活性化合物还适于提高农作物的产量。此外, 它们还表现出低毒性以及良好的植物耐受性。

如果合适, 本发明的活性化合物还可以在某些浓度和施用率下用作除草剂, 以调节植物生长, 并防治动物害虫。如果合适, 它们还可用作合成其它活性化合物的中间体或前体。

所有的植物及植物部位 (part) 均可依据本发明来处理。本发明中

植物的含义应理解为所有的植物及植物种群，例如需要的及不需要的野生植物或农作物植物（包括自然存在的农作物植物）。农作物植物可以通过常规植物育种及优选法或通过生物技术及基因工程或通过所述方法的结合而获得的植物，包括转基因植物，也包括受或不受植物种苗权保护的植物品种。植物部位的含义应理解为植物所有的地上和地下部位以及植物器官，例如芽、叶、花及根，可提及的实例为叶、针叶(needle)、茎、干、花、子实体、果实、种子、根、块茎及根茎。植物部位还包括采收物和无性及有性繁殖物，例如插条、块茎、根茎、侧枝及种子。

本发明的使用活性化合物对植物及植物部位进行的处理，依据常规处理方法直接进行或使活性化合物作用于其环境、生境或贮存区域，所述常规处理方法包括例如浸泡、喷雾、蒸发、弥雾(atomizing)、撒播、涂抹(brushing-on)，在繁殖物、特别是种子的情况下，也可涂布一层或多层。

在材料的保护中，本发明的化合物可用于保护工业材料免受不想要的微生物的侵染及破坏。

本发明中的工业材料的含义应理解为已制成准备用于工业的非活体材料。例如，拟由本发明的活性化合物保护以免受微生物改变或破坏的工业材料可为粘合剂、胶料、纸张及板材、织物、皮革、木材、漆及塑料制品、冷却润滑剂(cooling lubricant)及其它可受微生物侵染或破坏的材料。可被微生物繁殖损害的生产工厂部件，例如冷却水回路，亦在可保护材料的范围内。在本发明范围内可提及的工业材料优选为粘合剂、胶料、纸张及板材、皮革、木材、漆、冷却润滑剂及传热液体，特别尤其优选木材。

可提及的可使工业材料发生劣化或改变的微生物为，例如细菌、真菌、酵母菌、藻类及粘液生物(slime organism)。本发明的活性化合物优选作用于真菌，特别是霉菌、木材退色真菌及木腐真菌(担子菌)，以及粘液生物及藻类。

可列举以下各属的微生物作为实例：

链格孢属(*Alternaria*)，例如链格孢(*Alternaria tenuis*)，
曲霉属(*Aspergillus*)，例如黑曲霉(*Aspergillus niger*)，
毛壳菌(*Chaetomium*)，例如球毛壳菌(*Chaetomium globosum*)，
Coniophora，例如 *Coniophora puteana*，

香菇属 (*Lentinus*)，例如虎皮香菇菌 (*Lentinus tigrinus*)，青霉属 (*Penicillium*)，例如灰绿青霉 (*Penicillium glaucum*)，多孔菌 (*Polyporus*)，例如杂色多孔菌 (*Polyporus versicolor*)，短梗霉属 (*Aureobasidium*)，例如出芽短梗霉 (*Aureobasidium pullulans*)，

核茎点属 (*Sclerophoma*)，例如 *Sclerophoma pityophila*，木霉属 (*Trichoderma*)，例如绿色木霉 (*Trichoderma viride*)，埃希氏菌属 (*Escherichia*)，例如大肠埃希氏菌 (*Escherichia coli*)，

假单胞菌属 (*Pseudomonas*)，例如铜绿假单胞菌 (*Pseudomonas aeruginosa*)，

及葡萄球菌属 (*Staphylococcus*)，例如金黄色葡萄球菌 (*Staphylococcus aureus*)。

依据其具体的物理和/或化学特性，本发明的活性化合物可转化为常规制剂，例如溶液、乳剂、悬浮剂、粉剂、泡沫、膏剂、颗粒剂、气雾剂、聚合物与种子包衣 (coating) 组合物中的微胶囊剂以及 ULV 冷却与加温弥雾 (fogging) 制剂。

所述制剂以已知方式制备，例如将活性化合物与填料 (extender) 混合，即与液体溶剂、加压液化气和/或固体载体混合，同时可任选使用表面活性剂，即乳化剂和/或分散剂和/或发泡剂。如果使用的填料为水，还可使用例如有机溶剂作为辅助溶剂。适合的液体溶剂主要有：芳香族化合物，例如二甲苯、甲苯或烷基苯；氯化芳香族化合物或氯化脂肪烃，例如氯苯、氯乙烯或二氯甲烷；脂肪烃，例如环己烷或石蜡（如石油馏分）；醇，例如丁醇或乙二醇及其醚及酯；酮，例如丙酮、甲乙酮、甲基异丁基酮或环己酮；强极性溶剂，例如二甲基甲酰胺或二甲基亚砷；或水。液化气填料或载体的含义应理解为在标准温度及大气压下为气态的液体，例如气溶胶喷雾剂、例如卤代烃，或丁烷、丙烷、氮气及二氧化碳。适合的固体载体为：例如粉碎的天然矿物，例如高岭土、粘土、滑石粉、白垩、石英、凹凸棒石、蒙脱石或硅藻土；以及粉碎的合成矿物，例如高分散二氧化硅、氧化铝及硅酸盐。适用于颗粒剂的固体载体为：例如粉碎并分级的天然岩石，例如方解石、大理石、浮石、海泡石及白云石；或合成的无机及有机粉颗粒，以及有机物颗粒，例如锯木屑、

椰壳、玉米穗轴及烟草茎。适合的乳化剂和/或发泡剂为：例如非离子及阴离子乳化剂，例如聚氧乙烯脂肪酸酯、聚氧乙烯脂肪醇醚、例如烷基芳基聚乙二醇醚、烷基磺酸盐、烷基硫酸盐、芳基磺酸盐、或蛋白质水解产物。适合的分散剂为：例如木素亚硫酸盐废液及甲基纤维素。

制剂中可使用增粘剂，例如羧甲基纤维素，以及粉末、颗粒或胶乳形式的天然及合成聚合物，例如阿拉伯树胶、聚乙烯醇及聚乙酸乙烯酯，或天然磷脂，例如脑磷脂及卵磷脂，以及合成磷脂。其它添加剂可为矿物油及植物油。

可使用着色剂，例如无机颜料，例如氧化铁、氧化钛及普鲁士蓝，以及有机染料，例如茜素染料、偶氮染料及金属酞菁染料，以及微量营养物，例如铁盐、锰盐、硼盐、铜盐、钴盐、钼盐及锌盐。

制剂一般包括 0.1 至 95 重量百分比的活性化合物，优选 0.5 至 90 重量百分比。

本发明的活性化合物可以其本身或其制剂的形式使用，还可以与已知的杀真菌剂、杀细菌剂、杀螨剂、杀线虫剂或杀昆虫剂混合使用，以拓宽例如其作用谱或防止抗性的产生。在很多情况下，获得了协同效应，即混合物的活性大于单独组分的活性。

合适的混合组分有例如以下化合物：

杀真菌剂：

2-苯基苯酚、8-羟基喹啉硫酸盐、acibenzolar-S-methyl、aldimorph、amidoflumet、氨基膦酸 (ampropylfos)、氨基膦酸钾、andoprim、敌菌灵 (anilazine)、戊环唑 (azaconazole)、腈嘧菌酯 (azoxystrobin)、苯霜灵 (benalaxyl)、麦锈灵 (benodanil)、苯菌灵 (benomyl)、异丙基-benthiavalicarb、苄烯酸 (benzamacril)、异丁基苄烯酸、双丙氨基膦 (bilanafos)、乐杀螨 (binapacryl)、联苯、双苯三唑醇 (bitertanol)、灭瘟素 (blasticidin-S)、糠菌唑 (bromuconazole)、磺嘧菌灵 (bupirimate)、粉并定 (buthiobate)、丁胺、多硫化钙、卡巴西霉素 (capsimycin)、敌菌丹 (captafol)、克菌丹 (captan)、多菌灵 (carbendazim)、萎锈灵 (carboxin)、氯环丙酰胺 (carpropamid)、香芹酮 (carvone)、灭螨猛 (chinomethionat)、灭瘟唑 (chlobenthiazole)、苯咪唑菌 (chlorfenazole)、地茂散 (chloroneb)、百菌清 (chlorothalonil)、乙菌利 (chlozolinate)、

clozylacon、氰霜唑(cyazofamid)、环氟菌胺(cyflufenamid)、清菌脲(cymoxanil)、环唑醇(cyproconazole)、嘧菌环胺(cyprodinil)、酯菌胺(cyprofuram)、Dagger G、双乙氧咪唑威(debacarb)、抑菌灵(dichlofluanid)、二氯萘醌(dichlone)、双氯酚(dichlorophen)、diclocymet、哒菌清(diclomezine)、氯硝胺(dicloran)、乙霉威(diethofencarb)、噁醚唑(difenoconazole)、氟嘧菌胺(diflumetorim)、甲菌定(dimethirimol)、烯酰吗啉(dimethomorph)、dimoxystrobin、烯唑醇(diniconazole)、烯唑醇-M(diniconazole-M)、敌螨普(dinocap)、二苯胺(diphenylamine)、双吡硫翁(dipyrrithione)、灭菌磷(ditalimfos)、二氟蒽醌(dithianon)、dodine、敌菌酮(drazoxolon)、克瘟散(edifenphos)、氧唑菌(epoxiconazole)、韩乐宁(ethaboxam)、乙菌定(ethirimol)、氯唑灵(etridiazole)、噁唑酮菌(famoxadone)、咪唑菌酮(fenamidone)、菌拿灵(fenapanil)、异嘧菌醇(fenarimol)、腈苯唑(fenbuconazole)、甲呋酰苯胺(fenfuram)、环酰菌胺(fenhexamid)、种衣酯(fenitropan)、稻瘟酰胺(fenoxanil)、拌种咯(fenpiclonil)、苯锈啉(fenpropidin)、丁苯吗啉(fenpropimorph)、福美铁(ferbam)、氟啶胺(fluzinam)、flubenzimine、氟噁菌(fludioxonil)、氟联苯菌(flumetover)、氟吗啉(flumorph)、氟氯菌核利(fluoromide)、氟嘧菌酯(fluxastrobin)、喹唑菌酮(fluquinconazole)、呋嘧醇(flurprimidol)、氟硅唑(flusilazole)、磺菌胺(flusulfamide)、氟酰胺(flutolanil)、粉唑醇(flutriafol)、灭菌丹(folpet)、藻菌磷(fosetyl-Al)、藻菌磷钠(fosetyl-sodium)、麦穗宁(fuberidazole)、呋氧丙灵(furalaxyl)、呋吡唑灵(furametpyr)、灭菌胺(furcarbanil)、拌种胺(furmecyclox)、双胍盐(guazatine)、六氯苯(hexachlorobenzene)、己唑醇(hexaconazole)、土菌消(hymexazole)、烯菌灵(imazalil)、酰胺唑(imibenconazole)、双胍辛胺乙酸盐(iminoctadine triacetate)、克热净(烷苯磺酸盐)(iminoctadine tris(albesil))、iodocarb、环戊唑醇(ipconazole)、异稻瘟净(iprobenfos)、异丙定(iprodione)、缙霉威(iprovalicarb)、人间霉素(irumamycin)、稻瘟灵(isoprothiolane)、氯苯咪菌酮(isovaledione)、春雷霉素(kasugamycin)、亚胺菌(kresoxim-methyl)、代森锰锌(mancozeb)、

代森锰 (maneb)、meferimzone、噻菌胺 (mepanipyrin)、丙氧灭锈胺 (mepronil)、甲霜灵 (metalaxyl)、精甲霜灵 (metalaxyl-M)、环戊唑菌 (metconazole)、磺菌威 (methasulfocarb)、甲呋菌胺 (methfuroxam)、代森联 (metiram)、又氯苯酰胺 (metominostrobin)、噻菌胺 (metsulfovax)、米多霉素 (mildiomycin)、腈菌唑 (myclobutanil)、甲菌利 (myclozolin)、多马霉素 (natamycin)、nicobifen、异丙消 (nitrothal-isopropyl)、noviflumuron、氟苯嘧啶醇 (nuarimol)、甲呋酰胺 (ofurace)、orysastrobin、噁霜灵 (oxadixyl)、喹菌酮 (oxolinic acid)、oxpoconazole、氧化萎锈灵 (oxycarboxin)、oxyfenthiin、多效唑 (paclobutrazol)、稻瘟酯 (pefurazoate)、戊菌唑 (penconazole)、戊菌隆 (pencycuron)、双氯苯磷 (phosdiphen)、四氯苯酐 (phthalide)、啉氧菌酯 (picoxystrobin)、粉病灵 (piperalin)、多抗霉素 (polyoxins)、polyoxorim、噻菌灵 (probenazole)、丙氯灵 (prochloraz)、杀菌利 (procymidone)、百维灵 (propamocarb)、propanosine-sodium、丙环唑 (propiconazole)、丙森锌 (propineb)、proquinazid、prothioconazole、吡唑醚菌酯 (pyraclostrobin)、定菌磷 (pyrazophos)、啉斑肟 (pyrifenox)、二甲噻菌胺 (pyrimethanil)、咯嗪酮 (pyroquilon)、氯吡呋醚 (pyroxyfur)、pyrrolenitrine、唑喹菌酮 (quinconazole)、唑氧灵 (quinoxifen)、五氯硝基苯 (quintozene)、硅氟唑 (simeconazole)、螺噁茂胺 (spiroxamine)、硫、戊唑醇 (tebuconazole)、叶枯酐 (tecloftalam)、四氯硝基苯 (tecnazene)、tetcyclacis、氟醚唑 (tetraconazole)、涕必灵 (thiabendazole)、噻菌腈 (thicyofen)、溴氟唑菌 (thifluzamide)、甲基托布津 (thiophanate-methyl)、福美双 (thiram)、tioxyimid、甲基立枯磷 (tolclofos-methyl)、对甲抑菌灵 (tolyfluanid)、三唑酮 (triadimefon)、唑菌醇 (triadimenol)、丁三唑 (triazbutil)、唑菌嗪 (triazoxide)、tricyclamide、三环唑 (tricyclazole)、克啉菌 (tridemorph)、肟菌酯 (trifloxystrobin)、氟菌唑 (triflumizole)、噻氧灵 (triforine)、戊叉唑菌 (triticonazole)、烯效唑 (uniconazole)、有效霉素 A (validamycin A)、烯菌酮 (vinclozolin)、代森锌 (zineb)、福美锌 (ziram)、苯酰菌胺 (zoxamide)、(2S)-N-[2-[4-[[3-(4-氯苯

基)-2-丙炔基]氧]-3-甲氧基苯基]乙基]-3-甲基-2-[(甲基磺酰基)氨基]丁酰胺、1-(1-萘基)-1H-吡咯-2,5-二酮、2,3,5,6-四氯-4-(甲基磺酰基)吡啶、2-氨基-4-甲基-N-苯基-5-噻唑甲酰胺、2-氯-N-(2,3-二氢-1,1,3-三甲基-1H-茚-4-基)-3-吡啶甲酰胺、3,4,5-三氯-2,6-吡啶二腈、actinovate、顺-1-(4-氯苯基)-2-(1H-1,2,4-三唑-1-基)环庚醇、1-(2,3-二氢-2,2-二甲基-1H-茚-1-基)-1H-咪唑-5-羧酸甲酯、碳酸氢钾、N-(6-甲氧基-3-吡啶基)环丙烷甲酰胺、N-丁基-8-(1,1-二甲基乙基)-1-氧杂螺[4.5]癸烷-3-胺、四硫代碳酸钠；以及铜盐及其制剂，例如波尔多液、氢氧化铜、环烷酸铜、氯化铜(copper oxychloride)、硫酸铜、硫杂灵(cufraneb)、氧化铜、代森锰铜(mancopper)、喹啉铜(oxine-copper)。

杀细菌剂：

溴硝丙二醇(bronopol)、双氯酚、三氯甲基吡啶(nitrapyrin)、二甲基二硫代氨基甲酸镍(nickel-dimethyldithiocarbamate)、春雷霉素、异噻菌酮(octhilinone)、羧酸呋喃(furancarboxylic acid)、土霉素(oxytetracyclin)、噻菌灵、链霉素(streptomycin)、叶枯酞、硫酸铜和其他铜制剂。

杀昆虫剂/杀螨剂/杀线虫剂：

齐墩螨素(abamectin)、ABG-9008、高灭磷(acephate)、灭螨醌(acequinocyl)、吡虫清(acetamiprid)、乙酞虫睛(acetoprole)、氟酯菊酯(acrinathrin)、AKD-1022、AKD-3059、AKD-3088、棉铃威(alanycarb)、涕灭威(aldicarb)、砒灭威(aldoxycarb)、丙烯除虫菊(allethrin)、丙烯除虫菊 1R 异构体(allethrin 1R-isomer)、甲体氯氰菊酯(alpha-cypermethrin, alphamethrin)、amidoflumet、灭害威(aminocarb)、虫螨脒(amitraz)、阿维菌素(ivermectin)、AZ-60541、艾扎丁(azadirachtin)、唑啉磷(azamethiphos)、谷硫磷(azinphos-methyl)、乙基谷硫磷(azinphos-ethyl)、唑环锡(azocyclotin)、波林杆菌芽孢(Bacillus popilliae)、球形芽孢杆菌(Bacillus sphaericus)、柯敌克菌(Bacillus subtilis)、苏云金杆菌(Bacillus thuringiensis)、苏云金杆菌株 EG-2348、苏云金杆菌株 GC-91、苏云金杆菌株 NCTC-11821、杆状病毒(baculoviruses)、巴西安白僵菌(Beauveria bassiana)、纤细白僵菌(Beauveria tenella)、

噁虫威(bendiocarb)、丙硫克百威(benfuracarb)、杀虫磺(bensultap)、苯螨特(benzoximate)、 β -氟氯氰菊酯(beta-cyfluthrin)、乙体氯氰菊酯(beta-cypermethrin)、联苯肼酯(bifenazate)、氟氯菊酯(bifenthrin)、乐杀螨、反丙烯除虫菊(bioallethrin)、反丙烯除虫菊-S-环戊基异构体、bioethanomethrin、生物氯菊酯(biopermethrin)、右旋反灭虫菊酯(bioresmethrin)、双三氟虫脲(bistrifluron)、BPMC、brofenprox、乙基溴硫磷(bromophos-ethyl)、溴螨酯(bromopropylate)、溴苯烯磷(-甲基)(bromfenvinfos(-methyl))、BTG-504、BTG-505、合杀威(bufencarb)、噻嗪酮(buprofezin)、特密硫磷(butathiofos)、丁叉威(butocarboxim)、氧丁叉威(butoxycarboxim)、丁基吡啶酮(butylpyridaben)、硫线磷(cadusafos)、毒杀芬(camphechlor)、西维因(carbaryl)、虫螨威(carbofuran)、三硫磷(carbophenothion)、丁硫克百威(carbosulfan)、巴丹(cartap)、CGA-50439、灭螨猛(chinomethionat)、氯丹(chlordane)、杀虫脒(chlordimeform)、chloethocarb、壤虫氯磷(chlorethoxyfos)、氟唑虫清(chlorfenapyr)、毒虫畏(chlorfenvinphos)、定虫隆(chlorfluazuron)、氯甲磷(chlormephos)、乙酯杀螨醇(chlorobenzilate)、氯化苦(chloropicrin)、chlorproxifen、甲基毒死蜱(chlorpyrifos-methyl)、毒死蜱(-乙基)、chlovaporthrin、环虫酰肼(chromafenozide)、顺-氯氰菊酯、顺-灭虫菊(cis-resmethrin)、顺-氯菊酯(cis-permethrin)、功夫菊酯(clocythrins)、除线威(cloethocarb)、四螨嗪(clofentezine)、噻虫胺(clothianidin)、clothiazoben、十二碳二烯醇(codlemone)、蝇毒磷(coumaphos)、苯腈磷(cyanofenphos)、杀螟腈(cyanophos)、cycloprene、乙氰菊酯(cycloprothrin)、Cydia pomonella、氟氯氰菊酯(cyfluthrin)、(RS)氟氯氰菊酯(cyhalothrin)、三环锡(cyhexatin)、氯氰菊酯(cypermethrin)、苯醚氯菊酯(1R-反式异构体)(cyphenothrin(1R-trans isomer))、灭蝇胺(cyromazine)、DDT、溴氰菊酯(deltamethrin)、甲基一〇五九(demeton-S-methyl)、磺吸磷(demeton-S-methylsulfone)、杀螨硫隆(diafenthiuron)、氯亚磷(dialifos)、二嗪农(diazinon)、除线磷(dichlofenthion)、敌敌畏(dichlorvos)、开乐散(dicofol)、百治磷(dicrotophos)、地昔

尼尔 (dicyclanil)、氟脲杀 (diflubenzuron)、dimefluthrin、乐果 (dimethoate)、甲基毒虫畏 (dimethylvinphos)、敌螨通 (dinobuton)、敌螨普 (dinocap)、呋虫胺 (dinotefuran)、噁茂醚 (diofenolan)、乙拌磷 (disulfoton)、碘酰丁二辛 (docusat-sodium)、苯氧炔螨 (dofenapyn)、DOWCO-439、eflusilanate、埃玛菌素 (emamectin)、埃玛菌素苯甲酸盐 (emamectin-benzoate)、烯炔菊酯 (1R 异构体) (empenthrin(1R-isomer))、硫丹 (endosulphan)、虫霉属种 (Entomophthora spp.)、EPN、高氟戊菊酯 (esfenvalerate)、苯虫威 (ethiofencarb)、乙虫清 (ethiprole)、乙硫磷 (ethion)、灭克磷 (ethoprophos)、醚菊酯 (etofenprox)、特苯噁唑 (etoxazole)、氧嘧啶磷 (etrimfos)、氟磺磷 (famphur)、克线磷 (fenamiphos)、喹螨醚 (fenazaquin)、杀螨锡 (fenbutatin oxide)、五氟苯菊酯 (fenfluthrin)、杀螟松 (fenitrothion)、丁苯威 (fenobucarb)、苯硫威 (fenoithiocarb)、fenoxacrim、双氧威 (fenoxycarb)、甲氟菊酯 (fenpropathrin)、必螨立克 (fenpyrad)、吡氟氟菊酯 (fenpyrithrin)、唑螨酯 (fenpyroximate)、丰索磷 (fensulfothion)、倍硫磷 (fenthion)、氟硝二苯胺 (fentrifanil)、灭杀菊酯 (fenvalerate)、锐劲特 (fipronil)、氟啶虫酰胺 (flonicamid)、fluacrypyrim、氟啶蜱脲 (fluazuron)、噻唑螨 (flubenzimine)、溴氟菊酯 (flubrocyclothrinate)、氟螨脲 (flucyclohexuron)、氟氟戊菊酯 (flucythrinate)、flufenerim、氟虫脲 (flufenoxuron)、氟丙苄醚 (flufenprox)、氟氟苯菊酯 (flumethrin)、吡氟硫磷 (flupyrazofos)、氟替阿嗪 (flutenzin) (氟螨嗪 (flufenzine))、氟胺氟菊酯 (fluvalinate)、地虫磷 (fonofos)、伐虫脒 (formetanate)、安果 (formothion)、丁苯硫磷 (fosmethilan)、噻唑酮磷 (fosthiazate)、fubfenprox (苄螨醚 (fluproxyfen))、呋线威 (furathiocarb)、林丹 (gamma-HCH)、诱虫十六酯 (gossyplure)、诱杀烯混剂 (grandlure)、颗粒体病毒 (granulosis viruses)、卤醚菊酯 (halfenprox)、特丁苯酰肼 (halofenozide)、HCH、HCN-801、庚虫磷 (heptenophos)、氟铃脲 (hexaflumuron)、噻螨酮 (hexythiazox)、灭蚁腓 (hydramethylnone)、蒙五一二 (hydroprene)、IKA-2002、吡虫磷 (imidacloprid)、炔咪菊酯 (imiprothrin)、噁二唑虫 (indoxacarb)、碘硫磷 (iodofenphos)、异稻瘟净 (iprobenfos)、氟唑磷 (isazofos)、

丙胺磷(isofenphos)、异丙威(isoprocarb)、异噁唑啉(isoxathion)、伊维菌素(ivermectin)、japonilure、噻噁菊酯(kadethrin)、核多角体病毒(nuclear polyhedrosis virus)、蒙七七七(kinoprene)、氯氟氰菊酯(lamda-cyhalothrin)、林丹(lindane)、氟丙氧脲(lufenuron)、马拉松(malathion)、灭蚜磷(mecarbam)、甲亚砷磷(mesulfenfos)、蜗牛敌(metaldehyde)、威百亩(metam-sodium)、虫螨畏(methacrifos)、甲胺磷(methamidophos)、绿僵菌(Metharhizium anisopliae)、黄绿绿僵菌(Metharhizium flavoviride)、杀扑磷(methidathion)、灭虫威(methiocarb)、灭多虫(methomyl)、蒙五一五(methoprene)、甲氧滴滴涕(methoxychlor)、甲氧苯酰肼(methoxyfenozide)、速灭威(metolcarb)、恶虫酮(metoxadiazone)、速灭磷(mevinphos)、米尔螨素(milbemectin)、米尔倍霉素(milbemycin)、MKI-245、MON-45700、久效磷(monocrotophos)、莫昔克丁(moxidectin)、MTI-800、二溴磷(naled)、NC-104、NC-170、NC-184、NC-194、NC-196、贝螺杀(niclosamide)、烟碱(nicotine)、硝胺烯啶(nitenpyram)、硝虫噻嗪(nithiazine)、NNI-0001、NNI-0101、NNI-0250、NNI-9768、双苯氟脲(novaluron)、多氟脲(noviflumuron)、OK-5101、OK-5201、OK-9601、OK-9602、OK-9701、OK-9802、氧化乐果(omethoate)、甲氧叉威(oxamyl)、砒吸磷(oxydemeton-methyl)、玫烟色拟青霉(Paecilomyces fumosoroseus)、甲基一六〇五(parathion methyl)、一六〇五(-乙基)、氯菊酯(顺-、反-)、石油、PH-6045、苯醚菊酯(1R 反式异构体)(phenothrin(1R-trans isomer)、稻丰散(phenthoate)、三九一一(phorate)、伏杀磷(phosalone)、亚胺硫磷(phosmet)、磷胺(phosphamidon)、乙丙磷威(phosphocarb)、腈肟磷(phoxim)、胡椒基丁醚(piperonyl butoxide)、抗蚜威(pirimicarb)、虫螨磷(pirimiphos methyl)、乙基虫螨磷(pirimiphos-ethyl)、炔酮菊酯(prallethrin)、丙溴磷(profenofos)、profluthrin、猛杀威(promecarb)、丙虫磷(propaphos)、克螨特(propargite)、烯虫磷(propetamphos)、残杀威(propoxur)、丙硫磷(prothiofos)、发果(prothoate)、protrifenbute、拒嗉酮(pymetrozine)、吡唑硫磷(pyraclufos)、反灭虫菊(pyresmethrin)、除虫菊(pyrethrum)、哒螨酮(pyridaben)、啉虫丙醚(pyridalyl)、

打杀磷(pyridaphenthion)、pyridathion、嘧啶苯醚(pyrimidifen)、蚊蝇醚(pyriproxyfen)、喹噁磷(quinalphos)、灭虫菊、RH-5849、利巴韦林(ribavirin)、RU-12457、RU-15525、S-421、S-1833、杀抗松(salithion)、硫线磷(sebufos)、SI-0009、灭虫硅醚(silafluofen)、艾克敌 105 (spinosad)、螺螨酯(spirodiclofen)、螺甲螨酯(spiromesifen)、氟虫胺(sulfluramid)、硫特普(sulfotep)、乙丙硫磷(sulprofos)、SZI-121、氟胺氰菊酯(tau-fluvalinate)、双苯酰肼(tebufenozide)、吡螨胺(tebufenpyrad)、嘧丙磷(tebupirimfos)、伏虫磷(teflubenzuron)、七氟菊酯(tefluthrin)、双硫磷(temephos)、灭虫畏(temiviphos)、叔丁威(terbam)、特丁磷(terbufos)、杀虫畏(tetrachlorvinphos)、三氯杀螨砒(tetradifon)、胺菊酯(tetramethrin)、胺菊酯(1R 异构体)、杀螨好(tetrasul)、辛体氯氰菊酯(theta-cypermethrin)、噻虫啉(thiacloprid)、噻虫嗪(thiamethoxam)、蛾蝇腈(thiapronil)、thiatriphos、硫环杀(thiocyclam hydrogenoxalate)、硫双灭多威(thiodicarb)、特氟叉威(thiofanox)、甲基乙拌磷(thiometon)、杀虫双(thiosultap-sodium)、敌贝特(thuringiensin)、tolfenpyrad、氟溴氰菊酯(tralocythrin)、四溴菊酯(tralomethrin)、四氟菊酯(transfluthrin)、苯赛螨(triarathene)、唑蚜威(triazamate)、三唑磷(triazophos)、triazuron、trichlophenidine、敌百虫(trichlorfon)、杀虫隆(triflumuron)、混杀威(trimethacarb)、蚜灭多(vamidothion)、氟吡唑虫(vaniliprole)、verbutin、蜡蚧轮枝菌(*Verticillium lecanii*)、WL-108477、WL-40027、YI-5201、YI-5301、YI-5302、XMC、灭杀威(xylylcarb)、ZA-3274、己体氯氰菊酯(zeta-cypermethrin)、zolaprofos、ZXI-8901、化合物 3-甲基苯基氨基甲酸丙酯(速灭威 Z (tsumacide Z))、化合物 3-(5-氯-3-吡啶基)-8-(2,2,2-三氟乙基)-8-氮杂双环[3.2.1]辛-3-腈(CAS 注册号 185982-80-3)及相应的 3-内型异构体(CAS 注册号 185984-60-5)(参见 WO-96/37494、WO-98/25923)、以及包括有杀昆虫活性植物提取物、线虫、真菌或病毒的制剂。

还可与其他已知的活性化合物例如除草剂混合,或者与肥料和生长调节剂、安全剂和/或化学信息素混合。

此外,本发明的式(I)化合物还具有非常好的抗真菌活性。此类化

合物具有非常宽的抗真菌作用谱,特别是针对皮肤癣菌(dermatophyte)和酵母菌、霉菌和双相真菌(diphasic fungi)(例如针对念珠菌属(*Candida*)菌种、例如白色念珠菌(*Candida albicans*)、光滑念珠菌(*Candida glabrata*)),以及絮状表面癣菌(*Epidermophyton floccosum*),曲霉(*Aspergillus*)菌种、例如黑曲霉(*Aspergillus niger*)和烟曲霉(*Aspergillus fumigatus*),毛癣菌属(*Trichophyton*)菌种,例如须癣毛癣菌(*Trichophyton mentagrophytes*),小孢霉属(*Microsporon*)菌种例如犬小孢霉(*Microsporon canis*)和 *Microsporon audouinii*。所列真菌仅为说明目的,而并非限制可涵盖的真菌谱。

本发明的活性化合物可以其本身、其制剂形式或由其制备的使用形式使用,例如即用的溶液剂、悬浮剂、可湿性粉剂、膏剂、可溶性粉剂、粉末剂和颗粒剂。施用以常规方式进行,例如浇灌、喷雾、雾化、撒播(broadcasting)、喷粉、发泡、抛撒等。还可通过超低容量法(ultra-low volume method)施用活性化合物,或者将活性化合物制剂或活性化合物本身注射至土壤内。还可处理植物种子。

本发明的活性化合物用作杀真菌剂时,施用率可依据施用类型在较宽的范围内变化。对于植物部位的处理,活性化合物施用率一般为0.1至10 000 g/ha,优选10至1000 g/ha。对于拌种,活性化合物施用率一般为0.001至50 g每公斤种子,优选0.01至10 g每公斤种子。对于土壤处理,活性化合物施用率一般为0.1至10 000 g/ha,优选1至5000 g/ha。

如上所述,可依据本发明处理所有的植物或其部位。在一个优选实施方案中,处理了野生植物种和植物栽培种,或由常规生物育种方法—例如杂交或原生质体融合—获得的植物种和植物栽培种,以及所述植物种和栽培种的部位。在另一优选实施方案中,处理了由基因工程、如果合适还可与常规方法相结合而获得的转基因植物和植物栽培种(遗传修饰的生物(genetically modified organism))及其部位。术语“部位”或“植物的部位”或“植物部位”解释如上。

特别尤其优选依据本发明进行处理的植物为各自市售或使用的植物栽培种。植物栽培种的含义理解为由常规育种、诱变或重组DNA技术育种的具有新特性(“特征”)的植物。它们可以是栽培种、品种(variety)、生物型(biotype)和基因型形式。

依据植物种或植物栽培种、其种植地点和生长条件（土壤、气候、植物生长期、营养），本发明的处理也可产生超加和性（superadditive）（“协同”）效应。由此，例如，对于可按本发明使用的物质和组合物，可降低其施用率和/或加宽其作用谱和/或提高其活性，以及改善植物生长、提高高温或低温耐受性、提高干旱或水或土壤含盐量耐受性、提高开花品质、使采收更简易、加速成熟、提高产量、改善采收产品的质量、提高其营养价值、改善采收产品的贮存稳定性和/或其加工性能，这些可超过实际预期的效果。

优选的本发明处理的转基因植物或植物栽培种（即通过遗传工程获得）包括在重组修饰中接受了遗传物质的所有植物，所述遗传物质将特别有利的有用特性（“特征”）赋予所述植物。所述特性的实例有改善植物生长、提高高温或低温耐受性、提高干旱或水或土壤含盐量耐受性、提高开花品质、使采收更简易、加速成熟、提高产量、改善采收产品的质量、提高其营养价值、改善采收产品的贮存稳定性和/或其加工性能。需特别提及的所述特性的其他实例为改善植物对动物和微生物害虫的抵抗力，例如对昆虫、螨虫、植物致病真菌、细菌和/或病毒的抵抗力，以及提高植物对某些除草活性化合物的耐受性。可列举的转基因植物的实例为重要的作物植物，例如谷物（小麦、稻）、玉米、大豆、马铃薯、棉花、烟草、油菜和果树（苹果、梨、柑橘类水果以及葡萄），特别强调的为玉米、大豆、马铃薯、棉花、烟草和油菜。特别强调的特性（“特征”）为通过在植物体内形成毒素，特别是由苏云金杆菌的遗传物质（例如基因 Cry I A(a)、Cry I A(b)、Cry I A(c)、Cry II A、Cry III A、Cry III B2、Cry9c Cry2Ab、Cry3Bb 和 Cry I F 及其结合）在植物体内形成的毒素，来提高植物对昆虫、蛛形纲动物、线虫和蜗牛（slugs and snails）的抵抗力（以下简称为“Bt 植物”）。特别强调的其他特性（“特征”）为通过系统获得性抗性（SAR）、系统素、植物抗毒素、引发物和抗性基因以及相应的表达蛋白质和毒素来提高植物对真菌、细菌和病毒的抵抗力。尤其强调的特性为提高植物对某些除草活性化合物的耐受性，例如咪唑啉酮类、磺酰脲类、草甘磷（glyphosate）或 phosphinotricin（例如“PAT”基因）。赋予所需要特性（“特征”）的基因也可各自在转基因植物体内相互结合。可列举的“Bt 植物”的实例有市售的商标名称为 YIELD GARD®（例如玉米、棉花、大豆）、KnockOut®（例如玉米）、StarLink®

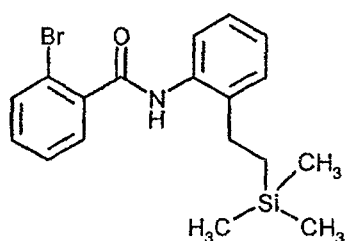
(例如玉米)、Bollgard®(棉花)、Nucotn®(棉花)和 NewLeaf®(马铃薯)的玉米品种、棉花品种、大豆品种和马铃薯品种。可列举的具有除草剂耐受性的植物的实例有市售的商标名称为 Roundup Ready®(具有草甘磷耐受性,例如玉米、棉花、大豆)、Liberty Link®(具有 phosphinotricin 耐受性,例如油菜)、IMI®(具有咪唑啉酮耐受性)和 STS®(具有磺酰脲耐受性,例如玉米)的玉米品种、棉花品种和大豆品种。可列举的具有除草剂抗性的植物(以常规的除草剂耐受性方式育种的植物)还包括名称为 Clearfield®的市售品种(例如玉米)。当然,以上叙述也适用于具有所述的或待开发的基因特性(“特征”)的植物栽培种,所述植物栽培种将在未来进行开发和/或上市。

特别有利地,所列出的植物可依据本发明用本发明的通式(I)化合物或活性化合物混合物进行处理。上述活性化合物或混合物的优选范围也适用于所述植物的处理。特别强调的为用本发明特别提及的化合物或混合物对植物进行处理。

本发明活性化合物的制备方法和应用由以下实施例阐述。

制备实施例

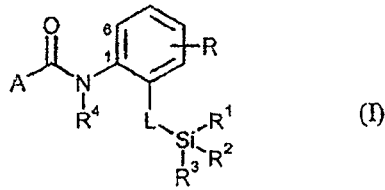
实施例 1



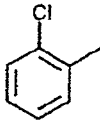
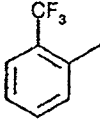
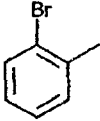
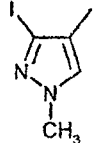
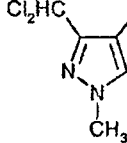
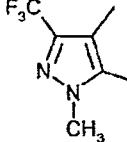
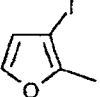
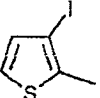
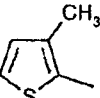
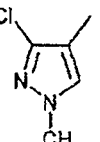
将 425mg (2.2mmol) 的 2-(2-(2-(2-三甲基甲硅烷基乙基)苯基)苯基)苯甲酰胺和 438mg (2.0mmol) 的 2-溴-苯甲酰氯溶于 20ml 的乙腈中,并添加 332mg (2.4mmol) 的碳酸钾。室温下搅拌反应混合物 18 小时,然后添加 20ml 的水,以乙酸乙酯萃取混合物,用硫酸钠干燥萃取液。去除溶剂,硅胶 60 (流动相: 二氯甲烷) 柱色谱净化得到 405mg (理论值的 54%) 的 2-溴-N-[2-(2-(2-三甲基甲硅烷基乙基)苯基)苯基]苯甲酰胺 [$\log P$ (pH2.3) = 4.32]。

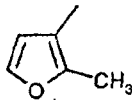
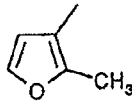
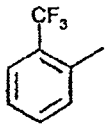
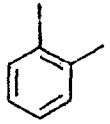
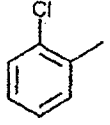
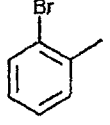
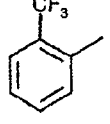
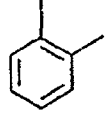
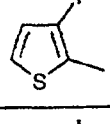
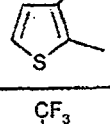
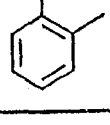
列于下表 1 的式 (I) 的化合物也类似实施例 1 并依据本发明中总体说明的制备方法 (a) 和 (b) 而得到。

表 1



实施例 编号	R	L	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	A	logP
2	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.67
3	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.63
4	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.40

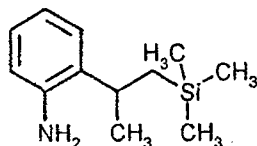
实施例 编号	R	L	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	A	logP
5	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.29
6	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.37
7	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.58
8	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.68
9	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.95
10	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.19
11	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.73
12	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		5.05
13	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.43
14	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.89
15	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.94

实施例 编号	R	L	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	A	logP
16	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.03
17	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.33
18	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.78
19	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.97
20	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.96
21	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.93
22	4-F	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.61
23	4-F	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.64
24	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.85
25	4-F	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.79
26	4-F	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.39

标有(*)的键与苯胺基团连接, 标有(#)的键与硅取代基相连。

式 (III) 的起始原料的制备

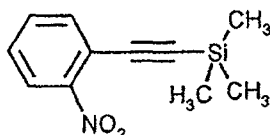
实施例 (III-1)



将 17.7g 的苯胺 (0.19mol)、50g 的烯丙基三甲基硅烷 (0.44mol)、1.5g 的三氯化铝 (0.01mol) 以及 0.5g 的铝粉 (0.02mol) 混合并在高压釜中、255℃ 下搅拌 10 小时。冷却至室温后, 先添加 100ml 的甲苯, 再添加 40ml 40% 浓度的 NaOH 水溶液及 100ml 的水, 并且在 35℃ 下搅拌混合物 15 分钟。冷却后, 以甲苯萃取混合物, 用水洗涤萃取液并以碳酸钾干燥, 减压去除溶剂。分馏 (55℃-60℃, 0.08mbar) 得到 1.4g 的 2-(1-甲基-2-三甲基甲硅烷基乙基) 苯胺 [$\log P$ (pH2.3) = 3.05]。

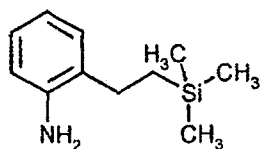
实施例 (III-2)

步骤 1



氩气氛下, 先将 4g (20mmol) 的邻溴代硝基苯、842mg (1.2mmol) 的氯化二(三苯膦)钯(II)及 230mg (1.2mmol) 的碘化铜(I)通入 40ml 的三乙胺中。然后, 在室温下, 10 分钟内滴加 2.95g (30mmol) 的三甲基甲硅烷基乙炔, 室温下将混合物搅拌 2 天。将反应混合物倒入 50ml 水中, 并以分别以 50ml 的二乙醚萃取三次, 萃取液以硫酸钠干燥并浓缩。硅胶 60 (流动相: 环己烷/乙酸乙酯 3: 1) 柱色谱净化得到 4.2g (理论值的 96%) 的三甲基-(2-硝基苯乙炔基)硅烷 [$\log P$ (pH2.3) = 4.12]。

步骤 2



将 10.9g (50mmol) 的三甲基-(2-硝基苯基乙炔基)硅烷溶于 200ml 的甲醇中, 并添加 0.5g 的碳载钯 (palladium-on-carbon) (5%)。然后, 混合物在高压釜中、4bar 下, 氢化 12 小时。去除溶剂, 硅胶 60 (流动相: 二氯甲烷) 柱色谱净化得到 4.1g 的 2-(2-三甲基甲硅烷基乙基)苯胺 [$\log P$ (pH2.3) = 2.58]。

给出的 $\log P$ 值是依据 EEC 手册 79/831 附件 V.A8 (EEC-Directive 79/831 Annex V.A8), 在反相柱 (C18) 上通过 HPLC (高效液相色谱法) 确定的。温度: 43°C。

用于酸性范围 (pH2.3) 内确定的流动相: 0.1% 的含水磷酸、乙腈; 线性梯度从 10% 的乙腈至 90% 的乙腈。

采用 $\log P$ 值已知的无支链的烷基-2-酮 (带有 3 至 16 个碳原子) 进行校正 (用保留时间通过两种连续烷酮之间的线性内插法来确定 $\log P$ 值)。

λ 最大值 (λ max value) 在采用 200nm 至 400nm 的 UV 光谱的色谱信号最大值中确定。

应用实施例

实施例 A

黑星菌属测试 (苹果) / 保护

溶剂: 24.5 重量份的丙酮

24.5 重量份的二甲基乙酰胺

乳化剂: 1 重量份的烷基芳基聚乙二醇醚

为了制备合适的活性化合物的制剂, 将 1 重量份的活性化合物与上述用量的溶剂及乳化剂混合, 并将浓液以水稀释至所需浓度。

为了测试保护活性, 以所述施用率将活性化合物制剂喷洒至幼小植物上。喷洒层干燥后, 将苹果霉菌病原体苹果黑星病菌 (Venturia

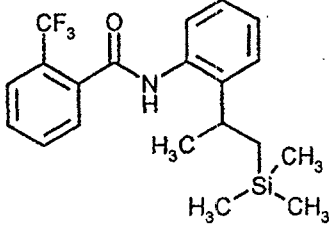
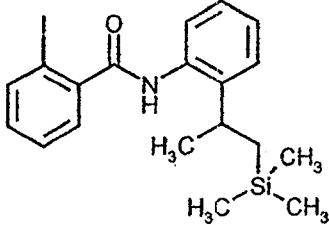
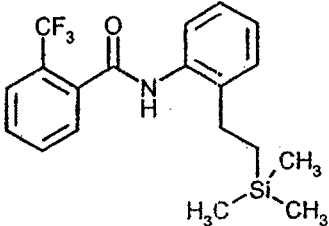
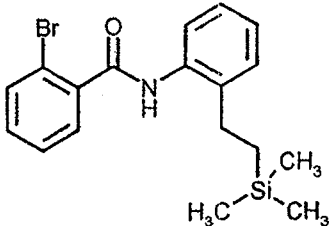
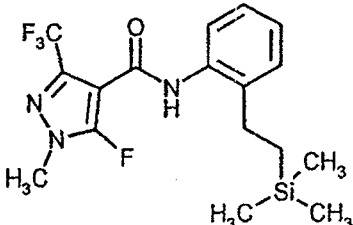
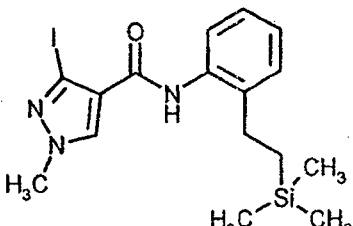
inaequalis) 的含水分生孢子悬液接种于该植物上, 然后在约 20℃、大气相对湿度约 100%的培养室继续放置一天。

然后将该植物放置到约 21℃、大气相对湿度约 90%的温室中。

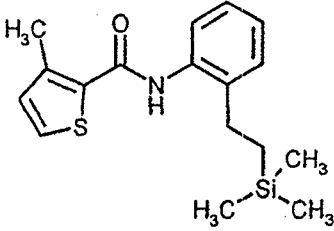
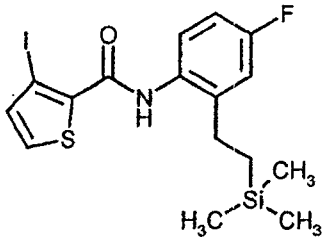
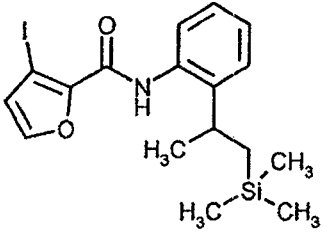
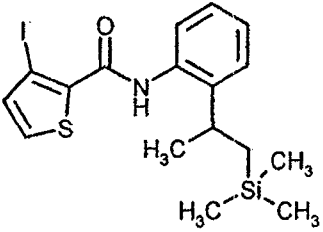
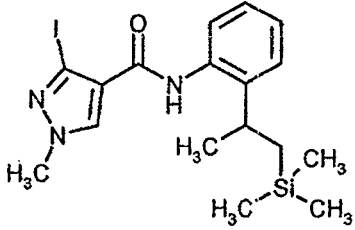
接种后 10 天进行评估。0%表示相当于对照样的药效, 100%表示未观察到侵染。

表 A

黑星菌属测试 (苹果) / 保护

本发明的活性化合物	活性化合物的 施用率 (g/ha)	药效 (%)
	100	99
	100	100
	100	84
	100	87
	100	100
	100	100

黑星菌属测试 (苹果) / 保护

本发明的活性化合物	活性化合物的 施用率 (g/ha)	药效 (%)
	100	100
	100	100
	100	100
	100	100
	100	99

实施例 B

单囊壳属 (*Sphaerotheca*) 测试 (黄瓜) / 保护

溶剂: 49 重量份的 N,N-二甲基甲酰胺

乳化剂: 1 重量份的烷基芳基聚乙二醇醚

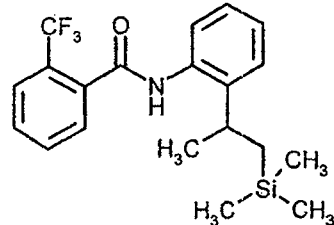
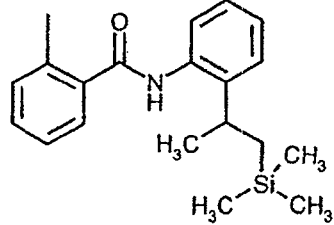
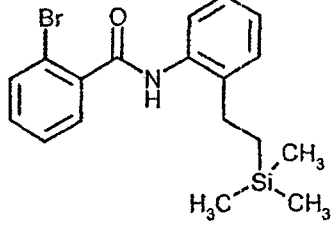
为了制备合适的活性化合物的制剂, 将 1 重量份的活性化合物与上述用量的溶剂及乳化剂混合, 并将浓液以水稀释至所需浓度。

为了测试保护活性, 以所述施用率将活性化合物制剂喷洒至幼小黄瓜植株上。处理后 1 天, 以凤仙花单囊壳 (*Sphaerotheca fuliginea*) 的孢子悬液接种该植物。然后将该植物置于大气相对湿度 70%、温度 23 °C 的温室中。

接种后 7 天进行评估。0%表示相当于对照样的药效, 100%表示未观察到侵染。

表 B

单囊壳属测试 (黄瓜) / 保护

本发明的活性化合物	活性化合物的 施用率 (g/ha)	药效 (%)
	750	100
	750	100
	750	100

实施例 C

柄锈菌 (*Puccinia*) 测试 (小麦) / 保护

溶剂: 50 重量份的 N,N-二甲基乙酰胺

乳化剂: 1 重量份的烷基芳基聚乙二醇醚

为了制备合适的活性化合物的制剂, 将 1 重量份的活性化合物与上述用量的溶剂及乳化剂混合, 并将浓液以水稀释至所需浓度。

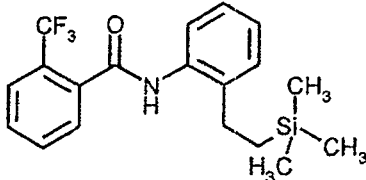
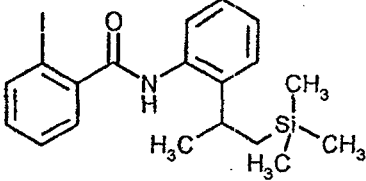
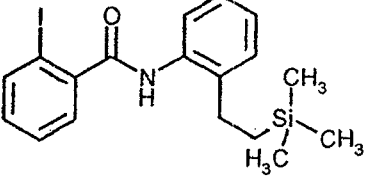
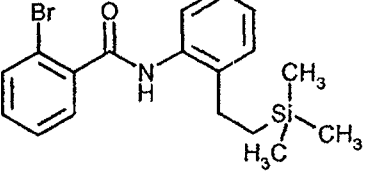
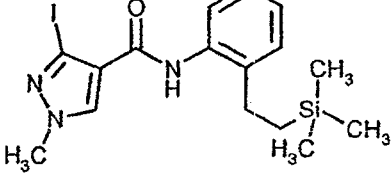
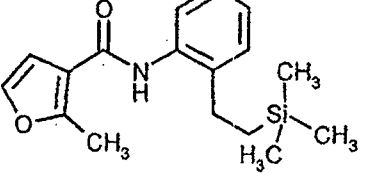
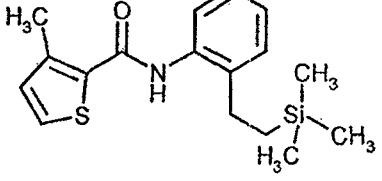
为了测试保护活性, 以所述施用率将活性化合物制剂喷洒至幼小植物上。喷洒层干燥后, 以隐匿柄锈菌 (*Puccinia recondita*) 的分生孢子悬液喷洒该植物。将该植物在 20℃、大气相对湿度 100% 的培养室继续放置 48 小时。

然后将该植物放置到温度约 20℃、大气相对湿度约 80% 的温室中, 以促进锈孢的发育。

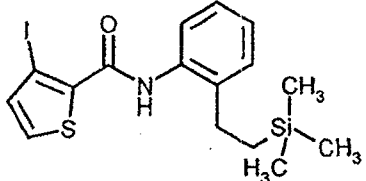
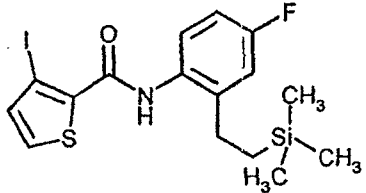
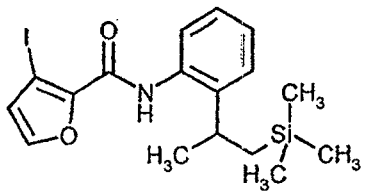
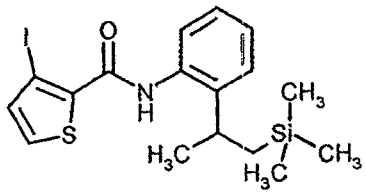
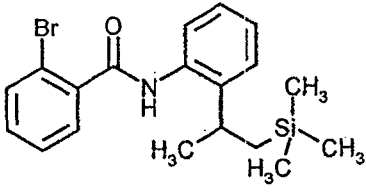
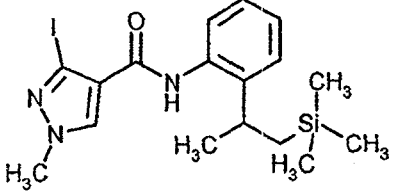
接种后 10 天进行评估。0% 表示相当于对照样的药效, 100% 表示未观察到侵染。

表 C

柄锈菌 (Puccinia) 测试 (小麦) / 保护

本发明的活性化合物	活性化合物的 施用率 (g/ha)	药效 (%)
	500	93
	500	100
	500	100
	500	100
	500	100
	500	100
	500	100

柄锈菌 (Puccinia) 测试 (小麦) / 保护

本发明的活性化合物	活性化合物的 施用率 (g/ha)	药效 (%)
	500	100
	500	100
	500	100
	500	100
	500	100
	500	100