

5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酰肼类 衍生物的合成及生物活性研究

杨光富* 刘祖明 陆爱红 庄农波

(华中师范大学农药化学研究所 武汉 430079)

摘要 以 2-巯基-5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶为起始原料,设计合成了 16 种新型的 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酰肼类衍生物,其结构均经¹H NMR、MS 及元素分析确证.通过核磁共振氢谱分析及分子力学优化,对该类化合物在溶液中的顺反异构体的化学位移进行了归属.初步生测结果表明,所合成的化合物均表现出不同程度的除草及杀菌活性,尤其是在 50×10^{-6} 浓度下所有化合物都对水稻纹枯病表现出很好的抑制效果.对化合物 **4c** 和 **4o** 活体小株实验结果表明,在光接菌后施药的处理方式下,化合物在 50×10^{-6} 和 100×10^{-6} 浓度下对水稻纹枯病的防效均优于多菌灵和井冈霉素,在 100×10^{-6} 浓度下的防效达到了 80% 以上.

关键词 1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶,酰肼,合成,顺反异构,生物活性

Syntheses and Biological Activity of 5,7-Dimethyl- 1,2,4-triazolo[1,5-a]pyrimidine-2-thioacetohydrazones

YANG Guang-Fu* LIU Zu-Ming LU Ai-Hong ZHUANG Nong-Bo

(Institute of Organic Synthesis, Central China Normal University, Wuhan, 430079)

Abstract Sixteen novel 5,7-dimethyl-1,2,4-triazolo[1,5-a]pyrimidine-2-thioacetohydrazone derivatives have been designed and synthesized based on the starting material 2-mercapto-5,7-dimethyl-1,2,4-triazolo[1,5-a]pyrimidine. All compounds synthesized are identified by ¹H NMR, MS and elemental analyses. *Cis/trans* isomers of the compounds are observed in solutions by analyzing the NMR spectroscopy and the chemical shifts of the *cis/trans* isomers are assigned by molecular mechanics method. Preliminary bioassay indicates that all the compounds display herbicidal activity to some extent and excellent fungicidal activity against *rhizoctonia solani*.

Keywords 1,2,4-triazolo[1,5-a]pyrimidine, acetohydrazone, synthesis, *cis/trans* isomers, biological activity

杂环化合物尤其是含氮杂环化合物在当今新药研制中占据着十分重要的地位.三唑并嘧啶类稠杂环衍生物由于其分子结构中同时包含了三唑及嘧啶这两类重要的活性结构单元,因而往往表现出广

泛的生物活性,既可以用于医药^[1~5]、农药^[6~10],还可以用于照相感光材料^[11,12].因此,近年来关于 1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶类衍生物的合成及生物活性的研究受到了人们的广泛关注,成为生物活性

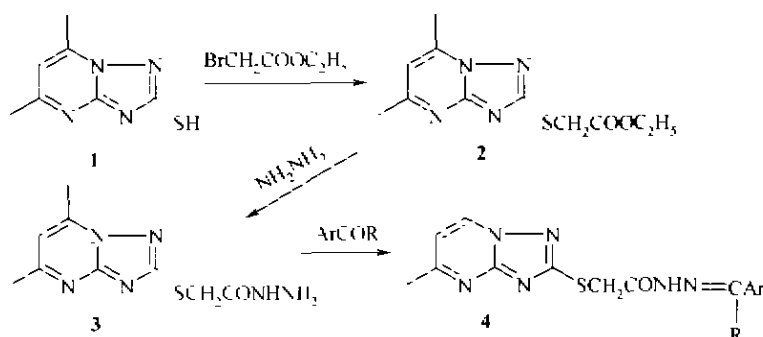
* E-mail: gfyang@ccnu.edu.cn

收稿日期:2000-08-14,修回日期:2000-11-15,定稿日期:2000-12-17,国家自然科学基金(29802002),教育部骨干教师资助计划,湖北省自然科学基金及武汉市青年科技晨光计划资助课题

(Received August 14, 2000. Revised November 15, 2000. Accepted December 17, 2000)

杂环化合物研究中的一个十分活跃的领域.为寻找具有生物活性的新型杂环衍生物,同时考虑到酰胺是一类很好的活性亚结构,我们以2-巯基-5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶为起始原料,

设计合成了16种新型的5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酰胺类衍生物,以期筛选出具有进一步修饰潜力的新型先导化合物.合成路线如下:



1 实验部分

1.1 仪器与试剂

Bruker AC-P200 型核磁共振仪(DMSO- d_6 , TMS); MT-3CHN 元素分析仪; MS 用 HP-5988A 型质谱仪,电子轰击电离. Electrothermal 数字熔点仪,温度计未经校正.所有有机试剂使用前经常规处理.2-巯基-5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶按照文献[6]方法合成, m. p. 248~249 °C (文献值 245~246 °C).

1.2 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酸乙酯的合成

将 18 g (0.1 mol) 的 2-巯基-5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶, 4.0 g (0.1 mol) 的 NaOH 及 250 mL 水加入反应瓶中, 搅拌得一澄清溶液. 滴加溶有 0.1 mol BrCH₂COOEt 的甲醇溶液 50 mL, 室温搅拌 2 h, 有大量白色固体析出, 过滤后, 用乙醇重结晶, 得 25 g 化合物 2, 产率 94%, m. p. 142~143 °C, δ_H (CDCl₃): 1.24(t, 3H, CH₃), 2.57(s, 3H, CH₃), 2.67(s, 3H, CH₃), 4.07(s, 2H, SCH₂), 4.16~4.19(d, 2H, CH₂), 6.69(s, 1H, 6-H).

1.3 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酰胺的合成

将 13.3 g (0.05 mol) 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫代乙酸乙酯及 200 mL 无水乙醇加入 250 mL 三颈瓶中, 搅拌, 再加入 40 mL (约 0.35 mol) 85% 的水合肼, 回流反应 2~4 h, 冷却后过滤, 用乙醇/丙酮重结晶, 得白色晶体 14 g, yield 93%, m. p. 201.5~203 °C, δ_H (CDCl₃): 2.55(s, 3H,

CH₃), 2.65(s, 3H, CH₃), 3.95(s, 2H, SCH₂), 4.35(bs, 2H, NH₂), 7.1(s, 1H, 6-H), 9.4(s, 1H, NH).

1.4 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酰胺类衍生物的合成

将 1.4 g (5 mmol) 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫代乙酰胺, 50 mL 无水乙醇, 6 mmol 取代苯甲醛和少量催化剂加入反应瓶中, 搅拌回流, TLC 跟踪至原料消失. 抽滤后重结晶得产品 4a~4p.

2 结果与讨论

2.1 关于产物的合成

利用 5,7-二甲基-1,2,4-三唑并[1,5-a]嘧啶-2-硫乙酰胺与取代芳香醛(酮)的亲核加成消去反应合成了 16 种目标化合物 4a~4p, 其理化常数及结构表征数据分别列于表 1 和表 2. 实验过程中我们发现, 当苯甲醛的苯环上连有推电子取代基如 OCH₃, CH₃, OH, NMe₂ 时, 反应需在催化剂冰乙酸的存在下, 才能够顺利进行, 而当苯甲醛的苯环上连有吸电子取代基如卤素, NO₂ 时, 无需催化剂反应即可顺利进行, 反应时间短, 收率高. 但当 NO₂ 位于苯甲醛的邻位时, 反应需在乙酸作催化剂的条件下回流 24 h 才能进行完全, 收率也相对较低. 此时 NO₂ 的空间位阻效应占优势, 其吸电子效应则不明显.

2.2 化合物 4a~4p 溶液中顺反异构体化学位移的归属

化合物 4a~4p 核磁共振氢谱中所有氢的信号

均为两组峰,尤其以 SCH_2 , $\text{N}=\text{CH}$, NH 信号的两组峰最为明显,说明化合物在溶液中存在 $\text{N}=\text{CH}$ 双键顺反异构现象^[13]. 为了判断顺反异构体的化学位移并进行归属,我们采用分子力学方法对顺反异构体进行了分子模拟,以化合物 **4a** 为例(见图 1), SCH_2 在顺式构型中刚好处于苯环的屏蔽区,而在反式构型中则处于苯环的去屏蔽区,因此,我们可以确定化学位移处于高场的应是顺式异构体. 这一结论可以通过比较顺反异构体的稳定性及核磁共振氢谱

中峰面积的大小得到进一步的确定. 化合物 **4a** 顺式构型的能量为 $8.4 \times 10^4 \text{ J/mol}$, 而反式构型的能量为 $7.3 \times 10^4 \text{ J/mol}$, 这说明其反式构型比顺式构型稳定. 因此在溶液中以反式构型为主. 在化合物核磁共振氢谱 SCH_2 , $\text{N}=\text{CH}$, NH 的双峰信号中峰面积较高的信号恰好处于低场, 对应于反式构型. 为此, 我们根据 SCH_2 双峰的积分比计算了化合物在溶液中顺反异构体的比例, 结果列于表 2, 从中可以看出所有化合物的顺反异构体比约为 1:2.

表 1 化合物 **4a**~**4p** 的结构及物理化学常数Table 1 Structure and physical constants of compounds **4a**~**4p**

No.	Ar	重结晶 溶剂	m. p. / °C	Yield /%	反应 时间 / h	催化剂	元素分析 (found/calcd., %)		
							C	H	N
4a	C_6H_5	乙腈/DMF	200~202	85	2	—	56.33/56.47	4.55/4.71	24.84/24.71
4b	4-F C_6H_4	乙腈/DMF	197~198	96	4	—	53.85/53.63	4.01/4.19	23.78/23.46
4c	4- $\text{CH}_3\text{OC}_6\text{H}_4$	乙腈/DMF	197~199	95	6	HAc	55.54/55.14	4.97/4.86	22.56/22.70
4d	4-Cl C_6H_4	乙腈/DMF	140~142	97	4.5	—	51.59/51.26	3.88/4.00	22.65/22.43
4e	2-Cl C_6H_4	乙腈/DMF	217~220	97	2.5	—	50.98/51.26	4.32/4.00	22.77/22.43
4f	3-Cl C_6H_4	氯仿	206~208	96	2	—	51.63/51.26	4.21/4.00	22.14/22.43
4g	2-F C_6H_4	氯仿	196~197	93	6	—	53.28/53.63	4.56/4.19	23.18/23.46
4h	4- $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4$	氯仿	202~203	94	4	HAc	57.45/57.62	5.39/5.08	23.35/23.73
4i	2- $\text{NO}_2\text{C}_6\text{H}_4$	乙腈	211~213	83	24	HAc	50.13/49.87	3.56/3.89	25.87/25.45
4j	4- HOOC_6H_4	甲醇	174~175	84	30	HAc	54.65/54.23	4.32/4.52	24.01/23.73
4k	4- $\text{NMe}_2\text{C}_6\text{H}_4$	乙腈	209~210	85	5	HAc	56.77/56.39	5.13/5.48	25.97/25.58
4l	2-F-6-Cl C_6H_3	乙腈/DMF	245~247	95	2	—	49.24/48.91	3.87/3.56	21.67/21.40
4m	3- BrC_6H_4	乙腈/DMF	217~219	74	7	—	45.46/45.82	3.79/3.58	20.35/20.04
4n	C_6H_5	乙腈	197~199	94	24	—	57.31/57.62	5.46/5.08	23.31/23.73
4o	4- $\text{NO}_2\text{C}_6\text{H}_4$	乙腈/DMF	253~255	97	5	—	49.56/49.87	4.13/3.89	25.87/25.45
4p	3- $\text{NO}_2\text{C}_6\text{H}_4$	乙腈/DMF	235~237	94	2	—	50.13/49.87	3.46/3.89	25.34/25.45

* **4a**~**4m**, **4o**~**4p**: R = H, **4n**: R = CH_3

表 2 化合物 **4a**~**4p** 的波谱数据Table 2 Spectrum data of compounds **4a**~**4p**

No.	cis/trans	$^1\text{H NMR}$ (δ , DMSO- d_6 , TMS)	MS (m/z , %)
4a	34/66	2.5(s, 3H, CH_3), 2.65(s, 3H, CH_3), 4.15(s, 2H, SCH_2), 7.18(s, 1H, 6-H), 7.45~7.75(m, 5H, Ar-H), 8.05(2s, 1H, CH), 11.7(s, 1H, NH)	340(11.4), 339(19.6), 221(52.5), 194(68.9), 193(57.6), 180(95.5), 149(45.4), 108(100), 67(68.5), 65(68.7)
4b	35/65	2.53(s, 3H, CH_3), 2.65(s, 3H, CH_3), 4.15(s, 2H, SCH_2), 7.15(s, 1H, 6-H), 7.3~7.8(2t, 4H, Ar-H), 8.05(2s, 1H, CH)	358(6.24), 357(6.93), 221(20.2), 193(26), 194(25.2), 180(43.8), 108(66.7), 31(100)
4c	33/67	2.53(s, 3H, CH_3), 2.65(s, 3H, CH_3), 3.8(s, 3H, OCH_3), 4.15(s, 2H, SCH_2), 7.0(s, 1H, 6-H), 7.1~7.7(q, 4H, Ar-H), 8.0(s, 1H, CH)	370(17.3), 221(100), 194(86.4), 193(81.7), 180(69.1), 149(52.4), 108(76.6), 77(35.4)

续表 2

No.	cis/trans	¹ H NMR ^a (δ, DMSO-d ₆ , TMS)	MS (m/z, %)
4d	37/63	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.12(s, 2H, SCH ₂), 7.09(s, 1H, 6-H), 7.46~7.73(q, 4H, Ar-H), 8.02(s, 1H, CH), 11.7(s, 1H, NH)	376(4.26), 375(7.07), 374(10.8), 221(37.5), 194(45.2), 193(38.2), 180(100), 108(58.6), 67(39)
4e	35/65	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.12(s, 2H, SCH ₂), 7.07(s, 1H, 6-H), 7.40(m, 3H, Ar-H), 7.48(m, 1H, Ar-H), 8.41(s, 1H, CH), 11.8(s, 1H, NH)	375(3.15), 374(3.17), 221(37.8), 194(82), 193(70), 180(100), 149(50.5), 108(65.7), 67(33.6)
4f	36/64	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.12(s, 2H, SCH ₂), 7.08(s, 1H, 6-H), 7.43~7.46(m, 3H, Ar-H), 7.73(s, 1H, Ar-H), 8.00(s, 1H, CH), 11.8(s, 1H, NH)	376(3.11), 375(4.69), 374(7.56), 221(23.2), 194(36.6), 193(36.4), 180(100), 149(28.5), 108(47.7), 67(33.8)
4g	33/67	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.62(s, 3H, CH ₃), 4.12(s, 2H, SCH ₂), 7.06(s, 1H, 6-H), 7.3~7.8(m, 4H, Ar-H), 8.23(s, 1H, CH), 11.8(s, 1H, NH)	358(6.14), 357(6.27), 221(42.7), 194(52.4), 193(52.9), 180(100), 149(37.6), 108(79.4), 67(43.7)
4h	36/64	2.32(s, 3H, Ar-CH ₃), 2.50(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.11(s, 2H, SCH ₂), 7.08(s, 1H, 6-H), 7.24~7.58(q, 4H, Ar-H), 7.99(s, 1H, CH), 11.6(s, 1H, NH)	354(10.4), 353(12.4), 221(75.4), 194(82.5), 193(75.7), 180(100), 149(51.1), 108(65.9), 67(29.7)
4i	35/65	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.62(s, 3H, CH ₃), 4.14(s, 2H, SCH ₂), 7.06(s, 1H, 6-H), 7.64(m, 3H, Ar-H), 8.02~8.05(m, 1H, Ar-H), 8.41(s, 1H, CH), 11.9(s, 1H, NH)	385(1.76), 384(4.39), 221(30.1), 194(67.6), 193(62.7), 180(100), 149(46.7), 108(65.5), 67(27.4)
4j	37/63	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.09(s, 2H, SCH ₂), 7.08(s, 1H, 6-H), 6.78~6.82(d, 2H, Ar-H), 7.48~7.52(d, 2H, Ar-H), 7.92~8.1(s, 1H, CH), 9.89(s, 1H, OH), 11.5(s, 1H, NH)	356(17.4), 221(94.1), 194(78.6), 193(85.8), 180(100), 149(55.5), 108(74.1), 107(41.5), 67(36.4)
4k	40/60	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.64(s, 3H, CH ₃), 2.94(s, 6H, NCH ₃), 4.08(s, 2H, SCH ₂), 7.07(s, 1H, 6-H), 6.67~6.71(d, 2H, Ar-H), 7.44~7.48(d, 2H, Ar-H), 7.88(s, 1H, CH), 11.3(s, 1H, NH)	383(100), 221(49.9), 194(16.6), 193(27.5), 180(8.06), 149(13.5), 108(26.3), 107(15), 67(17.1)
4l	28/72	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.62(s, 3H, CH ₃), 4.13(s, 2H, SCH ₂), 7.06(s, 1H, 6-H), 7.41(m, 3H, Ar-H), 8.27(s, 1H, CH), 11.8(s, 1H, NH)	394(0.71), 393(0.79), 392(1.04), 221(45.6), 194(82.4), 193(70.6), 180(86.6), 149(42.7), 108(85), 107(100), 67(47.5)
4m	35/65	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.2(s, 2H, SCH ₂), 7.07(s, 1H, 6-H), 7.38~7.40(m, 4H, Ar-H), 7.78(s, 1H, CH), 10.8(s, 1H, NH)	419(8), 418(3.48), 221(20.4), 194(40.9), 193(35.6), 180(100), 107(20.8), 67(18.2)
4n	37/63	2.47(s, 3H, CH ₃), 2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.13(s, 2H, SCH ₂), 7.07(s, 1H, 6-H), 7.37~7.57(m, 5H, Ar-H), 11.7(s, 1H, NH)	354(30.4), 353(100), 221(92), 194(38.1), 193(67.6), 180(86.8), 149(34.6), 108(61), 107(30.4), 77(46.6), 67(28.4)
4o	35/65	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.63(s, 3H, CH ₃), 4.15(s, 2H, SCH ₂), 7.07(s, 1H, 6-H), 7.91~7.95(d, 2H, Ar-H), 8.22~8.26(d, 2H, Ar-H), 8.12(s, 1H, CH), 11.8(s, 1H, NH)	385(9.5), 384(12.4), 221(9.8), 194(24.6), 193(24.7), 180(100), 149(24), 108(60.9), 107(33.4), 67(39.9)
4p	38/62	2.49(s, 3H, CH ₃), 2.64(s, 3H, CH ₃), 4.15(s, 2H, SCH ₂), 7.05(s, 1H, 6-H), 7.7(m, 1H, Ar-H), 8.08~8.14(m, 3H, Ar-H), 8.47(s, 1H, CH), 11.7(s, 1H, NH)	385(10.8), 384(3.95), 221(10.2), 194(19.6), 193(22.6), 180(100), 149(22.9), 108(44.7), 107(25.3), 67(30.6)

^a 为反式异构体数据

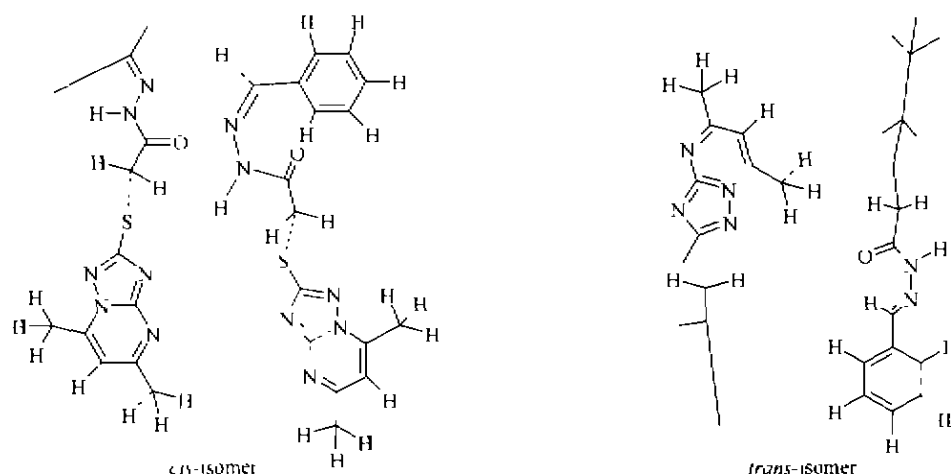


图1 化合物4a顺反异构体的三维结构

Fig.1 Three dimensional structure of *cis/trans* isomers of 4a

2.3 生物活性

对所合成的化合物进行了生物活性谱筛,结果未发现化合物具有杀虫活性,但所有化合物均表现出一定的除草活性及植物生长调节活性.分析其结构与活性关系可以看出,在苯环的间位引入体积较大的吸电子基如 NO_2 , Br 时,化合物的除草活性比较好(如化合物 4m 和 4p 在 100×10^{-6} 质量分数浓度下对油菜根长的抑制活性分别为 67% 和 55%);在苯环的邻、对位引入一个吸电子基(如 X , NO_2)或对位引

入一个供电子基(CH_3 , OCH_3)时,化合物对油菜茎的生长具有不同程度的促进作用(如化合物 4h 在 10×10^{-6} 质量分数浓度下对油菜茎生长的促进活性为 53%).此外,离体平皿法的测试结果还表明,所有化合物对棉花枯萎病菌、苹果轮纹病菌、小麦赤霉病菌及芦笋褐斑病菌没有明显的抑制活性,但化合物对水稻纹枯病菌却具有很好的抑制活性,测试结果列于表 3.为此,我们选择 4c 和 4o 为代表化合物,采用活体小株法测定了它们对水稻纹枯病的活体活性,并以多菌灵及井冈霉素为对照,结果列于表 4.

表3 化合物 4a~4p 对水稻纹枯病菌的杀菌活性(离体平皿法)

Table 3 Fungicidal activity against *Rhizoctonia solani* of compounds 4a~4p (in vitro)

No	4a	4b	4c	4d	4e	4f	4g	4h	4i	4j	4k	4l	4m	4n	4o	4p
50×10^{-6}	60	80	96	90	90	95	95	98	97	97	93	90	98	95	95	98
25×10^{-6}	0	100	95	40	60	62	80	66	100	0	90	83	95	100	100	86
10×10^{-6}	90	100	100	100	100	90	100	95	96	90	92	83	60	60	100	90

表4 活体小株法杀菌活性测试结果

Table 4 Fungicidal activity against *Rhizoctonia solani* of compounds 4c and 4o (in vivo)

处理方式	浓度 $\times 10^{-6}$	4c	4o	多菌灵	井冈霉素
先施药后接菌	50	21.9	38.5	—	55.2
	100	49.7	49.7	38.5	66.4
先接菌后施药	50	55.25	31.15	—	16.25
	100	81.55	87.15	29.75	71.90

从表 4 可以看出,在先施药后接菌的处理方式下,化合物在 100×10^{-6} 浓度下对水稻纹枯病的防效优于多菌灵但不及井冈霉素,而在先接菌后施药的处理方式下,化合物在 50×10^{-6} 和 100×10^{-6} 浓度下对水稻纹枯病的防效均优于多菌灵和井冈霉素,而且在 100×10^{-6} 浓度下的防效均达到了 80% 以上,这表明我们所设计的目标分子具有进一步结构修饰与开发的前景.有关该类化合物系统构效关系的研究工作正在进行.

致谢 华中农业大学植保系植物病理室侯明生副教授测试了化合物的杀菌活性,谨此致谢!

References

- 1 Enguchi, A.; Mimura, T.; Tomikawa, M. *JP 0 499 775*, **1992** [*Chem. Abstr.*, **1992**, 117, 150806].
- 2 Enguchi, A.; Mimura, T.; Tomikawa, M. *JP 03 118 383*, **1991** [*Chem. Abstr.*, **1991**, 115, 208011].
- 3 Ram, V. J.; Kushwaha, D. S.; Mishra, L. *Indian J. Chem. Sect. B*, **1989**, 28(B), 242.
- 4 Reiter, J.; Berecz, G.; Zsila, G. *EP 500 136*, **1992** [*Chem. Abstr.*, **1992**, 118, 234093].
- 5 Berecz, G.; Reiter, J.; Reiter, E. *EP 500 137*, **1992** [*Chem. Abstr.*, **1992**, 118, 254946].
- 6 Kleschick, W. A.; Her, R. J.; Gerwick III, B. C.; Monte, W. L.; Pearson, N. R.; Costales, M. J.; Menke, W. *EP 142 152*, **1985** [*Chem. Abstr.*, **1985**, 103, 196117].
- 7 Ringer, J. W.; Budd, J. T.; Tobey, R. E. *WO 9 511 246*, **1995** [*Chem. Abstr.*, **1995**, 123, 256754].
- 8 Tobler, H. *WO 9 316 079*, **1993** [*Chem. Abstr.*, **1994**, 120, 5455].
- 9 Kleschick, W. A.; Gerwick, B. C.; Carson, C. M. *J. Agric. Food Chem.*, **1992**, 40(6), 1083.
- 10 Kleschick, W. A.; Costales, M. J.; Dunbar, J. E. *Pestic. Sci.*, **1990**, 29(3), 341.
- 11 Okamura, H.; Kato, K. *JP 07 168 303*, **1995** [*Chem. Abstr.*, **1995**, 123, 241851].
- 12 Yoshida, K.; Kojima, Y. *JP 01 235 957*, **1989** [*Chem. Abstr.*, **1989**, 113, 31988].
- 13 Lu, Z. -M.; Chen, H. -S. *Chem. J. Chin. Univ.*, **1997**, 18, 1794(in Chinese)

(Ed. CHENG Biao)