Brønsted 酸性离子液体催化 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物的合成

刘伟华 高书涛 冯 成 臧晓欢 周 欣
马晶军 王 春*

(河北农业大学理学院 保定 071001)

摘要 以 Brønsted 酸性离子液体 3-甲基咪唑丙烷磺酸-三氟乙酸作为催化剂, 无溶剂条件下由芳香醛、乙酰乙酸乙酯和尿素合成了系列 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物. 沸水浴中反应 30~40 min, 产物产率在 81%~94% 之间. 该方法具有反应时间短、收率高、催化剂可回收重复使用等优点. 产物结构经 ^1H NMR, IR 确证.

关键词 Brønsted 酸性离子液体; 3,4-二氢嘧啶-2-酮; 合成

Synthesis of 3,4-Dihydropyrimidin-2(1H)-ones Catalyzed by Brønsted Acidic Ionic Liquid

Liu, Weihua Gao, Shutao Feng, Cheng Zang, Xiaohuan
Zhou, Xin Ma, Jingjun Wang, Chun*

(College of Science, Agricultural University of Hebei, Baoding 071001)

Abstract A series of 3,4-dihydropyrimidin-2(1H)-ones were prepared through the Biginelli condensation reactions of aromatic aldehydes, keto ester and urea catalyzed by Brønsted acidic ionic liquid 3-methyl-1-(3-sulfoethyl)-imidazolium trifluoroacetate under solvent free conditions. The method is simple, solvent free, high yields and environmental friendly. The catalyst could be recycled and reused. The reactions were carried out in boiling water bath for 30~40 min. The yields of the products were between 81%~94%. All the products have been characterized by ^1H NMR and IR spectra.

Keywords Brønsted acid-based ionic liquids; 3,4-dihydropyrimidin-2(1H)-one; synthesis

近年来, 在绿色有机合成领域中, 离子液体作为一种新兴的反应溶剂和高效的催化剂, 一直受到有机合成工作者的广泛关注^[1~4]. 因其与传统的有机溶剂相比, 具有蒸汽压近似等于零, 不易燃易爆, 具有不挥发和较高的热稳定性, 以及对许多有机和无机化合物具有良好的溶解性等优点, 已被广泛的应用到有机合成^[5]、手性拆分^[6]、提高酶水解速率^[7]等方面. 并取得了令人满意的效果.

3,4-二氢嘧啶-2-酮及其衍生物具有广泛的生物和药理活性^[8~10], 是目前药物及药物中间体合成领域的研究热点之一. 其传统合成方法是先将乙酰乙酸乙酯、芳香醛和尿素在浓盐酸催化下于乙醇中加热回流得到 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物, 存在反应时间长、收率低等缺点. 为

此, 人们不断的寻找新的高效催化剂以改进该类化合物的合成, 例如以氯化锆^[11]、溴化铟^[12]、树脂^[13]、离子液体^[14]、乙酸锰^[15]、氯化镧^[16]、硼酸^[17]、氯化铈^[18]、三氟甲烷磺酸镧^[19]、 $\text{HBF}_4\cdot\text{SiO}_2$ ^[20]、碘化镓^[21]等作催化剂合成该类物质, 这些方法虽然在一定程度上缩短了反应时间, 提高了收率, 但仍然存在催化剂用量大、有些催化剂毒性比较高等问题.

在报道了系列杂环化合物绿色合成新方法的基础上^[22], 本文以 Brønsted 酸性离子液体 3-甲基咪唑丙烷磺酸-三氟乙酸([MIMPS][OOCF₃])作催化剂, 在无溶剂、沸水浴条件下, “一锅法”合成了系列 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物(Eq. 1).

* E-mail: wangc69@yahoo.com.cn

Received September 18, 2011; revised December 3, 2011; published online January 4, 2012.

Project supported by the Natural Science Foundation of Hebei Province (No. B2011204051) and the Science and Engineering Foundation of Agricultural University of Hebei Province (No. LG201107).

河北省自然科学基金(No. B2011204051)和河北农业大学理工基金(No. LG201107)资助项目.

1 实验部分

1.1 仪器和试剂

X-4 型精密显微熔点测定仪(北京市长风仪器仪表公司, 温度计未校正); 红外光谱用 WQF-510 型红外光谱仪测定(KBr 压片); 核磁共振谱用 Bruker AVANCE 400 型核磁共振仪测定, CDCl₃ 为溶剂, TMS 为内标。

1.2 Brønsted 酸性离子液体的合成

1.2.1 3-甲基咪唑丙烷磺酸(MIMPS)的合成

在盛有 50 mL 二甲苯的三口瓶中加入 0.1 mol 1,3-丙烷磺酸内酯, 冰浴冷却下, 边搅拌边滴加 0.11 mol 3-甲基咪唑, 滴完后撤掉冰浴, 升至室温后继续搅拌 2 h, 有白色固体析出, 过滤, 用乙醚洗 2 次, 干燥, 得到 3-甲基咪唑丙烷磺酸(MIMPS)。

1.2.2 Brønsted 酸性离子液体

Brønsted 酸性离子液体按照文献[23]方法合成。在盛有 20 mL 水的圆底烧瓶中加入 0.05 mol MIMPS, 0.05 mol CF₃COOH, 60 °C 下搅拌反应 6 h, 然后减压旋转蒸发脱水 6 h, 得到无色粘稠液体[MIMPS]OOCF₃。MIMPS-对甲苯磺酸([MIMPS]OTs), [MIMPS]SO₃CH₃ 按类似方法制备。制备的离子液体的波谱数据如下:

[MIMPS]OOCF₃: ¹H NMR (400 MHz, DMSO-*d*₆) δ: 9.43 (s, 1H), 8.52 (s, 1H), 7.46 (t, *J*=1.84 Hz, 1H), 7.39 (t, *J*=1.76 Hz, 1H), 4.35 (t, *J*=7.12 Hz, 2H), 3.87 (s, 3H), 3.18 (q, *J*=7.48 Hz, 2H), 2.38~2.52 (m, *J*=7.32 Hz, 2H)。

[MIMPS]OTs: ¹H NMR (400 MHz, DMSO-*d*₆) δ: 9.52 (s, 1H), 8.42 (s, 1H), 7.51 (d, *J*=8.20 Hz, 2H), 7.42 (t, *J*=1.83 Hz, 1H), 7.34 (t, *J*=1.75 Hz, 1H), 4.33 (t, *J*=7.10 Hz, 2H), 7.18 (d, *J*=8.01 Hz, 2H), 3.85 (s, 3H), 3.17 (q, *J*=7.48 Hz, 2H), 2.36~2.48 (m, *J*=7.32 Hz, 2H), 2.2 (s, 3H)。

[MIMPS]SO₃CH₃: ¹H NMR (400 MHz, DMSO-*d*₆) δ: 9.61 (s, 1H), 8.50 (s, 1H), 7.45 (t, *J*=1.82 Hz, 1H), 7.37 (t, *J*=1.74 Hz, 1H), 4.34 (t, *J*=7.11 Hz, 2H), 3.84 (s, 3H), 3.65 (s, 3H), 3.20 (q, *J*=7.48 Hz, 2H), 2.41~2.54 (m, *J*=

7.32 Hz, 2H)。

1.3 3,4-二氢嘧啶-2-酮化合物的合成

在 50 mL 的烧瓶中依次加入 5 mmol 芳香醛(1), 5 mmol 乙酰乙酸乙酯(2), 7.5 mmol 尿素(3)和 0.5 mmol [MIMPS]OOCF₃, 沸水浴(98 °C)中加热反应, TLC 监测。待反应结束后, 加入 5 mL 蒸馏水, 冷却后抽滤, 依次用冰水、40%乙醇-水溶液洗涤, 无水乙醇重结晶, 干燥后得到 3,4-二氢嘧啶-2-酮化合物 4。滤液用乙醚萃取有机杂质后, 经减压蒸馏, 除去水分, 回收得到离子液体。3,4-二氢嘧啶-2-酮的波谱分析结果如下:

4a: ¹H NMR δ: 9.16 (s, 1H), 7.76~7.79 (m, 6H), 5.12 (s, 1H), 3.90 (q, *J*=7.3 Hz, 2H), 2.24 (s, 3H), 1.12 (t, *J*=7.3 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3410, 3232, 3100, 2940, 1703, 1638, 1678 cm⁻¹。

4b: ¹H NMR δ: 9.30 (s, 1H), 8.27 (d, *J*=8.2 Hz, 2H), 7.88 (s, 1H), 7.61 (d, *J*=8.2 Hz, 2H), 5.24 (d, *J*=2.1 Hz, 1H), 3.95 (q, *J*=7.1 Hz, 2H), 2.20 (s, 3H), 1.06 (t, *J*=7.1 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3416, 3232, 3087, 2944, 1728, 1699, 1594, 1509 cm⁻¹。

4c: ¹H NMR δ: 9.29 (s, 1H), 9.08 (s, 1H), 7.62 (s, 1H), 7.04 (d, *J*=8.2 Hz, 2H), 6.63 (d, *J*=8.2 Hz, 2H), 5.04 (d, *J*=3.1 Hz, 1H), 3.94 (q, *J*=7.1 Hz, 2H), 2.22 (s, 3H), 1.06 (t, *J*=7.1 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3280, 2983, 1685, 1638, 1509, 1227, 1100, 1022 cm⁻¹。

4d: ¹H NMR δ: 8.80 (s, 1H), 7.22 (s, 1H), 7.10~7.05 (m, 3H), 6.13~6.17 (m, 1H), 5.64 (d, *J*=2.52 Hz, 1H), 3.89 (q, *J*=7.10 Hz, 2H), 2.30 (s, 3H), 1.06 (t, *J*=7.10 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3228, 3103, 2930, 1690, 1642, 1463, 1375, 1290, 1221, 1050 cm⁻¹。

4e: ¹H NMR δ: 9.19 (s, 2H), 7.12 (s, 4H), 5.11 (d, *J*=3.0 Hz, 1H), 4.00 (q, *J*=7.5 Hz, 2H), 2.28 (s, 6H), 2.30 (s, 6H), 1.12 (t, *J*=7.5 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3220, 3100, 1720, 1700 cm⁻¹。

4f: ¹H NMR δ: 9.20 (s, 1H), 7.72 (s, 1H), 7.30 (d, *J*=8.3 Hz, 2H), 7.22 (d, *J*=8.3 Hz, 2H), 5.10 (d, *J*=3.0 Hz, 1H), 3.96 (q, *J*=7.0 Hz, 2H), 2.19 (s, 3H), 1.08 (t, *J*=7.1 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3420, 3235, 3110, 2980, 1699 cm⁻¹。

4g: ¹H NMR δ: 9.18 (s, 1H), 7.65 (s, 1H), 7.13 (d, *J*=8.4 Hz, 2H), 6.88 (d, *J*=8.4 Hz, 2H), 5.12 (d, *J*=3.2 Hz, 1H), 3.95 (q, *J*=7.3 Hz, 2H), 3.69 (s, 3H), 2.20 (s, 3H), 1.09 (t, *J*=7.3 Hz, 3H); IR (KBr) ν: 3313, 3171, 2982, 1667, 1575, 1509, 1462 cm⁻¹。

4h: ¹H NMR δ: 8.74 (s, 1H), 7.93 (s, 1H), 7.80 (d, *J*=7.93 Hz, 1H), 7.45 (d, *J*=7.53 Hz, 1H), 7.26 (t, *J*=8.1 Hz, 1H), 7.16 (s, 1H), 5.18 (d, *J*=3.3 Hz, 1H), 3.80 (q, *J*=7.4

Hz, 21H), 2.11 (s, 3H), 0.93 (t, $J=7.3$ Hz, 3H); IR (KBr) ν : 3337, 3220, 3103, 2970, 1698, 1630 cm^{-1} .

4i: ^1H NMR δ : 9.34 (s, 1H), 7.78 (s, 1H), 7.50 (s, 1H), 7.41 (d, $J=8.4$ Hz, 1H), 7.35 (d, $J=8.4$ Hz, 1H), 5.62 (s, 1H), 3.90 (q, $J=7.1$ Hz, 2H), 2.28 (s, 3H), 1.02 (t, $J=7.1$ Hz, 3H); IR (KBr) ν : 3362, 3235, 2980, 1698, 1648 cm^{-1} .

4j: ^1H NMR δ : 9.28 (s, 1H), 6.87~6.82 (m, 3H), 6.52 (s, 1H), 5.36 (s, 1H), 5.28 (s, 1H), 4.13~4.08 (m, 2H), 3.88 (s, 3H), 2.36 (s, 3H), 1.20 (t, $J=7.2$ Hz, 3H); IR (KBr) ν : 3245, 3120, 2915, 1696, 1651, 1513 cm^{-1} .

2 结果与讨论

在[MIMPS]OOCF₃的催化下, 芳香醛、乙酰乙酸乙酯和尿素经“一锅法”反应制备了系列 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物, 结果见表 1. 结果表明, 无溶剂条件下 [MIMPS]OOCF₃ 催化的 Binigelli 反应, 大大缩短了反应时间, 与传统 Binigelli 反应相比产率高, 催化剂回收处理简单, 对环境友好.

Binigelli 反应的机理通常认为是在酸的作用下醛和尿素首先生成酰基亚胺正离子, Brønsted 酸性离子液体有较大的极性和较强的酸性, 可以使羰基碳的正电性增强, 因而更有利于生成酰基亚胺正离子中间体, 进而与

乙酰乙酸乙酯作用得到开链酰脲, 再经分子内脱水环合得到 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物.

本文考察了不同的离子液体催化剂对反应的影响, 结果见表 2. 以苯甲醛、乙酰乙酸乙酯和尿素的反应为例, 分别在不加催化剂, 以[MIMPS]OOCF₃, [MIMPS]-OTs 和[MIMPS]SO₃CH₃ 为催化剂条件下反应. 结果表明在无催化剂条件下反应不能进行, 在[MIMPS]-OOCF₃ 的催化下反应的产率最高, 而[MIMPS]OTs 和 [MIMPS]SO₃CH₃ 的催化效果均不理想. 作者认为这可能是由于 CF₃ 强吸电子能力的作用, 使[MIMPS]-OOCF₃ 较后两者表现出较强的酸性, 有利于增强羰基碳的正电性, 形成酰基亚胺正离子中间体, 同时促进后续的脱水环合反应顺利进行.

在确定以[MIMPS]OOCF₃ 为催化剂的条件下, 我们对离子液体的用量做了进一步的研究, 结果如表 3. 当加入[MIMPS]OOCF₃ 为醛的 10 mol%时产率最高, 继续加大催化剂用量, 产率不再增加.

离子液体催化剂[MIMPS]OOCF₃ 的回收率为 94%, 回收得到的催化剂无变色现象, 用于催化苯甲醛的 Biginelli 反应, 重复使用 5 次其催化活性并无显著降低, 产物收率在 86%~90%之间.

表 1 酸性离子液体催化合成 3,4-二氢嘧啶-2-酮衍生物

Table 1 Synthesis of 3,4-dihydropyrimidin-2(1H)-ones catalyzed by acidic ionic liquid

Entry	Ar	Time/min	Yield/%	m.p. (found)/°C	m.p. (reported)/°C
4a	C ₆ H ₅	40	92	204.5~205.6	202~204 ^[24]
4b	4-O ₂ NC ₆ H ₄	40	89	207.4~208.6	208~211 ^[24]
4c	4-HOC ₆ H ₄	30	90	225.1~227.0	227~228 ^[24]
4d	2-ClC ₆ H ₄	30	81	214.6~215.8	216~218 ^[24]
4e	4-CH ₃ C ₆ H ₄	40	88	209.5~211.4	210~213 ^[24]
4f	4-ClC ₆ H ₄	40	92	214.4~216.5	21~214 ^[24]
4g	4-CH ₃ OC ₆ H ₄	40	92	202.4~203.3	202~204 ^[24]
4h	3-O ₂ NC ₆ H ₄	30	94	226.4~227.3	227~228 ^[24]
4i	2,4-Cl ₂ C ₆ H ₃	30	92	249.5~250.6	246~248 ^[26]
4j	3-MeO-4-HOC ₆ H ₃	40	91	231.7~232.9	231~232 ^[27]

表 2 不同催化剂对反应产率的影响^a

Table 2 Effect of different catalysts on the yields

催化剂	无	[MIMPS]OOCF ₃	[MIMPS]OTs	[MIMPS]SO ₃ CH ₃
收率/%	—	92	81	70

^a C₆H₅CHO: 10 mmol, ethyl acetoacetate: 10 mmol, urea: 15 mmol, catalyst: 1 mmol, time: 40 min.

表 3 催化剂的用量对反应产率的影响^a

Table 3 Effect of the quantity of the catalysts on the yields

催化剂的用量/mol%	0	2	5	10	15
收率/%	47	69	84	92	91

^a C₆H₅CHO: 10 mmol, ethyl acetoacetate: 10 mmol, urea: 15 mmol, time: 40 min.

References

- [1] Wasserscheid, P.; Kelm, W. *Angew Chem., Int. Ed.* **2000**, *39*, 3772.
- [2] Sheldon, R. *Chem. Commun.* **2001**, 2399.
- [3] Dupont, J.; De Souza, R. F.; Suarez, P. A. Z. *Chem. Rev.* **2002**, *102*, 3667.
- [4] Welton, T. *Chem. Rev.* **1999**, *99*, 2071.
- [5] (a) Hu, Y.; Li, H.; Kang, H.; Wei, P. *Chem. Reag.* **2006**, *28*, 341 (in Chinese).
(胡隼, 李恒, 康晖, 韦萍, 化学试剂, **2006**, *28*, 341.)
(b) Zhang, H. Z.; Jiang, Y. C.; Hu, M. C.; Li, S. N.; Zhai, Q. G. *Acta Chim. Sinica* **2011**, *69*, 1239 (in Chinese).
(张慧真, 蒋育澄, 胡满成, 李淑妮, 翟全国, 化学学报, **2011**, *69*, 1239.)
(c) Zang, H. J.; Zhang, Y.; Zang, Y. P.; Cheng, B. W.; Song, J.; Ji, K. M.; Chang, J. Q. *Acta Chim. Sinica* **2010**, *68*, 283 (in Chinese).
(臧洪俊, 张勇, 臧亚萍, 程博闻, 宋俊, 吉科猛, 常俊强, 化学学报, **2010**, *68*, 283.)
(d) Zhong, T.; Le, C. G.; Xie, Z. B.; Cao, X.; Lv, X. X. *Chin. J. Org. Chem.* **2010**, *30*, 981 (in Chinese).
(钟涛, 乐长高, 谢宗波, 曹霞, 吕雪霞, 有机化学, **2010**, *30*, 981.)
(e) Li, X. Z.; Lin, Q.; Wu, M. J. A. L. *Chin. J. Org. Chem.* **2010**, *30*, 452 (in Chinese).
(李心忠, 林棋, 吴满江·艾力, 有机化学, **2010**, *30*, 452.)
(f) Zhang, Y.; Jin, H.; You, X. W.; Shang, Z. C. *Chin. J. Org. Chem.* **2011**, *31*, 387 (in Chinese).
(张岩, 金宏, 尤心稳, 商志才, 有机化学, **2011**, *31*, 387.)
- [6] Guo, P.; Liu, J. M.; Li, X. K.; Yang, S. L.; Yao, Q. Z. *Acta Chim. Sinica* **2010**, *68*, 2619 (in Chinese).
(郭平, 刘剑敏, 李校堃, 杨树林, 姚其正, 化学学报, **2010**, *68*, 2619.)
- [7] Yuan, J. G.; Fan, X. R.; Wang, Q.; Wang, P.; Cui, L.; Zhou, L. H. *Acta Chim. Sinica* **2010**, *68*, 187 (in Chinese).
(袁久刚, 范雪荣, 王强, 王平, 崔莉, 周丽华, 化学学报, **2010**, *68*, 187.)
- [8] Atwal, K. S.; Swanson, B. N.; Unger, S. E.; Floyd, D. M.; Moreland, S.; Hedberg, A.; O'Reilly, B. C. *J. Med. Chem.* **1991**, *34*, 806.
- [9] Rovnyak, G. C.; Atwal, K. S.; Hedberg, A.; Kimball, S. D.; Moreland, S.; Gougoutas, J. Z.; O'Reilly, B. C.; Schwartz, J.; Malley, M. F. *J. Med. Chem.* **1992**, *35*, 3254.
- [10] Patil, A. D.; Kumar, N. V.; Kokkew, C.; Bean, M. F.; Freyer, A. J.; De Brosse, C.; Mai, S.; Truneh, A.; Faulkner, D. J.; Carte, B.; Breen, A. L.; Hertzberg, R. P.; Johnson, R. K.; Westley, J. W.; Potts, B. C. M. *J. Org. Chem.* **1995**, *60*, 1182.
- [11] Reddy, C. V.; Mahesh, M.; Raju, P. V. K.; Ramesh Babu, T.; Narayana Reddy, V. V. *Tetrahedron Lett.* **2002**, *43*, 2657.
- [12] Fu, N. Y.; Yuan, Y. F.; Cao, Z.; Wang, S. W.; Wang, J. T.; Peppe, C. *Tetrahedron* **2002**, *58*, 4801.
- [13] Dondoni, A.; Massi, A. *Tetrahedron Lett.* **2001**, *42*, 7975.
- [14] Peng, J.; Deng, Y. *Tetrahedron Lett.* **2001**, *42*, 5917.
- [15] Kumar, K. A.; Kasthuraiah, M.; Reddy, C. S.; Reddy, C. D. *Tetrahedron Lett.* **2001**, *42*, 7873.
- [16] Lu, J.; Bai, Y. J.; Wang, Z. J.; Yang, B. Q.; Ma, H. R. *Tetrahedron Lett.* **2000**, *41*, 9075.
- [17] Tu, S. J.; Fang, F.; Miao, C. B.; Jiang, H.; Feng, Y. J.; Shi, D. Q.; Wang, X. S. *Tetrahedron Lett.* **2003**, *44*, 6153.
- [18] Bose, D. S.; Fatima, L.; Mereyala, H. B. *J. Org. Chem.* **2003**, *68*, 587.
- [19] Ma, Y.; Qian, C.; Wang, L. M.; Yang, M. *J. Org. Chem.* **2000**, *65*, 3864.
- [20] Kamble, V. T.; Muley, D. B.; Atkore, S. T.; Dakore, S. D. *Chin. J. Chem.* **2010**, *28*, 388.
- [21] Li, D. P.; Mao, H. F.; An, L. T.; Huang, Z. H.; Zou, J. P. *Chin. J. Chem.* **2010**, *28*, 2025.
- [22] (a) Ma, J. J.; Zhou, X.; Zang, X. H.; Wang, C.; Wang, Z.; Li, J. C.; Li, Q. *Aust. J. Chem.* **2007**, *60*, 146.
(b) Wang, C.; Ma, J. J.; Zhou, X.; Zang, X. H.; Wang, Z.; Gao, Y. J.; Cui, P. L. *Synth. Commun.* **2005**, *35*, 2759.
(c) Gao, S. T.; Zhao, Y.; Li, C.; Ma, J. J.; Wang, C. *Synth. Commun.* **2009**, *39*, 2221.
(d) Wang, C.; Zhang, Y. Q.; Li, G. S.; Li, J. C.; Li, X. L. *Chin. J. Org. Chem.* **2003**, *23*, 1416 (in Chinese).
(王春, 张英群, 李贵深, 李敬慈, 李晓陆, 有机化学, **2003**, *23*, 1416.)
(e) Gao, S. T.; Liu, W. H.; Ma, J. J.; Wang, C.; Liang, Q. *Synth. Commun.* **2009**, *39*, 3278.
- [23] Tang, S. W.; Scurto, A. M.; Subramaniam, B. *J. Catal.* **2009**, *268*, 243.
- [24] Hu, E. H.; Sidler, D. R.; Dolling, U. H. *J. Org. Chem.* **1998**, *63*, 3454.
- [25] Abdol, R. H.; Leila, K.; Amina, Z. *Synth. Commun.* **2011**, *41*, 2200.
- [26] Yu, Y.; Liu, D.; Liu, C. H.; Luo, G. X. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* **2007**, *17*, 3508.
- [27] Lu, J.; Ma, H. R.; Li, W. H. *Chin. J. Org. Chem.* **2000**, *20*, 815 (in Chinese).
(路军, 马怀让, 李万华, 有机化学, **2000**, *20*, 815.)

(Qin, X.)