

以 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮为基础的超分子组装

王素敏 吴骊珠* 张丽萍 佟振合*

(中国科学院理化技术研究所, 北京 100101. * 联系人, E-mail: lzwu@mail.ipc.ac.cn, chtung@mail.ipc.ac.cn)

摘要 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮四氢键体系在非极性溶剂中具有高的缔合常数, 是构筑多种复杂结构和特定功能超分子体系的理想结合单元. 自 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮四氢键体系被报道以来, 其衍生物被广泛地应用于自组装、超分子聚合物和光电功能材料等领域. 本文概述以 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮为基础的 AADD 四氢键体系构筑新型超分子组装体的最新研究成果.

关键词 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮 组装体 AADD 四氢键体系 超分子组装

超分子体系是指多个分子借助于弱的非共价键相互作用缔合形成的有序分子复合体. 这些弱相互作用包括氢键作用、 π - π 相互作用、疏水作用、亲脂作用和静电作用等^[1]. 其中, 氢键以其适中的作用强度、高度的选择性和方向性, 成为可逆组装具有特定结构和功能超分子体系的主要推动力之一. 早期, 科学家们从简单的二氢键和三氢键体系出发, 组装了具有一定特性的超分子体系, 并总结了一些重要的规律和理论. 然而这些体系的氢键作用力弱、结合常数较小, 不能满足组装复杂体系的要求^[2~4]. 于是, 人们通过增加氢键的个数来完善组装体的结构, 实现各种有序化、功能化的过程.

1996 年, Meijer 等^[5,6]首先构筑了以乙酰基三嗪和嘧啶为结合单元的 DADA (A = 氢键给体, D = 氢键受体) 四氢键体系, 发现其结合常数最高可达 2×10^5 L/mol. 根据二级力的作用原理, AADD 四氢键体系的结合力应远远大于 DADA 四氢键体系 (图 1)^[7,8]. 因此设计结合力更强, 且合成简单的 AADD 四氢键组装体系将是组装超分子高级结构的理想候选. 1998 年, Meijer 等^[9]发展了一类重要的 AADD 组装单元: 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮衍生物, 以 β -酮酸酯为原料, 经两步反应就可以得到 (图 2)^[9]. 这类化合物在 CHCl_3 , CH_2Cl_2 中自组装, 形成 AADD 四氢键超分子结构. 由于结合常数高 (10^7 L/mol), 它通常以 homodimers 二聚体的形式出现 (图 3). 近年来, 基于 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮四氢键的组装体系蓬勃发展, 有关四氢键的合成及发展过程已有多篇评述^[10,11], 本文综述了近年来利用 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮 AADD 四氢键作用构筑新型超分子体系的最新研究成果.

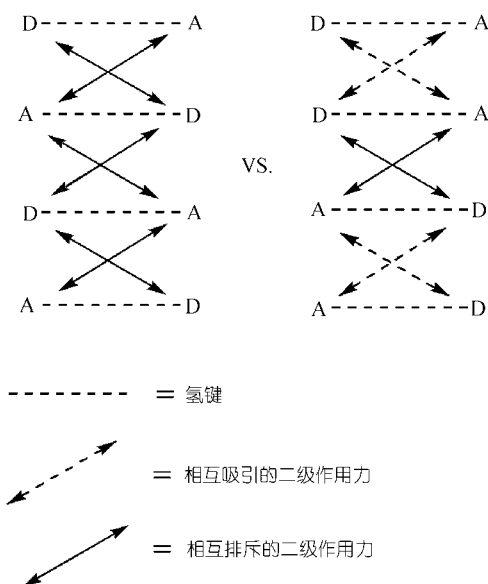


图 1 DADA, AADD 四氢键体系内二级力作用示意图

1 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮衍生物及其二聚体的结构和二聚体的结合常数

2-脲基嘧啶酮衍生物存在 3 种异构体 (图 4)^[9,12]: 6[1H]-嘧啶酮, 4[1H]-嘧啶酮和嘧啶醇, 这三种异构体处于动态平衡. 溶剂的极性、取代基的性质等显著影响平衡过程. 在可参与氢键竞争反应的 DMSO 溶剂中, 由于自身二聚的氢键作用受到抑制, 异构体主要以 6-[1H]-嘧啶酮单体的形式存在; 而在 CDCl_3 等非极性溶剂中, 2-脲基嘧啶酮衍生物主要以 4-[1H]二聚体和嘧啶醇二聚体的形式存在, 也就是说, 自身发生的四氢键作用为主导. 杂环上 6-位的取代基显著影响 4-[1H]二聚体和嘧啶醇二聚体之间的平衡^[9,12], 在弱极性溶剂中, R_1 为 CF_3 和对硝基苯等强吸电子基

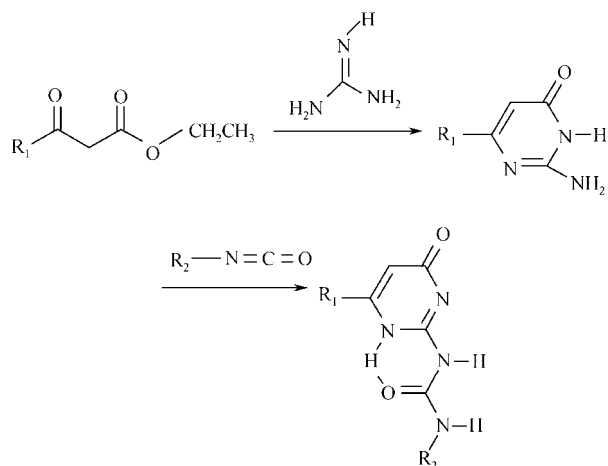


图2 2-氨基-4[1H]-嘧啶酮衍生物的合成路线

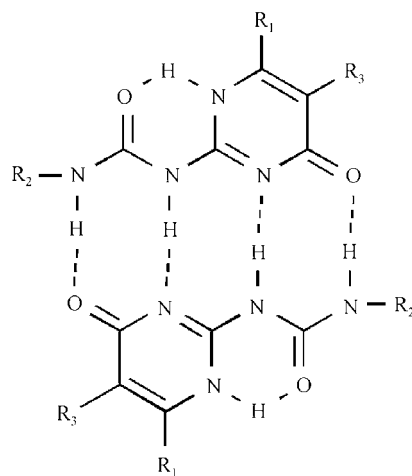


图3 2-氨基-4[1H]-嘧啶酮衍生物在非极性溶剂中的结构

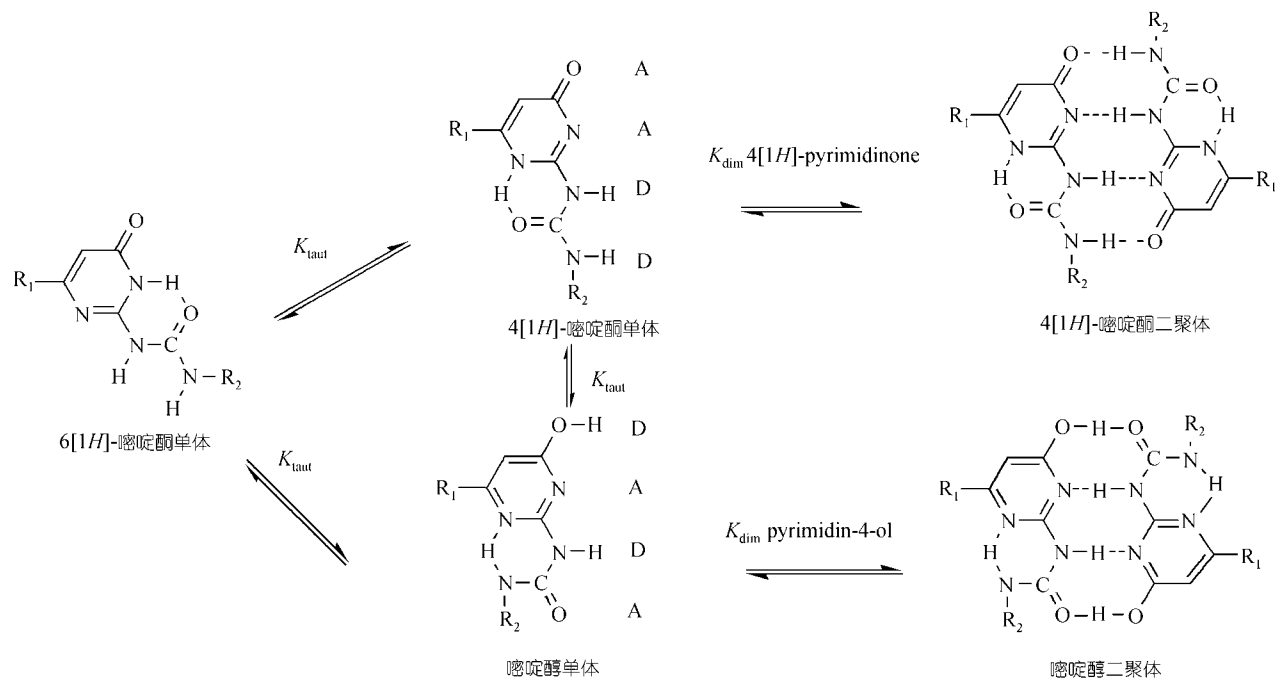


图4 2-氨基嘧啶酮衍生物的同分异构体及其二聚体间的平衡

表1 氘代氯仿和氘代甲苯中取代基对异构体含量的影响

R ₁	R ₂	4-[1H]-嘧啶酮(%)	
		氘代氯仿	氘代甲苯
CH ₃	n-C ₄ H ₉	>99	不溶解
C ₁₃ H ₂₇	n-C ₄ H ₉	>99	87
C ₆ H ₅	n-C ₄ H ₉	87	42
p-NO ₂ C ₆ H ₅	n-C ₁₈ H ₃₇	40	不溶解
CF ₃	n-C ₄ H ₉	<1	无数据
C ₆ H ₂ (OC ₁₂ H ₂₅) ₃	n-C ₄ H ₉	87	57
C ₆ H ₂ (OC ₁₂ H ₂₅) ₃	C ₆ H ₅	93	77
C ₆ H ₂ (OC ₁₂ H ₂₅) ₃	p-NO ₂ C ₆ H ₅	>99	>99
C ₆ H ₂ (OC ₁₂ H ₂₅) ₃	p-NEt ₂ C ₆ H ₅	85	51

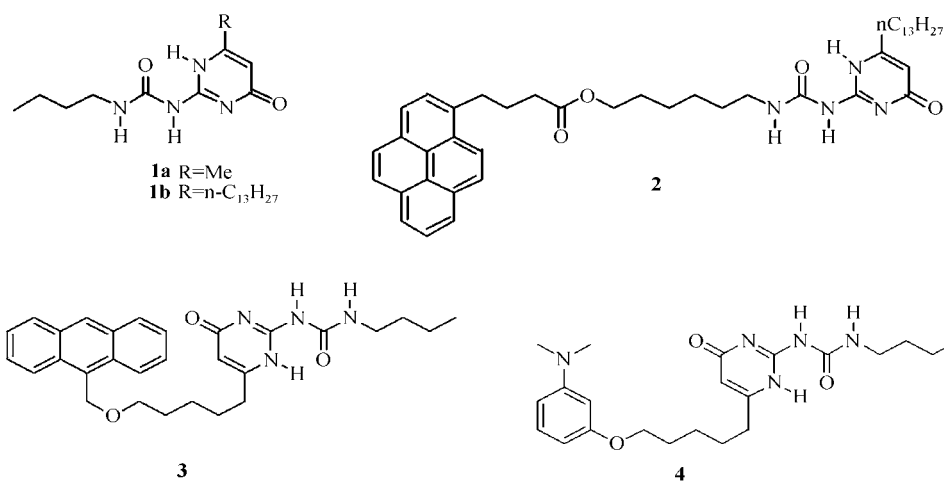


图5 化合物1~4的结构

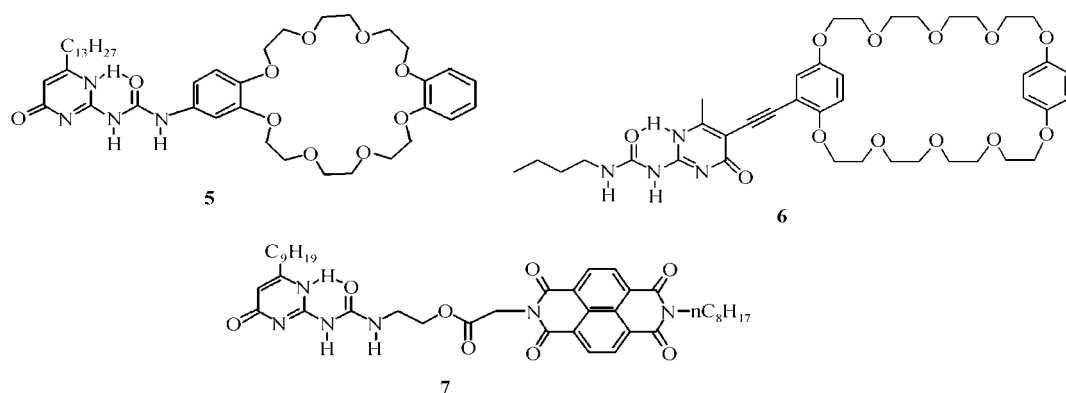


图6 化合物5, 6, 7的结构

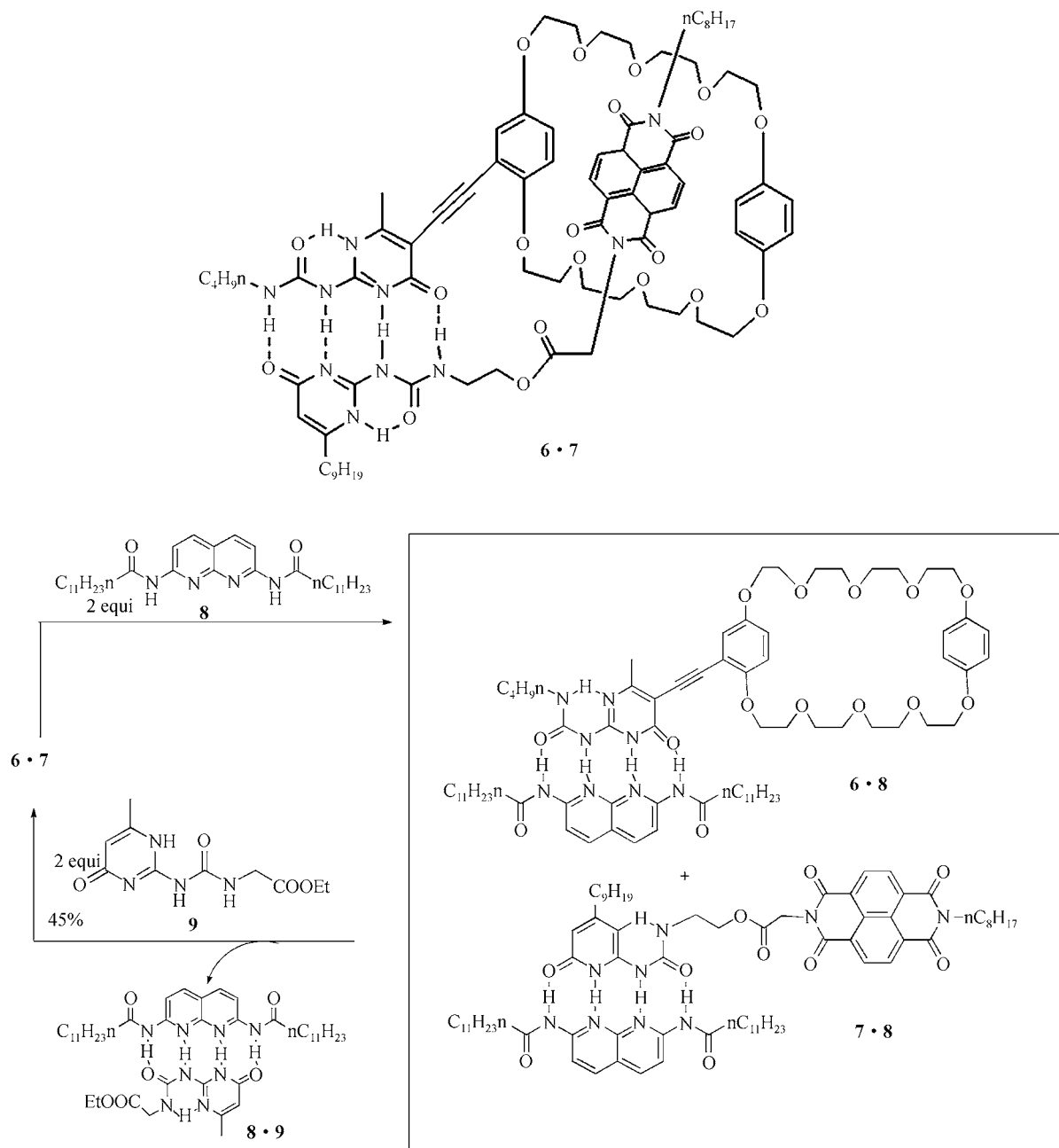
团时, 主要存在嘧啶醇二聚体; R_1 为芳基、烷基类给电子基时, 主要存在 4-[1H]二聚体, 其中烷基取代基最有利于 4-[1H]二聚体。另外, R_2 取代基对此也有影响, 具体数据如表 1 所示。嘧啶醇二聚体间氢键作用的排列方式为 DADA, 嘧啶酮二聚体间氢键作用的排列方式为 AADD, 因此形成稳定的 AADD 二聚体要求分子必须以 4-[1H]-嘧啶酮异构体的形式存在。在实际应用中, 2-脲基嘧啶酮衍生物的 6-位取代基大部分为烷基。

1998 年, Meijer 利用稀释的方法, 通过 ^1H NMR 确定了 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮衍生物 1a (见图 5) 的二聚体的结合常数低限值为 10^5 L/mol [9]; 2000 年他们首先把荧光分子芘引入 UPy (2-脲基-4[1H]-嘧啶酮) 衍生物得到化合物 2, 并通过激基缔合物的荧光光谱成功推算出: $K_{\text{dim}} = 2 \times 10^7 \text{ L/mol}$ (氯仿); $K_{\text{dim}} = 10^8 \text{ L/mol}$ (甲苯) [13]; 随后 Ikegami 和 Arai 报道 UPy 的葱衍生物 3 和 N,N-二甲基苯胺衍生物 4 在 10^{-5} mol/L 的氯仿溶液

中观测到了激基复合物的发射, 这个浓度区间与用化合物 2 所得的结合常数在数量级上是一致的 [14]。

2 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮在自组装中的应用

2-脲基-4[1H]-嘧啶酮四氢键 (UPy) 体系具有高的结合常数和方向性, 非常适合构筑一些结构复杂的超分子体系。最近, 黎占亭等开展了一系列组装方面的工作。例如: 他们利用四氢键高的缔合常数将化合物 5, 6, 7 (见图 6) 组装成稳定的二聚体, 当 5 的冠醚功能团与胺盐形成类索烃化合物时, 可以实现 4 个分子的有序组装 [15]; 化合物 6 富电子的冠醚功能团与化合物 7 缺电子的 PDI (蔡二酰亚胺) 功能团之间存在着强的静电引力, 受静电引力的驱使, 即在 1:1 (物质的量) 6, 7 的 CDCl_3 溶液中 heterodimer 6·7 的含量可达 97%; 利用化合物 6~9 之间的结合常数差异很大的特点, 他们实现了选择性地分子组装: 在 1:1 (物质的量) 的 6, 7 溶液中加入 8, heterodimer 6·7 将有 90% 解

图7 Heterodimer **6·7** 在 $CDCl_3$ 中的解聚和再生

聚, 随后, 再加入二倍当量的 **9**, 溶液中重生 45% 的 heterodimer **6·7**(图 7)^[16]; 再如, 化合物 **10** 为 2-脲基-4[1H]嘧啶酮的卟啉衍生物, 在氯仿溶液中, homodimer **10·10**(见图 8) 的紫外吸收在 10^{-5} mol/L 依然没有变化, 证明 **10·10** 之间具有很高的结合常数 ($K_{dim} \geq 10^7$ L/mol). Homodimer **10·10** 组装体呈现

“S”形状, 由于受嘧啶酮环上的 N 原子与卟啉中心 Zn^{2+} 离子的配位作用的影响, N—H 的核磁共振峰明显移向高场(H-1: -2.93, H-2: -2.53, H-3: -4.10). 当 Zn^{2+} 离子与化合物 **11** 配位后, “S”构型扭转为两卟啉环对称排列, N—H 的化学位移又恢复至“正常”的低场位置. Homodimer **10·10** 是一类新型的双分子主体化合

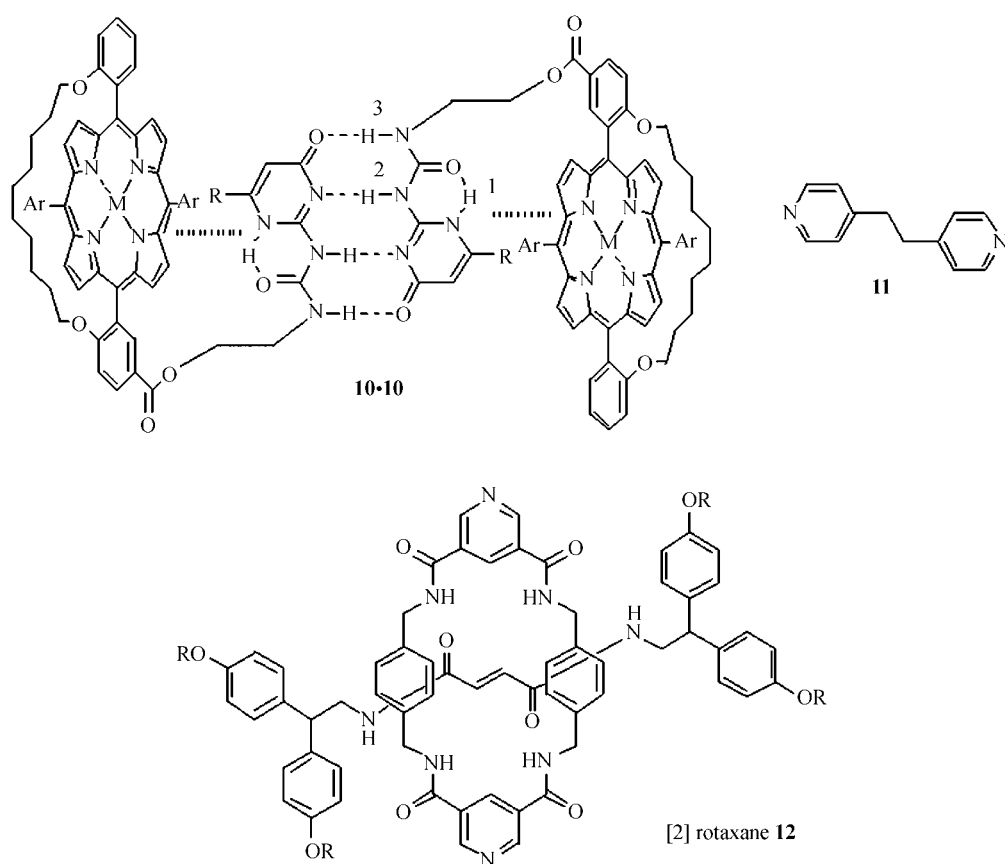


图8 化合物 10 · 10, 11, 12 的结构

物, 它不仅可以有效地识别含有类似化合物 11 结构的小分子, 而且对一些超分子组装体的结合能力也非常强, 如对类索烃化合物 12 的络合常数可达 1.2×10^4 L/mol. 在这些体系中, 通过氢键和配位键的协同作用, 实现了“复杂”超分子之间的组装^[17].

3 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮在超分子聚合中的应用

虽然线性超分子聚合物的概念早为人知, 但直到 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮四氢键体系报道后才出现具有相当聚合度, 且无论是在溶液还是在本体状态都可以体现聚合物特征的氢键超分子聚合物^[18,19]. 氢键超分子聚合物的一个非常重要的特点就是环境的响应性, 即可以通过改变溶液浓度、温度及单官能团化合物的量等外界条件来改变聚合物的聚合度, 这在传统的共价键聚合物中是不容易做到的. UPy修饰的小分子化合物 13, 在氯仿溶液中可以形成稳定的长链聚合物(图 9), 含有一个UPy单元的化合物 1b加

入 13 的氯仿溶液, 13 溶液的聚合度将大大降低, 在此 1b起到了封锁端基的作用^[18], 根据 1b的量对溶液黏度的影响推算, 化合物 13 在 40 mmol/L 的氯仿溶液中, 超分子聚合物的聚合度可达 700; 化合物 14 在紫外光下去保护可转变为UPy的衍生物(图 10), 利用紫外光照射含有少量 14 的 13 黏稠溶液, 能够大大降低体系的黏度和聚合度^[20]. 由于UPy衍生物的四氢键体系的结合常数随着温度的升高而降低, 温度对UPy为基础的超分子聚合物的聚合度有很大的影响. 室温下, 在非极性溶剂中由于长链聚合物的形成, 体系的黏度非常大, 随着温度的升高, 体系的聚合度将大大降低. 但也有例外, 由化合物 15 组装的超分子聚合物表现出与众不同的黏度对温度的依赖关系. 室温下, 由于构型的限制, 化合物 15 的氯仿溶液中既有线型的聚合物, 也有二聚生成的环状物, 如图 11 所示, 线型聚合物所占的比例随着温度的升高而增大, 所以体系的黏度也随着温度的升高而增大^[21].

氢键超分子聚合物的思想为共价聚合物的改性、

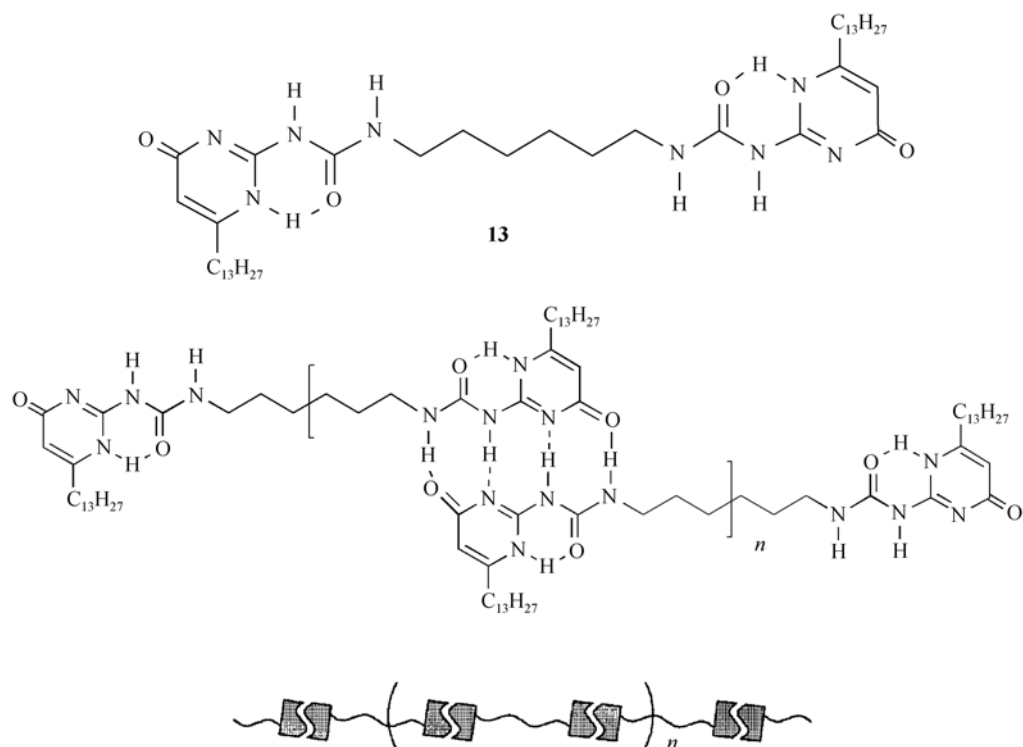


图9 有AADD四氢键体系的嘧啶酮衍生物组装为超分子聚合物的示意图

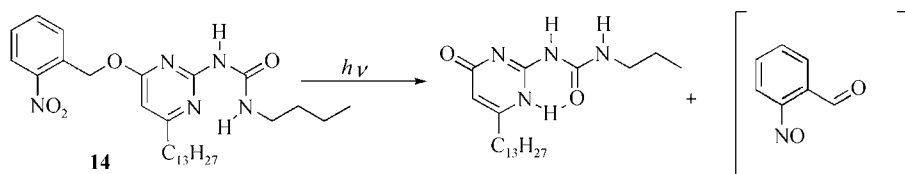


图10 化合物14受紫外光照射转变为UPy衍生物

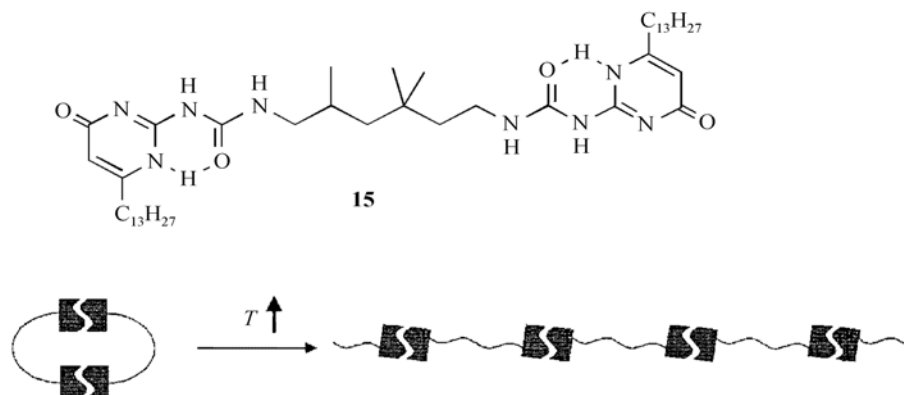


图11 化合物15的环状二聚体受热开环聚合

聚合物定向组装及高性能材料的研究方面提供了新的思路。Meijer等将UPy官能团引入到聚硅氧烷^[22]、

聚醚、聚酯、聚碳酸酯及聚烯烃等^[23]低聚物的两端来拓展聚合物的链长。由于UPy官能团的引入, 这些聚

合物的性质有了很大的改善, 既保持了传统高分子聚合物优良的材料性能, 又具有小分子化合物低熔点黏度的特性. 这种方法可以说是高分子量聚合物与低聚物之间的一个桥梁, 通过 2-脲基-4-[1H]-嘧啶酮将两者的长处相结合. 2001 年, Coat 等将少量的乙烯基取代化合物 **16**(见图 12)与 1-己烯共聚, 由于在聚乙烯链中引入了少量的UPy单元, 聚乙烯出现了热塑性弹性体的性质^[24].

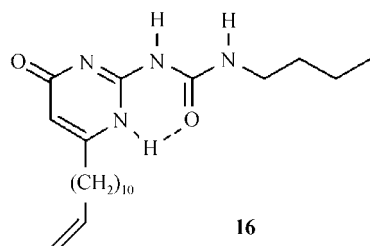


图 12 化合物 **16** 的结构

不久前, Schubert 等在聚己内酯两端分别修饰 UPy 和具有强配位作用的三联吡啶, 氢键和配位键

协同作用形成超分子聚合物 **17a**, **17b**^[25]. 如图 13 所示, 溶剂、温度、金属离子等能有效地控制聚合和解聚的过程. 因为UPy和三联吡啶之间的连接基团为低聚物, 所以此种聚合物在CDCl₃等非极性溶剂中的溶解度较好. 由于氢键的存在, 与只含配位作用的超分子聚合物相比, **17a**, **17b**黏度对浓度的依赖性更强. 超分子聚合物 **17a**展现了良好的可逆特征, 在 **17a**的CHCl₃/CH₃OH溶液中加入HEEDTA (hydroxyethyl ethylenediaminetriacetic acid)水溶液, **17a**在两分钟内解聚, 溶液的颜色退去, 紫外光谱上 558 nm处MLCT吸收峰消失, 将HEEDTA水溶液萃取后, 溶液的颜色和MLCT吸收峰重新出现.

4 2-脲基-4-[1H]-嘧啶酮在光电功能材料方面的应用

将氢键结构单元加以修饰, 引入不同的光、电、磁等功能性基团, 可以获得具有光电功能响应的超分子体系, 这为光合作用的模拟、分子器件的设计、

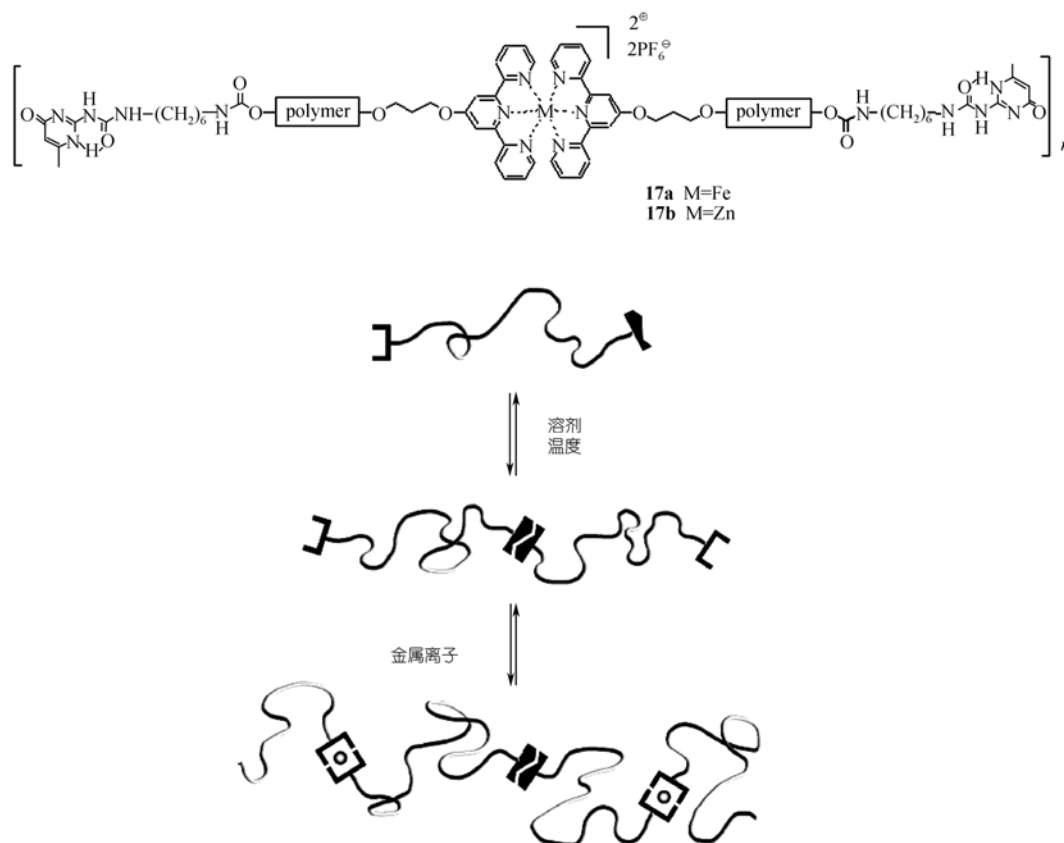


图 13 溶剂、温度、金属离子等对主链同时含有三联吡啶和 AADD 四氢键单元的超分子聚合物聚合度的影响

太阳能转换装置的开发等奠定了理论基础. 研究发现将具有优异的电光特性的OPV(对亚苯基亚乙烯基寡聚物)引入 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮衍生物(**18**, 见图14)可以形成高稳定的二聚体^[26]($K_{\text{dim}} = 6 \times 10^7 \text{ L/mol}$), 并呈现出聚合物的某些性能; 将 C_{60} 引入到AADD体系(化合物**19**), 在二氯甲烷中, 采用 400 nm的光激发**19**的二聚体, 相对于不含四氢键结构的 C_{60} 的化合物, 二聚体在 710 nm处的发光有 50%被猝灭, 说明电子耦合可以通过氢键作用在整个二聚体内进行传递^[27], 而基态的 C_{60} 间几乎没有相互作用, 同样化合物**20**中UPy链段只充当氢键构筑单元的角色, 对 C_{60} 的电化学性质没有影响^[28]; 有意义的是将同时含有两个UPy单元的 C_{60} 衍生物**21**^[29]进行组装, 得到超分子聚合物, 其中基态 C_{60} 间不存在相互作用, 单体也保留了各自独立的性质; 将**21**的浓溶液旋涂在玻璃板上, 溶剂挥发后能够形成均一的膜, 这是小分子远不能及的.

以上的工作着重研究了基于 2-脲基-4[1H]-嘧啶酮氢键体系的发色团基态性质, 氢键体系中激发态分子的电子转移、能量传递等过程的研究同样引起了人们的关注. UPy四氢键体系的缔合常数高, 方向性强, 二聚体在极稀的浓度(10^{-5} mol/L)时也不解聚, 有效地避免了分子间碰撞造成的能量传递、电子转移等

不确定的因素, 非常有利于研究氢键体系中能量传递和电子转移现象. Massashi等构筑了Heterodimer **22**^[14](见图15), Heterodimer **22**内存在高效的电荷转移, 当N,N-二甲基苯胺的UPy衍生物作为电子给体加入芘的UPy衍生物(二者浓度均为 $1 \times 10^{-5} \text{ mol/L}$)时, 后者激基缔合物和单体的荧光都明显地降低且红移, 这证明通过分子间的四氢键达到了从N,N-二甲基苯胺到激发态芘的有效的电荷转移. 为了获得相对固定的构型, 吴骊珠等^[30]采用较为刚性的亚甲基连接发色团和四氢键单元, 研究Heterodimer **23**的能量传递过程, 由于构型的刚性和UPy四氢键单元的方向性, 发色团萘、蒽肩并肩排列, 发色团之间的距离为 13 Å. 选择性的激发发色团萘, 可以观察到从给体-萘到受体-蒽的高效的单重态能量传递, 根据荧光寿命计算, 能量传递的速率常数和量子效率分别为 $9.8 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ 和 89%, 与按Förster 机制计算的结果一致, 证明能量传递过程按Förster 机制进行. 与此类似, Heterodimer **24**^[31]内也存在从OPV-UP到PERY-UP高效的单线态能量传递过程, 其能量传递的速率常数和量子效率分别为 $1.9 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ 和 84%. 尽管Heterodimer **24**内进行电子转移在能量上是有利的, 但由于两发色团之间的距离的限制, 电子耦合作用较弱, 所以在这个体系没有发生电子转移.

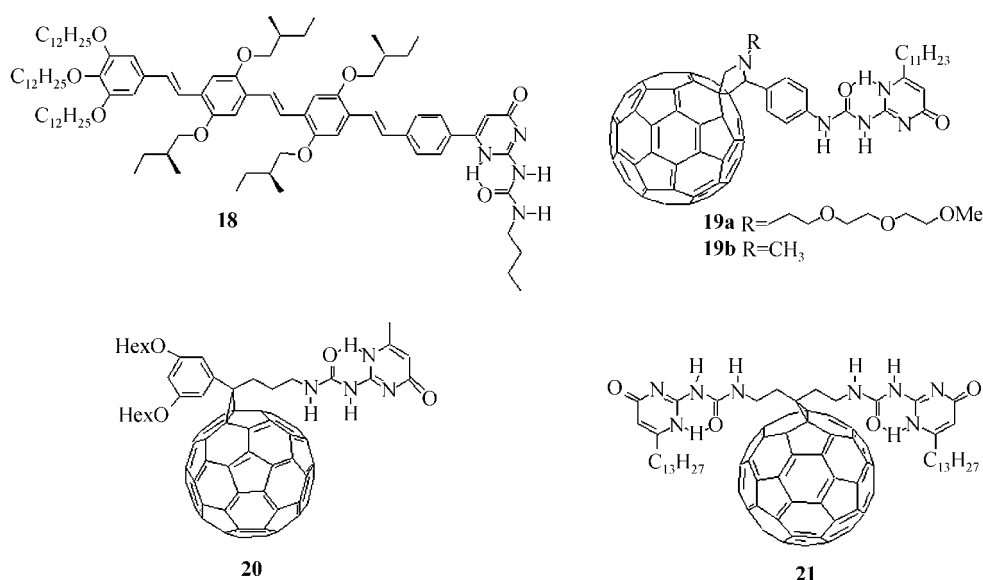


图 14 化合物 18~21 的结构

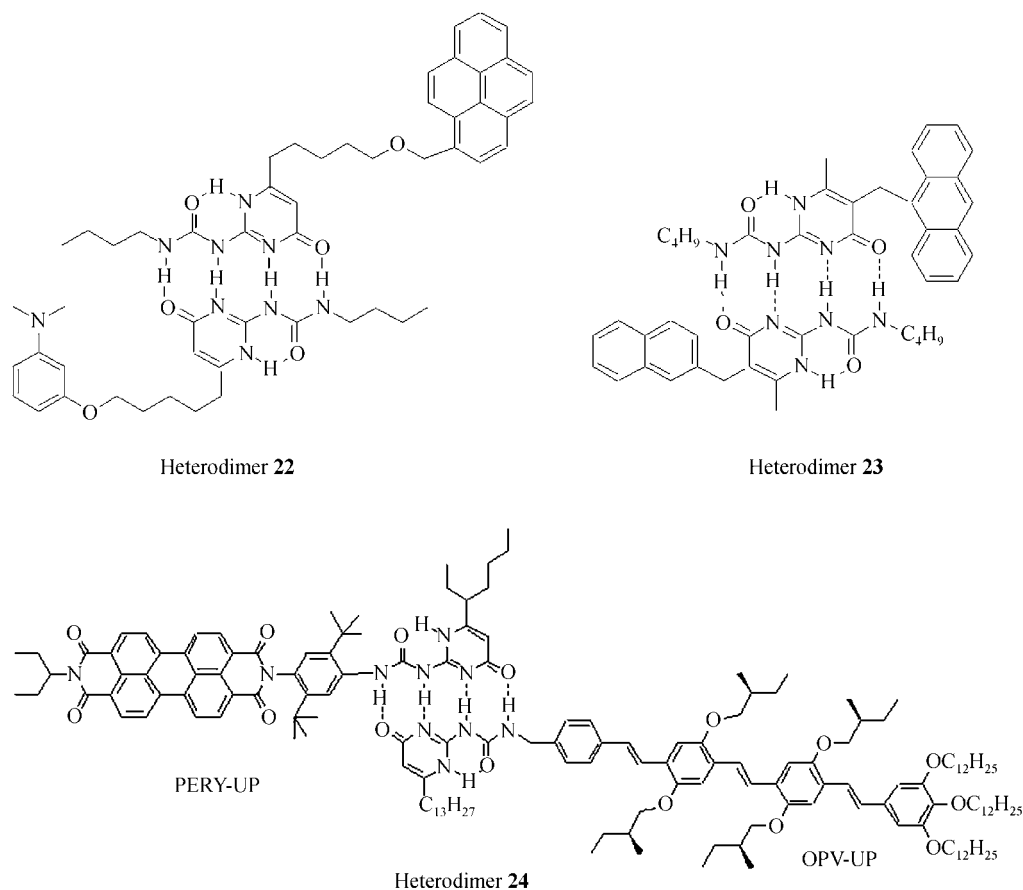


图 15 化合物 22, 23, 24 的结构

5 小结

利用 2-脲基-4-[1H]-嘧啶酮的 AADD 四氢键单元高的缔合常数和自互补的特性, 人们构筑了形态功能各异的多种超分子体系. 从四氢键组装体的快速发展我们不难看出, 基于 2-脲基-4-[1H]-嘧啶酮的超分子组装体正在由合成、组装等宏观性质研究层面向微观结构和性能的研究方面发展, 2-脲基-4-[1H]-嘧啶酮正在成为组装各种功能化超分子体系广泛、重要的构筑单元. 最近, 研究 2-脲基-4-[1H]-嘧啶酮组装体中的各种光、电、磁性质颇受关注, 相信在不久的将来, 具有优异性能的 UPy 型 AADD 超分子组装体将被广泛应用于化学、材料和能源等领域.

致谢 本工作为国家自然科学基金(批准号: 20125207, 20272066, 20333080, 20332040, 20472091, 20202013)和国家“973”计划(批准号: G2000078104, G2000077502, 2003CB716802)资助项目.

参 考 文 献

- 1 Lehn J M. Supramolecular chemistry-concepts and perspectives. New York: VCH, 1995. 1~10
- 2 Sessler J L, Wang B, Harriman A. Photoinduced energy transfer in associated but noncovalently linked photosynthetic model system. J Am Chem Soc, 1995, 117: 704~714 [\[DOI\]](#)
- 3 Harriman A, Magda D, Sessler J L. Energy transfer across a hydrogen-bonded, cytosine-derived, zinc-free-base porphyrin conjugate. J Chem Soc, Chem Commun, 1991, 345~348
- 4 Harriman A, Magda D J, Sessler J L. Photon antennae assembled by nucleic acid base pairing. J Phys Chem, 1991, 95: 1530~1532 [\[DOI\]](#)
- 5 Beijer F H, Sijbesma R P, Vekemans J A J M, et al. Hydrogen-bonded complexes of diaminopyridines and diaminotriazines: opposite effect of acylation on complex stabilities. J Org Chem, 1996, 61: 6371~6380 [\[DOI\]](#)
- 6 Beijer F H, Sijbesma R P, Meijer E W, et al. Self-complementary aryl achieved through quadruple hydrogen bonding. Angew Chem Int Ed, 1998, 37: 75~78 [\[DOI\]](#)

- 7 Jorgensen W L, Pranata J. Importance of secondary interactions in triply hydrogen bonded complexes: guanine-cytosine vs uracil-2, 6-diaminopyridine. *J Am Chem Soc*, 1990, 112: 2008~2010 [\[DOI\]](#)
- 8 Pranata J, Wierschke S G, Jorgensen W L. OPLS potential functions for nucleotide bases. Relative association constants of hydrogen-bonded base pairs in chloroform. *J Am Chem Soc*, 1991, 113: 2810~2819 [\[DOI\]](#)
- 9 Beijer F H, Sijbesma R P, Meijer E W, et al. Strong dimerization of ureidopyrimidinones via quadruple hydrogen bonding. *J Am Chem Soc*, 1998, 120: 6761~6769 [\[DOI\]](#)
- 10 Sijbesma R P, Meijer E W. Quadruple hydrogen bonded systems. *Chem Comm*, 2003, 5~16
- 11 齐志奇, 邵学彬, 黎占亭, 等. 四氢键二聚体和分子组装. *有机化学*, 2003, 23: 403~412
- 12 Lafitte V G H, Aliev A E, Hailes H C, et al. Ureidopyrimidinones incorporating a functionalizable p-Aminophenyl electron-donating group at C-6. *J Org Chem*, 2005, 70: 2701~2707 [\[DOI\]](#)
- 13 Sontjens S H M, Sijbesma R P, van Genderen M H P, et al. Stability and lifetime of quadruply hydrogen bonded 2-ureido-4[1H]-pyrimidinone dimers. *J Am Chem Soc*, 2000, 122: 7487~7493 [\[DOI\]](#)
- 14 Massashi I, Tatsuo A. Fluorescence studies on binary aromatic compounds by utilizing the intermolecular quadruple hydrogen bonding. *Chemistry Letters*, 2001, 30: 694~695
- 15 Tokunaga Y, Seo T. The contribution of complementary hydrogen bonding to supramolecular structure. *Chem Commun*, 2002, 970~971
- 16 Wang X Z, Li X Q, Li Z T, et al. Selective rearrangements of quadruply hydrogen-bonded dimer driven by donor-acceptor interaction. *Chem Eur J*, 2003, 9: 2904~2913 [\[DOI\]](#)
- 17 Shao X B, Jiang X K, Li Z T, et al. Recognition through self-assembly. A quadruply-hydrogen-bonded, strapped porphyrin cleft that binds dipyrindyl molecules and a [2]Rotaxane. *J Org Chem*, 2004, 69: 899~907 [\[DOI\]](#)
- 18 Sijbesma R P, Beijer F H, Brunsveld L, et al. Reversible polymers formed from self-complementary monomers using quadruple hydrogen bonding. *Science*, 1997, 278: 1601~1604 [\[DOI\]](#)
- 19 Brunsveld L, Folmer B J B, Meijer E W, et al. Supramolecular polymers. *Chem Rev*, 2001, 101: 4701~4097
- 20 Brigitte J B, Sijbesma R P, Meijer E W, et al. Photo-induced depolymerization of reversible supramolecular polymers. *Chem Commun*, 1998, 1847~1848
- 21 Folmer B J, Sijbesma R P, Meijer E W. Unexpected entropy-driven ring-opening polymerization in a reversible supramolecular system. *J Am Chem Soc*, 2001, 123: 2093~2094 [\[DOI\]](#)
- 22 Hirschberg J H K K, Sijbesma R P, Meijer E W, et al. Supramolecular polymers from linear telechelic siloxanes with quadruple-hydrogen-bonded unit. *Macromolecules*, 1999, 32: 2696~2705 [\[DOI\]](#)
- 23 Brigitte J B, Sijbesma R P, Meijer E W, et al. Supramolecular polymer materials: chain extension of telechelic polymers using a reactive hydrogen-bonding synthon. *Adv Mater*, 2000, 12: 874~878 [\[DOI\]](#)
- 24 Rieth L R, Eaton R F, Coates G W. Polymerization of ureidopyrimidinone-functionalized olefins by using late-transition metal ziegler-natta catalysts: synthesis of thermoplastic elastomeric polyolefins. *Angew Chem Int Ed*, 2001, 40: 2153~2156 [\[DOI\]](#)
- 25 Hofmeier H, Hoogenboom R, Schubert U S, et al. High molecular weight supramolecular polymers containing both terpyridine metal complexes and ureidopyrimidinone quadruple hydrogen-bonding units in the main chain. *J Am Chem Soc*, 2005, 127: 2913~2921 [\[DOI\]](#)
- 26 Elghayoury A, Peeters E, Meijer E W, et al. Quadruple hydrogen bonded oliger(p-phenylene vinylene) dimmers. *Chem Commun*, 2000, 1969~1970
- 27 González J J, González S, Priego E M, et al. A new approach to supramolecular C60-dimers based in quadruple hydrogen bonding. *Chem Commun*, 2001, 163~164
- 28 Rispens M T, Sanchez L, Knol J, et al. Supramolecular organization of fullerenes by quadruple hydrogen bonding. *Chem Commun*, 2001, 161~162
- 29 Sanchez L, Rispens M T, Hummelen J C. A supramolecular array of fullerenes by quadruple hydrogen bonding. *Angew Chem Int Ed*, 2002, 41: 838~840 [\[DOI\]](#)
- 30 Zhao C C, Li Z T, Wu L Z, et al. Inner-assembly singlet energy transfer in naphthalene-anthracene system linked by 2-ureido-4[1H]-pyrimidinone binding module. *Tetrahedron Letters*, 2004, 45: 6807~6811 [\[DOI\]](#)
- 31 Neuteboom E E, Beckers E H A, Meijer E W, et al. Singlet-energy transfer in quadruple hydrogen-bonded oligo(p-phenylenevinylene) perylene-diimide dyads. *Org Biomol Chem*, 2003, 1: 198~203 [\[DOI\]](#)

(2005-07-14 收稿, 2005-09-01 收修改稿)