О. В. Дябло, А. Ф. Пожарский, В. В. Кузьменко

N-АМИНОАЗОЛИНТИОНЫ И N-АМИНОАЗИНТИОНЫ

1. CUHTE3*

(OE3OP)

Обобщены данные о методах синтеза N-аминоазолинтионов и N-аминоазинтионов.

В последние годы отмечается заметное увеличение интереса к химии N-аминоазолов [1] и N-аминоазиниевых солей [2], являющихся полезными синтонами при проведении всевозможных реакций, в частности циклизаций и гетероциклизаций. Особенно перспективны в этом отношении N-аминопроизводные азотистых гетероциклов, содержащие рядом с аминной функцией меркаптогруппу (хотя в некоторых случаях обсуждаемые в обзоре соединения называются меркаптопроизводными, все они, по-видимому, существуют в форме тионов [3]). В настоящем обзоре анализируются данные по синтезу подобных соединений. Их реакционная способность и физико-химические свойства будут рассмотрены во второй части обзора. Литература обобщена до 1995 года включительно.

1. N-АМИНОИМИДАЗОЛИНТИОНЫ

1.1. Синтезы с помощью реакций циклизации и рециклизации

Большинство известных способов получения α -меркапто-N-аминоимидазолов основано на реакциях циклизации подходящих ациклических соединений или реакциях рециклизации. Их первый представитель — 1-амино-3-фенилимидазолин-2-тион (I) был получен еще в 1894 году с выходом 45% по следующей схеме [4]:

$$(EtO)_2CH NHPh H_3O^+, \Delta$$

$$H_2C N C S NH_2$$

$$NH_2$$

$$NH_2$$

$$NH_2$$

При получении 1-амино-2-алкилтиоимидазолов (II) исходят из S-алкилизотиосемикарбазонов (III) и α -галогенкарбонильных соединений [5—7]. В случае α -галогенацетонов эта реакция протекает неоднозначно, приводя к образованию смеси имидазолов (IV) и 1-изопропенил-3-алкилтио-1,2,4-триазолов (V). При этом с бромацетоном образуется преимущественно N-аминоимидазол IV, тогда как с хлорацетоном получается в основном соединение V [7].

^{*} Посвящается академику Э. Я. Лукевицу по случаю его 60-летия.

R = H, Alk; $R^1 = H$, Me, Ph

Недавно японские химики синтезировали стереоизомеры 4-(1- R_1 -оксикарбонил) метиленимидазолина-4 (VIa,б) путем взаимодействия соединений VII с ацетилендикарбоксилатами. При проведении реакции в этаноле в присутствии ацетата натрия был выделен только Z-изомер VIa, в то время как в ацетонитриле, содержащем небольшое количество уксусной кислоты, образуется в основном E-изомер VIб [8].

R = H, Me, Ph; $R^1 = Me$, Et

Соли 2-амино-3-фенацил-1,3,4-оксадиазолия (VIII) при нагревании с гидросульфидом аммония рециклизуются в 1-ацетамидо-4-фенилимидазолин-2-тионы (IX), из которых далее можно получить аминотионы X [9]. Предположительно реакция протекает через промежуточное образование имидазо [2,1-b]-1,3,4-оксадиазола (XI). Если вместо NH4SH использовать алкилмеркаптаны, можно получить 1-амино-2-алкилтио-4-фенилимидазолы (XII) [10].

PhCH₂S
$$NH_2$$
 NH_2 NH_2 NH_2 NH_2 NH_2 NH_2 NH_2 NH_2 N_2 N_2 N_4 N_2 N_4 N_2 N_4 N_2 N_4 N_4

Эта реакция весьма похожа на синтез 1-аминоимидазолин-2-тионов (XIII), разработанный Бейером и сотрудниками в 1963 году и основанный на использовании в качестве исходного вещества 2-амино-4-бензилтио-1,3,4-тиадиазола (XIV). Из него конденсацией с α -галогенкетонами получают имидазо [2,1-b]-1,3,4-тиадиазолы XV, последующее нагревание которых с гидразингидратом приводит к тионам XIII [11].

Недавно был осуществлен синтез 1-аминоимидазолин-4-он-2-тионов (XVI) исходя из гидрохлорида гидразинуксусного эфира и изотиоцианатов [12, 13]. По-видимому, реакция протекает через интермедиат XVII, который в одном случае (R = Ph) был выделен. Соединения XVII при добавлении триэтиламина с выходом 64...85% переходят в N-аминоимидазолин-2-тионы XVI.

Аналогичным образом гидразоны XVIII при действии изотиоцианата калия превращаются в 1-анилиноимидазолин (XIX) или 1-анилинотетрагидробензимидазолин-2-тионы (XX) [14].

XIX R = Ph, R^1 = Me; XX R, R^1 = $(CH_2)_4$

Конденсацией 2,3-диамино-4-гидразино-6-этоксикарбониламинопиридина (XXI) с сероуглеродом было получено производное 1-аминоимида- зо [4,5-c]пиридин-2-тиона XXII [15].

Нагреванием диэтилового эфира *о*-аминофенилгидразономезоксалевой кислоты (XXIII) в пиридине при 80...90 °C с избытком сероуглерода был получен 1-аминобензимидазолин-2-тион (XXIV) в смеси с бензимидазолин-2-тионом (XXXV). Вероятно, образование последнего — результат расщепления связи N—N в одном из промежуточных соединений, например XXVI или XXVII. Выход аминотиона XXIV в расчете на соединение XXIII составил 33%. Однако при добавлении в реакционную смесь при циклизации соединения XXIII в пиридине эквимолярного количества йодистого метила выход может быть повышен до 64% [16].

Циклизацией 1-ацил-2-(2-аминофенил) гидразинов с этилксантогенатом калия были получены 1-ациламинобензимидазолин-2-тионы XXVIII [17].

1.2. Прямое введение меркаптогруппы в N-аминоимидазолы

Непосредственное введение меркаптогруппы в готовое имидазольное кольцо было первоначально осуществлено для солей N-аминоимидазолия XXIX [18]. При их обработке серой в присутствии триэтиламина в пиридине с хорошим выходом были получены тионы XXX.

$$S_8 \cdot Et_3N$$
 $Hal^ S_8 \cdot Et_3N$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$
 $N=CHAr$

Как видно, обе аминогруппы в исходных соединениях были защищены. Однако в случае солей имидазолия ввиду мягких условий тиолирования в этом нет необходимости. Так, при тиолировании йодидов 1-амино-3-алкилбензимидазолия в кипящем ДМФА с выходом 69...81% образуются 1-амино-3-алкилбензимидазолин-2-тионы (ХХХІ). Аналогичная реакция с селеном приводит с выходом 71...80% к соответствующим селенонам [19, 20]. Подобным образом был получен и 1-амино-3-метилперимидин-2-тион (ХХХІІ) [21]. Полагают, что при тиолировании солей реализуется карбеноидный механизм, для чего и требуется использовать триэтиламин.

При тиолировании основания 1-аминобензимидазола предварительная защита аминогруппы необходима. Действительно, амин (XXXIII) при нагревании с серой подвергается окислительному дезаминированию с образованием бензимидазола, который далее превращается в бензимидазолин-2-тион (XXXIV) [16].

X = S, Se; R = Me, Et; $R^1 = H$, Me

$$\begin{array}{c|c} & S_8 & \\ \hline & 175...180 \text{ °C} \\ \hline & NH_2 \\ \hline & XXXIII \\ \end{array}$$

При нагревании 1-алкилацетиламинобензимидазолов с серой с выходом 60...75% образуются 1-(N-алкил-N-ацетиламино)бензимидазолин-2-тионы (XXXV). Аналогично были подвергнуты тиолированию соединения XXXVI, в результате чего получены аминотионы XXXVII, выход которых составил 30...66% [22].

R = H, Alk

1-(Бензилиденамино) бензимидазолы (XXXVIII) при сплавлении с серой также легко тиолируются, образуя с хорошим выходом соответствующие тионы. Гидролиз последних дает 1-аминобензимидазолин-2-тионы XXXIX [23].

$$S_8$$
 $N=CHPh$ $N=C$

При сплавлении с серой 1-(диалкиламино) бензимидазолов при 145...150 °C были получены с выходом 56...73% 1-(диалкиламино) бензимидазолин-2-тионы (XL) [22].

$$\begin{array}{c|c} S_8 & NH \\ \hline NR_2 & NR_2 \\ \hline R = Me, Et \end{array}$$

Недавно литовскими химиками был предложен новый метод получения 1-аминобензимидазолин-2-тиона (XXIV), основанный на нуклеофильном замещении галогена или сульфогруппы в положении 2 соединений XLI на тиольную группу при нагревании с гидросульфитом аммония [17]. Выход аминотиона XXIV составил 30...35%.

$$\begin{array}{c|c} N & NaSH & NH \\ NH_2 & NH_2 & NH_2 \\ XLI & R = Cl, SO_3H \end{array}$$

2. N-АМИНОТИАЗОЛИНТИОНЫ

Описан синтез 3-аминотиазолин-2-тионов (XLII), основанный на взаимодействии α -галогенкарбонильных соединений с дитиокарбазатом аммония [24—27].

В других случаях в этой реакции использовались ароилдитиокарбазаты калия [28—30]. Первоначально продукту этой реакции была ошибочно принисана тиадиазиновая структура XLIII [28], которая позже была исправлена в пользу структуры XLIV [29, 30].

R COAr

R NHCOAr

R NHCOAr

R NHCOAr

R NHCOAr

R NHCOAr

R XLIII

NHCOAr

R = Me, Ph;
$$R^1 = H$$
, CO_2Et

3. N-АМИНО-1,2,4-ТРИАЗОЛИНТИОНЫ

3.1. Синтезы с помощью реакций циклизации и рециклизации

4-Амино-1,2,4-триазолин-3-тион (XLV, R = H) был впервые получен в 1908 году Столле нагреванием тиокарбогидразида XLVI с ортомуравьиным эфиром [31] (позже эти данные были подтверждены в ряде работ). При этом кроме ортоэфиров [32, 33] использовались также амиды и сложные эфиры жирных кислот [32], иминофиры [34], соли дитиокарбоновых кислот [35, 36]. В настоящее время предпочитают использовать сами карбоновые кислоты [37—41], что обеспечивает лучшие выходы (до 75...80%) аминотионов XLV. 2-Метилтиокарбогидразид и α-метилизотиокарбогидразид реагируют с карбоновыми кислотами с образованием соответственно соединений XLVII и XLVIII [42]. Взаимодействие тиокарбогидразида с двумя эквивалентами диарилкарбодиимидов приводит к соединениям XLIX с выходом 20...50%; при этом в зависимости от заместителя R и условий проведения реакции образуется также некоторое количетсво соединений L и LI [43].

Реакция тиокарбогидразида с сероуглеродом в пиридине приводит к образованию смеси 4-амино-1,2,4-триазолин-3,5-дитиона (LII), триазоло [3,4-b]-1,3,4-тиадиазолин-2,5-дитиона (LIII) и тиадиазола LIV с выходами соответственно 50, 40 и 2% [44, 45]. В то же время использование этилксантогената калия, получаемого *in situ* из сероуглерода и спиртового раствора КОН, дает лишь дитион LII [46, 47].

Из триметилзамещенного тиокарбогидразида взаимодействием с сероуглеродом получена соль LV; ее дальнейшее метилирование приводит к соединению LVI [48].

LII

 $\dot{N}H_2$

LШ

LIV

Другими методами синтеза 4-амино-1,2,4-триазолин-3-тионов являются двухступенчатая циклизация тиосемикарбазида LVII под действием иминоэфиров или ортоэфиров [49], а также циклизация 1-тиобензоилтиокарбогидразидов LVIII в щелочных условиях [50].

Описан синтез $1-R^2$ -3-R-4-амино-1,2,4-триазолин-5-тионов (LIX) рециклизацией 1,3,4-тиадиазолов LX под действием гидразина [43, 51].

$$\begin{array}{c|c}
N & N & N & N_2H_4 \cdot H_2O & N & N & N^2 \\
R & S & R^1 & -HR^1 (R^2 = H) & R & N & N & N \\
LX & & N & N & N & N & N \\
LX & & LIX
\end{array}$$

R = H, Alk, NHAr; $R^1 = Cl$, NH₂, SO₂Alk, SH

При кипячении в пиридине 1,5-ди (фенилтиокарбамоил) тиокарбогидразида образуется смесь соединений LXI—LXIII с выходом 44, 33 и 7% соответственно [52].

В настоящее время 4-амино-1,2,4-триазолин-3-тионы (XLIV) чаще всего получают по методу Хоггарта [53]. В качестве исходных веществ при этом используют гидразиды кислот, которые при действии сероуглеродов в присутствии КОН превращаются в ацилдитиокарбазаты LXV. Их подвергают метилированию, полученные метиловые эфиры при нагревании с гидразином циклизуются с образованием соединений XLIV.

Позже Рейд и сотрудники показали, что соединения XLIV можно получать циклизацией с гидразином и дитиокарбазатов LXV [54]. Они предложили также еще одну модификацию метода Хогтарта, заключающуюся в предварительном превращении соединений LXV при действии оснований в 5-R-1,3,4-оксадиазолин-2-тионы (LXVI) с последующей их рециклизацией при нагревании в гидразине. Предполагается, что оксадиазолы LXV образуются в качестве промежуточных продуктов и при обработке солей LXIV гидразином. Действительно, в литературе имеются данные о превращении оксадиазолов LXV в соединения XLVI при действии гидразина [55].

Метод Хоггарта и его модификации использовались для синтеза широкого круга 5-алкил- [56-59], 5-арил- [60-64] и 5-гетарилироизводных 4-амино-1,2,4-триазолин-3-тиона [65-67].

3.2. Прямое введение меркаптогруппы в триазольное кольцо

Путем тиолирования солей 4-амино-2-алкил-1,3,4-триазолия были получены 4-амино-1,2,4-триазолин-5-тионы LIX [68, 69].

Известен также метод синтеза 4-амино-1,2,4-триазолин-3-тиона (XLVI, R = H) тиолированием 4-бензилиденамино-1,2,4-триазола (LXVII) с последующим гидролизом бензилиденаминогруппы [23].

Описано два способа синтеза 1-амино-1,2,4-триазолин-5-тионов. Первый заключается в тиолировании 1-амино-4-аралкил-1,2,4-триазолийбромидов (LXVIII) серой в пиридине в присутствии триэтиламина [70].

Во втором случае тиолированию подвергались 1-бензилиденаминопроизводные LXIX. Выход тионов LXX составил 35% [23].

4. ДРУГИЕ N-АМИНОАЗОЛИНТИОНЫ

В патентном источнике упоминаются аминооксазолидинтионы LXXI [70], однако метод их синтеза не приведен. Единственным упоминанием о меркаптопроизводных N-амино-1,2,3-триазола является синтез соединения LXXII в результате рециклизации 5-хлор-4-этоксикарбонил-1,2,3-тиадиазола (LXXIII) [72].

 $R, R^1 = Aik; R^2 = Ph, Het; R^3 = Hal, Me, Ac$

5. N-АМИНОПИРИДИНТИОНЫ

Известные методы синтеза α -меркаптопроизводных N-аминоазинов включают циклизацию подходящих нециклических соединений, рециклизацию, а также замещение оксогруппы на тиогруппу. В отличие от N-аминоазолинтионов для N-аминоазинтионов, по-видимому, не описаны случаи прямого тиолирования гетероциклических колец.

Наиболее изученным представителем α -меркапто-N-аминопиридинов является 1-амино-4,6-дифенилпиридин-2-тион (LXXIV), синтезированный впервые Молина и сотрудниками с помощью двух методов: заменой кислорода на серу в 1-аминопиридоне-2 (LXXV) при обработке с P_2S_5 [73] и рециклизацией 4,6-дифенилпиран-2-тиона (LXXVI) при действии гидразингидрата [74—76]. Подвергнуть аналогичной рециклизации 4,6-диметилпиран-2-тион не удалось [77].

Имеются данные о синтезе 1,6-диаминопиридин-2-тиона LXXVII рециклизацией с гидразингидратом тиопиран-2-тиона LXXVII [78, 79]. Аналогично был получен аминотион LXXIX.

6. N-АМИНОПИРИМИДИНТИОНЫ

Общий метод синтеза 1-аминопиримидин-2-тионов заключается в циклизации изотиоцианатов типа LXXX и LXXXI с гидразином или его монозамещенными. Таким образом с высоким выходом были получены соединения LXXXII [80—82] и LXXXIII [83—86].

$$\begin{array}{c|c} \text{CIO}_4^- & \text{N} & \text{RNHNH}_2 \\ + & \text{C} & \text{C} \\ \text{Me}_2 \text{N} & \text{C} & \text{C} \\ & & \text{LXXX} & \text{NHR} \\ \text{LXXXII} \end{array}$$

R = H, Alk, Ar, AlkCO, PhCO, EtOCO

 $R, R^1, R^2 = H, Me, Ph$

Другой способ получения N-аминопиримидин-2-тионов — циклоконденсация тиосемикарбазида с малонодинитрилом [87].

$$H_2C$$
 H_2N
 H_2N

Реакция 1-амино-4-метилпиримидин-6-она (LXXXIV) с P_2S_5 дает пиримидин-6-тион (LXXXV) [88].

$$\begin{array}{c|c}
O & & & & & & & & & \\
N & NH_2 & & & & & & & \\
Me & N & X & & & & & \\
N & NH_2 & & & & & \\
N & NH_2 & & & & \\
Me & N & X & & \\
LXXXIV & & & LXXXV
\end{array}$$

$$X = O, S$$

При получении 3-аминохиназолин-4-он-2-тиона (LXXXVI) в качестве исходного соединения использовался метиловый эфир *о*-аминобензойной кислоты (LXXXVII), который последовательно обрабатывали сероуглеродом в присутствии поташа, диметилсульфатом и гидразингидратом (80%) [89].

Из гидразидов 5-R-2-аминобензойной кислоты (LXXXVIII) и сероуглерода были синтезированы соединения LXXXIX [90].

$$\begin{array}{c|c} CONHNHR^1 & CS_2 & R & NHR^1 \\ \hline NH_2 & EtOH, -H_2S & H \\ LXXXVIII & LXXXIX \end{array}$$

R = H, Cl; $R^1 = H$, Me

Метиловый эфир *о*-изотиоцианатобензойной кислоты (XC) дает при нагревании с гидразингидратом 3-аминохиназолин-4-он-2-тион (LXXXVI) [91].

$$N_{CO_2Me}$$
 $N_2H_4 \cdot H_2O$
 $N_2H_4 \cdot H_2O$

3-Амино-2-R-хиназолин-4-тионы (XCI) синтезированы рециклизацией 2-R-1,3-бензотиазин-4-тиона (XCII) при действии на него гидразина, фенилтидразина или семикарбазида [92].

$$\begin{array}{c|c} S & S & NHR^1 \\ \hline N & -H_2S & NHR^2 \\ \hline XCII & XCII & XCII & XCII \\ \end{array}$$

 $R = Alk, Ar; R^1 = H, Ph, CONH_2$

В результате взаимодействия 2,4,6-трифенилпирилийперхлората (XCIII) с тиокарбогидразидом получают пиразолин XCIV, который при последующем кипячении с ацилхлоридами с выходом 61...67% превращается в соединение XCV, выделенное в виде гидрохлорида [93].

Ph
$$CIO_4$$
 + H_2NHN S $EtOH$ Ph N $CNHNH_2$ Et_3N $NHCOR$ CH_2COPh $XCIV$ $R = Me, Ar$

7. N-АМИНО-1,2,4-ТРИАЗИНТИОНЫ

 α -Меркаптопроизводные N-амино-1,2,4-триазинов получают конденсацией тиокарбогидразида с дикарбонильными соединениями. При этом реакция с α -кетокислотами дает 4-амино-6-R-1,2,4-триазин-5-он-3-тионы (XCVI) [94—96], тогда как в случае фенилглиоксаля с выходом 70% получается тион XCVII [97]. При использовании 3-фенилтиокарбогидразида и диацетила или 2-метилтиокарбогидразида и пировиноградной кислоты были получены соответственно тионы XCVIII [97] и XCIX [98].

 $R^1 = Me$, Ph, CH₂Ph, NHPh

При использовании в качестве скрытой карбонильной компоненты пирилиевой соли С образуется мезоионный бициклический аминотион CI **1991.**

В заключение следует заметить, что, несмотря на очевидные успехи в синтезе Ν-амино-α-меркаптопроизводных азолов и азинов, представители этого класса все еще остаются неизвестными. Так, до сих пор не описано ни одного N-аминопиразолинтиона, не известны 1-аминоперимидин-2-тионы со свободной группой N₃H, производные N-аминопиразина и N-аминопиридазинтионов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Kuz'menko V. V., Pozharskii A. F. // Adv. Heterocycl. Chem. 1992. Vol. 53. P. 85.
- 2. Tamura Y., Tsubouchi H., Doi E., Ikeda M. // Chem. Pharm. Bull. 1983. Vol. 31. P. 1378.
- 3. Штефан Е. Д., Введенский В. Ю. // Успехи химии. —1996.— Т. 65, № 4. С. 326.
- 4. Fischer E., Hunsalt P. // Chem. Ber. 1894. Bd 27, N 8. S. 2203.
- 5. Yamazaki C., Taira S., Okawa T. // Chem. Lett. 1972. N 4. P. 617.
- Yamazaki C. // Bull. Chem. Soc. Ipn. 1978. Vol. 51. P. 1846.
 Yamazaki C. // Tetrah. Lett. 1978. N 15. P. 1295.
- 8. Yamazaki C., Miyamoto Y., Tzakada N. // J. Chem. Res. Synop. 1992. N 6. P. 188. 9. Hetzheim A., Al-Sultan T. // Z. Chem. 1965. Bd 5. S. 378.
- 10. Beyer H. // Z. Chem. 1970. Bd 10, N 8. S. 289.
- 11. Pyl T., Waschk F., Beyer H. // Lieb. Ann. Chem. 1963. Bd 663. S. 113.
- 12. Jacobsen N., Toelberg J. // Synthesis. 1986. N 7. P. 559.
- 13. Molina P., Arques A., Alias M. A. // Tetrahedron. 1990. Vol. 46, N 12. P. 4353.
- 14. Schantl J. G., Prean M. // Monatsh. Chem. 1993. Bd 124, N 3. S. 229.
- 15. Temple C. J. // J. Med. Chem. 1990. Vol. 33, N 2. P. 656.
- 16. Крышталюк О. В., Кузьменко В. В., Пожарский А. Ф. // ЖОрХ. 1992. T. 28, вып. 11. — С. 2328.
- 17. Брукштус А., Сирвидите А. // ХГС. 1996. \mathbb{N}^{2} 2. С. 214.

- Link A., Klotzer W., Karpitschka E. M., Montaron M., Mussner R., Singewald N. // Angew. Chem. — 1990. — Bd 102, N 5. — P. 559.
- Кузьменко В. В., Кузьменко Т. А., Пожарский А. Ф., Крышталюк О. В. // XГС. 1990. № 12. — С. 1689.
- Кузьменко Т. А., Кузьменко В. В., Крышталюк О. В., Пожарский А. Ф. // ХГС. 1992. № 12. — С. 1689.
- Дябло О. В. // Синтез и свойства 1-аминобензимидазолин-2-тионов и 1-аминоперимидинов. Канд. дисс. Ростов-на-Дону, 1996. С. 110.
- Дябло О. В., Пожарский А. Ф., Кузьменко В. В. // Изв. АН. Сер. хим. 1995. № 11. С. 2231.
- 23. Кузьменко В. В., Пожарский А. Ф., Кузьменко Т. А., Крышталюк О. В. // ЖОрХ. 1993. Т. 29, вып. 9. С. 1896.
- 24. Sandstrom J. // Arkiv Kemi. 1954. Vol. 7. P. 249; C. A. 1956. Vol. 50. 313e.
- 25. Sandstrom J. // Arkiv Kemi. 1955. Vol. 9. P. 127; C. A. 1956. Vol. 50. 13049c.
- 26. Beyer H. // Z. Chem. 1969. Bd 9, N 10. S. 361.
- Molina P., Arques A., Velasco M. D., Villalgordo J. M. // Heterocycles. 1987. Vol. 26, N 5. — P. 1323.
- 28. Sato T., Ohta M. // Yakugaku Zasshi. 1957. Vol. 77, N 5. P. 771// C. A. 1957. Vol. 51. 17941c.
- Schildknecht H., Enkmann F., Gessner K., Penzien K., Romer F., Volkept O. // Angew. Chem. — 1966. — Bd 78, N 18—19. — S. 841.
- 30. Ege G. // Angew. Chem. 1967. Bd 79, N 13. S. 618.
- 31. Stolle R., Bowles P. E. // Chem. Ber. 1908. Bd 41. S. 1099.
- 32. Beyer H., Kloger C. F. // Lieb. Ann. Chem. 1960. Bd 637. S. 135.
- Sandstrom J. // Acta Chem. Scand. 1960. Vol. 14. S. 1032; C. A. 1962. Vol. 56. 5949g.
- 34. Pat. 1.058.844 Ger. / Lassig W., Gunther E. // C. A. 1961. Vol. 55. 26806g.
- 35. Konig H.-B., Srfken W., Offe H. A. // Chem. Ber. 1954. Bd 87, N 6. S. 825.
- 36. Pat. 953.802 Ger. // Konig H.-B., Offe H. A. // C. A. 1959. Vol. 53. 4309.
- 37. Potts K. T., Huseby R. M. // J. Org. Chem. 1966. Vol. 31, N 11. P. 3528.
- 38. Gakhar H. K., Gill J. K. // Monatsh. Chem. 1985. Bd 116, N 6. S. 633.
- 39. Bazaraa H. H., Amin F. E. M., Add El-Fattah B., Khalifa M. // Egipt. J. Pharm. Sci. 1989. Vol. 30, N 1—4. P. 473; C. A. 1990. Vol. 112. 216878w.
- Prasad A. R., Ramalingam T., Rao A. B., Diwan P. V., Sattur P. B. // Eur. J. Med. Chem. 1989. — Vol. 24, N 2. — P. 199.
- Chandra S. G., Khayer K., Rabiul I. M., Shabuddin K. C. M. // Ind. J. Chem. B. 1992. Vol. 31B, N 8. — P. 547.
- 42. Kroger C. F., Tenor E., Beyer H. // Lieb. Ann. Chem. 1961. Bd 643. S. 121.
- 43. Kurzer F., Wilkinson M. // J. Chem. Soc. (C). 1968. N 16. P. 2099.
- 44. Sandstrom J. // Acta Chem. Scand. 1961. Vol. 15. S. 1295; C. A. 1962. Vol. 57. 12471f.
- 45. Petri N. // Z. Naturforsch (B). 1961. Bd 16. S. 767.
- 46. Guna P. C., De S. C. // J. Chem. Soc. 1924. Vol. 125, N 6. P. 1215.
- 47. Lutz A. W. // J. Org. Chem. 1964. Vol. 29, N 5. P. 1174.
- 48. Anthoni V., Larsen C., Nielson P. H. // Acta Chem. Scand. 1968. Vol. 22. S. 309.
- 49. Malbec F., Milcent R., Barlier G. // J. Heterocycl. Chem. 1984. Vol. 21, N 6. P. 1689.
- 50. Esmail R., Kurzer F. // J. Chem. Soc. Perkin. Trans. I. 1975. N 8. P. 1787.
- Saikachi H., Kanaoka M. // Yakugaki Zasshi. 1962. Vol. 82. P. 683; C. A. Vol. 58. 4543d.
- 52. Dornow A., Paucksch H. // Chem. Ber. 1966. Bd 99, N 1. S. 81.
- 53. Hoggarth E. // J. Chem. Soc. 1952. N 12. P. 4811.
- 54. Reid J. R., Heindel N. D. // J. Heterocycl. Chem. 1976. Vol. 13, N 4. P. 925.
- 55. Pat. 953.801 Ger./ Konig H. B., Offe H. A.// C. A. 1959. Vol. 53. N 4309.
- 56. Pat. 3.183.241 USA / Oja P. D. // C. A. 1965. Vol. 63. 4305f.
- 57. Dickinson R. G., Jacobsen N. D. // Chem. Commun. 1970. Vol. 24. P. 1719.
- 58. Potts K. T., Hirsch C. // J. Org. Chem. 1968. Vol. 33, N 1. P. 143.
- Hosur M. C., Talawar M. B., Bennur R. S., Bennur S. C., Patil P. A., Sambrekar S. // Ind. J. Pharm. Sci. — 1993. — Vol. 55, N 3. — P. 86.
- 60. Kurzer F., Wilkinson M. // J. Chem. Soc. (C). 1969. N 9. P. 1218.
- 61. Saroki T., Ito E. // J. Heterocycl. Chem. 1981. Vol. 18, N 11. P. 1353.
- 62. Mohan J., Anjaneyulu G. S. R., Verma P. // Current Sci. 1989. Vol. 58, N 18. P. 1028.
- 63. Abdel-Hamid H. A., Shiba S. A., El-Khamry A.-M. A., Youssef A. S. A. // Phosph., Sulfur and Silicon and Relat. Elem. 1992. Vol. 72., N 1—4. P. 237.
- Goswami B. N., Sarmah K. J. C., Baruah J. N. // J. Heterocycl. Chem. 1984. Vol. 21, N 4. — P. 1225.
- 65. Ajello E., Migliara O., Sprio V. // J. Heterocycl. Chem. 1972. Vol. 9, N 5. P. 1169.
- 66. Ajello E., Arnone C. // J. Heterocycl. Chem. 1973. Vol. 10, N 1. P. 103.
- 67. Соколов С. В., Постовский И. Я. // ЖОХ. 1960. Т. 30, № 6. С. 1781.

- Becker H. G. O., Heimburger K., Timpe H.-J. // J. Prakt. Chem. 1971. Bd 313, N 5. S. 795.
- 69. Becker H. G. O., Nagel D., Timpe H.-J. // J. prakt. Chem. 1973. Bd 315, N 1. S. 97.
- 70. Laus G., Klotzer W. // Synthesis. 1990. N 8. P. 707.
- 71. Pat. 9.318.016 USA / Campbell G. L., Gross C. M., Sternberg J. A., Sun K. M. // C. A. 1994. Vol. 120. 10698p.
- Feneau-Dupont J., Declercq J. P., Venderstede E., L'abbe G. // Bull. Soc. chim. Belg. 1989. Vol. 98, N 6. P. 413.
- 73. Molina P., Soler A., Vilaplana M. J. // An. Quim. 1978. Vol. 74, N 12. P. 1544.
- 74. Molina P., Vilaplana M. J., Soler A. // An. Quim. 1978. Vol. 74, N 11. P.1018.
- 75. Perez R. T., Hernandez C. M., Martinez L. C., Sanchez-Pedreno C., Molina P. // An. Quim. B.—1981. Vol. 77, N I. P. 98.
- 76. Perez R. T., Sanchez-Pedreno C., Hernandez C. M., Martinez L. C., Molina P. //Anal. Chim. Acta. 1982. Vol. 143. P. 185.
- 77. Molina P., Arques A., Hernandez C. M. // Synthesis. 1983. N 12. P. 1021.
- 78. Gewald V. K., Buchwalder M., Peukert M. // J. Prakt. Chem. 1973. Bd 315, N 4. S. 679.
- 79. Molina P., Tarraga A., Garcia C. // Heterocycles. 1988. Vol. 27, N 3. P. 733.
- 80. Pat. 138.205 Ger. // Leibscher J., Hartmann H. // C. A. 1980. Vol. 92. 128956h.
- 81. Leibscher J., Hartmann H. // J. prakt. Chem. 1982. Bd 324, N 6. S. 942.
- 82. Katoh A., Nishio T., Kashima C. // Heterocycles. 1987. Vol. 26, N 8. P. 2223.
- 83. Mathes R. A. // J. Amer. Chem. Soc. 1953. Vol. 75, N 7. P. 1747.
- Heydenhaub D., Hofmann F., Janecke G., Voigt H. // Z. Chem. 1975. Bd 15, N 12. S. 476.
- 85. Weber F. G., Pusch U., Brauer B. // Pharmazie. 1978. Vol. 34, N 7. S. 433.
- 86. Janecke G., Voigt H., Hofmann F., Feuersfein B. // Z. Chem. 1984. Bd 24, N 12. S. 437.
- 87. Taylor E. S., Morrison R. W. // J. Org. Chem. 1967. Vol. 32, N 8. P. 2379.
- 88. Tsuji T., Otsuka Y. // Chem. Pharm. Bull. 1978. Vol. 26, N 9. P. 2765.
- 89. Pathak U. S., Devani M. B., Shishoo C. J., Kulkarni R. R., Rakholia V. M., Bhadti V. S., Ananthan S., Dave M. G., Shah V. A. // Ind. J. Chem. B. 1986. Vol. 25B, N 5. P. 489.
- Liu K. C., Hu M. K., Lin Y. O. // Chung-hua Yao Hsenh Tsa Chin. 1990. Vol. 42, N 1. —
 P. 83; C. A. 1991. Vol. 114. 23910h.
- 91. Cherbubier E., Willhalm B., Jaccord S., Rabinowitz J. // Helv. Chim. Acta. 1967. Vol. 50, N 8—9. P. 2563.
- 92. Legrand L., Lozac'h N. // Bull. Soc. chim. France. 1961. N 7. P. 1400.
- 93. Molina P., Tarraga A., Serrano C. // Tetrahedron. 1984. Vol. 40, N 23. P. 4901.
- 94. Dornow A., Menzel H., Marx P. // Chem Ber. 1964. Bd 97, N 8. S. 2173.
- 95. Ханнанов Р. Н., Данилов В. А. // Всесоюз. совещ. по хим. реакт. Тез. докл. Ашхабад, сентябрь 1990. — Т. 1. С. 176; РЖХ. 1990. 2Ж266.
- 96. Abdel-Hady S. A., Badawy M. A. // Sulfur Lett. 1990. Vol. 11, N 4—5. P. 185.
- 97. Зеленин К. Н., Алексеев В. В. // ХГС. 1993. № 2. С. 267.
- 98. Molina P., Alajarin M., Navarro F. J. // Heterocycles. 1986. Vol. 24, N 5. P. 1031.
- 99. Molina P., Tarraga A., Lorenzo P. M. // Synthesis. 1984. N 8. P. 694.

Ростовский государственный университет, Ростов-на-Дону 344090 Поступило в редакцию 16.10.96