

Н. Н. Колос^{1*}, Н. В. Чечина¹, Л. Л. Замигайло², Е. В. Ващенко²ПРОСТОЙ И ЭФФЕКТИВНЫЙ СИНТЕЗ
ТРИЗАМЕЩЁННЫХ ИМИДАЗОЛОВ

Однореакторной трёхкомпонентной конденсацией гидратов арилглиоксалеи, 1,3-диметилбарбитуровой кислоты, солей гуанидина либо гидроиодида метилизотиурония в условиях термической (микроволновой) активации синтезированы 2-амино-5-арил- и 5-арил-2-метилсульфанилимидазолы соответственно, содержащие остаток 1,3-диметилбарбитуровой кислоты. Обнаружено неожиданное протекание конденсации в случае гидрохлорида гуанидина, приводящее к 5-(2-арил-2-оксоэтил)-1,3-диметилбарбитуровым кислотам. 2-Амино-4-арилимидазолы в условиях трёхкомпонентной конденсации образуют аддукты Михаэля при участии 5-(2-арил-2-оксоэтилен)-1,3-диметилбарбитуровых кислот и атома С-5 имидазольного цикла.

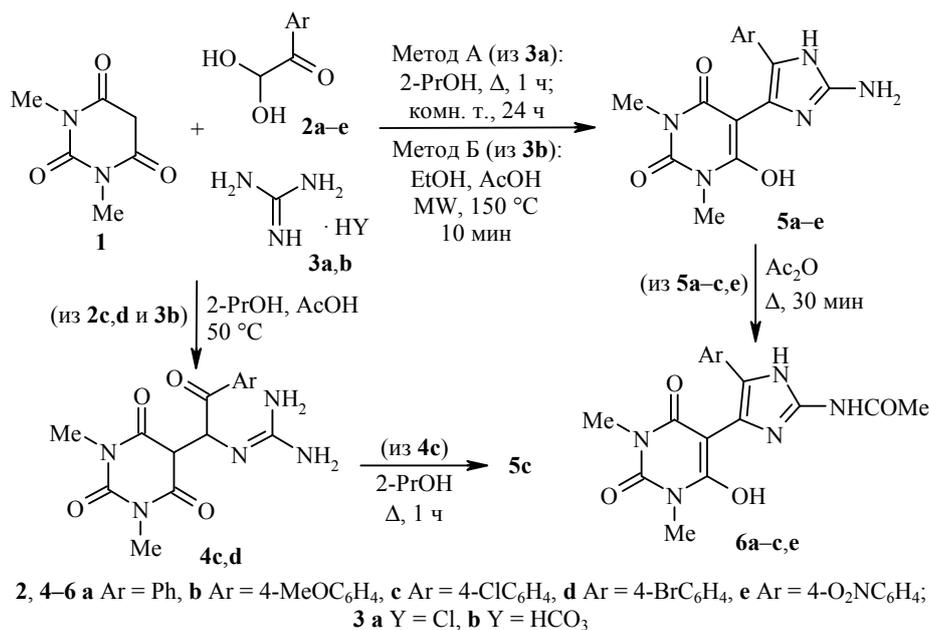
Ключевые слова: аддукты Михаэля, 5-(2-амино-5-арилимидазол-4-ил)-1,3-диметилбарбитуровые кислоты, арилглиоксали, 5-(5-арил-2-метилсульфанилимидазол-4-ил)-1,3-диметилбарбитуровые кислоты, 5-(2-арил-2-оксоэтил)-1,3-диметилбарбитуровые кислоты, гидроиодид метилизотиурония, 1,3-диметилбарбитуровая кислота, соли гуанидина.

Производные имидазола входят в биологически важные системы (ДНК, РНК, белки). Имидазольный гетероцикл является составной частью многих лекарственных препаратов различного действия: анальгетиков [1–3], сердечно-сосудистых [4], противовирусных, антимикробных [5–7] и противоопухолевых [8–10] препаратов, антидепрессантов [9], выступают ингибиторами гистаминовых рецепторов и протеиновых киназ [11–14]. Особенно интересны в этом плане три- и тетразамещённые производные имидазола [1, 14].

Основной подход к синтезу 2,4,5-тризамещённых имидазолов включает однореакторную конденсацию α -дикетонных, ароматических альдегидов и ацетата аммония в присутствии кислых [15–17] либо основных [18, 19] катализаторов, солей редкоземельных металлов [17], нанокатализаторов [20], L-пролина [21].

Ранее нами были разработаны однореакторные синтезы 2,4,5-тризамещённых тиазолов на основе циклических β -дикарбонильных соединений (1,3-диметилбарбитуровая кислота, циклогександион-1,3, 4-гидроксикумарин), арилглиоксалеи и тиоамидов [22–24], причём однореакторные конденсации с участием *N*-метилтиомочевины, диметилбарбитуровой кислоты и арилглиоксалеи проходили нерегиоселективно: наблюдалось образование производных как 2-метиламинотиазолов, так и 1-метил-2-меркаптоимидазолов [25].

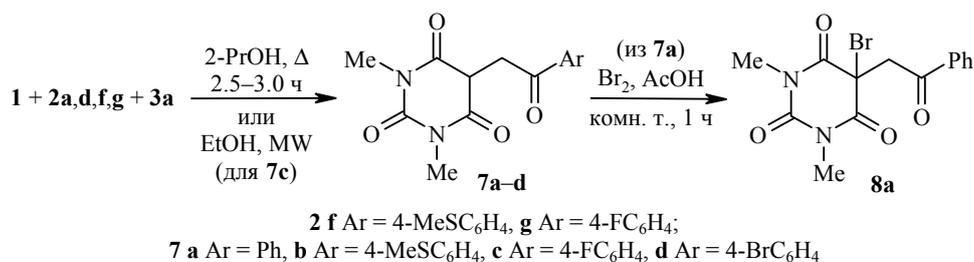
С целью расширения синтетического потенциала найденного подхода к замещённым пятичленным гетероциклам мы осуществили трёхкомпонентную конденсацию 1,3-диметилбарбитуровой кислоты (**1**), гидратов арилглиоксалеи **2a–e** и гуанидинов **3a,b**. Установлено, что конденсация с участием гидрохлорида гуанидина (**3a**) при кипячении в 2-PrOH ведёт к образованию 2-аминоимидазолов **5a–e** с хорошими выходами (55–70%). Эти же производные были выделены с более высокими выходами (65–72%) и в условиях микроволновой активации с использованием карбоната гуанидина (**3b**).



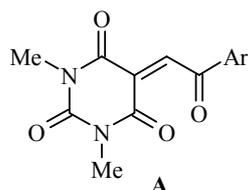
Строение имидазолов **5a–e** хорошо согласуется с данными элементного анализа, результатами спектроскопии ЯМР ¹H, ¹³C и масс-спектрометрии. Формирование имидазольного цикла включает стадию образования интермедиатов **4**. Соединения **4c,d** были выделены при перемешивании пиримидинтриона **1**, арилглиокселей **2c,d** и карбоната гуанидина (**3b**) в 2-PrOH с добавлением AcOH при температуре 50 °C. В спектрах соединений **4c,d** наблюдается шестипротонный синглет метильных групп пиримидинового фрагмента, АВ-система метиновых протонов, четырёхпротонный синглет двух аминогрупп, а также А₂X₂-система ароматических протонов. В масс-спектрах проявляются пики молекулярных ионов, а их фрагментация включает отщепление молекулы воды. Кипячением гуанидина **4c** в изопропанолу получен целевой имидазол **5c** с выходом 71%.

Ацелированием соединений **5a–c,e** в уксусном ангидриде были синтезированы ацетилпроизводные **6a–c,e**. Отметим, что в спектрах ЯМР ¹H соединений **6a–c,e** отсутствуют протоны 6-гидроксигруппы вследствие быстрого обмена с водой, присутствующей в дейтерорастворителе. По той же причине не всегда проявляются и сигналы NH-протонов имидазольного цикла.

Однако более продолжительное (>2.5 ч) кипячение реакционной смеси, содержащей пиримидинтрион **1**, гидраты арилглиокселей **2a,d,f,g** и гуанидин **3a**, в 2-PrOH привело к образованию кетонов **7a–d** с хорошими выходами. Соединение **7c** с выходом 73% было также получено и при микроволновом облучении исходных реагентов в EtOH.



Важно отметить, что кетоны **7** не были выделены в отсутствие соли **3a**. Длительное кипячение (≈ 4 ч) имидазола **5a** в 2-PrOH также не сопровождается его трансформацией в кетон **7a**. По-видимому, 1,3-диметил-5-фенацилбарбитуровые кислоты **7a–d** образуются в результате восстановления непредельных кетонов **A**, которые, наряду с непрореагировавшим гуанидином, обнаружены в реакционной смеси методом ТСХ. Вопрос о том, что является восстановителем в системе, не совсем понятен и требует дополнительных исследований. Хотелось бы отметить, что использование в однореакторном синтезе полторакратного мольного избытка соли **3a** либо гидрата арилглиоксаля **2** не приводит к заметному изменению выходов кетонов **7**.



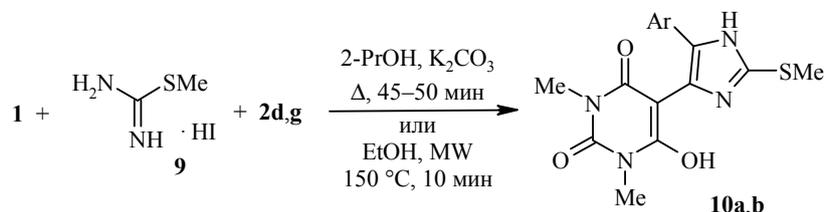
Для соединений **7a–d** в спектрах ЯМР ^1H наблюдаются синглеты протонов метильных групп пиримидинового цикла, мультиплеты ароматических протонов, а также дублеты и триплеты протонов метиновой и метиленовой групп. В спектре ЯМР ^{13}C соединения **7b** наблюдается сигнал атома углерода карбонильной группы при 190 м. д. Первый представитель ряда – кетон **7a** был описан в литературе [26] и получен алкилированием 1,3-диметилбарбитуровой кислоты фенацилбромидом.

Ранее нами было показано, что формирование имидазольного либо тиазольного цикла в аналогичных трёхкомпонентных конденсациях с участием мочевины либо тиомочевины может проходить через стадию енонов **A**, описанных в работе [27]. В то же время образование восстановленных кетонов **7** при этом не наблюдалось, что можно объяснить достаточно быстрым выведением промежуточного кетона из реакции взаимодействием с 1,3-биснуклеофилами с образованием пятичленных гетероциклов.

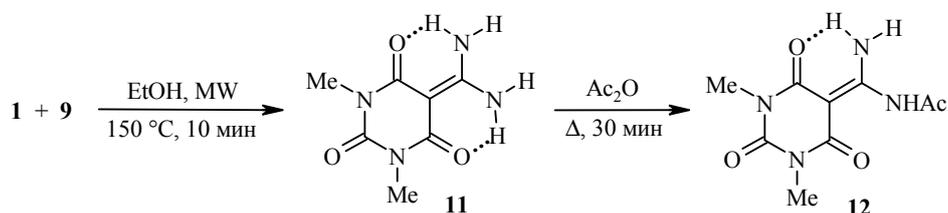
Бромирование кетона **7a** в уксусной кислоте позволило выделить 5-бромпроизводное **8a**. В спектре ЯМР ^1H соединения **8a** исчезает триплет метинового протона, а протоны метиленовой группы проявляются в виде синглета. Следовательно, бромирование проходит через енолизацию в пиримидиновом фрагменте молекулы.

Трёхкомпонентная конденсация триона **1** и соединений **2d,g** с гидриодидом метилизотиурония (**9**) была проведена в условиях микроволновой активации, что позволило синтезировать 2-метилсульфанилзамещённые имидазолы **10a,b** с примесью кетонов **7c,d**. Выходы соединений **10a,b** при этом не превышали 10%. В то же время кипячение исходных реагентов в спиртах (EtOH, 2-PrOH) привело к целевым продуктам **10a,b** с низкими выходами (30–35%). В отсутствие арилглиокселей такое взаимодействие при микроволновой активации сопровождается элиминированием молекулы метилмеркаптана и образованием 5-(диаминометилиден)-1,3-диметилбарбитуровой кислоты (**11**). В спектре ЯМР ^1H соединения **11** проявляется синглет протонов метильных групп пиримидинового цикла и двухпротонные синглеты неэквивалентных протонов аминогруппы при 7.25 и 9.45 м. д., исчезающие при проведении дейтерообмена. Неэквивалентность атомов водорода

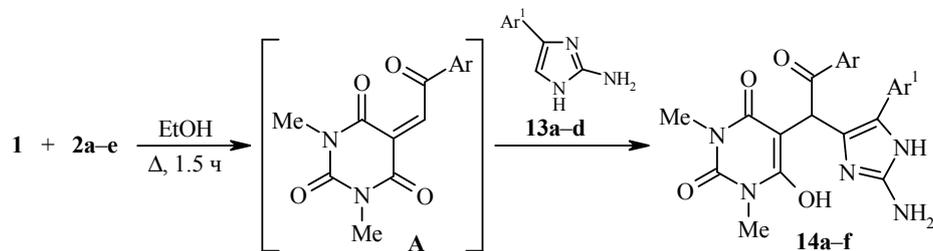
в аминогруппах обусловлена, по-видимому, существованием внутримолекулярных водородных связей в молекуле. Ацилирование соединения **11** уксусным ангидридом приводит к ацетильному производному **12**, спектр ЯМР ^1H которого характеризуется появлением трёх слабых сигналов обменных протонов в области 9.78–13.45 м. д.



10 a Ar = 4-BrC₆H₄, **b** Ar = 4-FC₆H₄



Нами была также исследована аналогичная трёхкомпонентная конденсация триона **1** и соединений **2a–e** с участием циклических 1,3-бинуклеофилов – 2-амино-4-арилимидазолов **13a–d**. Выделенные из реакционной смеси светло-бежевые соединения **14a–f**, по данным спектроскопии ЯМР ^1H и элементного анализа (для некоторых производных – спектров ЯМР ^{13}C и масс-спектров), оказались продуктами нуклеофильного присоединения атома С-5 имидазольного цикла по двойной связи енона **A**. Так, в спектрах ЯМР ^1H аддуктов **14a–f** проявляются шестипротонные синглеты метильных групп пиримидинового цикла, синглет метинового протона в области 5.84–5.97 м. д., мультиплеты ароматических протонов. Сигналы протонов аминогруппы иногда попадают в область ароматических протонов, но легко определяются при проведении дейтерообмена. Такое поведение 2-амино-4(5)-арилимидазолов по отношению к еноновым системам хорошо известно в литературе: наиболее нуклеофильный центр молекулы – атом С-4 либо С-5 – имидазольного цикла принимает участие в образовании соответствующих аддуктов Михаэля, которые в ряде работ были выделены и изучены [28, 29].



13 a Ar¹ = 4-BrC₆H₄, **b** Ar¹ = 4-MeSO₂C₆H₄, **c** Ar¹ = 4-MeC₆H₄, **d** Ar¹ = 4-FC₆H₄;

14 a Ar = Ph, Ar¹ = 4-BrC₆H₄; **b** Ar = 4-BrC₆H₄, Ar¹ = 4-MeSO₂C₆H₄;

c Ar = 4-MeOC₆H₄, Ar¹ = 4-MeSO₂C₆H₄; **d** Ar = 4-BrC₆H₄, Ar¹ = 4-MeC₆H₄;

e Ar = 4-O₂NC₆H₄, Ar¹ = 4-MeC₆H₄; **f** Ar = 4-ClC₆H₄, Ar¹ = 4-FC₆H₄

Таким образом, нами предложены удобные одnoreакторные методы синтеза тризамещённых имидазолов с участием 1,3-диметилбарбитуровой кислоты, гидратов арилглиокселей и азотсодержащих 1,3-бинуклеофилов различной природы.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Спектры ЯМР ^1H записаны на приборе Varian Mercury VX-200 (200 МГц), спектры ЯМР ^{13}C – на спектрометре Bruker AM-400 (100 МГц) в DMSO-d_6 , внутренний стандарт ТМС. Масс-спектры зарегистрированы на приборе Hewlett-Packard LC/MSD 1100, ионизация ЭУ, 70 эВ. Элементный анализ выполнен на приборе LECO CHNS-900. Температуры плавления определены на столике Кофлера. Контроль за протеканием реакций и чистотой полученных соединений осуществлялся методом ТСХ на пластинах Silufol UV-254 в системах PhMe-EtOAc , 1:1, и $\text{CH}_2\text{Cl}_2\text{-2-PrOH}$, 10:1, проявитель – пары иода. В экспериментах с микроволновым облучением использовали реактор Smith Creator (100 Вт, 2.4 ГГц, моноמודовая камера).

2-[2-Арил-1-(1,3-диметил-2,4,6-триоксогексагидропиримидин-5-ил)-2-оксоэтил]-гуанидины 4с,d (общая методика). Смесь 156 мг (1.0 ммоль) пиримидинтриона **1**, 1.0 ммоль арилглиокселя **2с,d**, 121 мг (1.0 ммоль) карбоната гуанидина (**3b**) и 3 мл ледяной AsOH в 10 мл 2-PrOH перемешивают при 50 °С в течение 30–45 мин до выпадения белого осадка. Продукт отфильтровывают, промывают 2-PrOH.

2-[1-(1,3-Диметил-2,4,6-триоксогексагидропиримидин-5-ил)-2-оксо-2-(4-хлорфенил)этилгуанидин (4с). Выход 0.25 г (68%), белый аморфный порошок, т. пл. 227–228 °С (с разл.). Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.99 (6H, с, 2NCH_3); 4.54 (1H, д, $J = 4.8$, 5-CH); 5.73 (1H, д, $J = 4.8$, COCHN); 6.94 (4H, с, 2NH_2); 7.45 (2H, д, $J = 7.6$, H-3,5 Ar); 7.91 (2H, д, $J = 7.6$, H-2,6 Ar). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 27.2 (2NCH_3); 70.8 (C-5); 87.6 (COCHN); 128.5, 129.9, 134.8, 137.3 (C Ar); 153.2 (C=N); 159.2 (C=O); 162.0 ($2\text{C}=\text{O}$); 199.5 (C=O). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %) (для изотопа ^{35}Cl): 365 $[\text{M}]^+$ (100), 347 $[\text{M}-\text{H}_2\text{O}]^+$ (35), 277 (5), 233 (13), 198 (8), 182 (11), 156 (51), 139 (53), 111 (20), 71 (18). Найдено, %: C 49.20; H 4.38; N 19.17. $\text{C}_{15}\text{H}_{16}\text{ClN}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 49.26; H 4.41; N 19.15.

2-[2-(4-Бромфенил)-1-(1,3-диметил-2,4,6-триоксогексагидропиримидин-5-ил)-2-оксоэтилгуанидин (4d). Выход 0.29 г (71%), белый аморфный порошок, т. пл. 239–240 °С (с разл.). Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.98 (6H, с, 2NCH_3); 4.47 (1H, д, $J = 4.8$, 5-CH); 5.70 (1H, д, $J = 4.8$, COCHN); 6.91 (4H, с, 2NH_2); 7.58 (2H, д, $J = 7.6$, H-3,5 Ar); 7.84 (2H, д, $J = 7.6$, H-2,6 Ar). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 27.1 (2NCH_3); 71.0 (C-5); 87.1 (COCHN); 127.0, 129.8, 133.5, 135.9 (C Ar); 153.7 (C=N); 159.8 (C=O); 163.0 ($2\text{C}=\text{O}$); 199.0 (C=O). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %) (для изотопа ^{79}Br): 409 $[\text{M}]^+$ (100), 391 $[\text{M}-\text{H}_2\text{O}]^+$ (42), 321 (10), 277 (19), 209 (10), 198 (22), 170 (18), 156 (9), 131 (9), 116 (9), 80 (9). Найдено, %: C 43.95; H 3.89; N 17.05. $\text{C}_{15}\text{H}_{16}\text{BrN}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 43.92; H 3.93; N 17.07.

5-(2-Амино-5-арил-1H-имидазол-4-ил)-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дионы 5a–e (общая методика). А. Смесь 156 мг (1.0 ммоль) пиримидинтриона **1**, 1.0 ммоль арилглиокселя **2a–e** и 96 мг (1.0 ммоль) соли **3a** растворяют в 8–10 мл 2-PrOH, кипятят в колбе с обратным холодильником в течение 1 ч, оставляют на 1 сут при комнатной температуре. Выпавший белый осадок отфильтровывают, промывают 2-PrOH.

Б. К смеси 156 мг (1.0 ммоль) пиримидинтриона **1**, 1.0 ммоль арилглиокселя **2a–e** и 121 мг (1.0 ммоль) соли **3b** в 10 мл EtOH добавляют 5 мл ледяной AsOH , перемешивают в течение 10–15 мин на магнитной мешалке для удаления углекислого газа, затем подвергают микроволновому облучению при 150 °С в течении 10 мин. После охлаждения реакционной смеси осадок отфильтровывают, промывают EtOH.

5-(2-Амино-5-фенил-1H-имидазол-4-ил)-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (5a). Выход 0.17 г (55%, метод А), 0.20 г (65%, метод Б), белый

аморфный порошок, т. пл. 276–277 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.07 (6H, с, 2NCH_3); 6.92 (2H, с, NH_2); 7.16 (2H, д, $J = 8.0$, H-3,5 Ph); 7.25–7.28 (1H, м, H-4 Ph); 7.42 (2H, д, $J = 8.0$, H-2,6 Ph); 11.69 (1H, с, NH); 11.96 (1H, с, OH). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %): 313 [$\text{M}]^+$ (100), 285 (50), 199 (5), 132 (13), 131 (16), 130 (23), 129 (60), 104 (80), 102 (26). Найдено, %: C 57.52; H 4.79; N 22.33. $\text{C}_{15}\text{H}_{15}\text{N}_5\text{O}_3$. Вычислено, %: C 57.50; H 4.83; N 22.35.

5-[2-Амино-5-(4-метоксифенил)-1H-имидазол-4-ил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (5b). Выход 0.24 г (70%, метод А), 0.25 г (72%, метод Б), белый аморфный порошок, т. пл. 270–271 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.06 (6H, с, 2NCH_3); 3.70 (3H, с, OCH_3); 6.80–6.92 (4H, м, NH_2 , H-3,5 Ar); 7.35 (2H, д, $J = 8.6$, H-2,6 Ar); 11.62 (1H, с, NH); 12.05 (1H, с, OH). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %): 343 [$\text{M}]^+$ (100), 255 (5), 229 (14), 214 (15), 186 (5), 134 (12), 91 (6). Найдено, %: C 55.94; H 5.01; N 20.42. $\text{C}_{16}\text{H}_{17}\text{N}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 55.97; H 4.99; N 20.40.

5-[2-Амино-5-(4-хлорфенил)-1H-имидазол-4-ил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (5c). Выход 0.20 г (58%, метод А), 0.22 г (65%, метод Б), белый аморфный порошок, т. пл. 277–278 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.09 (6H, с, 2NCH_3); 7.20–7.36 (4H, м, NH_2 , H-3,5 Ar); 7.45 (2H, д, $J = 8.6$, H-2,6 Ar); 11.86 (1H, с, NH); 12.08 (1H, с, OH). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %) (для изотопа ^{35}Cl): 347 [$\text{M}]^+$ (100), 233 (10), 198 (9), 182 (10), 156 (54), 139 (56), 111 (25), 71 (22). Найдено, %: C 51.80; H 4.03; N 20.16. $\text{C}_{15}\text{H}_{14}\text{ClN}_5\text{O}_3$. Вычислено, %: C 51.81; H 4.06; N 20.14.

Имидазол **5c** также был получен кипячением в колбе с обратным холодильником в течение 0.5 ч раствора 0.15 г (0.4 ммоль) гуанидина **4c** в 8 мл 2-PrOH. По окончании реакции раствор охлаждают, осадок отфильтровывают, промывают 2-PrOH. Выход 0.10 г (71%).

5-[2-Амино-5-(4-бромфенил)-1H-имидазол-4-ил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (5d). Выход 0.23 г (59%, метод А), 0.25 г (65%, метод Б), белый порошок, т. пл. 278–279 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.06 (6H, с, 2NCH_3); 6.96 (2H, с, NH_2); 7.33 (2H, д, $J = 8.6$, H-3,5 Ar); 7.49 (2H, д, $J = 8.6$, H-2,6 Ar); 11.72 (1H, с, NH); 12.02 (1H, с, OH). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 27.3 (2NCH_3); 78.1 (C-5); 119.6 (C-4 Im); 122.0, 127.8, 130.2, 131.2 (C Ar); 142.3 (C-5 Im); 149.2 (C-2 Im); 162.7 (C=O); 170.1 (COH). Найдено, %: C 45.92; H 3.63; N 17.68. $\text{C}_{15}\text{H}_{14}\text{BrN}_5\text{O}_3$. Вычислено, %: C 45.94; H 3.60; N 17.86.

2-Амино-5-(4-нитрофенил)-1H-имидазол-4-ил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (5e). Выход 0.21 г (59%, метод А), 0.25 г (70%, метод Б), кристаллы кремового цвета, т. пл. 285–286 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.10 (6H, с, 2NCH_3); 7.00 (2H, с, NH_2); 7.54 (2H, д, $J = 9.0$, H-2,6 Ar); 8.13 (2H, д, $J = 9.0$, H-3,5 Ar); 11.94 (1H, с, NH); 12.26 (1H, с, OH). Найдено, %: C 50.26; H 3.95; N 23.44. $\text{C}_{15}\text{H}_{14}\text{N}_6\text{O}_5$. Вычислено, %: C 50.28; H 3.94; N 23.45.

N-[5-Арил-4-(6-гидрокси-1,3-диметил-2,4-диоксо-1,2,3,4-тетрагидропиримидин-5-ил)-1H-имидазол-2-ил]ацетамиды ба–с,е (общая методика). Раствор 1.0 ммоль аминокимидазола **5a–с,е** в 10 мл Ac_2O кипятят в течение 30 мин, реакционную смесь охлаждают, выливают на лёд. Выпавший осадок фильтруют и очищают перекристаллизацией из EtOH.

N-[4-(6-Гидрокси-1,3-диметил-2,4-диоксо-1,2,3,4-тетрагидропиримидин-5-ил)-5-фенил-1H-имидазол-2-ил]ацетамид (6a). Выход 0.27 г (77%), белые кристаллы, т. пл. >300 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.12 (3H, с, COCH_3); 3.08 (6H, с, 2NCH_3); 7.31 (2H, д, $J = 7.8$, H-3,5 Ph); 7.33–7.38 (1H, м, H-4 Ph); 7.51 (2H, д, $J = 7.8$, H-2,6 Ph); 11.56 (1H, с, NH); 13.52 (1H, с, NH). Найдено, %: C 57.49; H 4.79; N 19.70. $\text{C}_{17}\text{H}_{17}\text{N}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 57.46; H 4.82; N 19.71.

N-[4-(6-Гидрокси-1,3-диметил-2,4-диоксо-1,2,3,4-тетрагидропиримидин-5-ил)-5-(4-метоксифенил)-1H-имидазол-2-ил]ацетамид (6b). Выход 0.25 г (71%), белые кристаллы, т. пл. >300 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.11 (3H, с, COCH_3); 3.07 (6H, с, 2NCH_3); 3.73 (3H, с, OCH_3); 6.89 (2H, д, $J = 8.6$, H-3,5 Ar); 7.43 (2H, д, $J = 8.6$, H-2,6 Ar); 11.98 (1H, с, NH). Найдено, %: C 56.14; H 4.95; N 18.16. $\text{C}_{18}\text{H}_{19}\text{N}_5\text{O}_5$. Вычислено, %: C 56.10; H 4.97; N 18.17.

***N*-[4-(6-Гидрокси-1,3-диметил-2,4-диоксо-1,2,3,4-тетрагидропиримидин-5-ил)-5-(4-хлорфенил)-1*H*-имидазол-2-ил]ацетамид (6с).** Выход 0.33 г (85%), белые кристаллы, т. пл. >300 °С. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д. (*J*, Гц): 2.12 (3H, с, COCH₃); 3.07 (6H, с, 2NCH₃); 7.40 (2H, д, *J* = 8.2, H-3,5 Ar); 7.48 (2H, д, *J* = 8.2, H-2,6 Ar); 11.48 (1H, с, NH); 13.60 (1H, с, NH). Масс-спектр, *m/z* (*I*_{отн.}, %) (для изотопа ³⁵Cl): 389 [M]⁺ (40), 349 (28), 348 (17), 347 (13), 198 (9), 163 (9), 138 (6), 137 (6), 102 (5). Найдено, %: C 52.39; H 4.16; N 17.94. C₁₇H₁₆ClN₅O₄. Вычислено, %: C 52.38; H 4.14; N 17.97.

***N*-[4-(6-Гидрокси-1,3-диметил-2,4-диоксо-1,2,3,4-тетрагидропиримидин-5-ил)-5-(4-нитрофенил)-1*H*-имидазол-2-ил]ацетамид (6е).** Выход 0.31 г (77%), белые кристаллы, т. пл. >300 °С. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д. (*J*, Гц): 2.16 (3H, с, COCH₃); 3.08 (6H, с, 2NCH₃); 7.65 (2H, д, *J* = 8.6, H-2,6 Ar); 8.16 (2H, д, *J* = 8.6, H-3,5 Ar); 11.64 (1H, с, NH). Найдено, %: C 51.03; H 4.06; N 20.96. C₁₇H₁₆N₆O₆. Вычислено, %: C 51.00; H 4.03; N 20.99.

5-(2-Арил-2-оксоэтил)-1,3-диметилпиримидин-2,4,6(1*H*,3*H*,5*H*)-трионы 7а–д (общая методика). Смесь 156 мг (1.0 ммоль) пиримидинтриона **1**, 1.0 ммоль арилглиоксаля **2a,d,f,g** и 96 мг (1.0 ммоль) соли **3a** кипятят в 10 мл 2-PrOH в течение 2.5–3.0 ч до выпадения осадка из горячего раствора. Полученный осадок отфильтровывают, промывают на фильтре 5 мл H₂O и 5 мл 2-PrOH.

1,3-Диметил-5-(2-оксо-2-фенилэтил)пиримидин-2,4,6(1*H*,3*H*,5*H*)-трион (7а). Выход 0.19 г (69%), бесцветные кристаллы, т. пл. 190–191 °С (т. пл. 200 °С [26]). Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д. (*J*, Гц): 3.17 (6H, с, 2NCH₃); 3.88 (2H, д, *J* = 4.0, CH₂CO); 4.24 (1H, т, *J* = 4.0, 5-CH); 7.54 (2H, т, *J* = 8.0, H-3,5 Ph); 7.62–7.68 (1H, м, H-4 Ph); 7.99 (2H, д, *J* = 7.5, H-2,6 Ph). Масс-спектр, *m/z* (*I*_{отн.}, %): 274 [M]⁺ (100), 169 (28), 155 (50), 119 (15), 108 (20), 77 (10). Найдено, %: C 61.29; H 5.10; N 10.27. C₁₄H₁₄N₂O₄. Вычислено, %: C 61.31; H 5.14; N 10.21.

1,3-Диметил-5-{2-оксо-2-[4-(метилсульфанил)фенил]этил}пиримидин-2,4,6-(1*H*,3*H*,5*H*)-трион (7б). Выход 0.22 г (68%), бесцветные кристаллы, т. пл. 188–189 °С. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д. (*J*, Гц): 2.52 (3H, с, SCH₃); 3.16 (6H, с, 2NCH₃); 3.84 (2H, д, *J* = 3.4, CH₂CO); 4.20 (1H, т, *J* = 3.4, 5-CH); 7.36 (2H, д, *J* = 8.6, H-3,5 Ar); 7.90 (2H, д, *J* = 8.6 H-2,6 Ar). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 14.3 (SCH₃); 28.6 (2NCH₃); 44.9 (CH₂CO); 66.5 (C-5); 125.3, 128.9, 131.7, 147.0 (C Ar); 159.1 (C=O); 168.7 (2C=O); 196.7 (C=O). Найдено, %: C 56.22; H 5.00; N 8.73; S 9.98. C₁₅H₁₆N₂O₄S. Вычислено, %: C 56.24; H 5.03; N 8.74; S 10.01.

1,3-Диметил-5-[2-оксо-2-(4-фторфенил)этил]пиримидин-2,4,6(1*H*,3*H*,5*H*)-трион (7с). Выход 0.20 г (69%), бесцветные кристаллы, т. пл. 162–163 °С. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д. (*J*, Гц): 3.17 (6H, с, 2NCH₃); 3.88 (2H, д, *J* = 4.0, CH₂CO); 4.25 (1H, т, *J* = 4.0, 5-CH); 7.76 (2H, д, *J* = 7.6, *J*_{H-F} = 7.9, H-3,5 Ar); 7.93 (2H, д, *J* = 7.6, *J*_{H-F} = 5.0, H-2,6 Ar). Найдено, %: C 57.50; H 4.47; N 9.59. C₁₄H₁₃FN₂O₄. Вычислено, %: C 57.53; H 4.48; N 9.58.

Соединение **7с** было получено также при микроволновом облучении смеси 156 мг (1.0 ммоль) пиримидинтриона **1**, 170 мг (1.0 ммоль) арилглиоксаля **2g** и 96 мг (1.0 ммоль) соли **3a** в 5 мл EtOH при 150 °С в течение 10 мин. Выход 0.21 г (73%).

Микроволновое облучение указанных реагентов в 1.5 мл EtOH при 150 °С в течение 10 мин позволило получить 0.09 г (31%) кетона **7с**.

5-[2-(4-Бромфенил)-2-оксоэтил]-1,3-диметилпиримидин-2,4,6(1*H*,3*H*,5*H*)-трион (7д). Выход 0.26 г (74%), бесцветные кристаллы, т. пл. 170–171 °С. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д. (*J*, Гц): 3.17 (6H, с, 2NCH₃); 3.86 (2H, д, *J* = 4.0, CH₂CO); 4.27 (1H, т, *J* = 4.0, 5-CH); 7.76 (2H, д, *J* = 7.8, H-3,5 Ar); 7.93 (2H, д, *J* = 7.8, H-2,6 Ar). Масс-спектр, *m/z* (*I*_{отн.}, %) (для изотопа ⁷⁹Br): 352 [M]⁺ (100), 195 (40), 183 (27), 157 (21), 155 (55), 77 (15). Найдено, %: C 41.65; H 3.69; N 7.92. C₁₄H₁₃BrN₂O₄. Вычислено, %: C 41.61; H 3.71; N 7.93.

5-Бром-1,3-диметил-5-(2-оксо-2-фенилэтил)пиримидин-2,4,6(1*H*,3*H*,5*H*)-трион (8а). К раствору 0.27 г (1 ммоль) кетона **7a** в 5 мл ледяной AcOH прикапывают из капельной воронки 0.15 мл (1 ммоль) Br₂, растворённого в 3 мл AcOH, при перемешивании на магнитной мешалке. Раствор перемешивают ещё в течение 1 ч,

затем выливают на лёд. Осадок отфильтровывают, очищают перекристаллизацией из EtOH. Выход 0.23 г (65%), кристаллы кремового цвета, т. пл. 138–140 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.27 (6H, с, 2NCH₃); 4.40 (2H, с, CH₂CO); 7.59 (2H, д, $J = 7.0$, H-3,5 Ph); 7.70–7.75 (1H, м, H-4 Ph); 8.01 (2H, д, $J = 7.0$, H-2,6 Ph). Найдено, %: C 47.60; H 3.73; N 7.93. C₁₄H₁₃BrN₂O₄. Вычислено, %: C 47.61; H 3.71; N 7.93.

5-[5-Арил-2-(метилсульфанил)-1H-имидазол-4-ил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дионы 10a,b (общая методика). Смесь 156 мг (1 ммоль) пиримидинтриона **1**, 1 ммоль арилглиоксаля **2d,g**, 218 мг (1 ммоль) соли **9** и 10 мг (0.07 ммоль) K₂CO₃ в 10 мл 2-PrOH кипятят в течение 45–50 мин до выпадения белого аморфного осадка из горячего раствора (метод А) либо указанную смесь растворяют в 5 мл EtOH и подвергают микроволновому облучению при температуре 150 °С в течение 10 мин (метод Б). Выпавший при охлаждении осадок отфильтровывают и очищают перекристаллизацией из EtOH.

5-[5-(4-Бромфенил)-2-(метилсульфанил)-1H-имидазол-4-ил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (10a). Выход 0.13 г (31%, метод А), 0.26 г (61%, метод Б), белый порошок, т. пл. >300 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.74 (3H, с, SCH₃); 3.07 (6H, с, 2NCH₃); 7.48 (2H, д, $J = 8.6$, H-3,5 Ar); 7.55 (2H, д, $J = 8.6$, H-2,6 Ar); 11.50 (1H, с, NH); 12.02 (1H, с, OH). Найдено, %: C 45.38; H 3.59; N 13.25. C₁₆H₁₅BrN₄O₃S. Вычислено, %: C 45.40; H 3.57; N 13.24.

6-Гидрокси-1,3-диметил-5-[2-(метилсульфанил)-5-(4-фторфенил)-1H-имидазол-4-ил]пиримидин-2,4(1H,3H)-дион (10b). Выход 0.11 г (35%, метод А), 0.19 г (60%, метод Б), белый порошок, т. пл. >300 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.73 (3H, с, SCH₃); 3.07 (6H, с, 2NCH₃); 7.24 (2H, д, д, $J = 7.8$, $J_{\text{H-F}} = 7.5$, H-3,5 Ar); 7.63 (2H, д, д, $J = 7.8$, $J_{\text{H-F}} = 5.0$, H-2,6 Ar); 11.68 (1H, с, NH); 12.10 (1H, с, OH). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 16.1 (SCH₃); 27.1 (2NCH₃); 75.8 (C-5); 115.9 (C-4 Im); 117.6, 129.3, 130.1 (C Ar); 138.5 (C-2 Im); 143.4 (C-5 Im); 159.0 (C=O); 161.9 (C Ar); 163.7 (2C=O); 169.8 (COH). Найдено, %: C 53.04; H 4.15; N 15.48. C₁₆H₁₅FN₄O₃S. Вычислено, %: C 53.03; H 4.17; N 15.46.

5-(Диаминометилиден)-1,3-диметилпиримидин-2,4,6(1H,3H,5H)-трион (11). Смесь 156 мг (1 ммоль) пиримидинтриона **1** и 218 мг (1 ммоль) соли **9** в 5 мл EtOH подвергают микроволновому облучению в течение 10 мин при 150 °С. Реакционную смесь охлаждают, осадок отфильтровывают, промывают EtOH. Выход 0.16 г (80%), ярко-розовые кристаллы, т. пл. 155–156 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 3.10 (6H, с, 2NCH₃); 7.31 (2H, с, NH₂); 9.49 (2H, с, NH₂). Найдено, %: C 42.40; H 5.08; N 28.25. C₇H₁₀N₄O₃. Вычислено, %: C 42.42; H 5.09; N 28.27.

N-[Амино-(1,3-диметил-2,4,6-триоксо-1,2,3,4-тетрагидропиримидин-5-илиден)-метил]ацетамид (12). Раствор 0.198 г (1 ммоль) диамина **11** в 5 мл Ac₂O кипятят в колбе с обратным холодильником в течение 30 мин, охлаждают, выливают на лёд. Осадок отфильтровывают и перекристаллизовывают из 2-PrOH. Выход 0.15 г (63%), белые кристаллы, т. пл. 179–180 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 2.23 (3H, с, COCH₃); 3.14 (6H, с, 2NCH₃); 9.78 (1H, с) и 10.70 (1H, с, NH₂); 13.45 (1H, с, NHCO). Найдено, %: C 44.98; H 5.05; N 23.33. C₉H₁₂N₄O₄. Вычислено, %: C 45.00; H 5.04; N 23.32.

5-[1-(2-Амино-5-арил-1H-имидазол-4-ил)-2-арил-2-оксоэтил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дионы 14a-f (общая методика). Смесь 156 мг (1 ммоль) пиримидинтриона **1**, 1 ммоль 2-амино-4-арилимидазола **13a-d** и 1 ммоль гидрата арилглиоксаля **2a-e** в 15 мл EtOH кипятят в колбе с обратным холодильником в течение 1.5 ч. Реакционную смесь охлаждают, выпавший осадок очищают перекристаллизацией из EtOH.

5-[1-[2-Амино-5-(4-бромфенил)-1H-имидазол-4-ил]-2-оксо-2-фенилэтил]-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (14a). Выход 0.42 г (82%), кристаллы кремового цвета, т. пл. 220–222 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.06 (6H, с, 2NCH₃); 5.95 (1H, с, CHCO); 7.39 (2H, т, $J = 8.0$, H-3,5 Ph); 7.48–7.51 (3H, м, NH₂, H-4 Ph); 7.66 (2H, д, $J = 8.8$, H-3,5 Ar); 7.71 (2H, д, $J = 8.8$, H-2,6 Ar); 7.85 (2H, д, $J = 8.0$, H-2,6 Ph); 11.57 (1H, с, NH); 12.32 (1H, с, OH). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 27.8 (2NCH₃); 62.0 (C-5); 85.6 (CHCO); 120.4, 121.7, 124.8, 127.9, 128.6, 129.7, 132.4, 133.0

(C Ar, C Ph); 136.3 (C-5 Im); 143.0 (C-4 Im); 146.7 (C-2 Im); 158.9 (2C=O); 163.0 (COH); 198.3 (C=O). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %) (для изотопа ^{79}Br): 509 [M] $^+$ (13), 406 (5), 355 (30), 272 (35), 243 (20), 237 (70), 157 (12), 156 (25), 155 (10), 105 (100), 77 (60). Найдено, %: C 54.11; H 3.94; N 13.70. $\text{C}_{23}\text{H}_{20}\text{BrN}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 54.13; H 3.95; N 13.72.

5-(1-{2-Амино-5-[(4-метилсульфонил)фенил]-1H-имидазол-4-ил}-2-(4-бромфенил)-2-оксоэтил)-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (14b). Выход 0.52 г (88%), кристаллы кремового цвета, т. пл. 219–221 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.10 (6H, с, 2NCH₃); 3.28 (3H, с, SO₂CH₃); 5.97 (1H, с, CHCO); 7.56–7.66 (4H, м, NH₂, H-3,5 Ar); 7.75 (2H, д, $J = 8.0$, H-3,5 Ar¹); 7.99 (2H, д, $J = 8.4$, H-2,6 Ar); 8.03 (2H, д, $J = 8.0$, H-2,6 Ar¹); 11.60 (1H, с, NH); 12.46 (1H, с, OH). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 25.9 (SO₂CH₃); 27.7 (2NCH₃); 62.5 (C-5); 85.3 (CHCO); 125.9, 126.9, 128.0, 128.2, 129.9, 131.7, 133.5, 135.4 (C Ar); 137.8 (C-5 Im); 144.8 (C-4 Im); 147.0 (C-2 Im); 159.1 (2C=O); 163.0 (COH); 197.6 (C=O). Найдено, %: C 48.97; H 3.77; N 11.89; S 5.44. $\text{C}_{24}\text{H}_{22}\text{BrN}_5\text{O}_6\text{S}$. Вычислено, %: C 48.99; H 3.77; N 11.90; S 5.45.

5-(1-{2-Амино-5-[(4-метилсульфонил)фенил]-1H-имидазол-4-ил}-2-(4-метоксифенил)-2-оксоэтил)-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (14c). Выход 0.42 г (77%), кристаллы кремового цвета, т. пл. 222–224 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.05 (6H, с, 2NCH₃); 3.24 (3H, с, SO₂CH₃); 3.75 (3H, с, OCH₃); 5.95 (1H, с, CHCO); 6.88 (2H, д, $J = 7.8$, H-3,5 Ar); 7.24 (2H, д, $J = 8.0$, H-2,6 Ar¹); 7.48 (2H, д, $J = 7.8$, H-2,6 Ar); 7.57 (2H, с, NH₂); 7.87 (2H, д, $J = 8.0$, H-3,5 Ar¹); 11.68 (1H, с, NH); 12.00 (1H, с, OH). Найдено, %: C 55.64; H 4.67; N 12.99; S 5.91. $\text{C}_{25}\text{H}_{25}\text{N}_5\text{O}_7\text{S}$. Вычислено, %: C 55.65; H 4.67; N 12.98; S 5.94.

5-{1-[2-Амино-5-(4-метилфенил)-1H-имидазол-4-ил]-2-(4-бромфенил)-2-оксоэтил}-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (14d). Выход 0.38 г (73%), кристаллы кремового цвета, т. пл. 236–238 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.30 (3H, с, ArCH₃); 3.03 (6H, с, 2NCH₃); 5.88 (1H, с, CHCO); 7.26 (2H, д, $J = 8.4$, H-3,5 Ar¹); 7.37 (2H, с, NH₂); 7.55–7.60 (4H, м, H-3,5 Ar, H-2,6 Ar¹); 7.72 (2H, д, $J = 8.4$, H-2,6 Ar); 11.41 (1H, с, NH); 12.13 (1H, с, OH). Найдено, %: C 54.98; H 4.22; N 13.33. $\text{C}_{24}\text{H}_{22}\text{BrN}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 54.97; H 4.23; N 13.36.

5-{1-[2-Амино-5-(4-метилфенил)-1H-имидазол-4-ил]-2-оксо-2-(4-нитрофенил)-этил}-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (14e). Выход 0.38 г (78%), бежевые кристаллы, т. пл. 216–218 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 2.32 (3H, с, ArCH₃); 3.01 (6H, с, 2NCH₃); 5.94 (1H, с, CHCO); 7.28 (2H, д, $J = 8.0$, H-3,5 Ar¹); 7.39 (2H, с, NH₂); 7.56 (2H, д, $J = 8.0$, H-2,6 Ar¹); 7.95 (2H, д, $J = 8.5$, H-2,6 Ar); 8.20 (2H, д, $J = 8.5$, H-3,5 Ar); 11.31 (1H, с, NH); 12.19 (1H, с, OH). Масс-спектр, m/z ($I_{\text{отн}}$, %): 490 [M] $^+$ (10), 339 (8), 338 (15), 317 (27), 224 (34), 173 (43), 164 (18), 156 (100), 150 (30), 118 (17), 92 (17). Найдено, %: C 58.77; H 4.49; N 17.11. $\text{C}_{24}\text{H}_{22}\text{N}_6\text{O}_6$. Вычислено, %: C 58.77; H 4.52; N 17.13.

5-{1-[2-Амино-5-(4-фторфенил)-1H-имидазол-4-ил]-2-оксо-2-(4-хлорфенил)-этил}-6-гидрокси-1,3-диметилпиримидин-2,4(1H,3H)-дион (14f). Выход 0.39 г (80%), кристаллы кремового цвета, т. пл. 223–225 °С. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д. (J , Гц): 3.03 (6H, с, 2NCH₃); 5.84 (1H, с, CHCO); 7.31 (2H, д, $J = 7.8$, $J_{\text{H-F}} = 8.0$, H-3,5 Ar¹); 7.36–7.48 (4H, м, NH₂, H-3,5 Ar); 7.72 (2H, д, $J_{\text{H-F}} = 5.2$, $J = 7.8$, H-2,6 Ar¹); 7.78 (2H, д, $J = 8.4$, H-2,6 Ar); 11.39 (1H, с, NH); 12.14 (1H, с, OH). Найдено, %: C 57.07; H 3.95; N 14.48. $\text{C}_{23}\text{H}_{19}\text{ClFN}_5\text{O}_4$. Вычислено, %: C 57.09; H 3.96; N 14.47.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. F. Bellina, S. Caeteruccio, R. Rossi, *Tetrahedron*, **63**, 4571 (2007).
2. D. Sharma, B. Narasimhan, P. Kumar, V. Judge, R. Narang, E. De Clercq, J. Balzarini, *Eur. J. Med. Chem.*, **44**, 2347 (2009).
3. A. Puratchikodya, M. Doble, *Bioorg. Med. Chem. Lett.*, **15**, 1083 (2007).
4. V. Malhotra, S. R. Pathak, R. Nath, D. Mukherjee, K. Shanker, *Bioorg. Med. Chem. Lett.*, **21**, 936 (2011).
5. P. Gupta, S. Hameed, R. Jain, *Eur. J. Med. Chem.*, **39**, 805 (2004).

6. S. D. Sharma, P. Hazarika, D. Konwar, *Tetrahedron Lett.*, **49**, 2216 (2008).
7. A. Khalafi-Nezhad, M. N. Soltani Rad, G. H. Hakimelahi, B. Mokhtari, *Tetrahedron*, **58**, 10341 (2002).
8. Y. Özkay, İ. Işıkdag, Z. İncesu, G. Akalın, *Eur. J. Med. Chem.*, **45**, 3320 (2010).
9. H. M. Refaat, *Eur. J. Med. Chem.*, **45**, 2949 (2010).
10. C. Congiu, M. T. Cocco, V. Onnis, *Bioorg. Med. Chem. Lett.*, **18**, 989 (2008).
11. F. Hadizadeh, H. Hosseinzadeh, V. S. Motamed-Shariaty, M. Seifi, S. H. Kazemi, *Iran. J. Pharm. Res.*, **7**, 29 (2008).
12. J. A. Jablonowski, K. S. Ly, M. Bogenstaetter, C. A. Dvorak, J. D. Boggs, L. K. Dvorak, B. Lord, K. L. Miller, C. Mazur, S. J. Wilson, T. W. Lovenberg, N. I. Carruthers, *Bioorg. Med. Chem. Lett.*, **19**, 903 (2009).
13. A. K. Takle, M. J. B. Brown, S. Davies, D. K. Dean, G. Francis, A. Gaiba, A. W. Hird, F. D. King, P. J. Lovell, A. Naylor, A. D. Reith, J. G. Steadman, D. M. Wilson, *Bioorg. Med. Chem. Lett.*, **16**, 378 (2006).
14. S. Laufer, D. Hauser, T. Stegmiller, C. Bracht, K. Ruff, V. Schattel, W. Albrecht, P. Koch, *Bioorg. Med. Chem. Lett.*, **20**, 6671 (2010).
15. S. Kantevari, S. V. N. Vuppalapati, D. O. Biradar, L. Nagarapu, *J. Mol. Catal. A: Chem.*, **266**, 109 (2007).
16. S. A. Siddiqui, U. C. Narkhede, S. S. Palimkar, T. Daniel, R. J. Lahoti, K. V. Srinivasan, *Tetrahedron*, **61**, 3539 (2005).
17. S. D. Sharma, P. Hazarika, D. Konwar, *Tetrahedron Lett.*, **49**, 2216 (2008).
18. S. N. Murthy, B. Madhav, Y. V. D. Nageswar, *Tetrahedron Lett.*, **51**, 5252 (2010).
19. K. Ramesh, S. N. Murthy, K. Karnakar, Y. V. D. Nageswar, K. Vijayalakhshmi, B. L. A. Prabhavathi Devi, R. B. N. Prasad, *Tetrahedron Lett.*, **53**, 1126 (2012).
20. A. Teimouri, A. N. Chermahini, *J. Mol. Catal. A: Chem.*, **346**, 39 (2011).
21. S. Samai, G. C. Nandi, P. Singh, M. S. Singh, *Tetrahedron*, **65**, 10155 (2009).
22. Н. Н. Колос, Л. Л. Замигайло, В. И. Мусатов, *XTC*, 1220 (2009). [*Chem. Heterocycl. Compd.*, **45**, 970 (2009).]
23. Н. Н. Колос, Л. Л. Гозалишвили, Л. Ю. Коваленко, Т. В. Березкина, в кн. *Тезисы XXI Украинской конференции по органической химии*, Чернигов, 2007, р. 198.
24. Н. Н. Колос, Л. Л. Гозалишвили, Е. Н. Сивоконь, И. В. Князева, *Журн. орган. химии*, **45**, 124 (2009).
25. Н. Н. Колос, Л. Л. Замигайло, Н. В. Чечина, И. В. Омельченко, О. В. Шишкин, Е. В. Ващенко, *XTC*, 1941 (2012). [*Chem. Heterocycl. Compd.*, **48**, 1817 (2012).]
26. K. Asahi, H. Nishino, *Eur. J. Org. Chem.*, **14**, 2404 (2008).
27. L. L. Gozalishvili, T. V. Beryozkina, I. V. Omelchenko, R. I. Zubatyuk, O. V. Shishkin, N. N. Kolos, *Tetrahedron*, **64**, 8759 (2008).
28. N. N. Kolos, T. V. Beryozkina, V. D. Orlov, *Mendeleev Commun.*, **12**, 91 (2002).
29. V. V. Lipson, N. V. Svetlichnaya, S. V. Shishkina, O. V. Shishkin, *Mendeleev Commun.*, **18**, 141 (2008).

¹ Харьковський національний університет
им. В. Н. Каразіна,
пл. Свободи, 4, Харків 61022, Україна
e-mail: kolos_n@mail.ru

Поступило 9.03.2013

² НТК "Інститут монокристалів" НАН України,
пр. Леніна, 60, Харків 61001, Україна
e-mail: lalilali@isc.kharkov.com