

Региоизомерные 3,5-ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолы и их энергетические свойства

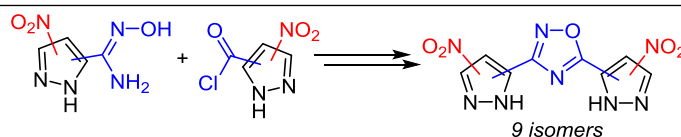
Тигран Э. Хоранян¹, Татьяна К. Шкинева¹, Ирина А. Вацадзе¹, Александр Х. Шахнес¹, Никита В. Муравьев², Алексей Б. Шереметев¹, Игорь Л. Далингер^{1*}

¹ Институт органической химии им. Н. Д. Зелинского РАН, Ленинский пр., 47, Москва 119991, Россия; e-mail: dalinger@ioc.ac.ru

² Федеральный исследовательский центр химической физики им. Н. Н. Семенова РАН, ул. Косыгина, 4, Москва 119991, Россия; e-mail: n.v.muravyev@ya.ru

Поступило 7.10.2021

Принято 8.11.2021



Синтезированы все возможные изомеры *N*-незамещенных 3,5-ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов. Изучено влияние региоизомерии на плотность, термическую стабильность, чувствительность к механическим воздействиям и энергетическую эффективность.

Ключевые слова: нитропиразол, 1,2,4-оксадиазол, плотность, региохимическая модуляция, термостабильность, циклизация, чувствительность.

Задачей химии энергоемких материалов является синтез новых более эффективных соединений, удовлетворяющих растущим требованиям к изделиям военного и гражданского назначения.¹ Особый интерес вызывают новые материалы, которые при детонации выделяли бы большее количество энергии с единицы объема, чем ныне используемые энергоемкие вещества.² При этом наиболее перспективны соединения, не подвергающиеся разложению в жестких условиях внешней среды: при высоких температурах, механических нагрузках и т. п.³ Повышенные детонационные характеристики и высокая термическая стабильность в сочетании с низкой чувствительностью к механическим воздействиям – крайне привлекательная, но редко встречающаяся комбинация свойств. Однако именно на энергоемкие материалы с такими характеристиками наблюдается повышенный спрос в последние годы.⁴

Термостойкие энергоемкие соединения широко используются в устройствах, где требуется высокая эффективность и надежность при экстремальных условиях. Они используются, например, в космической отрасли,⁵ при разработке глубоководных нефтегазовых месторождений⁶ и т. п. Большой интерес и высокие требования к термостойким энергоемким материалам имеются и у военной промышленности.

Согласно современным требованиям, энергоемкое соединение относится к термостойким, если температура его разложения выше 250°C.⁷ С точки зрения

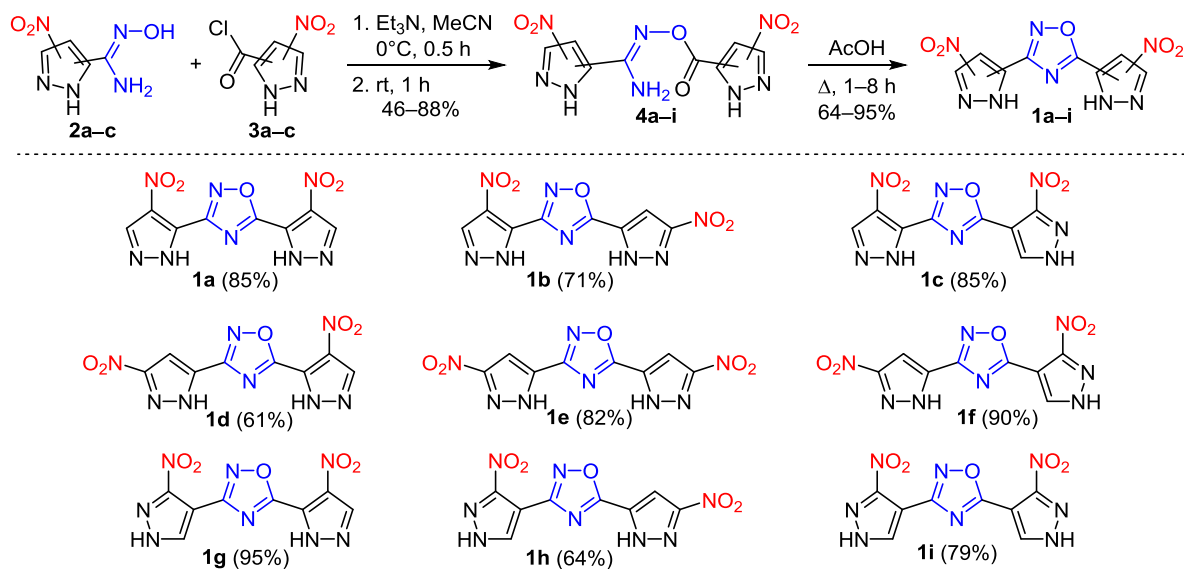
дизайна молекулы существует несколько подходов, использование которых позволяет увеличивать термостабильность: введение аминогруппы в структуру молекулы,⁸ соединение высокоэнергетических фрагментов через мостики,⁹ получение солей энергоемких соединений.¹⁰

Недавно показано, что оптимизации химико-физических характеристик можно также добиться путем региохимической модуляции – модификации свойств соединений путем изменения расположения заместителей в молекуле, то есть конструированием изомеров.¹¹ Такие изомеры обладают одинаковым элементарным составом и кислородным балансом, но отличаются по плотности, энтальпии образования, и, следовательно, по детонационным характеристикам. Они также имеют разные температуру начала разложения и чувствительность к удару и трению. Однако наиболее удачная конфигурация заместителей чаще всего неочевидна, поэтому изучение закономерностей структура–свойство является важной частью исследования изомерных энергоемких соединений.

Одной из основных современных стратегий конструирования новых термостойких энергоемких соединений является комбинирование в каркасе молекулы гетероциклических строительных блоков, которым присуща высокая термостабильность.¹²

Производные нитропиразолов, обладая высокой стабильностью и функциональностью, широко исполь-

Схема 1



зуются в синтезе энергоемких соединений.^{4,6,8,12,13} По сравнению с другими азолами пиразол выделяется большим количеством реакционных центров для введения эксплозифорных групп, причем за счет простых электрофильных реакций, наиболее широко используемых для синтеза энергоемких соединений, в частности реакций кислотного нитрования. Кроме того, энергоемкие пиразолосодержащие соединения отличаются удачным сочетанием высокой термической и механической стабильности при достаточно высокой энергетической эффективности.¹ Также возрастающую популярность при синтезе новых энергоемких соединений приобретает 1,2,4-оксадиазольный цикл.^{1b,14} Показано, что введение в каркас энергоемких молекул 1,2,4-оксадиазольного фрагмента позволяет повысить термостабильность соединения без значительных потерь в детонационных характеристиках.¹⁵

В продолжение наших работ по энергоемким соединениям, остов которых является комбинацией нескольких гетероциклов, включая пиразол,^{2c,11d,16} в настоящей работе приведены результаты исследования по синтезу и изучению свойств *N*-незамещенных *C*-*C*-связанных изомерных 3,5-ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a-i**. Из девяти возможных региоизомеров ранее был полностью охарактеризован лишь один симметрично замещенный 3,5-ди(4-нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (**1a**), который обладает высокой термостабильностью (температура начала разложения 312°C) и низкой чувствительностью к удару и трению.¹⁷

Очевидно, что первичное конструирование незамещенных ди(пиразолил)оксадиазолов и последующее их нитрование не позволит быстро достичь цели исследования; для обеспечения разного селективного введения нитрогрупп в каждый из пиразольных циклов потребуются использование защитных групп и хроматографии, что существенно осложнит синтетическую схему и увеличит временные затраты. Здесь для получения всех региоизомерных ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a-i** использована двустадийная стратегия синтеза (схема 1), ранее успешно применен-

ная нами для синтеза 3(5)-арил-5(3)-(пиразолил)оксадиазолов, основанная на использовании изомерных пиразольных синтонов с предустановленной нитрогруппой.¹⁸ Такой подход, позволяющий селективно варьировать положение нитрогруппы в каждом из пиразольных синтонов, является наиболее простым и быстрым способом получения всех возможных региоизомерных продуктов **1a-i**.

Согласно схеме 1, на первой стадии осуществлялось ацилирование нитропиразоламиноксидов **2a-c** соответствующими хлорангидридами нитропиразолкарбоновых кислот **3a-c** в MeCN в присутствии Et₃N. Соединения **2a-c** и **3a-c** являются синтетически доступными, а реакция проходит в типичных условиях с выходами от умеренных до хороших с образованием ациламиноксидов **4a-i** с требуемым расположением нитрогруппы в пиразольных циклах.

На второй стадии мы попытались осуществить реакцию гетероциклизации, приводящую к формированию 1,2,4-оксадиазольного цикла. Однако использование при этом ранее разработанных условий,¹⁸ а именно: обработка ациламиноксима **4a** 2 экв. NaOH в ДМСО в течение 3 ч, приводит к получению продукта **1a** с выходом всего 18%. При увеличении продолжительности реакции до 6 ч выход удалось увеличить до 61%, при дальнейшем увеличении выдержки выход не возрастает.

Известно, что формирование 1,2,4-оксадиазольного цикла возможно не только за счет гетероциклизации в суперосновных условиях,¹⁹ но и путем термолиты или кислотного катализа.²⁰ Одним из таких методов является циклизация с использованием AcOH при кипячении, где AcOH одновременно обеспечивает и кислотный катализ и выступает в роли высококипящего растворителя.²¹ Нами показано, что ациламиноксиды **4a-i** эффективно циклизуются в кипящей AcOH, образуя ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолы **1a-i** с высокими выходами. Исходные ациламиноксиды **4a-i** не растворяются в кипящей AcOH, в то время как образующиеся целевые продукты **1a-i** в ней хорошо

растворяются, а при охлаждении выпадают в осадок, что облегчает наблюдение за реакцией и выделение продукта.

Синтезированные соединения охарактеризованы методами ИК спектроскопии, спектроскопии ЯМР ^1H , ^{13}C и масс-спектрометрии высокого разрешения. Отнесение сигналов в спектрах ЯМР ^1H и ^{13}C уточнено по данным двумерных экспериментов ^1H – ^{13}C HMBC, ^1H – ^{13}C HSQC.

При отнесении сигналов 1,2,4-оксадиазольного цикла в спектрах ЯМР ^{13}C была использована закономерность $\delta(\text{C-5}) > \delta(\text{C-3})$, известная из литературы.²² При отнесении сигналов пиразольного цикла в спектрах ЯМР ^1H и ^{13}C мы опирались на результаты наших предыдущих исследований^{13,16,23} и на известные для нитропиразолов закономерности:²⁴ химические сдвиги атомов водорода обычно располагаются в последовательности $\delta(\text{H-5}) > \delta(\text{H-3}) > \delta(\text{H-4})$, а атомов углерода – $\delta((\text{C-3})=\text{N}(\text{sp}^2)) > \delta((\text{C-5})-\text{N}(\text{sp}^3)) \gg \delta(\text{C-4})$. Сигнал атома углерода, связанного с нитрогруппой, обычно сильно уширен из-за квадрупольной релаксации ^{13}C – ^{14}N , что значительно облегчает его идентификацию.

На основе полученных данных можно выявить ряд закономерностей в спектрах ЯМР ди(нитропиразолил) оксадиазолов **1a–i**: сигналы атомов водорода пиразольного цикла, сочлененного с атомом С-5 1,2,4-оксадиазола, расположены в более слабом поле, чем у пиразола, сочлененного с атомом С-3; сигналы атома Н-5 у (4-нитропиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазолов наблюдаются в более слабом поле, чем у (3-нитропиразол-4-ил)-1,2,4-оксадиазолов; сигналы атома (С-3)– NO_2 (3-нитропиразол-4-ил)-1,2,4-оксадиазолов находятся в

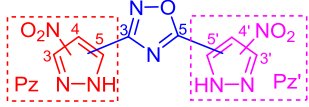
более сильном поле, чем у (3-нитропиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазолов. Полученные результаты могут быть полезны при изучении более сложных нитропроизводных ди(пиразолил)-1,2,4-оксадиазолов (табл. 1).

Для оценки влияния изомерного строения ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a–e, g–i** на основные физико-химические свойства, характеризующие этот класс соединений в качестве энергоемких соединений, экспериментальными и расчетными методами были изучены следующие параметры: плотность (d), термическая стабильность (T_m и T_d), чувствительность к удару (IS) и трению (FS), а также скорость (D) и давление (P) детонации (табл. 2).

Плотность энергоемких материалов является одной из ключевых характеристик, определяющих их детонационные параметры, поскольку является мерой "концентрации" энергии в единице объема, заключенной в молекуле. Несмотря на многочисленные попытки, нам не удалось получить монокристаллы ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a–i** без молекул растворителя, пригодные для рентгеноструктурного анализа и определения молекулярной плотности. Поэтому их плотность была определена экспериментально с использованием гелиевого пикнометра. Полученные значения находятся в диапазоне 1.637–1.804 г/см³ (табл. 2). В ряду исследованных изомеров наиболее высокой плотностью обладают соединения **1b, d, e, h**, содержащие в оксадиазольном цикле 3-нитропиразол-5-ильный фрагмент и превосходящие по плотности гексанитростильбен (HNS), являющийся эталоном термостойкого энергетического соединения.⁷

Энтальпии образования пиразолил-1,2,4-оксадиазолов **1a–e, g–i** были рассчитаны с использованием

Таблица 1. Спектры ЯМР ^1H и ^{13}C ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a–i**



Соединение	Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.	Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.								
		1,2,4-Оксадиазол (Ox)			Pz			Pz'		
		C-3	C-5	C-3	C-4	C-5	C-3'	C-4'	C-5'	
1a	14.79 (2H, уш. с, NH); 9.20 (1H, с, H-5'); 9.14 (1H, с, H-5)	162.2	168.7	132.5 (CH)	133.0 (C–NO ₂)	134.2 (C–Ox)	132.2 (CH)	130.7 (C–NO ₂)	133.9 (C–Ox)	
1b	15.85 (1H, уш. с, NH); 14.69 (1H, уш. с, NH); 9.13 (1H, с, H-5); 7.94 (1H, с, H-4')	162.2	166.8	132.2 (CH)	132.9 (C–NO ₂)	134.4 (C–Ox)	156.1 (C–NO ₂)	104.9 (CH)	130.0 (C–Ox)	
1c	14.58 (2H, уш. с, NH); 9.12 (1H, с, H-5); 8.95 (1H, с, H-5')	162.4	169.3	132.6 (CH)	133.7 (C–NO ₂)	134.3 (C–Ox)	153.4 (C–NO ₂)	100.7 (C–Ox)	136.7 (CH)	
1d	15.23 (2H, уш. с, NH); 9.21 (1H, с, H-5'); 7.68 (1H, с, H-4)	160.2	169.4	156.4 (C–NO ₂)	103.0 (CH)	132.0 (C–Ox)	132.6 (CH)	130.5 (C–NO ₂)	134.2 (C–Ox)	
1e	15.50 (2H, уш. с, NH); 7.86 (1H, с, H-4'); 7.59 (1H, с, H-4)	159.9	170.4	156.4 (C–NO ₂)	102.8 (CH)	133.6 (C–Ox)	157.2 (C–NO ₂)	104.4 (CH)	132.6 (C–Ox)	
1f	15.10 (2H, уш. с, NH); 8.91 (1H, с, H-5'); 7.61 (1H, с, H-4)	160	169.5	156.4 (C–NO ₂)	102.9 (CH)	132.3 (C–Ox)	152.9 (C–NO ₂)	100.1 (C–Ox)	136.4 (CH)	
1g	9.00 (1H, с, H-5'); 8.70 (1H, с, H-5)	161.5	169.1	153.1 (C–NO ₂)	102.4 (C–Ox)	134.8 (CH)	133.6 (CH)	130.9 (C–NO ₂)	134.0 (C–Ox)	
1h	15.72 (1H, уш. с, NH); 14.58 (1H, уш. с, NH); 8.68 (1H, с, H-5'); 7.92 (1H, с, H-4)	161.4	172.6	153.6 (C–NO ₂)	103.6 (C–Ox)	135.1 (CH)	158.9 (C–NO ₂)	104.1 (CH)	137.3 (C–Ox)	
1i	14.75 (1H, с, NH); 14.56 (1H, с, NH); 8.91 (1H, с, H-5'); 8.66 (1H, с, H-5)	161.7	169.0	153.6 (C–NO ₂)	102.9 (C–Ox)	134.9 (CH)	153.5 (C–NO ₂)	100.8 (C–Ox)	136.5 (CH)	

Таблица 2. Физико-химические, детонационные и специальные свойства 3,5-ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a–e,g–i***

Соединение	T_m , °C	T_d , °C	d , г/см ³	$\Delta_f H$, кДж/моль	D , км/с	P , ГПа	IS, Дж	FS, Н
1a	270	335	1.699	444	7.35	24.1	60 ± 20	>360
1b	343	343	1.804	435	7.67	27.5	12 ± 4	>360
1c	261	313	1.741	451	7.49	25.5	23 ± 10	>360
1d	312	312	1.770	441	7.57	26.4	35 ± 9	>360
1e	312	312	1.759	448	7.54	26.0	15 ± 3	>360
1g	215	288	1.637	459	7.18	22.3	60 ± 20	>360
1h	295	295	1.787	444	7.63	27.0	11 ± 6	>360
1i	263	263	1.679	456	7.29	23.5	44 ± 13	>360
HNS ⁷	318	318	1.750	78	7.05	22.2	5	240
TNT ²⁸	80	275	1.649	–59	6.95	20.5	30 ± 5	>360

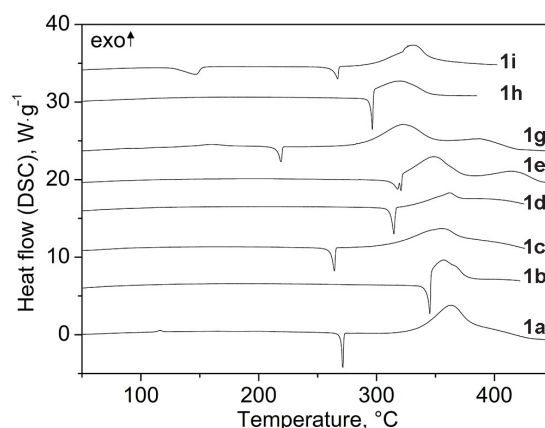
* T_m – температура плавления; T_d – температура начала разложения; d – плотность (пикнометр 25°C); $\Delta_f H$ – расчетная энтальпия образования конденсированной фазы; D – расчетная скорость детонации; P – расчетное давление детонации; IS – чувствительность к удару; FS – чувствительность к трению.

аддитивного метода²⁵ с учетом особенности замещения нитрогруппой пиразолов (файл сопроводительных материалов). Как видно по табл. 2, все полученные изомеры обладают высокой положительной энтальпией образования (435–459 кДж/моль) и заметно превосходят по этому показателю HNS и TNT (тринитротолуол).

Согласно данным дифференциально-сканирующей калориметрии (ДСК), все целевые продукты обладают высокой температурой начала разложения (263–343°C, рис. 1) и, таким образом, относятся к термостойким энергоемким соединениям. Следует отметить, что термическая стабильность региоизомеров зависит от строения (рис. 2). Наибольшая термостабильность достигается при наличии в положении С-3 оксадиазольного цикла 4-нитропиразол-5-ильного фрагмента (T_d 335°C для соединения **1a**, T_d 343°C для соединения **1b** и T_d 313°C для соединения **1c**). Наименьшей термостабильностью обладают оксадиазолы, содержащие пиразол-4-ильный заместитель. Все соединения с такой конфигурацией имеют температуру начала разложения меньше 300°C (кроме соединения **1c**). Известно, что образование внутримолекулярной водородной связи является фактором, при прочих равных условиях существенно повышающим термостабильность.²⁶ По нашему мнению, в случае соединений **1c,g,h,i** из-за структурных особенностей отсутствует возможность дополнительной стабилизации молекулы за счет образования внутримолекулярных водородных связей незамещенного атома азота пиразол-4-ильного заместителя с гетероатомами 1,2,4-оксадиазольного цикла, что приводит к уменьшению термостабильности, по сравнению с изомерами **1a,b,d,e**, где такая стабилизация возможна.

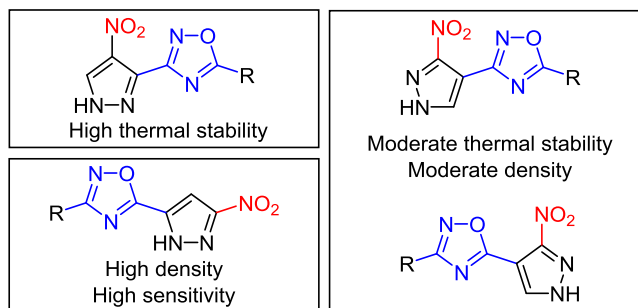
Расчет детонационных параметров ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов **1a–e,g–i** был осуществлен методом Пепекина–Лебедева.²⁷ Расчетные значения скорости детонации лежат в интервале 7.18–7.67 км/с, а давление детонации в точке Чепмена–Жуге составляет от 22.3 до 27.5 ГПа. Все полученные соединения превосходят по детонационным свойствам HNS и TNT (табл. 2).

Чувствительность к удару у исследованных соединений лежит в диапазоне 11–60 Дж, и по этому пара-

**Рисунок 1.** ДСК-диаграммы соединений **1a–e,g–i** (скорость нагрева 5К/мин).

метру они менее чувствительны, чем используемый для сравнения HNS. В то же время можно заметить, что региоизомерия оксадиазолов **1a–e,g–i** оказывает существенное влияние на чувствительность к удару. Наиболее высокая чувствительность к удару обнаружена у соединений **1b,e,h**, содержащих 5-(3-нитропиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазольный фрагмент. Ни один из полученных изомеров не проявляет чувствительности к трению (стандартный тест).

Ранее показано, что для соединений одного класса данные о чувствительности соединения и макси-

**Рисунок 2.** Сравнительный анализ химико-физических свойств 3,5-ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов.

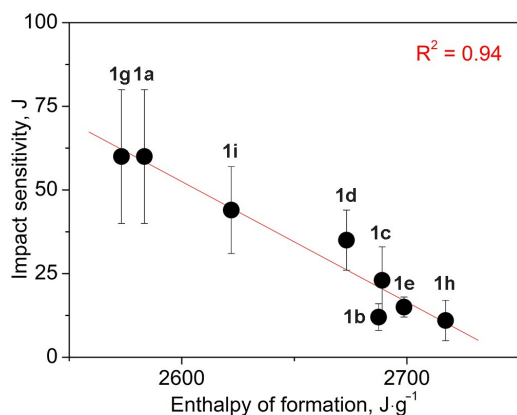


Рисунок 3. График зависимости чувствительности к удару от объемной энтальпии образования для соединений **1a–e, g–i**.

мальной объемной теплоте взрыва хорошо коррелируют.²⁸ Максимальная теплота взрыва, в свою очередь, зависит от двух параметров:²⁷ элементного состава и теплоты образования соединения. Действительно, применительно к нашему ряду изомеров, имеющих один и тот же элементный состав, можно наблюдать корреляцию между чувствительностью к удару и непосредственно энтальпией образования (рис. 3).

Из полученных данных следует, что наименьшую чувствительность к удару проявляют соединения **1a, g**, обладающие меньшей энтальпией и плотностью. И наоборот: более плотные, обладающие более высокой концентрацией энергии изомеры значительно более чувствительны к удару.

По совокупности параметров (энергетическая эффективность, термостабильность) в исследуемом ряду изомерных соединений наиболее эффективным оказался 3-(4-нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-5-(3-нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (**1b**). Этот изомер обладает наиболее высокой плотностью (1.804 г/см³) и температурой начала разложения (T_d 343°C), имея детонационные параметры, превосходящие таковые HNS и TNT.

Таким образом, разработан селективный метод синтеза региоизомерных *N*-незамещенных ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов – потенциальных термостойких высокоэнергетических соединений. Показано, что все изученные изомеры по энергетической эффективности, термостабильности и чувствительности к механическим воздействиям превосходят гексанитростильбен. Установлено, что региохимическая модуляция в ряду этих соединений существенно влияет на плотность, термостабильность, чувствительность к механическим воздействиям и энергетическую эффективность и, следовательно, позволяет, в зависимости от задачи, управлять этими свойствами.

Экспериментальная часть

ИК спектры записаны на фурье-спектрометре Bruker Alpha в таблетках KBr. Спектры ЯМР ¹H, ¹³C и ¹⁴N (300, 76, и 22 МГц соответственно) зарегистрированы на приборе Bruker AM-300 в DMSO-*d*₆ при 299K. Внутренний стандарт TMS для спектров ЯМР ¹H и ¹³C, MeNO₂ для спектров ЯМР ¹⁴N. Масс-спектры высокого разрешения при ионизации электрораспылением

зарегистрированы на приборе Bruker micrOTOF II. Температуры плавления соединений **1f** и **4a–i** определены по Кофлеру на столике Voetius (скорость нагрева 4°/мин) и не исправлены. Исследования ДСК соединений **1a–e, g–i** проведены на приборе Netzsch DSC 204 HP (скорость нагрева 5K/мин). Образцы массой 0.6–1 мг помещают в алюминиевые тиглы с пробитой крышкой. Большинство опытов проводят при давлении азота 2.0 МПа для подавления испарения образцов.²⁹ Чувствительность к удару и трению определена по стандартным методикам, детали которых изложены в работе.²⁸ Плотность соединений определена на гелиевом пикнометре AccuPyc II 1340 при 298K. Контроль за ходом реакций и чистотой полученных соединений осуществлен методом ТСХ на пластинах Merck Silicagel 60 F₂₅₄.

Амидоксиды **2a–c**^{18,30} и хлорангидриды **3a–c**³¹ синтезированы согласно известным литературным методикам.

Синтез 3,5-ди(нитропиразолил)-1,2,4-оксадиазолов 1a–i из O-ацетамидоксидов в AcOH при кипячении (общая методика). Суспензию 1.78 г (5.33 ммоль) соответствующего O-ацетамидоксида **4a–i** в 20 мл AcOH кипятят в течение 1–8 ч (до растворения осадка), после чего реакционную смесь охлаждают до 20°C. Для 1,2,4-оксадиазолов **1a–e, g–i** выпавший осадок фильтруют, промывают гексаном и кристаллизуют из EtOH. Для 1,2,4-оксадиазола **1f** растворитель упаривают при пониженном давлении, сухой остаток затирают с Et₂O, образовавшийся осадок фильтруют, промывают на фильтре гексаном и кристаллизуют из EtOH. Все продукты сушат при 100–110°C при пониженном давлении.

3,5-Ди(4-нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (1a). Выход 1.32 г (85%), белый порошок, т. пл. 270°C (т. нач. разл. 314°C¹⁷). ИК спектр, ν , см⁻¹: 3263, 3140, 1606, 1547 (NO₂), 1531, 1471, 1463, 1413, 1390, 1370 (NO₂), 1349, 1316, 1271, 1253, 1111, 1082, 974, 938, 913, 824, 749, 621, 572, 486. Спектр ЯМР ¹H, δ , м. д.: 14.79 (2H, уш. с, NH); 9.20 (1H, с, H-5'); 9.14 (1H, с, H-5). Спектр ЯМР ¹³C, δ , м. д.: 168.7 (C-5 оксадиазол); 162.2 (C-3 оксадиазол); 134.2 (C-5); 133.9 (C-5'); 133.0 (C-4); 132.5 (C-3); 132.2 (C-3'); 130.7 (C-4'). Найдено, *m/z*: 293.0383 [M+H]⁺. C₈H₅N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 293.0377.

3-(4-Нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-5-(3-нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (1b). Выход 1.10 г (71%), белый порошок, т. пл. 343°C. ИК спектр, ν , см⁻¹: 3288, 3206, 3135, 1644, 1543 (NO₂), 1522, 1483, 1385, 1349 (NO₂), 1328, 1303, 1257, 1184, 1107, 1096, 1083, 1023, 994, 968, 945, 932, 900, 864, 823, 754, 625, 611, 516. Спектр ЯМР ¹H, δ , м. д.: 15.85 (1H, уш. с, NH); 14.69 (1H, уш. с, NH); 9.13 (1H, с, H-5); 7.94 (1H, с, H-4'). Спектр ЯМР ¹³C, δ , м. д.: 166.8 (C-5 оксадиазол); 162.2 (C-3 оксадиазол); 156.1 (C-3'); 134.4 (C-5); 132.9 (C-4); 132.2 (C-3); 130.0 (C-5'); 104.9 (C-4'). Спектр ЯМР ¹⁴N, δ , м. д.: -20.02 (NO₂). Найдено, *m/z*: 293.0377 [M+H]⁺. C₈H₅N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 293.0377.

3-(4-Нитро-1*H*-пиразол-5-ил)-5-(3-нитро-1*H*-пиразол-4-ил)-1,2,4-оксадиазол (1c). Выход 1.32 г (85%), белый порошок, т. пл. 261°C. ИК спектр, ν , см⁻¹: 3314, 3157, 3109, 2969, 1617, 1548, 1529 (NO₂), 1475, 1450, 1387

(NO₂), 1357, 1336, 1312, 1262, 1206, 1189, 1160, 1108, 1082, 971, 939, 912, 824, 774, 751, 623, 610, 483. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 14.58 (2H, уш. с, NH); 9.12 (1H, с, Н-5); 8.95 (1H, с, Н-5'). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 169.3 (С-5 оксадиазол); 162.4 (С-3 оксадиазол); 153.4 (С-3'); 136.7 (С-5'); 134.3 (С-5); 133.7 (С-4); 132.6 (С-3); 100.7 (С-4'). Найдено, *m/z*: 291.0234 [M–H][–]. C₈H₃N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 291.0232.

3-(3-Нитро-1H-пиразол-5-ил)-5-(4-нитро-1H-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (1d). Выход 0.95 г (61%), белый порошок, т. пл. 312°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3261, 3226, 3139, 3125, 1592, 1541 (NO₂), 1511, 1479, 1465, 1417, 1397, 1371, 1347 (NO₂), 1309, 1284, 1270, 1258, 1191, 1112, 1090, 1072, 995, 948, 934, 916, 876, 858, 823, 753, 626. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 15.23 (2H, уш. с, NH); 9.21 (1H, с, Н-5'); 7.68 (1H, с, Н-4). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 169.4 (С-5 оксадиазол); 160.2 (С-3 оксадиазол); 156.4 (С-3); 134.2 (С-5'); 132.6 (С-3'); 132.0 (С-5); 130.5 (С-4'); 103.0 (С-4). Найдено, *m/z*: 315.0191 [M+Na]⁺. C₈H₄N₈NaO₅. Вычислено, *m/z*: 315.0197.

3,5-Ди(3-нитро-1H-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (1e). Выход 1.28 г (82%), белый порошок, т. пл. 312°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3444, 3144, 2854, 1642, 1610, 1546 (NO₂), 1515, 1457, 1408, 1388, 1353 (NO₂), 1331, 1306, 1258, 1184, 1015, 998, 943, 910, 828, 753. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 15.50 (2H, уш. с, NH); 7.86 (1H, с, Н-4'); 7.59 (1H, с, Н-4). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 170.4 (С-5 оксадиазол); 159.9 (С-3 оксадиазол); 157.2 (С-3'); 156.4 (С-3); 133.6 (С-5); 132.6 (С-5'); 104.4 (С-4'); 102.8 (С-4). Найдено, *m/z*: 293.0381 [M+H]⁺. C₈H₄N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 293.0373.

3-(3-Нитро-1H-пиразол-5-ил)-5-(3-нитро-1H-пиразол-4-ил)-1,2,4-оксадиазол (1f). Выход 1.4 г (90%), светло-коричневый порошок, т. пл. 262–263°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3160, 3127, 3003, 2967, 2939, 1702, 1601, 1552 (NO₂), 1505, 1464, 1411, 1391, 1354 (NO₂), 1304, 1241, 1216, 1113, 1094, 1071, 997, 969, 947, 912, 859, 828, 757, 605, 463. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 15.10 (2H, уш. с, NH); 8.91 (1H, с, Н-5'); 7.61 (1H, с, Н-4). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 169.5 (С-5 оксадиазол); 160.0 (С-3 оксадиазол); 156.4 (С-3); 152.9 (С-3'); 136.4 (С-5'); 132.3 (С-5); 102.9 (С-4); 100.1 (С-4'). Найдено, *m/z*: 291.0242 [M–H][–]. C₈H₃N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 291.0232.

3-(3-Нитро-1H-пиразол-4-ил)-5-(4-нитро-1H-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (1g). Выход 1.48 г (95%), белый порошок, т. пл. 204°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3455, 3140, 3094, 2917, 2902, 2848, 1649, 1631, 1614, 1533, 1488, 1443, 1393, 1356, 1303, 1248, 1224, 1203, 1172, 1103, 1096, 1061, 973, 940, 913, 861, 823, 754, 651, 631, 588, 534, 476. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 9.00 (1H, с, Н-5'); 8.70 (1H, с, Н-5). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 169.1 (С-5 оксадиазол); 161.5 (С-3 оксадиазол); 153.1 (С-3); 134.8 (С-5); 134.0 (С-5'); 133.6 (С-3'); 130.9 (С-4'); 102.4 (С-4). Найдено, *m/z*: 291.0232 [M–H][–]. C₈H₃N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 291.0232.

3-(3-Нитро-1H-пиразол-4-ил)-5-(3-нитро-1H-пиразол-5-ил)-1,2,4-оксадиазол (1h). Выход 0.99 г (64%), белый порошок, т. пл. 295°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3444, 3427, 3385, 3146, 1696, 1642, 1614, 1528 (NO₂), 1463, 1412, 1367 (NO₂), 1342, 1309, 1261, 1195, 1175, 1103, 1065, 1033, 1009, 954, 919, 861, 836, 755, 568, 506. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 15.72 (1H, уш. с, NH); 14.58 (1H, уш. с,

NH); 8.68 (1H, с, Н-5'); 7.92 (1H, с, Н-4). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 172.6 (С-5 оксадиазол); 161.4 (С-3 оксадиазол); 158.9 (С-3'); 153.6 (С-3); 137.3 (С-5'); 135.1 (С-5); 104.1 (С-4'); 103.6 (С-4). Найдено, *m/z*: 291.0231 [M–H][–]. C₈H₃N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 291.0232.

3,5-Ди(3-нитро-1H-пиразол-4-ил)-1,2,4-оксадиазол (1i). Выход 1.23 г (79%), белый порошок, т. пл. 263°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3480, 3435, 3133, 2945, 2901, 2877, 1649, 1618, 1535 (NO₂), 1468, 1390, 1371, 1344 (NO₂), 1302, 1239, 1216, 1193, 1101, 1060, 976, 942, 910, 864, 829, 766, 644, 543, 477. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 14.75 (1H, с, NH); 14.56 (1H, с, NH); 8.91 (1H, с, Н-5'); 8.66 (1H, с, Н-5). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 169.0 (С-5 оксадиазол); 161.7 (С-3 оксадиазол); 153.6 (С-3); 153.5 (С-3'); 136.5 (С-5'); 134.9 (С-5); 102.9 (С-4); 100.8 (С-4'). Найдено, *m/z*: 291.0235 [M–H][–]. C₈H₃N₈O₅. Вычислено, *m/z*: 291.0232.

Синтез 3,5-ди(4-нитро-1H-пиразол-3-ил)-1,2,4-оксадиазола (1a) в ДМСО в основных условиях. К раствору 200 мг (0.60 ммоль) ациламинодоксима **4a** в 9.6 мл абсолютного ДМСО при перемешивании добавляют 48 мг (9.80 ммоль) NaOH. Реакционную смесь перемешивают в течение 6 ч, выливают в 10 мл холодной H₂O, содержащей 1 мл концентрированной HCl. Выпавший осадок фильтруют, промывают H₂O, сушат при 100–110°C (при пониженном давлении). Выход 100 мг (61%).

Синтез ацетамидоксимонов 4a–i (общая методика). Раствор 6.37 ммоль хлорангидрида **3a–c** в 15 мл абсолютного MeCN при 0°C при перемешивании по каплям добавляют к смеси 6.37 ммоль амидоксима **2a–c** и 0.64 мл (6.37 ммоль) Et₃N в 15 мл абсолютного MeCN. Реакционную смесь перемешивают в тех же условиях в течение 30 мин, затем перемешивают в течение 1 ч при 20°C. Выливают в 150 мл холодной H₂O, выпавший осадок фильтруют, промывают H₂O, сушат при 80–90°C. Продукт кристаллизуют из MeOH или EtOH.

(Z)-4-Нитро-N'-{(4-нитро-1H-пиразол-5-ил)-карбонил}окси-1H-пиразол-5-карбоксимидамид (4a). Выход 1.16 г (59%), белый порошок, т. пл. 143–145°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3422, 3353, 3208, 3140, 1749, 1659, 1598 (NO₂), 1551, 1526, 1486, 1454, 1397, 1375 (NO₂), 1326, 1286, 1238, 1185, 1158, 1114, 1087, 945, 925, 831, 760, 749, 704, 608. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 14.42 (2H, уш. с, NH); 8.91 (1H, с, Н-3'); 8.86 (1H, с, Н-3); 7.17 (2H, уш. с, NH₂). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 158.2; 151.2; 138.2; 137.5; 133.5; 133.4; 131.5; 131.1. Найдено, *m/z*: 311.0482 [M+H]⁺. C₈H₇N₈O₆. Вычислено, *m/z*: 311.0483.

(Z)-4-Нитро-N'-{(3-нитро-1H-пиразол-5-ил)-карбонил}окси-1H-пиразол-5-карбоксимидамид (4b). Выход 1.40 г (71%), белый порошок, т. пл. 271–272°C. ИК спектр, ν, см^{–1}: 3401, 3295, 3248, 3213, 3143, 1747, 1638, 1600, 1580 (NO₂), 1541, 1501, 1463, 1398, 1382, 1339 (NO₂), 1320, 1234, 1196, 1101, 1080, 995, 940, 919, 839, 822, 751, 731, 619, 575. Спектр ЯМР ¹H, δ, м. д.: 15.21 (1H, уш. с, NH); 14.28 (1H, уш. с, NH); 8.98 (1H, с, Н-3); 8.05 (1H, с, Н-4'); 7.46 (2H, с, NH₂). Спектр ЯМР ¹³C, δ, м. д.: 156.2; 155.2; 151.5; 138.3; 134.9; 133.5; 130.7; 105.7. Найдено, *m/z*: 311.0488 [M+H]⁺. C₈H₇N₈O₆. Вычислено, *m/z*: 311.0483.

(Z)-4-Нитро-N'-{(3-нитро-1H-пиразол-4-ил)-карбонил}окси-1H-пиразол-5-карбоксимид (4c). Выход 1.24 г (63%), белый порошок, т. пл. 144–146°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3483, 3396, 3145, 2948, 1741, 1646, 1532 (NO_2), 1391, 1354 (NO_2), 1343, 1214, 1191, 1169, 1095, 1062, 944, 925, 863, 832, 753. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 14.31 (1H, с, NH); 13.68 (1H, с, NH); 8.88 (1H, с, H-3); 8.84 (1H, с, H-5'); 7.19 (2H, с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 158.3; 157.2; 154.6; 135.5; 133.5; 107.9; 106.0. Найдено, m/z : 311.0480 $[\text{M}+\text{H}]^+$. $\text{C}_8\text{H}_7\text{N}_8\text{O}_6$. Вычислено, m/z : 311.0483.

(Z)-3-Нитро-N'-{(4-нитро-1H-пиразол-5-ил)-карбонил}окси-1H-пиразол-5-карбоксимид (4d). Выход 1.10 г (56%), белый порошок, т. пл. 280–281°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3492, 3386, 3149, 3133, 2861, 1754, 1635, 1601, 1535 (NO_2), 1511, 1479, 1463, 1437, 1366 (NO_2), 1280, 1258, 1243, 1109, 1076, 1000, 942, 923, 852, 830, 817, 754, 432. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 14.63 (2H, уш. с, NH); 9.06 (1H, с, H-3'); 7.59 (1H, с, H-4); 7.36 (2H, с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 156.1; 155.8; 155.2; 148.8; 136.5; 134.8; 105.8; 102.5. Найдено, m/z : 311.0487 $[\text{M}+\text{H}]^+$. $\text{C}_8\text{H}_7\text{N}_8\text{O}_6$. Вычислено, m/z : 311.0483.

(Z)-3-Нитро-N'-{(3-нитро-1H-пиразол-5-ил)карбонил}окси-1H-пиразол-5-карбоксимид (4e). Выход 1.50 г (76%), белый порошок, т. пл. 278–280°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3447, 3348, 3243, 3160, 3136, 1725, 1652, 1612, 1544 (NO_2), 1511, 1479, 1463, 1437, 1366 (NO_2), 1327, 1203, 1012, 997, 922, 849, 831, 773, 754. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 8.04 (1H, с, H-4'); 7.61 (1H, с, H-4); 7.52 (2H, с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 156.1; 155.8; 155.2; 148.7; 136.5; 134.8; 105.8; 102.5. Найдено, m/z : 311.0490 $[\text{M}+\text{H}]^+$. $\text{C}_8\text{H}_7\text{N}_8\text{O}_6$. Вычислено, m/z : 311.0483.

(Z)-3-Нитро-N'-{(3-нитро-1H-пиразол-4-ил)карбонил}окси-1H-пиразол-5-карбоксимид (4f). Выход 0.91 г (46%), светло-коричневый порошок, т. пл. 176–178°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3504, 3406, 3145, 3111, 1744, 1646, 1604, 1527 (NO_2), 1470, 1419, 1398, 1366 (NO_2), 1354, 1219, 1180, 1111, 1096, 996, 944, 921, 849, 828, 744. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 14.53 (2H, уш. с, NH); 8.85 (1H, с, H-5'); 7.59 (1H, с, H-4); 7.27 (2H, с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 158.3; 157.2; 154.6; 137.1; 135.5; 133.5; 107.9; 106.0. Найдено, m/z : 311.0489 $[\text{M}+\text{H}]^+$. $\text{C}_8\text{H}_7\text{N}_8\text{O}_6$. Вычислено, m/z : 311.0483.

(Z)-3-Нитро-N'-{(4-нитро-1H-пиразол-5-ил)карбонил}окси-1H-пиразол-4-карбоксимид (4g). Выход 1.72 г (87%), белый порошок, т. пл. 156–157°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3488, 3383, 3188, 3160, 3118, 2985, 2852, 1736, 1652, 1599, 1534 (NO_2), 1464, 1418, 1391, 1331 (NO_2), 1221, 1189, 1090, 1008, 993, 944, 911, 838, 820, 753, 713, 478. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 8.89 (1H, с, H-5'); 8.31 (1H, с, H-5); 7.03 (2H, уш. с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 158.3; 153.4; 151.2; 134.7; 133.4 (2C); 131.6; 107.9. Найдено, m/z : 333.0302 $[\text{M}+\text{Na}]^+$. $\text{C}_8\text{H}_6\text{N}_8\text{NaO}_6$. Вычислено, m/z : 333.0303.

(Z)-3-Нитро-N'-{(3-нитро-1H-пиразол-5-ил)карбонил}окси-1H-пиразол-4-карбоксимид (4h). Выход 1.62 г (82%), белый порошок, т. пл. 286–288°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3479, 3430, 3380, 3251, 3160, 1747, 1666, 1642, 1607, 1540 (NO_2), 1496, 1448, 1410, 1368 (NO_2), 1337, 1230, 1154, 1133, 1084, 1086, 928, 840, 805, 771, 746, 711, 655, 623, 564, 436. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 8.34

(1H, с, H-5); 8.01 (1H, с, H-4'); 7.34 (2H, уш. с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 156.1; 155.3; 153.4; 151.1; 135.0; 133.4; 107.9; 105.5. Спектр ЯМР ^{14}N , δ , м. д.: –20.11 (NO_2). Найдено, m/z : 309.0339 $[\text{M}-\text{H}]^-$. $\text{C}_8\text{H}_5\text{N}_8\text{O}_6$. Вычислено, m/z : 309.0338.

(Z)-3-Нитро-N'-{(3-нитро-1H-пиразол-4-ил)карбонил}окси-1H-пиразол-4-карбоксимид (4i). Выход 1.74 г (88%), светло-коричневый порошок, т. пл. 206–208°C. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 3504, 3464, 3391, 3332, 3150, 2958, 2917, 1719, 1634, 1592, 1540 (NO_2), 1505, 1480, 1418, 1386, 1341 (NO_2), 1220, 1182, 1098, 1091, 1061, 941, 918, 847, 839, 814, 751, 508. Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: 8.82 (1H, с, H-5); 8.29 (1H, с, H-5'); 7.05 (2H, с, NH_2). Спектр ЯМР ^{13}C , δ , м. д.: 157.4; 154.5; 153.4; 150.7; 135.4; 133.4; 108.2; 106.2. Найдено, m/z : 311.0481 $[\text{M}+\text{H}]^+$. $\text{C}_8\text{H}_7\text{N}_8\text{O}_6$. Вычислено, m/z : 311.0483.

Файл сопроводительных материалов, содержащий спектры ЯМР ^1H , ^{13}C , $^1\text{H}-^{13}\text{C}$ HMBC и $^1\text{H}-^{13}\text{C}$ HSQC соединений **1a–i**, доступен на сайте журнала <http://hgs.osi.lv>.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект РНФ 20-13-00289).

Список литературы

- (a) Zlotin, S. G.; Dalinger, I. L.; Makhova, N. N.; Tartakovskiy, V. A. *Russ. Chem. Rev.* **2020**, *89*, 1. (b) Zlotin, S. G.; Churakov, A. M.; Egorov, M. P.; Fershtat, L. L.; Klenov, M. S.; Kuchurov, I. V.; Makhova, N. N.; Smimov, G. A.; Tomilov, Y. V.; Tartakovskiy, V. A. *Mendeleev Commun.* **2021**, *31*, 731.
- (a) Pepekin, V. I. *Russ. J. Phys. Chem. B* **2010**, *4*, 954. (b) Pepekin, V. I. *Russ. J. Phys. Chem. B* **2011**, *5*, 41. (c) Dalinger, I. L.; Suponitsky, K. Yu.; Pivkina, A. N.; Sheremetev, A. B. *Propellants, Explos., Pyrotech.* **2016**, *41*, 789. (d) Zhou, J.; Zhang, J. L.; Wang, B. Z.; Qiu, L. L.; Xu, R. Q.; Sheremetev, A. B. *FirePhysChem* **2021**. DOI: 10.1016/j.fpc.2021.09.005
- (a) Манелис, Г. Б.; Назин, Г. М.; Рубцов, З. И.; Струнин, В. А. *Термическое разложение и горение взрывчатых веществ и порохов*; Наука: Москва, 1995. (b) Sikder, A. K.; Sikder, N. *J. Hazardous Mat.* **2004**, *112*, 1.
- (a) Pagoria, P. *Propellants, Explos., Pyrotech.* **2016**, *41*, 452. (b) Klapotke, T. M.; Witkowski, T. G. *Propellants, Explos., Pyrotech.* **2016**, *41*, 470. (c) Tang, Y.; He, C.; Imler, G. H.; Parrish, D. A.; Shreeve, J. M. *Chem. Commun.* **2018**, *54*, 10566.
- Wang, Q.; Wang, S.; Feng, X.; Wu, L.; Zhang, G.; Zhou, M.; Wang, B.; Yang, L. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2017**, *9*, 37542.
- Huo, X.; Wang, F.; Niu, L. L.; Gou, R.; Zhang, C. *FirePhysChem* **2021**, *1*, 8.
- Li, H.; Zhang, L.; Petrutik, N.; Wang, K.; Ma, Q.; Shem-Tov, D.; Zhao, F.; Gozin, M. *ACS Cent. Sci.* **2020**, *6*, 54.
- (a) He, C.; Yin, P.; Mitchell, L. A.; Parrish, D. A.; Shreeve, J. M. *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 8123. (b) Koch, E.-C. *Def. Technol.* **2019**, *15*, 467.
- (a) Zhang, M.; Fu, W.; Li, C.; Gao, H.; Tang, L.; Zhou, Z. *Eur. J. Inorg. Chem.* **2017**, 2883. (b) Gutowski, L.; Cudzilo, S. *Def. Technol.* **2021**, *17*, 775.
- Chen, D.; Xiong, H.; Yang, H.; Tang, J.; Cheng, G. *FirePhysChem* **2021**, *1*, 71.
- (a) Dalinger, I. L.; Vatsadze, I. A.; Shkineva, T. K.; Kormanov, A. V.; Struchkova, M. I.; Suponitsky, K. Yu.; Bragin, A. A.; Monogarov, K. A.; Sinditskii, V. P.; Sheremetev, A. B. *Chem.-Asian J.* **2015**, *10*, 1987. (b) Lempert, D. B.; Dalinger, I. L.; Shu, Y.-J.; Kazakov, A. I.

- Sheremetev, A. B. *Chin. J. Explos. Propellants* **2016**, 39, 16.
- (c) Sinditskii, V. P.; Hoang, T. H.; Smirnova, A. D.; Egorshv, V. Yu.; Yudin, N. V.; Vatsadze, I. A.; Dalinger, I. L. *Thermochim. Acta* **2018**, 667, 1. (d) Dalinger, I. L.; Kormanov, A. V.; Suponitsky, K. Yu.; Muravyev, N. V.; Sheremetev, A. B. *Chem.–Asian J.* **2018**, 13, 1165.
- (e) Lempert, D. B.; Kazakov, A. I.; Soglasnova, S. I.; Dalinger, I. L.; Sheremetev, A. B. *Russ. Chem. Bull.* **2018**, 67, 1580. (f) Kazakov, A. I.; Kurochkina, L. S.; Nabatova, A. V.; Lempert, D. B.; Dalinger, I. L.; Kormanov, A. V.; Serushkina, O. V.; Sheremetev, A. B. *Dokl. Phys. Chem.* **2018**, 478, 15. (g) Yan, T.; Yang, H.; Yang, C.; Yi, Z.; Zhua, S.; Cheng, G. *J. Mat. Chem. A* **2020**, 8, 23857.
12. (a) Tang, Y.; He, C.; Imler, G. H.; Parrish, D. A.; Shreeve, J. M. *Chem. Commun.* **2018**, 54, 10566. (b) Yan, T.; Cheng, G.; Yang, H. *New J. Chem.* **2020**, 44, 6643.
13. (a) Shevelev, S. A.; Dalinger, I. L.; Shkineva, T. K.; Ugrak, B. I.; Gulevskaya, V. I.; Kanishchev, M. I. *Russ. Chem. Bull.* **1993**, 42, 1063. (b) Dalinger, I. L.; Zubanova, N. I.; Kuzmin, V. S.; Shevelev, S. A. *Russ. Chem. Bull.* **1993**, 42, 1211.
14. (a) Fu, Z.; Wang, Y.; Yang, L.; Su, R.; Chen, J.; Nie, F.; Huang, J.; Chen, F.-X. *RSC Adv.* **2014**, 4, 11859. (b) Wang, Z.; Zhang, H.; Jabeen, F.; Gopinathan-Pillai, G.; Arami, J. A.; Killian, B. J.; Stiegler, K. D.; Yudewitz, D. S.; Thiemann, P. L.; Turk, J. D.; Zhou, W.; Steel, P. J.; Hall, C. D.; Katritzky, A. R. *Eur. J. Org. Chem.* **2015**, 7468. (c) Chavez, D. E.; Schulze, M. C.; Parrish, D. A. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2017**, 53, 737. (d) Pagoria, P. F.; Zhang, M.-X.; Zuckerman, N. B. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2017**, 53, 760. (e) Hermann, T. S.; Klapötke, T. M.; Krumm, B.; Stierstorfer, J. *Asian J. Org. Chem.* **2018**, 7, 739. (f) Johnson, E. C.; Sabatini, J. J.; Chavez, D. E.; Sausa, R. C.; Byrd, E. F. C.; Wingard, L. A.; Guzman, P. E. *Org. Process Res. Dev.* **2018**, 22, 736. (g) Bennion, J. C.; Batyrev, I. G.; Cieczak-Jenkins, J. A. *Propellants, Explos., Pyrotech.* **2019**, 44, 160. (h) Xue, Q.; Bi, F.; Zhang, J.; Wang, Z.; Zhai, L.; Huo, H.; Wang, B.; Zhang, S. *Front. Chem.* **2020**, 7, 942.
15. (a) Xiong, H.; Cheng, G.; Zhang, Z.; Yang, H. *New J. Chem.* **2019**, 43, 7784. (b) Tang, Y.; Gao, H.; Mitchell, L. A.; Parrish, D. A.; Shreeve, J. M. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2016**, 55, 3200. (c) Qu, Y.; Zeng, Q.; Wang, J.; Ma, Q.; Li, H.; Li, H.; Yang, H. *Chem.–Eur. J.* **2016**, 22, 12527. (d) Li, B.; Luo, Y.; Wang, H.; Ju, R.; Lei, W.; Zhang, M. *Propellants, Explos., Pyrotech.* **2020**, 45, 1870.
16. (a) Dalinger, I. L.; Shkineva, T. K.; Vatsadze, I. A.; Kormanov, A. V.; Kozeev, A. M.; Suponitsky, K. Yu.; Pivkina, A. N.; Sheremetev, A. B. *FirePhysChem* **2021**, 1, 83. (b) Sinditskii, V. P.; Smirnova, A. D.; Serushkin, V. V.; Yudin, N. V.; Vatsadze, I. A.; Dalinger, I. L.; Kiselev, V. G.; Sheremetev, A. B. *Thermochim. Acta* **2021**, 698, 178876. (c) Kormanov, A. V.; Lipilin, D. L.; Shkineva, T. K.; Vatsadze, I. A.; Kozeev, A. M.; Dalinger, I. L. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2017**, 53, 876. (d) Dalinger, I. L.; Vatsadze, I. A.; Shkineva, T. K.; Kormanov, A. V.; Kozeev, A. M.; Sheremetev, A. B.; Averkiev, B. B.; Dalinger, A. I.; Beklemishev, M. K. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2015**, 51, 545.
17. Yan, T.; Cheng, G.; Yang, H. *ChemPlusChem* **2019**, 84, 1567.
18. Shkineva, T. K.; Vatsadze, I. A.; Khoranyan, T. E.; Lipilin, D. L.; Pivkina, A. N.; Dalinger, I. L. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2021**, 57, 828.
19. (a) Baykov, S.; Sharonova, T.; Osipyan, A.; Rozhkov, S.; Shetnev, A.; Smirnov, A. *Tetrahedron Lett.* **2016**, 57, 2898. (b) Baykov, S.; Sharonova, T.; Shetnev, A.; Rozhkov, S.; Kalinin S.; Smirnov, A. *Tetrahedron* **2017**, 73, 945.
20. (a) Kayukova, L. A. *Pharm. Chem. J.* **2005**, 39, 539. (b) Pace, A.; Buscemi, S.; Piccionello, A. P.; Pibiri, I. *Adv. Heterocycl. Chem.* **2015**, 116, 85.
21. Dosa, S.; Daniels, J.; Gütschow, M. *J. Heterocycl. Chem.* **2011**, 48, 407.
22. Outirite, M.; Lebrini, M.; Lagrenee, M.; Bentiss, F. *J. Heterocycl. Chem.* **2007**, 44, 1529.
23. Vatsadze, I. A.; Serushkina, O. V.; Dutov, M. D.; Shkineva, T. K.; Suponitsky, K. Yu.; Ugrak, B. I.; Dalinger, I. L. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2015**, 51, 695.
24. Zaitsev A. A.; Dalinger, I. L.; Shevelev, S. A. *Russ. Chem. Rev.* **2009**, 78, 589.
25. (a) Benson, S. W.; Cruickshank, F. R.; Golden, D. M.; Haugen, G. R.; O'Neal, H. E.; Rodgers, A. S.; Shaw, R.; Walsh, R. *Chem. Rev.* **1969**, 69, 279. (b) Лебедев, Ю. А.; Мирошниченко, Е. А.; Кнобель, Ю. К. *Термохимия нитросоединений*; Наука: Москва, 1970, с. 168. (c) Kustova, L. V.; Kirpichev, E. P.; Pubtsov, Y. I.; Avdonin, V. V.; Korepin, A. G.; Eremenko, L. T. *Bull. Acad. Sci. USSR, Div. Chem. Sci.* **1981**, 30, 1830. (d) Holmes, J. L.; Aubry, C. *J. Phys. Chem. A* **2012**, 116, 7196.
26. Bu, R.; Xiong, Y.; Wei, X.; Li, H.; Zhang, C. *Cryst. Growth Des.* **2019**, 19, 5981.
27. Pepekin, V. I.; Lebedev, Yu. A. *Dokl. Akad. Nauk USSR* **1977**, 234, 1391.
28. Muravyev, N. V.; Meerov, D. B.; Monogarov, K. A.; Melnikov, I. N.; Kosareva, E. K.; Fershtat, L. L.; Sheremetev, A. B.; Dalinger, I. L.; Fomenkov, I. V.; Pivkina, A. N. *Chem. Eng. J.* **2021**, 421, 129804.
29. Muravyev, N. V.; Monogarov, K. A.; Bragin, A. A.; Fomenkov, I. V.; Pivkina, A. N. *Thermochim. Acta* **2016**, 631, 1.
30. Lei, C.; Yang, H.; Cheng, G. *Dalton Trans.* **2020**, 49, 1660.
31. (a) Černovská, K.; Kemter, M.; Gallmeier, H. C.; Rzepecki, P.; Schrader, T.; König, B. *Org. Biomol. Chem.* **2004**, 2, 1603. (b) Semeraro, T.; Mugnaini, C.; Manetti, F.; Pasquini, S.; Corelli, F. *Tetrahedron* **2008**, 64, 11249.