

И. Б. Дзвинчук, М. О. Лозинский

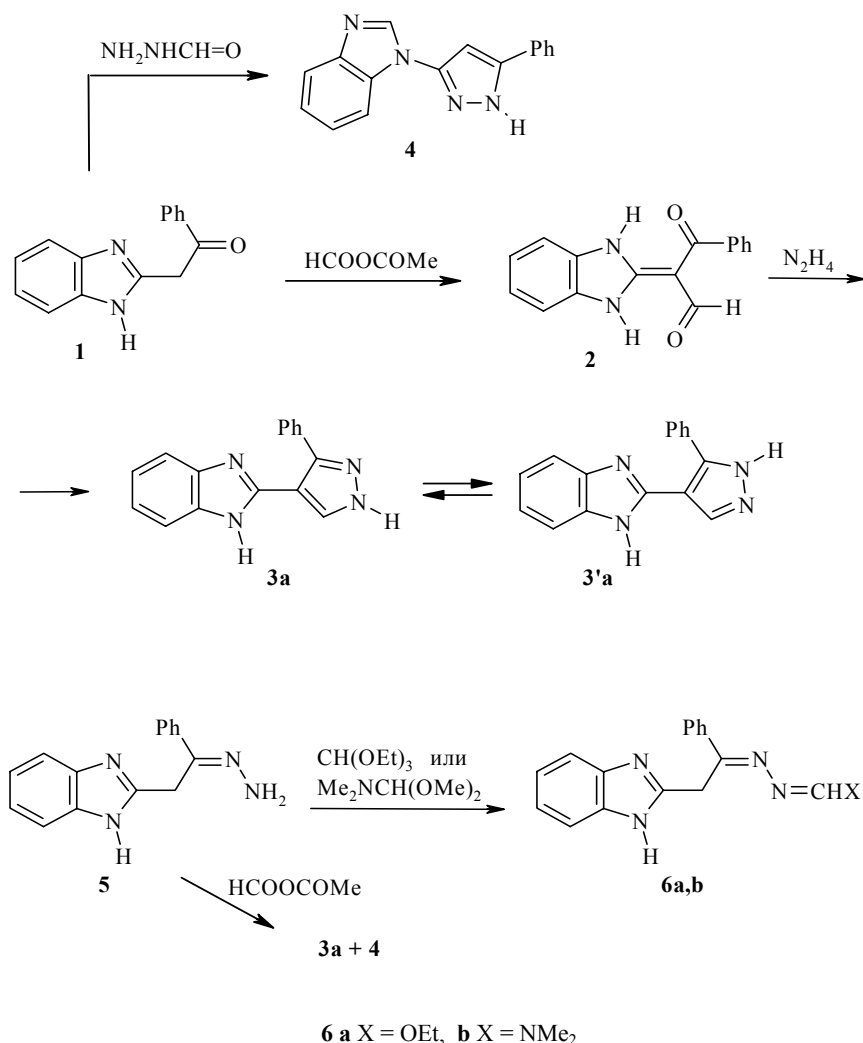
СИНТЕЗ И ТАУТОМЕРИЯ
2-[3(5)-АРИЛ(МЕТИЛ)ПИРАЗОЛ-4-ИЛ]-1Н-БЕНЗИМИДАЗОЛОВ

Разработан эффективный метод синтеза 2-[3(5)-арил(метил)пиразол-4-ил]-1Н-бензимидазолов на основе циклоконденсации бензоилгидразонов 2-ацетилметил-1Н-бензимидазолов с диметилацеталем ДМФА. Методом ЯМР ^1H изучена таутомерия полученных соединений в ДМСО- d_6 , обусловленная миграциями протона между атомами азота пиразольного кольца. Более стабильны таутомеры, в которых электроноакцепторные арильные заместители расположены в положении 3 пиразольного кольца, а электронодонорные арильные или метильный – в положении 5.

Ключевые слова: бензимидазолы, гидразоны, диметилацеталь ДМФА, пиразолы, таутомерия.

Таутомерия соединений пиразола, обусловленная миграциями протона между кольцевыми атомами азота, систематически изучается [1–3], поскольку непредсказуемо зависит от природы и расположения заместителей в кольце, проявляется на избирательности протекания ряда химических превращений и должна учитываться при определении спектральными методами строения и химической индивидуальности соответствующих субстратов. Влияние на нее электронных эффектов двух арильных заместителей в положениях 3 (или 5) и 4 гетерокольца до сих пор не было установлено. Возможно, такая ситуация обусловлена отсутствием объектов и приемов, подходящих для проведения надежных исследований. Например, ранее нами, исходя из 2-фенацилбензимидазола **1** через продукт его формилирования **2** и последующее взаимодействие с гидразином, был получен пиразол **3a**, который, по данным ЯМР ^1H , существует в растворе в равновесии с таутомерной формой **3'a** [4]. Сигналы ароматического протона пиразольного кольца обоих таутомеров проявляются раздельно, и, казалось бы, определение количественного и качественного состава равновесия не должно вызывать затруднений. Однако надежное отнесение сигналов к определенному таутомеру усложнено из-за отсутствия объекта сравнения. Кроме того, сам метод синтеза малоперспективен для получения обширной серии соединений из-за ряда недостатков, основной из которых – малая избирательность превращения на последней стадии. Поэтому мы задались целью устранить помехи в получении серии соединений типа **3** и изучении закономерностей их таутомерии.

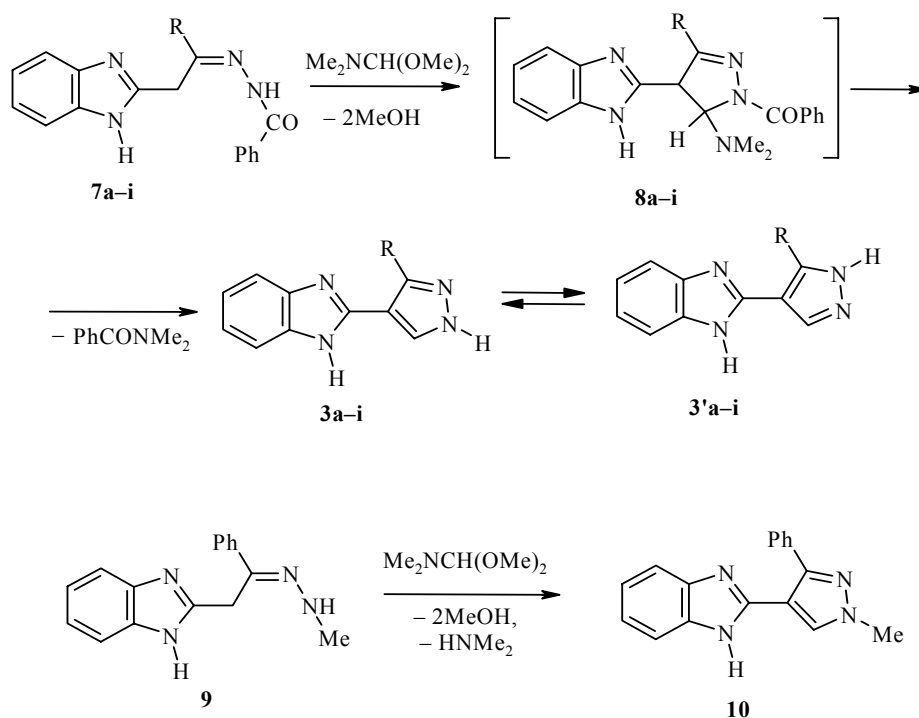
Пути к эффективному методу синтеза были неочевидны и поэтому подбирались нами методом проб и ошибок на примерах превращений 2-фенацилбензимидазола **1** и его гидразонов. Так, была проверена



возможность синтеза по аналогии с известным методом получения 2-(4-пиразолил)бензимидазолов [5], основанном на циклоконденсации соединения **1** с ароилгидразинами. Однако соответствующее взаимодействие с формилгидразином протекает с образованием смеси продуктов, из которой нам удалось выделить лишь 1-(3-пиразолил)бензимидазол **4**. Результат реакции – неожиданный. Но строение продукта не вызывает сомнений, поскольку ранее мы уже получали его при кипячении гидразона 2-фенацилбензимидазола **5** в ДМФА [6].

Мы испытали также описанный в работе [7] метод синтеза пиразолов, основанный на взаимодействии гидразонов 2-фенацилазагетероциклов с ангидридами карбоновых кислот. Однако соответствующее взаимодействие гидразона **5** с уксусномуравьиным ангидридом осложняется, по данным ТСХ, образованием соединения **4** и выделить целевой продукт **3a** удалось через хлористоводородную соль с выходом лишь 65%.

Не оправдался и расчет получить соединение **3a** взаимодействием гидразона **5** с этилортомуравьиным эфиром или с димилацеталем ДМФА. Реакция протекает по аминогруппе гидразона с образованием



3, 3', 7 a R = Ph, **b** R = 4-MeOC₆H₄, **c** R = 4-MeC₆H₄, **d** R = 3,4,5-(MeO)₃C₆H₂,
e R = 3-ClC₆H₄, **f** R = 3-O₂NC₆H₄, **g** R = 4-O₂NC₆H₄ (**g**), **h** R = 2-фурил, **i** R = Me

соединений **6a,b**. Все наши попытки провести избирательно последующую внутримолекулярную циклизацию по метиленовой группе не дали обнадеживающих результатов.

Проблему синтеза удалось решить на основе циклоконденсации бензоилгидразонов 2-ацетилметил-1H-бензимидазолов **7a-i** с диметилацеталем ДМФА. Реакция, возможно, протекает с промежуточным образованием соединений типа **8** и после отщепления N,N-диметилбензамида приводит к целевым пиразолам **3a-i**. Процесс осуществляется в диоксане при 80 °С и завершается за 40 мин без существенного осложнения побочными процессами. Диметилбензамид обнаруживается в реакционной смеси методом ТСХ, но благодаря повышенной растворимости не мешает выделению пиразолов с высокими выходами (75–99%).

Результат и избирательность проведенной реакции предвидеть было сложно, поскольку ранее мы выявили, что такой электрофильный реагент как трифторацетангидрид реагирует с бензоилгидразонами типа **7** по различным направлениям. Так, соединение **7a** при этом подвергается рециклизации с образованием пиразольного кольца за счет размыкания бензимидазольного [8], а соединение **7i** претерпевает полициклоконденсацию с образованием [1,3,4]оксадиазоло[2',3':2,3]пиримидо[1,6-*a*]бензимидазола [9]. Тем не менее разработанный нами способ синтеза пиразолов типа **3** достаточно эффективен и имеет, вероятно, более общий характер.

Характеристики синтезированных соединений

Соединение	Брутто-формула	Найдено, % Вычислено, %			Т. пл., °С	Выход, %
		С	Н	N		
3b	C ₁₇ H ₁₄ N ₄ O	<u>70.27</u>	<u>4.72</u>	<u>19.24</u>	220.5–222	91
		70.33	4.86	19.30		
3c	C ₁₇ H ₁₄ N ₄	<u>74.36</u>	<u>5.03</u>	<u>20.28</u>	163.5–165	96
		74.43	5.14	20.42		
3d	C ₁₉ H ₁₈ N ₄ O ₃	<u>65.06</u>	<u>5.12</u>	<u>15.81</u>	155–158	75
		65.13	5.18	15.99		
3e	C ₁₆ H ₁₁ ClN ₄	<u>65.11</u>	<u>3.93</u>	<u>18.87</u>	152.5–155	77
		65.20	3.76	19.01		
3f	C ₁₆ H ₁₁ N ₅ O ₂	<u>62.89</u>	<u>3.78</u>	<u>22.85</u>	158–162	75
		62.95	3.63	22.94		
3g	C ₁₆ H ₁₁ N ₅ O ₂	<u>62.97</u>	<u>3.71</u>	<u>22.95</u>	273.5–275	99
		62.95	3.63	22.94		
3h	C ₁₄ H ₁₀ N ₄ O	<u>67.15</u>	<u>3.98</u>	<u>22.33</u>	218.5–220	98
		67.19	4.03	22.39		
3i	C ₁₁ H ₁₀ N ₄	<u>66.59</u>	<u>5.02</u>	<u>28.17</u>	248.5–250	82
		66.65	5.08	28.26		
6a	C ₁₈ H ₁₈ N ₄ O	<u>70.42</u>	<u>5.86</u>	<u>18.15</u>	180–182	89
		70.57	5.92	18.29		
6b	C ₁₈ H ₁₉ N ₅	<u>70.74</u>	<u>6.32</u>	<u>22.87</u>	234–235.5	79
		70.80	6.27	22.93		
10	C ₁₇ H ₁₄ N ₄	<u>74.39</u>	<u>5.09</u>	<u>20.35</u>	247–248.5	98
		74.43	5.14	20.42		

В частности найдено, что метилгидразон 2-фенацилбензимидазола **9** также легко дает 1-метил-3-фенилзамещенный пиразол **10**, который имеет очевидное структурное сходство с таутомером **3a** и был использован нами в качестве модельного соединения при изучении таутомерии соединений типа **3** в ДМСО-d₆.

Физико-химические характеристики новых синтезированных соединений представлены в табл. 1, спектры ЯМР ¹H – в табл. 2.

В спектре ЯМР ¹H соединения **10** протон, расположенный в положении 5 пиразольного кольца, резонирует при 8.25 м. д. Следовательно, синглетные сигналы соединения **3a** при 8.31 и 8.08 м. д. соответствуют таутомерам **3a** и **3'a**. Сигнал, относящийся к таутомеру **3'a**, проявляется в более сильном поле, по-видимому, вполне закономерно. Именно в этой структуре атом азота в положении 1 пиразольного кольца оказывает существенное электронодонорное влияние на положение 3 кольца. В таутомере **3a** такое влияние также возможно, но оно менее эффективно, поскольку цепь сопряжения на одну кратную связь длиннее. В спектрах остальных соединений **3a–i** сигналы ароматического протона пиразольного кольца проявляются, соответственно, в интервалах 8.27–8.46 и

Спектры ЯМР ^1H синтезированных соединений

Соединение	Химические сдвиги, δ , м. д. (J , Гц)
3a	7.11–7.19 (2H, м, H-5,6), 7.33–7.46 (4H, м, Ph: H-3,4,5 + H-7), 7.55–7.57 (1H, м, H-4), 7.83–7.86 (2H, д, $J = 6.0$, Ph: H-2–6), 8.08 и 8.31 (0.53 + 0.47H, два с, H-3'(5')), 12.38 и 12.43 (0.47 + 0.53H, уш. с, H-1), 13.39 и 13.55 (0.47 + 0.53H, два с, H-1')
3b	3.77 и 3.81 (3H, два перекрывающихся с, OCH_3), 6.94–6.96 и 7.03–7.06 (0.4 + 0.6H, два д, $J = 7.2$ и $J = 7.8$, 4- $\text{CH}_3\text{OC}_6\text{H}_4$: H-3,5), 7.14–7.17 (2H, м, H-5,6), 7.50–7.53 (2H, м, H-4,7), 7.63–7.86 (2H, м, 4- $\text{CH}_3\text{OC}_6\text{H}_4$: H-2,6), 8.07 и 8.31 (0.6 + 0.4H, два с, H-3'(5')), 12.48 (1H, уш. с, H-1), 13.30 и 13.43 (0.4 + 0.6H, два с, H-1')
3c	2.35 (3H, с, CH_3), 7.14–7.17 (2H, м, H-5,6), 7.14–7.29 (2H, м, 4- $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4$: H-3,5), 7.51 (2H, м, H-4,7), 7.75 (2H, м, 4- $\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4$: H-2,6), 8.08 и 8.31 (0.57 + 0.43H, два с, H-3'(5')), 12.39 (1H, уш. с, H-1), 13.34 и 13.49 (0.43 + 0.57H, два с, H-1')
3d	3.72, 3.77 и 3.85 (9H, три с, $3\text{CH}_3\text{O}$), 7.16–7.19 (2H, м, H-5,6), 7.52–7.55 (2H, м, H-4,7), 7.59 и 7.67 (0.45 + 0.55H, два с, $(\text{CH}_3\text{O})_3\text{C}_6\text{H}_2$), 8.13 и 8.36 (0.55 + 0.45H, два с, H-3'(5')), 12.47 (1H, уш. с, H-1), 13.34 и 13.56 (0.45 + 0.55H, два с, H-1')
3e	7.11–7.20 (2H, м, H-5,6), 7.41–7.57 (4H, м, H-4,7 + 3- ClC_6H_4 : H-4,5), 7.87 (1H, м, 3- ClC_6H_4 : H-6), 8.11 и 8.13 (1 + 0.35H, два перекрывающихся с, 3- ClC_6H_4 : H-2 + H-3'), 8.37 (0.65H, с, H-5'), 12.43 и 12.52 (0.65 + 0.35H, два с, H-1), 13.49 и 13.66 (0.65 + 0.35H, два с, H-1')
3f	7.14–7.22 (2H, м, H-5,6), 7.47–7.49 (1H, м, H-7), 7.57–7.59 (1H, м, H-4), 7.71–7.77 (1H, м, 3- $\text{O}_2\text{NC}_6\text{H}_4$: H-5), 8.21–8.28 (1 + 0.24H, м, 3- $\text{O}_2\text{NC}_6\text{H}_4$: H-4 + H-3'), 8.39–8.49 (1 + 0.76H, м, 3- $\text{O}_2\text{NC}_6\text{H}_4$: H-6 + H-5'), 9.13 (1H, с, 3- $\text{O}_2\text{NC}_6\text{H}_4$: H-2), 12.52 и 12.61 (0.76 + 0.24H, два с, H-1), 13.62 и 13.87 (0.76 + 0.24H, два с, H-1')
3g	7.18–7.20 (2H, м, H-5,6), 7.54–7.56 (2H, м, H-4,7), 8.26 (4 + 0.24H, м, 4- $\text{O}_2\text{NC}_6\text{H}_4$ + H-3'), 8.46 (0.76H, с, H-5'), 12.56 (1H, ш. с, H-1), 13.72 и 13.91 (0.24 + 0.76H, два с, H-1')
3h	6.60 и 6.73 (0.42 + 0.58H, два уз. м, 2-фурил: H-3), 7.19 (2H, м, H-5,6), 7.53–7.73 (3H, м, H-4,7 + 2-фурил: H-4), 7.88 (0.42H, уз. м, 2-фурил: H-2), 8.19 (0.58 + 0.58H, уз. м, 2-фурил: H-2 + H-3'), 8.40 (0.42H, с, H-5'), 12.42 и 12.58 (0.42 + 0.58H, два с, H-1), 13.44 и 13.75 (0.42 + 0.58H, два с, H-1')
3i	2.57 и 2.65 (0.32 + 0.68H, два с, CH_3), 7.10–7.17 (2H, м, H-5,6), 7.44–7.47 (1H, м, H-7), 7.57–7.59 (1H, м, H-4), 8.03 и 8.27 (0.68 + 0.32H, два с, H-3'(5')), 12.30 и 12.40 (0.32 + 0.68H, два с, H-1), 12.84 и 12.98 (0.32 + 0.68H, два с, H-1')
6a	1.23 (3H, т, $J = 6.6$, CH_3), 4.24 (2H, кв, $J = 6.6$, OCH_2), 4.59 (2H, с, CCH_2), 7.04–7.13 (2H, м, H-5,6), 7.39–7.47 (5H, м, Ph: H-3,4,5 + H-4,7), 7.91 (2H, м, Ph: H-2,6), 8.49 (1H, с, OCH), 12.08 (1H, с, H-1)
6b	2.78 (6H, с, 2CH_3), 7.08–7.11 (2H, м, H-5,6), 6.17–7.43 (6H, м, C_6H_5 + H-7), 7.53 (1H, м, H-4), 7.59 (1H, с, NCH), 12.15 (1H, с, H-1)
10	3.98 (3H, с, CH_3), 7.11–7.19 (2H, м, H-5,6), 7.32–7.40 (3H, м, Ph: H-3,4,5), 7.43–7.46 (1H, м, H-7), 7.56–7.59 (1H, м, H-4), 7.78–7.81 (2H, м, Ph: H-2–6), 8.25 (1H, с, H-5'), 12.35 (1H, с, H-1)

8.03–8.19 м. д. Некоторое смещение обоих сигналов в слабое поле происходит с усилением электроакцепторных свойств заместителя R и вполне естественно. Из соотношения интегральных интенсивностей рассматриваемых сигналов можно определить и количественный состав таутомерной смеси. В некоторых примерах сигнал протона в положении 3 пиразольного кольца перекрывается сигналами заместителя R (соединения **3e–h**). Однако это обстоятельство не препятствует изучению таутомерии, поскольку многие другие сигналы удвоены и имеют то же соотношение интегральных интенсивностей. Так, протон при атоме азота пиразольного кольца, в некоторых примерах протон в положении 1 бензимидазольного кольца или отдельные протоны ароматического заместителя R, а также метильная группа соединения **3i** резонируют с проявлением двух сигналов, которые соответствуют двум таутомерам и в большинстве случаев хорошо разделены и не перекрываются другими сигналами.

Нами найдено, что в равновесном растворе соединений **3a–i** содержание таутомера типа **3** составляет, соответственно, 47, 40, 43, 45, 65, 76, 76, 42 и 32%. Как очевидно, содержание таутомеров **3a–g** увеличивается с ростом электроакцепторных свойств арильного фрагмента R (согласно значениям σ -констант *m*- и *p*-заместителей в фенильном кольце). Заместители R соединений **3h–i** (2-фурил, Me) оказывают на ближайшее окружение иное пространственное влияние, но имеют отчетливо выраженный электронодонорный характер и способствуют стабилизации таутомеров типа **3'**.

Выявленную тенденцию в изменении таутомерных свойств соединений **3a–i** мы объясняем следующим образом. Молекулярную систему типа **3** можно рассматривать как комбинацию трех систем сопряжения, которые имеют три взаимосвязанные и взаимовлияющие конца. Один из этих концов – атом азота пиррольного типа, обладающий свойством образовываться на основе любого из двух кольцевых атомов азота пиразольного цикла (механизм см. в [5]) и имеющий выраженное электронодонорное влияние. Второй – 2-бензимидазолильный фрагмент, обладающий электроакцепторным влиянием. Третий – заместитель R, который, меняя свою природу, меняет и свои электронные свойства. Атом азота пиррольного типа может оказывать электронодонорное влияние на бензимидазолильный фрагмент и электроакцепторный заместитель R в обеих таутомерных формах **3** и **3'**, однако в последней влияние менее эффективно, поскольку цепь сопряжения с заместителем R удлиняется на одну двойную связь. Следовательно, электроакцепторные заместители R должны стабилизировать таутомерную форму **3**. Бензимидазолильный фрагмент может оказывать электроакцепторное влияние на заместитель R только в таутомере **3'**. Следовательно, именно эту таутомерную форму и должны стабилизировать электронодонорные заместители R.

Таким образом, разработан препаративно удобный метод синтеза 2-(4-пиразолил)-1H-бензимидазолов, содержащих заместитель у одного из атомов углерода пиразольного цикла, и изучена их таутомерия. Установлено, что более стабильны таутомеры, в которых электроакцепторные арильные заместители расположены в положении 3 пиразольного кольца, а электронодонорные арильные или метильная группа – в положении 5.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Контроль за ходом реакций и чистотой синтезированных соединений проводили методом ТСХ на пластинках Silufol UV-254 в системе растворителей бензол–этанол, 9 : 1, проявление в УФ свете. Спектры ЯМР ^1H соединений регистрировали на спектрометре Varian VXR-300 (300 МГц) в DMCO-d_6 , стандарт ТМС. При исследовании таутомерии пиразолов типа **3** их 0.1 М растворы в DMCO-d_6 выдерживали при 20 °С и записывали спектры дважды, через 3 и 24 ч с момента приготовления, для контроля достижения состояния равновесия. ИК спектры соединений **6a,b** записывали на приборе UR-20 в таблетках КВг. Исходные соединения получали по описанным методикам: **1** – [10], **5** – [6], **7a-i** – [5, 11], **9** – [12]. Синтезированные соединения перед определением элементного состава и спектральными исследованиями высушивали 7 ч в вакууме водоструйного насоса при 115 °С.

2-[3(5)-Фенилпиразол-4-ил]-1H-бензимидазол (3a). А. К 0.236 г (1 ммоль) соединения **1** приливают раствор, приготовленный при смешении 0.17 мл (4 ммоль) 90% муравьиной кислоты и 0.8 мл (8 ммоль) ацетангидрида. Реакционную смесь перемешивают 2–3 мин и выдерживают 5 ч при 20 °С. Добавляют 3 мл воды, нагревают при перемешивании до закипания, а затем раствор выпаривают досуха в вакууме водоструйного насоса. К остатку прибавляют 0.5 мл уксусной кислоты, 0.5 мл конц. HCl , 3 мл воды и нагревают при перемешивании до закипания. После охлаждения осадок отфильтровывают, промывают водой и ацетоном. Полученный хлоргидрат соединения **3a** смешивают с 1 мл ацетона и 0.5 мл 20% аммиака, а затем разбавляют 2 мл воды и кипятят при перемешивании, упаривая ацетон, до полной кристаллизации продукта. Осадок отфильтровывают, промывают водой, сушат при 80 °С. Выход 0.17 г (65%). По данным ТСХ, т. пл. и спектра ЯМР ^1H , выделенный продукт идентичен образцу, полученному по методу [4].

Б. Смесь 0.354 г (1 ммоль) соединения **7a**, 0.178 г (1.5 ммоль) диметилацетата ДМФА и 1.0 мл безводного диоксана нагревают 40 мин при 80 °С, перемешивая первые 3–5 мин до образования гомогенного раствора. Добавляют 3 мл воды и кипятят, отгоняя растворитель до объема 1–1.5 мл. После охлаждения выделившийся осадок растирают в порошок, отфильтровывают, промывают водой и сушат при 80 °С. Продукт образуется в индивидуальном состоянии, его перекристаллизация из смеси этанол–вода (1 : 1) происходит медленно и с ощутимыми потерями.

Соединения 3b-i получают аналогично из соответствующих бензоилгидразонов **7b-i**. Соединение **3f** выделяют через хлористоводородную соль, как в процедуре А. Соединение **3g** кристаллизуют из смеси этанол–пиридин, 5 : 1, а **3i** – из смеси пиридин–вода, 1 : 1.

1-(5-Фенилпиразол-3-ил)-1H-бензимидазол (4). Смесь 0.236 г (1 ммоль) соединения **1**, 0.132 г (2.2 ммоль) формилгидразина, 0.028 г (0.2 ммоль) хлоргидрата триэтиламина и 2.0 мл ДМФА выдерживают 4 ч при 150–155 °С. Добавляют 3 мл воды и нагревают при перемешивании до закипания. После остывания осадок отфильтровывают и кристаллизуют из этанола. Выход 0.18 г (69%). По данным ТСХ, т. пл. и спектра ЯМР ^1H , выделенный продукт идентичен образцу, полученному по методу [6].

2-(5-Этоксид-2-фенил-3,4-дизапента-2,4-диенил)-1H-бензимидазол (6a). Смесь 0.25 г (1 ммоль) соединения **5**, 0.222 г (1.5 ммоль) этилортомуравьиного эфира и 1.0 мл безводного пиридина нагревают 2 ч при 120 °С. Добавляют 4 мл воды и кипятят, упаривая растворитель до объема 1–1.5 мл. Выделившееся масло при растирании кристаллизуется. Осадок отфильтровывают, сушат при 80 °С и кристаллизуют из толуола. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 1630 ($\text{C}=\text{N}$).

2-(5-Диметиламино-2-фенил-3,4-дизапента-2,4-диенил)-1H-бензимидазол (6b). Смесь 0.250 г (1 ммоль) соединения **5**, 1 мл безводного диоксана и 0.178 г (1.5 ммоль) диметилацетата ДМФА нагревают при перемешивании до образования гомогенного раствора и выдерживают 1 ч при 95–100 °С. После остывания добавляют 1 мл 2-пропанола и перемешивают. Осадок отфильтровывают, промывают 2-пропанолом и высушивают в вакууме водоструйного насоса при 115 °С. ИК спектр, ν , cm^{-1} : 1640 ($\text{C}=\text{N}$).

2-[1-Метил-3-фенилпиразол-4-ил]-1H-бензимидазол (10). Смесь 0.264 г (1 ммоль) соединения **9**, 0.143 г (1.2 ммоль) диметилацетата ДМФА и 1 мл безводного диоксана выдерживают 40 мин при 80 °С. Добавляют 1 мл воды и нагревают при перемешивании до закипания. После остывания осадок отфильтровывают, промывают смесью 2-пропанол–вода, 1 : 1. Кристаллизуют из смеси пиридин–вода, 1 : 2.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. J. Elguero, C. Marzin, A. R. Katritzky, P. Linda, *The Tautomerism of Heterocycles. Advances in Heterocyclic Chemistry. Supp. 1*, Acad. Press, New York, 1976, 34, 41, 269.
2. J. Q. Puello, B. I. Obanto, C. Foces-Foces, L. Infantes, R.-M. Claramunt, P. Cabildo, J. A. Jimenes, J. Elguero, *Tetrahedron*, **31**, 10783 (1997).
3. L. Infantes, C. Foces-Foces, R.-M. Claramunt, C. Lopes, J. Elguero, *J. Heterocycl. Chem.*, **36**, 595 (1999).
4. И. Б. Дзвинчук, М. О. Лозинский, *ХГС*, 606 (2001). [*Chem. Heterocycl. Comp.*, **37**, 554 (2001)].
5. И. Б. Дзвинчук, А. В. Выпирайленко, В. В. Пирожено, М. О. Лозинский, *ХГС*, 1512 (1999). [*Chem. Heterocycl. Comp.*, **35**, 1319 (1999)].
6. И. Б. Дзвинчук, А. В. Выпирайленко, М. О. Лозинский, *ХГС*, 1136 (1997). [*Chem. Heterocycl. Comp.*, **33**, 992 (1997)].
7. В. П. Хиля, И. П. Купчевская, Л. Ф. Овсеюк, *Укр. хим. журн.*, **54**, 85 (1988).
8. И. Б. Дзвинчук, М. О. Лозинский, *ХГС*, 436 (2003). [*Chem. Heterocycl. Comp.*, **39**, 390 (2003)].
9. И. Б. Дзвинчук, А. Н. Чернега, М. И. Поволоцкий, М. О. Лозинский, *Журн. орган. и фармац. химии*, **2**, 33 (2004).
10. И. Б. Дзвинчук, М. О. Лозинский, А. В. Выпирайленко, *ЖОХ*, **30**, 909 (1994).
11. И. Б. Дзвинчук, М. О. Лозинский, *ЖОХ*, **34**, 782 (1998).
12. И. Б. Дзвинчук, *ХГС*, 372 (2005). [*Chem. Heterocycl. Comp.*, **41**, 323 (2005)].

*Институт органической химии
НАН Украины, Киев 02660
e-mail: iochkiev@ukrpack.net*

Поступило 21.02.2005