

# СИНТЕЗ АМІНОНАФТАЛІНТРИ(ДИ)КАРБОНІТРИЛІВ ЦИКЛОКОНДЕНСАЦІЄЮ АРИЛ(АЛКІЛ)МЕТИЛЕНМАЛОНОДИНІТРИЛІВ ІЗ ЄНАМІНАМИ ЦИКЛОАЛКАНОНІВ

В.Д.Дяченко, Є.М.Карпов, А.В.Черних

Луганський національний університет ім. Тараса Шевченка  
91011, м. Луганськ, вул. Оборонна, 2. E-mail: k-eugene@bk.ru

*Ключові слова:* енаміни циклічних кетонів; арилметиленмалонодинітрили;  
2-аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрили

*Розроблено новий підхід до синтезу 2-аміно-4-арил-4а,5,6,7-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрилів та 2-аміно-4-арил(алкіл)-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3-дикарбонітрилів, який ґрунтується на взаємодії арил(алкіл)метиленмалонодинітрилів з 4-циклогексенілморфоліном та 4-(6-арилметиленциклогексеніл-1)морфоліном відповідно.*

**SYNTHESIS OF AMINONAPHTHALENETRI(DI)CARBONITRILES BY CYCLOCONDENSATION OF ARYLMETHYLENEMALONODINITRILES WITH ENAMINES OF CYCLOALKANONES**

V.D.Dyachenko, E.M.Karpov, A.V.Chernykh

*A new approach to the synthesis of 2-amino-4-aryl-4a,5,6,7-tetrahydronaphthalene-1,3,3(4H)-tricarbo-nitrile and 2-amino-8-arylmethylene-4-aryl-5,6,7,8-tetrahydronaphthalene-1,3-dicarbo-nitrile based on interaction of arylmethylenemalonodinitriles with 4-cyclohexenylmorpho-line and 4-(6-arylmethylenecyclohex-1-enyl)morpholine, respectively, has been developed.*

**СИНТЕЗ АМИНОНАФТАЛИНТРИ(ДИ)КАРБОНІТРИЛІВ ЦИКЛОКОНДЕНСАЦІЄЮ АРИЛМЕТИЛЕНМАЛОНОДИНІТРИЛІВ С ЄНАМІНАМИ ЦИКЛОАЛКАНОНІВ**

В.Д.Дяченко, Є.М.Карпов, А.В.Черних

*Разработан новый подход к синтезу 2-аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3-дикарбонітрилів та 2-аміно-4-арил-4а,5,6,7-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрилів, оснований на взаимодействи арилметиленмалонодинітрилів с 4-циклогексенілморфоліном та 4-(6-арилметиленциклогексеніл-1)морфоліном соответственно.*

Взаємодія алкілметилен- та арилметиленмалонодинітрилів з різноманітними дипольними реагентами відкриває широкі можливості для синтезу сполук карбо- та гетероциклічного ряду [1-5]. Один із актуальних напрямів їх синтезу базується на реакції арилметиленмалонодинітрилів з циклічними кетонами [6-8]. Зокрема, конденсація бензиліденмалононітрилу (**1**) з циклопентаном (**2a**) у присутності основи приводить до 5-аміно-3-бензиліден-7-феніл-2,3-дигідро-1H-інден-4,6-дикарбонітрилу (**3**) [8-11], з циклогексаном (**2b**) – до відповідного нафталінтрикарбонітрилу (**4**) [7, 8, 10, 12], з циклогептаном (**2c**) – до заміщеного бенз[а]циклогептену (**5**) [7, 8] (схема 1).

Продовжуючи наші дослідження [13, 14] з області хімії арил(алкіл)метиленмалонодинітрилів, у даній роботі ми вивчили циклізацію ряду алкенів (**1a-f**) із 4-циклогексенілморфоліном (**6**). Встановлено, що в одnoreакторній трикомпонентній

циклоконденсації малонодинітрилу (**7**) з альдегідами (**8**) та енаміном (**6**) єдиними продуктами є гексагідронафталіни (**4a-f**) (схема 2).

В аналогічних умовах застосування енаміну циклопентанону приводить до суттєво відмінних результатів, а саме до описаних 5-аміно-3-бензиліден-7-арил-2,3-дигідро-1H-інден-4,6-дикарбонітрилів (**3**) [9]. Утворення їх гомологів – 2-аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3-дикарбонітрилів (**9**) не спостерігалось.

Зміна розчинників та температурного режиму суттєво не впливає на характер процесу. Очевидно, сполука (**4**) є найбільш термодинамічно вигідним продуктом реакції. Це свідчить про те, що навіть незначна зміна у структурі вихідних енамінів при переході від 4-циклопентенілморфоліну (**2a**) до 4-циклогексенілморфоліну (**2b**) обумовлює таку суттєву різницю в їх активності. Більше того, конденсації ароматичних альдегідів за участю атома С<sup>8</sup> нафталіну (**4**) практично

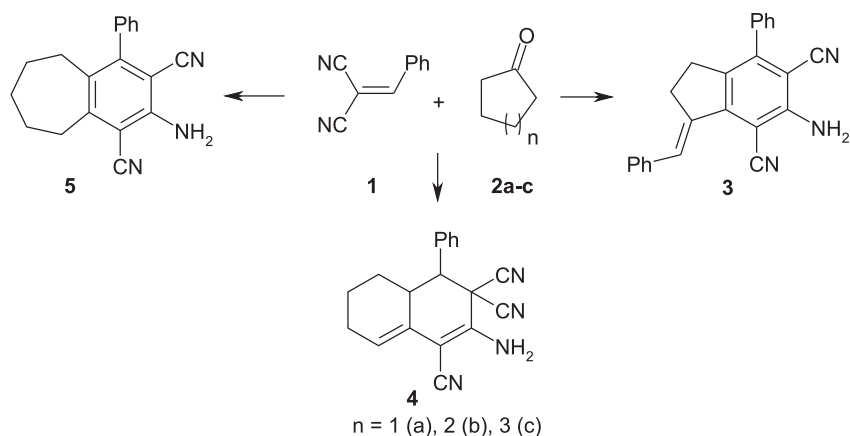
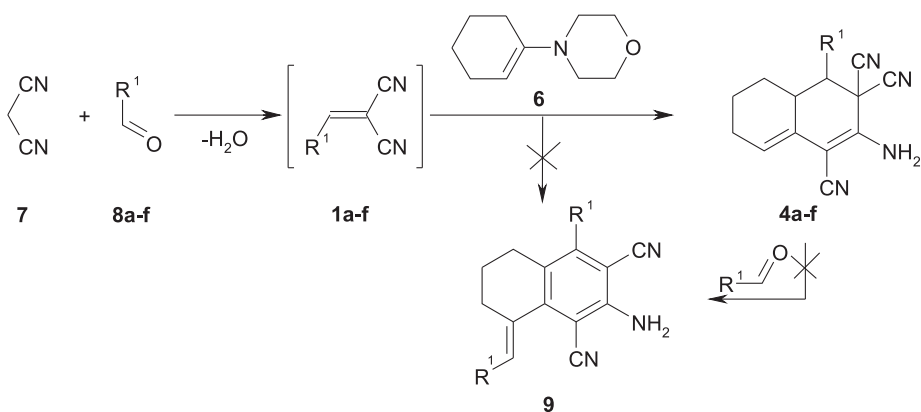


Схема 1



1, 4, 8: R<sup>1</sup> = CH<sub>3</sub>CH(Ph)CH<sub>2</sub> (a), CH<sub>3</sub>CH(Ph)CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub> (b), Ph (c), 4-ClC<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (d), 4-MeOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (e), 4-EtOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (f)

Схема 2

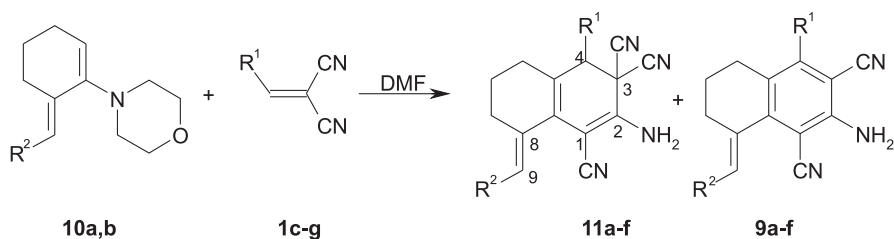
не відбувається, хоча у випадку гомологічної інденової системи перебігає відносно легко [9].

З урахуванням викладеного вище ми запропонували використовувати як базові сполуки в синтезі 8-арилметиленафталинів похідні 4-циклогексенілморфоліну (**10a,b**), отримані за методом [15]. При проведенні реакції в ДМФА перетворення носить більш складний характер у порівнянні з похідними циклопентанону [9] і у випадку арилметиленамалодинітрилів (**1c-g**) приводить до суміші 2-аміно-4-R<sup>1</sup>-8-R<sup>2</sup>метилена-5,6,7,8-тетрагідронафталин-1,3,3(4H)-трикарбонітрилів (**11a-f**) та продуктів їх дегідроціанування (**9a-f**) (табл. 1).

Слід зазначити, що при дії луку на отриману суміш вдається одержати тільки тетрагідронафталини (**9a-f**) (схема 3).

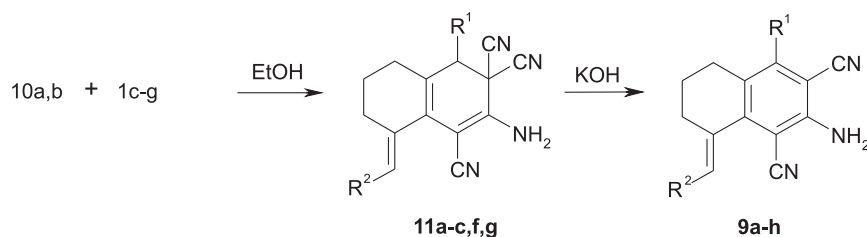
При проведенні реакції в етанолі утворюються нафталінтрикарбонітрили (**11a-c,f,g**), які можуть бути переведені у відповідні тетрагідронафталини (**9a-h**) дією надлишку луку (схема 4). Трикарбонітрили (**11d,e**) виділити в умовах експерименту в чистому вигляді не вдається, оскільки вони отримуються у суміші із сполуками (**9d,e**).

У спектрах ЯМР <sup>1</sup>H 2-аміно-4-арил-8-арилметилена-5,6,7,8-тетрагідронафталин-1,3,3(4H)-трикарбонітрилів (**11**) в області 4 м.ч. спостеріга-



10: R<sup>2</sup> = Ph (a), 4-Cl-C<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (b)  
 9,11: R<sup>1</sup> = R<sup>2</sup> = Ph (a), R<sup>1</sup> = 4-ClC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, R<sup>2</sup> = Ph (b), R<sup>1</sup> = 4-MeOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, R<sup>2</sup> = Ph (c),  
 R<sup>1</sup> = 4-EtOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, R<sup>2</sup> = Ph (d), R<sup>1</sup> = 4-BuOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, R<sup>2</sup> = Ph (e),  
 R<sup>1</sup> = 4-MeOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, R<sup>2</sup> = 4-ClC<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (f)

Схема 3



9, 11: R<sup>1</sup> = Ph, R<sup>2</sup> = 4-ClC<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (g), R<sup>1</sup> = 4-BuOC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>, R<sup>2</sup> = 4-ClC<sub>6</sub>H<sub>4</sub> (h)

Схема 4

ється характерний синглет протону в положенні 4, сигнали аліфатичних протонів фіксуються в діапазоні 1.5-2.8 м.ч., а ароматичних – 7.0-7.6 м.ч. Сигнали протонів NH<sub>2</sub>-групи та метинового атома Н проявляються у вигляді синглетів у області 6.4-6.8 м.ч. та 6.9-7.1 м.ч. відповідно.

Хімічні зсуви протонів Н<sup>4</sup> та Н<sup>9</sup> корелюють із замісниками в сусідньому ароматичному кільці та слабо залежать від замісників в іншому ароматичному ядрі. Наприклад, у сполуці (**11a**) з двома фенільними замісниками хімічні зсуви Н<sup>4</sup> та Н<sup>9</sup> відповідно дорівнюють 3.96 м.ч. та 6.96 м.ч. При заміні фенільного замісника в положенні 4 на 4-хлорофенільний [сполука (**11b**)] хімічний зсув для Н<sup>9</sup> не змінюється (6.96 м.ч.), а для Н<sup>4</sup> зміщується у слабке поле до 4.01 м.ч. При заміні бензиліденового замісника на 4-хлорофенілметиленовий [сполука (**11g**)] хімічний зсув для Н<sup>4</sup> залишається практично незмінним (3.97 м.ч.), а для Н<sup>9</sup> зміщується у сильне поле до 6.92 м.ч. (схема 5).

Для арилметиленнафталінових систем (**9**, **11**) виявлена здатність до сильної флуоресценції при УФ-опроміненні.

#### Експериментальна частина

Температури плавлення визначені на блоці Кофлера. ІЧ-спектри записані на спектрофотометрі FIR «Spectrum One» (PerkinElmer) у таблетках KBr. Спектри ЯМР <sup>1</sup>H та <sup>13</sup>C отримані на приладі Varian Mercury-400 (399.960 МГц) у розчині DMSO-d<sub>6</sub> (внутрішній стандарт – TMS). Мас-спектри одер-

жані на приладі Crossmas GC/MS-Hewlett-Packard 5890/5972 колонка HP-5MS (70 eB), спектри електронного удару отримані на приладі MX-1321 (70 eB) з прямим введенням речовини в іонне джерело. Контроль за перебігом реакції та індивідуальністю отриманих сполук здійснювали методом тонкошарової хроматографії на пластинках Silufol UV-254, елюент – суміш ацетон-гексан (3:5), проявник – пари йоду та УФ-опромінення.

Фізико-хімічні характеристики та спектральні дані синтезованих сполук представлені у табл. 1 та 2. Спектр ЯМР <sup>13</sup>C сполук (**4c**) та ІЧ-спектри сполук (**9d**), (**11a**), (**11b**) розглянуті нижче.

**2-Аміно-4-R-4a,5,6,7-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрили (4a-f)**. До розчину 10 ммоль малонодинітрилу (**7**) та 10 ммоль відповідного альдегіду (**8**) в 5 мл етанолу додавали краплю морфоліну, перемішували впродовж 40 хв, а потім додавали 5 ммоль енаміну (**6**) і залишали при кімнатній температурі. Через 3 доби осад, що випав, відфільтровували, промивали етанолом та кристалізували з етанолу.

**Суміш 2-аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3-дикарбонітрилів (9a-f) та 2-аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрилів (11a-f)**. До розчину 10 ммоль відповідного алкену (**1**) у 5 мл ДМФА додавали 5 ммоль енаміну (**10**). Через 10 діб утворений осад відфільтровували та промивали етанолом. Отримували суміш речовин у наступних співвідношен-

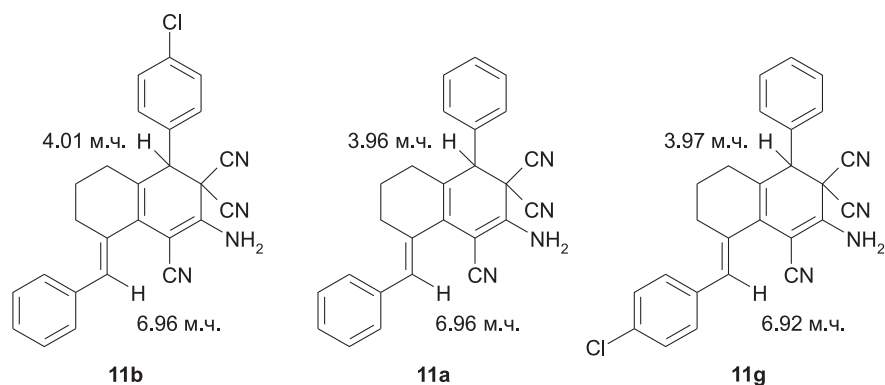


Схема 5

Таблиця 1

## Фізико-хімічні характеристики синтезованих сполук (4a-f), (9a-h), (11a-g)

Сполука, №	R <sup>1</sup> /R <sup>2</sup>	Брутто-формула	Знайдено, % C; H; N Обчислено, % C; H; N	Т. пл., °C	Вихід, %
4a	Ph (Me)CH/-	C <sub>21</sub> H <sub>20</sub> N <sub>4</sub>	76.77; 6.10; 17.13 76.80; 6.14; 17.06	240-242	53,7
4b	MeCH <sub>2</sub> (Ph)CH/-	C <sub>22</sub> H <sub>22</sub> N <sub>4</sub>	77.19; 6.51; 16.42 77.16; 6.48; 16.36	189-191	69,2
4c	Ph/-	C <sub>19</sub> H <sub>16</sub> N <sub>4</sub>	75.96; 5.41; 18.63 75.98; 5.37; 18.65	260-262 (256-265 [3-5])	90
4d	4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /-	C <sub>19</sub> H <sub>15</sub> ClN <sub>4</sub>	68.19; 4.50; 16.72 68.16; 4.52; 16.73	240-242	84,7
4e	4-MeOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /-	C <sub>20</sub> H <sub>18</sub> N <sub>4</sub> O	72.67; 5.51; 16.93 72.71; 5.49; 16.96	253-255 (253-254) [3]	89
4f	4-EtOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /-	C <sub>21</sub> H <sub>20</sub> N <sub>4</sub> O	73.21; 6.02; 16.21 73.23; 5.85; 16.27	225-227	72
9a	Ph/Ph	C <sub>25</sub> H <sub>19</sub> N <sub>3</sub>	83.12; 5.32; 11.57 83.08; 5.30; 11.63	208-209	99,1
9b	4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /Ph	C <sub>25</sub> H <sub>18</sub> ClN <sub>3</sub>	75.88; 4.54; 10.61 75.85; 4.58; 10.61	216-218	96,7
9c	4-MeOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /Ph	C <sub>26</sub> H <sub>21</sub> N <sub>3</sub> O	79.73; 5.43; 10.75 79.77; 5.41; 10.73	225-227	95,7
9d	4-EtOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /Ph	C <sub>27</sub> H <sub>23</sub> N <sub>3</sub> O	79.93; 5.70; 10.40 79.97; 5.72; 10.36	210-212	48,6
9e	4-BuOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /Ph	C <sub>29</sub> H <sub>27</sub> N <sub>3</sub> O	80.30; 6.26; 9.72 80.34; 6.28; 9.69	187-189	61,7
9f	4-MeOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> / 4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	C <sub>26</sub> H <sub>20</sub> ClN <sub>3</sub> O	73.36; 4.76; 9.90 73.32; 4.73; 9.87	216-218	92,0
9h	4-BuOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> / 4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	C <sub>29</sub> H <sub>26</sub> ClN <sub>3</sub> O	74.40; 5.56; 8.87 74.43; 5.60; 8.98	217-219	75,7
11a	Ph/Ph	C <sub>26</sub> H <sub>20</sub> N <sub>4</sub>	80.36; 5.17; 14.47 80.39; 5.19; 14.42	239-241	49,2
11b	4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /Ph	C <sub>26</sub> H <sub>19</sub> ClN <sub>4</sub>	73.86; 4.51; 13.28 73.84; 4.53; 13.25	236-238	69,9
11c	4-MeOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> /Ph	C <sub>27</sub> H <sub>22</sub> N <sub>4</sub> O	77.53; 5.27; 13.36 77.49; 5.30; 13.39	235-237	44,5
11f	4-MeOC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> / 4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	C <sub>27</sub> H <sub>21</sub> ClN <sub>4</sub> O	71.63; 4.70; 12.41 71.60; 4.67; 12.37	231-233	51,9
11g	C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> /4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	C <sub>26</sub> H <sub>19</sub> ClN <sub>4</sub>	73.80; 4.56; 13.22 73.84; 4.53; 13.25	185-187	21,9

нях : **11a** : **9a** = 1:10; **11b** : **9b** = 1:50 ; **11c** : **9c** = 1 : 10; **11d** : **9d** = 1:100; **11e** : **9e** = 1:50; **11f** : **9f** = 10:11.

**2-Аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталин-1,3,3(4H)-трикарбонітрили (11a-c,f,g).** Суміш 5 ммоль енаміну (**10**) та 10 ммоль алкену (**1**) в 12 мл етанолу кип'ятили зі зворотним холодильником протягом 2 год. Через 12 год утворений осад відфільтровували, промивали етанолом і кристалізували з етанолу.

**2-Аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталин-1,3-дикарбонітрили (9a-c,f).** До розчину 5 ммоль сполуки (**11**) в 10 мл етанолу додавали 7 ммоль КОН і кип'ятили впродовж

15 хв. Отриманий осад відфільтровували, промивали етанолом і кристалізували з етанолу.

**2-Аміно-4-арил-8-арилметилен-5,6,7,8-тетрагідронафталин-1,3-дикарбонітрили (9d,e,h).** Суміш 5 ммоль енаміну (**10**) та 10 ммоль алкену (**1**) в 12 мл етанолу кип'ятили зі зворотним холодильником протягом 2 год. Через 12 год утворений осад відфільтровували, промивали етанолом і кристалізували з етанолу.

**2-Аміно-4-феніл-4a,5,6,7-тетрагідронафталин-1,3,3(4H)-трикарбонітрил (4c).** Спектр ЯМР <sup>13</sup>C, δ, м.ч.: 21.11, 24.84, 26.96, 34.00, 42.53, 51.25, 81.80, 95.55, 111.96, 112.05, 115.71, 120.17, 126.57, 128.30, 128.62, 132.07, 134.19, 143.18.

ЯМР  $^1\text{H}$  та мас-спектри сполук (4a-f), (9a-h), (11a-g)

Сполука, №	Спектр ЯМР $^1\text{H}$ , $\delta$ , м.ч.	MS m/z ( $I_{\text{відн.}}$ , %)
1	2	3
4a	1.01-1.16 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.32-1.47 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.52 д (3H, CH <sub>3</sub> , J 7.39 Гц), 1.69-1.81 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.93-2.18 м (3H, CH <sub>2</sub> ), 2.35 м (1H, CH), 2.62-2.71 м (1H, CH), 3.44-3.54 м (1H, CH), 5.67 с (1H, =CH), 7.16 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.23 т (1H, H <sub>аром</sub> , J 7.13 Гц), 7.31 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.45 Гц), 7.42 м (1H, H <sub>аром</sub> )	328 (39) [M] <sup>+</sup> , 209 (11), 223 (8) [M-PhCHCH <sub>3</sub> ] <sup>+</sup> , 313 (4) [M-CH <sub>3</sub> ] <sup>+</sup> , 105 (100) [PhCHCH <sub>3</sub> ] <sup>+</sup>
4b	0.93-1.45 м (5H, CH <sub>2</sub> , CH <sub>3</sub> ), 1.65-2.25 м (7H, CH, 3CH <sub>2</sub> ), 2.79-3.03 м (1H, CH), 5.63 с (1H, =CH), 7.13-7.39 м (7H, NH <sub>2</sub> , 5H <sub>аром</sub> )	342 (49) [M] <sup>+</sup> , 105 (100) [PhCHCH <sub>3</sub> ] <sup>+</sup> , 198 (17), 131 (12)
4c	Ідентичні [3-5, 9]	Ідентичні [3-5,9]
4d	0.86 к (1H, CH <sub>2</sub> , J 12.05 Гц), 1.45-1.48 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.65-1.67 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.92-2.21 м (2H, CH, CH <sub>2</sub> ), 2.78-2.83 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.64 д (1H, CH, J 5 Гц), 5.74 с (1H, =CH), 7.32-7.68 м (6H, H <sub>аром</sub> , NH <sub>2</sub> )	334 (63) [M-1] <sup>+</sup> , 336 (20) [M-1], 209 (39), 125 (100), 127 (32)
4e	Ідентичні [3]	Ідентичні [3]
4f	0.78-0.87 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.22-1.68 м (6H, CH <sub>3</sub> , 2CH <sub>2</sub> ), 1.98-2.23 м (2H, CH, CH <sub>2</sub> ), 2.65-2.72 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.42-3.49 м (1H, CH), 4.05 м (2H, OCH <sub>2</sub> ) 5.70 с (1H, =CH), 6.90-7.08 м (2H, H <sub>аром</sub> ), 7.28-7.49 м (4H, NH <sub>2</sub> , H <sub>аром</sub> )	344 (28) [M] <sup>+</sup> , 315 (43) [M-Et] <sup>+</sup> , 134 (100), 135 (11)
9a	1.54-1.64 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.10 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.91 Гц), 2.77 м (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.73 Гц), 6.47 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.13 с (1H, =CH), 7.29-7.38 м (3H, H <sub>аром</sub> ), 7.40-7.54 м (7H, H <sub>аром</sub> )	361 (100) [M] <sup>+</sup> , 362 (21), 91 (28) [PhCH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
9b	1.54-1.65 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.10 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.75 Гц), 2.77 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.50 Гц), 6.52 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.13 с (1H, =CH), 7.31-7.40 м (3H, H <sub>аром</sub> ), 7.44 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.48 Гц), 7.50 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.60 Гц), 7.58 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.23 Гц)	395 (100) [M] <sup>+</sup> , 396 (24) [M+1] <sup>+</sup> , 397 (36), 91 (24) [PhCH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
9c	1.53-1.64 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.13 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.76 Гц), 2.77 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.48 Гц), 3.82 с (3H, CH <sub>3</sub> ), 6.43 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.06 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.55 Гц), 7.11 с (1H, =CH), 7.26 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.42 Гц), 7.34 т (1H, H <sub>аром</sub> , J 7.22 Гц), 7.44 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.50 Гц), 7.50 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.71 Гц)	391 (100) [M] <sup>+</sup> , 392 (26), 376 (28) [M-Me] <sup>+</sup> , 91 (31) [PhCH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
9d	1.35 т (3H, CH <sub>3</sub> , J 6.94 Гц), 1.52-1.65 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.14 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.86 Гц), 2.76 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.18 Гц), 4.08-4.14 м (2H, OCH <sub>2</sub> ), 6.42 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.03 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.67 Гц), 7.11 с (1H, =CH), 7.24 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.64 Гц), 7.34 т (1H, H <sub>аром</sub> , J 7.23 Гц), 7.43 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.59 Гц), 7.49 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.44 Гц)	405 (100) [M] <sup>+</sup> , 406 (27), 376 (34) [M-Et] <sup>+</sup> , 91 (23) [PhCH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
9e	0.94 т (3H, CH <sub>3</sub> , J 7.38 Гц), 1.37-1.51 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.53-1.63 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.65-1.77 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.14 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.83 Гц), 2.76 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.24 Гц), 4.02 т (2H, OCH <sub>2</sub> , J 6.42 Гц), 6.41 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.03 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.64 Гц), 7.10 с (1H, =CH), 7.23 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.57 Гц), 7.34 т (1H, H <sub>аром</sub> , J 7.23 Гц), 7.43 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.59 Гц), 7.49 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.45 Гц)	433 (100) [M] <sup>+</sup> , 434 (30) [M+1] <sup>+</sup> , 376 (35) [M-Bu] <sup>+</sup> , 91 (12) [PhCH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
9f	1.52-1.64 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.14 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.96 Гц), 2.75 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.27 Гц), 3.81 с (3H, CH <sub>3</sub> ), 6.43 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.05 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.56 Гц), 7.09 с (1H, =CH), 7.26 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.58 Гц), 7.46-7.57 м (4H, H <sub>аром</sub> )	425 (100) [M] <sup>+</sup> , 410 (27) [M-Me] <sup>+</sup> , 405 (24), 360 (23), 300 (22) [M-4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> CH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup> , 125 (18) [4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> CH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
9h	0.94 т (3H, CH <sub>3</sub> , J 7.38 Гц), 1.38-1.50 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.53-1.60 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.65-1.74 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 2.14 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 5.90 Гц), 2.74 т (2H, CH <sub>2</sub> , J 6.10 Гц), 4.02 т (2H, OCH <sub>2</sub> , J 6.20 Гц), 6.42 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 7.04 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.02 Гц), 7.09 с (1H, =CH), 7.23 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.95 Гц), 7.43-7.60 м (4H, H <sub>аром</sub> )	467 (100) [M] <sup>+</sup> , 468 (28) [M+1] <sup>+</sup> , 469 (32) [M+2] <sup>+</sup> , 411 (59) [M-Bu] <sup>+</sup> , 286 (22) [M-Bu, 4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> CH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup> , 125 (10) [4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> CH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
11a	1.45-1.59 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.73-1.82 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.99-2.08 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.44-2.52 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.60-2.68 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.96 с (1H, CH), 6.76 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 6.96 с (1H, =CH), 7.20 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.83 Гц), 7.24 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.34 Гц), 7.28-7.40 м (6H, H <sub>аром</sub> )	341 (100), 343 (20), 357 (10)
11b	1.47-1.57 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.69-1.82 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.98-2.09 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.50-2.55 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.60-2.69 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 4.01 с (1H, CH), 6.82 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 6.96 с (1H, =CH), 7.20-7.27 м (3H, H <sub>аром</sub> ), 7.30 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.50 Гц), 7.33-7.44 м (4H, H <sub>аром</sub> )	422 (3) [M] <sup>+</sup> , 407 (7), 375 (100), 377 (25), 378 (3)
11c	1.43-1.55 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.72-1.84 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.95-2.08 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.43-2.52 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.58-2.69 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.73 с (3H, CH <sub>3</sub> ), 3.90 с (1H, CH), 6.74 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 6.90 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.49 Гц), 6.94 с (1H, =CH), 7.11 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 8.43 Гц), 7.24 т (1H, H <sub>аром</sub> , J 7.18 Гц), 7.30 д (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.50 Гц), 7.37 т (2H, H <sub>аром</sub> , J 7.52 Гц)	418 (18) [M] <sup>+</sup> , 391 (82) [M-HCN] <sup>+</sup> , 91 (32) [PhCH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>



1	2	3
11f	1.44-1.55 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.73-1.84 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.98-2.07 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.42-2.49 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.57-2.65 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.73 с (3H, CH <sub>3</sub> ), 3.91 с (1H, CH), 6.73 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 6.87-6.93 м (3H, H <sub>аром'</sub> =CH), 7.10 д (2H, H <sub>аром'</sub> J 8.72 Гц), 7.32 д (2H, H <sub>аром'</sub> J 8.33 Гц), 7.42 д (2H, H <sub>аром'</sub> J 8.38 Гц)	470 (2), 425 (100) [M-HCN] <sup>+</sup> , 426 (32), 405 (24), 360 (23), 279 (21), 282 (23), 284 (17), 125 (16) [4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> CH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>
11g	1.41-1.62 м (2H, CH <sub>2</sub> ), 1.72-1.85 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 1.99-2.11 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 2.56-2.69 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.40-3.48 м (1H, CH <sub>2</sub> ), 3.97 с (1H, CH), 6.76 с (2H, NH <sub>2</sub> ), 6.92 с (1H, =CH), 7.19 д (2H, H <sub>аром'</sub> J 7.11 Гц), 7.25 т (1H, H <sub>аром'</sub> J 7.29 Гц), 7.30-7.36 м (4H, H <sub>аром'</sub> ), 7.42 м (2H, H <sub>аром'</sub> )	422 (2) [M] <sup>+</sup> , 395 (100) [M-HCN] <sup>+</sup> , 125 (32) [4-ClC <sub>6</sub> H <sub>4</sub> CH <sub>2</sub> ] <sup>+</sup>

**2-Аміно-8-бензиліден-4-(4-етоксибеніл)-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3-дикарбонітрил (9d).** ІЧ-спектр, см<sup>-1</sup>: 3449, 3355, 3232 (NH<sub>2</sub>), 2214 (CN).

**2-Аміно-8-бензиліден-4-беніл-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрил (11a).** ІЧ-спектр, см<sup>-1</sup>: 3431, 3337, 1669 (NH<sub>2</sub>), 2190 (CN).

**2-Аміно-8-бензиліден-4-(4-хлоробеніл)-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрил (11b).** ІЧ-спектр, см<sup>-1</sup>: 3434, 3341, 1668 (NH<sub>2</sub>), 2189 (CN).

## Висновки

Взаємодією 4-циклогексенілморфоліну та 4-(6-арилметиленициклогексеніл-1)морфоліну з арил(алкіл)метиленималодинітрилами синтезовані нові похідні 2-аміно-4-арил(алкіл)-4а,5,6,7-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрилів та раніше невідомі 2-аміно-4-арил-8-арилметилени-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3,3(4H)-трикарбонітрили, а також продукти їх дегідроціанування – 2-аміно-4-арил-8-арилметилени-5,6,7,8-тетрагідронафталін-1,3-дикарбонітрили.

## Література

1. Внутримолекулярное взаимодействие нитрильной и СН-, ОН- и SH-групп / Под ред. Ф.С.Бабичева. – К.: Наук. думка, 1985. – 200 с.
2. Шаранин Ю.А., Промоненков В.К., Шаранина Л.Г., Вайнерт К. Синтез амино(гетеро)циклических соединений по реакции Торпа. – М.: НИИТХЭМ, 1976.
3. Xue D., Li J., Zhang Z.-T., Deng J.-G. // J. Org. Chem. – 2007. – Vol. 72. – P. 5443-5447.
4. Thelagathoti H.B., Abragam J., Muralidharan P., Paramasivan T. // Tetrahedron Lett. – 2010. – Vol. 51, №6. – P. 994-996.
5. El-Sakka I.A., El-Kousy S.M. // J. fuer Praktische Chemie (Leipzig). – 1991. – Vol. 333, №2. – P. 345-350.
6. Шестопалов А.М., Емельянова Ю.М., Нестеров В.Н. // Известия РАН. Серия хим. – 2003. – №5. – С. 1103-1109.
7. Курбатов Е.С., Красников В.В., Межеріцкий В.В. // ЖОрХ. – 2006. – №3. – С. 472-474.
8. Курбатов Е.С. Реакции гетероциклизации с участием цианаминопиранов: Автореф. дис. ... канд. хим. наук. – Ростов-на-Дону, 2007. – 22 с.
9. Mirek J., Milart P. // Zeitschrift fuer Naturforsch., Teil B: Anorganische Chemie, Organische Chemie. – 1986. – Vol. 41, №11. – P. 1471-1478.
10. Sun-Liang C., Xu-Feng L., Yan-Guang W. // J. Org. Chem. – 2005. – №70. – P. 2866-2869.
11. Abdel-Zaher A. // J. of Chemical Res., Miniprint. – 1999. – №2. – P. 580-595.
12. Penades S., Kisch H., Tortsehanolf K. et al. // Monatshefte fuer Chemie. – 1973. – Vol. 104. – P. 447-456.
13. Шаранин Ю.А., Дяченко В.Д. // Укр. хим. журн. – 1990. – Т. 56, №3. – С. 287-291.
14. Дяченко В.Д., Нестеров В.Н., Стручков Ю.Т. и др. // ЖОХ. – 1989. – Т. 59, вып. 4. – С. 881-891.
15. Cardia M.C., Maccioni E., Bonsignore L. // J. of Heterocyclic Chem. – 2003. – Vol. 40, №2. – P. 309-316.

Надійшла до редакції 13.10.2011 р.