

УДК 547.339:547.787+547.85+548.737

СИНТЕЗЫ НОВЫХ ПРОИЗВОДНЫХ 1,3-ОКСАЗОЛО[4,5-d]ПИРИМИДИНА НА ОСНОВЕ 2-АЦИЛАМИНО-3,3-ДИХЛОРОАКРИЛОНИТРИЛОВ

В.Н.Свирипа, С.Г.Пильо, В.С.Броварец, Э.Б.Русанов*, Б.С.Драч

Институт биоорганической химии и нефтехимии НАН Украины,
02094, г. Киев, ул. Мурманская, 1. E-mail: brovarets@bpci.kiev.ua

* Институт органической химии НАН Украины

Ключевые слова: 2-ациламино-3,3-дихлороакрилонитрилы;
2-арил-4-дихлорометилден-1,3-оксазол-5(4H)-оны; производные 1,3-оксазоло[4,5-d]пиримидина

Доступные енамидонитрилы типа $Cl_2C=C(CN)NHCOR$ в результате последовательной обработки бензамидином, соляной кислотой и уксусным ангидридом превращаются в неизвестные ранее 2-алкил(арил)-5-фенил[1,3]оксазоло[4,5-d]пиримидин-7(6H)-оны, строение которых надежно установлено химическими и рентгеноструктурными исследованиями.

SYNTHESES OF NEW DERIVATIVES OF 1,3-OXAZOLO[4,5-d]PYRIMIDINES ON THE BASIS OF 2-ACYLAMINO-3,3-DICHLOROACRYLONITRILES

V.N.Sviripa, S.G.Pilyo, V.S.Brovarets, E.B.Rusanov, B.S.Drach

The available enamidonitriles of the type $Cl_2C=C(CN)NHCOR$ when sequentially treated with benzamidine, hydrochloric acid, and acetic anhydride yield hitherto unknown 2-alkyl(aryl)-5-phenyl[1,3]oxazolo[4,5-d]pyrimidin-7(6H)-ones, which structure was confirmed reliably by the chemical reactions and X-ray investigations

СИНТЕЗИ НОВИХ ПОХІДНИХ 1,3-ОКСАЗОЛО[4,5-d]ПІРИМІДИНУ НА ОСНОВІ 2-АЦИЛАМІНО-3,3-ДИХЛОРОАКРИЛОНІТРИЛІВ

В.М.Свирипа, С.Г.Пільо, В.С.Броварець, Е.Б.Русанов, Б.С.Драч

Доступні енамідонітрили типу $Cl_2C=C(CN)NHCOR$ в результаті послідовної обробки бензамідином, соляною кислотою та оцтовим ангідридом перетворюються на невідомі раніше 2-алкіл(арил)-5-феніл[1,3]оксазоло[4,5-d]піримідин-7(6H)-они, будову яких надійно встановлено хімічними та рентгеноструктурними дослідженнями.

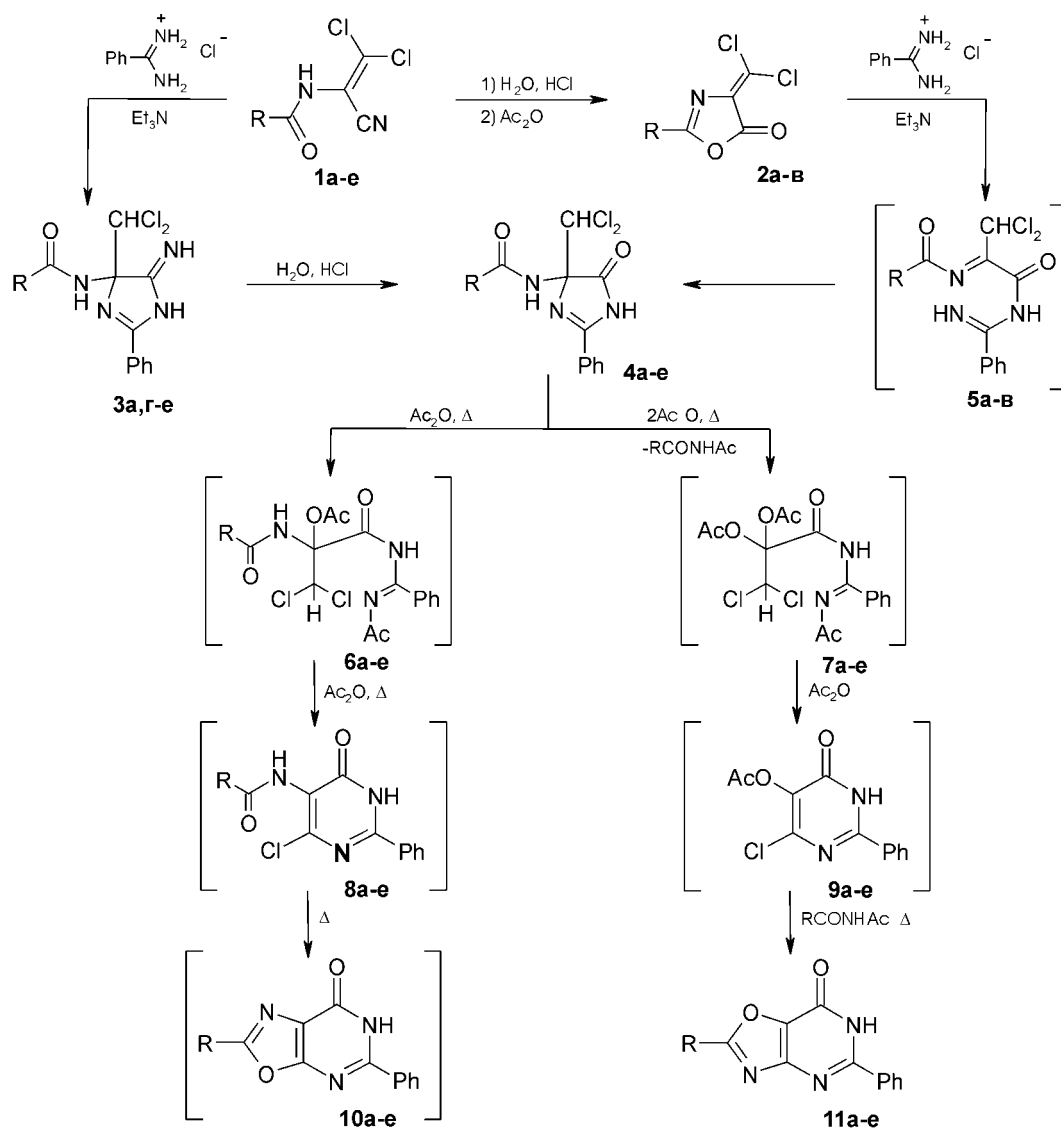
Полицентровые электрофильные реагенты — 2-ациламино-3,3-дихлороакрилонитрилы (1), которые легко получают из доступных N-1,2,2,2-тетрахлороэтиламидов карбоновых кислот [1, 2], уже нашли широкое применение для препаративного получения ряда функциональных производных 1,3-оксазола [2-6], 1,3-тиазола [6], имидазола [7], пиразола [8,9], 1,3,4-оксадиазола [10,11] и 1,3,4-тиадиазола [12]. В настоящей работе найдено новое направление использования реагентов (1) и родственных ненасыщенных азлактонов (2) [13] для синтеза производных мало изученной системы 1,3-оксазоло[4,5-d]пиримидина.

Как видно из схемы 1, сначала реагенты (1) [5] вводились в цепи превращений: (1)→(3)→(4) и (1)→(2)→(5)→(4), которые хорошо дополняют друг друга, поскольку для получения замещенных имидазолинонов (4) с ацильными остатками алифатических карбоновых кислот удобнее использовать первый подход, а второй имеет преимущества для введения в положение 4(5) имидазолинонового кольца ароиламиногрупп. Особенно легко субстраты (4) образуются при обработке ненасыщенных азлактонов (2) свободным бензамидином, но

в препаративном отношении лучше использовать взаимодействие азлактонов (2) с гидрохлоридом бензамидина в присутствии триэтиламина.

Строение соединения (4a) ($R=C_6H_5$), полученного не только по схеме 1, но и другими способами, доказано ранее [7], что существенно облегчает идентификацию его аналогов (4б-е), синтезированных в этой работе впервые (табл. 1). Рассмотрение ИК- и ЯМР 1H спектров этих соединений действительно подтверждает наличие в них дихлорометильного остатка и двух амидных групп (табл. 2).

Замещенные имидазолин-5(4)-оны (4) содержат у центра C-4(5) две азотистые группировки, что сближает их с аминами, которые неустойчивы по отношению к кислотам и другим электрофильным агентам. Поэтому неудивительно, что субстраты (4) способны при нагревании взаимодействовать с уксусным ангидридом с расщеплением одной или двух связей C-N. В дальнейшем можно представить несколько каскадных процессов, из которых ради краткости выбраны только две похожие цепи превращений: (6)→(8)→(10) и (7)→(9)→(11). Первая из них кажется более веро-



R = C₆H₅(a), 4-CH₃C₆H₄(б), 4-ClC₆H₄(в), 4-FC₆H₄(г), C₆H₅CH₂(д), (CH₃)₃C(е).

Схема 1

ятной, поскольку приводит к производным хорошо известной системы 1,3-оксазоло[5,4-*d*]пиримидина, которая легко генерируется различными способами [14-25]. Более того, предполагаемое превращение (8)→(10) имеет довольно близкую аналогию с реальным аннелированием оксазольного кольца к пиримидиновой системе [14, 21]. Эти данные, а также результаты спектрального изучения продуктов рециклизации субстратов (4) в уксусном ангидриде позволили нам в предварительном сообщении [26] отдать предпочтение соединениям (10), а не их изомерам (11). Однако комплексные химические, спектральные и рентгеноструктурные исследования, выполненные в настоящей работе, свидетельствуют о том, что рециклизация имидазолинонов (4) при нагревании в уксусном ангидриде приводит всё же не к соединениям (10), а к их изомерам — 2-алкил(арил)-5-фенил[1,3]оксазоло[4,5-*d*]пиримидин-7(6*H*)-онам (11). Такое отнесение однозначно следует из рас-

смотрения целого ряда приведенных ниже экспериментальных данных.

Во-первых, синтезированный известным способом [21], заведомый 2,5-дифенил[1,3]оксазоло[5,4-*d*]пиримидин-7(6*H*)-он (10а), отличается своей температурой плавления и особенностями УФ-, ИК- и ЯМР ¹H спектров от продукта взаимодействия субстрата (4а) с уксусным ангидридом. При этом различие установлено не только для изомерных субстратов (10а) и (11а), но и для родственных пар их производных (13) и (15), а также (14) и (16), представленных на схеме 2.

Во-вторых, сложное превращение (4)→(11) удалось осуществить не только при нагревании в уксусном ангидриде, но и в пиридине. В последнем случае механизм рециклизации не может включать расщепление одной или двух связей C-N, а обусловлен, очевидно, образованием промежуточных спироструктур (17) и (18), приведенных на схеме 3. Близкие аналоги соединений (17)

Таблица 1

Характеристики синтезированных соединений

Соединение	R	Выход, %	Т.пл., °С, (растворитель для перекристаллизации)	Найдено, %		Брутто-формула	Вычислено, %	
				Cl (S)	N		Cl (S)	N
1д	C ₆ H ₅ CH ₂	75	170-172 (толуол)	27,65	10,89	C ₁₁ H ₈ Cl ₂ N ₂ O	27,79	10,98
3г	4-FC ₆ H ₄	74	194-196 (этанол)	18,62	14,68	C ₁₇ H ₁₃ Cl ₂ FN ₄ O	18,70	14,77
3д	C ₆ H ₅ CH ₂	80	166-168 (этанол)	17,78	14,85	C ₁₈ H ₁₆ Cl ₂ N ₄ O	18,90	14,93
3е	(CH ₃) ₃ C	82	204-206 (этанол)	20,63	16,31	C ₁₅ H ₁₈ Cl ₂ N ₄ O	20,78	16,42
4б	4-CH ₃ C ₆ H ₄	80	228-230 (ацетонитрил)	18,74	11,09	C ₁₈ H ₁₅ Cl ₂ N ₃ O ₂	18,85	11,17
4в	4-ClC ₆ H ₄	77	>300 (ацетонитрил)	25,75	10,48	C ₁₇ H ₁₂ Cl ₃ N ₃ O ₂	26,81	10,59
4г	4-FC ₆ H ₄	72	>300 (этанол)	18,53	10,98	C ₁₇ H ₁₂ Cl ₂ FN ₃ O ₂	18,65	11,05
4д	C ₆ H ₅ CH ₂	75	199-201 (этанол)	18,69	11,02	C ₁₈ H ₁₅ Cl ₂ N ₃ O ₂	18,85	11,17
4е	(CH ₃) ₃ C	79	166-168 (этанол)	20,61	12,09	C ₁₅ H ₁₇ Cl ₂ N ₃ O ₂	20,72	12,28
11а	C ₆ H ₅	55	>300 (уксусная кислота)	-	14,38	C ₁₇ H ₁₁ N ₃ O ₂	-	14,53
11б	4-CH ₃ C ₆ H ₄	65	>300 (ДМФА)	-	13,72	C ₁₈ H ₁₃ N ₃ O ₂	-	13,85
11в	4-ClC ₆ H ₄	53	>300 (ДМФА)	10,79	12,82	C ₁₇ H ₁₀ ClN ₃ O ₂	10,95	12,98
11г	4-FC ₆ H ₄	50	>300 (уксусная кислота)	-	13,50	C ₁₇ H ₁₀ FN ₃ O ₂	-	13,67
11д	C ₆ H ₅ CH ₂	57	133-135 (уксусная кислота)	-	13,69	C ₁₈ H ₁₃ N ₃ O ₂	-	13,85
11е	(CH ₃) ₃ C	60	252-253 (уксусная кислота)	-	15,45	C ₁₅ H ₁₅ N ₃ O ₂	-	15,60
15	-	95	219-220 (диоксан)	11,38	13,50	C ₁₇ H ₁₀ ClN ₃ O	11,52	13,65
16	-	83	185-186 (ацетонитрил)	(8,32)	10,93	C ₂₃ H ₁₅ N ₃ OS	(8,41)	11,02

Таблица 2

Спектральные данные синтезированных соединений

Соединение	ИК-спектр, ν, см ⁻¹ (KBr)	Спектр ЯМР ¹ H, δ, м.д. (DMCO-d ₆)
1	2	3
1д	1670* (NC=O), 2230 (C≡N), 3050-3400 (NH ассоц.)	3,63 с (2H, CH ₂), 7,28 м (5H аром.), 10,35 с (1H, NH)
3г	1650* (NC=O), 3050-3400 (NH ассоц.)	6,91 с (1H, CHCl ₂), 7,22 т (2H аром.), 7,51 м (3H аром.), 7,72 ш.с (1H, NH), 7,99 м (2H аром.), 8,16 д (2H аром.), 8,80 ш.с (1H, NH), 9,29 с (1H, NH)
3д	1675* (NC=O), 3150-3400 (NH ассоц.)	3,63 с (2H, CH ₂), 6,75 с (1H, CHCl ₂), 7,22 м (6H аром.), 7,45 м (2H аром.), 7,60 ш.с (1H, NH), 8,17 д (2H аром.), 8,78 ш.с (1H, NH), 9,34 с (1H, NH)
3е	1650* (NC=O), 3200-3400 (NH ассоц.)	1,16 с (9H, 3CH ₃), 6,82 с (1H, CHCl ₂), 7,47 м (3H аром.), 7,64 ш.с (1H, NH), 8,15 м (2H аром.), 1 NH), 8,76 ш.с (1H, NH)
4б	1645 (NC=O), 1780 (C=O), 2800-3400 (NH ассоц.)	2,38 с (3H, CH ₃), 6,39 с (1H, CHCl ₂), 7,27 д (2H аром.), 7,55 м (3H аром.), 7,72 д (2H аром.), 8,04 д (2H аром.), 9,01 с (1H, NH), 11,91ш. с (1H, NH)
4в	1640 (NC=O), 1770 (C=O), 2800-3400 (NH ассоц.)	6,37 с (1H, CHCl ₂), 7,55 м (5H аром.), 7,84 д (2H аром.), 8,04 д (2H аром.), 9,22 с (1H, NH), 11,94 ш. с (1H, NH)
4г	1655 (NC=O), 1780* (C=O), 2800-3400 (NH ассоц.)	6,37 с (1H, CHCl ₂), 7,27 т (2H аром.), 7,55 м (3H аром.), 7,89 м (2H аром.), 8,04 д (2H аром.), 9,15 с (1H, NH), 11,92 ш. с (1H, NH)
4д	1645 (NC=O), 1775 (C=O), 2800-3300 (NH ассоц.)	3,54 с (2H, CH ₂), 6,31 с (1H, CHCl ₂), 7,26 м (5H аром.), 7,56 м (3H аром.), 7,99 д (2H аром.), 8,89 с (1H, NH), 11,78 с (1H, NH)
4е	1660 (NC=O), 1770 (C=O), 2800-3500 (NH ассоц.)	1,12 с (9H, 3CH ₃), 6,36 с (1H, CHCl ₂), 7,55 м (3H аром.), 7,86 с (1H, NH), 8,03 д (2H аром.), 11,75 ш.
11а**	1690 (C=O), 3050-3200 (NH ассоц.)	7,62 м (6H аром.), 8,17 м (4H аром.), 13,09 ш. с (1H, NH)
11б	1685* (C=O), 3050-3200 (NH ассоц.)	2,44 с (3H, CH ₃), 7,42 д (2H аром.), 7,54 м (3H аром.), 8,09 д (2H аром.), 8,14 м (2H аром.), 12,93 ш.с (1H, NH)
11в	1690* (C=O), 3050-3250 (NH ассоц.)	7,54 м (3H аром.), 7,66 д (2H аром.), 8,18 м (4H аром.), 12,93 ш. с (1H, NH)
11г	1695* (C=O), 3050-3200 (NH ассоц.)	7,50 м (5H аром.), 8,14 м (2H аром.), 8,27 м (2H аром.), 13,01 ш. с (1H, NH)
11д	1710* (C=O), 3050-3450 (NH ассоц.)	4,39 с (2H, CH ₂), 7,35 м (5H аром.), 7,55 м (3H аром.), 8,07 м (2H аром.), 13,04 ш. с (1H, NH)

1	2	3
11e	1685* (C=O), 3050-3300 (NH асоц.)	1,45 с (9H, 3CH ₃), 7,57 м (3H аром.), 8,11 м (2H аром.), 12,96 ш.с (1H, NH)
15	1620-1800, 3050-3500 (полосы отсутствуют)	7,57 м (3H аром.), 7,73 м (3H аром.), 8,32 м (2H аром.), 8,40 м (2H аром.)
16	1620-1800, 3050-3500 (полосы отсутствуют)	7,42 м (3H аром.), 7,62 м (6H аром.), 7,81 д (2H аром.), 7,92 д (2H аром.), 8,18 д (2H аром.)

* Полоса с плечом.

** УФ-спектр, λ (ДМСО): 265 нм (ε = 27600).

действительно удалось недавно синтезировать и доказать их строение рентгеноструктурным методом [27]. Поэтому цепь превращений (4)→(17)→(11) кажется вполне логичной, если учесть не только реальную возможность образования промежуточных спироструктур, но и дальнейшую их способность к стабилизации за счет расширения цикла (ср. [28]). Вместе с тем представить себе подобную рециклизацию (4)→(17)→(10) вряд ли возможно.

В-третьих, строение продукта рециклизации субстрата (4e) [R=(CH₃)₃C] в уксусном ангидриде или в пиридине однозначно установлено при помощи рентгеноструктурного исследования. Как видно из рисунка, асимметричная кристаллографическая ячейка состоит из двух независимых

конформеров (А) и (Б). Центральная бициклическая система в них планарна — отклонения от среднеквадратической плоскости не превышает 0,011 и 0,009 Å°.

Фенильное кольцо в заторможенном конформере (А) вывернуто из плоскости сопряжения, но в конформере (Б) почти копланарно с центральной бициклической системой двугранные углы составляют соответственно 34,05(8)° и 7,94(15)°. Длины связей и валентные углы в молекулах (А) и (Б) находятся в соответствии с их структурной формулой (табл. 3). В кристалле эти молекулы связаны в димеры водородными связями N2—H2N···O2 (-x-1, y, 1-z) с такими параметрами: N2(A)···O2(Б) 2,831(3), N2-H2N(A) 0,90(3),

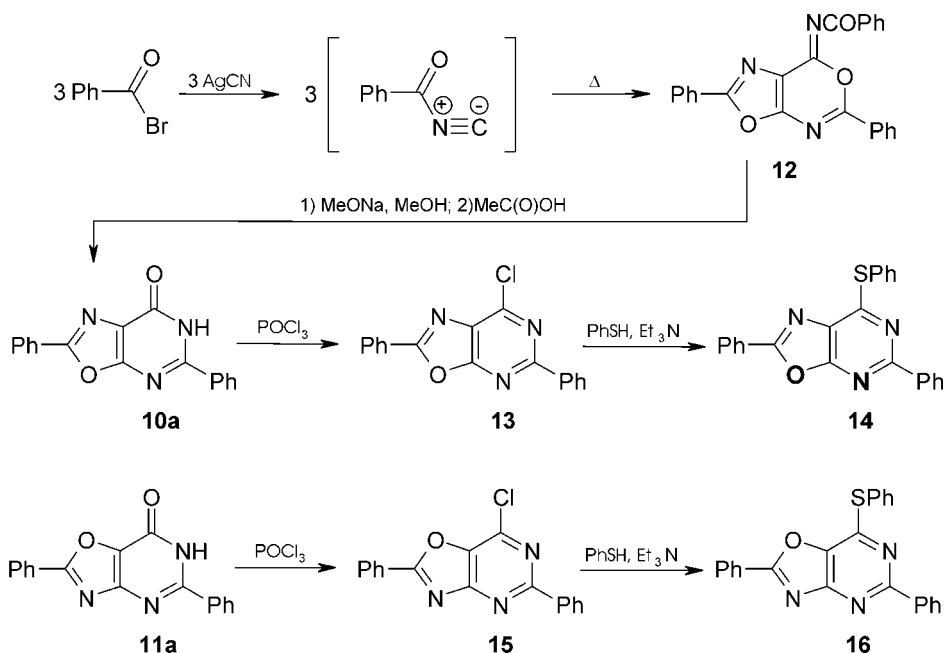
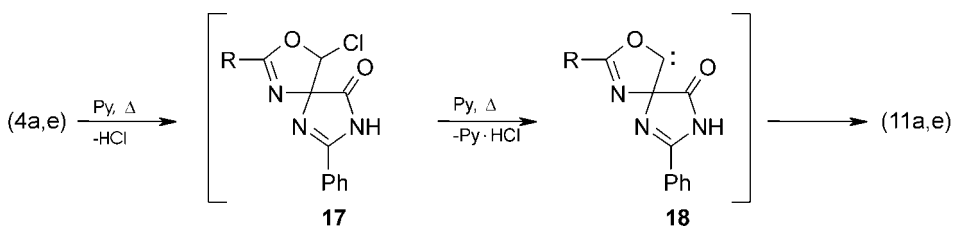


Схема 2



R = C₆H₅(a), (CH₃)₃C(e).

Схема 3

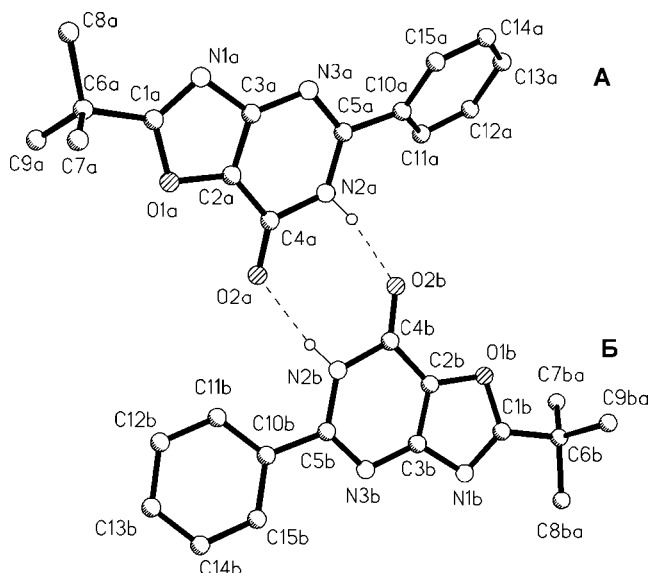


Рис. Молекулярная структура соединения (11e).

H2N(A) ··· O2(B) 1,94(3) (Å); N2(A)-H2N(A) ··· O2(B) 168(3)°, N2(B) ··· O2(A) 2,851(3), N2(B)-H2N(B) 0,89(3), H2N(B) ··· O2(A) 1,97(3) Å°; N2(B)-H2N(B) ··· O2(A) 170(2)°.

Все эти данные позволяют надежно идентифицировать строение не только соединения (11e), но и его аналогов (11a-д), которые подобны в спектральном отношении (табл. 2).

Заметим, наконец, что в отличие от достаточно изученных производных 1,3-оксазоло[4,5-*d*]пиримидина [14-25], их изомеры, содержащие систему 1,3-оксазоло[4,5-*d*]пиримидина, исследованы мало. Некоторые из них получены из 4-амино-5-гидрокси-пиримидина и его производных конденсацией с ортоэстерами [29, 30] и ангидридами бензойных кислот [31]. Эти способы, очевидно, не-

Таблица 3

Основные длины связей (d, Å) и валентные углы (ω, град) в молекуле соединения 11e

Связь или угол	Молекула А	Молекула Б
O(1)-C(1)	1.374(3)	1.369(3)
O(1)-C(2)	1.370(3)	1.367(3)
N(1)-C(1)	1.291(3)	1.301(4)
N(1)-C(3)	1.392(3)	1.392(3)
C(2)-C(3)	1.357(3)	1.365(3)
C(2)-C(4)	1.412(3)	1.409(3)
N(2)-C(4)	1.387(3)	1.389(3)
N(2)-C(5)	1.367(3)	1.374(3)
N(3)-C(3)	1.356(3)	1.354(3)
N(3)-C(5)	1.313(3)	1.308(3)
O(2)-C(4)	1.233(3)	1.235(3)
C(5)-N(2)-C(4)	126.0(2)	126.32(19)
C(5)-N(2)-H(2N)	119.6(18)	120.5(17)
C(4)-N(2)-H(2N)	114.4(18)	113.1(17)

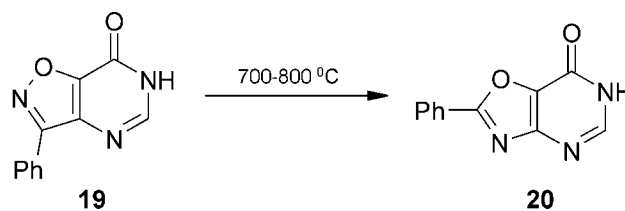


Схема 4

пригодны для введения функциональных заместителей в положение 7 1,3-оксазоло[4,5-*d*]пиримидиновой системы. С другой стороны, образование 2-фенил[1,3]оксазоло[4,5-*d*]пиримидин-7(6H)-она, как показано на схеме 4, пиролитической рециклизацией (19) → (20) представляет скорее научный, чем препаративный интерес.

Вполне очевидно, что разработанные в этой работе подходы к синтезу 7-функциональнозамещенных 1,3-оксазоло[4,5-*d*]пиримидинов (схемы 1-3) более удобны и сфера их применения гораздо шире, чем способы, приведенные в литературе.

Экспериментальная часть

ИК-спектры новых соединений получали на спектрометре Specord M-80 в таблетках с KBr, спектры ЯМР ¹H записывали на спектрометре Varian VXR-300 в растворе DMSO-*d*₆ с TMC в качестве внутреннего стандарта, а УФ-спектры получены на приборе Specord UV-Vis.

2-Ациламино-3,3-дихлороакрилонитрилы (1a-г,е) получали, как описано ранее [1, 2]. Соединение (1д) синтезировали аналогично.

4-Бензоиламино-4-дихлорометил-5-имино-2-фенил-4,5-дигидро-1H-имидазол (3a) получали, как описано ранее [7].

4-Ациламино-4-дихлорометил-5-имино-2-фенил-4,5-дигидро-1H-имидазолы (3г-е). К раствору 0,02 Моль одного из соединений (1г-е) в 50 мл безводного тетрагидрофурана добавляли по 3,13 г (0,02 Моль) гидрохлорида бензамидина и 2,80 мл (0,02 Моль) триэтиламина. Смесь перемешивали при 20-25°C 72 ч, осадок отфильтровывали, промывали водой, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединения (3г-е) очищали перекристаллизацией.

4-Бензоиламино-4-дихлорометил-2-фенил-4,5-дигидро-1H-имидазол-5-он (4a) получали, как описано ранее [7].

4-Ациламино-4-дихлорометил-2-фенил-4,5-дигидро-1H-имидазол-5-оны (4г-е).

а) Суспензию 0,005 Моль одного из соединений (3г-е) в 20 мл концентрированной соляной кислоты кипятили 30 мин. После охлаждения смесь обрабатывали раствором бикарбоната натрия до нейтральной среды, осадок отфильтровывали, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединения (4г-е) очищали перекристаллизацией.

б) К раствору 0,02 Моль одного из азлактонов (2б,в) [13] в 50 мл безводного тетрагидрофурана добавляли сначала 3,13 г (0,02 Моль) гидрохлори-

да бензамидина, а затем 2,80 мл (0,02 Моль) триэтиламина. Смесь перемешивали при 20-25°C 72 ч, осадок отфильтровывали, промывали водой, объединяли с осадком, выделенным из фильтрата, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединения (4б,в) очищали перекристаллизацией.

2-Алкил(арил)-5-фенил[1,3]оксазоло[4,5-d]пиримидин-7(6Н)-оны (11а-е).

а) Смесь 0,003 Моль одного из соединений (4а-е) и 7 мл уксусного ангидрида кипятили 10 ч, охлаждали, выпавший осадок отфильтровывали, промывали водой, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединения (11а-е) очищали перекристаллизацией.

б) Смесь 0,01 Моль одного из соединений (4а,е) и 15 мл пиридина кипятили 10 ч, пиридин удаляли в вакууме, остаток обрабатывали водой, осадок отфильтровывали, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединения (11а,е) очищали перекристаллизацией из уксусной кислоты. Выход соединения (11а) — 85%, а соединения (11е) — 71%. Проба смешения двух образцов соединения (11а) или (11е), полученных методами **а** и **б**, не давала депрессии температуры плавления, ИК-спектры их были идентичны.

2,5-Дифенил-7-хлоро[1,3]оксазоло[4,5-d]пиримидин (15). Смесь 0,87 г (0,003 Моль) соединения (11а), 10 мл хлороксида фосфора и 0,36 г (0,003 Моль) N,N-диметиланилина кипятили 3 ч, хлороксид фосфора удаляли в вакууме, остаток обрабатывали водой, осадок отфильтровывали, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединение (15) очищали перекристаллизацией.

2,5-Дифенил-7-фенилтио[1,3]оксазоло[4,5-d]пиримидин (16). Смесь 0,62 г (0,002 Моль) соединения (15), 0,22 г (0,002 Моль) тиофенола и 0,28 мл (0,002 Моль) триэтиламина в 15 мл диоксана кипятили 6 ч, диоксан удаляли в вакууме, остаток обрабатывали водой, осадок отфильтровывали, высушивали в вакуум-эксикаторе над пентаоксидом фосфора и соединение (16) очищали перекристаллизацией.

Литература

1. Драч Б.С., Свиридов Э.П., Кисиленко А.А., Курсанов А.В. // *ЖОрХ.* — 1973. — Т. 9, №9. — С. 1818-1824.
2. Драч Б.С., Свиридов Э.П., Лавренюк Т.Я. // *ЖОрХ.* — 1974. — Т. 10, №6. — С. 1271-1274.
3. Matsumura K., Saraie T., Hasnimoto N. // *Chem. Pharm. Bull.* — 1976. — Vol. 24, №5. — P. 924-940.
4. Matsumura K., Shimadzu H., Miyashita O., Hashimoto N. // *Chem. Pharm. Bull.* — 1976. — Vol. 24, №5. — P. 941-947.
5. Пильо С.Г., Броварец В.С., Романенко Е.А., Драч Б.С. // *ЖОХ.* — 2002. — Т. 72, №11. — С. 1828-1833.
6. Пильо С.Г., Броварец В.С., Виноградова Т.К. и др. // *ЖОХ.* — 2002. — Т. 72, №11. — С. 1818-1827.
7. Виноградова Т.К., Миськевич Г.Н., Драч Б.С. // *ЖОрХ.* — 1980. — Т. 16, №9. — С. 1869-1874.
8. Броварец В.С., Пильо С.Г., Чернега А.Н. и др. // *ЖОХ.* — 1999. — Т. 69, №10. — С. 1646-1651.
9. Попильниченко С.В., Пильо С.Г., Броварец В.С. и др. // *ЖОХ.* — 2005. — Т. 75, №11. — С. 1902-1906.
10. Пильо С.Г., Броварец В.С., Виноградова Т.К. и др. // *ЖОХ.* — 2001. — Т. 71, №2. — С. 310-315.
11. Головченко А.В., Пильо С.Г., Броварец В.С. и др. // *ЖОХ.* — 2005. — Т. 75, №3. — С. 461-467.
12. Golovchenko O.V., Pilyo S.G., Brovarets V.S. et al. // *Heteroatom Chem.* — 2004. — Vol. 15, №6. — P. 454-458.
13. Драч Б.С., Мартынюк А.П., Миськевич Г.Н. // *ЖОХ.* — 1976. — Т. 12, №10. — С. 2238-2244.
14. Falco E.A., Elion G.B., Burgi E. et al. // *J. Am. Chem. Soc.* — 1952. — Vol. 74, №19. — P. 4897-4902.

Рентгеноструктурное исследование

Рентгеноструктурное исследование монокристалла соединения 11е с линейными размерами 0,55x0,36x0,29 мм проведено при комнатной температуре на автоматическом четырехкружном дифрактометре Enraf-Nonius CAD-4 (CuK α — излучение λ 1,54178 Å, отношение скоростей сканирования $2\theta/\omega = 1,2$. Всего было собрано 5017 отражений, из которых 4740 являются симметрически независимыми. Кристаллы соединения 11е триклинные; $a = 10,8344(4)$, $b = 11,717(5)$, $c = 12,907(3)$ Å, $\alpha = 74,00(3)$, $\beta = 65,16(3)$, $\gamma = 71,85(4)^\circ$, $V = 1399,3(9)$ Å 3 , $M = 269,3$, $Z = 4$, $d_{\text{выч}} = 1,278$ г/см 3 , $\mu = 0,71$ мм $^{-1}$, $F(000) = 568$, пространственная группа P-1 (N 2). Структура расшифрована прямым методом и уточнена методом наименьших квадратов в полноматричном анизотропном приближении с использованием комплекса программ SHELXS97 и SHELXL97 [33,34]. В уточнении использовано 4740 отражений с $I > 2\sigma(I)$ (3682 уточняемых параметра). Все атомы водорода в молекуле 11е были выявлены из разностного синтеза электронной плотности и уточнены изотропно. Окончательные значения факторов расходимости $R = 0,0542$ и $R_w = 0,1576$, $GOF = 1,055$. Остаточная электронная плотность из разностного ряда Фурье составляет 0,35 и -0,27 е/Å 3 . Весовая схема $\omega = 1/[\sigma^2(\text{Fo}^2) + (0,0922\text{P})^2 + 0,3302\text{P}]$, где $\text{P} = (\text{Fo}^2 + 2\text{Fc}^2)/3$. Полный набор рентгеноструктурных данных для соединения 11е задепонирован в Кэمبرиджском банке структурных данных (№614812).

Выводы

1. Показано, что продукты взаимодействия 2-ациламино-3,3-дихлороакрилонитрилов и родственных 2-арил-4-дихлорометилен-1,3-оксазол-5(4Н)-онов с бензамидином легко превращаются в новые производные малоизученной системы 1,3-оксазоло[4,5-d]пиримидина.

2. Строение указанных соединений надежно установлено при помощи химических и рентгеноструктурных исследований.

15. Jansen A.B.A., Szelke M. // *J. Chem. Soc.* — 1961. — № 1. — P. 405-411.
16. Ferris J.P., Orgel L.E. // *J. Am. Chem. Soc.* — 1966. — Vol. 88, №16. — P. 3829-3831.
17. Ohtsuka Y. // *Bull. Chem. Soc. Japan.* — 1970. — Vol. 43, №2. — P. 187-191.
18. Ohtsuka Y. // *Bull. Chem. Soc. Japan.* — 1970. — Vol. 43, №3. — P. 954-955.
19. Ohtsuka Y. // *Bull. Chem. Soc. Japan.* — 1970. — Vol. 43, №12. — P. 3909-3913.
20. Patil V.D., Townsend L.B. // *J. Het. Chem.* — 1971. — Vol. 8, №3. — P. 503-505.
21. Douchis H. // *J. Org. Chem.* — 1972. — Vol. 37, №16. — P. 2583-2587.
22. Мелик-Оганджян Р.Г., Хачатурян Т.А., Амирагов Дж.Г. и др. // *Арм. хим. журн.* — 1981. — Т. 34, №4. — С. 324-327.
23. Мирзоян Р.Г., Басенян К.Е., Терентьев П.Б. и др. // *ХГС.* — 1982. — №9. — С. 1255-1258.
24. Мелик-Оганджян Р.Г., Хачатурян Т.А., Мирзоян В.С. и др. // *ХГС.* — 1983. — №1. — С. 112-114.
25. Turchi I.J., Maryanoff C.A. // *Synthesis.* — 1983. — №10. — P. 837-839.
26. Свиріна В.М., Броварець В.С., Чернега А.Н. та ін. // *Доп. НАН України.* — 2005. — №5. — С. 144-149.
27. Попільниченко С.В., Броварець В.С., Чернега О.М., Драч Б.С. // *Доп. НАН України.* — 2005. — №4. — С. 128-133.
28. Nakagawa M., Liu J., Ogata K. et al. // *J. Chem. Soc. Chem. Commun.* — 1988. — №7. — P. 463-464.
29. Doise M., Dennin F., Blondeau D., Sliwa H. // *Tetrahedron Lett.* — 1990. — Vol. 31, №8. — P. 1155-1156.
30. Doise M., Blondeau D., Sliwa H. // *Synt. Commun.* — 1992. — Vol. 22, №20. — P. 2891-2901.
31. Kato T., Oda N., Ito I. // *Chem. Pharm. Bull.* — 1976. — Vol. 24, №10. — P. 2461-2469.
32. Laurent S., Barbieux-Flammang M., Van Haverbeke Y. et al. // *Bull. Soc. Chim. Belg.* — 1994. — Vol. 103, №5-6. — P. 181-184.
33. Sheldric G.M. (1997) *SHELXS97. Program for the Solution of Crystal Structure, University of Gottingen, Germany.*
34. Sheldric G.M. *SHELXL97. Program for the Refinement of crystal Structures, University of Gottingen, Gottingen, Germany.*

Надійшла до редакції 24.12.2007 р.