

ОБМЕН МЕТИЛЕНОВЫМИ КОМПОНЕНТАМИ В РЕАКЦИИ ЦИАНОАЦЕТОГИДРАЗИДА С 2-АМИНО-4-АРИЛБУТА-1,3-ДИЕН- 1,1,3-ТРИКАРБОНИТРИЛАМИ

© 2021 г. А. Г. Левченко^a, П. Г. Дахно^a, А. Р. Чикава^a, В. В. Доценко^{a,b,*},
Н. А. Аксенов^b, И. В. Аксенова^b

^a Кубанский государственный университет, ул. Ставропольская 149, Краснодар, 350040 Россия

^b Северо-Кавказский федеральный университет, Ставрополь, 355009 Россия

*e-mail: victor_dotsenko_@mail.ru

Поступило в Редакцию 28 августа 2021 г.

После доработки 18 сентября 2021 г.

Принято к печати 19 сентября 2021 г.

2-Амино-4-арилбута-1,3-диен-1,1,3-трикарбонитрилы, полученные конденсацией Кнёвенагеля между альдегидами и димером малонитрила, введены в реакцию с цианоацетогидразидом в присутствии оснований. Вместо ожидаемых продуктов гетероциклизации пиридинового ряда были выделены N'-арилиден-2-цианоацетгидразиды.

Ключевые слова: цианоацетогидразид, димер малонитрила, конденсация Кнёвенагеля, цианоацетилгидразоны

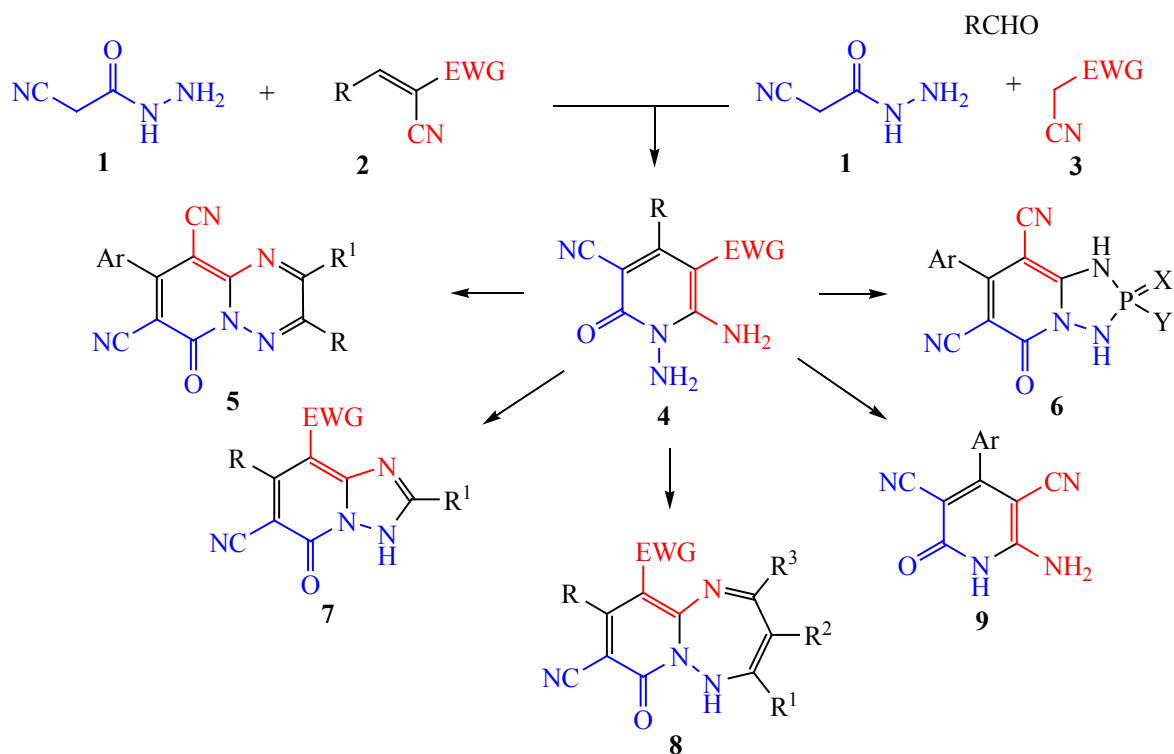
DOI: 10.31857/S0044460X21110020

Известно, что взаимодействие цианоацетогидразида **1** с α,β -непредельными нитрилами **2** или с альдегидами и метиленактивными нитрилами **3** (в многокомпонентном варианте) ведет к образованию производных 1,6-диамино-2-оксо-1,2-дигидропиридин-3-карбонитрила **4** [1–6] (схема 1). Подобные соединения представляют интерес как исходные реагенты для получения полиазагетероциклов с мостиковым атомом азота – конденсированных 1,2,4-триазинов **5** [7, 8], 1,2,4,3-триазафосфоло[1,5-*a*]пиридинов **6** [9], [1,2,4]триазоло[1,5-*a*]пиридинов **7** [10–12], пиридо[1,2-*b*][1,2,4]триазепинов **8** [13–16], производных никотинитрила **9** [3] (схема 1). Также соединения **4** перспективны как обладающие противоопухолевым действием низкомолекулярные лиганды для связывания киназы VEGFR-2 [17], фосфодиэстеразы PDE4 [18], новые антибактериальные и фунгицидные препараты [19] и др. Помимо этого, 1,6-диаминопириди-

ны **4** используются для получения материалов для нелинейной оптики [8], азагетероциклов с противораковым действием [11, 20–22], ингибиторов PGE₂ с противовоспалительной активностью [23].

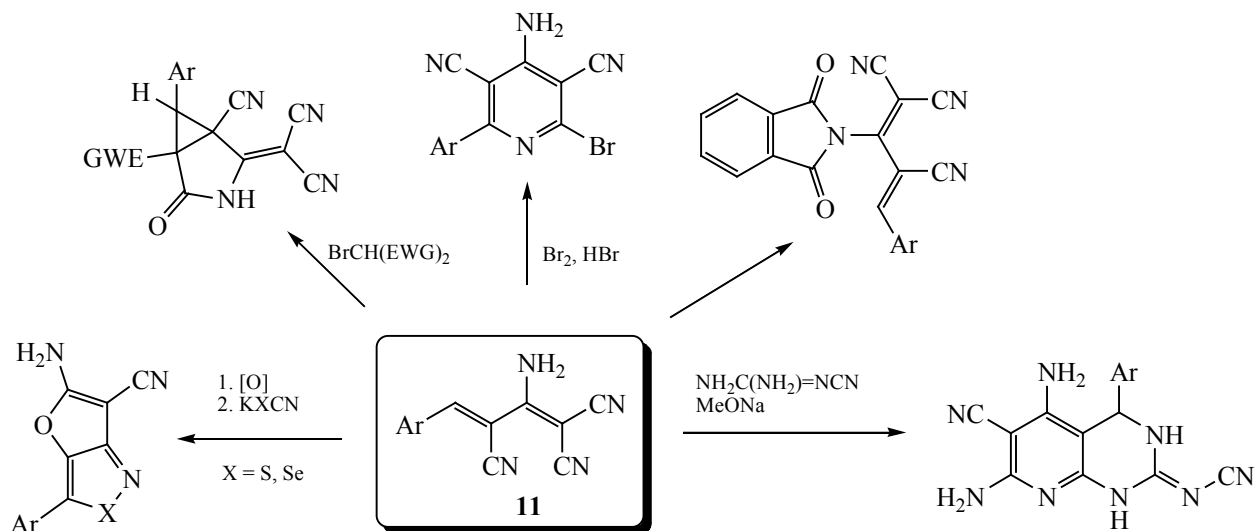
Димер малонитрила (2-аминопроп-1-ен-1,1,3-трикарбонитрил, **10**) является реакционноспособным многофункциональным реагентом, широко используемым в органическом синтезе (см. обзорные работы [24, 25]). В продолжение исследований в области реакций гетероциклизации димера малонитрила [26–32] нами изучено взаимодействие арилметиленовых производных димера малонитрила **11** с цианоацетогидразидом **1**. Соединения **11** успешно используются в органическом синтезе для получения широкого ряда гетероциклических продуктов – производных фуоро[3,2-*c*]изотиазола и -селеназола [33, 34], 3-азабицикло[3.1.0]гексана [35], 2-бромникотинитрила [36], новых мероцианиновых красителей с фраг-

Схема 1.



EWG – электроноакцепторная группа [CN, CO₂R, C(O)Ar, C(O)NHR].

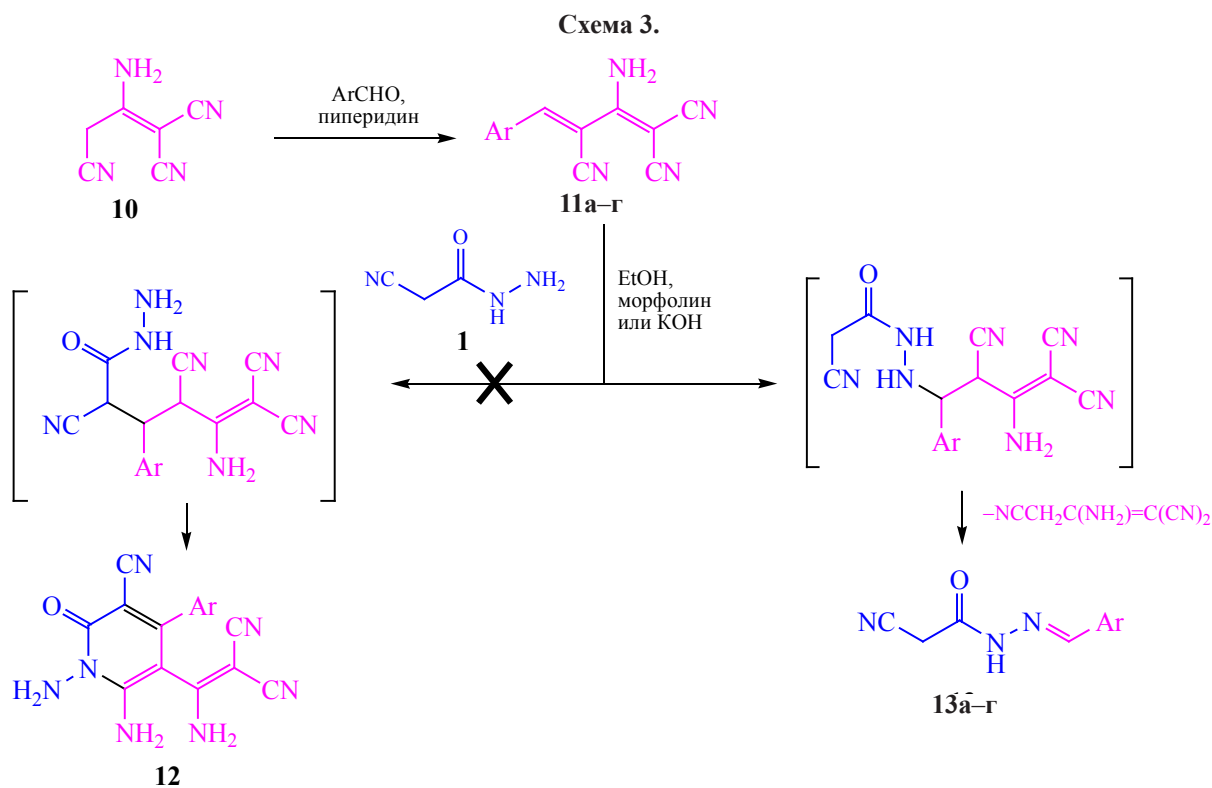
Схема 2.



ментом изоиндола [37], пиридо[2,3-*d*]пиримидинов [38] и др. (схема 2).

Ожидаемые продукты взаимодействия производных димера малонитрила **11** с цианоацето-

гидразидом **1**, пиридины **12**, благодаря наличию функциональных групп могут быть использованы как исходные реагенты для дальнейших превращений. Литературный поиск показал, что взаимодей-



ствие полинитрилов **11** с цианоацетогидразидом в литературе не описано.

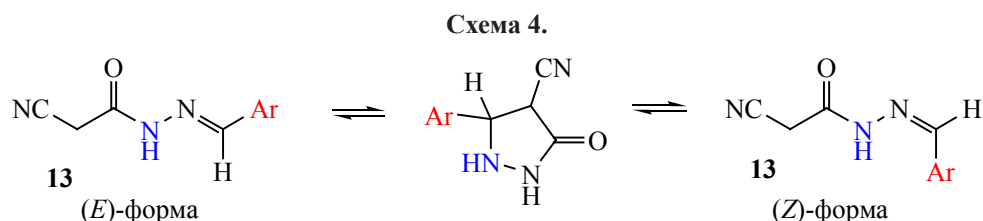
Установлено, что независимо от используемого основания, продуктами реакции соединений **1** и **11** являются известные *N'*-арилиден-2-цианоацетогидразиды **13** (схема 3). Использование эквимольных количеств морфолина, спиртового раствора KOH, 2-кратного избытка морфолина или проведение синтеза при 40°C дает одни и те же продукты **13** с сопоставимыми выходами (26–55%).

Известно, что цианоацетогидразид **1** может реагировать как *S*- либо как *N*-нуклеофил [1]. Обычным направлением взаимодействия гидразида **1** с α,β -непредельными нитрилами **2** является классическое присоединение по Михаэлю с образованием связи C–C [1]. Мы предполагаем, что в случае 2-амино-4-арилбута-1,3-диен-1,1,3-трикарбонитрилов **11** реализуется альтернативное направление – реакция аза-Михаэля с последующим распадом аддукта до димера малонитрила **10** и гидразонов **13** (схема 3). Подобный обмен метиле-

новыми компонентами ранее отмечался в случае взаимодействия цианоацетогидразида **1** с рядом других активированных алкенов [6, 39, 40]. Возможные причины изменения регионарности нуклеофильной атаки цианоацетогидразида в случае соединений **11** требуют отдельного изучения в дальнейшем.

Строение полученных соединений подтверждается встречным синтезом из цианоацетогидразида **1** и альдегидов, а также спектральными данными. Так, в ИК спектрах наблюдаются малоинтенсивные полосы при 2254–2255 cm^{-1} , соответствующие единственной несопряженной цианогруппе, а также характерные полосы колебаний связей N–H, C=O и N=C.

В литературе имеются указания [41–44] на сложный характер спектральной картины в спектрах ЯМР ^1H гидразонов **13**, обусловленный наличием *E*- и *Z*-изомерных форм, а также кольчатой-цепной таутомерией (схема 4).



Отмечается, что соотношение циклической и линейной форм, а также *E/Z*-изомеров существенно зависит от растворителя и природы заместителя Ar [42, 44]. В данном случае для гидразонов **13а–г** в спектрах ЯМР (ДМСО- d_6) наблюдались только сигналы *E*- и *Z*-изомеров линейного строения в различном соотношении, но с преобладанием (*E*)-формы, что согласуется с литературными данными [44]. Так, в спектре ЯМР ^1H (ДМСО- d_6) *N'*-(3,4-диметоксибензилиден)-2-цианоацетогидразида **13а** наблюдается удвоение сигналов метиленовых групп (4.22 и 3.55 м. д.), метоксигрупп, ароматических протонов, протонов $\text{N}=\text{CH}$ (7.93 и 8.08 м. д.) и NH (11.71 и 11.61 м. д.). Отнесение сигналов, согласно литературным данным [44], указывает на то, что минорный изомер имеет (*Z*)-конфигурацию, а соотношение (*E*)- и (*Z*)-изомеров составляет $\sim 10:3$.

Резюмируя вышесказанное, стоит отметить, что предпринятая попытка осуществить реакцию гетероциклизации в ходе основно-катализируемого взаимодействия 2-амино-4-арилбута-1,3-диен-1,1,3-трикарбонитрилов с цианоацетогидразидом не удалась. В результате ранее не описанной реакции обмена метиленовыми компонентами были получены известные *N'*-арилиден-2-цианоацетогидразиды. Полученные цианоацетилгидразоны представляют практический интерес как регуляторы роста растений [43], противораковые агенты [45], подавители агрессивного поведения [46], антибактериальные препараты [47] и т. п. Обнаруженный способ получения цианоацетилгидразонов нельзя считать препаративным в силу низкой атом-экономичности, невысоких выходов и наличия более удобных методов. В то же время, новое взаимодействие представляет интерес как нестандартное направление протекания реакций арилметиленовых производных димера малонитри-

ла с метиленактивными соединениями на примере цианоацетогидразида.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

ИК спектры получали на спектрометре Bruker Vertex 70 с приставкой НПВО методом нарушенного полного внутреннего отражения на кристалле алмаза, погрешность $\pm 4 \text{ см}^{-1}$. Спектры ЯМР регистрировали на приборе Bruker Avance III HD 400MHz (400.17 МГц на ядрах ^1H , 100.63 МГц – ^{13}C) в растворе ДМСО- d_6 , в качестве стандарта использовали остаточные сигналы растворителя. Элементный анализ проводили на приборе Elementar Vario Microcube. Индивидуальность полученных образцов контролировали методом ТСХ на пластинах Сорбфил-А (производство «ООО Имид», Краснодар), элюент – ацетон–петролейный эфир (3:5), проявитель – пары иода, УФ детектор.

Цианоацетогидразид **1** [48] и 2-амино-4-арилбута-1,3-диен-1,1,3-трикарбонитрилы **11а–г** [49–51] были получены по известным методикам.

Взаимодействие цианоацетогидразида **1 с 2-амино-4-арилбута-1,3-диен-1,1,3-трикарбонитрилами **11**.** К суспензии соответствующего 2-амино-4-арилбута-1,3-диен-1,1,3-трикарбонитрила **11а–г** (2.55 ммоль) в EtOH (8–10 мл) добавляли 0.25 г (2.55 ммоль) цианоацетогидразида **1** и далее по каплям морфолин (0.22 мл, 2.55 ммоль) либо раствор 143 мг (2.55 ммоль) КОН в 2 мл EtOH. Наблюдалась гомогенизация с образованием раствора желто-зеленого цвета, из которого через ~ 3 –4 мин начиналось образование осадка. Через 1–2 ч осадок отфильтровывали, промывали охлажденным спиртом, петролейным эфиром и сушили при 60°C .

***N'*-(3,4-Диметоксибензилиден)-2-цианоацетогидразид (**13а**).** Выход 38%, бежевый поро-

шок, т. пл. 185–187°C (т. пл. 186–188°C [52]). ИК спектр, ν , см^{-1} : 3200, 3068 с (N–H), 2255 сл (C≡N), 1688 с (C=O), 1666 с (C=N, C=C). Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: (*E*)-изомер, 3.80 с (3H, MeO), 3.81 с (3H, MeO), 4.22 с (2H, CH₂CN), 7.00 д (1H, H⁵-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.19 д. д (1H, H⁶-Ar, 3J 8.3, 4J 1.7 Гц), 7.34 д (1H, H²-Ar, 4J 1.7 Гц), 7.93 с (1H, N=CH), 11.71 уш. с (1H, NH); (*Z*)-изомер, 3.55 с (2H, CH₂CN), 3.79 с (3H, MeO), 7.03 д (1H, H⁵-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.22 д. д (1H, H⁶-Ar, 3J 8.3, 4J 1.7 Гц), 7.30 д (1H, H²-Ar, 4J 1.7 Гц), 8.08 с (1H, N=CH), 11.61 уш. с (1H, NH). Часть сигналов не обнаруживается вследствие наложения с сигналами (*E*)-изомера. Исходя из интегральных интенсивностей сигналов, соотношение изомеров составляет (*E*):(*Z*) ~ 10:3. Спектр ЯМР ^{13}C DEPTQ, δ_{C} , м. д.: (*E*)-изомер, 24.3 (CH₂), 55.48* (MeO), 55.55* (MeO), 108.6* (C⁵H Ar), 111.4* (C⁶H Ar), 116.2 (C≡N), 121.5* (C²H Ar), 126.5 (C¹ Ar), 144.4* (CH=N), 149.0 (C³ Ar), 150.7 (C⁴ Ar), 164.59 (C=O); (*Z*)-изомер, 24.8 (CH₂), 55.45* (MeO), 55.57* (MeO), 108.4* (C⁵H Ar), 111.5* (C⁶H Ar), 115.9 (C≡N), 122.0* (C²H Ar), 126.4 (C¹ Ar), 147.9* (CH=N), 149.1 (C³ Ar), 150.9 (C⁴ Ar), 164.65 (C=O). Здесь и далее звездочкой обозначены сигналы в противофазе. Найдено, %: С 58.20; Н 5.41; N 17.02. C₁₂H₁₃N₃O₃. Вычислено, %: С, 58.29; Н, 5.30; N, 16.99. *M* 247.25.

N'-(4-Метоксибензилиден)-2-цианоацетогидразид (13б). Выход 57%, бежевый порошок, т. пл. 188–190°C (т. пл. 192–194°C [52]). ИК спектр, ν , см^{-1} : 3202, 3070 с (N–H), 2255 сл (C≡N), 1689 с (C=O), 1665 с (C=N, C=C). Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: (*E*)-изомер, 3.80 с (3H, MeO), 4.20 с (2H, CH₂CN), 6.98 д (2H, H³H⁵-Ar, 3J 8.1 Гц), 7.22 д (1H, H²H⁶-Ar, 3J 8.1 Гц), 7.95 с (1H, N=CH), 11.68 с (1H, NH); (*Z*)-изомер, 3.75 с (2H, CH₂CN), 3.79 с (3H, MeO), 7.00 д (2H, H³H⁵-Ar, 3J 8.1 Гц), 7.24 д (1H, H²H⁶-Ar, 3J 8.1 Гц), 8.10 с (1H, N=CH), 11.65 с (1H, NH). Исходя из интегральных интенсивностей сигналов, соотношение изомеров составляет (*E*):(*Z*) ~ 4:1. Спектр ЯМР ^{13}C DEPTQ, δ_{C} , м. д.: (*E*)-изомер, 24.5 (CH₂), 55.6* (MeO), 117.6* (C³, C⁵ Ar), 116.5 (C≡N), 126.5* (C², C⁶ Ar), 127.1 (C¹ Ar), 145.0* (CH=N), 155.1 (C⁴ Ar), 165.0 (C=O); (*Z*)-изомер, 24.8 (CH₂), 55.5* (MeO), 118.5* (C³, C⁵ Ar), 116.4 (C≡N), 127.1* (C², C⁶ Ar), 148.1* (CH=N), 154.3 (C⁴ Ar), 164.8 (C=O). Найдено, %: С 60.76; Н

5.16; N, 19.31. C₁₁H₁₁N₃O₂. Вычислено, %: С 60.82; Н 5.10; N 19.34. *M* 217.22.

N'-(4-Гидрокси-3-метоксибензилиден)-2-цианоацетогидразид (13в). Выход 28%, светло-желтый порошок, т. пл. 200–202°C. ИК спектр, ν , см^{-1} : 3472, 3215, 3070 с (O–H, N–H), 2254 сл (C≡N), 1686 с (C=O), 1661 с (C=N, C=C). Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: (*E*)-изомер, 3.81 с (3H, MeO), 4.25 с (2H, CH₂CN), 6.92 д (1H, H⁵-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.29 д. д (1H, H⁶-Ar, 3J 8.3, 4J 2.0 Гц), 7.42 д (1H, H²-Ar, 4J 2.0 Гц), 8.00 с (1H, N=CH), 10.30 уш. с (1H, OH), 11.63 уш. с (1H, NH); (*Z*)-изомер, 6.95 д (1H, H⁵-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.30 д. д (1H, H⁶-Ar, 3J 8.3, 4J 2.0 Гц), 7.43 д (1H, H²-Ar, 4J 2.0 Гц), 8.10 с (1H, N=CH), 11.66 уш. с (1H, NH). Часть сигналов не обнаруживается вследствие наложения с сигналами (*E*)-изомера. Исходя из интегральных интенсивностей сигналов, соотношение изомеров составляет (*E*):(*Z*) ~ 4:1. Найдено, %: С 56.59; Н 4.88; N 18.01. C₁₁H₁₁N₃O₃. Вычислено, %: С 56.65; Н 4.75; N 18.02. *M* 233.22.

N'-(4-Гидроксибензилиден)-2-цианоацетогидразид (13г). Выход 36%, бежевый порошок, т. пл. 190–193°C (т. пл. 210–212°C [53]). ИК спектр, ν , см^{-1} : 3260, 3222, 3065 с (O–H, N–H), 2255 сл (C≡N), 1685 с (C=O), 1662 с (C=N, C=C). Спектр ЯМР ^1H , δ , м. д.: (*E*)-изомер, 4.18 с (2H, CH₂CN), 6.88 д (2H, H³H⁵-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.45 д (1H, H²H⁶-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.94 с (1H, N=CH), 9.99 уш. с (1H, OH), 11.60 уш. с (1H, NH); (*Z*)-изомер, 6.90 д (2H, H³H⁵-Ar, 3J 8.3 Гц), 7.40 д (1H, H²H⁶-Ar, 3J 8.3 Гц), 8.06 с (1H, N=CH). Часть сигналов не обнаруживается вследствие наложения с сигналами (*E*)-изомера. Исходя из интегральных интенсивностей сигналов, соотношение изомеров составляет (*E*):(*Z*) ~ 5:1. Найдено, %: С 59.09; Н 4.60; N 20.57. C₁₀H₉N₃O₂. Вычислено, %: С 59.11; Н 4.46; N 20.68. *M* 203.20.

ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ

Левченко Арина Григорьевна, ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-4787-7072>

Дахно Полина Григорьевна, ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-5581-0241>

Чикава Александра Руслановна, ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-8781-2631>

Доценко Виктор Викторович, ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7163-0497>

Аксенов Николай Александрович, ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-7125-9066>

Аксенова Инна Валерьевна, ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-8083-1407>

БЛАГОДАРНОСТЬ

Исследования проведены с использованием оборудования научно-образовательного центра «Диагностика структуры и свойств наноматериалов» и Эколого-аналитического центра Кубанского государственного университета.

ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и администрации Краснодарского края (проект № 20-43-235002 «р_Наставник_Краснодар», а также Министерства образования и науки Российской Федерации (тема 0795-2020-0031).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bondock S., Tarhoni A.E.G., Fadda A.A. // *Arkivoc*. 2006. Vol. ix. P. 113. doi 10.3998/ark.5550190.0007.905
2. Ibrahim M.A., El-Gohary N.M. // *Heterocycles*. 2014. Vol. 89. N 5. P. 1125. doi 10.3987/REV-13-790
3. Soto J.L., Seoane C., Zamorano P., Cuadrado F.J. // *Synthesis*. 1981. N 7. P. 529. doi 10.1055/s-1981-29512
4. Hosseini H., Bayat M. // *RSC Adv*. 2018. Vol. 8. N 48. P. 27131. doi 10.1039/C8RA05690K
5. Abdel Latif F.F., Mekheimer R., Ahmed E.K., Abdel Aleem T.B. // *Pharmazie*. 1993. Vol. 48. N 10. P. 736. doi 10.24355/dbbs.084-201901181427-0
6. Seoane C., Soto J.L., Zamorano P. // *Org. Prep. Proced. Int*. 1984. Vol. 16. N 6. P. 393. doi 10.1080/00304948409458667
7. Ibrahim M.A., Abdel-Rahman R.M., Abdel-Halim A.M., Ibrahim S.S., Allimony H.A. // *J. Braz. Chem. Soc*. 2009. Vol. 20. N 7. P. 1275. doi 10.1590/s0103-50532009000700012
8. Khanzadeh M., Dehghanipour M., Darehkordi A., Rahmani F. // *Can. J. Phys*. 2018. Vol. 96. N 12. P. 1288. doi 10.1139/cjp-2017-0840
9. Assiri M.A., Abdel-Kariem S.M., Ali T.E., Yahia I.S. // *Arkivoc*. 2018. Pt V. P. 240. doi 10.24820/ark.5550190.p010.478
10. Hadi A., Martin N., Seoane C., Soto J.L., Albert A., Cano F. // *J. Heterocycl. Chem*. 1992. Vol. 29. N 5. P. 1229. doi 10.1002/jhet.5570290531
11. Nossier E.S., El-Karim A., Somaia S., Khalifa N.M., El-Sayed A.S., Hassan E.S., El-Hallouty S.M. // *Molecules*. 2018. Vol. 23. N 12. P. 3074. doi 10.3390/molecules23123074
12. Доценко В.В., Хрусталева А.Н., Фролов К.А., Аксенов Н.А., Аксенова И.В., Кривоколыско С.Г. // *ЖОХ*. 2021. Т. 91. № 1. С. 54; Dotsenko V.V., Khrustaleva A.N., Frolov K.A., Aksenov N.A., Aksenova I.V., Krivokolysko S.G. // *Russ. J. Gen. Chem*. 2021. Vol. 91. N 1. P. 44. doi 10.1134/S1070363221010047
13. Abdel-Megid M. // *ХГС*. 2009. № 12. С. 1888; Abdel-Megid M. // *Chem. Heterocycl Compd*. 2009. Vol. 45. N 12. P. 1523. doi 10.1007/s10593-010-0460-y
14. Ali T.E.-S., Ibrahim M.A. // *J. Braz. Chem. Soc*. 2010. Vol. 21. N 6. P. 1007. doi 10.1590/S0103-50532010000600010
15. Ibrahim M.A., Abdel-Hamed M.A., El-Gohary N.M. // *J. Braz. Chem. Soc*. 2011. Vol. 22. N 6. P. 1130. doi 10.1590/S0103-50532011000600019
16. Abdel-Megid M., Ibrahim M.A., Gabr Y., El-Gohary N.M., Mohamed E.A. // *J. Heterocycl. Chem*. 2013. Vol. 3. P. 615. doi 10.1002/jhet.1608
17. Saleh N.M., Abdel-Rahman A.A., Omar A.M., Khalifa M.M., El-Adl K. // *Arch. Pharm*. 2021. Paper e2100085. doi 10.1002/ardp.202100085
18. Keerthy H.K., Mohan S., Basappa, Bharathkumar H., Rangappa S., Svensson F., Bender A., Mohan C.D., Rangappa K.S., Bhatnagar R. // *Chem. Biodivers*. 2019. Vol. 16. N 9. paper e1900234. doi 10.1002/cbdv.201900234
19. Elgemeie G., Altalbawy F., Alfaidi M., Azab R., Hassan A. // *Drug Des. Devel. Ther*. 2017. Vol. 11. P. 3389. doi 10.2147/DDDT.S149615
20. Mohamed K.S., Tawfik E.H., Dardeer H.M., Fadda A.A. // *Acta Chim. Slov*. 2018. Vol. 65. N 4. P. 787. doi 10.17344/acsi.2018.4294
21. Mohareb R.M., Fleita D.H., Sakka O.K. // *Molecules*. 2011. Vol. 16. N 1. P. 16. doi 10.3390/molecules16010016
22. El-Hawash S.A., Abdel Wahab A.E., El-Demellawy M.A. // *Arch. Pharm*. 2006. Vol. 339. N 1. P. 14. doi 10.1002/ardp.200500161
23. Girgis A.S., Barsoum F.F. // *Eur. J. Med. Chem*. 2009. Vol. 44. N 5. P. 1972. doi 10.1016/j.ejmech.2008.09.049
24. Доценко В.В., Кривоколыско С.Г., Семенова А.М. // *ХГС*. 2018. Т. 54. № 11. С. 989; Dotsenko V.V., Krivokolysko S.G., Semenova A.M. // *Chem. Heterocycl.*

- Compd. 2018. Vol. 54. N 11. P. 989. doi 10.1007/s10593-018-2383-y
25. Shaabani A., Hooshmand S.E. // Mol. Divers. 2018. Vol. 22. N 1. P. 207. doi 10.1007/s11030-017-9807-y
26. Доценко В.В., Кривоколыско С.Г., Литвинов В.П. // ХГС. 2007. № 5. С. 716; Dotsenko V.V., Krivokolysko S.G., Litvinov V.P. // Chem. Heterocycl. Compd. 2007. Vol. 43. N 5. P. 599. doi 10.1007/s10593-007-0094-x
27. Доценко В.В., Исмиев А.И., Хрусталева А.Н., Фролов К.А., Кривоколыско С.Г., Чигорина Е.А., Снижко А.П., Громенко В.М., Бушмаринов И.С., Аскеров Р.К., Пехтерева Т.М., Суйков С.Ю., Папаянина Е.С., Мазепа А.В., Магеррамов А.М. // ХГС. 2016. Т. 52. № 7. С. 473; Dotsenko V.V., Ismiev A.I., Khrustaleva A.N., Frolov K.A., Krivokolysko S.G., Chigorina E.A., Snizhko A.P., Gromenko V.M., Bushmarinov I.S., Askerov R.K., Pekhtereva T.M., Suikov S.Yu., Papayanina E.S., Mazepa A.V., Magerramov A.M. // Chem. Heterocycl. Compd. 2016. Vol. 52. N 7. P. 473. doi 10.1007/s10593-016-1918-3
28. Tverdokhlebova N.M., Khoroshilov G.E., Dotsenko V.V. // Tetrahedron Lett. 2014. Vol. 55. P. 6593. doi 10.1016/j.tetlet.2014.10.046
29. Доценко В.В., Чигорина Е.А., Кривоколыско С.Г. // ХГС. 2017. Т. 53. № 5. С. 626; Dotsenko V.V., Chigorina E.A., Krivokolysko S.G. // Chem. Heterocycl. Compd. 2017. Vol. 53. N 5. P. 626. doi 10.1007/s10593-017-2103-z
30. Дядюченко Л.В., Доценко В.В., Муравьев В.С., Дмитриева И.Г., Аксенов Н.А., Аксенова И.В. // Изв. АН. Сер. хим. 2021. № 7. С. 1363; Dyadyuchenko L.V., Dotsenko V.V., Muraviev V.S., Dmitrieva I.G., Akseponov N.A., Akseponova I.V. // Russ. Chem. Bull. 2021. Vol. 70. N 7. P. 1363. doi 10.1007/s11172-021-3224-1
31. Доценко В.В., Беспалов А.В., Русских А.А., Киндуп В.К., Аксенов Н.А., Аксенова И.В., Щербачков С.В., Овчаров С.Н. // ЖОХ. 2021. Т. 91. № 6. С. 823; Dotsenko V.V., Bepalov A.V., Russkikh A.A., Kindop V.K., Akseponov N.A., Akseponova I.V., Shcherbakov S.V., Ovcharov S.N. // Russ. J. Gen. Chem. 2021. Vol. 91. N 6. P. 951. doi 10.1134/S1070363221060013
32. Курскова А.О., Доценко В.В., Фролов К.А., Аксенов Н.А., Аксенова И.В., Щербачков С.В., Овчаров С.Н., Кривоколыско Д.С., Кривоколыско С.Г. // ЖОХ. 2021. Т. 91. № 6. С. 847; Kurskova A.O., Dotsenko V.V., Frolov K.A., Akseponov N.A., Akseponova I.V., Shcherbakov S.V., Ovcharov S.N., Krivokolysko D.S., Krivokolysko S.G. // Russ. J. Gen. Chem. 2021. Vol. 91. N 6. P. 971. doi 10.1134/S1070363221060037
33. Bardasov I.N., Golubev R.V., Ershov O.V., Kayukov Y.S., Nasakin O.E. // Tetrahedron Lett. 2011. Vol. 52. N 37. P. 4724. doi 10.1016/j.tetlet.2011.06.083
34. Bardasov I.N., Mikhailov D.L., Alekseeva A.U., Ershov O.V., Tafenko V.A. // Tetrahedron Lett. 2016. Vol. 57. N 25. P. 2772. doi 10.1016/j.tetlet.2016.05.032
35. Бардасов И.Н., Алексеева А.Ю., Михайлов Д.Л., Ершов О.В., Каюков Я.С. // ЖОХ. 2016. Т. 52. № 9. С. 1374; Bardasov I.N., Alekseeva A.Yu., Mikhailov D.L., Ershov O.V., Kayukov Y.S. // Russ. J. Org. Chem. 2016. Vol. 52. N 9. P. 1365. doi 10.1134/S1070428016090220
36. Bardasov I.N., Mihailov D.L., Alekseeva A.U., Ershov O.V., Nasakin O.E. // Tetrahedron Lett. 2013. Vol. 54. N 1. P. 21. doi 10.1016/j.tetlet.2012.10.015
37. Parthasarathy V., Pandey R., Stolte M., Ghosh S., Castet F., Würthner F., Kumar Das P., Blanchard-Desce M. // Chem. Eur. J. 2015. Vol. 21. N 40. P. 14211. doi 10.1002/chem.201501800
38. Hussein B.R., Moustafa A.H. // Synth. Commun. 2019. Vol. 49. N 18. P. 2401. doi 10.1080/00397911.2019.1626892
39. Aparicio C., Martín N., Quinteiro M., Seoane C., Soto J.L., Valdés J.A., Velázquez S. // J. Chem. Soc. Perkin Trans. 1. 1989. Vol. 11. P. 1975. doi 10.1039/P19890001975
40. Alonso P., Martín-León N., Quinteiro M., Seoane C., Soto J.L. // Liebigs Ann. Chem. 1990. Vol. 1990. N 9. P. 841. doi 10.1002/jlac.1990199001158
41. Аветисян А.А., Каграманян А.А., Маркарян Ш.А., Меликян Г.С. // Арм. хим. ж. 1988. Т. 41. № 6. С. 385
42. Овчаренко В.В., Терентьев П.Б., Аветисян А.А., Каграманян А.А. // ХГС. 1995. № 11. С. 1525; Ovcharenko V.V., Terent'ev P.B., Avetisyan A.A., Kagramanyan A.A. // Chem. Heterocycl. Compd. 1995. Vol. 31. N 11. P. 1323. doi 10.1007/BF01168627
43. Аветисян А.А., Токмаджян Г.Г., Карапетян Л.В., Согомонян С.А. // Арм. хим. ж. 2002. Т. 55. № 4. С. 78.
44. Зеленин К.Н., Олейник С.В., Алексеев В.В., Потехин А.А. // ЖОХ. 2001. Т. 71. № 7. С. 1182; Zelenin K.N., Oleinik S.V., Alekseev V.V., Potekhin A.A. // Russ. J. Gen. Chem. 2001. Vol. 71. N 7. P. 1116. doi 10.1023/A:1013126309514
45. Fiszer-Maliszewska L., Peczyńska-Czoch W., Wiczorek J., Mordarski M., Balicki R., Nantka-Namirski P. // Arch. Immunol. Ther. Exp. 1987. Vol. 35. N 2. P. 225.
46. Shawali A.S., Farghaly T.A., Hussein S.M., Abdalla M.M. // Arch. Pharm. Res. 2013. Vol. 36. N 6. P. 694. doi 10.1007/s12272-013-0082-x
47. Hanna M.L., Tarasow T.M., Perkins J. // Bioorg. Chem. 2007. Vol. 35. N 1. P. 50. doi 10.1016/j.bioorg.2006.07.004
48. Gorobets N.Y., Yousefi B.H., Belaj F., Kappe C.O. // Tetrahedron. 2004. Vol. 60. N 39. P. 8633. doi 10.1016/j.tet.2004.05.100

49. *Junek H., Wolny B.* // *Monatsh. Chem.* 1976. Bd 107. N 4. S. 999. doi 10.1007/BF00904489
50. *Gazit A., Yaish P., Gilon C., Levitzki A.* // *J. Med. Chem.* 1989. Vol. 32. N 10. P. 2344. doi 10.1021/jm00130a020
51. *Алексеева А.Ю., Михайлов Д.Л., Бардасов И.Н., Ершов О.В., Насакин О.Е., Лыщиков А.Н.* // *ЖОрХ.* 2014. Т. 50. № 2. С. 251; *Alekseeva A.Yu., Mikhailov D.L., Bardasov I.N., Ershov O.V., Nasakin O.E., Lyshchikov A.N.* // *Russ. J. Org. Chem.* 2014. Vol. 50. N 2. P. 244. doi 10.1134/S1070428014020171
52. *Shaik K., Deb P.K., Mailavaram R.P., Chandrasekaran B., Kachler S., Klotz K.-N., Jaber A.M.Y.* // *Chem. Biol. Drug Design.* 2019. Vol. 94. N 2. P. 1568. doi 10.1111/cbdd.13528
53. *Chakravarty D., Bose A., Bose S.* // *J. Pharm. Sci.* 1964. Vol. 53. N 9. P. 1036. doi 10.1002/jps.2600530911

Methylene Components Exchange in the Reaction of Cyanoacetohydrazide with 2-Amino-4-arylbuta-1,3-diene-1,1,3-tricarbonitriles

A. G. Levchenko^a, P. G. Dahno^a, A. R. Chikava^a, V. V. Dotsenko^{a,b,*},
N. A. Aksenov^b, and I. V. Aksenova^b

^a *Kuban State University, Krasnodar, 350040 Russia*

^b *North Caucasus Federal University, Stavropol, 355009 Russia*

*e-mail: victor_dotsenko_@mail.ru

Received August 28, 2021; revised September 18, 2021; accepted September 19, 2021

2-Amino-4-arylbuta-1,3-diene-1,1,3-tricarbonitriles obtained by Knoevenagel condensation between aldehydes and malononitrile dimer were reacted with cyanoacetohydrazide in the presence of bases. *N*-Arylidene-2-cyanoacetylhydrazides were isolated instead of the expected heterocyclization products of the pyridine series.

Keywords: cyanoacetohydrazide, malononitrile dimer, Knoevenagel condensation, cyanoacetylhydrazones