

РЕАКЦИЯ БИДЖИНЕЛЛИ В СИНТЕЗЕ РЕГИОИЗОМЕРНЫХ 5,6-ДИГИДРО-4*H*-БЕНЗО[4,5]-ИМИДАЗО[1,2-*a*]ПИРАНОПИРИМИДИН-4-ОНОВ

© 2020 г. И. В. Каневская*, А. С. Бондарцова, О. В. Федотова

ФГБОУ ВО «Саратовский национальный исследовательский государственный университет им. Н.Г. Чернышевского»,
Институт химии, 410012, Россия, г. Саратов, ул. Астраханская 83

*e-mail: irinastrashilina@mail.ru

Поступила в редакцию 04 июля 2020 г.

После доработки 16 июля 2020 г.

Принята к публикации 20 июля 2020 г.

Изучен модифицированный вариант трехкомпонентной реакции Биджинелли с участием 4-гидроксиг-6-метил-2*H*-пиран-2-она, ароматических альдегидов и 2-аминобензимидазола при термической и микроволновой активации. В зависимости от характера заместителей в альдегиде получены ангулярно-сочлененные 5,6-дигидро-4*H*-бензо[4,5]имидазо[1,2-*a*]пиранопиримидин-4-оны или арилбис(4-гидроксиг-6-метил-2-оксо-2*H*-пиран-3-ил)метаниды 2-амино-1*H*-бензо[*d*]имидазолия. Предложен вероятный механизм образования продуктов в исследуемых условиях.

Ключевые слова: 2*H*-пиран-2-оны, 2-аминобензимидазол, *one-pot* взаимодействия, реакция Биджинелли, бензоимидазопиранопиримидиноны.

DOI: 10.31857/S0514749220100134

2*H*-Пиран-2-оны, проявляя широкий спектр биологической активности, находят свое применение как в медицине, так и в сельском хозяйстве. Они обладают противогрибковой [1], противоопухолевой [2], антимикробной [3], цито-, фито- и нейротоксической активностью [4], а также являются регуляторами роста растений [5]. 3-Замещенные 4-гидроксиг-2*H*-пиран-2-оны являются хорошими соединениями-платформами для синтеза различных гетероциклических, в том числе, гибридных структур.

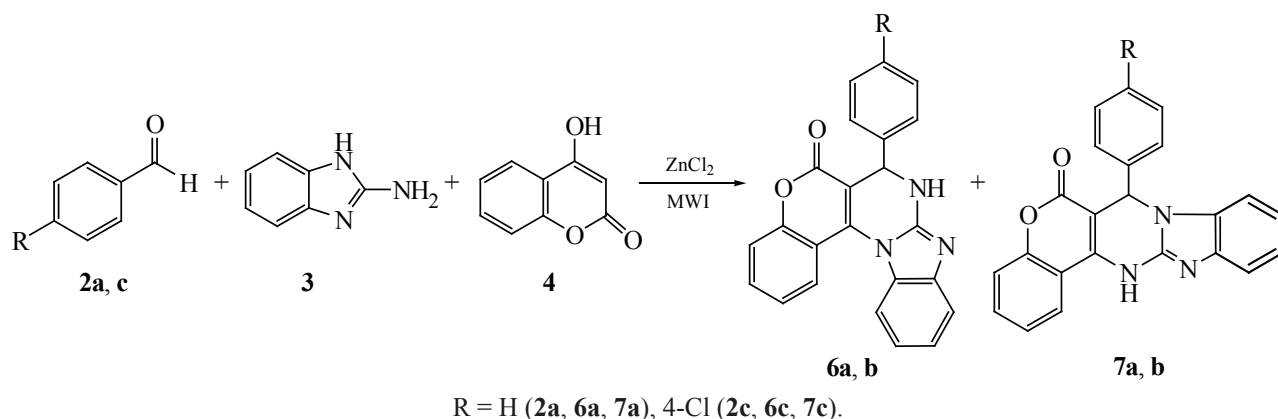
Ранее было выявлено, что 4-гидроксиг-2*H*-пиран-2-оны и их бензоаналоги могут быть использованы для синтеза гибридных структур с использованием стратегии мультикомпонентных *one-pot* реакций Биджинелли и Ганча [6–8].

Настоящая работа посвящена исследованию модифицированного варианта трехкомпонентной реакции Биджинелли с участием циклического кетоэфира 4-гидроксиг-6-метил-2*H*-пиран-2-она **1**,

ароматических альдегидов **2a–d** и гетероциклического полиазануклеофила – 2-аминобензимидазола **3**. Последний ранее вводился в эту реакцию с использованием бензаннелированного аналога эфира **1** – 4-гидроксиг-2*H*-хромен-2-она **4** [6, 9]. При этом была установлена возможность образования и разделения региоизомерных хроменопиримидобензимидазолонов – ангулярных 7-(*R*)-фенил-7,8-дигидро-6*H*-хромено[3',4':5,6]пиримидо[1,2-*a*]бензимидазол-6-онов **6a, b** и линейных 7-(4*R*)-фенил-7,14-дигидро-6*H*-хромено[4',3':4,5]пиримидо[1,2-*a*]бензимидазол-6-онов **7a, b** (схема 1), отличающихся сочленением гетерофрагментов [6]. В более ранних работах [9] найдены условия хемоселективного синтеза лишь линейной региоформы продукта реакции Биджинелли для исследуемых субстратов – соединений **7a, b**.

В настоящем исследовании установлено, что взаимодействие эфира **1**, ароматических альдегидов **2** и полиазануклеофила **3** в отличие от его

Схема 1.



бензаннелированного аналога **4** может приводить как к классическим гибридам по Биджинелли – замещенным бензоимидазопиранопиримидинонам, так и к другим системам по конкурирующему механизму.

Так, при *one-pot* введении в реакцию эфира **1**, бензальдегида **2a** и полиазанукеофила **3** для термического и микроволнового вариантов, вне зависимости от способа активации реакционной смеси, из двух возможных региоизомеров возникает лишь ангулярный 2-метил-5-фенил-5,6-дигидро-4*H*-бензо[4,5]имидазо[1,2-*a*]пиранопиримидин-4-он (**8**) с выходами 58 и 83% соответственно (схема 2).

Продукт превращения **8** выделен в виде моногидрохлорида, что можно объяснить высокой основностью имидазопиримидинового фрагмента и использованием в качестве катализаторов в термическом варианте реакции концентрированной хлороводородной кислоты, а в микроволновом варианте – спиртового раствора хлорида цинка, претерпевающего в условиях эксперимента, вероятно, частичный сольволиз до хлороводородной кислоты.

Использование 4-метоксибензальдегида **2b** и, таким образом, введение электронодонорного заместителя в ароматическое ядро альдегида мало отражается на направлении протекания превраще-

Схема 2.

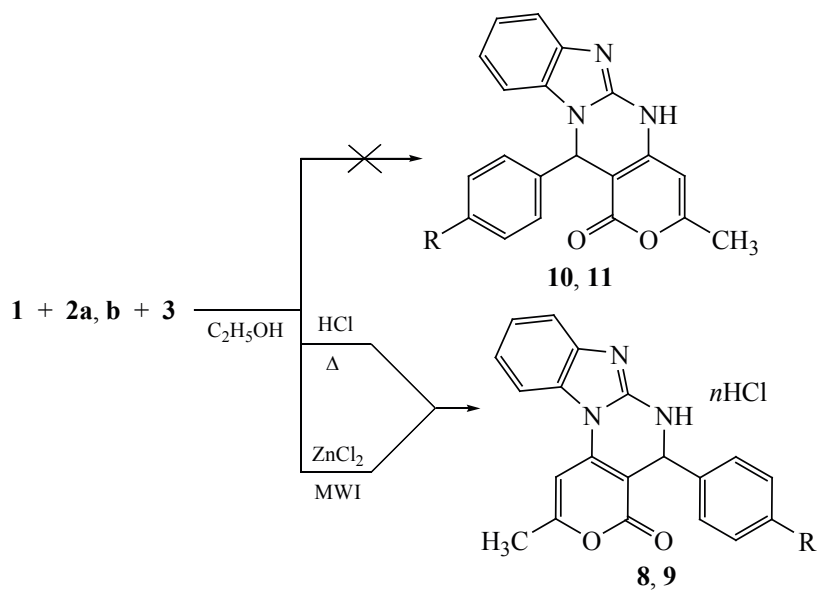
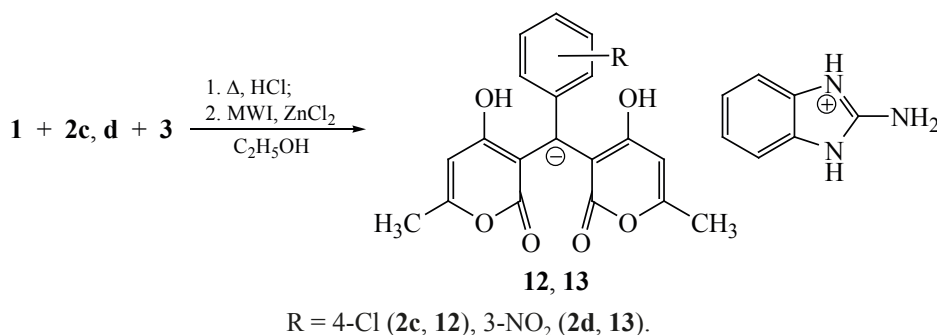


Схема 3.



ния и приводит к образованию аналога ангулярного региоизомера **8** – 5-(4-метоксифенил)-2-метил-5,6-дигидро-4*H*-бензо[4,5]имидазо[1,2-*a*]пирано[3,4-*e*]пиримидин-4-она **9**, выделенного нами в условиях синтеза в виде дигидрохлорида.

Использование 4-хлорфенильного, в меньшей степени донорного заместителя, изменяет направление превращения и приводит к ассоциату – (4-хлорфенил)бис(4-гидрокси-6-метил-2-оксо-2*H*-пиран-3-ил)метаниду 2-амино-1*H*-бензо[*d*]имидазолия (**12**) (схема 3).

Подобное наблюдалось и в ранее исследованном превращении с участием 4-гидрокси-2*H*-хромен-2-она, бензальдегида и 2-аминобензимидазола, где структура образующейся соли была установлена по данным РСА [10]. Это говорит об общем характере поведения бисаддуктов, фрагментарно содержащих 4-гидроксипиран-2-оновое кольцо, в том числе 5,6-бензаннелированных.

Аналогичную картину дает и 3-нитробензальдегид **2d**, электроноакцепторные свойства которого, вероятно, способствуют облегчению формирования бисаддукта **13** за счет увеличения частичного положительного заряда на электрофильном атоме углерода халконового интермедиата.

Вероятная схема образования гибридных систем **8**, **9** и ассоциатов **12**, **13** может быть представлена следующим образом (схема 4).

Формирование бензоимидазопиранопиримидинов **8**, **9** в условиях трехкомпонентной реакции Биджинелли вероятно по двум альтернативным направлениям. Первое предполагает первоначальное взаимодействие альдегида **2** с эфиром **1** с формированием халкона **14** (путь **A**), который далее по

схеме под действием азануклеофила **3** преобразуется в конечные продукты. Путь **B** предполагает взаимодействие на первой стадии процесса альдегида с азакомпонентой, приводящее к образованию основания Шиффа **16**, которое далее, атакуясь эфиром **1**, приводит к гибридам **8**, **9**. Альтернативное направление, приводящее к возникновению линейных региоизомеров **10**, **11**, в настоящих условиях не реализуется.

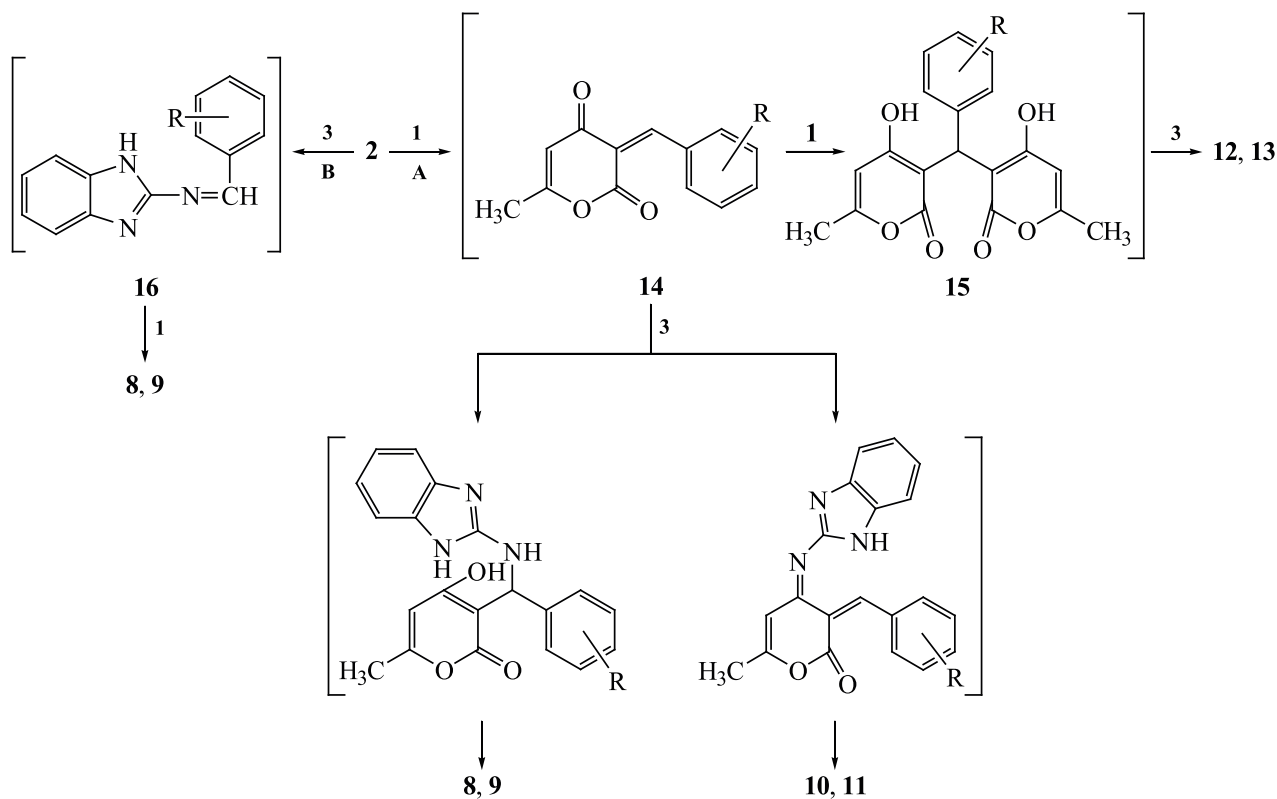
Ассоциаты **12**, **13** формируются в результате конденсации халкона **14** со второй молекулой эфира **1** по Михаэлю вне зависимости от способа активации реакционной смеси через известный аддукт **15** [7, 8, 11–13]. Эти продукты можно рассматривать как результат конкурирующего процесса стабилизации халконов как интермедиатов превращения.

Строение соединений **8**, **9**, **12**, **13** установлено на основании комплексной оценки данных ЯМР ¹H, ¹³C спектроскопии с привлечением методов гетероядерной корреляционной спектроскопии HSQC, HMBC и ядерного эффекта Оверхаузера в формате гомоядерной одно- и двумерной корреляции NOESY.

Так, в спектре ЯМР ¹H бензоимидазопиранопиримидинона **8** присутствуют синглеты: трех протонов метильной группы при 2.03 м.д., винильного протона пиран-2-онового фрагмента при 5.74 м.д., метинового протона при 6.16 м.д. Мультиплет ароматических протонов проявляется в области 7.01–7.38 м.д., протону вторичной аминогруппы соответствует уширенный синглет при 9.07 м.д.

В спектре двумерной гетероядерной корреляции HMBC соединения **8** обнаружены кросс-пики 9.07/113.3 м.д. и 9.07/127.8 м.д., отвечающие вза-

Схема 4.



имодействию протона вторичной аминогруппы с атомами углерода ароматического фрагмента и C₃ пиранонового кольца соответственно. Отсутствие иных корреляционных сигналов NH-протона в спектре HMBC позволяет предположить присутствие ангулярного сочленения пиримидобензимидазольного и пиран-2-онового гетерофрагментов. Подтверждением этому может служить совокупность данных гомоядерной корреляционной спектроскопии с применением ядерного эффекта Оверхаузера в формате NOESY.

Так, в спектре NOESY соединения **8** наблюдаются кросс-пики при 9.07/7.26 м.д., и 5.74/7.14 м.д., что говорит о пространственной сближенности ароматических протонов с протоном аминогруппы в первом случае и винильным протоном пиран-2-онового фрагмента во втором. Данные пространственные взаимодействия также могут свидетельствовать об ангулярной структуре. Дополнительным подтверждением этому является отсутствие в спектре NOESY корреляции аминогруппы с винильным протоном как в общем виде, так и при селективном возбуждении последнего в рамках метода NOESY1D.

Спектральная картина метоксифенилзамещенного гибрида **9** аналогична таковой для незамещенного аналога **8**. Следует отметить лишь смещение сигнала NH-протона в более сильное поле (7.62 м.д) и увеличение его интегральной интенсивности до двух протонов, что может быть обусловлено тем, что основная часть молекулы ассоциирована с двумя молекулами хлороводородной кислоты.

В спектре ЯМР ¹H ассоциата **12** отмечены синглеты: шести метильных протонов при 2.00 м.д., двух винильных протонов при 5.63 м.д., метинового протона при 5.86 м.д. Ароматическим протонам 4-хлорфенильного фрагмента соответствуют два дублета при 7.64 м.д. (*J* 8.0 Гц) и 7.89 м.д. (*J* 8.0 Гц).

Катион 2-аминобензимидазолия возникает путем протонирования одного из эндоциклических атомов азота и стабилизируется за счет делокализации электронной плотности, что согласуется с квантовохимическим B3LYP/6-311++G(d,p) расчётом его геометрии и электронной структуры [10]. Наличие данного катионного фрагмента в спектре

ЯМР ^1H подтверждается присутствием уширенного синглета двух протонов экзоциклической аминогруппы при 8.26 м.д., мультиплета четырех ароматических протонов в области 7.11–7.33 м.д., а также наличием в спектре соединения **12** уширенного синглета четырех протонов при 12.36 м.д., который включает в себя сигнал двух протонов гидроксильных групп биспирановой системы и резонанс протонов эндоциклических аминогрупп 2-аминобензимидазольной части. В пользу ионной структуры выделенного соединения также может говорить уширение синглета метинового протона и его малая интегральная интенсивность (0.4), что является следствием высокой подвижности и повышения СН-кислотности.

Спектральная картина для нитрофенилзамещенного ассоциата **13** аналогична таковой для системы **12**.

Экспериментальные данные о региоселективности рассмотренных превращений с участием в качестве карбонильной компоненты бензальдегида и его 4-метоксизамещенного аналога не позволяют однозначно определить путь превращения субстратов. Характер продуктов реакции с участием 4-хлор- и 3-нитробензальдегидов дает основание для утверждения о протекании этих превращений по пути с формированием халкона и его преобразованием за счет конкурентной конденсации Михаэля в арилметиленис-4-гидрокси-6-метил-2*H*-пиран-2-оны **15**. Последние могут депротонироваться до анионов, стабилизирующихся ассоциацией с катионом 2-аминобензимидазолия, что и наблюдается экспериментально.

Образование исключительно ангулярных изомеров в случае реализации пути **A** можно объяснить, на наш взгляд, тем, что арилиденный фрагмент, вероятно, имеет более активный электрофильный центр, чем карбонильный атом углерода, и именно он подвергается атаке экзоциклической аминогруппой азануклефила.

Однако, несмотря на вышеперечисленные данные, исключить возможность реализации, «иминного» механизма нельзя.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Спектры ЯМР ^1H , ^{13}C регистрировали на спектрометре Varian 400 (400 и 100 МГц соответ-

ственно) в ДМСО- d_6 , внутренний стандарт тетраметилсилан. Элементный анализ проводили на программно-аппаратном анализаторе Vario Micro Cube. Температуру плавления определяли капиллярным методом. Контроль за ходом реакции и чистотой полученных соединений осуществляли методом тонкослойной хроматографии на пластинках Silufol UV-254, элюент ацетон–этилацетат–*n*-гексан (1:1:3), проявитель – пары иода.

Воздействие микроволнового излучения обеспечивалось автоматической микроволновой установкой для синтеза NOVA II, рабочая температура 180–190°C.

Общая методика. *а.* В круглодонную колбу объемом 50 мл, снабженную обратным холодильником, помещали 25 мл этанола, в котором при нагревании растворяли 0.5 г (4 ммоль) эфира **1**, добавляли 0.53 г (4 ммоль) азануклефила **3**, 4 ммоль альдегида **2**, 0.1–0.2 мл концентрированной хлороводородной кислоты и нагревали при температуре 78°C. По окончании реакции смесь упаривали на воздухе, оставшиеся кристаллы промывали водой и гексаном, сушили в вакууме.

б. В фарфоровый тигель помещали 0.5 г (4 ммоль) эфира **1**, 0.53 г (4 ммоль) азануклефила **3**, 4 ммоль альдегида **2** и 0.1–0.2 мл раствора хлорида цинка в этаноле (0.1 г/мл). Смесь гомогенизировали и подвергали воздействию микроволнового излучения мощностью 600 Вт. По окончании реакции смесь растирали, промывали водой и гексаном, сушили в вакууме.

2-Метил-5-фенил-5,6-дигидро-4*H*-бензо[4,5]-имидазо[1,2-*a*]пиранопиримидин-4-она гидроклорид (8**).** Синтез проводили по методу *а* с использованием 0.42 г (4 ммоль, 0.41 мл) альдегида **2a** в течение 12 ч. Выход 0.85 г (58%), бесцветные кристаллы, т.пл. 201–202°C.

По методу *б* синтез проводили с использованием 0.42 г (4 ммоль, 0.41 мл) альдегида **2a** в течение 30 мин. Выход 1.21 г (83%), бесцветные кристаллы, т.пл. 201–202°C. Спектр ЯМР ^1H (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 2.03 с (3H, CH₃), 5.74 с (1H, =CH), 6.16 с (1H, CH), 7.01–7.38 м (9H_{аром}), 9.07 уш.с (1H, NH). Спектр ЯМР ^{13}C (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 19.2 (C¹³), 35.1 (C⁵), 105.3 (C¹), 109.6 (C^{4a}), 121.1, 121.4, 126.9, 127.3, 127.9, 128.2, 128.6, 139.5, 139.7,

143.3, 146.0, 146.3 ($C_{аром}$), 144.3 (C^2), 146.8 (C^{12a}), 159.6 (C^{6a}), 162.7 (C^4). Найдено, %: С 65.81; Н 4.68; Cl 10.04; N 11.65. $C_{20}H_{16}ClN_3O_2$. Вычислено, %: С 65.67; Н 4.41; Cl 9.69; N 11.49.

5-(4-Метоксифенил)-2-метил-5,6-дигидро-4H-бензо[4,5]имидазо[1,2-*a*]пирано[3,4-*e*]пиримидин-4-она дигидрохлорид (9). Синтез проводили по методу *a* с использованием 0.54 г (4 ммоль, 0.49 мл) альдегида **2b** в течение 50 ч. Выход 0.62 г (36%), желтые кристаллы, т.пл. 175–176°C.

По методу *b* синтез проводили с использованием 0.54 г (4 ммоль, 0.49 мл) альдегида **2b** в течение 1 ч 25 мин. Выход 1.12 г (83%), желтые кристаллы, т.пл. 175–176°C. Спектр ЯМР 1H (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 2.03 с (3H, CH_3), 3.84 с (3H, OCH_3), 5.58 с (1H, =CH), 5.79 с (1H, CH), 6.65–7.24 м ($8H_{аром}$), 7.62 уш.с (2H, NH). Спектр ЯМР ^{13}C (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 18.8 (C^{13}), 34.3 (C^5), 56.0 (C^{14}), 105.2 (C^1), 110.3 (C^{4a}), 126.8, 127.0, 127.4, 127.3, 127.9, 131.8, 131.9, 139.3, 139.4, 139.6, 141.1, 146.2, 146.8 ($C_{аром}$), 145.3 (C^2), 147.2 (C^{12a}), 158.4 (C^{6a}), 163.2 (C^4). Найдено, %: С 58.43; Н 4.86; Cl 16.60; N 9.62. $C_{21}H_{19}Cl_2N_3O_3$. Вычислено, %: С 58.34; Н 4.43; Cl 16.40; N 9.72.

(4-Хлорфенил)бис(4-гидрокси-6-метил-2-оксо-2H-пиран-3-ил)метанид 2-амино-1H-бензо[*d*]имидазолия (12). Синтез проводили по методу *a* с использованием 0.56 г (4 ммоль) альдегида **2c** в течение 8 ч. Выход 0.66 г (65%), желтые кристаллы, т.пл. 196–197°C.

По методу *b* синтез проводили с использованием 0.56 г (4 ммоль) 4-альдегида **2c** в течение 65 мин. Выход 0.76 г (75%), желтые кристаллы, т.пл. 196–197°C. Спектр ЯМР 1H (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 2.00 с (6H, CH_3), 5.57 с (2H, =CH), 5.79 с (0.4H, CH), 6.90–7.90 м ($8H_{аром}$), 8.26 уш.с (2H, NH_2), 12.32 уш.с (4H, NH, OH). Спектр ЯМР ^{13}C (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 19.2, 19.3 (C^7 , C^7), 35.3 (C^*), 105.1, 105.5 (C^5 , C^5), 120.7, 127.0, 127.2, 128.9, 134.4, 134.9, 138.7, 139.0, 143.2, 146.7, 147.0, 148.4 ($C_{аром}$), 141.8, 142.3 (C^6 , C^6), 149.1, 149.6 (C^3 , C^3), 157.4 ($C^{2''}$), 159.3, 159.8 (C^2 , $C^{2'}$), 166.4, 166.6 (C^4 , C^4). Найдено, %: С 61.08; Н 3.98; Cl 9.81; N 7.80. $C_{26}H_{22}ClN_3O_6$. Вычислено, %: С 61.47; Н 4.37; Cl 10.04; N 8.26.

(3-Нитрофенил)бис(4-гидрокси-6-метил-2-оксо-2H-пиран-3-ил)метанид 2-амино-1H-бен-

зо[*d*]имидазолия (13). Синтез проводили по методу *a* с использованием 0.60 г (4 ммоль) альдегида **2d** в течение 3 ч. Выход 0.79 г (76%), желтые кристаллы, т.пл. 178–179°C.

По методу *b* синтез проводили с использованием 0.60 г (4 ммоль) альдегида **2d** в течение 45 мин. Выход 0.91 г (88%), желтые кристаллы, т.пл. 178–179°C. Спектр ЯМР 1H (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 2.03 с (6H, CH_3), 5.60 с (2H, =CH), 5.91 с (0.5H, CH), 6.68–8.50 м ($8H_{аром}$), 8.65 уш.с (2H, NH_2), 11.86 уш.с (4H, NH, OH). Спектр ЯМР ^{13}C (ДМСО- d_6), δ , м.д.: 19.7, 19.9 (C^7 , C^7), 34.6 (C^*), 103.2, 103.4 (C^5 , C^5), 123.1, 123.3, 127.5, 127.7, 129.5, 129.8, 131.4, 131.7, 139.5, 142.5, 142.8, 145.1 ($C_{аром}$), 143.6, 144.0 (C^6 , C^6), 141.4, 1491.7 (C^3 , C^3), 158.7 ($C^{2''}$), 159.8, 160.2 (C^2 , $C^{2'}$), 166.1, 166.4 (C^4 , C^4). Найдено, %: С 59.80; Н 3.93; N 10.50. $C_{26}H_{22}N_4O_8$. Вычислено, %: С 60.23; Н 4.28; N 10.81.

ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 20-03-00446).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Altomare C., Pengue R., Favilla M., Evidente A., Visconti A. *J. Agric. Food. Chem.* **2004**, 52, 2997–3001. doi 10.1021/jf035233z
- Kondoh M., Usui T., Kobayashi S., Tsuchiya K., Nishikawa K., Nishikiori T., Mayumi T., Osada H. *Cancer Lett.* **1998**, 126, 29–32. doi 10.1016/s0304-3835(97)00528-4
- Moreno-Manas M.M., Pleixats R. *Adv. Heterocycl. Chem.* **1992**, 53, 1–84. doi 10.1016/s0065-2725(08)60861-2
- Altomare C., Perrone G. *J. Nat. Prod.* **2000**, 63, 1131–1135. doi 10.1021/np000023r
- Goel A., Ram V.J. *Tetrahedron.* **2009**, 65, 7865–7913. doi 10.1016/j.tet.2009.06.031
- Мажукина О.А., Платонова А.Г., Федотова О.В., Васин В.А. *ЖОрХ.* **2015**, 51, 709–713. [Mazhukina O.A., Platonova A.G., Fedotova O.V., Vasin V.A. *Russ. J. Org. Chem.* **2015**, 51, 691–696.] doi 10.1134/s107042801505019x

7. Страшилина И.В., Мажукина О.А., Федотова О.В. *ЖОрХ*. **2018**, *54*, 103–106. [Strashilina I.V., Mazhukina O.A., Fedotova O.V. *Russ. J. Org. Chem.* **2018**, *54*, 102–106.] doi 10.1134/s1070428018010098
8. Страшилина И.В., Арзымова Е.М., Федотова О.В. *ЖОрХ*. **2018**, *54*, 1162–1167. [Strashilina I.V., Arzyamova E.M., Fedotova O.V. *Russ. J. Org. Chem.* **2018**, *54*, 1173–1178.] doi 10.1134/S1070428018080092
9. Heravi M.M., Saeedi M., Beheshtiha Y.S., Oskooie H.A. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2011**, *47*, 737–744. doi 10.1007/s10593-011-0828-7
10. Панкратов А.Н., Федотова О.В., Озерова А.Г., Мажукина О.А., Страшилина И.В. *ЖОрХ*. **2016**, *52*, 1338–1346. [Pankratov A.N., Fedotova O.V., Ozerova A.G., Mazhukina O.A., Strashilina I.V. *Russ. J. Org. Chem.* **2016**, *52*, 1326–1334.] doi 10.1134/s107042801609013x
11. Cervera M., Moreno-Manas M., Pleixats R. *Tetrahedron*. **1990**, *46*, 7885–7892. doi 10.1016/s0040-4020(01)90086-9
12. March de P., Moreno-Manas M., Pi R., Trius A. *J. Heterocycl. Chem.* **1982**, *19*, 335–336. doi 10.1002/jhet.5570190223
13. March de P., Moreno-Manas M., Roca J.L. *J. Heterocycl. Chem.* **1984**, *21*, 1371–1372. doi 10.1002/jhet.5570210525

Biginelli Reaction in the Synthesis of Regioisomeric 5,6-Dihydro-4H-benzo[4,5]imidazo[1,2-a]pyranopyrimidine-4-ones

I. V. Kanevskaya*, A. S. Bondartsova, and O. V. Fedotova

Institute of Chemistry, Saratov State University, 410012, Russia, Saratov, ul. Astrakhanskaya 83

**e-mail: irinastrashilina@mail.ru*

Received July 4, 2020; revised July 16, 2020; accepted July 20, 2020

A modified variant of the Biginelli ternary reaction with the participation of 4-hydroxy-6-methyl-2H-pyran-2-one, aromatic aldehydes and 2-aminobenzimidazole was studied under thermal and microwave activation. Depending on the nature of the substituents in the aldehyde, angularly-joined 5,6-dihydro-4H-benzo[4,5]-imidazo[1,2-a]pyranopyrimidin-4-ones or arylbis(4-hydroxy-6-methyl-2-oxo-2H-pyran-3-yl)methanides of 2-amino-1H-benzo[d]imidazolium. A probable mechanism of product formation under the studied conditions is proposed.

Keywords: 2H-pyran-2-ones, 2-aminobenzimidazole, one-pot interaction, Biginelli reaction, benzoimidazopyranopyrimidinones