

НАПРАВЛЕННЫЙ СИНТЕЗ 2-(1H-ПИРАЗОЛ-4-ИЛ)-1H-БЕНЗИМИДАЗОЛОВ

© 2022 г. А. А. Шатрова*

ФГБУН «Иркутский институт химии им. А.Е. Фаворского СО РАН», Россия, 664033 Иркутск, ул. Фаворского, 1
*e-mail: alx_shatrova@irioch.irk.ru

Поступила в редакцию 22.11.2021 г.

После доработки 10.12.2021 г.

Принята к публикации 16.12.2021 г.

One pot конденсация пиразол-4-карбальдегидов с *o*-фенилендиамином в присутствии триметилхлорсилана (пиридин, 90°C, воздух окружающей среды) завершается образованием малодоступных до настоящего времени 2-(1H-пиразол-4-ил)-1H-бензимидазолов с хорошими выходами.

Ключевые слова: бензимидазолы, пиразол-4-карбальдегиды, *o*-фенилендиамин, триметилхлорсилан, окислительная конденсация

DOI: 10.31857/S0514749222060076, **EDN:** CXAXFA

ВВЕДЕНИЕ

Бензимидазольная гетероциклическая система является важным широко распространенным и привилегированным фармакофором в медицинской химии. Производные бензимидазола известны как противомикробные, противотуберкулезные, противораковые соединения, обладают антигипертензивной, противоязвенной, антипролиферативной и противопаразитарной активностью [1–4]. В то же время вызывают повышенный интерес соединения пиразольного ряда, поскольку входят в состав многих лекарственных средств, обладающих противовоспалительным, противоабетическим, анальгетическим, противоопухолевым и другими видами фармакологического действия [5, 6]. Активно и разносторонне изучается биологическая активность малых молекул, содержащих оба гетероциклических фрагмента [7, 8], и, несомненно, разработка подходов к новым пиразол-бензимидазолам является актуальной задачей.

Традиционно бензимидазолы могут быть получены реакцией 1,2-диаминоаренов с карбоновыми кислотами, нитрилами и *орто*-эфирами в жестких безводных условиях с применением в качестве катализаторов кислот, таких как полифосфорная,

борная или *para*-толуолсульфокислота, при использовании же в реакции альдегидов требуется дальнейшее окисление промежуточных имидазолидинов [9]. Известны методы с использованием кислот Льюиса, неорганических глин, гексафторалюмината натрия, цеолита HY, систем иод-*t*-бутилгидропероксид, трифторуксусная кислота-диметилсульфоксид [10–12]. В литературе были предложены такие методики, как катализируемое переходными металлами C–N сочетание *N*-(*орто*-галоарил)амидинов либо *N*-(*орто*-галоарил)амидов [13, 14], катализируемое иодбензолом C–N аминирование *N*-замещенных амидинов [15], а также рассматривается применение различных нанокompозитных катализаторов, таких как Al₂O₃/CuI/PANI [16] или CoFe₂O₄/SiO₂/NH₂/Бигуанидин/SO₃H [17].

Несмотря на достаточное разнообразие, эти методы имеют определенные ограничения, такие как жесткие условия реакции, дорогостоящие токсичные металлсодержащие окислители и реагенты. Следовательно, синтез биологически важных азотсодержащих гетероциклов с использованием мягких условий реакции и недорогих реагентов по-прежнему актуален.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Триметилхлорсилан, как известно, выступает в качестве промотора и способствует протеканию разнообразных реакций конденсации. Ранее [18] было установлено, что добавление триметилхлорсилана в реакцию тио- и селенацетализации альдегидов гетероциклического ряда облегчает протонирование карбонильной группы, что способствует протеканию процесса при комнатной и пониженной ($-5-0^{\circ}\text{C}$) температурах. Кроме того, Me_3SiCl является водоотнимающим агентом, эффективно связывающим выделяющуюся в ходе реакции воду, способствуя селективному образованию 1,3-дитианов, дитиоланов и 1,3-диселенанов [19].

Интересно, что, в отличие от известных [20] реакций 2-меркаптоэтанола или 3-меркаптопропан-1-ола с альдегидами алифатического и ароматического рядов в присутствии трифторида бора, трифлата скандия или *p*-толуолсульфокислоты, приводящих к 1,3-оксатиоланам и 1,3-оксатианам [21], взаимодействие пиразол-4-карбальдегидов с 2-меркаптоэтанолами в присутствии Me_3SiCl направлено на связывание 2 молекул меркаптоэтанола с образованием продуктов дитиоацетализации даже при эквимольном соотношении реагентов [22]. Так, в реакции пиразолкарбальдегидов с 2-меркаптоэтанолами (эквимольное соотношение реагентов, 4-кратный мольный избыток Me_3SiCl , комнатная температура) неожиданно образуются гидрохлориды открытоцепных бис(2-гидроксиэтил)дитиоацеталей с примесью $\approx 20-30\%$ 4-(1,3-оксатиолан-2-ил)пиразолов [22]. Таким образом, строение продуктов реакции карбальдегидов пиразольного ряда с нуклеофилами не всегда является очевидным.

В продолжение исследований реакций 4-формилпиразолов с различными бинуклеофилами

(сульфанил-, селанил-, аминспиртами) [23, 24] в настоящей работе осуществлена оценка возможности проведения синтеза пиразолилбензимидазолов *one pot* под действием триметилхлорсилана. В литературе нами найдено лишь несколько сообщений о синтезе 2-(пиразол-4-ил)бензимидазолов конденсацией *o*-фенилендиамин с *N*-фенил-1*H*-пиразол-4-карбальдегидами, в которых предлагается использование хлорида цинка [25], трис(пентафторфенил)борана [26], цериевой аммиачной селитры с перекисью водорода в качестве окислителя [27]. Понятно, что двустадийность метода затрудняет получение целевых бензимидазолов, их выделение и очистку, а также приводит к увеличению трудоемкости процесса.

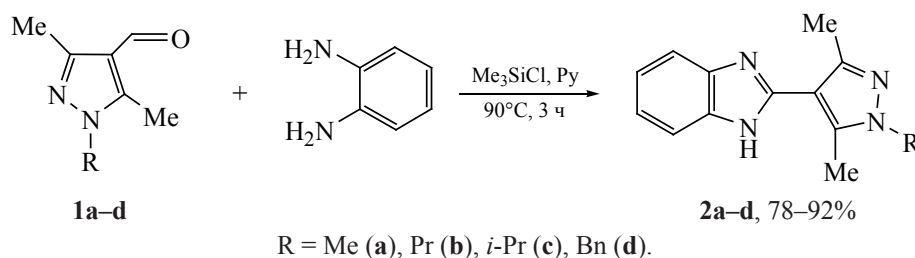
В настоящей работе показано, что взаимодействие *o*-фенилендиамин с альдегидами **2a-d** в присутствии эквимольного количества триметилхлорсилана в растворе пиридина приводит к бисгетероциклическим соединениям – неизвестным ранее 2-(1*H*-пиразол-4-ил)-1*H*-бензимидазолам **2a-d** с хорошими выходами (схема 1).

При этом процесс конденсации осуществляется в одну стадию и не требует дополнительного применения какого-либо окислителя.

С целью оптимизации условий синтеза 2-замещенных бензимидазолов **2a-d** в качестве модельной реакции нами было изучено взаимодействие *o*-фенилендиамин с 3,5-диметил-1-бензил-1*H*-пиразол-4-карбальдегидом **1d** (см. таблицу).

Ранее было показано, что реакция пиразол-4-карбальдегидов с дитиооксамидом протекает только при микроволновой активации с образованием 2,5-биспиразолилтиазоло[5,4-*d*]тиазолов, причем окисление первоначально образующихся биспиразолотиазолинотиазолинов SeO_2 значительно увеличивает выходы целевых продуктов [28].

Схема 1



Оптимизация условий реакции получения 2-(1*H*-пиразол-4-ил)-1*H*-бензимидазолов

Опыт	Катализатор (количество эквивалентов)	Растворитель	Температура, °С	Выход, %
1	–	ДМФА	100	0
2	–	Пиридин	100	0
3	–	Пиридин	100	5
4	–	Пиридин	100	5
5	La(CF ₃ SO ₃) ₃ (0.05)	CH ₃ CN	80	0
6	La(CF ₃ SO ₃) ₃ (0.05)	Пиридин	100	5
7	Силикагель 60 (0.05)	CH ₃ CN	80	5
8	Me ₃ SiCl (1)	CH ₃ CN	80	10
9	Me ₃ SiCl (1)	AcOEt	75	6
10	Me ₃ SiCl (1)	ДМФА	100	35
11	Me ₃ SiCl (2)	ДМФА	100	30
12	Me ₃ SiCl (1)	Пиридин	110	65
13	Me ₃ SiCl (1)	Пиридин	90	92
14	Me ₃ SiCl (1)	Пиридин	80	70
15	Me ₃ SiCl (2)	Пиридин	90	75
16	Me ₃ SiCl (3)	Пиридин	90	72

В данном случае установлено, что пиразолил-карбальдегид **1d** не реагирует с *o*-фенилендиаминном без катализатора в различных растворителях, в том числе с применением микроволновой активации и окиси селена в качестве окислителя. Низкие выходы продукта **2d** наблюдались также при использовании La(CF₃SO₃)₃ и силикагеля 60 в качестве катализаторов. В присутствии триметилхлорсилана целевой бензимидазол **2d** наблюдался в реакционной массе, но в следовых количествах, при проведении реакции в таких растворителях, как ацетонитрил и этилацетат. В растворе ДМФА и с применением микроволнового облучения выход **2d** достигал 30%. В растворе пиридина продемонстрированы наилучшие результаты, кроме того, пиридин нейтрализовал выделяющийся в ходе реакции HCl, препятствуя тем самым протонированию по «пиридиновому» атому азота пиразольного фрагмента и образованию гидрохлоридов, наблюдаемых ранее [23] при использовании Me₃SiCl. Кипячение, 2- и 3-кратный избыток Me₃SiCl, а также микроволновое

облучение положительно не сказались на выходе продукта реакции. Нагревание исходного альдегида **1d** в присутствии триметилхлорсилана в атмосфере аргона приводит к образованию продукта **2d** лишь в следовых количествах. Таким образом, все превращения осуществляли в системах с доступом кислорода из окружающей среды. Необходимо также отметить, что *o*-фенилендиамин не реагирует с карбальдегидами пиразольного ряда в отсутствие триметилхлорсилана в чистом пиридине, в том числе при варьировании временного и температурного режимов.

Совокупность данных элементного анализа, ЯМР ¹H, ¹³C, и ИК спектроскопии подтверждает состав и строение бензимидазолов **2a–d**. В ИК спектрах синтезированных соединений **2a–d** отсутствуют характерные полосы поглощения карбонильных групп исходных альдегидов. В спектрах ЯМР ¹H соединений **2a–d** отсутствуют сигналы протонов альдегидных групп, присутствуют сигналы протонов замещенных пиразольных колец

соответствующей интегральной интенсивности и сигналы протонов бензимидазольного кольца при 7.20 (2H^{4,7}) и 7.58 (2H^{5,6}) м.д. В спектрах ЯМР ¹³C 2-бензимидазолов **2a–d** присутствуют характерные сигналы атомов углеродов бензимидазольного фрагмента: 113.0–114.8 (C^{4,7}), 122.2–125.4 (C^{5,6}), 131.7–133.2 (C^{3a,7a}), 144.1–145.6 (C²) м.д. В масс-спектрах электронной ионизации наблюдаются интенсивные пики молекулярных ионов соединений **2a–d**.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Спектры ЯМР ¹H, ¹³C зарегистрированы на спектрометре Bruker DPX-400 (Германия), рабочие частоты 400.13 и 100.62 МГц соответственно в ДМСО-*d*₆, внутренний стандарт – ГМДС. ИК спектры получены на приборе Bruker Vertex 70 (Германия) в таблетках KBr. Масс-спектры электронной ионизации (70 эВ) получены на приборе QP-5050A (SHIMADZU, Япония), масс-анализатор квадрупольный, диапазон детектируемых масс 34–650 Да. Ввод образцов осуществляли с помощью системы прямого ввода DI-50. Элементный анализ выполнен на автоматическом CHNS-анализаторе Thermo Scientific Flash 2000 (США).

Альдегиды **1a–d** были получены формилированием реагентом Вильсмайера–Хаака соответствующих 1,3,5-тризамещенных пиразолов [27]. Коммерчески доступные *o*-фенилендиамин и триметилхлорсилан (Sigma-Aldrich) использовали в реакциях без дополнительной очистки. Растворители при необходимости очищали стандартными методами. Ход реакций и чистоту полученных соединений контролировали с помощью ТСХ на пластинках Silica gel 60 F₂₅₄ Merk, элюент CHCl₃–MeOH в соотношении 95:5.

2-(3,5-Диметил-1H-пиразол-4-ил)-1H-бензимидазолы 2a–d (общая методика). К смеси 2 ммоль пиразолкарбальдегида **1** [0.276 г (**a**), 0.332 г (**b**, **c**), 0.428 г (**d**)] и 0.220 г (2 ммоль) *o*-фенилендиамина в 2 мл сухого пиридина при перемешивании при комнатной температуре добавляли 0.217 г (2 ммоль) триметилхлорсилана, затем нагревали 90°C в течение 3 ч в колбе с доступом воздуха. Контроль за ходом реакции осуществляли методом ТСХ. Образовавшийся сырой продукт в виде твердого осадка отфильтровывали, очищали

кристаллизацией из смеси этилацетат–гексан, 4:1, и сушили.

2-(1,3,5-Триметил-1H-пиразол-4-ил)-1H-бензимидазол (2a). Выход 0.371 г (82%), бледно-желтые кристаллы, т.пл. 261–262°C. ИК спектр (KBr), ν , см⁻¹: 3434 ш (NH), 2941 м (C–H), 1623 с (C=N), 1584 м, 1530 м, 1447 с, 1399 с, 1315 с, 1273 с, 749 с. Спектр ЯМР ¹H (400 МГц, ДМСО-*d*₆), δ , м.д.: 2.39 с (3H, 3-Me), 2.48 с (3H, 5-Me), 3.72 с (3H, MeN), 7.12–7.14 м (2H_{аром}), 7.52–7.55 м (2H_{аром}). Спектр ЯМР ¹³C (100 МГц, ДМСО-*d*₆), δ , м.д., пиразольное кольцо: 9.88 (5-Me), 12.45 (3-Me), 35.15 (MeN), 108.76 (C⁴), 138.63 (C⁵), 144.68 (C³), бензимидазольное кольцо: 114.04 (C_{аром}), 120.64 (C_{аром}), 138.82 (C_{аром}), 147.16 (C=N). Масс-спектр (ЭУ, 70 эВ), m/z ($I_{отн}$, %): 227 (17) [$M + 1$]⁺, 226 (100) [M]⁺, 225 (75) [$M - 1$]⁺, 157 (68), 113 (17), 92 (8), 65 (9), 56 (11). Найдено, %: C 69.09; H 6.29; N 24.73. C₁₃H₁₄N₄. Вычислено, %: C 69.00; H 6.24; N 24.76.

2-(3,5-Диметил-1-пропил-1H-пиразол-4-ил)-1H-бензимидазол (2b). Выход 0.396 г (78%), бледно-желтые кристаллы, т.пл. 230–231°C. Целевой продукт выпадал в осадок при охлаждении реакционной смеси до 5°C. ИК спектр (KBr), ν , см⁻¹: 3433 ш (NH), 2960 м (C–H), 1624 с (C=N), 1598 с, 1587 с, 1528 м, 1445 с, 1397 с, 1360 м, 1317 с, 1287 с, 1106 с, 741 с. Спектр ЯМР ¹H (400 МГц, ДМСО-*d*₆), δ , м.д.: 0.86 т (3H, CH₂CH₂CH₃, J 7.3 Гц), 1.75 секстет (2H, CH₂CH₂CH₃, J 7.0 Гц), 2.38 с (3H, 3-Me), 2.50 с (3H, 5-Me), 3.97 т (2H, CH₂CH₂CH₃, J 7.0 Гц), 7.11–7.13 м (2H_{аром}), 7.51–7.53 м (2H_{аром}). Спектр ЯМР ¹³C (100 МГц, ДМСО-*d*₆), δ , м.д., пиразольное кольцо: 10.46 (5-Me), 11.01 (CH₂CH₂CH₃), 13.33 (3-Me), 23.02 (CH₂CH₂CH₃), 49.67 (NCH₂CH₂CH₃), 108.89 (C⁴), 138.99 (C⁵), 145.26 (C³), бензимидазольное кольцо: 114.47 (C_{аром}), 121.29 (C_{аром}), 138.85 (C_{аром}), 147.58 (C=N). Масс-спектр (ЭУ, 70 эВ), m/z ($I_{отн}$, %): 254 (64) [M]⁺, 239 (25) [$M - CH_3$]⁺, 225 (50) [$M - CH_2CH_3$]⁺, 212 (100) [$M - CHCH_2CH_3$]⁺, 183 (20), 157 (18), 92 (9), 65 (10). Найдено, %: C 70.49; H 7.09; N 22.10. C₁₅H₁₈N₄. Вычислено, %: C 70.84; H 7.13; N 22.03.

2-[3,5-Диметил-1-(1-метилэтил)-1H-пиразол-4-ил]-1H-бензимидазол (2c). Выход 0.432 г (85%), светло-бежевые кристаллы, т.пл. 257–258°C. ИК спектр (KBr), ν , см⁻¹: 3441 ш (NH), 2928 м (C–H), 1628 с (C=N), 1599 с, 1497 с, 1456 м, 1029 с, 752 с.

Спектр ЯМР¹H (400 МГц, ДМСО-*d*₆), δ, м.д.: 1.38 д (6H, Me₂CH, *J* 6.3 Гц), 2.36 с (3H, 3-Me), 2.48 с (3H, 5-Me), 4.53 септет (1H, CHMe₂, *J* 6.3 Гц), 7.19–7.21 м (2H_{аром}), 7.56–7.59 м (2H_{аром}). Спектр ЯМР ¹³C (100 МГц, ДМСО-*d*₆), δ, м.д., пиразольное кольцо: 10.12 (5-Me), 13.15 (3-Me), 22.21 (2C, Me₂CH), 49.17 (Me₂CHN), 107.88 (C⁴), 138.54 (C⁵), 147.14 (C³), бензимидазольное кольцо: 114.49 (C_{аром}), 122.09 (C_{аром}), 137.91 (C_{аром}), 145.57 (C=N). Масс-спектр (ЭУ, 70 эВ), *m/z* (*I*_{отн.}, %): 255 (13) [*M* + 1]⁺, 254 (74) [*M*]⁺, 239 (97) [*M* – CH₃]⁺, 212 (100) [*M* – CH(CH₃)₂]⁺, 211 (19), 198 (18), 183 (24), 157 (14), 156 (14), 92 (13), 65 (15). Найдено, %: C 70.61; H 7.14; N 22.12. C₁₅H₁₈N₄. Вычислено, %: C 70.84; H 7.13; N 22.03.

2-(3,5-Диметил-1-бензил-1H-пиразол-4-ил)-1H-бензимидазол (2d). Выход 0.556 г (92%), бледно-желтые кристаллы, т.пл. 241–242°C. ИК спектр (KBr), ν, см⁻¹: 3435 ш (NH), 2726 м (C–H), 1630 с (C=N), 1603 с, 1534 с, 1495 с, 1456 с, 1431 м, 1388 с, 1226 с, 838 м, 761 с, 732 с. Спектр ЯМР ¹H (ДМСО-*d*₆), δ, м.д.: 2.46 с (3H, 3-Me), 2.54 с (3H, 5-Me), 5.41 с (2H, NCH₂Ph), 7.24–7.26 м (2H, Ph), 7.29–7.33 м (1H, Ph), 7.36–7.40 м (2H, Ph), 7.52–7.55 м (2H_{аром}), 7.82–7.84 м (2H_{аром}). Спектр ЯМР ¹³C (100 МГц, ДМСО-*d*₆), δ, м.д., пиразольное кольцо: 10.73 (5-Me), 12.62 (3-Me), 52.23 (NCH₂Ph), 103.29 (C⁴), 127.26 (C^o, Ph), 127.72 (Cⁿ, Ph), 128.70 (C^u, Ph), 136.52 (Cⁱ, Ph), 142.14 (C⁵), 147.25 (C³), бензимидазольное кольцо: 113.76 (C_{аром}), 125.34 (C_{аром}), 131.68 (C_{аром}), 144.01 (C=N). Масс-спектр (ЭУ, 70 эВ), *m/z* (*I*_{отн.}, %): 303 (19) [*M* + 1]⁺, 302 (100) [*M*]⁺, 301 (78) [*M* – 1]⁺, 287 (27) [*M* – CH₃]⁺, 260 (29), 225 (38) [*M* – C₆H₅]⁺, 183 (15), 157 (16), 91 (64) [C₆H₅CH₂]⁺, 65 (36). Найдено, %: C 74.98; H 5.97; N 18.39. C₁₉H₁₈N₄. Вычислено, %: C 75.47; H 6.00; N 18.53.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Конденсация пиразол-4-карбальдегидов с *o*-фенилендиамином селективно протекает при использовании эквимольного количества триметилхлорсилана в растворе пиридина с образованием неизвестных ранее 2-замещенных пиразол-4-ил-1H-бензимидазолов, синтонов тонкого органического синтеза и потенциальных структурных блоков для дизайна биологически активных соединений.

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование структуры полученных соединений проведено с использованием материально-технической базы Байкальского аналитического центра коллективного пользования СО РАН.

ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ

Шатрова Александра Александровна, ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-5569-5888>

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Автор заявляет об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Law C.S.W., Yeong K.Y. *ChemMedChem*. **2021**, *16*, 1861–1877. doi 10.1002/cmcd.202100004
2. Son D.S., Lee E.S., Adunyah S.E. *Immune Netw.* **2020**, *20*, e29, 1–20. doi 10.4110/in.2020.20.e29
3. Choudhary S., Arora M., Verma H., Kumar M., Silakari O. *Eur. J. Pharmacol.* **2021**, *899*, 174027. doi 10.1016/j.ejphar.2021.174027
4. Hernández-Romero D., Rosete-Luna S., López-Monteon A., Chávez-Piña A., Pérez-Hernández N., Marroquín-Flores J., Cruz-Navarro A., Pesado-Gómez G., Morales-Morales D., Colorado-Peralta R. *Coordinat. Chem. Rev.* **2021**, *439*, 213930. doi 10.1016/j.ccr.2021.213930
5. Karrouchi K., Radi S., Ramli Y., Taoufik J., Mabkhot Y., Al-aizari F., Ansar M.H. *Molecules*. **2018**, *23*, 134. doi 10.3390/molecules23010134
6. Harras M.F., Sabour R. *Bioorg. Chem.* **2018**, *78*, 149–157. doi 10.1016/j.bioorg.2018.03.014
7. Sivaramakarthiskeyan R., Iniyaval S., Saravanan V., Lim W.-M., Mai C.-W., Ramalingan C. *ACS Omega*. **2020**, *5*, 10089–10098. doi 10.1021/acsomega.0c00630
8. Ren B., Liu R.-C., Ji K., Tang J.-J., Gao J.-M. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* **2021**, *43*, 128097. doi 10.1016/j.bmcl.2021.128097
9. Alaqeel S.I. *J. Saudi Chem. Soc.* **2017**, *21*, 229–237. doi 10.1016/j.jscs.2016.08.001
10. Pardeshi V.A.S., Chundawat N.S., Pathan S.I., Sukhwai P., Chundawat T.P.S., Singh G.P. *Synth. Comm.* **2021**, *51*, 485–513. doi 10.1080/00397911.2020.1841239
11. Saha M., Das A.R. *Tetrahedron Lett.* **2018**, *59*, 2520–2525. doi 10.1016/j.tetlet.2018.05.028
12. Trofimov B.A., Ivanov A.V., Skital'tseva E.V., Vasil'tsov A.M., Ushakov I.A., Petrushenko K.B., Mikhaleva A.I. *Synthesis*. **2009**, *21*, 3603–3610. doi 10.1055/s-0029-1216996

13. Bie F., Yao Y., Cao H., Shi Y., Yan P., Ma J., Han Y., Liu X. *Synth. Comm.* **2021**, *51*, 2387–2396. doi 10.1080/00397911.2021.1939056
14. Vali Shaik B., Seelam M., Tamminana R., Kamme-la P.R. *Tetrahedron.* **2019**, *75*, 3865–3874. doi 10.1016/j.tet.2019.05.006
15. Alla S.K., Kumar R.K., Sadhu P., Punniyamurthy T. *Org. Lett.* **2013**, *15*, 1334–1337. doi 10.1021/ol400274f
16. Kohli S., Rathee G., Hooda S., Chandra R. *Dalton Trans.* **2021**, *50*, 7750–7758. doi 10.1039/d1dt00806d
17. Yadav P., Kakati P., Singh P., Awasthi S.K. *Appl. Catalysis A, Gen.* **2021**, *612*, 118005. doi 10.1016/j.apcata.2021.118005
18. Паперная Л.К., Леванова Е.П., Сухомазова Е.Н., Албанов А.И., Дерягина Е.Н. *ЖОрХ.* **2006**, *42*, 272–276. [Паперная Л.К., Levanova E.P., Sukhomazova E.N., Albanov A.I., Deryagina E.N. *Russ. J. Org. Chem.* **2006**, *42*, 256–260.] doi 10.1134/S1070428002120175
19. Papernaya L.K., Shatrova A.A., Levanova E.P., Albanov A.I., Klyba L.V., Rudyakova E.V., Levkovskaya G.G. *Heteroatom. Chem.* **2013**, *24*, 466–475. doi 10.1002/hc.21113
20. Karimi B., Ma'mani L. *Synthesis.* **2003**, *16*, 2503–2506. doi 10.1055/s-2003-42436
21. Stuparu M., Grosu I., Muntean L., Ple G., Cismas C., Terec A., Nan A., Mager S. *Monatsh. Chem.* **2004**, *135*, 89–96. doi 10.1007/s00706-003-0090-5
22. Паперная Л.К., Шатрова А.А., Албанов А.И., Рудякова Е.В., Левковская Г.Г. *ХГС.* **2011**, *47*, 1680–1690. [Паперная Л.К., Shatrova A.A., Albanov A.I., Rudyakova E.V., Levkovskaya G.G. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2012**, *47*, 1395–1404.] doi 10.1007/s10593-012-0927-0
23. Papernaya L.K., Shatrova A.A., Levanova E.P., Albanov A.I., Klyba L.V., Rudyakova E.V., Levkovskaya G.G. *Heteroatom. Chem.* **2015**, *26*, 5–11. doi 10.1002/hc.21200
24. Паперная Л.К., Шатрова А.А., Албанов А.И., Левковская Г.Г. *ЖОрХ.* **2015**, *54*, 731–737. [Паперная Л.К., Shatrova A.A., Albanov A.I., Levkovskaya G.G. *Russ. J. Org. Chem.* **2018**, *54*, 734–741.] doi 10.1134/S107042801805010X
25. Bellam M., Gundluru S., Sarva S., Chadive V.R., Netalal V., Tarttel S., Cirandur R. *Chem. Heterocycl. Compd.* **2017**, *53*, 173–178. doi 10.1007/s10593-017-2036-6
26. Prajapati S.K., Nagarsenkar A., Guggilapu S.D., Babu B.N. *Tetrahedron Lett.* **2015**, *56*, 6795–6799. doi 10.1016/j.tetlet.2015.10.074
27. Maru M., Shah K. *J. Chem. Pharm. Res.* **2012**, *4*, 1638–1643.
28. Papernaya L.K., Shatrova A.A., Albanov A.I., Levkovskaya G.G., Rozentsveig I.B. *Arkivoc.* **2016**, *v*, 142–150. doi 10.3998/ark.5550190.p009.709

A Straightforward Synthesis of 2-(1*H*-Pyrazol-4-yl)-1*H*-benzimidazoles

A. A. Shatrova*

*A.E. Favorsky Irkutsk Institute of Chemistry, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences,
ul. Favorskogo, 1, Irkutsk, 664033 Russia
e-mail: alx_shatrova@irioch.irk.ru

Received November 22, 2021; revised December 10, 2021; accepted December 16, 2021

One pot condensation of pyrazol-4-carbaldehydes with *o*-phenylenediamine furnishes hitherto inaccessible 2-(1*H*-pyrazol-4-yl)-1*H*-benzimidazoles in good yields in the presence of a trimethylchlorosilane (pyridine, 90°C, air atmosphere).

Keywords: benzimidazoles, pyrazol-4-carbaldehydes, *o*-phenylenediamine, trimethylchlorosilane, oxidative condensation