

یک روش جدید، ساده و ارزان برای سنتز مشتق‌های ۳،۴-دی‌هیدرو پیریمیدینون با

استفاده از کاتالیزگر کارآمد مگلو مین در استیک اسید

لیلا مرادی* و مریم تدین

گروه شیمی آلی، دانشکده شیمی، دانشگاه کاشان

تاریخ دریافت: ۹۵/۰۷/۲۲ تاریخ تصحیح: ۹۵/۱۲/۰۵ تاریخ پذیرش: ۹۵/۱۲/۱۴

چکیده

سنتز چندجزیی ترکیب‌های ۳،۴-دی‌هیدروپیریمیدین-۲-(H) اونیون‌ها تحت شرایط حرارتی و بدون حلال و در حضور کاتالیزگر کارآمد مگلو مین در استیک اسید گزارش شده است. روش ارائه شده به راحتی قابل انجام بوده و در عین حال، زیست سازگار و ساده می‌باشد. در دسترس بودن و ارزان بودن سیستم کاتالیزگر دوتایی مگلو مین/استیک اسید، جداسازی ساده محصول‌های واکنش، شرایط بدون حلال، کوتاه بودن زمان واکنش در مقایسه با زمان‌های گزارش شده به همراه بازده‌های بالای محصولات از مهم‌ترین مزیت‌های روش مذکور می‌باشد. محصولات واکنش با استفاده از تعیین نقطه ذوب، طیف بینی تبدیل فوریه زیر قرمز (FTIR)، تشدید مغناطیسی هسته هیدروژن و کربن ($^1\text{H NMR}$, $^{13}\text{C NMR}$) مورد شناسایی قرار گرفتند.

کلمات کلیدی: مگلو مین، استیک اسید، سنتز سبز، واکنش چندجزیی، شرایط بدون حلال، ۳،۴-دی‌هیدروپیریمیدینون‌ها.

۱- مقدمه

در سال ۱۸۹۱، دانشمند ایتالیایی پیتر بیجینیلی^۱ یک واکنش چند جزیی حاصل از تراکم اتیل استواسات، بنزآلدهید و اوره در حضور یک کاتالیزگر اسیدی را گزارش کرد [۱]. این واکنش سه‌جزیی به راحتی در شرایط بازروانی در اتانول و در حضور مقادیر کاتالیستی از هیدروکلریک اسید انجام شده و محصول آن به‌عنوان ۳،۴-دی‌هیدروپیریمیدین-۲-(H) اونیون شناخته و معرفی شد.

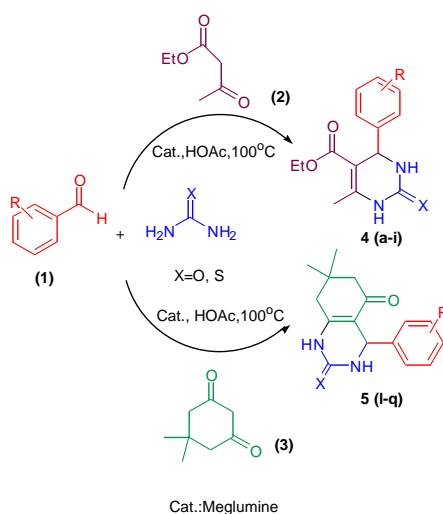
دی‌هیدرو پیریمیدینون‌ها ناجور حلقه‌های مفید و مهمی هستند که رنج گسترده‌ای از فعالیت‌های دارویی و زیست شناختی برای آن‌ها گزارش شده است [۱۱-۲]. بسیاری از این ترکیب‌ها خواص ضد ویروس، ضد تومور، ضد باکتری، و ضد التهاب دارند [۱۴-۱۲]. در سال‌های اخیر، کاتالیزگرهای جدیدی برای سنتز مشتق‌های دی‌هیدروپیریمیدینون مورد استفاده قرار گرفته است که از جمله می‌توان به نیکل تثبیت شده بر روی نانوذرات سیلیکا [۱۵]، $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4/\text{MCM-41}$ [۱۶]، O_2N - بیس (تری متیل

*l_moradi@kashanu.ac.ir

*نویسنده مسئول: استادیار شیمی آلی، گروه شیمی آلی، دانشکده شیمی، دانشگاه کاشان، کاشان، ایران

سیلیل) استامید [۱۷]، مشتق‌های پرولین [۱۸ و ۱۹]، استیک اسید [۲۰]، کلرو استیک اسید [۲۱] و $MCl_2/HOAc$ [۲۲] اشاره نمود.

با توجه به آلودگی روزافزون محیط زیست بر اثر استفاده و تولید ترکیب‌های شیمیایی و آسیب جدی ناشی از آن، همواره سعی بر این بوده است که راه‌کارهایی در روش‌های سنتز پیشنهاد شود که سلامت محیط زیست را در نظر گرفته و مطابق اصول شیمی سبز باشد. در سال‌های اخیر استفاده از کاتالیزگرهای کم‌خطر و دوست‌دار محیط زیست و واکنش‌های چند جری (به دلیل اقتصاد اتمی بالا و کوتاه نمودن زمان و مراحل واکنش) بسیار مورد توجه پژوهش‌گران بوده است [۲۳-۲۶]. بر این اساس، در پژوهش حاضر، از مگلو مین در استیک اسید به عنوان سیستمی سبز با کارایی بالا استفاده شده است. مگلو مین به عنوان یک قند آمینی ترکیبی زیست سازگار بوده و استیک اسید هم اسیدی ضعیف به‌شمار می‌رود. کاتالیزگر مورد نظر به عنوان یک کاتالیزگر ملایم، سبز، ارزان و کارآمد در پژوهش حاضر مورد استفاده قرار گرفته است. این روش، به دلیل صرفه‌جویی در زمان، خالص‌سازی ساده محصول به همراه بازده بالا می‌تواند به عنوان روشی مناسب در تهیه‌ی ترکیب‌های بیجینیلی در نظر گرفته شود (طرح ۱).



شکل ۱- سنتز ترکیبات ۳،۴-دی‌هیدروپیریمیدینون در حضور کاتالیزگر مگلو مین در استیک اسید

۲- بحث و نتیجه گیری

در ادامه مطالعات قبلی بر روی سنتز ترکیبات بیجینیلی [۲۳ ۲۷]، در پژوهش حاضر مگلو مین در استیک اسید به عنوان سیستم کاتالیزگری سبز در سنتز این دسته از ترکیب‌ها مورد استفاده قرار گرفت. در ابتدا بهینه‌سازی شرایط واکنش (از جمله مقدار مگلو مین و استیک اسید، حلال و دما)، مورد بررسی قرار گرفت. به این منظور، مخلوطی از ۴- نیترو بنزالدهید (یک میلی‌مول)، اتیل استواستات (یک میلی‌مول) و اوره (۱/۲ میلی‌مول) به عنوان واکنش مدل در نظر گرفته شد.

در مرحله اول برای تعیین مقادیر بهینه مگلو مین و استیک اسید، واکنش مدل در حضور ۵ تا ۳۰ میلی گرم از مگلو مین و در دمای ۱۰۰ درجه سانتی گراد در نظر گرفته شد و سپس تاثیر مقدار مختلف استیک اسید بر روی زمان و بازده واکنش مورد بررسی قرار گرفت.

نتایج ثبت شده در جدول ۱ نشان می دهد زمانی که واکنش در حضور ۰/۰۱ گرم از مگلو مین و عدم حضور استیک اسید انجام شد، بازده محصول پس از مدت ۱۸ ساعت ۷۰ درصد بود (ردیف ۶). با افزایش مقدار استیک اسید به ۰/۲ میلی لیتر، بازده واکنش به ۹۷ درصد افزایش پیدا کرد (ردیف ۸) همچنین مشاهده گردید زمان واکنش از ۱۸ ساعت به ۴/۲۰ کاهش یافت. لازم به ذکر است در حضور مقدار ۰/۰۵ گرم از مگلو مین و مقادیر مختلف از استیک اسید، زمان واکنش بالا (۱۱ تا ۵ ساعت) و میزان بازده نیز مطلوب نبوده است (ردیف ۱ تا ۵).

جدول ۱. بهینه سازی مقدار استیک اسید و مگلو مین

| ردیف | مقدار استیک اسید (میلی لیتر) | مقدار مگلو مین (گرم) | زمان (ساعت) | بازده (درصد) ^آ |
|------|---------------------------------|-------------------------|----------------|------------------------------|
| ۱ | ۰/۱ | ۰/۰۰۵ | ۱۱ | ۶۰ |
| ۲ | ۰/۲ | ۰/۰۰۵ | ۸/۳۰ | ۷۱ |
| ۳ | ۰/۳ | ۰/۰۰۵ | ۶/۳۰ | ۷۸ |
| ۴ | ۰/۴ | ۰/۰۰۵ | ۶ | ۸۲ |
| ۵ | ۰/۴ | ۰/۰۰۸ | ۵ | ۸۶ |
| ۶ | - | ۰/۰۱ | ۱۸ | ۷۰ |
| ۷ | ۰/۱ | ۰/۰۱ | ۸ | ۸۵ |
| ۸ | ۰/۲ | ۰/۰۱ | ۴/۲۰ | ۹۷ |
| ۹ | ۰/۳ | ۰/۰۱ | ۵ | ۹۲ |
| ۱۰ | ۰/۴ | ۰/۰۱ | ۳/۳۰ | ۸۸ |
| ۱۱ | ۰/۲ | - | ۱۴ | ۷۵ |
| ۱۲ | ۰/۲ | ۰/۰۱ | ۴/۲۰ | ۹۷ |
| ۱۳ | ۰/۲ | ۰/۰۲ | ۴/۳۰ | ۹۱ |
| ۱۴ | ۰/۲ | ۰/۰۲۵ | ۴/۳۰ | ۸۷ |
| ۱۵ | ۰/۲ | ۰/۰۳ | ۴/۳۰ | ۸۵ |

آ- بازده جداسازی شده

در ادامه، برای تعیین بهترین مقدار مگلو مین، از واکنش مدل در حضور ۰/۲ تا ۰/۴ میلی لیتر استیک اسید استفاده شد. همان گونه که در جدول ۱ مشاهده می شود، زمانی که واکنش در حضور ۰/۲ میلی لیتر از اسید و عدم حضور مگلو مین انجام

شد، بازده واکنش پس از ۱۴ ساعت ۷۵ درصد بوده (ردیف ۱۱) و با استفاده از ۰/۰۱ گرم از مگلو مین، بازده واکنش تا ۹۷ درصد افزایش یافت در حالی که زمان واکنش از ۱۴ ساعت به ۴/۲۰ ساعت کاهش پیدا کرد (ردیف ۱۲). نتیجه حاصل از این بررسی نشان داد که ۰/۰۱ گرم (۰/۰۵۱ میلی‌مول) مگلو مین در حضور ۰/۲ میلی‌لیتر (۳/۵ میلی‌مول) استیک اسید می‌تواند به‌عنوان سیستم کاتالیستی دوتایی در انجام واکنش‌های مشابه در نظر گرفته شود. تاثیر دما بر روی زمان و بازده واکنش در مرحله بعد مورد بررسی قرار گرفت. اطلاعات به‌دست آمده در جدول ۲ نشان می‌دهد که با افزایش تدریجی دما از ۲۵ به ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد، بازده واکنش تا ۹۷ درصد افزایش یافته و همچنین مشاهده می‌شود دمای ۱۲۰ درجه سانتی‌گراد تاثیری در افزایش بازده واکنش نداشته است (ردیف ۴).

جدول ۲- بررسی اثر دما بر روی بازده واکنش مدل

| ردیف | دما (°C) | زمان (ساعت) | بازده (درصد) ^ا |
|------|----------|-------------|---------------------------|
| ۱ | ۲۵ | ۲۴ | - |
| ۲ | ۷۵ | ۲۰ | ۶۲ |
| ۳ | ۱۰۰ | ۴/۲۰ | ۹۷ |
| ۴ | ۱۲۰ | ۵ | ۹۲ |

آ- بازده جداسازی شده

علاوه بر این، برای بررسی اثر حلال بر بازده، واکنش مدل در حضور مقدار بهینه‌ی کاتالیزگر (۰/۰۱ گرم مگلو مین در ۰/۲ میلی‌لیتر استیک اسید) و در حلال‌های متفاوت و تحت شرایط بازروانی مورد بررسی قرار گرفت. همان‌گونه که در جدول ۳ مشاهده می‌شود، واکنش در شرایط بدون حلال بهترین بازده در کوتاه‌ترین زمان واکنش را داشته است (زدیف ۵).

جدول ۳- بررسی اثر حلال بر روی بازده واکنش مدل

| ردیف | حلال | زمان (ساعت) | بازده (درصد) ^ا |
|------|------------------|-------------|---------------------------|
| ۱ | آب | ۲۴ | ۸۵ |
| ۲ | اتانول | ۲۴ | ۸۴ |
| ۳ | استونیتریل | ۲۴ | ۸۳ |
| ۴ | آب/ اتانول (۱:۱) | ۲۴ | ۳۵ |
| ۵ | - | ۴/۲۰ | ۹۷ |

آ- بازده جداسازی شده

پس از بهینه‌سازی شرایط واکنش، کارایی و عمومیت روش ارایه شده با استفاده از آریل‌هالیدهای مختلف، اوره و تیو اوره، ترکیب‌های ۱،۳- دی کربونیل (دایمدون و اتیل استواستات) مورد ارزیابی قرار گرفت.

نتایج به‌دست‌آمده در جدول ۴ جمع‌آوری شده‌است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، واکنش‌ها با بازده خوب تا عالی (۸۸ تا ۹۷ درصد) انجام شده و بالاترین بازده‌های واکنش مربوط به آریل‌هالیدهای دارای گروه‌های کشنده الکترون بوده است.

جدول ۴- سنتز ۳،۴-دی هیدروپیریمیدینون/تیون ها در حضور مگلومین/اسید در شرایط گرمایی

| ردیف | R | X | ۱،۳-دی کربونیل | محصول | زمان (ساعت) | بازده (درصد) ^ا | نقطه ذوب (°C) |
|------|-------------------|---|----------------|-------|-------------|---------------------------|---------------|
| ۱ | 4-OMe | O | 2 | 4a | 5.0 | 91 | 203-205 [28] |
| ۲ | 4-Me | O | 2 | 4b | 4.5 | 91 | 212-214 [28] |
| ۳ | 4-Cl | O | 2 | 4c | 5 | 92 | 210-212 [28] |
| ۴ | 2,4-di Cl | O | 2 | 4d | 5.5 | 91 | 249-251 [28] |
| ۵ | 4-OH | O | 2 | 4e | 5.0 | 90 | 228-229 [28] |
| ۶ | 2-Tiopheneal | O | 2 | 4f | 6.0 | 89 | 213-215 [29] |
| ۷ | 3-NO ₂ | O | 2 | 4g | 5.5 | 92 | 223-225 [30] |
| ۸ | H | O | 2 | 4h | 5.0 | 89 | 203-205 [28] |
| ۹ | 4-NO ₂ | O | 2 | 4i | 4.20 | 97 | 207-209 [31] |
| ۱۰ | 4-Me | S | 2 | 4j | 5.0 | 90 | 191-193 [32] |
| ۱۱ | H | S | 2 | 4k | 5.20 | 89 | 205-207 [28] |
| ۱۲ | H | O | 3 | 5l | 3.30 | 90 | 287-289 [33] |
| ۱۳ | 3-NO ₂ | O | 3 | 5m | 5.30 | 92 | 295-297 [33] |
| ۱۴ | 4-Cl | O | 3 | 5n | 4.30 | 90 | 297-299 [33] |
| ۱۵ | 4-Me | O | 3 | 5o | 4.30 | 91 | 300 [34] |
| ۱۶ | H | S | 3 | 5p | 3.45 | 88 | 280-282 [33] |
| ۱۷ | 4-Me | S | 3 | 5q | 5.0 | 90 | 297-299 [34] |

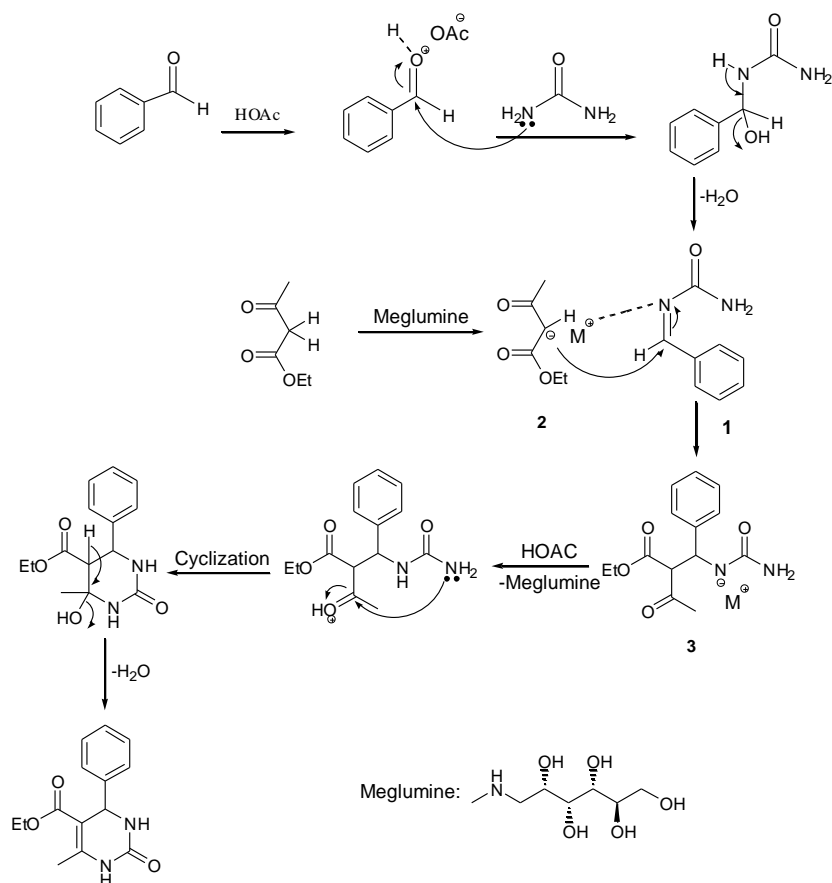
ا- بازده جداسازی شده

جدول ۵ نتایج بررسی و مقایسه کارایی کاتالیزگر مورد استفاده در تهیهی ترکیب 4i با استفاده از کاتالیزگر پیشنهادی در پژوهش حاضر و کاتالیزگرهای گزارش شده در مقالات را نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، کاتالیزگر مگلومین در استیک اسید، کارایی بالایی نسبت به بقیه داشته و بازده بالای محصول یکی از ویژگی‌های شاخص استفاده از کاتالیزگر مورد نظر می‌باشد.

جدول ۵-مقایسه کارایی کاتالیزگر مگلومین/استیک اسید با کاتالیزگرهای مختلف در سنتز ترکیب 4i

| ردیف | کاتالیزگر | زمان (ساعت) | بازده (درصد) | مرجع |
|------|---|-------------|--------------|-----------|
| ۱ | Meglumine/acid | 4.20 | 97 | This work |
| ۲ | FeCl ₃ .6H ₂ O | 4.0 | 83 | [35] |
| ۳ | NiCl ₂ .6H ₂ O | 5.0 | 86 | [35] |
| ۴ | NBS | 25 | 85 | [36] |
| ۵ | Zn(II) MOF | 2.20 | 86 | [37] |
| ۶ | Al ₂ (SO ₄) ₃ / acetic acid | 3.5 | 82 | [38] |
| ۷ | CdCl ₂ | 5.30 | 89 | [39] |
| ۸ | 12-tungstophosphoric acid | 6-7 | 73 | [40] |
| ۹ | Lithium bromide | 5.0 | 93 | [41] |
| ۱۰ | Sodium Tetrafluoroborate | 4.0 | 90 | [42] |
| ۱۱ | sulfonated β-cyclodextrine | 2.0 | 93 | [43] |
| ۱۲ | Nafion NR-50 | 2.5 | 92 | [44] |
| ۱۳ | Alumina Sulfuric Acid | 1.0 | 87 | [45] |
| ۱۴ | Montmorillonite-KSF | 48 | 38 | [46] |
| ۱۵ | Zeolite | 12 | 21 | [47] |

سازوکار انجام واکنش در حضور کاتالیزگر پیشنهادی در طرح ۲ نشان داده شده است. واکنش با تشکیل حدواسط از نوع *N*-آسیل ایمینیوم (۱) که از تراکم آریل آلدهید فعال شده با پروتون و اوره ایجاد شده، شروع می‌شود. حدواسط دیگر (۲)، از واکنش بین اتیل استواسات (ساختار دی‌کربونیل) و مگلو مین تولید می‌شود و در مرحله بعد، محصول باز زنجیر مگلو مین (۳) از واکنش بین حدواسط‌های ۱ و ۲ به‌وجود آمده و در مرحله نهایی، حلقوی شدن و حذف آب، منجر به تشکیل محصول می‌شود.



شکل ۲- سازوکار پیشنهادی برای سنتز مشتق‌های ۳،۴-دی‌هیدروپیریمیدینون

۳- روش تجربی

۳-۱- مواد شیمیایی و دستگاه‌ها

برخی از مواد شیمیایی مورد استفاده در این تحقیق از جمله ۲- تیوفن آلدهید، ۲،۴- دی کلرو بنزآلدهید و ۴- هیدروکسی بنزآلدهید از شرکت آلد ریچ و سایر مشتق‌های بنزآلدهید و همچنین مگلو مین از شرکت مرک تهیه شده اند. نقطه ذوب مشتق‌های سنتزی با استفاده از دستگاه الکتروترمال MK3 اندازه‌گیری شده است. بررسی پیشرفت واکنش با استفاده از روش کروماتوگرافی لایه نازک (TLC) با صفحه آلومینیومی و سیلیکاژل F254 60 و لامپ فرابنفش انجام شده است. طیف‌های زیر

قرمز توسط دستگاه طیف‌سنج مادون قرمز پرکین-المر 550 و با استفاده از قرص پتاسیم برمید گزارش شده است. همچنین طیف‌های $^1\text{H NMR}$ و $^{13}\text{CNMR}$ توسط دستگاه DRX-400 به ترتیب با قدرت ۴۰۰ و ۱۰۰ مگاهرتز به دست آمده است.

۳-۲- روش عمومی سنتز ترکیب‌های بیجینلی

مخلوطی از مشتق بنزآلدئید (۱ میلی‌مول)، ترکیب ۳،۱-دی کربونیل (۱ میلی‌مول)، اوره یا تیواوره (۱/۲ میلی‌مول) تهیه شد و به آن ۰/۱ گرم مگلو مین در ۰/۲ میلی لیتر استیک اسید به‌عنوان کاتالیزگر اضافه گردید. مخلوط مورد نظر در شرایط بدون حلال و دمای 100°C هم‌زده شد و پیشرفت واکنش توسط کروماتوگرافی لایه نازک مورد بررسی قرار گرفت. پس از کامل شدن واکنش، مخلوط تا دمای محیط سرد شد و سپس به مخلوط آب و یخ اضافه شد. رسوب حاصله توسط کاغذ صافی جداسازی شد و به منظور خالص سازی بیشتر در اتانول داغ نوبلور شد.

۳-۳- داده‌های طیفی برخی محصولات به دست آمده

جدول ۴ ردیف ۳

۵-(اتوکسی کربونیل)-۴-(۴-کلروفنیل)-۶-متیل-۳،۴-دی هیدروپیریمیدین-۲-(H^۱)-اون (4c)

IR (KBr): ν 3243.04 (NH), 3117.14 (NH), 2978.92 (C-H aliphatic), 1707.52 (C=O), 1646.72, 1460.43 (C=C aromatic), 1223.15, 1090.87 (C-O) cm^{-1} ; $^1\text{H NMR}$ (400 MHz, DMSO-d₆): δ 1.06 (3H, t, J=7.2Hz, CH₃), 2.22 (3H, s, CH₃), 3.97 (2H, q, J=7.2Hz, CH₂), 5.11 (1H, s, CH), 7.23 (2H, d, J=5Hz, Ar-H), 7.3 (2H, d, J=5Hz, Ar-H), 7.77 (1H, s, NH), 9.25 (1H, s, NH) ppm.

جدول ۴ ردیف ۱۱

۵-(اتوکسی کربونیل)-۴-(۴-فنیل)-۶-متیل-۳،۴-دی هیدروپیریمیدین-۲-(H^۱)-تیون (4k)

IR (KBr): ν 3327.60 (NH), 3175.59 (NH), 2981.11 (C-H aliphatic), 1670.64 (C=O), 1573.87, 1464.29 (C=C aromatic), 1193.73, 1115.53 (C-O) cm^{-1} ; $^1\text{H NMR}$ (400 MHz, DMSO-d₆): δ 1.28 (3H, t, J=7.6Hz, CH₃), 2.33 (3H, s, CH₃), 3.96 (2H, q, J=7.6Hz, CH₂), 5.1 (1H, s, CH), 7.2-7.4 (5H, m, Ar-H), 7.73 (1H, s, NH), 9.1 (1H, s, NH) ppm.

جدول ۴ ردیف ۱۲

۷،۷-دی متیل-۴-فنیل-۳،۴-تترا هیدرو کینازولین-۵،۲-(H^۱, H^۶)-دی اون (5l)

IR (KBr): ν 3317.75 (NH), 3259.96 (NH), 2960.53 (C-H aliphatic), 1708.16 (C=O), 1674.56 (C=O), 1609.96, 1446.71 (C=C aromatic) cm^{-1} ; $^1\text{H NMR}$ (400 MHz, DMSO-d₆): δ 0.87 (3H, s, CH₃), 0.99 (3H, s, CH₃), 2.02 (1H, d, J=6.7Hz, CH₂), 2.22 (2H, m, CH₂), 2.41 (1H, d, J=6.7Hz, CH₂), 5.12 (1H, s, CH), 7.2-7.31 (5H, m, Ar-H), 7.76 (1H, s, NH), 9.47 (1H, s, NH) ppm; $^{13}\text{C NMR}$: δ 27.3, 29.22, 32.75, 50.28, 52.43, 107.86, 126.69, 127.58, 128.76, 145.09, 152.39, 152.84, 193.32 ppm.

خلاصه

سیستم دوتایی مگلومین در استیک اسید، در شرایط بدون حلال سنتز سه جزیی مشتق‌های بیجینیلی را کاتالیز می‌کند. روش ارزیابی شده روشی سبز، ساده، ارزان و ایمن بوده و محصولات حاصل از واکنش با بازده‌های خوب تا عالی به‌دست آمده‌اند.

۴- تقدیر و تشکر

نویسندگان مقاله از حمایت‌های دانشگاه کاشان در انجام پژوهش حاضر کمال تشکر را دارند.

۵- مراجع

- [1] P. Biginelli, *Gazzetta chimica Italiana*, **21** (1891) 455.
- [2] T.U. Mayer, T.M. Kapoor, S.J. Haggarty, R.W. King, S.L. Schreiber, T.J. Mitchison, *Science*, **286** (1999) 971.
- [3] Z. Maliga, T.M. Kapoor, T.J. Mitchison, *Chemistry & Biology*, **9** (2002) 989.
- [4] J.C. Barrow, P.G. Nantermet, H.G. Selnick, K.L. Glass, K.E. Rittle, K.F. Gilbert, T.G. Steele, C.F. Homnick, R.M. Freidinger, R.W. Ransom, P. Kling, D. Reiss, T.P. Broten, T.W. Schorn, R.S. Chang, S.S. O'Malley, T.V. Olah, J.D. Ellis, A. Barrish, K. Kassahun, P. Leppert, D. Nagarathnam, C. Forray, *Journal of Medicinal Chemistry*, **43** (2000) 2703.
- [5] C. Goldstein, J.C. Schroeder, J.P. Fortin, J.M. Goss, S.E. Schaus, M. Beinborn, A.S. Kopin, *Journal of Pharmacology and Experimental Therapeutics*, **335** (2010) 799.
- [6] K.S. Atwal, B.N. Swanson, S.E. Unger, D.M. Floyd, S. Moreland, A. Hedberg, B.C. O'Reilly, *Journal of Medical Chemistry*, **34** (1991) 806.
- [7] M. Matache, C. Dobrota, N.D. Bogdan, I. Dumitru, L.L. Ruta, C.C. Paraschivescu, I.C. Farcasanu, I. Baci, D.P. Funeriu, *Tetrahedron*, **65** (2009) 5949.
- [8] Y.X. Da, Z. Zhang, Z.J. Quan, *Chinese Chemical Letters*, **22** (2011) 679.
- [9] T.N. Akhaja, J.P. Raval, *Chinese Chemical Letters*, **23** (2012) 446.
- [10] S. Rostamnia, K. Lamei, *Chinese Chemical Letters*, **23** (2012) 930.
- [11] M.M. Heravi, N. Karimi, H. Hamidi, H.A. Oskooie, *Chinese Chemical Letters*, **24** (2013) 143.
- [12] C. Goldstein, J. C. Schroeder, J. P. Fortin, J. M. Goss, S. E. Schaus, M. Beinborn, A. S. Kopin, *Journal of Pharmacology and Experimental Therapeutics*, **335** (2010) 799.
- [13] M. Attia, A. Kansoh, N. El-Brollosy, *Monatshefte fur Chemie*, **145** (2014) 1825.
- [14] Y. X. Da, Z. Zhang, Z. J. Quan, *Chinese Chemical Letters*, **22** (2011) 679.
- [15] R.K. Sharma, D. Rawat, *Inorganic Chemistry Communications*, **17** (2012) 58.
- [16] R. Tayeb, M. Ghadamgahi, *Arabian Journal of Chemistry*, (2013), <http://dx.doi.org/10.1016/j.arabjc.2012.12.001>.
- [17] Y.L.N. Murthy, A. Rajack, K. Yuvaraj, *Arabian Journal of Chemistry*, (2012) <http://dx.doi.org/10.1016/j.arabjc.2012.04.046>.

- [18] C. de Graaff, E. Ruijter, R.V.A. Orru, *Chemical Society Reviews*, **41** (2012) 3969.
- [19] L.Z. Yi, X.H. Jie, H.G. Li, S.X. Qiang, J.J. Li, W.L. Yong, *Science China Chemistry*, **54** (2011) 1726.
- [20] J. Svetlik, L. Veizerova, *Helvetica Chimica Acta*, **94** (2011) 199.
- [21] I. Couto, I. Tellitu, E. Domínguez, *Arkivoc*, **2** (2011) 115.
- [22] S. Khaleghi, M. M. Heravi, M. Khosroshahi, F. Kargar Behbahani, Z. Daroogheha, *Green Chemistry Letters and Reviews*, **1** (2008) 133.
- [23] M. honarmand, *Journal of Applied Chemistry*, **1395** (2017) 41.
- [26] L. Moradi, K. Rabiei, Fateme Belali, *Synthetic Communications*, **46** (2016) 1283.
- [24] M.M. Hosseini, E. Kolvari, M. Vahidian, R. Bagheri, *Journal of Applied Chemistry*, **11** (2017) 109.
- [25] S.M. Vahdat, M. Khavarpour, F. Mohanazadeh, *Journal of Applied Chemistry*, **9** (2015) 43.
- [27] L. Moradi, G.R. Najafi, H. Saeidiroshan, *Iranian Journal of Catalysis*, **5** (2015) 357.
- [28] T. Boumoud, B. Boumoud, S. Rhouati, A. Belfaitah, A. Debache, P. Mosset, *Acta Chimica Slovenica*, **55** (2008) 617.
- [29] M.L. Pang, Y.F. Yuan, J.T. Wang, *Chinese Chemical Letters*, **13** (2002) 921.
- [30] R.J. Kalbasi, A.M. Massah, R.D. Daneshvarnejad, *Applied Clay Science*, **55**, (2012) 1.
- [31] J. Safari, Z. Zarnegar, *New Journal of Chemistry*, **38** (2014) 358.
- [32] T. Boumoud, B. Boumoud, S. Rhouati, A. Belfaitah, A. Debache, P. Mosset, *European Journal of Chemistry*, **5** (2008) 688.
- [33] S. Kirti, B. Bapurao, S. Murlidhar, *Tetrahedron Letters*, **51** (2010) 3616.
- [34] A. Shaabani, A. Sarvary, A. Rahmati, A.H. Rezayan, *Letters in Organic Chemistry*, **4** (2007) 68.
- [35] J. Lu, Y. Bai, *Synthesis*, **4** (2002) 466.
- [36] H. Hazarkhani, B. Karimi, *Synthesis*, **8** (2004) 1239.
- [37] P. Li, S. Regati, R.J. Butcher, H.D. Arman, Z. Chen, S. Xiang, B. Chen, C.G. Zhao, *Tetrahedron Letters*, **52** (2011) 6220.
- [38] B.J. Khairnar, R.J. Kapade, K.M. Borse and B.R. Chaudhari, *Oriental Journal of Chemistry*, **26** (2010) 655.
- [39] A. Venkat Narsaiah, A.K. Basak, K. Nagaiah, *Synthesis*, **8** (2004) 1253.
- [40] M.M. Heravi, F. Derikvand, F.F. Bamoharram, *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, **242** (2005) 173.
- [41] G. Maiti, P. Kundu, C. Guin, *Tetrahedron Letters*, **44** (2003) 2757.
- [42] B. P. Bandgar, V. T. Kamble, S. N. Bavikar, A. Dhavane, *Journal of the Chinese Chemical Society*, **54** (2007) 263.
- [43] S. Asghari, M. Tajbakhsh, *Chinese Chemical Letters*, **22** (2011) 127.
- [44] J.K. Joseph, S.L. Jain, B. Sain, *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, **247** (2006) 99.

- [45] S. Besoluka, M. Kucukislamoglu, M. Nebioglu, M. Zengin, M. Arslan, *Journal of Iranian Chemical Society*, **5**, (2008) 62.
- [46] H. El Badaoui, F. Bazi, R. Tahir, H.B. Lazrek, S. Sebti, *Catalysis Communications*, **6** (2005) 455.
- [47] E.H. Hu, D.R. Sidler, U.H. Dolling, *Journal of Organic Chemistry*, **63** (1998) 3454.