

Министерство образования и науки Российской Федерации
федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования



**«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»**

Направление подготовки/профиль Химические науки/ Органическая химия
Школа природных ресурсов
Отделение химической инженерии

Научно-квалификационная работа

Тема научно-квалификационной работы				
МЕТОДЫ СИНТЕЗА И ХИМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА БИЦИКЛИЧЕСКИХ БИСМОЧЕВИН (ГЛИКОЛЬУРИЛОВ)				

УДК 661.124.091:547.495.2.04

Аспирант

Группа	ФИО	Подпись	Дата
A4-17	ХОАНГ НГОК ФЫОК		

Руководителя профиля подготовки

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Научно-образовательный центр Н.М.Кижнера	ФИЛИМОНОВ ВИКТОР ДМИТРИЕВИЧ	Доктор химических наук, профессор		

Руководитель отделения

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Руководитель отделения химической инженерии	КОРОТКОВА ЕЛЕНА ИВАНОВА	Доктор химических наук, профессор		

Научный руководитель

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Ведущий научный сотрудник лаборатории органического синтеза ТГУ	АБДИГАЛИ АБДИМАНАПОВИЧ БАКИБАЕВ	Доктор химических наук, профессор		

Томск – 2018 г.

АННОТАЦИЯ

Научно-квалификационной работы
«МЕТОДЫ СИНТЕЗА И ХИМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА БИЦИКЛИЧЕСКИХ
БИСМОЧЕВИН (ГЛИКОЛЬУРИЛОВ)»,
выполненной аспирантом Хоанг Нгок Фьюок

Химия бициклических бисмочевин среди азотсодержащих гетероциклических соединений отличает, прежде всего, их каркасное строение и наличие в этих молекулах многофункциональных реакционных центров. Благодаря своей полифункциональности бициклические бисмочевины занимают достойное место в химии других азотсодержащих гетероциклов. На сегодняшний день среди этого круга соединений найдены вещества с широким кругом ценных свойств: присадки к полимерам, лекарственные препараты, взрывчатые вещества и множество других. Среди последних особо необходимо отметить то обстоятельство, что в последние десятилетия одним из интенсивно развивающихся направлений в химии гликолурилов является синтез и изучение на их основе супрамолекулярных соединений. Так, гликолурилы выступают базовыми компонентами таких полициклических конденсированных систем как кукурубитурилы и бамбусурилы, обладающих рядом уникальных физико-химических свойств.

Однако, несмотря на такое разнообразие химии бициклических бисмочевин одним из малоизученных направлений является синтез и исследование их тетраацилпроизводных, в результате которых можно ожидать новых превращений, следовательно, и соединений с новыми свойствами. Таким образом, выбранное направление исследований несомненно является актуальным.

Обстоятельно проведенный литературный анализ по тематике исследований послужил основанием для написания обзорной статьи, которая направлена для опубликования в журнал «Успехи химии». Аспирантом Хоанг Нгок Фьюок впервые изучены реакции циклических первичных аминов с тетраацетилгликолурилом, приводящие к гладкому и быстрому образованию соответствующих амидов. В

реакциях мочевин с тетраацетилгликолурилом найдены условия, при которых образуется смесь региоизомеров диацетилпроизводных бициклических бисмочевин с преимущественным формированием транс-изомера. Впервые на примере бетулинов показано, что тетраацетилгликолурил является удобным реагентом для О-ацетилирования некоторых природных тритерпеновых спиртов. Научная новизна подкрепляется публикацией результатов исследований в 4-статьях в журналах, рецензируемых ВАК и Scopus.

В ходе выполнения научно-квалификационной работы разработан технологичный метод получения циклических амидов. Предложен новый реагент для О-ацетилирования спиртов. Разработанные способы N- и O-ацетилирования имеют реальную перспективу для их использования в качестве мягкой и селективной защитной группировки биогенных органических субстратов (аминокислот, ферментов, белков, спиртов).

Выполненная работа имеет четко выраженные атрибуты законченного исследования с позиции ее актуальности, новизны, практической значимости и достоверности полученных результатов.

Библиографический список

- 1 Sal'keeva, L. K. Effect of Glycoluril and Its Derivatives on the Flame / L. K. Sal'keeva, A. A. Bakibaev, G. T. Khasanova, Ye. K. Taishibekova, L. M. Sugralina, Ye. V. Minaeva, A. K. Sal'keeva // Russ. J. Appl. Chem. – 2016. – V. 89. – №. 1. – C. 132-139.
- 2 Tiefenbacher, K. A Transparent Photo-Responsive Organogel Based on a Glycoluril Supergelator / K. Tiefenbacher, H. Dube, D. Ajami, J. Rebek Jr. // Chem. Commun. – 2011. – V. 47. – C. 7341-7343.
- 3 Bakibaev, A. A. Amide- and urea-based synthetic anticonvulsants, antihypoxics, and inducers of the hepatic monooxygenase system. IX. Synthesis and search for inducers of the liver cytochrome P-450-dependent monooxygenase system among carbamide-containing heterocyclic compounds / A. A. Bakibaev, R. R. Akhmedzhanov, A. Yu. Yagovkin, T. P. Novozheeva, V. D. Filimonov, A. S. Saratikov // Pharm. Chem. J. – 1993. – V. 27. – P. 401-406.
- 4 Mobinikhaledi, A. TMSCl-catalysed condensation of α -diketone compounds with urea/thiourea derivatives under solvent-free conditions / A. Mobinikhaledi, A. K. Amiri // J. Chem. Sci. – 2013. – V. 125. – P. 1055-1062.
- 5 Бакибаев, А. А. Реакция бис-1,2-дикетонов. III. Региоселективная бициклизация бис-1,2-дикетонов с мочевиной / А. А. Бакибаев, Т. И. Савченко, В. Д. Филимонов, А. Ю. Яговкин, А. Н. Новиков // Журн. орг. химии. – 1988. – Т. 24. – С. 2581-2584.
- 6 Azam, A. A novel dansyl-appended glycoluril-based fluorescence sensor for silver ions / A. Azam, H. M. Chawla, S. Pandey // Tetrahedron Lett. – 2010. – V. 51. – P. 4710-4711.
- 7 Barsegyan, Ya. A. Glycolurils in the synthesis of fused polyheterocyclic compounds / Ya. A. Barsegyan, V. V. Baranov, A. N. Kravchenko // Chem. Heterocycl. Compd. – 2017. – V. 53. – P. 116.
- 8 Gompper, R. Propellanes of the glycoluril series and bridged tetrazocines / R. Gompper, H. Nöth, W. Rattay, M. L. Schwarzensteiner, P. Spes, H. U. Wagner //

Angew. Chem. Int. Ed. Engl. – 1987. – V. 26. – P. 1039-1041.

9 Li, J. T. Synthesis of glycoluril catalyzed by potassium hydroxide under ultrasound irradiation / J. T. Li, X. R. Liu, M. X. Sun // Ultrason. Sonochem. – 2010. – V. 17. – P. 55-57.

10 Vessally, E. Synthesis of the glycoluril derivatives by the HZSM-5 nanozeolite as a catalyst / E. Vessally, M. D. Esraéli, Z. Alimadadi, M. Rouhani // Green Chem. Lett. Rev. – 2014. – V. 7. – P. 119.

11 Mandadapu, V. Fe(OTf)3 versus Bi(OTf)3 as Mild Catalysts in Epoxide Oxidative Ring-Opening, Urea α -Diketone Condensation, and Glycoluril Diether Synthesis / V. Mandadapu, F. Wu, A. I. Day // Org. Lett. – 2014. – V. 16. – P. 1275-1277.

12 Shin, M. Synthesis of novel 2,4,6,8,10-pentaaza[3.3.3]propellane derivatives / M. Shin, M. H. Kim, T. H. Ha, J. Jeon, K. H. Chung, J. S. Kim, Y. G. Kim // Tetrahedron. – 2014. – V. 70. – P. 1617-1620.

13 Witt, D. Diastereoselective Formation of Methylene-Bridged Glycoluril Dimers / D. Witt, J. Lagona, F. Damkaci, J. C. Fettinger, L. Isaacs // Org. Lett. – 2000. – V. 2. – P. 755-758.

14 Gautam, S. Synthesis of unsymmetrically substituted hexahydroimidazo [4, 5-d] imidazole-2, 5-diones and elucidation of reaction pathways / S. Gautam, R. Ketcham, J. Nematollahi // Synth. Commun. – 1979. – V. 9. – P. 863-870.

15 Wu, A. Glycoluril Derivatives from hydrogen bonded tapes rather than cucurbituril congeners / A. Wu, J. C. Fettiger, L. Isaacs // Tetrahedron. – 2002. – V. 58. – P. 9769-9778.

16 Micheletti, G. A green synthesis of glycoluril derivatives in aqueous solution with recycle of the waste / G .Micheletti, C. Delpivo, G. Baccolini // Green Chem. Lett. Rev. – 2013. – V. 6. – P. 135.

17 Tayebee, R. A New and Efficient Method for the Preparation of 2,4,6,8-tetraazabicyclo[3.3.0]octane-3,7-diones (Glycolurils) / R. Tayebee, R. S. Esmaeil, M. Behrooz // Lett. Org. Chem. – 2012. – V. 9. – P. 183-191.

18 Kravchenko, A. N. Synthesis of new chiral mono-, di-, tri-, and tetraalkylglycolurils / A. N. Kravchenko, A. S. Sigachev, E. Yu. Maksareva, G. A.

Gazieva, N. S. Trunova, B. V. Lozhkin, T. S. Pivina, M. M. Il'in, K. A. Lyssenko, Yu. V. Nelyubina, V. A. Davankov, O. V. Lebedev, N. N. Makhova, V. A. Tartakovskiy // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2005. – V. 54. – P. 691-704.

19 Butler, A. R. Mechanistic studies in the chemistry of urea. Part 8. Reactions of urea, 1-methylurea, and 1,3-dimethylurea with some acyloins and butane-2,3-dione (diacetyl) in acid solution. / A. R. Butler, I. Hussain // J. Chem. Soc. Perkin Trans. – 1981. – V. 2. – P. 310-316.

20 Pryor, K. E. Multifunctionalized glycolurils / K. E. Pryor, J. Rebek // Org. Lett. – 1999. – V. 1. – P. 39-42.

21 Kravchenko, A. N. Regioselective reactions of N-(carboxyalkyl)- and N-(aminoethyl)ureas with glyoxal and 1,2-dioxo-1,2-diphenylethane / A. N. Kravchenko, V. V. Baranov, G. A. Gazieva, I. E. Chikunov, Yu. V. Nelyubina // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2014. – V. 63. – P. 416.

22 Kostyanovsky, R. G. Chiral glycouril, 2,6-diethyl-2,4,6,8-tetraazabicyclo[3.3.0]octane-3,7-dione: spontaneous resolution, reactivity and absolute configuration / R. G. Kostyanovsky, K. A. Lyssenko, G. K. Kadorkina, O. V. Lebedev, A. N. Kravchenko, I. I. Chervin, V. R. Kostyanovsky // Mendeleev Commun. – 1998. – V. 8. – P. 231-233.

23 Kostyanovsky, G. Crystal properties of N-alkyl-substituted glycolurils as the precursors of chiral drugs / G. Kostyanovsky, K. A. Lyssenko, A. N. Kravchenko, O. V. Lebedev, G. K. Kadorkina, V. R. Kostyanovsky // Mendeleev Commun. – 2001. – V. 11. – P. 134-136.

24 Stancl, M. Glycoluril Dimers Bearing Hydrogen Atoms on Their Convex Face and Their Self-Assembly in the Solid State / M. Stancl, M. Necas, J. Taraba, V. Sindelar // J. Org. Chem. – 2008. – V. 73. – P. 4671-4675.

25 Koppes, M. W. Synthesis and structure of some peri-substituted 2,4,6,8-tetraazabicyclo[3.3.0]octanes / M. W. Koppes, M. Chaykovsky, H. G. Adolph, R. Gilardi, C. George // J. Org. Chem. – 1987. – V. 52. – P. 1113- 1119.

26 Grillon, E. Isolation and X-ray structure of the intermediate dihydroxyimidazolidine(DHI) in the synthesis of glycoluril from glyoxal and urea / E.

Grillon, R. Gallo, M. Pierrot, J. Boileau, E. Wimmer // Tetrahedron Lett. – 1988. – V. 29. – P. 1015-1016.

27 Saloutina, L. V. Synthesis of Fluorine-Containing Imidazolidin-2-Ones, Glycolurils, and Hydantoins Based on Perfluorodiacetyl and Ureas / L. V. Saloutina, A. Ya. Zapevalov, P. A. Slepukhin, M. I. Kodess, V. I. Saloutin, O. N. Chupakhin // Chem. Heterocycl. Compd. – 2014. – V. 50. – P. 958-966.

28 Chegaev, K. Yu. New functional glycoluril derivatives / K. Yu. Chegaev, A. N. Kravchenko, O. V. Lebedev, Yu. A. Strelenko // Mendeleev Commun. – 2001. – P. 32-33.

29 Kravchenko, A. N. Synthesis of 2-monofunctionalized 2,4,6,8-tetraazabicyclo[3.3.0]octane-3,7-diones / A. N. Kravchenko, E. Yu. Maksareva, P. A. Belyakov, A. S. Sigachev, K. Yu. Chegaev, K. A. Lyssenko, O. V. Lebedev, N. N. Makhova // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2003. – V. 52. – P. 192-197.

30 Kravchenko, A. N. 4,5-Dihydroxyimidazolidin-2-ones in the α -ureidoalkylation reaction of N-(carboxyalkyl)-, N-(hydroxyalkyl)-, and N-(aminoalkyl)ureas 1. α -Ureidoalkylation of N-(carboxyalkyl)ureas / A. N. Kravchenko, K. A. Lyssenko, I. E. Chikunov, P. A. Belyakov, M. M. Il'in, V. V. Baranov, Yu. V. Nelyubina, V. A. Davankov, T. S. Pivina, N. N. Makhova, M. Yu. Antipin // Russ. Chem. Bull. Int. Ed, - 2009. – V. 58. – P. 395-405.

31 Kravchenko, A. N. Chemistry of ureido carboxylic and ureylene dicarboxylic acids / A. N. Kravchenko, I. E. Chikunov // Russ. Chem. Rev. – 2006. – V. 75. – P. 191-206.

32 Kravchenko, A. N. 4,5-Dihydroxyimidazolidin-2-ones in α -ureidoalkylation of N-carboxy-, N-hydroxy-, and N-aminoalkylureas 2. α -Ureidoalkylation of N-(hydroxyalkyl)ureas / A. N. Kravchenko, A. S. Sigachev, P. A. Belyakov, M. M. Ilyin, K. A. Lyssenko, V. A. Davankov, O. V. Lebedev, N. N. Makhova, V. A. Tartakovskiy // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2009. – V. 58. – P. 1264-1269.

33 Lyssenko, K. A. New conglomerate in the series of glycoluriles / K. A. Lyssenko, D. G. Golovanov, A. N. Kravchenko, E. Chikunov, O. V. Lebedev, N. N. Makhova // Mendeleev Commun. – 2004. – P. 105-107.

- 34 Gazieva, G. A. 4,5-Dihydroxyimidazolidin-2-ones in an α -ureidoalkylation reaction of N-(carboxyalkyl)-, N-(hydroxyalkyl)-, and N-(aminoalkyl)ureas 3. α -Ureidoalkylation of N-[2-(dimethylamino)ethyl]urea / G. A. Gazieva, P. V. Lozhkin, V. V. Baranov, Yu. V. Nelyubina, A. N. Kravchenko, N. N. Makhova // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2009. – V. 58. – P. 2488-2493.
- 35 Gazieva, G. A. 4,5-Dihydroxyimidazolidin-2-ones in α -ureidoalkylation of N-carboxyalkyl-, N-hydroxyalkyl-, and N-(aminoalkyl)ureas 4. α -Ureidoalkylation of N-(2-acetylaminoethyl)ureas / G. A. Gazieva, P. V. Lozhkin, V. V. Baranov, A. N. Kravchenko, N. N. Makhova // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2010. – V. 59. – P. 642-646.
- 36 Chikunov, I. E. Synthesis of (S)-N-hydantoinoalkylglycoluriles by one-pot double cyclisation of chiral α,ω -diureido acids under the action of 4,5-dihydroxyimidazolidin-2-ones / I. E. Chikunov, A. N. Kravchenko, P. A. Belyakov, O. V. Lebedev, N. N. Makhova // Mendeleev Commun. – 2005. – V. 15. – P. 67-69.
- 37 Kravchenko, A. N. Highly diastereoselective synthesis of 2-monosubstituted 1R,5S(1S,5R)-glycoluriles on the basis of S- and R-N-carbamoyl- α -amino acids / A. N. Kravchenko, K. Yu. Chegaev, I. E. Chikunov, P. A. Belyakov, E. Yu. Maksareva, K. A. Lyssenko, O. V. Lebedev, N. N. Makhova. Mendeleev Commun. – 2003. – V. 13. – P. 269-271.
- 38 Chikunov, I. E. Synthesis of 1S,5R- and 1R,5S-glycoluriles by diastereospecific α -ureidoalkylation of (S)/(R)-N-carbamoyl- α -amino acids with 4,5-dihydroxyimidazolidin-2-one / I. E. Chikunov, A. N. Kravchenko, P. A. Belyakov, K. A. Lyssenko, V. V. Baranov, O. V. Lebedev, N. N. Makhova // Mendeleev Commun. – 2004. – V. 14. – P. 253-255.
- 39 Broan, C. J. Mechanistic studies in the chemistry of thiourea. Part 1. Reaction with benzil under alkaline conditions / C. J. Broan, A. R. Butler, D. Reed, I. H. Sadler // J. Chem. Soc. Perkin Trans. – 1989. – V. 2. – P. 731-740.
- 40 Correia, H. D. Easy Synthesis of trans-4,5-dihydroxy-2-imidazolidinone and 2,4-dimethylglycoluril / H. D. Correia, R. S. Cicolani, R. F. Moral, G. J. F. Demets // Synthesis. – 2016. – V. 48. – P. 210-212.
- 41 Svec, J. Anion-Free Bambus [6] uril and Its Supramolecular Properties / J.

Svec, M. Dusek, K. Fejfarova, P. Stacko, P. Klán, A. E. Kaifer, W. Li, E. Hudeckova, V. Sindelar // Chem. Eur. J. – 2011. – V. 17. – P. 5605.

42 Rivollier, J. Extension of the Bambus[n]uril Family: Microwave Synthesis and Reactivity of Allylbambus[n]urils / J. Rivollier, P. Thuéry, M. P. Heck // Org. Lett. – 2013. – V. 15. – P. 480-483.

43 Kravchenko, A. N. Two-step α -ureidoalkylation of ureas with 4,5-dihydroxyimidazolidin-2-ones / A. N. Kravchenko, G. A. Gazieva, A. S. Sigachev, E. Yu. Maksareva, K. A. Lyssenko, N. N. Makhova // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2007. – V. 56. – P. 148-153.

44 Kravchenko, A. N. New condensation methods in the synthesis of bicyclic bisureas / A. N. Kravchenko, O. V. Lebedev, E. Yu. Maksareva // Mendeleev Commun. – 2000. – V. 10. – P. 27-28.

45 Gazieva, G. A. 4,5-Dihydroxyimidazolidin-2-ones in α -ureidoalkylation of N-carboxyalkyl-, N-hydroxyalkyl-, and N-aminoalkylureas 5. Synthesis of N-hydroxyalkyl-1,5-diphenylglycolurils / G. A. Gazieva, V. V. Baranov, A. N. Kravchenko // Russ. Chem. Bull. Int. Ed. – 2010. – V. 59. – P. 1296-1299.

46 Baranov, V. V. 4,5-Dihydroxyimidazolidin-2-ones in the reaction of α -ureidoalkylation of N-(carboxyalkyl)-, N-(hydroxyalkyl)-, and N-(aminoalkyl)ureas / V. V. Baranov, Yu. V. Nelyubina, A. N. Kravchenko, N. N. Makhova // Russ. Chem. Bull. Int. Ed., - 2010. – V. 59. – P. 1427-1432.

47 Ivanov, E. V. Temperature-dependent thermochemical properties of the Mebicaret (2,4-dimethyl-6,8-diethylglycoluril) solutions in H₂O and D₂O at the ambient pressure / E. V. Ivanov, D. V. Batov, V. V. Baranov, A. N. Kravchenko // Thermochim. Acta. – 2016. – V. 48. – P. 627-629.

48 Takahashi, M. Synthesis of Imidazo (4,5-d) imidazole-2,5-dithiones by Criss-Cross Addition Reaction of 1,4-Diaza-1,3-dienes to Isothiocyanatotrimethylsilane / M. Takahashi, S. Miyadai // Heterocycles. – 1990. – V. 31. – P. 883.

49 Sakamoto, M. Reaction of conjugated systems containing nitrogen. IV. Reaction of conjugated 1,2-diimines with isocyanates / M. Sakamoto, Y. Tomimatsu, K. Miyazawa, K. Tokoro // Yakugaku zasshi: J. Pharm. Soc. Jpn. – 1972. – V. 92. – P. 1462-

- 50 Бакибаев, А. А. Синтетические антиконвульсанты, антигипоксанты и индукторы монооксигеназной системы печени на основе амидов и мочевин. IX. Синтез и поиск индукторов монооксигеназной системы печени среди карбамидсодержащих гетероциклов / А. А. Бакибаев, Р. Р. Акмеджанов, А. Ю. Яговкин, Т. П. Новожеева, В. Д. Филимонов, А. С. Саратников // Хим. фарм. журн. – 1993. - Т. 27. - № 6. - С. 29-33.
- 51 Черных, В.П. Дизайн, синтез и фармакологические исследования производных дикарбоновых кислот / В. П. Черных // Кислород- и серосодержащие гетероциклы. Труды II Международной конференции «Химия и биологическая активность кислород- и серосодержащих гетероциклов». – 2003. – Т. 1. – С. 451.
- 52 Пат. № 1675300 СССР, МПК C07D 487/04. Способ получения поли-*n*-хлорированных бициклических мочевин / Яговкин А. Ю., Бакибаев А. А., Филимонов В. Д.; заявитель и патентообладатель ГОУ ВПО Томский политехнический университет им. С. М. Кирова. - № 4709947; заявл. 26.06.1989; опубл. 07.09.1991. Бюл. № 33. 4с.
- 53 Хургин, Ю. И. Межмолекулярные взаимодействия в водных растворах мебикара / Ю. И. Хургин, О. В. Лебедев, Е. Ю. Максарева, В. А. Завизион, В. А. Кудряшова, М. М. Воробьев, Г. А. Орехова, А. Н. Даниленко // Изв. АН. Сер. Хим. – 1995. – С. 1178-1179.
- 54 Прокопов А. А. Экспериментальная фармакокинетика альбикара / А. А. Прокопов, Н. В. Костеболов, А. С. Берлянд // Хим.фарм. журн. – 2002. - Т. 36. - № 3. - С. 13-16.
- 55 Brouilette, W. J. Bicyclic Hydantoins with a Bridgehead Nitrogen. Comparison of Anticonvulsant Activities with Binding to the Neuronal Voltage-Dependent Sodium Channel / W. J. Brouilette, V. P. Jestkov, M. L. Brown, M. S. Akhar // J. Med. Chem. – 1994. – V. 37. – P. 3289-3293.
- 56 Яговкин, А. Ю. Синтез бициклических бисмочевин октанового ряда и производных имидазола с использованием мочевины и исследование их химических свойств: автореф. дис. ... канд. хим. наук: 02.00.03 / А. Ю. Яговкин. –

Томск, 1994. – 139 с.

57 Groutas, W.C. Unexpected Cyclization of Dipyridyl-glycoluril in the Presence of Formaldehyde and Strong Acid: A New Scaffold with a Potential as an Anion Receptor / W. C. Groutas, R. Kuang, R. Venkataraman // Biochem. Biophys. Res. Commun. – 1994. – V. 198. – P. 341.

58 Lagona, J. Review. The Cucurbit[n]uril Family / J. Lagona, P. Mukhopadhyay, S. Chakrabarti, L. Isaacs // Angew. Chem. Int. Ed. – 2005. - № 44. – P. 4844–4870.

59 Пат. № 2063970 Российской Федерации. МПК C07D487/08. Способ получения 2,4,6,8-тетраазобицикло[3.3.0]октан-3,7-диона / Шелудяков О.А., Яговкин А.Ю., Бакибаев А.А., Филимонов В.Д., Сологуб А.П., Бычков И.А., Новожеева Т.П.; заявитель и патентообладатель Товарищество с ограниченной ответственностью "Ост-Вест". - № 93032710/04; заявл. 23.06.93; опубл. 20.07.96, Бюл. № 20.

60 Пат. 5138061 США. Thioacylating reagents / Bellau B., Brillon D., Dacharie B. РЖХим. 1993. - 180109П.

61 Пат. 2220690 ФРГ. Acylierungsverfahren / Kulhling, D., Hase C. 1973.

62 Boileau, J. Methodes de Preparation de Derives Nitres et Nitroacetyles du glycolurile (I) / J. Boileau, E. Wimmer, M. Carail, R. Gallo // Bull. Soc. Chim. France. – 1986. – P. 465-469.

63 Пат. № 491619 СССР. МПК: C07C 127/00. Способ получения 2,4,6,8-тетраметил-2,4,6,8 тетраазабицикло-[3,3,0]-октандиона-3,7 / С. С. Новиков, Л. И. Хмельницкий, О. В. Лебедев, Л. В. Епишина, В. Д. Крылов, Л. В. Лапшина, А. Л. Фридман, Л. Л. Срибная, В. Д. Сурков, В. И. Беньяш, В. В. Филатова, А. А. Меркулова, В. А. Завадье; заявитель и патентообладатель институт органической химии АН СССР им. Н. Д. Зелинского и Московский салициловый завод. - № 1837015/23; заявл. 15.11.75; опубл. 15.03.76, Бюл. № 42.

64 Лебедев, О. В. Целенаправленный поиск новых нейротропных препаратов / О. В. Лебедев, Л. И. Хмельницкий, Л. В. Епишина, Л. И. Суворова и др. // Знание Рига. – 1983. – С. 81-94.

- 65 Бакибаев, А. А. Исследование ферментиндуцирующих свойств алкил- и фенил-алкилмочевин / А. А. Бакибаев, Р. Р. Акмеджанов, А. Ю. Яговкин, Т. П. Новожеева, В. Д. Филимонов, А. С. Саратников // Хим.-фарм. журнал – 1993. – Т.27. – №7. – С. 29.
- 66 Бакибаев, А. А. Мочевины в органическом синтезе / А. А. Бакибаев, А. Ю. Яговкин, В. Д. Филимонов // ЖОРХ. – 1991. – Т. 27. - № 7. – С. 1512-1519 .
- 67 Яговкин, А. Ю. Реакции дифеновой кислоты с мочевинами как путь к ациклическим и циклическим амидам дифеновой кислоты / А. Ю. Яговкин, А. А. Бакибаев, В. А. Яновский, Д. М. Батурина // Изв. Томского политехн. Университета. – 2007. - Т. 310. – С. 152-157.
- 68 Суворова Л.И., Ересько В.А., Епишина Л.В., Лебедев О.В., Хмельницкий Л. И., Новиков С. С., Повстяной М. В., Крылов В. Д., Короткова Г. В., Лапшина Л. В., Кулик А. Ф. Изв. АН СССР. Сер. хим. – 1979. – Т. 6 – С. 1306-1313.
- 69 Газиева, Г. А. Синтез и строение 5(3Н)-оксотетрагидро-1Н-имидаzo[4,5-с]. [1,2,5]тиадиазол-2,2-диоксидов / Г. А. Газиева, А. Н. Кравченко, К. А. Лысенко, Р. Г. Газиева, О. В. Лебедев, Н. Н. Махова // Изв. АН. Сер. хим. – 2008. – С. 1711-1719.
- 70 Газиева, Г. А. Синтез сульфоаналогов 2,4,6,8-тетраазабицикло[3.3.0]октан-3,7-дионов / Г. А. Газиева, А. Н. Кравченко, О. В. Лебедев // Хим. фарм. Журнал. – 2001. – Т. 2. - № 35. – С. 14-15.
- 71 Kostyanovsky, R. G. Chiral drugs via the spontaneous resolution / R. G. Kostyanovsky, G. K. Kadorkina, K. A. Lyssenko, V. Yu. Torbeev, A. N. Kravchenko, O. V. Lebedev // Mendeleev Commun. – 2002. – Т. 12. – Р. 6-8.
- 72 Assaf, K. I. Cucurbiturils: from synthesis to high-affinity binding and catalysis / K. I. Assaf, W. M. Nau // Chem. Soc. Rev. – 2015. – V. 44. – P. 394–418.
- 73 Barrow, S. J. Cucurbituril-based molecular recognition / S. J. Barrow, S. Kasera, M. J. Rowland, J. del Barrio, O. A. Scherman // Chem. Rev. – 2015. – V. 115 – P. 12320–12406.
- 74 Miyahara, Y. Remarkably facile ring-size control in macrocyclization:

Synthesis of hemicucurbit[6]uril and hemicucurbit[12]uril / Y. Miyahara, K. Goto, M. Oka, T. Inazu // *Angew. Chem. Int. Ed.* – 2004. – V. 43. – P. 5019–5022.

75 Li, Y. Solvent effect on pseudopolymorphism of hemicyclohexylcucurbit[6]uril / Y. Li, L. Li, Y. Zhu, X. Meng, A. Wu // *Cryst. Growth Des.* – 2009. – V. 9. – P. 4255–4257.

76 Aav, R. New chiral cyclohexylhemicucurbit[6]uril / R. Aav, E. Shmatova, I. Reile, M. Borissova, F. Topic', K. Rissanen // *Org. Lett.* – 2013. – V. 15. – P. 3786–3789.

77 Prigorchenco, E. Template-controlled synthesis of chiral cyclohexylhemicucurbit [8] uril / E. Prigorchenco, M. Öeren, S. Kaabel, M. Fomits'enko, I. Reile, I. Järving, T. Tamm, F. Topic', K. Rissanen, R. Aav // *Chem. Commun.* – 2015. – V. 51. – P. 10921–10924.

78 Fiala, T. Synthesis of norbornahemicucurbiturils / T. Fiala, V. Sindelar // *Synlett.* – 2013. – V. 24. – P. 2443–2445.

79 Lisbjerg, M. Anion binding by biotin[6]uril in water / M. Lisbjerg, B. E. Nielsen, B. O. Milhøj, S. P. A. Sauer, M. Pittelkow // *Org. Biomol. Chem.* – 2015. – V. 13. – P. 369–373.

80 Lagona, J. The cucurbit[n]uril family / J. Lagona, P. Mukhopadhyay, S. Chakrabarti, L. Isaacs // *Angewandte Chemie International Edition*. – 2005. – V. 44, - P. 4844 – 4870.

81 Behrend, R. Ueber condensationsproducte aus glycoluril und formaldehyde / R. Behrend, E. Meyer, F. Rusche // *Justus Liebig's Annalen der Chemie.* – 1905. – V. 339. – P. 1–37.

82 Freeman, W. A. Cucurbituril / W. A. Freeman, W. L. Mock, N. Y. Shih // *J. Am. Chem. Soc.* – 1981. – V. 103. – P. 7367-7368.

83 Lee, J. W. Cucurbituril Homologues and Derivatives: New Opportunities in Supramolecular Chemistry / J. W. Lee, S. Samal, N. Selvapalam, H. J. Kim, K. Kim // *Chem. Res.* – 2003. – V. 36. – P. 621-630.

84 Cheng, X. J. Twisted cucurbit[14]uril / X. J. Cheng, L. L. Liang, K. Chen, N. N. Ji, X. Xiao, J. X. Zhang, Y. Q. Zhang et al. // *Angewandte Chemie International Edition*. – 2013. – V. 125. – P. 7393–7396.

- 85 Day, A. I. A cucurbituril-based gyroscane: A new supramolecular form / A. I. Day, R. J. Blanch, A. P. Arnold, S. Lorenzo, G. R. Lewis, I. Dance // Angew. Chem. Int. Ed. – 2002. – V. 41. – P. 275-277.
- 86 Liu, S. Cucurbit[10]uril / S. Liu, P. Y. Zavalij, L. Isaacs // J. Am. Chem. Soc. – 2005. – V. 127. – P. 16798–16799.
- 87 Kuhling, D. Über die acylierung von glykourilen / D. Kuhling // Liebigs Ann. Chem. – 1973. – P. 263-277.
- 88 Hase, Ch. Umsetzung von tetraacetylglykouril mit nucleophilen / Ch. Hase, D. Kuhling // Liebigs Ann. Chem. – 1975. – P. 95-102.
- 89 Wang, G.W. Mechanochemical organic synthesis // G.W. Wang // Chem. Soc. Rev. – 2013. – V. 42. – P. 7668-7700.
- 90 James, S.L. Mechanochemistry / S.L. James, T. Friscic. // Chem. Soc. Rev. – 2013. – V. 42. – P. 7494-7496.
- 91 Khan, M.S.A. 1,6-Dibenzylglycoluril for synthesis of deprotected glycoluril dimer / M.S.A. Khan, V. Sindelar. // Tetrahedron. – 2011. – V. 67. – P. 8937-8941.
- 92 Бакибаев, А.А. Препаративные методы синтеза азотсодержащих соединений на основе мочевин / А.А. Бакибаев, Е.А. Мамаева, В.А. Яновский, Е.Л. Быстрицкий, А.Ю. Яговкин // Томск: Аграф-Пресс. – 2007. – Р. 124.
- 93 Бакибаев, А.А. Механохимическая активация реакций тетраацетилгликолурила с некоторыми первичными аминами, содержащими циклический фрагмент – Путь к соответствующим ацетиламидам / А.А. Бакибаев, Н.Ф. Хоанг, В.В. Мамонтов // Журн.орган.химии. – 2018. – Т. 4. – С. 663.
- 94 Azizi, N. Eco-efficiency scalable synthesis of bisamides in deep eutectic solvent / N. Azizi, M. Alipour // Journal of Molecular Liquids. – 2015. – V. 206. – P. 268-271.
- 95 Kappe, C.O. 100 Years of the biginelli dihydropirimidines synthesis / C.O. Kappe // Tetrahedron. – 1993. – V. – V. 49. – P. 6937-6963.
- 96 Arrous, Salah. Convenient and Mild Method for Acylation of Betulin using Tetraacetyl Glycoluril / Salah Arrous, Abdigali Bakibaev, Phuoc Hoang, Imene Boudebouz, Viktor Malkov // International Journal of Chem. Tech. Research. – 2018. –

V. 11. – P. 285-294.

- 97 Пат. 2697714 США. Production of tetramethylol glycoluril / Goodman H.G. Chem. Abstr. 1955. – 73683.
- 98 Tice, C. M., Ganem, B. // J. Org. Chem. – 1983. – V. 48. – P. 2106-2108; (b) Kalisiak, J.; Trauger, S. A.; Kalisiak, E.; Morita, H.; Fokin, V. V.; Adams, M. W. W.; Sharpless, K. B.; Siuzdak // G. J. Am. Chem. Soc. - 2009. - V. 131. - P. 378-386.
- 99 Biltz, H. Zur Kenntnis der Diureine / H. Biltz // Ber. Deutsch. Chem. Ges. – 1907. – V. 40. – P. 4806-4816.
- 100 Angel A. // Gazz. Ital. - 1889. - V.19. - P.593.
- 101 J. Hofmann, G. Just, D. Moya, S. Ostermann, W. Pritzkow, M.P. Visotkea // J. fur. prakt. Chemie. – 1990. – P. 176-180.
- 102 Whittaker, V.P. The separation of esters of choline by filter-paper chromatography / V.P. Whittaker, S. Wijesundera // Biochem. J. – 1952. – V. 51. – P. 348-351.
- 103 Пат. 1909877 ФРГ Verfahren zur Herstellung von Acetylglukolurilen / D. Kuhling. РЖХим. 1974. - 22H231П.
- 104 Пат. 3825543 США. N-acylated tetraaza-bicyclo-nonandiones and compositions for activating oxygen / D. Kuhling, H. Bloching. 1974.
- 105 Пат. 2050358 РФ. Способ получения 2,4,6,8-тетраацетил-2,4,6,8-тетраазабицикло-[3.3.0]октан-3,7-диона / А.Ю. Яговкин, А.А. Бакибаев, В.Д. Филимонов. РЖХим. 1991.