

[Chem. Pharm. Bull.]
32(2) 452-456 (1984)

Imidazo[4,5-*c*]carbazoles: Synthèse et Étude des Spectres de Résonance Magnétique Nucléaire

JEAN-CHARLES LANCELOT, SYLVAIN RAULT et MAX ROBBA

*Laboratoire de Chimie Thérapeutique, U.E.R. des Sciences Pharmaceutiques,
Université de Caen, 1, rue Vaubénard-14032 Caen Cédex France*

(Reçu le 2 juin 1983)

Imidazo[4,5-*c*]carbazoles are prepared by intramolecular cyclisation of 3,4-diamino 9-ethylcarbazole and its derivatives. Proton magnetic resonance (^1H NMR) spectra are studied to confirm the proposed structures.

Keywords—carbazole; imidazo[4,5-*c*]carbazole; intramolecular cyclisation; ^1H NMR

Dans le cadre de nos travaux portant sur la synthèse de composés polycycliques plans à visée antinéoplasique résultant de l'accolement de cycles azotés au thiophène,¹⁾ au benzothiophène,²⁾ au benzofuranne,²⁾ à la quinazoline,³⁾ au dibenzofuranne⁴⁾ et au carbazole,⁵⁾ nous avons récemment décrit l'accès vers de nouveaux dérivés nitrés et aminés du carbazole et de l'éthyl-9 carbazole.^{5,6)} Ceux-ci sont utilisés ici dans la synthèse de composés hétérocycliques nouveaux, les imidazo[4,5-*c*]carbazoles.

Ils sont accessibles à partir de l' amino-3 éthyl-9 nitro-4 carbazole (1)¹⁾ ou de l' amino-3 éthyl-9 dinitro-4,6 carbazole (2).¹⁾ (Tableau I).

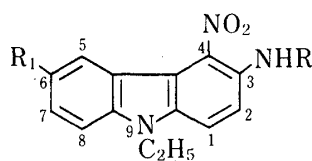
L'hydrogénation du formamido-3 nitro-4 carbazole (3) au moyen d'hydrazine en présence de Nickel de Raney fournit l' amino-4 formamido-3 carbazole (7) qui libère le diamino-3,4 carbazole (6) par chauffage dans l'hydroxyde de sodium. Ce dernier peut également être obtenu par hydrogénation, dans les mêmes conditions que précédemment, de l' amino-3 nitro-4 carbazole (1).

L'éthyl-6 3*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole (10) peut être synthétisé à partir de l' amino-4 formamido-3 carbazole (7) par chauffage au reflux dans l'éthanol en présence d'acide chlorhydrique, par chauffage sans solvant, ou également par traitement de la diamine (6) au reflux de l'acide formique. La tautomérie inhérente à l'imidazole permet l'écriture sous la forme 1*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole, ou sous la forme 3*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole. Lorsque la diamine (6) est traitée par l'anhydride acétique, elle conduit à l'acétyl-3 méthyl-2 3*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole (11) qui libère après désacétylation en milieu chlorhydrique le méthyl-2 3*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole (12).

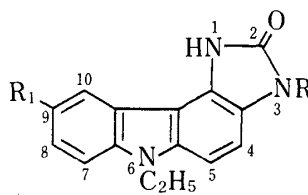
La structure du dérivé acétylé en position 3 (11) a pu être précisée par analyse du spectre de résonance magnétique nucléaire (RMN), qui montre un signal très déblindé pour le proton H4, déblindage qui est à mettre au compte de l'anisotropie du groupement carbonyle spatialement proche. (Tableau II et III). Des influences semblables ont déjà été observées sur des structures analogues telles que l'acétyl-1 imidazole ou l'acétyl-1 benzimidazole.⁷⁾ En ce qui concerne le proton H2 des imidazo[4,5-*c*]carbazoles (10) et (15), la comparaison avec les valeurs des protons H2 de l'imidazole^{8,9)} ou du benzimidazole¹⁰⁾ ne révèle pas de différence significative.

Le traitement de la diamine (6) par le phosgène dans le toluène fournit par ailleurs le dihydro-2,3 oxo-2 1*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole (13). Ce composé peut également être obtenu par l'intermédiaire du dérivé formamidé (14) provenant de la cyclisation de l' amino-4

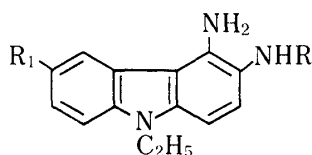
TABLEAU I



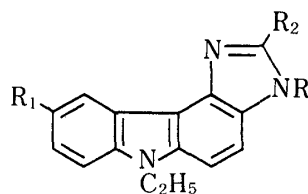
- 1 : R = R₁ = H
 2 : R = H, R₁ = NO₂
 3 : R = CHO, R₁ = H
 4 : R = CHO, R₁ = NO₂
 5 : R = COCH₃, R₁ = NO₂



- 13 : R = R₁ = H
 14 : R = CHO, R₁ = H
 17 : R = CHO, R₁ = NCO
 18 : R = COCH₃, R₁ = NCO
 19 : R = COCH₃, R₁ = NHCO₂C₂H₅



- 6 : R = R₁ = H
 7 : R = CHO, R₁ = H
 8 : R = CHO, R₁ = NH₂
 9 : R = COCH₃, R₁ = NH₂



- 10 : R = R₁ = R₂ = H
 11 : R = COCH₃, R₁ = H, R₂ = CH₃
 12 : R = R₁ = H, R₂ = CH₃
 15 : R = R₂ = H, R₁ = NH₂
 16 : R = H, R₂ = CH₃, R₁ = NH₂

TABLEAU II. Paramètres RMN Relatifs aux Dérivés du Carbazole

Composé	δ Protons carbazoliques						δ Autres protons
	H-1	H-2	H-5	H-6	H-7	H-8	
6	7,36	7,36	7,36	7,36	7,36	7,36	NH ₂ = 6,83 CH ₂ = 4,46 CH ₃ = 1,26
7	7,26	7,26	8,30	7,26	6,76	7,26	NH = 9,33 NH ₂ = 5,33 CH ₂ = 4,33 CH ₃ = 1,26 CHO = 8,30
8	7,30	7,30	7,70	—	6,90	7,03	NH = 4,78 NH ₂ = 3,38 CH ₂ = 4,13 CH ₃ = 1,23 CHO = 7,30

formamido-3 carbazole (7) dans les mêmes conditions que précédemment. La déformylation du dérivé (14) peut être réalisée soit au reflux d'une solution d'acide chlorhydrique dans l'éthanol, soit par chauffage sans solvant.

Il est intéressant de noter que l'on relève, sur le spectre de RMN du formamido-3 dihydro-2,3 oxo-2 1*H*,6*H*-imidazo[4,5-*c*]carbazole (14) dont la structure ne présente pas d'ambiguïté, un déblindage du proton H4 analogue à celui observé dans le cas du dérivé (11).

Lorsque les réactions que nous venons de décrire sont menées à partir du diamino-4,6 éthyl-9 formamido-3 carbazole (8) ou de l'acétamido-3 diamino-4,6 éthyl-9 carbazole (9) provenant respectivement de la réduction des dérivés dinitrés correspondant (4) et (5). Elles

TABLEAU III. Paramètres RMN Relatifs aux Dérivés Imidazocarbazoliques

Composé	δ Protons carbazoliques							δ Autres protons
	H-2	H-4	H-5	H-7	H-8	H-9	H-10	
10	8,25	7,70	7,40	7,40	7,15	7,40	8,48	NH=7,40 CH ₂ =4,50 CH ₃ =1,31
11	—	7,98	7,48	7,48	7,16	7,48	8,31	CH ₃ =2,83 CHCH ₃ =2,96 CH ₂ =4,46 CH ₃ =1,38
12	—	7,51	7,28	7,28	7,08	7,28	8,40	NH=7,28 CH ₃ =2,60 CH ₂ =4,40 CH ₃ =1,30
13	—	7,48	7,30	7,05	7,05	7,05	8,40	NH=11,23 et 10,48 CH ₂ =4,36 CH ₃ =1,25
14	—	7,96	7,40	7,40	7,15	7,40	8,48	NH=12,08 CHO=9,25 CH ₂ =4,40 CH ₃ =1,30
15	8,11	7,23	7,23	7,51	6,75	—	7,66	NH ₂ =4,58 CH ₂ =4,33 CH ₃ =1,25
16	—	7,38	7,25	7,25	6,73	—	7,58	NH ₂ =3,33 CH ₃ =2,55 CH ₂ =4,28 CH ₃ =1,21
17	—	7,83	7,26	7,26	7,26	—	8,31	CHO=9,11 NH=11,27 CH ₂ =4,33 CH ₃ =1,28
18	—	8,15	7,33	7,33	7,33	—	8,43	NH=12,10 COCH ₃ =2,66 CH ₂ =4,36 CH ₃ =1,30
19	—	8,15	7,32	7,32	7,32	—	8,45	NH=9,20 et 12,08 COCH ₃ =2,66 CH ₂ =4,10 CH ₃ =1,26 CH ₂ =4,35 CH ₃ =1,26

aboutissent à la formation d'imidazocarbazoles portant des substituants en position 9. Ainsi, par exemple, le chauffage des dérivés (8) et (9) conduit aux amino-9 imidazocarbazole (15) et (16), tandis que leur traitement par le phosgène dans le toluène forme les formyl-3 isocyanato-9 ou acétyl-3 dihydro-2,3 oxo-2 imidazocarbazole (17) et (18). Le traitement du dérivé (18) dans l'alcool éthylique permet d'accéder au carbamate correspondant (19).

D'autre part, les réactions de désamination avec l'acide nitreux menées à partir des dérivés porteurs d'un substituant aminé en 9 (15) et (16) permettent une deuxième voie de synthèse des dérivés non substitués sur le carbazole (10) et (12). La structure des dérivés obtenus est confirmée par l'étude de leurs spectres de RMN.

Partie Experimentale

Les points de fusion sont pris au bloc Maquenne, et au Banc Kofler. Les spectres infrarouges (IR) sont enregistrés dans le KBr sur Perkin Elmer 257G. Les spectres de RMN ont été mesurés à 90 MHz sur un spectromètre Varian EM 390. Les déplacements chimiques (δ) sont exprimés en ppm par rapport au tétraméthylsilane utilisé comme référence interne.

Diamino-3,4 éthyl-9 carbazole (6)—Méthode A: Un mélange de 3 g (0,011 mol) d'amino-3 éthyl-9 nitro-4 carbazole (1)⁶ et de 1 g de Nickel de Raney dans 300 cm³ d'éthanol est porté au reflux, et on ajoute 15 cm³ d'hydrate d'hydrazine goutte à goutte, puis on poursuit le reflux 2 h 30. Après filtration, le solvant est évaporé sous pression réduite et le résidu est repris dans l'éther éthylique. Le précipité formé est essoré et recristallisé dans l'acétonitrile. Cristaux bleux, F=171 °C, p=1,9 g. Rendement: 76%. IR $\nu_{\text{max}}^{\text{KBr}}$ cm⁻¹: 3360, 1635 et 1605 (NH₂). Anal. Calc. pour C₁₄H₁₅N₃: C, 74,64; H, 6,71; N, 18,65. Trouvé: C, 74,80; H, 6,76; N, 18,49.

Méthode B: On chauffe 1 h à 60 °C dans 50 cm³ d'hydroxyde de sodium à 20%, 1 g (0,0039 mol) d'amino-4 éthyl-

9 formamido-3 carbazole (7). Après refroidissement, la solution est versée dans 200 cm³ d'eau glacée, et le précipité est essoré, séché puis recristallisé dans l'acétonitrile. F = 172 °C, p = 0,7 g. Rendement: 81%. Le spectre IR du dérivé est identique à celui obtenu par la méthode A.

Amino-4 éthyl-9 formamido-3 carbazole (7)—Un mélange de 5 g (0,017 mol) d'éthyl-9 formamido-3 nitro-4 carbazole (3) et de 2 g de Nickel de Raney dans 500 cm³ d'éthanol est porté au reflux; on additionne ensuite 35 cm³ d'hydrate d'hydrazine goutte à goutte et on poursuit le reflux 4 h. La solution est filtrée, concentrée sous pression réduite, et le résidu repris dans l'éther éthylique. Le précipité formé est essoré et recristallisé dans l'éthanol. F = 230 °C, p = 3,9 g. Rendement: 90%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3415 et 3325 (NH₂), 3220 (NH), 1640 (C=O). Anal. Calc. pour C₁₅H₁₅N₃O: C, 71,12; H, 5,97; N, 16,52. Trouvé: C, 70,99; H, 6,07; N, 16,48.

Diamino-4,6 éthyl-9 formamido-3 carbazole (8)—Un mélange de 15 g (0,045 mol) de dinitro-4,6 éthyl-9 formamido-3 carbazole (4)⁶ et de 7 g de Nickel de Raney dans 1 l d'éthanol est porté au reflux. On additionne 65 cm³ d'hydrate d'hydrazine goutte à goutte, puis on poursuit le reflux 5 h. Après refroidissement, la solution est filtrée et concentrée sous pression réduite. Le résidu est repris dans l'éther éthylique et le précipité formé est essoré, puis recristallisé dans l'éthanol. Cristaux marrons clairs. F = 150 °C, p = 7 g. Rendement: 58%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3410, 3350, 3210 (NH) et (NH₂), 1675 (C=O). Anal. Calc. pour C₁₅H₁₆N₄O: C, 67,14; H, 6,01; N, 20,88. Trouvé: C, 67,30; H, 6,03; N, 20,84.

Ethyl-6 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (10)—Méthode A: Une solution de 1 g (0,0039 mol) d' amino-4 éthyl-9 formamido-3 carbazole (7) dans 150 cm³ d'éthanol et 15 cm³ d'acide chlorhydrique concentré est portée au reflux 4 h. La solution est additionnée de 150 cm³ d'eau froide et le précipité est essoré, séché puis recristallisé dans l'acétonitrile. Cristaux jaunes pâles. F = 143 °C, p = 0,6 g. Rendement: 65%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3380 (NH), 1605, 1585, 1495, 1330, 1225, 1115, 1025, 930, 845 et 745. Anal. Calc. pour C₁₅H₁₃N₃: C, 76,57; H, 5,57; N, 17,86. Trouvé: C, 76,57; H, 5,74; N, 17,45.

Méthode B: On chauffe 0,3 g (0,0011 mol) d' amino-4 éthyl-9 formamido-3 carbazole (7) à 260 °C pendant 5 min, puis on sublime sous 0,05 mm. Cristaux jaunes. F = 143 °C, p = 0,15 g. Rendement: 58%. Le spectre IR du dérivé obtenu est identique à celui de la méthode A.

Méthode C: Une solution de 1,5 g (0,0059 mol) d' amino-9 éthyl-6 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (15) dans 300 cm³ d'éthanol et 30 cm³ d'acide chlorhydrique concentré est porté au reflux 1 h. On additionne ensuite 0,7 g (0,010 mol) de nitrite de sodium dissout dans 15 cm³ d'eau goutte à goutte et on poursuit le reflux 4 h. Après refroidissement, la solution est versée dans une solution d'hydroxyde de sodium, puis neutralisée avec une solution d'acide chlorhydrique dilué au demi. Le précipité est essoré, lavé à l'eau, séché et recristallisé dans l'acétonitrile. F = 143 °C, p = 0,7 g. Rendement: 57%. Le spectre IR est identique à celui du dérivé obtenu par la méthode A.

Méthode D: On porte au reflux 4 h 30 dans 25 cm³ d'acide formique, 1 g (0,0044 mol) de diamino-3,4 éthyl-9 carbazole (6). Après refroidissement, la solution est versée dans 150 cm³ d'hydroxyde de sodium à 20%, puis agitée 1 h. Le précipité est essoré, lavé à l'eau, séché et recristallisé dans l'acétonitrile. F = 143 °C, p = 0,5 g. Rendement: 55%. Le spectre IR est identique à celui du dérivé obtenu par la méthode A.

Acétyl-3 éthyl-6 méthyl-2 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (11)—Une solution de 2 g (0,0088 mol) de diamino-3,4 éthyl-9 carbazole (6) dans 20 cm³ d'anhydride acétique est portée au reflux 35 min. Après refroidissement, la solution est versée sur 50 g de glace pilée, puis neutralisée par une solution d'hydrogencarbonate de sodium et extraite avec 100 cm³ d'éther. La phase étherée est lavée à l'eau, séchée puis concentrée sous pression réduite. Le résidu est recristallisé dans un mélange d'acétone et d'acétonitrile (50 : 50). F = 192 °C, p = 1,6 g. Rendement: 62%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 1705 (C=O). Anal. Calc. pour C₁₈H₁₇N₃O: C, 74,20; H, 5,88; N, 14,14. Trouvé: C, 74,16; H, 5,87; N, 14,12.

Ethyl-6 méthyl-2 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (12)—Méthode A: On porte au reflux 2 h 30, 1 g (0,0034 mol) d'acétyl-3 éthyl-6 méthyl-2 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (11) dans 100 cm³ d'éthanol et 20 cm³ d'acide chlorhydrique concentré. Après refroidissement, la solution est versée sur 500 cm³ d'eau et le précipité est essoré, séché puis recristallisé dans l'éthanol. F = 159 °C, p = 0,45 g. Rendement: 53%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3200 (NH). Anal. Calc. pour C₁₆H₁₅N₃: C, 77,08; H, 6,06; N, 16,86. Trouvé: C, 77,10; H, 6,10; N, 16,84.

Méthode B: Une solution de 1 g (0,0033 mol) d' amino-9 éthyl-6 méthyl-2 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (16) dans 300 cm³ d'éthanol et 20 cm³ d'acide chlorhydrique concentré est portée au reflux 1 h. On additionne goutte à goutte 0,42 g (0,006 mol) de nitrite de sodium en solution dans 51 cm³ d'eau, puis le reflux est prolongé 2 h. Après refroidissement, la solution est versée dans 500 cm³ d'eau et le précipité est essoré, séché puis recristallisé dans l'éthanol. F = 159 °C, p = 0,4 g. Rendement: 48%. Le spectre IR est identique à celui obtenu par la méthode A.

Ethyl-6 dihydro-2,3 oxo-2 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (13)—Méthode A: Une solution de 1 g (0,0044 mol) de diamino-3,4 éthyl-9 carbazole (6) dans 30 cm³ de toluène et 5 cm³ de phosgène à 20% en solution toluénique est portée au reflux 1 h. Après passage d'un courant d'azote, pour éliminer l'excès de phosgène, le précipité est essoré, lavé à l'éther éthylique, séché puis recristallisé dans le diméthylsulfoxyde. Cristaux blancs, F = 350 °C, p = 0,6 g. Rendement: 54%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3160 (NH), 1695 (C=O). Anal. Calc. pour C₁₅H₁₃N₃O: C, 71,69; H, 5,21; N, 16,72. Trouvé: C, 72,00; H, 5,17; N, 16,65.

Méthode B: On chauffe 0,3 g (0,0013 mol) d'éthyl-6 dihydro-2,3 formamido-3 oxo-3 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (14) à 290 °C pendant 10 min, puis on sublime sous 0,05 mmHg. Cristaux blancs. F = 350 °C, p = 0,25 g.

Rendement: 78%. Le spectre IR du dérivé obtenu est identique à celui de la méthode A.

Méthode C: Une solution de 0,5 g (0,0022 mol) du dérivé (14) dans 70 cm³ d'éthanol et 20 cm³ d'acide chlorhydrique concentré est portée au reflux 4 h. La solution est versée dans 100 cm³ d'eau froide, agitée, puis essorée. Le précipité est séché et recristallisé dans le diméthylsulfoxyde. F = 350 °C, p = 0,2 g. Rendement: 36%. Le spectre IR du dérivé obtenu est identique à celui de la méthode A.

Éthyl-6 formamido-3 dihydro-2,3 oxo-2 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (14)—Une solution de 1,5 g (0,0059 mol) d' amino-4 éthyl-9 formamido-3 carbazole (7) dans 50 cm³ de toluène et 15 cm³ de phosgène à 20% dans le toluène est portée au reflux 1 h. On fait passer un courant d'azote pour éliminer l'excès de phosgène et on essore le précipité. On lave à l'éther éthylique et recristallise dans l'acétonitrile. Cristaux blancs, F = 310 °C, p = 1,2 g. Rendement: 71%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3250 (NH), 1730 et 1690 (C=O). Anal. Calc. pour C₁₆H₁₃N₃O₂: C, 68,80; H, 4,69; N, 15,05. Trouvé: C, 69,02; H, 4,68; N, 15,44.

Amino-9 éthyl-6 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (15)—On chauffe 0,6 g (0,0030 mol) de diamino-4,6 éthyl-9 formamido-3 carbazole (8) à 250 °C pendant 10 min, puis on sublime sous 0,05 mmHg. F = 174 °C, p = 0,4 g. Rendement: 53%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3340, 3210, 3120 et 1615 (NH) et (NH₂). Anal. Calc. pour C₁₅H₁₄N₄: C, 71,97; H, 5,64; N, 22,39. Trouvé: C, 71,82; H, 5,65; N, 22,41.

Amino-9 éthyl-6 méthyl-2 3H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (16)—On chauffe 0,3 g (0,0010 mol) d'acétamido-3 diamino-4,6 éthyl-9 carbazole (9) à 220 °C pendant 10 min, puis on sublime sous 0,05 mmHg. F = 188 °C, p = 0,2 g. Rendement: 76%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3325, 3225, 3130 et 1625 (NH) et (NH₂). Anal. Calc. pour C₁₆H₁₆N₄: C, 72,70; H, 6,10; N, 21,20. Trouvé: C, 72,40; H, 6,33; N, 21,46.

Éthyl-6 formyl-3 dihydro-2,3 isocyanato-9 oxo-2 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (17)—Une solution de 2 g (0,0079 mol) de diamino-4,6 éthyl-9 formamido-3 carbazole (8) dans 60 cm³ de toluène et 15 cm³ de phosgène à 20% dans le toluène est portée au reflux 2 h. Après passage d'un courant d'azote pour éliminer l'excès de phosgène, le précipité est essoré, lavé à l'éther éthylique puis recristallisé dans l'acétonitrile. F = 350 °C, p = 1,7 g. Rendement: 67%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3180 (NH), 1725, 1690 (C=O), 2270 (N=C=O). Anal. Calc. pour C₁₇H₁₂N₄O₃: C, 63,74; H, 3,78; N, 17,74. Trouvé: C, 63,46; H, 3,72; N, 17,59.

Acétyl-3 éthyl-6 dihydro-2,3 isocyanato-9 oxo-2 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (18)—Une solution de 2,5 g (0,0088 mol) d'acétamido-3 diamino-4,6 éthyl-9 carbazole (9) dans 70 cm³ de toluène et 25 cm³ de phosgène à 20% dans le toluène est portée au reflux 2 h. Après passage d'un courant d'azote, le précipité est essoré, lavé à l'éther éthylique puis recristallisé dans un mélange de benzène et d'acétonitrile (50:50). F = dec.: 300 °C, p = 2,4 g. Rendement: 81%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3160 (NH), 2360 (N=C=O), 1715, 1695 (C=O). Anal. Calc. pour C₁₈H₁₄N₄O₃: C, 64,66; H, 4,22; N, 16,76. Trouvé: C, 64,55; H, 4,36; N, 16,72.

Acétyl-3 carbéthoxyamino-9 éthyl-6 dihydro-2,3 oxo-2 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (19)—Une solution de 1,6 g (0,0047 mol) d'acétyl-3 éthyl-6 dihydro-2,3 isocyanato-9 oxo-2 1H,6H-imidazo[4,5-c]carbazole (18) dans 400 cm³ d'éthanol absolu est portée au reflux 5 h. Après refroidissement, le précipité est essoré, séché et recristallisé dans l'éthanol. F = 275 °C, p = 1,3 g. Rendement: 73%. IR ν_{\max}^{KBr} cm⁻¹: 3280, 3150 (NH), 1710, 1680 (C=O). Anal. Calc. pour C₂₀H₂₀N₄O₄: C, 63,15; H, 5,30; N, 14,73. Trouvé: C, 63,20; H, 4,91; N, 14,55.

References

- 1) a) S. Rault, Y. Effi, M. Cugnon de Sévricourt, J. C. Lancelot et M. Robba, *J. Heterocycl. Chem.*, **20**, 17 (1983); b) S. Rault, J. C. Lancelot, Y. Effi et M. Robba, *Heterocycles*, **20**, 477, (1983).
- 2) M. Cugnon de Sévricourt, H. El Kashef, S. Rault et M. Robba, *Synthesis*, **12**, 710 (1981).
- 3) J. C. Lancelot, S. Rault et M. Robba, *Chem. Pharm. Bull.*, **31**, 3160 (1983).
- 4) S. Rault, M. Cugnon de Sévricourt, D. Ladurée et M. Robba, *Synthesis*, **8**, 586 (1979).
- 5) a) J. C. Lancelot, J. M. Gazengel, S. Rault et M. Robba, *Chem. Pharm. Bull.*, **30**, 1674, (1982); b) *Idem, ibid.*, **31**, 45 (1983).
- 6) J. C. Lancelot, J. M. Gazengel et M. Robba, *J. Heterocycl. Chem.*, **18**, 1281 (1981).
- 7) G. S. Reddy, L. Mandell et J. H. Goldstein, *J. Chem. Soc.*, **1963**, 1414.
- 8) F. Bell et K. R. Buck, *J. Chem. Soc. (C)*, **1966**, 904.
- 9) G. S. Reddy, R. T. Hobgood, Jr. et J. H. Goldstein, *J. Am. Chem. Soc.*, **84**, 336 (1962).
- 10) P. J. Black et M. Heffernan, *Aust. J. Chem.*, **15**, 862 (1962).