

С. Валюлене, А. Рутавичюс

### НЕКОТОРЫЕ ПРОИЗВОДНЫЕ 2,5-ДИМЕРКАПТО-1,3,4-ТИАДИАЗОЛА

Взаимодействием 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола с диэтиламино, морфолином и пиперидином в условиях реакции Манниха получены N,S-аминометилованные тиadiaзолы, а с мочевиной, тиомочевиной, семикарбазидом и тиосемикарбазидом — N,N-аминометилованные тиadiaзолы. Конденсация 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола с формальдегидом, в зависимости от pH среды, приводит к N,N-, N,S- или S,S-производным, а реакция с 1,3-пропансульфоном или натриевой солью бромэтансульфокислоты в щелочной среде — к S,S-производным тиadiaзола.

Некоторые производные 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола находят применение в качестве потенциальных противомикробных средств [1], гербицидов [2], ингибиторов коррозии стали [3], а также могут быть использованы как бифункциональные соединения для синтеза полиэфигов, полиамидов, полиуретанов и полигидразидов [4].

Продолжая начатые нами исследования в области синтеза новых гетероциклов на основе 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола [5], в настоящей работе мы синтезировали некоторые производные 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола, содержащие в молекуле алифатические, ароматические и гетероциклические фрагменты.

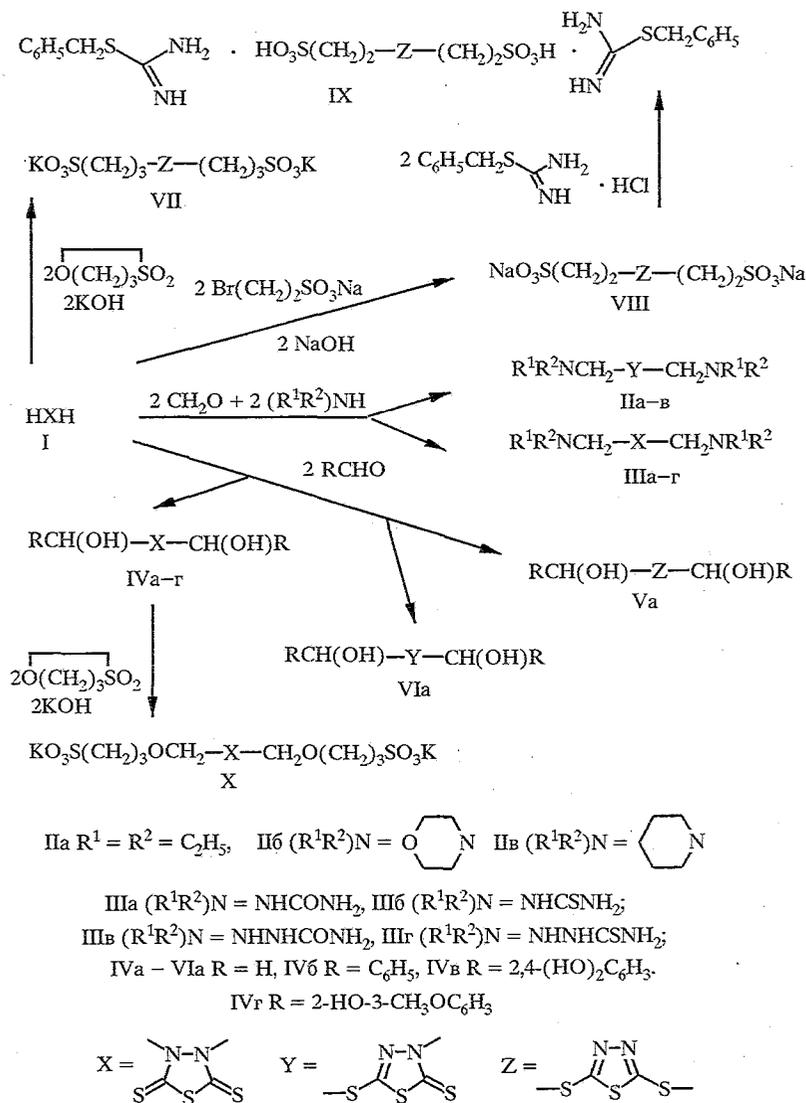
2,5-Димеркапто-1,3,4-тиадиазол, имеющий в своем составе таутомерную систему  $N=C-SH$   $HN-C=S$ , в зависимости от условий реакции и структуры реагентов может вступать в реакции как по атому азота, так и по атому серы, образуя N,N-, N,S- или S,S-производные.

Соединения, содержащие хотя бы один активный атом водорода, реагируют с формальдегидом и аминами, образуя основания Манниха. Круг соединений, вступающих в реакцию Манниха, значительно расширился за счет веществ с «кислым» атомом водорода при азоте и сере: бензотриазола [6], 2-меркаптобензотриазола, 2-меркаптобензимидазола, 2-меркаптобензоксазола [7] и др.

Реакция Манниха на основе 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола с точки зрения строения полученных оснований почти не изучалась [8]. Синтез соединений Манниха на основе 2,5-димеркапто-1,3,4-тиадиазола (I), изучение их свойств и выяснение строения являются задачами настоящего исследования. В качестве второго компонента реакции применялись диэтиламин, морфолин, пиперидин, мочевина, тиомочевина, семикарбазид и тиосемикарбазид. При помощи ИК спектров и спектров ПМР было установлено, что с диэтиламино, морфолином и пиперидином в условиях реакции Манниха образуются N,S-аминометилованные тиadiaзолы IIa—в, а с мочевиной, тиомочевиной, семикарбазидом и тиосемикарбазидом — N,N-аминометилованные тиadiaзолы IIIa—г.

Конденсация тиadiaзола I с формальдегидом была проведена при разных значениях pH. При проведении реакции в нейтральной среде образуется 3,4-бис(гидроксиметил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IVa) с 87% выходом. При проведении реакции в нейтральной среде с последующим подщелачиванием до pH 8 образуется смесь N,N- и S,S-производных тиadiaзола IVa и Va, состоящая из 76% IVa и 24% Va, по данным спектров ПМР. В щелочной среде с последующим подкислением до pH 3 образуется смесь N,N-, S,S- и N,S-производных тиadiaзола IVa, Va и VIa (60, 24 и 16% соответственно).

Так как при проведении реакции конденсации тиадиазола I с формальдегидом в нейтральной среде образовался только N,N-дизамещенный тиадиазол IVa, то конденсация с другими альдегидами, такими, как бенальдегид, 2,4-дигидроксibenзальд и 2-гидрокси-3-метоксибензальдегид, была проведена в аналогичных условиях, в результате чего были получены N,N-производные тиадиазола IVб-г.



Тиадиазол I в щелочной среде взаимодействует с 1,3-пропансультоном или натриевой солью β-бромэтансульфокислоты по атому S, образуя 83% дикалиевую или 85% динатриевую соли дисульфокислот VII, VIII. Последняя в мягких условиях с гидрохлоридом S-бензилизотиурония дает соответствующую соль IX с 57% выходом. Гидрокси метилированный тиадиазол IVa в щелочной среде также взаимодействует с 1,3-пропансультоном, образуя дикалиевую соль дисульфокислоты X, однако с низким (37,5%) выходом. Строение синтезированных соединений подтверждают данные ИК спектров и спектров ПМР.

Характеристики тиадиазолов II—X

Соединение	Брутто-формула	Найлено, % Вычислено, %			T <sub>пл.</sub> , °C	Выход, %
		C	H	N		
IIa	C <sub>12</sub> H <sub>24</sub> N <sub>4</sub> S <sub>3</sub>	<u>44,78</u>	<u>7,63</u>	<u>17,36</u>	65 (разл.)	70
		44,96	7,55	17,48		
IIб	C <sub>12</sub> H <sub>20</sub> N <sub>4</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>41,24</u>	<u>5,68</u>	<u>15,88</u>	112 (разл.)	65
		41,36	5,78	16,08		
IIв	C <sub>14</sub> H <sub>24</sub> N <sub>4</sub> S <sub>3</sub>	<u>48,62</u>	<u>6,86</u>	<u>16,02</u>	108 (разл.)	69
		48,80	7,02	16,26		
IIIa	C <sub>6</sub> H <sub>10</sub> N <sub>6</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>24,70</u>	<u>3,26</u>	<u>28,55</u>	215 (разл.)	91
		24,48	3,42	28,28		
IIIб	C <sub>6</sub> H <sub>10</sub> N <sub>6</sub> S <sub>5</sub>	<u>22,33</u>	<u>2,87</u>	<u>25,56</u>	207 (разл.)	93
		22,07	3,09	25,74		
IIIв	C <sub>6</sub> H <sub>12</sub> N <sub>8</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>22,39</u>	<u>3,55</u>	<u>34,22</u>	190 (разл.)	88,5
		22,21	3,73	34,54		
IIIг	C <sub>6</sub> H <sub>12</sub> N <sub>8</sub> S <sub>5</sub>	<u>20,42</u>	<u>3,17</u>	<u>31,18</u>	160 (разл.)	97,5
		20,21	3,39	31,43		
IVa	C <sub>4</sub> H <sub>6</sub> N <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>23,05</u>	<u>2,67</u>	<u>13,24</u>	111...112	87,5
		22,85	2,87	13,32		
IVб	C <sub>16</sub> H <sub>14</sub> N <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>53,23</u>	<u>3,71</u>	<u>7,57</u>	193 (разл.)	66
		53,01	3,89	7,73		
IVв	C <sub>16</sub> H <sub>14</sub> N <sub>2</sub> O <sub>6</sub> S <sub>3</sub>	<u>44,84</u>	<u>3,13</u>	<u>6,35</u>	242 (разл.)	76
		45,06	3,31	6,57		
IVг	C <sub>18</sub> H <sub>18</sub> N <sub>2</sub> O <sub>6</sub> S <sub>3</sub>	<u>47,28</u>	<u>3,89</u>	<u>6,02</u>	210 (разл.)	88
		47,56	3,99	6,16		
Va	C <sub>4</sub> H <sub>6</sub> N <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>22,75</u>	<u>2,78</u>	<u>13,16</u>	121...122	77
		22,85	2,87	13,32		
VIa	C <sub>18</sub> H <sub>18</sub> N <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	<u>22,68</u>	<u>2,62</u>	<u>13,36</u>	141...142	94
		22,85	2,87	13,32		
VII	C <sub>8</sub> H <sub>12</sub> K <sub>2</sub> N <sub>2</sub> O <sub>6</sub> S <sub>5</sub>	<u>20,31</u>	<u>2,43</u>	<u>5,85</u>	212 (разл.)	83
		20,41	2,57	5,95		
VIII	C <sub>6</sub> H <sub>8</sub> Na <sub>2</sub> N <sub>2</sub> O <sub>6</sub> S <sub>5</sub>	<u>17,39</u>	<u>1,87</u>	<u>6,78</u>	265 (разл.)	85
		17,55	1,96	6,82		
IX	C <sub>22</sub> H <sub>30</sub> N <sub>6</sub> O <sub>6</sub> S <sub>7</sub>	<u>37,94</u>	<u>4,21</u>	<u>11,96</u>	150...151	57
		37,80	4,33	12,02		
X	C <sub>10</sub> H <sub>16</sub> K <sub>2</sub> N <sub>2</sub> O <sub>8</sub> S <sub>5</sub>	<u>22,45</u>	<u>2,98</u>	<u>5,17</u>	240 (разл.)	47,5
		22,63	3,04	5,27		

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

ИК спектры получены на спектрометре UR-10 для таблеток KBr, спектры ПМР — на спектрометре Hitachi R-22 (90 МГц), внутренний стандарт ГМДС. Количественные определения проведены на основании спектров ПМР пятикратным интегрированием сигналов групп SCH<sub>2</sub> и NCH<sub>2</sub>. Контроль за ходом реакций и чистотой полученных соединений осуществлен с помощью ТСХ на пластинках Silufol UV-254, проявление в УФ свете или иодом.

3-Диэтиламинометил-5-диэтиламинометилтио-1,3,4-тиадиазол-2-тион (IIa). В колбу, охлаждаемую льдом, помещают 3,7 г (50 ммоль) диэтиламина, затем постепенно добавляют 10 мл 28% формалина и раствор 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I в 50 мл диоксана. Реакционную смесь перемешивают 3 ч при комнатной температуре, фильтруют, из фильтрата отгоняют диоксан, кристаллы соединения IIa отфильтровывают и промывают эфиром. Спектр ПМР (DMCO-D<sub>6</sub>): 0,96 (6H, т, CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>), 2,58 (4H, кв, CH<sub>2</sub>), 5,04 (2H, с, NCH<sub>2</sub>N), 4,36 м. д. (2H, с, SCH<sub>2</sub>N).

3-Морфолинометил-5-морфолинометилтио-1,3,4-тиадиазол-2-тион (IIб) получают аналогично соединению IIa из 4,4 г (50 ммоль) морфолина, 10 мл 28% формалина и 3,7 г (25 ммоль)

тиадиазола I, растворенного в 50 мл диоксана. Спектр ПМР ( $CD_3COCD_3$ ): 2,64 (4H, т,  $CH_2OCH_2$ ), 3,42 (4H, т,  $CH_2CH_2NCH_2CH_2$ ), 4,96 (2H, с,  $NCH_2N$ ), 4,28 м. д. (2H, с,  $SCH_2N$ ).

3-Пиперидинометил-5-пиперидинометилтио-1,3,4-тиадиазол-2-тион (IIв) получают аналогично соединению IIа из 4,3 г (50 ммоль) пиперидина, 10 мл 28% формалина и 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I, растворенного в 50 мл диоксана. Спектр ПМР ( $CD_3COCD_3$ ): 1,36 (6H, м,  $CH_2CH_2CH_2CH_2CH_2$ ), 2,62 (4H, м,  $CH_2CH_2CH_2CH_2CH_2$ ), 4,98 (2H, с,  $NCH_2N$ ), 4,28 м. д. (2H, с,  $SCH_2N$ ).

3,4-Бис(уреидометил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IIIа). Смесь 3,7 г (25 ммоль) соединения I, 10 мл 28% формалина, 3,0 г (50 ммоль) карбамида, 0,3 г хлористой меди и 100 мл диоксана перемешивают и кипятят 5 ч. После охлаждения до комнатной температуры смесь фильтруют, из фильтрата отгоняют диоксан, кристаллы вещества IIIа отфильтровывают и перекристаллизовывают из этанола. Спектр ПМР ( $CDCl_3$ ): 5,02 (2H, с,  $NCH_2N$ ), 7,40 (2H, с,  $NH_2$ ), 8,19 м. д. (1H, с,  $NH$ ). ИК спектр: 1210 ( $\nu C=S$ ), 1620 ( $\nu NH$ ), 1640 ( $\nu CO$  амид), 3180...3200, 3340...3360  $cm^{-1}$  ( $\nu NH_2$ ).

3,4-Бис(тиоуреидометил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IIIб) получают из 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I, 10 мл 28% формалина, 3,8 г (50 ммоль) тиокарбамида, 0,3 г хлористой меди и 100 мл диоксана при 5 ч нагревании и перемешивании реакционной смеси при 80 °С. После охлаждения смесь фильтруют, из фильтрата отгоняют диоксан, кристаллы соединения IIIб отфильтровывают и перекристаллизовывают из этанола. Спектр ПМР ( $CDCl_3$ ): 4,96 (2H, с,  $NCH_2N$ ), 7,42 (2H, с,  $NH_2$ ), 8,35 м. д. (1H, с,  $NH$ ). ИК спектр: 1200 ( $\nu C=S$ ), 1515 ( $\nu NHC=S$ ), 1610 ( $\delta NH$ ), 3160...3200, 3340...3380  $cm^{-1}$  ( $\nu NH_2$ ).

3,4-Бис(семикарбазидометил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IIIв) получают из 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I, 10 мл 28% формалина, 3,8 г (50 ммоль) семикарбазида, 0,3 г хлористой меди и 100 мл диоксана по методике получения соединения IIIа. ИК спектр: 1210 ( $\nu C=S$ ), 1650 ( $\delta NH$ ), 1675 ( $\nu CO$  амид), 3140...3180, 3320...3360  $cm^{-1}$  ( $\nu NH_2$ ).

3,4-Бис(тиосемикарбазидометил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IIIг) получают из 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I, 10 мл 28% формалина, 4,6 г (50 ммоль) тиосемикарбазида, 0,3 г хлористой меди и 100 мл диоксана по методике синтеза соединения IIIб. ИК спектр: 1210 ( $\nu C=S$ ), 1500 ( $\nu NHC=S$ ), 1610 ( $\delta NH$ ), 3180...3200, 3360...3380  $cm^{-1}$  ( $\nu NH$ ).

3,4-Бис(гидроксиметил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IVа). Растворяют 15 г (10 ммоль) тиадиазола I в 500 мл горячего пропанола-2, добавляют 40 мл 28% формалина, перемешивают 1 ч при комнатной температуре, реакционную смесь фильтруют, к фильтрату добавляют 100 мл воды, выпавшие кристаллы вещества IVа отфильтровывают и промывают ацетоном. Спектр ПМР ( $DMCO-D_6$ ): 5,35 м. д. (2H, с,  $NCH_2O$ ). ИК спектр: 1207 ( $\nu C=S$ ), 1047, 1285 ( $\delta OH$ ), 3200...3600  $cm^{-1}$  ( $\nu OH$ ).

2,5-Бис(гидроксиметилтио)-1,3,4-тиадиазол (Va). К раствору 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I в 150 мл этанола добавляют 10 мл 28% формалина, смесь кипятят 15 мин, охлаждают, подщелачивают до pH 9 водным раствором аммиака, оставляют на сутки, кристаллы смеси веществ IVа и Va в процентной отношении 76 : 24 (по данным спектра ПМР) отфильтровывают, промывают ацетоном и пропускают через колонку, заполненную окисью алюминия (элюент изопропиловый спирт), в результате чего отделяют Va от IVа. Спектр ПМР ( $DMCO-D_6$ ): 4,53 м. д. (2H, с,  $SCH_2O$ ).

3-Гидроксиметил-5-гидроксиметилтио-1,3,4-тиадиазол-2-тион (VIа). К раствору 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I в 16 мл 10% раствора NaOH добавляют 10 мл 28% формалина, смесь 2 ч нагревают при 50 °С, охлаждают, подкисляют до pH 3 конц. соляной кислотой, осадок смеси соединений IVа, Va и VIа в процентном отношении 60 : 24 : 16 (по данным спектра ПМР) отфильтровывают, промывают ацетоном и пропускают через колонку, заполненную окисью алюминия (элюент изопропиловый спирт), в результате чего отделяют VIа от IVа и Va. Спектр ПМР ( $DMCO-D_6$ ): 4,53 и 4,64 м. д. (2H, д,  $SCH_2O$ ), 5,33 и 5,44 м. д. (2H, д,  $NCH_2O$ ).

3,4-Бис(фенилгидроксиметил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IVб). К раствору 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I в 150 мл пропанола-2 добавляют 5,3 г (50 ммоль) бензальдегида, смесь кипятят 1 ч, фильтруют, отгоняют пропанол-2, выделившиеся кристаллы вещества IVб отфильтровывают и промывают этанолом. Спектр ПМР ( $DMCO-D_6$ ): 7,04 (10H, с, Ph), 7,31 м. д. (2H, с, PhCH). ИК спектр: 1210 ( $\nu C=S$ ), 1100, 1285 ( $\delta OH$ ), 3200...3600  $cm^{-1}$  ( $\nu OH$ ).

3,4-Бис(2,4-дигидроксибензилгидроксиметил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IVв). К раствору 1,5 г (10 ммоль) тиадиазола I в 50 мл этанола добавляют 2,8 г (20 ммоль) 2,4-дигидроксибензальдегида, смесь кипятят 2 ч, фильтруют, выпавшие кристаллы соединения IVв отфильтровывают и промывают эфиром. Спектр ПМР ( $DMCO-D_6$ ): 7,03 (10H, с, Ph), 7,3 (2H, с, PhCH), 9,60 (1H,

д, OH), 11,44 м. д. (1H, с, OH). ИК спектр: 1210 ( $\nu$  C=S), 1100, 1285 ( $\delta$  OH), 3200...3600  $\text{cm}^{-1}$  ( $\nu$  OH).

3,4-Бис(2-гидрокси-3-метоксифенилгидрокси-метил)-1,3,4-тиадиазол-2,5-дитион (IVг) получают из 1,5 г (10 ммоль) тиадиазола I и 3,0 г (20 ммоль) 2-гидрокси-3-метоксибензальдегида по методике, описанной для получения вещества IVв. Спектр ПМР (DMCO-D<sub>6</sub>): 3,71 (3H, с, CH<sub>3</sub>), 7,01 (6H, с, Ar), 7,28 (2H, с, PhCH), 8,93 м. д. (1H, с, OH). ИК спектр: 1210 ( $\nu$  C=S), 1100, 1285 ( $\delta$  OH), 3200...3600  $\text{cm}^{-1}$  ( $\nu$  OH).

Дикалиевая соль S,S'-(1,3,4-тиадиазол-2,5-диил)-бис(3-меркаптопропансульфо-кислоты) (VII). К 3,7 г (25 ммоль) тиадиазола I добавляют 2,8 г (50 ммоль) KOH в 20 мл воды, реакционную смесь кипятят 1 ч, затем воду отгоняют досуха, а остаток растворяют в 100 мл диоксана; к раствору добавляют 6,1 г (50 ммоль) 1,3-пропансультона, смесь кипятят еще 3 ч, после чего диоксан отгоняют, а осадок соединения VII отфильтровывают и перекристаллизовывают из этанола. Спектр ПМР (D<sub>2</sub>O): 3,05 (4H, т, CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>K), 2,10 (4H, м, CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>K), 3,31 м. д. (4H, т, SCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>K).

Динатриевая соль S,S'-(1,3,4-тиадиазол-2,5-диил)-бис(2-меркаптоэтансульфо-кислоты) (VIII). В смесь 100 мл пропанола-2 и 20 мл метанола добавляют раствор 4 г (0,1 моль) NaOH в 10 мл воды, 7,5 г (0,05 моль) тиадиазола I и 21,1 г (0,1 моль) натриевой соли β-бромэтансульфо-кислоты, реакционную смесь перемешивают и нагревают 3 ч при 80 °С, выпавший аморфный осадок соли VIII отфильтровывают и перекристаллизовывают из метанола. Спектр ПМР (D<sub>2</sub>O): 3,64 (4H, м, CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>Na), 3,80 м. д. (4H, м, SCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>Na).

S-Бензилизотиуриониевая соль S,S'-(1,3,4-тиадиазол-2,5-диил)-бис(2-меркаптоэтансульфо-кислоты) (IX). Растворяют 4,1 г (10 ммоль) соли VIII при 40 °С в 30 мл воды и смешивают с раствором 4,1 г (20 ммоль) гидрохлорида S-бензилизотиуриония в 20 мл воды. Выделившееся масло сразу закристаллизовывается. Кристаллы соли IX отфильтровывают и перекристаллизовывают из воды. Спектр ПМР (DMCO-D<sub>6</sub>): 3,02 (4H, м, CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>H), 3,49 (4H, м, SCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>H), 4,51 (4H, с, PhCH<sub>2</sub>), 7,27 м. д. (10H, м, Ph).

Дикалиевая соль 5,5'-(2,5-дитиоксо-3,4-дигидро-1,3,4-тиадиазол-3,4-диил)-бис(4-оксапентансульфо-кислоты) (X). К раствору 2,1 г (10 ммоль) соединения IVа, растворенного в 50 мл диоксана, добавляют раствор 1,1 г (20 ммоль) KOH в 2 мл воды, смесь нагревают 1 ч при 50 °С, после охлаждения добавляют к ней 2,4 г (20 ммоль) 1,3-пропансультона, перемешивают еще 5 ч при комнатной температуре, затем диоксан отгоняют, а выделившийся осадок соли X отфильтровывают и перекристаллизовывают из этанола. Спектр ПМР (D<sub>2</sub>O): 3,2 (4H, т, CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>K), 2,24 (4H, м, CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>K), 3,45 (4H, т, SCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>K), 5,35 м. д. (2H, с, NCH<sub>2</sub>O).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Trivedi S., Kubavat H., Parekh H. // Indian J. Chem. Ser. B. — 1994. — Vol. 33. — P. 295.
2. Ram Vishnu Ji. // Indian J. Chem. Ser. B. — 1979. — Vol. 17. — P. 379.
3. Truesdell J. N., van der Mark M. R. // Polym. Chem. Ed. — 1982. — Vol. 20. — P. 1899.
4. Пат. 77538 СРР / Cascayal A. // РЖХ. — 1983. — 8Н179.
5. Рутавичюс А., Вальолене С., Куодис З. // ХГС. — 1997. — № 1. — С. 134.
6. Мозолис В. В., Йокубайтите С. П. // Тр. АН ЛитССР. Сер. Б. — 1970. — Т. 1(60). — С. 129.
7. Вальолене С., Куодис З., Рутавичюс А. // Химия. — 1994. — № 2. — С. 81.
8. Kobe J., Pollak A., Stanovnik B., Tisler M. // Croat. chem. acta. — 1965. — Vol. 37. — P. 215.

Институт химии, Вильнюс LT-2600, Литва  
e-mail: lorka@kitl.mii.lt

Поступило в редакцию 24.12.97