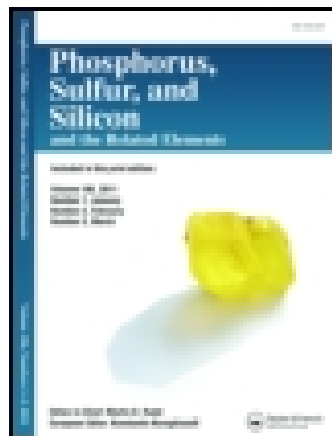




Phosphorus, Sulfur, and Silicon and the Related Elements

Publication details, including instructions for authors and subscription information:

<http://www.tandfonline.com/loi/gpss20>

Neue Thiosubstituierte Butadien- Und Butenin Verbindungen Aus Hexachlorbutenen Und Thiolen

Cemil İbiş^a & Tülay Bal^a

^a Istanbul Universität , Avcılar-Istanbul, Türkei

Published online: 27 Oct 2010.

To cite this article: Cemil İbiş & Tülay Bal (2003) Neue Thiosubstituierte Butadien- Und Butenin Verbindungen Aus Hexachlorbutenen Und Thiolen, Phosphorus, Sulfur, and Silicon and the Related Elements, 178:3, 431-438

To link to this article: <http://dx.doi.org/10.1080/10426500307913>

PLEASE SCROLL DOWN FOR ARTICLE

Taylor & Francis makes every effort to ensure the accuracy of all the information (the "Content") contained in the publications on our platform. However, Taylor & Francis, our agents, and our licensors make no representations or warranties whatsoever as to the accuracy, completeness, or suitability for any purpose of the Content. Any opinions and views expressed in this publication are the opinions and views of the authors, and are not the views of or endorsed by Taylor & Francis. The accuracy of the Content should not be relied upon and should be independently verified with primary sources of information. Taylor and Francis shall not be liable for any losses, actions, claims, proceedings, demands, costs, expenses, damages, and other liabilities whatsoever or howsoever caused arising directly or indirectly in connection with, in relation to or arising out of the use of the Content.

This article may be used for research, teaching, and private study purposes. Any substantial or systematic reproduction, redistribution, reselling, loan, sub-licensing, systematic supply, or distribution in any form to anyone is expressly forbidden. Terms & Conditions of access and use can be found at <http://www.tandfonline.com/page/terms-and-conditions>

NEUE THIOSUBSTITUIERTE BUTADIEN- UND BUTENIN VERBINDUNGEN AUS HEXACHLORBUTENEN UND THIOLN

Cemil İbiş und Tülay Bal

Istanbul Universität, Avcılar-Istanbul, Türkei

(Received May 21, 2002; accepted June 4, 2002)

2,3-Di-H-butene compound 1 gave compounds 3a–f, 4a, 4e, and 5a–d in the presence of thiols 2a–f and Et₃N (or NaOH). Compound 7e was obtained from the reaction of 1,3-Di-H-butene 6 with naphthylthiol in DMF. In the presence of NaOH, compound 6 and 2 mmol of thiol 2g in EtOH gave compounds 8, 9, 10, and 11.

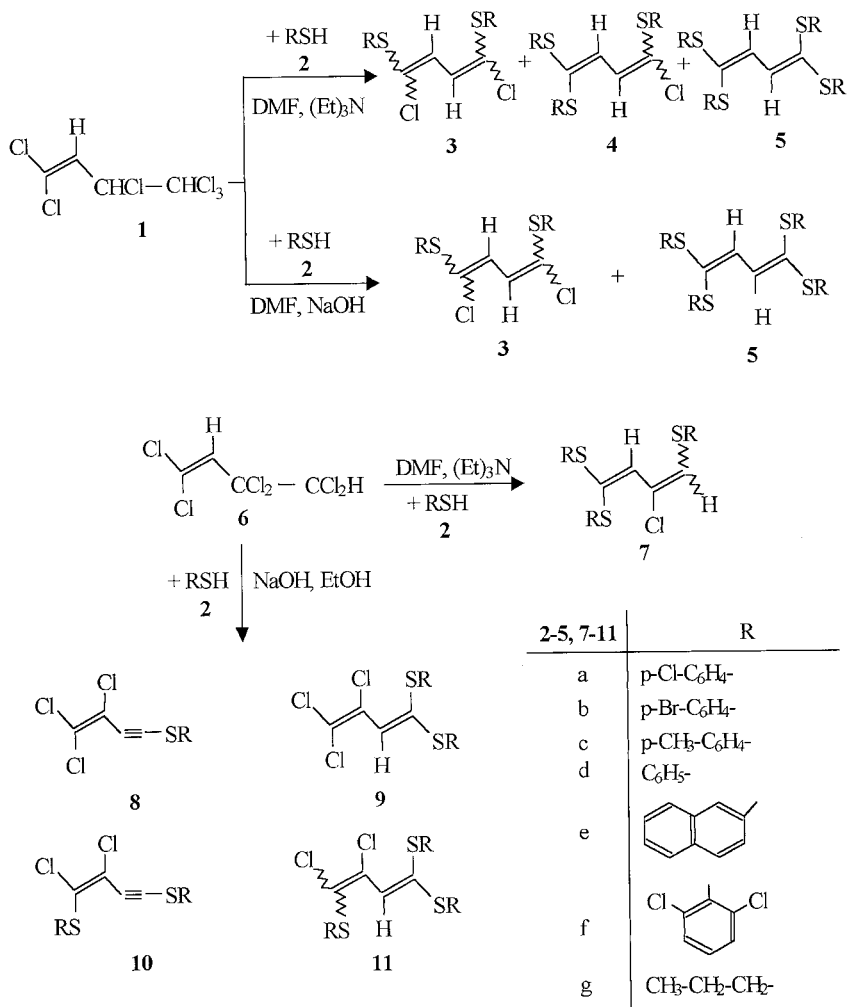
Keywords: 1,3-Tetrachlorobutene; 2,3-Di-H-tetrachlorobutene; bis-, tris-, and tetrakis-(organylthio)-butadienes; mono- and bis-(organylthio) butenyne; thiols

Einige Reaktionen von 1,3-Di-H- und 2,3-Di-H-hexachlorbutenen, 2H-Pentachlor- und 1H-Pentachlorbutadienen mit Thiolen sind bekannt.^{1–8} Aus diesen Reaktionen sind thiosubstituierte Dien-, Butenin- und Butatrienverbindungen hergestellt worden. Außerdem sind auch einige Reaktionen von Hexachlor-1,3-butadien und Nitrodienen mit Thiolen und Aminen bekannt.^{9–15} Einige phosphortragende Halodienen haben antihelminthische Aktivität.¹⁷ Thiosubstituierte Halodiene sind biologisch aktiv (US-Patent).¹⁸

Unser Ziel in dieser Arbeit war, neue thiosubstituierte Dien- und Buteninverbindungen aus den Reaktionen von Polyhalobuten- und Butadienverbindungen mit Thiolen in DMF und Ethanol herzustellen. Die Verbindungen 5a, 5c, und 5d sind schon bekannt.^{4,15} Die Verbindungen 3b–f, 4a, 4e, 5b, und 7e sind hingegen neue Verbindungen.

Die 2,3-Di-H-hexachlorbutenverbindung (1) liefert in DMF mit Thiolen in Gegenwart von Triethylamin (Et₃N) (oder in DMF mit Thiolen in Gegenwart von Natriumhydroxid), Bis(thio)-, Tris(thio)- und Tetrakis(thio)-1,3-butadienverbindungen. Die Verbindung 6 ergibt in DMF mit Naphthylthiol Tris(thio)substituierte Dienverbindung 7e. Die

Address correspondence to Cemil İbiş, Istanbul Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Bölümü, Avcılar, Istanbul, Türkei. E-mail: ibiscml@istanbul.edu.tr



SCHEMA 1

Reaktionsprodukte der Verbindung **1** mit Thiohlen in DMF in Gegenwart von Triethylamin besitzen die Vinyl-H-Atome wie die Ausgangsverbindung **1**.

Strukturen von den Verbindungen **3**, **4** und **5** haben gezeigt, daß die Vinyl-H-Atome geschützt worden sind. Wahrscheinlich entstehen diese Verbindungen über Tetrachlorbutadien (Cl₂C=CH-CH=CCl₂), das durch Dehydrochlorierung der Verbindung **1** zustandekommt. Die Strukturen dieser Verbindungen sind durch spektroskopische Methoden bestätigt worden.

Das 1,3-Di-H-hexachlorbuten-1 liefert mit Thiolen in Ethanol in Gegenwart von Natronlauge die Verbindungen **8**, **9**, **10**, und **11**. Die ^1H -NMR-Spektren der Dienverbindungen **9** und **11** zeigen für die Vinyl-H-Atome bei ca. $\delta = 6.4$ ppm ein Singlett. Eine mögliche Erklärung für die Bildung von **8**, **9**, **10**, und **11** ist unten beschrieben: Die 2H-Pentachlorbutadienverbindung ($\text{Cl}_2\text{C}=\text{CH}-\text{CCl}=\text{CCl}_2$) entsteht aus der Verbindung **6** durch die Elimination von HCl. Aus dieser Verbindung wird noch ein HCl abgespalten und Perchlorbutenin wird gebildet. Durch Substitution von Perchlorbutenin ($\text{Cl}_2\text{C}=\text{CCl}-\text{C}=\text{CCl}$) mit Thiolat bildet sich die Verbindung **8**. Nach Addition von HSR an die Verbindung **8** entsteht die Verbindung **9**. In der Reaktion der Verbindung **8** mit Thiolat wird die Verbindung **10** gebildet. Durch Addition von Thiol an die Verbindung **10** entsteht die Verbindung **11**.

Dem Unterstützungsfond für die Forschung der Istanbuler Universität sprechen wir für die finanzielle Förderung dieser Arbeit unseren ergebensten-Dank aus.

EXPERIMENTELLER TEIL

IR-Spektren: Spektrometer FTIR-8101 der Fa. Schmadzu (Film oder KBr Pressling). ^1H -NMR-Spektren: Spektrometer AC 200L der Fa. Bruker. Elementaranalysen: Carlo Erba 1106 Elementaranalyser. Schmelzpunkte (nicht korrigiert). Apparat Büchi 510 (Bestimmung in Kapillaren). Alle Lösungsmittel waren trocken und frisch destilliert. R_f -Werte beziehen sich jeweils auf DC-Tests.-Säulenchromatographie: Kieselgel der Fa. Merck (Korngröße 0.200–0.063 mm)-Dünnschichtchromatographie: DC-Alufolien Kieselgel 60 F_{254} der Fa. Merck. Petroletherfraktion: Siedebereich 40–60°C.

I) Allgemeine Arbeitsvorschrift (AAV) für die Umsetzung von 2,3-Di-H-hexachlorbuten-1 mit den Thiolen 2a–f: Zu einer Lösung aus 1.0 g (3.80 mmol) **1** und der jeweils angegebenen Menge Thiol **2** in 40 ml DMF tropft man unter Rühren 3 ml Triethylamin (TEA) und rührt noch 2 h bei Raumtemp. Nach Zugabe von 150 ml Wasser wird mit Chloroform extrahiert, die Chloroformphase mit Wasser gewaschen, mit Na_2SO_4 getrocknet und das Lösungsmittel i.Vak.entfernt. Das erhaltene Öl wird, wie jeweils angegeben, an Kieselgel chromatographiert.

II) Allgemeine Arbeitsvorschrift (AAV) für die Umsetzung von 2,3-Di-H-hexachlorbuten-1 mit den Thiolen 2a, 2c–d: Zu einer Lösung aus 1.0 g (3.80 mmol) **1** und der jeweils angegebenen Mengen Thiol **2** in 40 ml DMF tropft man unter Rühren 2.0 g Natriumhydroxid und rührt noch 2 h bei Raumtemp. Nach Zugabe von 150 ml Wasser wird mit Chloroform extrahiert, die Chloroformphase mit Wasser gewaschen, mit

Na₂SO₄ getrocknet und das Lösungsmittel i.Vak entfernt. Das erhaltene Öl wird, wie jeweils angegeben, an Kieselgel chromatographiert.

1,4-Dichlor-1,4-bis(phenylthio)-1,3-butadien (3d) und 1,1,4,4-Tetrakis(phenylthio)-1,3-butadien (5d): Dargestellt nach der AAV-I aus **1** und 1.67 g (15.18 mmol) Thiophenol (**2d**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4 × 60 cm) mit Petrolether werden **3d** und **5d** erhalten.

3d: Ausb. 0.4628 g (36%) farblose Kristalle vom Smp. 135–137°C. -Rf: 0.69 (Petrolether), -IR(KBr): $\nu = 3069, 2940 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1581 (C=C). ¹H-NMR (CDCl₃ TMS int.): $\delta = 7.20\text{--}7.44 \text{ ppm}$ (m, Vinyl-H + Aromaten-H). C₁₆H₁₂Cl₂S₂ (339.3): ber. C 56.64, H 3.56; gef. C 57.07, H 3.76.

5d: Ausb. 0.382 g (21%) gelbe Kristalle vom Smp. 127–128°C (Lit.⁴: 125–127°C). Rf: 0.30 (Petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

1,4-Dichlor-1,4-bis(phenylthio)-1,3-butadien (3d) und 1,1,4,4-Tetrakis(phenylthio)-1,3-butadien (5d): Dargestellt nach der AAV-II aus **1** und 1.67 g (15.18 mmol) Thiophenol (**2d**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4 × 60 cm) mit Petrolether werden **3d** und **5d** erhalten.

3d: Ausb. 0.124 g (10%) farblose Kristalle Smp. 135–136°C. Rf: 0.69 (petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

5d: Ausb. 0.384 g (21%) gelbe Kristalle Smp. 124–126°C (Lit.⁴: 125–127°C). Rf: 0.30 (Petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

1-Chlor-1,4,4-tris(4-chlorphenylthio)-1,3-butadien (4a) und 1,1,4,4-Tetrakis(4-chlorphenylthio)-1,3-butadien (5a): Dargestellt nach der AAV-I aus **1** und 2.2 g (15.21 mmol) 4-Chlor thiophenol (**2a**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4 × 60 cm) mit Petrolether werden **4a** und **5a** erhalten.

4a: Ausb. 0.8075 g (41%) hellgelbe Kristalle vom Smp. 115–117°C. -Rf: 0.45 (Petrolether). -IR(KBr): $\nu = 3099, 2880 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1568 (C=C). ¹H-NMR (CDCl₃, TMS int.): $\delta = 6.84, 6.90, 6.94 \text{ ppm}$ (3s, Vinyl-H), 7.0–7.36 (m, Aromaten-H). C₂₂H₁₄Cl₄S₃ (516.3): ber. C 51.17, H 2.73; gef. C 51.43, H 2.42.

5a: Ausb. 0.4962 g (21%) hellgelbe Kristalle vom Smp 194–195°C (Lit.⁴: 193–195°C), Rf: 0.45 (Petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

1,1,4,4-Tetrakis(4-chlorphenylthio)-1,3-butadien (5a): Dargestellt nach der AAV-II aus **1** und 2.2 g (15.21 mmol) 4-Chlorthiophenol (**2a**).

Nach chromatographischer Trennung (Säule 4×60 cm) mit Petrolether wird **5a** erhalten.

5a: Ausb. 0.716 g (30%) hellgelbe Kristalle vom Smp. $192\text{--}195^\circ\text{C}$ (Lit.⁴: $193\text{--}195^\circ\text{C}$). Rf: 0.45 (Petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

1,4-Dichlor-1,4-bis(2,6-dichlorphenylthio)-1,3-butadien (3f): Dargestellt nach der AAV-I aus **1** und 2.72 g (15.19 mmol) 2,6-Dichlorthiophenol (**2f**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4×60 cm) mit Petrolether wird **3f** erhalten.

3f: Ausb. 0.724 g (40%) gelbe, glänze Kristalle vom Smp. $203\text{--}205^\circ\text{C}$. -Rf: 0.54 (Petrolether). -IR(KBr): $\nu = 3150, 2950\text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1568 cm^{-1} (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 7.1\text{--}7.4$ ppm (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{16}\text{H}_8\text{Cl}_6\text{S}_2$ (477.1): ber. C 40.28, H 1.69; gef. C 40.23, H 1.53.

1,4-Dichlor-1,4-bis(4-methylphenylthio)-1,3-butadien (3c) und 1,1,4,4-Tetrakis(4-methylphenylthio)-1,3-butadien (5c): Dargestellt nach der AAV-I aus **1** und 1.89 g (15.22 mmol) 4-Methylthiophenol (**2c**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4×60 cm) mit Petrolether werden **3c** und **5c** erhalten.

3c: Ausb. 0.3663 g (26%) farblose Kristalle vom Smp. $102\text{--}105^\circ\text{C}$. -Rf: 0.58 (Petrolether). -IR(KBr): $\nu = 3100\text{--}3000\text{ cm}^{-1}$ (C–H), 2910, 2810 [C–H, (CH_3)], 1592 cm^{-1} (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 2.2\text{--}2.4$ ppm (m, 6H, 2CH_3), $7.0\text{--}7.4$ ppm (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{18}\text{H}_{16}\text{Cl}_2\text{S}_2$ (367.4): ber. C 58.85, H 4.39; gef. C 59.17, H 4.29.

5c: Ausb. 0.2438 g (12%) Smp. $144.5\text{--}146.5^\circ\text{C}$ (Lit.⁴: $146.5\text{--}147.5^\circ\text{C}$). Rf: 0.31 (Petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

1,4-Dichlor-1,4-bis(4-methylphenylthio)-1,3-butadien (3c): Dargestellt nach der AAV-II aus **1** und 1.89 g (15.22 mmol) 4-Methylthiophenol (**2c**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4×60 cm) mit Petrolether wird **3c**.

3c: Ausb. 0.2404 g (20%) Smp. $99\text{--}101^\circ\text{C}$. Rf: 0.58 (Petrolether). Identifizierung durch IR-Spektrenvergleich.

1,4-Dichlor-1,4-bis(4-bromphenylthio)-1,3-butadien (3b) und 1,1,4,4-Tetrakis(4-bromphenylthio)-1,3-butadien (5b): Dargestellt nach der AAV-I aus **1** und 2.87 g (15.18 mmol) 4-Bromthiophenol (**2b**). Nach chromatographischer Trennung (Säule 4×60 cm) mit Petrolether werden **3b** und **5b** erhalten.

3b: Ausb. 1.14 g (60%) hellgelbe Kristalle vom Smp. 130.4–130.8°C. -Rf: 0.2174 (Petrolether). -IR(KBr): $\nu = 3089, 3030, 2930 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1558 (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 6.8\text{--}7.5 \text{ ppm}$ (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{16}\text{H}_{10}\text{Br}_2\text{Cl}_2\text{S}_2$ (497.1): ber. C 38.66, H 2.03; gef. C 39.23, H 1.91.

5b: Ausb. 0.171 g (6%) gelbe Kristalle vom Smp. 168.8–170.4. -Rf: 0.1304 (Petrolether). -IR(KBr): $\nu = 3069, 2923, 2853 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1630, 1570 (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 6.1\text{--}7.4 \text{ ppm}$ (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{28}\text{H}_{18}\text{Br}_4\text{S}_4$ (802.3): ber. C 41.92, H 2.26; gef. C 42.36, H 2.25.

1,4-Dichlor-1,4-bis(2-naphtylthio)-1,3-butadien (3e) und 1-Chlor-1,4,4-tris(2-naphtylthio)-1,3-butadien (4e): Dargestellt nach der AAV-I aus **1** und 2.439 g (15.22 mmol) 2-Naphthalinthiol (**2e**). Nach chromatographischer Trennung (Säule $4 \times 60 \text{ cm}$) mit Tetrachlormethan werden **3e** und **4e** erhalten.

3e: Ausb. 0.206 g (15%) gelbe Kristalle vom Smp. 52–54°C. -Rf: 0.6837 (CCl_4). -IR(KBr): $\nu = 3046, 2920 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1585, 1550 (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 7.2\text{--}8.0 \text{ ppm}$ (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{24}\text{H}_{16}\text{Cl}_2\text{S}_2$ (439.4): ber. C 65.60, H 3.67; gef. C 66.00, H 3.98.

4e: Ausb. 0.8076 g (38%) hellgelbe Kristalle vom Smp. 162–163°C. -Rf: 0.5581 (CCl_4). -IR(KBr): $\nu = 3046, 2954, 2897 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1584 (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 7.0\text{--}7.9 \text{ ppm}$ (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{34}\text{H}_{23}\text{ClS}_3$ (562.7): ber. C 72.55, H 4.08; gef. C 72.69, H 3.99.

2-Chlor-1,4,4-tris(2-naphtylthio)-1,3-butadien (7e): Zu einer Lösung aus 1.0 g (3.80 mmol) **6** und der jeweils angegebenen Menge 2.439 g (15.22 mmol) 2-Naphthalinthiol (**2e**) in 40 ml DMF tropft man unter Rühren 3 ml Triethylamin (TEA) und rührt noch 2 h bei Raumtemp. Nach Zugabe von 150 ml Wasser wird mit Chloroform extrahiert, die Chloroformphase mit Wasser gewaschen, mit Na_2SO_4 getrocknet und das Lösungsmittel i.Vak. entfernt. Das erhaltene Öl wird, wie jeweils angegeben, an Kieselgel chromatographiert. Nach chromatographischer Trennung (Säule $4 \times 60 \text{ cm}$) mit Tetrachlormethan wird **7e** erhalten.

7e: Ausb. 0.0658 g (3%) gelbe Kristalle vom Smp. 147–149. -Rf: 0.5581 (CCl_4). -IR(KBr): $\nu = 3046, 2923, 2853 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1584 (C=C). $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS int.): $\delta = 7.0\text{--}7.8 \text{ ppm}$ (m, Vinyl-H + Aromaten-H). $\text{C}_{34}\text{H}_{23}\text{ClS}_3$ (562.7): ber. C 72.55, H 4.08; gef. C 71.34, H 4.26.

1,1,2-Trichlor-4-(propylthio)-1-buten-3-in (8g), *1,1,2-Trichlor-4,4-bis(propylthio)-1,3-butadien (9g)*, *1,2-Dichlor-1,4-bis(propylthio)-1-buten-3-in (10g)* und *1,2-Dichlor-1,4,4-tris(propylthio)-1,3-butadien (11g)*: Zu einer Lösung von 2.0 g (7.60 mmol) **6** und 1.157 g (15.22 mmol) *n*-propylthiol (**2g**) in 40 ml Ethanol tropft man 2g Natriumhydroxid in 8 ml Wasser und rührt noch 15 min bei Raumtemp. Nach Zugabe von 200 ml Wasser wird mit Ether extrahiert, die Etherphase mit Wasser gewaschen, mit Na₂SO₄ getrocknet und das Lösungsmittel i.Vak. abdestilliert. Das erhaltene gelbe Öl wird an Kieselgel (Fa. Merck, Korngröße 0.063–0.20 mm) mit Petrolether (Sdp. 30–50°C)/Tetrachlorkohlenstoff(1:1) (Säule, 4 × 30 cm) chromatographiert.

8g: Ausb. 0.40 g (23%) schwach gelbes Öl. -IR(Film): $\nu = 2885, 2910, 2955 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1585 (C=C), 2135 (C–C). -¹H-NMR (CDCl₃, TMS int.): $\delta = 2.6\text{--}3.2$ ppm (m, 2H, S–CH₂), 1.2–1.4 (m, 2H, CH₂–CH₃), 0.9–1.1 (m, 3H, CH₃). C₇H₇SCl₃ (229.5): ber. C 36.62, H 3.07; S 13.96; gef. C 36.49, H 2.96, S 13.77. -MS: Molmasse: 229.2.

9g: Ausb. 0.26 g (11%) gelbes Öl. -IR(Film): $\nu = 2880, 2920, 2950 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1595 (C=C). -¹H-NMR (CDCl₃, TMS int.): $\delta = 6.3$ ppm (s, 1H, Vinyl-H), 2.5–3.1 (m, 4H, 2S–CH₂), 1.1–1.6 (m, 4H, 2CH₂–CH₃), 0.9–1.1 (m, 6H, 2CH₃). C₁₀H₁₅S₂Cl₃ (305.7): ber. C 39.28, H 4.94; S 20.97; gef. C 38.99, H 4.87, S 20.83. -MS: Molmasse: 305.4.

10g: Ausb. 0.18 g (9%) schwach gelbes Öl. -IR(Film): $\nu = 2870, 2890, 2910, 2945 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1585 (C=C), 2140 (C≡C). -¹H-NMR (CDCl₃, TMS int.): $\delta = 2.4\text{--}3.0$ ppm (m, 4H, 2S–CH₂), 1.0–1.5 (m, 4H, 2CH₂–CH₃), 0.9–1.1 (m, 6H, 2CH₃). C₁₀H₁₄S₂Cl₂ (269.2): ber. C 44.60, H 5.24, S 23.81; gef. C 44.41, H 5.03, S 23.69. -MS: Molmasse: 269.1.

11g: Aubs. 0.35 g (13%) schwach gelbes Öl. -IR(Film): $\nu = 2880, 2920, 2960 \text{ cm}^{-1}$ (C–H), 1590 (C=C). -¹H-NMR (CDCl₃, TMS int.): $\delta = 6.4$ ppm (s, 1H, Vinyl-H), 2.7–3.3 (m, 6H, 3S–CH₂), 1.2–1.6 (m, 6H, 3CH₂–CH₃), 0.9–1.2 (m, 9H, 3CH₃). C₁₃H₂₂S₂Cl₂ (345.4): ber. C 45.20, H 6.41, S 27.84; gef. C 45.11, H 6.47, S 27.79.

LITERATURE

- [1] A. Roedig und G. Zaby, *Tetrahedron Lett.*, 1771 (1977); *Liebigs Ann. Chem.*, 1606 (1979).
- [2] A. Roedig, G. Zaby und W. Scharf, *Chem. Ber.*, **110**, 1484 (1977).
- [3] A. Roedig und G. Zaby, *Liebigs Ann. Chem.*, 1626 (1979).
- [4] A. Roedig, C. İbiş und G. Zaby, *Chem. Ber.*, **114**, 684 (1981).

- [5] C. İbiş, *Liebigs Ann. Chem.*, 1873 (1984).
- [6] C. İbiş, *Liebigs Ann. Chem.*, 1009 (1987).
- [7] C. İbiş and C. Gürün, *Sulfur Lett.*, **14**, 251 (1992).
- [8] C. İbiş and Ç. Sayıl, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **86**, 55 (1994).
- [9] C. İbiş and N. Yılmaz, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **159**, 87 (2000).
- [10] C. İbiş and G. Aydınli, *Sulfur, Lett.*, **23**, 67 (1999).
- [11] C. İbiş, F. S. Göksel, and Ç. Sayıl, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **107**, 227 (1995).
- [12] C. İbiş, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **118**, 49 (1996).
- [13] C. İbiş and Ç. Sayıl, *Synth. Commun.*, **24**, 2797 (1994).
- [14] C. İbiş, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **130**, 79 (1997).
- [15] C. İbiş and C. Sayıl, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **72**, 225 (1992).
- [16] R. V. Kabardin, V. I. Potkin, and V. A. Zapolskii, *Russian Chem. Reviews*, **66**, 10 (1997).
- [17] V. Ceccletti and A. Fravolini, *J. Med. Chem.*, **39**, 4952 (1996).
- [18] Diamond Alkali Company (Ert. H. Bluestone), US Pat. 3021370 (13 February 1962); *Chem. Abstr.*, **57**, 3293c (1962).