

УДК 547.551 : 541.128.1 : 542.951.1

Л.Я.Штейнберг, С.М.Шейн

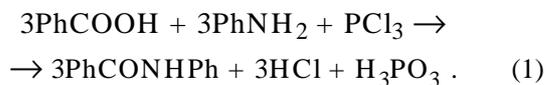
### ТРЕХХЛОРИСТЫЙ ФОСФОР — КАТАЛИЗАТОР И КОНДЕНСИРУЮЩИЙ АГЕНТ В СИНТЕЗЕ БЕНЗАНИЛИДА

Изучено влияние концентрации треххлористого фосфора в реакции бензойной кислоты с анилином. Найдено, что синтез бензанилида при этом протекает по двум маршрутам. Сначала треххлористый фосфор играет роль конденсирующего агента, что сопровождается быстрым получением бензанилида в соотношении 3 моль последнего на 1 моль треххлористого фосфора. После чего *in situ* образуются фосфорсодержащие кислоты, которые являются истинными катализаторами синтеза бензанилида. Для достижения высоких значений выхода бензанилида достаточно использовать 2–4 % мол. от бензойной кислоты треххлористого фосфора.

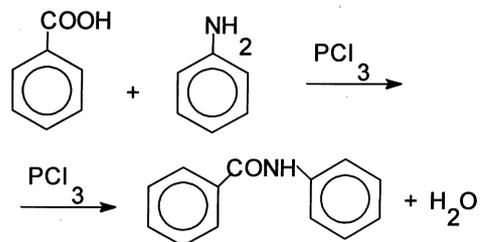
**ВВЕДЕНИЕ.** Ранее [1, 2] показано, что треххлористый фосфор ( $\text{PCl}_3$ ), используемый в количестве всего лишь 2 % мол. по отношению к карбоновой кислоте, катализирует образование с высоким выходом бензанилида и анилида 2,3-оксинафтойной кислоты реакцией, соответственно, бензойной или 2,3-оксинафтойной кислот с анилином. Установлено [1, 3], что продукты возможных превращений  $\text{PCl}_3$  в реакционной массе при проведении амидирования (фосфористая и метафосфористая кислоты, N-фенилфосфазилид, монофосфит анилина) также катализируют ацилирование анилина бензойной кислотой.

Изучено влияние концентрации одного из этих продуктов — фосфористой кислоты — на выход бензанилида [3]. Показано, что имеется узкий интервал концентраций  $\text{H}_3\text{PO}_3$  (2–5 % мол. от бензойной кислоты), в котором катализ наиболее эффективен и бензанилид образуется с высоким выходом. При применении катализатора в большем количестве часть анилина связывается с ним в монофосфит анилина, являющийся, по-видимому, малореакционноспособным по отношению к бензойной кислоте, что сопровождается замедлением процесса каталитического амидирования.

В то же время известно [4, 5], что  $\text{PCl}_3$  традиционно используется в синтезе амидов карбоновых кислот реакцией карбоновых кислот с аминами как конденсирующий агент в количестве, близком к стехиометрическому или в избытке (~33–50 % мол. от взятой для синтеза карбоновой кислоты), формально, согласно приведенному уравнению:



Поэтому представлялось целесообразным изучить синтез бензанилида в широком интервале концентраций треххлористого фосфора, оценить его действие как катализатора и/или конденсирующего агента.



Последнее важно и с точки зрения практического использования, так как применение больших количеств  $\text{PCl}_3$  при ацилировании аминов карбоновыми кислотами приводит к значительной коррозии оборудования, загрязнению окружающей среды, усложнению всего технологического процесса получения амидов.

Зачастую очень реакционноспособные галогениды фосфора, используемые при получении амидов в относительно больших количествах, вызывают протекание побочных реакций. Так, например, показано [6], что применение в синтезе анилида салициловой кислоты  $\text{PCl}_3$  в количестве более 40 % мол. по отношению к салициловой кислоте приводит к его взаимодействию с целевым продуктом и вызывает уменьшение выхода последнего.

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ.** Бензойную кислоту, *орто*-ксилол, анилин, *n*-декан, солянокислый анилин,  $\text{PCl}_3$  очищали и использовали, как в работах [1–3, 7]. ИК-спектры выделенных твердых продуктов записывали на приборе UR-20 в таблетках KBr.

Получение бензанилида, а также анализ смесей и определение чистоты синтезированных веществ проводили согласно работам [1, 3]. Ацилирование анилина бензойной кислотой в присутствии  $\text{PCl}_3$  осуществляли в воздушной атмосфере только при интенсивном кипении с отгонкой образующейся воды и без остановки.

При проведении кинетических измерений в колбу, снабженную насадкой Дина–Старка и обратным холодильником, загружали 3.90 г бензойной кислоты, 2.98 г анилина, 20 мл растворителя. Реакционную массу нагревали до 80 °С, затем добавляли раствор  $\text{PCl}_3$  в растворителе, продолжали нагрев в течение 2–3 мин до 145 или 174 °С (растворитель, соответственно, *орто*-ксилол или *n*-декан) и выдерживали при кипении определенное время.

Выход бензанилида определяли весовым способом [1] и с помощью методики потенциометрического неводного титрования, описанной в работе [5]. Точность кинетических измерений составляла  $\pm 2\%$  абс.

**ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ.** Влияние количества  $\text{PCl}_3$  на выход бензанилида изучали в интервале 0–20 % мол. от бензойной кислоты, в котором уже были получены близкие к количественным значения выхода целевого продукта.

Для синтеза использовали свежечищенный  $\text{PCl}_3$ , хранимый не более одного месяца в виде герметично закрытых, но периодически открываемых (для отбора проб) растворов в *орто*-ксилоле или *n*-декане. При длительном хранении (более 1 мес) активность  $\text{PCl}_3$  в синтезе бензанилида изменялась на 10–15 % от первоначальной (об активности катализатора судили по выходу бензанилида за 1 ч в сопоставимых условиях). Ранее для другого производного трехвалентного фосфора — фосфористой кислоты, подобное уменьшение каталитической активности в синтезе бензанилида при хранении связывали с ее склонностью к окислению и полимеризации [1, 8].

Установлено, что проведение ацилирования

при разных концентрациях  $\text{PCl}_3$  приводило к превращению бензойной кислоты только в бензанилид. В предварительных опытах найдено время протекания реакции (0.3 ч в *орто*-ксилоле и 0.1 ч в *n*-декане), при котором быстро получается бензанилид в количестве, соответствующем образованию целевого продукта по уравнению (1).

Оказалось, что хранение после этого реакционной смеси при комнатной температуре не приводит к дальнейшему увеличению выхода бензанилида. Это позволило выделять его из конечной реакционной массы или анализировать ее состав без дополнительного прерывания реакции, просто быстро охладив реакционный раствор до комнатной температуры.

Во всех случаях при проведении реакции и добавлении в колбу  $\text{PCl}_3$  сразу же наблюдалось выпадение белого осадка, который по мере кипячения реакционной массы частично возгорался в насадку Дина–Старка и обратный холодильник.

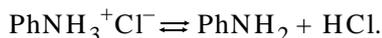
Выделенный и высушенный осадок оказался хлористоводородной солью анилина, идентифицированной по отсутствию депрессии температуры плавления в пробе смешения ( $T_{\text{пл}} = 197\text{--}198\text{ }^\circ\text{C}$ ) и ИК-спектру в сравнении со спектром заведомо известного продукта.

Ранее показано [1, 7], что хлоргидрат анилина, взятый в количестве 2–6 % мол. от бензойной кислоты, практически не катализирует образование бензанилида при ацилировании анилина бензойной кислотой. Поскольку при высоких концентрациях  $\text{PCl}_3$  солянокислый анилин может образовываться в относительно больших количествах, было интересно оценить его реакционную способность при каталитическом амидировании.

Установлено, что хлористоводородный анилин практически не подвергается ацилированию в отсутствие  $\text{PCl}_3$ . Реакция бензойной кислоты с этой солью в кипящем *орто*-ксилоле протекает с низким выходом бензанилида: 0.5–1 % за 1 ч.

В присутствии всего лишь 2 % мол.  $\text{PCl}_3$  хлоргидрат анилина успешно взаимодействует с бензойной кислотой в *орто*-ксилоле, образуя бензанилид с более высоким выходом (55–60 % за 6 ч), чем при реакции бензойной кислоты с анилином в присутствии такого же количества  $\text{PCl}_3$  (40–42 % за 6 ч).

Не исключено, что в каталитическую реакцию при этом вступает все-таки анилин, а не хлоргидрат анилина. Известно [5], что последний при нагревании в малополярных растворителях медленно разлагается на анилин и хлористый водород, десорбирующийся из жидкой фазы:



При этом в массе все время присутствует анилин, медленно образующийся по уравнению (3) и превращающийся далее в бензанилид.

Более высокий выход целевого продукта при использовании вместо анилина его хлористоводородной соли может быть связан с ее дополнительным кислотно-каталитическим действием на одной из стадий процесса. Так, например, известно [9, 10], что амиды кислот трехвалентного фосфора при взаимодействии с хлорангидридами карбоновых кислот (в том числе и с бензоилхлоридом) образуют преимущественно  $\alpha$ -кетофосфонаты по реакции Арбузова, а в присутствии хлоргидратов аминов (в том числе и хлоргидрата анилина) — амиды карбоновых кислот.

На рис. 1 представлены кинетические кривые накопления бензанилида во времени в зависимости от количества используемого  $\text{PCl}_3$  (здесь и далее его выражали в % мол. от бензойной кислоты).

Как видим из рис. 1, *а, б* (кривые 1), в отсутствие  $\text{PCl}_3$  бензанилид образуется с относительно низким выходом, который все же возрастает при повышении температуры и проведении реакции в *n*-декане. Добавка даже небольшого количества  $\text{PCl}_3$  (0.25–1 %) существенно повышает выход целевого продукта (рис. 1, *а*, кривая 2; рис. 1, *б*, кривые 2, 3).

В *орто*-ксилоле при увеличении концентрации  $\text{PCl}_3$  до 6 % мол. и до высокой степени превращения происходит монотонный рост выхода бензанилида (рис. 1, *а*, кривые 2–6) во всем временном интервале. Однако при концентрации  $\text{PCl}_3$  более 6 % мол. (кривые 7–9) и времени протекания реакции 8–13 ч такая симбатность отсутствует.

Подобные закономерности наблюдаются и при проведении амидирования в *n*-декане. При увеличении концентрации  $\text{PCl}_3$  до 5 % мол. и до высокой степени превращения происходит монотонный рост выхода бензанилида (рис. 1, *б*,

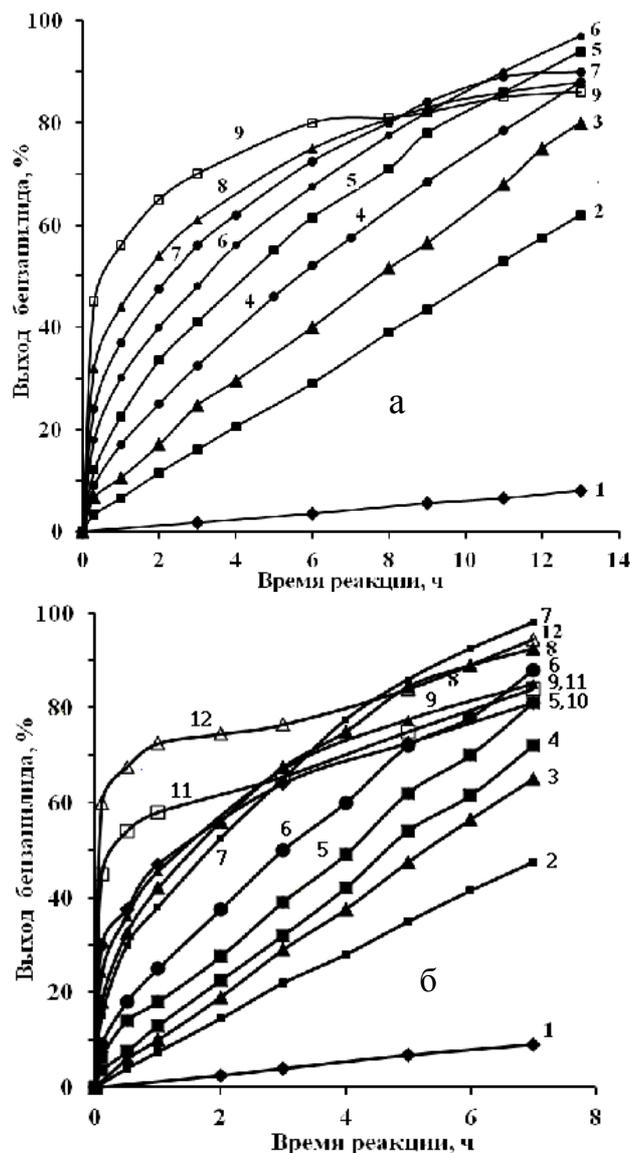


Рис. 1. Кривые накопления бензанилида во времени: 1 – 0, 2 – 1, 3 – 2, 4 – 3, 5 – 4, 6 – 6, 7 – 8, 8 – 10, 9 – 15 (*а*); 1 – 0, 2 – 0.25, 3 – 0.5, 4 – 1, 5 – 2, 6 – 3, 7 – 5, 8 – 6, 9 – 8, 10 – 10, 11 – 15, 12 – 20 (*б*)  $[\text{PCl}_3]_0$ , % мол. от  $\text{PhCOOH}$ . *Орто*-ксилол, 145 °С (*а*), *n*-декан, 174 °С (*б*);  $[\text{PhCOOH}]_0 = [\text{PhNH}_2]_0 = 1.6$  моль/л.

кривые 1–7) во всем временном интервале. Однако при концентрации  $\text{PCl}_3$  более 5 % мол. (кривые 8–12) и времени протекания реакции 3–7 ч такая симбатность также отсутствует.

Более наглядно влияние  $\text{PCl}_3$  показано на рис. 2, где на основании данных рис. 1 построена зависимость выхода бензанилида за опреде-

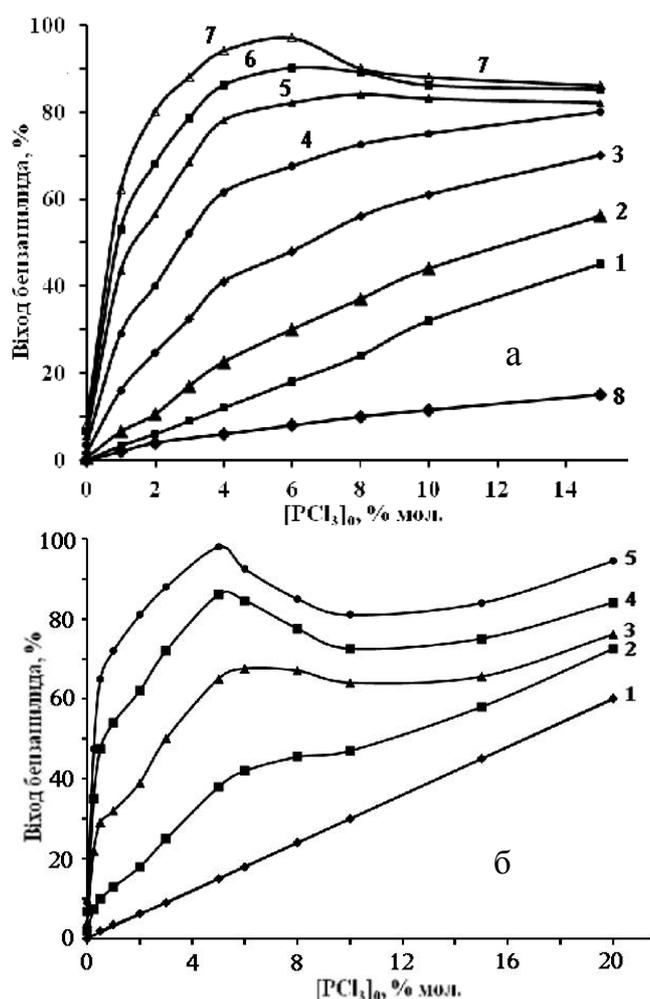


Рис. 2. Зависимость выхода бензанилида при проведении реакции в *орто*-ксилоле (а) и в *n*-декане (б) от концентрации треххлористого фосфора  $[PCl_3]_0$ , % мол. от бензойной кислоты, за определенное время, ч: 1 – 0.3; 2 – 1; 3 – 3; 4 – 6; 5 – 9; 6 – 11; 7 – 13; 8 – 0.3 (вместо  $PCl_3$  использована  $H_3PO_3$ , данные взяты из работы [3]) (а); 1 – 0.1; 2 – 1; 3 – 3; 4 – 5; 5 – 7 (б).

ленное время от начальной концентрации  $[PCl_3]_0$ .

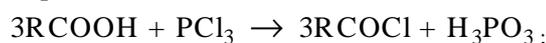
Как видим из рис. 2, а, б (кривые 1), при проведении реакции в *орто*-ксилоле или в *n*-декане в течение, соответственно, 0.3 и 0.1 ч имеется линейная зависимость между ростом  $[PCl_3]_0$  и значений выхода бензанилида.

При увеличении времени реакции от 0.3 до 6 ч в *орто*-ксилоле (рис. 2, а кривые 2–4) и от 0.1 до 1 ч в *n*-декане (рис. 2, б кривая 2) выход бензанилида изменяется симбатно  $[PCl_3]_0$ , все более по нелинейному закону. При возрастании

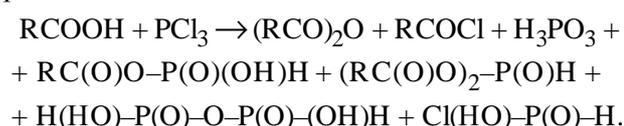
времени амидирования свыше 6 ч в *орто*-ксилоле (рис. 2, а, кривые 5–7) и от 1 до 3 ч в *n*-декане (рис. 2, б, кривые 3–5) форма кривых зависимости выхода бензанилида от количества использованного  $PCl_3$  меняется до “куполообразных”.

Проведение ацилирования в *n*-декане свыше 3 ч приводит снова к росту выхода бензанилида даже после “купола” (рис. 2, б, кривые 3–5).

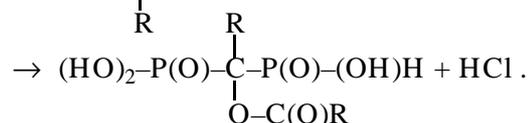
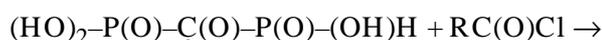
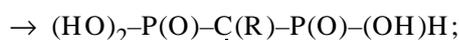
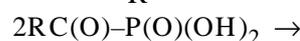
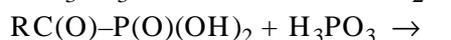
Известен ряд маршрутов протекания реакции амидирования в присутствии  $PCl_3$ , связанных с его возможными превращениями. Так, он способствует переводу карбоновой кислоты ( $RCOOH$ ) в ее более реакционноспособный хлорангидрид [4, 5]:



Установлено [11], что при взаимодействии  $PCl_3$  с карбоновыми кислотами в зависимости от соотношения  $PCl_3 : RCOOH$ , температуры реакции, природы  $RCOOH$  образуется смесь продуктов, в которой, кроме хлорангидрида карбоновой кислоты, наблюдают ее ангидрид; моно- и диацилфосфиты; фосфористую и пиррофосфористую кислоты; хлорангидрид фосфористой кислоты:



Хлорангидриды карбоновых кислот ( $RCOCl$ ) также могут взаимодействовать с фосфористой кислотой, давая целый ряд продуктов:



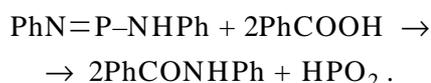
Образующиеся ацилфосфиты легко переходят

дят в амиды карбоновых кислот в реакциях с аминами [12].

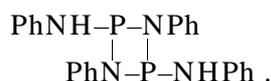
Известно также, что различные фосфорсодержащие кислоты и их амиды являются эффективными катализаторами ацилирования ароматических аминов хлорангидридами и ангидридами карбоновых кислот [13–15].

Показано [16], что взаимодействие анилина с  $\text{PCl}_3$  приводит к получению фосфазосоединения:

$2\text{PhNH}_2 + \text{PCl}_3 \rightarrow \text{PhN}=\text{P}-\text{NPh} + 3\text{HCl}$ ,  
которое легко вступает в реакцию с бензойной кислотой, давая бензанилид:

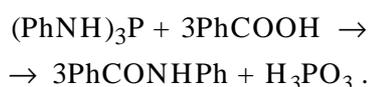


В более поздних работах установлено [17, 18], что, кроме фосфазосоединений, возможно образование трианилида фосфористой кислоты  $(\text{PhNH})_3\text{P}$  и 1,3-дифенил-2,4-дианилидоциклодифосф (III) азана:



Оба этих соединения очень чувствительны к воде и кислороду воздуха — быстро гидролизуются и окисляются, поэтому их трудно получить и выделить.

С бензойной кислотой в относительно мягких условиях трианилид фосфористой кислоты также образует бензанилид [17]:



Таким образом, в реакционной массе, содержащей анилин, бензойную кислоту и  $\text{PCl}_3$ , первоначально возможно протекание ряда реакций, которые трудно различить. Общими чертами таких процессов являются: наличие в молекуле соединения фосфора легко замещаемого хлора, по мере расходования которого амидирование сильно замедляется; быстрое образование амида карбоновой кислоты, протекающее, в ряде случаев, даже при комнатной температуре, за небольшой промежуток времени (0.3 ч в *орто*-ксилоле и 0.1 в *n*-декане при синтезе бензанилида); стехиометрическое взаимодействие реагентов с треххлористым фосфором с получением на 1 моль последнего 3 моль амида карбоновой кислоты.

На рис. 2, *a* для сравнения приведена кривая изменения выхода бензанилида в зависимости от начальной концентрации фосфористой кислоты ( $\text{H}_3\text{PO}_3$ ) в течение 0.3 ч (кривая 8), построенная по данным работы [3]. Как видим из рисунка (кривые 2, 8), при времени реакции 0.3 ч выход бензанилида в присутствии  $\text{PCl}_3$  значительно выше, чем при использовании  $\text{H}_3\text{PO}_3$ , не имеющей в молекуле активного хлора.

Назовем такой маршрут “амидирование с использованием конденсирующих агентов”, который протекает со скоростью  $W_{тка}$ .

По мере быстрого расходования треххлористого фосфора в массе образуются *in situ* фосфорсодержащие кислоты, являющиеся, по-видимому, истинными катализаторами образования бензанилида.

С учетом проявляемой каталитической активности это могут быть, например, упомянутые выше фосфористая и метафосфористая кислоты. Каталитическая реакция, протекающая со скоростью  $W_{ткат}$ , преобладает при времени реакции более 0.3 ч в *орто*-ксилоле и 0.1 ч — в *n*-декане.

В целом, с учетом полученных экспериментальных данных, можно выделить кинетически три потока образования бензанилида со скоростью  $W_{тнабл}$  при времени реакции  $t$ :

$$W_{тнабл} = W_{тнекат} + W_{тка} + W_{ткат},$$

поскольку  $W_{ока} > W_{окат} > W_{онекат}$ .

$W_{тнекат}$  отражает протекание медленной некаталитической реакции, и ею можно пренебречь.

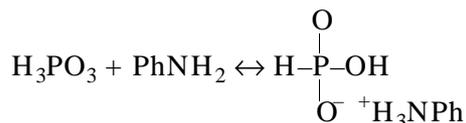
С учетом этих изменений наблюдаемую начальную скорость образования бензанилида ( $W_{онабл}$ ) можно представить как:

$$W_{онабл} = W_{онекат} + W_{ока} + W_{окат} = W_{ока}.$$

При увеличении времени реакции свыше 0.3 ч в *орто*-ксилоле и 0.1 в *n*-декане, когда весь  $\text{PCl}_3$  израсходован, наблюдаемую скорость реакции  $W_{тнабл}$  можно представить как  $W_{тнабл} = W_{ткат}$ .

С точки зрения практики важна возможность достижения максимального выхода бензанилида. Как видим из рис. 2, *a*, в *орто*-ксилоле это происходит в области “купола”. Можно допустить, так же, как и ранее для фосфористой кислоты [3], что при относительно высоких концентрациях  $\text{PCl}_3$  и, соответственно, образующейся из него  $\text{H}_3\text{PO}_3$ , в массе накапливается боль-

шое количество монофосфита анилина, который далее не реагирует с бензойной кислотой:



При проведении реакции в декане максимальные значения выхода бензанилида наблюдаются в области “купола”, а также при высокой  $[\text{PCl}_3]_0$  (20 %) и большой длительности реакции (рис. 2, б, кривые 3–5).

Для объяснения таких закономерностей воспользуемся следующей моделью. Допустим, что максимальный выход бензанилида по маршруту  $W_{\text{тка}}$  изменяется прямо пропорционально увеличению  $[\text{PCl}_3]_0$  и составит, согласно уравнению (1) и полученным экспериментальным данным,  $3 \cdot [\text{PCl}_3]_0$ .

Максимальный выход бензанилида, с учетом уравнений (1, 16), по маршруту  $W_{\text{ткат}}$  равен:  $100 - [\text{H}_3\text{PO}_3] - 3 \cdot [\text{PCl}_3]_0 = 100 - 4 \cdot [\text{PCl}_3]_0$ , где 100 — это относительная начальная концентрация анилина в % мол.

Суммарный максимальный выход бензанилида по этим маршрутам при условии, что некаталитической реакцией можно пренебречь, равен:  $100 - 4 \cdot [\text{PCl}_3]_0 + 3 \cdot [\text{PCl}_3]_0 = 100 - [\text{PCl}_3]_0$ .

На рис. 3 построены кривые, иллюстрирующие эти изменения максимального выхода бензанилида при длительном проведении амидирования.

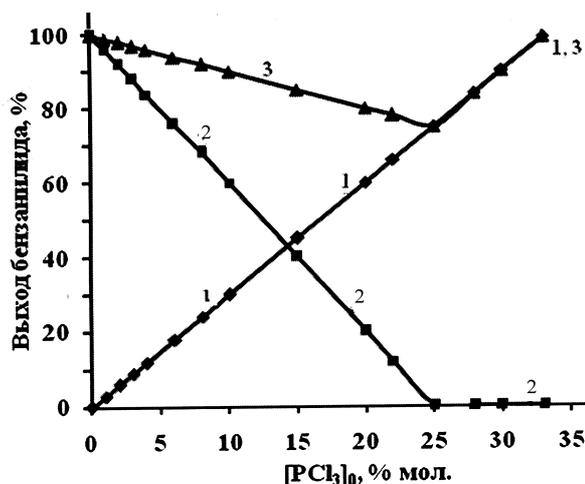
В отсутствие  $\text{PCl}_3$  возможно протекание только некаталитической реакции  $W_{\text{некат}}$  с максимальным выходом бензанилида 100 % (точка, лежащая на оси абсцисс).

Как видим из рис. 3 (кривая 1), выход целевого продукта по маршруту  $W_{\text{тка}}$  растет линейно практически до 100 % при увеличении  $[\text{PCl}_3]_0$  от 0 до 33 %.

Выход бензанилида по маршруту  $W_{\text{ткат}}$  монотонно снижается до 0, уже при  $[\text{PCl}_3]_0 = 25$  % (рис. 3, кривая 2). При более высокой  $[\text{PCl}_3]_0$  бензанилид образуется только по маршруту  $W_{\text{тка}}$ .

Таким образом, построенная модель позволяет объяснить экспериментальные данные и четко различить два интервала  $[\text{PCl}_3]_0$ , в которых протекает синтез бензанилида по маршрутам  $W_{\text{тка}}$  и  $W_{\text{ткат}}$  с высоким выходом.

С учетом этой модели и полученных ре-



ис. 3. Модельная зависимость максимального выхода бензанилида от концентрации трихлористого фосфора  $[\text{PCl}_3]_0$ , % мол. от бензойной кислоты: 1 — маршрут  $W_{\text{тка}}$ ; 2 — маршрут  $W_{\text{ткат}}$ ; 3 — суммарно маршруты  $W_{\text{тка}} + W_{\text{ткат}}$

зультатов (рис. 2) для успешного синтеза бензанилида на практике лучше использовать 2–4 %  $\text{PCl}_3$ . Это дает возможность избавиться от указанных выше недостатков технологических процессов синтеза амидов в присутствии относительно больших количеств трихлористого фосфора.

**РЕЗЮМЕ.** Вивчено вплив концентрації трьоххлористого фосфору в реакції бензойної кислоти з аніліном. Знайдено, що синтез бензаніліду при цьому протікає за двома маршрутами. Спочатку трьоххлористий фосфор грає роль конденсуючого агента, що супроводжується швидким отриманням бензаніліду у співвідношенні 3 моль останнього на 1 моль трьоххлористого фосфору. Після чого *in situ* утворюються фосфорвміщуючі кислоти, які є істинними каталізаторами синтезу бензаніліду. Для досягнення високих значень виходу бензаніліду достатньо використовувати 2–4 % мол. від бензойної кислоти трьоххлористого фосфору.

**SUMMARY.** The effect of the concentration of phosphorous trichloride in the reaction of benzoic acid with aniline was investigated. It was found that the synthesis of benz-anilide proceeds along two routes. First, phosphorus trichloride acts as a condensing agent, which is accompanied by rapid benzanilides obtaining with a ratio of 3 moles of the last per 1 mole of phosphorus trichloride. Then *in situ* the phosphorus-containing acids are formed, which are the true catalysts for the synthesis of benzanilide. In order to achieve high values of output

benzanilide the using of phosphorus trichloride in a narrow range of 2–4 % mol. of benzoic acid is enough.

ЛИТЕРАТУРА

1. Штейнберг Л.Я., Бойко В.Д., Кондратов С.А. и др. // Журн. орган. химии. -1992. -**28**, № 5. -С. 1034—1038.
2. Кондратов С.А., Штейнберг Л.Я., Шейн С.М. и др. // Там же. -1994. -**30**, № 2. -С. 284—285.
3. Штейнберг Л.Я., Диброва В.М., Шейн С.М. // Укр. хим. журн. -2012. -**78**, № 2. -С. 110—115.
4. Ворожцов Н.Н. Основы синтеза промежуточных продуктов и красителей. -М.: ГОНТИ ХЛ, 1955.
5. Эфрос Л.С., Горелик М.В. Химия и технология промежуточных продуктов. -Л.: Химия, 1980.
6. Liu Z., Ho N. // Huihong Shifan Daxue. Xuebao Ziran Kexueban. -1987. -**21**, № 3. -Р. 360—366.
7. Штейнберг Л.Я., Кондратов С.А., Шейн С.М. // Журн. орган. химии. -1988. -**24**, № 9. -С. 1968—1972.
8. Ван Везер. Фосфор и его соединения. -М.: Изд-во иностр. лит., 1962.
9. Батыева Э.С., Альфонсов В.А., Нестеренко В.Д., Пудовик А.Н. // Журн. орган. химии. -1977. -**47**, № 3. -С. 550—555.
10. Пудовик М.А., Кибардина Л.К., Батыева Э.С., Пудовик А.Н. // Там же. -1979. -**49**, № 8. -С. 1698—1705.
11. Валитова Л.А., Попова Е.Б., Ибрагимов Ш.Н., Иванов Б.Е. // Изв. АН СССР. Сер. хим. -1990. -№ 2. -С. 428—432.
12. Четверкина Л.В., Хохлов П.С., Миронов В.Ф. // Успехи химии. -1992. -**61**, № 10. -С. 1839—1863.
13. Литвиненко Л.М., Тицкий Г.Д., Степко О.П. // Докл. АН СССР. -1972. -**202**, № 5. -С. 1127—1130.
14. Тицкий Г.Д., Литвиненко Л.М., Степко О.П. // Журн. орган. химии. -1974. -**44**, № 8. -С. 1688—1694.
15. Тицкий Г.Д., Степко О.П., Литвиненко Л.М. // Там же. -1975. -**11**, № 5. -С. 1021—1026.
16. Grimmel G.A., Morgan J.F. // J. Amer. Chem. Soc. -1946. -**68**, № 4. -Р. 539—543.
17. Тришин Ю.Г., Чистоклетов В.Н., Петров А.А., Косовцев В.В. // Журн. орган. химии. -1975. -**11**, № 8. -С. 1749—1752.
18. Тришин Ю.Г., Чистоклетов В.Н., Косовцев В.В., Петров А.А. // Там же. -1975. -**11**, № 8. -С. 1752—1755.

НТУ “Институт химической технологии и промышленной экологии”, Рубежное

Поступила 31.05.2012