

**(s) Triazol-N- Glikozitleri. III Bazı 1,5 Disübstitüe - 1, 2, 4-
triazol -3- on N-glikozitleri üzerinde Sentez Çalışmaları**

Die Untersuchung über enige 1,5- Disübstitüerte 1, 2, 4- triazol -3-
on -N- Glycoside

Mevlüt ERTAN*

GİRİŞ

Bundan önceki çalışmada¹ bazı 1,5 -disübstitüe 1, 2, 4- triazol
-3- on türevi bileşikler nükleobaz olarak sentez edildikten sonra, bir
heksos olan glukoz ile nükleozitleri elde edilmişti. Bu çalışmada aynı
türevler nükleobaz olarak ele alınarak bir pentoz olan ksiloz ile nükleozitlerinin
hazırlanması amaçlanmıştır.

MATERYAL VE METOT

Çalışma için gereksinme duyulan 1,5- disübstitüe-1, 2, 4- tria-
zollerden 1. ve 5. konumlarda farklı sübstitüent içeren 1, 2, 4- triazol
-3- on = **A**, 1- fenil - 1, 2, 4- triazol -3- on = **B**, 1- (p-nitrofenil) - 1,2,
4- triazol -3- on = **C**, 1- fenil- 5- etil -, 1,2, 4- triazol -3- on = **D** ve
1- fenil -5- izopropil - 1, 2, 4,- triazol -3- on = **E** türevlerinin hazırla-
nışı ve sentez yöntemleri bir önceki çalışmada verilmişti.

Bu bileşiklerin nükleozitlerinin hazırlanabilmesi için HUDSON
ve JOHNSON² un verdikleri tekniğe göre asetobromksiloz hazırlana-
rak sübstitüsyonun gerçekleştirilmesine çalışıldı.

Daha önceki çalışmada olduğu gibi, bu sübstitüsyon reaksiyo-
nunda da önce modifiye Hilbert-Johnson yöntemi denendi³⁻⁷. Bu
yöntemle sadece A türevinin sübstitüsyon verdiği; B, C, D ve E tü-
revlerinin reaksiyona girmedığı gözlemlendi.

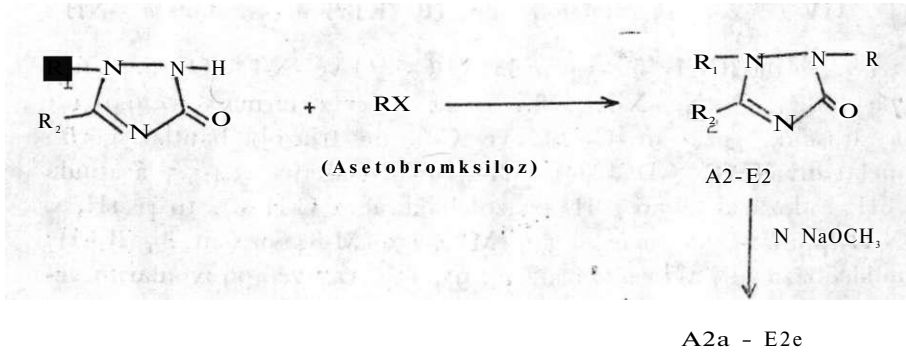
Redaksiyona verildiği tarih: 30. Ocak 1981

*Farmasötik Kimya Bilim Dalı, Eczacılık Fakültesi, Hacettepe Üniversitesi

Bu türevlerin süstitüsyonun da, modifiye Fischer³⁻¹⁰ yöntemi ile oldukça yüksek bir verimle gerçekleştiği görülmüştür. Böylece A₂,

B2, **C2**, **D2** ve **E2** bileşikleri elde edilmiştir (Şema-1).

Saflaştırılan süstitüsyon ürünlerinin IR, NMR, Mass ve elementer analizleriyle kimyasal yapıları doğrulandıktan sonra N NaOMe ile deaçilasyonları gerçekleştirilmiştir³⁻⁷. Böylece **A2a**, **82b**, **C2C**, **D2d** ve **E2e** N-glikozitleri elde edilerek antiviral aktivitelerinin kontrolüne geçilmiştir.



Şema -1

DENEYSEL KISIM

İnce tabaka kromatografisi: Kieselgel HF₂₅₄, Selüloz adsorbanları kullanıldı. Solvan sistemleri: **1**) Kloroform: etilasetat (**1:1**), **2**) Benzen: etilasetat (**1:1**). **3**) Kloroform: MeOH (**9:1**), **4**) n-BuOH: Asetik asit: Su (**4:1:5**), **5**) n-PrON: NFF₃ (% **25**): Su (**6:3:1**)

Erimenoktaları, Metler FP-5 de kapiller yöntemle yapıldı. Değerler düzeltilmeden verildi.

Elementer analizler mikrometotla yapıldı. UV spektral ölçmeleri Pye-Unicam SP-1700, IR. Pye-Unicam SP-1100, NMR spektrumları Varian H A100 MHz ve Mass spektrumları EAI-Ms-30 aletinde elektron iyonizasyon yöntemi ile yapıldı.

2- (2'3'4'- Tri-o- asetil -D- ksilopiranozido) -1, 2, 4- triazol -3- on = A2

0.425 g (0.005 mol) 2, 4- triazol -3- on = A ile 1.695 g (0.005 mol) asetobromksiloz dan hareketle Metot-1 (Modifiye Hilbert-John-

son yöntemi¹ uygulanarak elde edilen ham ürün, mutlak etanolden kristallendirilerek saflaştırıldı. % 72.3 verimle 1.24 g madde elde edildi. Ed: 214-215°C, Rf = 0.20 (solvan-1), 0.22 (solvan-2), 0.81 (solvan-3).

Elementer analizi: (C₁₃ H₁₇ N₃ O₅) için

Hesaplanan: C: 45.48 H: 4.95 N: 12.24

Bulunan : C: 45.56 H: 4.96 N: 12.02

UV $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: 213 (ϵ : 36200) nm, IR (KBr) maks. 2.96 μ (-NH),

3.1-34 μ da (C-H), 5.7-5.9 μ da (O-C=O ve -N-C=O), 6.35, 6.9, 7.3 μ da (-C=N, -N-N-), 8.1 μ da (ester deformasyon), 9.0-10.1 μ arasında (oza ait C-O-C ve C-C ile triazol) bantları görülmektedir. NMR (CDCl₃) δ : 1.98-2.28 (9H, asetil), 3.4-5.5 arasında (6H, ksiloza ait), 7.6 (1H, triazol halkasının C-H s.), 10.4 (1H, s. N-H) ppm. Mass.: m/e = 343 (M⁺), 259 (M-84) oza ait, 85 (B+H) nükleobaza ait, ayrıca oza ait 43, 97, 139, 157 ve 199 iyonlarını veren sinyaller gözlenmektedir.

2- (D-Ksilopranozido) -1, 2, 4- triazol -3- on = A2a

0.858 g (0.0025 mol) A₂ den hareketle, genel deaçilasyon yöntemi¹ uygulanarak elde edilen ham ürün mutlak etanolden kristallendirildi. % 63.59 verimle 0.345 g madde elde edildi. Ed: 169-170°C, Rf = 0.38 (solvan-4), 0.16 (solvan-5).

Elementer analizi: (C₇ H₁₁ N₃ O₅) için

Hesaplanan: C: 38.70 H: 5.06 N: 19.35

Bulunan : C: 38.22 H: 5.15 N: 18.97

UY $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: 210 (ϵ : 26200) nm, IR (KBr) maks. 2.9-3.1 μ (serbest

-OH), 3.3 μ da (-NH), 3.3-3.4 μ (C-H), 5.9 μ da (-N-C=O), 6.4, 7.1 ve 7.3 μ da (-C=N ve -N-N-), 8.9-9.5 μ da (ksiloza ait C-O-C ve C-C ile triazol halkasına ait) bantlar gözlemlendi.

1-Fenil-2- (2'3'4' tri - o asetil -D- ksilopiranozido) 1,2,4 triazol -3- on — B2

0.8 g (0.005 mol) 1- fenil -1, 2, 4- triazol -3- on = B ile 1.695 g (0.005) mol) asetobromksiloz dan hareketle Metot-II (Modifiye

Fischer)¹ yönteminde verilen teknik uygulanarak elde edilen ham ürün etanolden kristallendirilerek saflaştırıldı. Ed.: 290-291°C, Rf=0.14 (Solvan-1), 0.09 (solvan-2), 0.75 (solvan-3).

Elemanter analizi: (C₁₉ H₂₁ N₃ O₈) için

Hesaplanan: C: 54.41 H: 5.01 N: 10.02

Bulunan : C: 54.68 H: 5.10 N: 9.94

UV λ ^{MeOH}_{maks} : 218 (ϵ : 44900), 280 (ϵ : 22500) nm, IR (KBr)

maks. 3.2-3.4 μ da (C-H), 5.7 μ da (-O-C=O), 6.05 μ da (-N-C=O) 6,4, 6.8 ve 7.3 μ da (aromatik, -C=N, -N-N-), 8.1 μ da (Asetil ester deformasyon), 8.8-10.0 arasında (oza ait C-O-C ve C-C ile triazol halkasına ait karakteristik) bantlar görülmektedir. 13.2 μ ve 14.7 μ da (aromatik vibrasyon) bantları izlenmektedir.

NMR (DMSO-d₆ + CDCl₃) δ : 2.0 (9H. asetil -CH₃), 3.8-5.8 arasında (6H. ksiloza ait), 7.5 (3H. m. 1. konumdaki fenil m. ve p. konum), 7.8 (2H. d. fenil grubunun o. konum), 10.1 (1H. s. 5. konum C-H) ppm. **Mass.:** m/e = 419 (M⁺), 259 (M-160) oza ait 161, (B+H) baza ait iyonları veren sinyallerle, oza ait 43, 60, 97, 139, 157, 199 ve baza ait 32, 43, 64, 77, 91 ve 134 iyonlarını veren sinyaller izlenmektedir.

1- Fenil - 2 - (D- Ksilopiranozido) - 1, 2, 4- triazol -3- on = B₂b

Genel de açılasyon yöntemi¹ uygulanarak, 1.048 g (0.0025 mol) B2 den hareketle elde edilen sıvı ham ürün mutlak etanolden kristallendirildi. % 60.1 verimle 0.440 g madde elde edildi. Ed.: 199-200°C, Rf = 0.68 (solvan-4), 0.40 (solvan-5).

Elemanter analizi: (C₃ H₁₅ N₃ O₃) için

Hesaplanan: C: 53.24 H: 5.12 N: 14.33

Bulunan : C: 52.47 H: 4.95 N: 13.89

UV λ ^{MeOH}_{maks} : 206 (ϵ : 34600), 232 (ϵ : 44800), 280 (ϵ : 12600) nm; IR.

(KBr) maks. 2.8-3.2 μ arasında (serbest -OH), 3.4-3.5 μ da C-H), (5.0 μ da (-N-C=O), 6.2 μ , 6.5 μ , 6.7 μ da (aromatik, -C=N, -N-N-), 9.0-9.9 μ arasında (oza ait C-O-C eter, C-C ve triazol halkasına ait) karakteristik bantlar gözlenmektedir.

1- (p- Nitrofenil) -2- (2'3'4' -tri -o- asetil -D-ksiolpiranozido) -1, 2, 4- Triazoj. -3- on = C2

1.03 g (0.005 mol) 1- (p-Nitrofenil) -1, 2, 4- triazol -3- on = C ve **1.695 g (0.005 mol)** asetobromksiloz dan hareketle modifiye Fischer yöntemine¹ göre çalışılarak elde edilen ham ürün metanolde kristallendirildi. Ed.: **250-251°C**, Rf = **0.08** (solvan-1), **0.10** (solvan-2), **0.70** (solvan-3).

Elementer analizi: (C₁₉ H₂₀ N₄ O₁₀) için

Hesaplanan: C: **49.13** H: **4.31** N: **12.06**

Bulunan : C: **49.21** H: **4.39** N: **11.95**

UV $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: **206** (ϵ : **42700**), **256** (ϵ : **31400**), **318** (ϵ : **33500**)

nm.: IR (KBr) maks. **3.25-3.4** μ da (C-H), **5.75** μ da (-O-C = O), **6.0** μ da (-N-C = O), **6.3, 6.4** ve **6.6** μ da (aromatik, -C=N), **7.3** ve **7.5** μ da (-NO₂), **8.2** μ da (asetil ester deformasyon), **9.1-9.9** μ arasında (oza ait C-O-C, C- C ile triazol halkasına ait deformasyon), **11.8** ve **13.3** μ da (aromatik deformasyon) bantları görülmektedir. NMR (DMSO-d₆) δ : **2.0** (9H. asetil -CH₃ leri), **3.8-5.8** arasında (6H. ksiloza ait) **8.1** (2H. d. fenil grubunun m. hidrojenleri), **8.4** (2H. d. fenil grubunun o. hidrojenleri), **10.4** (1H. s. triazol halkasının 5. konum C-H).

1- (p- Nitrofenil) .2- (D-Ksilopiranozido)-1, 2, 4- triazol -3- on = C2C

1.16 g (0.0025 mol) C₂ den hareketle genel deaçilasyon yöntemi uygulanarak elde edilen ham ürün mutlak etanolden kristallendirildi. % **73.37** verimle **0.62 g** saf madde elde edildi. Ed.: **219-220°C**, Rf = **0.74** (solvan-4), **0.41** (solvan:5).

Elementer analizi: (C₁₃ H₁₄ N₇ O₇) için

Hesaplanan: C: **46.15** H: **4.14** N: **16.56**

Bulunan : C: **46.02** H: **4.42** N: **16.26**

UV $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: **206** (ϵ : **25400**), **221** (ϵ : **22200**), **350** (ϵ : **40600**)

nm.; IR. (KBr) maks.: **2.8-3.1** μ arasında (serbest-OH), **3.4-3.5** μ da (C-H), **6.1** μ da (-N-C = O), **6.25, 6.5, 6.7** ve **6.8** μ da (aromatik,

- C = N, - N - N - gerilme), 7.6 μ da (-NO₂), 9.0-9.7 μ ve 9.9 μ da (oza ait C-O-C, C-C ve triazol deformasyon), 11.9 μ ve 13.4 μ da (aromatik deformasyon) bantları gözlenmektedir.

1 - Fenil -5- etil -2 -{2' 3' 4.' -tri -o- asetil -D- ksilopiranozido) - 1, 2, 4- triazol -3- on = D2

0.945 g (0.005 mol) 1- fenil -5- etil -1, 2, 4- triazol -3- on = N ve **1.695 S (0.005 mol)** asetobromksiloz dan hareketle modifiye Fischer¹ yöntemi kullanılarak hazırlanan ham ürün etilasetat: eter (1:1) karışımından kristallendirilerek saflaştırıldı. Ed.: **183-184°C**, Rf = **0.53** (solvan-1), **0.50** (solvan-2), **0.89** (solvan-3).

Elemanter analizi: (C₂₁ H₂₅ N₃ O₈) için

Hesaplanan: C: **56.37** H: **5.59** N: **9.39**

Bulunan : C: **56.66** H: **5.55** N: **9.14**

UV $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: **208** (ϵ : **48200**), **234** (ϵ : **38500**) nm; IR. (KBr)

maks.: **3.3-3.5 μ** da (C-H), **5.7 μ** da (-O-C=O), **5.95 μ** (-N-C=O), **6.3, 6.5, 6.7, 7.0 ve 7.3 μ** da (aromatik, - C = N, - N - N - gerilme), **8.1 μ** da (asetil ester deformasyon), **9.0-10.0 μ** arasında (oza ait C-O-C, C-C ile tirazol halkasına ait deformasyon), **13.1 ve 14.5 μ** da (aromatik deformasyon) bantları gözlenmektedir. NMR (CDCl₃) δ : **1.1 (3H. t. 5. konumdaki etil -CH₃).** **2.1 (9H. asetil -CH₃), 3.00 (2H. q. 5. konum etil grubunun -CH₂-), 3.6-5.7 (6H. m. ksiloz hidrojenleri), 7.5 (5H. s. fenil hidrojenleri) ppm. Mass: m/e = 447 (M⁺), oza ait 259 (M-188) ve baza ait 189 (B+H), oz bölümünden gelen 43, 60, 97, 139, 157 ve 199 ile nükleobaz bölümünden gelen 64, 77, 91 ve 146 iyonlarını veren sinyaller gözlenmektedir.**

1- Fenil -5- etil -2- (D-ksilopiranozido) - 1, 2, 4- triazol -3- on = D2d

1.12 g (0.0025 mol) D2 den hareketle genel deaçilasyon yöntemi-ne¹ göre çalışılarak elde edilen ham ürün, mutlak etanolle çözüldükten sonra eter ilâvesiyle çöktürüldü. Çökelek aseton: eter (**1:1**) karışımı ile yıkanarak saflaştırıldı. % **61.05** verimle **0.49 g** madde elde edildi. Ed.: **107-110°C**; Rf = **0.82** (solvan-4), **0.77** (solvan-5).

Elemanter analizi: (C₁₅ H₁₈ N₅ O₃) için

Hesaplanan: C: **56.07** H: **5.91** N: **13.08**

Bulunan : C: **55.62** H: **6.02** N: **12.85**

UV $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: **210** (ϵ : **39100**), **250** (ϵ : **29140**) nm; IR. (KBr)

maks.: **3.0** μ da (serbest -OH), **3.3-3.5** μ arasında (aromatik C-H), **3.5-3.9** μ arasında (alifatik -C-H), **6.0** μ da (-N-C=O), **6.3**, **6.5**, **6.7** μ da (aromatik, -C=N, -N-N- gerilme), **9.0-10.1** μ arasında (oza ait C-O-C ve C-C ile triazol halkasına ait deformasyon), **13.0** ve **14.5** μ da (aromatik deformasyon) bantları görülmektedir.

1- Fenil -5- izopropil -2- (2' 3' 4' -tri- -o- asetil -D- ksilopiranozido) -1, 2, 4- triazol -3- on = E2

1.015 g (0.005 mol) 1-fenil -5- izopropil -1, 2, 4- triazol -3- on = E ve **1.695 g (0.005 mol)** asetobromksiloz dan hareketle modifiye Fischer¹ yönteminde verilen tekniğe göre çalışılarak elde edilen ham ürün etilasetat: eter (**1:1**) karışımından kristallendirilerek saflaştırıldı. Verim % **78.95** ile **1.82 g** madde elde edildi. Ed.: **137-138^oC**. Rf = **0.67** (solvan-1), **0.64** (solvan-2), **0.91** (solvan-3).

Elemanter analizi: (C₂₂ H₂₇ N₃ O₈) için

Hesaplanan: C: **57.26** H: **5.85** N: **9.11**

Bulunan : C: **57.12** H: **5.61** N: **9.14**

UV $\lambda_{\text{maks}}^{\text{MeOH}}$: **208** (ϵ : **42700**), **234** (ϵ : **29900**) nm; IR, (KBr)

maks.: **3.35-3.5** μ da (C-H), **5.75** μ da (-O-C=O), **6.0** μ da (-N-C=O), **6.3**, **6.5**, **6.7**, **6.9**, ve **7.3** μ da (Aromatik, -C=N, -N-N- gerilme), **8.0-8.2** μ da (ester deformasyon), **8.9-10.0** μ arasında (oza ait C- O- C, C-C ve triazol halkasının deformasyon) bantları görülmektedir. NMR (CDCl₃) δ : **1.25** (**6H**. d. izopropil -CH₃ hidrojenleri), **2.05** (**9H**. s. asetil -CH₃), **3.1** (1H. m. izopropil -CH-), **3.4-5.8** arasında (**6H**. ksiloza ait hidrojenler), **7.45** (**5H**. s. fenil hidrojenleri), görülmektedir. Mass.: m/e = **461** (M⁺), **259** (M-202) oza ait, **203** (B+H) baza ait, oza ait; **60**, **97**, **139**, **157**, **199** ve baza ait **43**, **64**, **77**, **91**, **146**, **189** iyonlarını veren sinyaller görülmektedir.

1- Fenil -5- izopropil -2- (D-ksilopiranozido) -1,2,4- triazol -3- on = E2e

1.15 g (0.0025 mol) E2 den hareketle genel deaçilasyon yöntemi¹ uygulanarak hazırlanan ham ürün, mutlak etanolde çözüldü ve üze-

rine eter ilavesiyle çöktürüldü. Çökelek aseton: eter (1:1) karışımı ile yıkanarak temizlendi. % **64.47** verimle **0.540** g madde elde edildi. Ed.: **86-87°C**, Rf = **0.81** (solvan-4) **0.84** (solvan-5)

Elemanter analizi: (C₁₆ H₂₁ N₃ O₅) için

Hesaplanan: C: **57.31** H: **6.27** N: **12.53**

Bulunan : C: **56.79** H: **6.18** N: **12.14**

UV λ : $\frac{M_{OH}}{M_{maks}}$ **210** (ϵ : **38200**), **250** (ϵ : **26300**) nm.: **IR**. (KBr) maks.: **2.9 μ** da (serbest -OH), **3.35-3.5 μ** (aromatik C-H), **3.5-4.2 μ** da (alifatik C-H), **6.0 μ** da (-N-C=O), **6.3, 6.7, 7.0 μ** da (aromatik, -C=N, -N-N- gerilme), **8.9-9.9 μ** da (oza ait C-O-C, C-C ve triazol halkasına ait deformasyon), **13.0 μ** ve **14.5 μ** da (aromatik deformasyon) bantları görülmektedir.

TARTIŞMA ve SONUÇ

Bir önceki çalışmada **1.5-disübstitüe -1, 2, 4-** triazol -3- on türevi bileşiklerden **1, 2, 4-** triazol -3- on = **A** **1-** fenil -**1, 2, 4-** triazol -3- on = **B** **1-** (p. nitrofenil) -**1, 2, 4-** triazol -3- on = **C**, **1-** fenil -**5-** etil -**1, 2, 4-** triazol -3- on = **D** ve **1-** fenil -**5-** izopropil -**1, 2, 4-** triazol -3- on = **E** nükleobazları ele alınarak astobormglukoz ile sübstitüsyon şartları reaksiyonun kontrolü bakımından incelenmişti. Nükleobaz olarak kullanılan bu beşli heterosiklik bileşiklerde bulunan laktam = laktim totomer formlarından dolayı hem O-glikozidasyon hemde N-glikozidasyon (nükleozitleşme) nin oluşacağı düşünülmüş ve bu nokta araştırılmıştı. Oluşturulan reaksiyon şartları, sübstitüsyon reaksiyonunun N-glikozidasyon tarzında yürüdüğünü göstermişti. Bu çalışmada yararlanılan asetobromksiloz ile de sübstitüsyon reaksiyonunun N- glikozidasyon tarzında yürüdüğünü kanıtlanmıştır.

Çalışmada ulaşmayı amaçladığımız bir başka sonuç ise aynı nükleobazların kullanılarak Nükleozitlerinde yararlanılan ozların pentoz veya heksos olması halinde antiviral aktivitede getirebileceği değişikliktir. Bu sonuçlar diğer çalışmada topluca açıklanacaktır¹¹.

ÖZET

Bu çalışmada daha önce sentezleri gerçekleştirilen¹ **1, 2, 4-** triazol -3- on = **A**, **1-** fenil -**1, 2, 4-** triazol -3- on = **B**, **1-** (p-nitrofenil) -**1, 2, 4-** triazol -3- on = **C**, **1-** fenil -**5-** etil -**1, 2, 4-** triazol -3- on =

D ve 1- fenil -5- izopropil -1, 2, 4- triazol -3- on = E nükleobazları ile asetobromksiloz süstitüe edilerek, süstitüsyon ürünleri **A2**, **B2**, **C2**, **D2** ve **E2** elde edilmiştir. Bunların deaçilasyonları ile **A2a** **B2b**, **C2c**, **D2d** ve **E2e** nükleozitleri sentez edilmiştir.

ZUSAMMENFASSUNG

In dieser Arbeit wurde die Derivat von **1, 2, 4- triazol -3- on** = A, 1- phenyl -**1, 2, 4- triazol -3- on** — B, 1- (p. nitrophenyl) -**1,2, 4- triazol -3- on** = C, 1- phenyl -5- ethyl -**1, 2, 4- triazol -3- on** = D und 1- phenyl -5- isopropyl -**1, 2, 4- triazol -3- on** = E mit Ecetobomxylose süstitütiert. Nach der Süstitüsyonsreaktionen wurden **A2**, **B2**, **C2**, **D2** und **E2** erhalten. Zulezt, diese erhaltenen Verbindungen wurden durch die Verseifung der Acetylgruppen **A2a**, **B2b**, **C2k**, **D2d** und **E2e** hergestellt.

LITERATÜR

- 1- Ertan, M., *J. Fac. Pharm. Ankara*, **10**, 124 (1980)
- 2- Hudson, C. S. and Johnson, J. M., *J. Am. Chem. Soc*, **37**, 2751, (1915)
- 3- Wittenburg, E., *Z- Chem.*, **4**, 303, (1964)
- 4- ———, *Chem. Ber.*, **99**, 2380, (1966)
- 5- ———, *İbid.* **99**, 2391, (1966)
- 6- ———, Etsold, G. und Langen, P., *ibid.* **101**, 494, (1968)
- 7- ———, *İbid.*, **101**, 1095, (1968)
- 8- Fischer, E. und Raske, K., *ibid.* **43**, 1750, (1910)
- 9- ———, und Helferich, B., *Ibid.*, **47**, 210, (1914)
- 10- Helferich, B. und Zirner, J., *İbid.*, **95**, 2604, (1962)
- 11- Ertan, M., (Çalışma yayına verilecektir.)