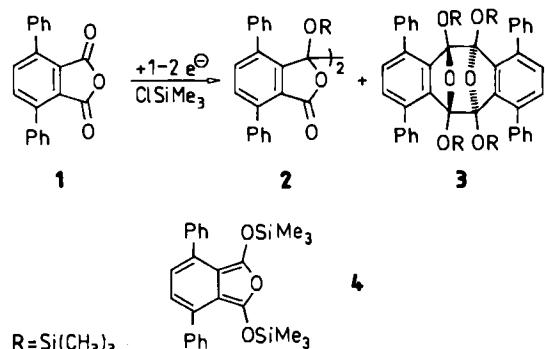


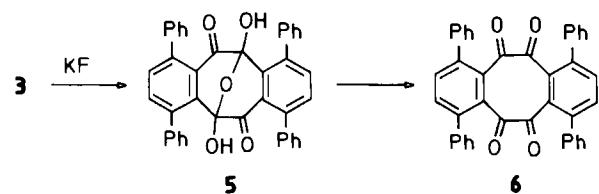
Überträgt man die Reaktion auf Phthalsäureanhydrid, so entstehen ausschließlich Bis-lactonether^[1].

Bei der Reduktion von 3,6-Diphenyl-phthalsäureanhydrid **1** unter vergleichbaren Bedingungen erhielten wir jedoch neben 4,7-Diphenyl-3-hydroxy-phthalid (7% Ausbeute) und den Dimeren **2** (34%, zwei Diastereomere) auch das Acetal **3**.

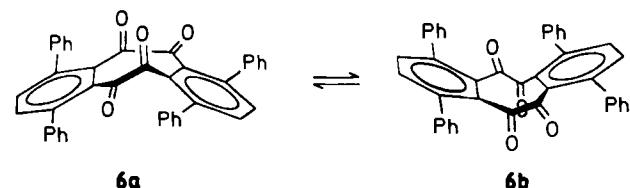


Reduziert man **1** beim Potential **E¹** ($E_{1/2} = -1.32$ V vs. SCE, reversible Bildung des Radikalanions), so kann **3** in 13% Ausbeute isoliert werden; beim Potential **E²** ($E_{1/2} = -2.10$ V, reversible Bildung des Dianions) erhöht sich die Ausbeute auf 25%. Eine reduktive Cyclisierung von **2** kann ausgeschlossen werden, da für **2** im verfügbaren Potentialbereich keine Reduktionsstufe gefunden wurde. Somit bietet sich erstmals auch ein bis-donorsubstituiertes Isobenzofuran **4** als Zwischenstufe an; bisher wurden nur 1-Alkoxyisobenzofurane beschrieben^[4].

Für **3** wird wie für das Dimer der Stammverbindung^[5] die sterisch günstigere Konfiguration mit *anti*-ständigen Sauerstoffbrücken angenommen. Eine Unterscheidung durch Komplexierung mit NMR-Verschiebungsreagentien gelang nicht. Kaliumfluorid in Acetonitril wandelt **3** in **5** um, das säurekatalysiert zum Tetraketon **6**, dem ersten Beispiel dieser Verbindungsklasse^[6], dehydratisiert werden kann.



Überraschend ist die Ähnlichkeit der UV-Spektren von **5** und **6** (Tabelle 1). Die beiden zusätzlichen Carbonylgruppen in **6** verschieben die Absorptionsmaxima praktisch nicht. Der Bereich des langwelligsten Maximums von **6** ist in Einklang mit 1,2-Dicarbonylverbindungen mit orthogonalen Carbonylgruppen^[7,8]. Nach diesen Daten nimmt der achtgliedrige Ring eine verdrillte Bootform ein. Zwei Carbonylgruppen befinden sich in einer Ebene und damit in Konjugation mit dem benachbarten Terphenylsystem, die beiden andern stehen senkrecht dazu und sind parallel



zueinander angeordnet. Am Modell sehr leicht durchführbar ist die Konformationsumwandlung von **6a** in **6b** unter paarweisem Austausch der Carbonylgruppen. Für Tetrahydro-dibenzo[*a,e*]cycloocten und einige Derivate konnte eine verdrillte Bootform nachgewiesen werden^[9].

Dieser bereits bei Raumtemperatur rasch ablaufende Konformationswechsel zeigt sich im ¹³C-NMR-Spektrum, das bis -80°C nur ein Signal für die Carbonylkohlenstoffatome aufweist (Tabelle 1). Eine Röntgen-Strukturanalyse von **6** scheiterte an der zu geringen Zahl an beobachtbaren Reflexen.

Tabelle 1. Schmelzpunkte und spektroskopische Daten von **3**, **5** und **6**. ¹³C-NMR: **3** und **6** in CDCl₃, **5** in CD₂Cl₂. UV: in CH₂Cl₂.

Verb.	Fp [°C]	IR [cm ⁻¹]	¹³ C-NMR (δ-Werte)	UV, λ _{max} [nm] (lg ε)
3 [a]	322-324	kein C=O	0.0 (SiCH ₃) 105.0 (C(C ₂ O ₂)) 126.5-141.0 (Aryl-C)	265 (4.8) 245 (4.7)
5 [b]	252-254	3440 (OH) 1725 (C=O)	96.8 (C(C ₂ O ₂)) 126.5-143.5 (Aryl-C) 187.3 (C=O)	310 (3.5) 231 (4.4)
6 [c]	264-267	1720 und 1780 (C=O)	122.3-142.3 (Aryl-C) 192.1 (C=O)	303 (4.1) 229 (4.6)

[a] In einer geteilten Zelle (Hg-Kathode) werden wasserfreies Acetonitril (ca. 60 mL), Et₃NCl (0.3-0.4 M) und 5.0 mL (39.5 mmol) ClSiMe₃ vorgelegt. Bei -2.2 V (Ag/AgNO₃) werden 2.0 g (6.6 mmol) **1** portionsweise zugegeben (*i* = 300-400 mA). Waßrige Aufarbeitung und Niederdruck-Säulenchromatographie (50 g Kieselgel, CH₂Cl₂) führen zu 745 mg (25%) **3** (1. Fraktion). Die weiteren Fraktionen enthalten die Dimeren **2**. [b] 860 mg (0.96 mmol) **3** und 2.0 g KF werden in 40 mL Acetonitril **5** d bei Raumtemperatur gerührt. Hydrolyse und Extraktion mit CH₂Cl₂ führen zu 510 mg **5** (90%). [c] 270 mg (0.46 mmol) **5**, 4 g Molekularsieb (4 Å, ausgeheizt) und ca. 50 mg *p*-Tolusulfinsäure werden in 100 mL Toluol **5** d unter Rückfluß erhitzt. Nach Zugabe von Na₂CO₃ wird der Feststoff abfiltriert und mit CH₂Cl₂ ausgewaschen. Nach Abziehen des Lösungsmittels verbleiben 165 mg **6** (63%).

Eingegangen am 25. Januar,
in veränderter Fassung am 25. Mai 1984 [Z 689]

- [1] T. Troll, G. W. Ollmann, *Tetrahedron Lett.* 22 (1981) 3497.
- [2] T. Troll, G. W. Ollmann, *Electrochim. Acta*, 29 (1984) 467.
- [3] R. Bonnett, S. A. North, *Adv. Heterocycl. Chem.* 29 (1981) 341.
- [4] a) L. Contreras, C. E. Semon, C. B. McLean, *Tetrahedron Lett.* 1978, 4237; b) M. A. Makhoul, B. Rickborn, *J. Org. Chem.* 46 (1981) 2734; c) W. Friedrichsen, *Adv. Heterocycl. Chem.* 26 (1980) 135.
- [5] R. N. Warrener, J. G. Pitt, R. A. Russell, *J. Chem. Soc. Chem. Commun.* 1982, 1195.
- [6] P. Yates, E. G. Lewars, *Can. J. Chem.* 48 (1970) 796.
- [7] P. L. Verheydt, H. Cerfontain, *J. Chem. Soc. Perkin Trans. 2* 1982, 1541.
- [8] K. Alder, H. K. Schäfer, H. Esser, H. Krieger, R. Reubke, *Justus Liebigs Ann. Chem.* 593 (1955) 23.
- [9] K. W. White, B. J. Slater, S. H. Graham, *Aust. J. Chem.* 36 (1983) 517.

Umallenierung von 1,3-Bis(dialkylamino)-1,3-diethoxyallenen mit disubstituierten Malonylchloriden**

Von Rolf W. Saalfrank*, Walter Rost, Franz Schütz und Ulrike Röß

Tetraethoxyallen **1a** – Äquivalent des Malonester-Dianions – reagiert mit Phosgen zu Bis(ethoxycarbonyl)keten

[*] Prof. Dr. R. W. Saalfrank, Dipl.-Chem. W. Rost, Dipl.-Chem. F. Schütz, Dipl.-Chem. U. Röß
Institut für Organische Chemie der Universität
Henkestraße 42, D-8520 Erlangen

[**] 2. Mitteilung der Reihe 1,3-Donor/Donor-substituierte Allene in der Synthese. Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft und dem Fonds der Chemischen Industrie unterstützt. – 1. Mitteilung: [1].

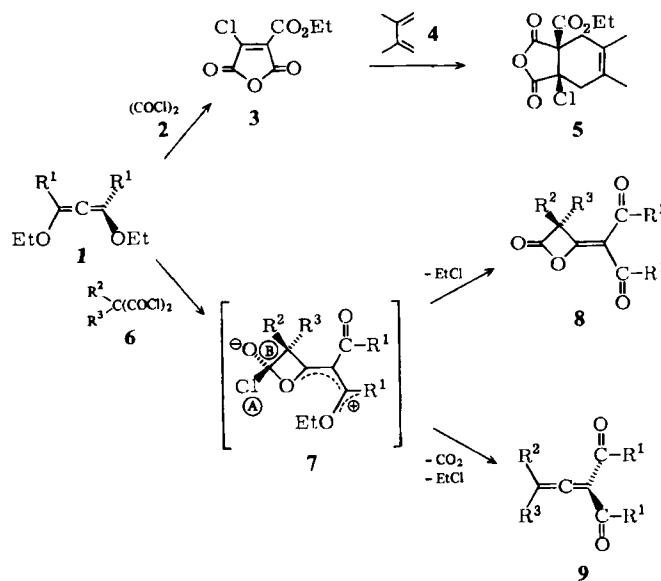
und mit Succinylchlorid und dessen höheren Homologen zu Lactonen^[1]. Der Versuch, Malonylchlorid auf diesem Wege zu (4-Oxo-2-oxetanyliden)malonsäure-diethylester umzusetzen, schlug jedoch aufgrund der Acidität der Methylenprotonen des Malonylchlorids fehl.

Wir haben nun **1a**^[2] mit Oxalylchlorid **2** und mit Dialkylmalonylchloriden **6a-c** umgesetzt und dadurch 3-Chlor-4-(ethoxycarbonyl)maleinsäureanhydrid **3** (Ausbeute 60%; $F_p = 76^\circ\text{C}$) bzw. die (3,3-Dialkyl-4-oxo-2-oxetanyliden)malonsäurediethylester **8a-c** erhalten (Ausbeuten 88, 68, 73%; $F_p = 43^\circ\text{C}$, $K_p = 88^\circ\text{C}/0.05 \text{ Torr}$, $F_p = 43^\circ\text{C}$).

Die Konstitution des neuen Anhydrids **3** ist durch die spektroskopischen Daten und durch Diels-Alder-Reaktion mit 2,3-Dimethyl-1,3-butadien **4** zum 1-Chlor-2-(ethoxycarbonyl)-4,5-dimethyl-4-cyclohexen-1,2-dicarbonsäureanhydrid **5** gesichert (Ausbeute 86%; $F_p = 54^\circ\text{C}$).

Bei den Oxetanonen **8** handelt es sich um „gemischte Keten-Dimere“, von denen es bisher nur wenige Beispiele gibt^[5].

Die Spektren von **8a-c** entsprechen den Erwartungen. Dagegen liefern die aus den 1,3-Bis(dialkylamino)-1,3-dietoxyallenen **1b, c**^[6] und den Dialkylmalonylchloriden **6a, c** entstehenden Oxetanone **8d-g** (Ausbeuten 61, 51, 52, 64%; $F_p = 83, 92, 80, 89^\circ\text{C}$) temperaturabhängige ^1H - und ^{13}C -NMR-Spektren. Offenbar wird die C_s -Symmetrie bei **8d-g** durch sterische Wechselwirkungen zwischen den Substituenten R^2/R^3 und der benachbarten Dialkylcarbamoylgruppe gestört.



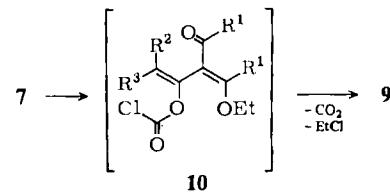
Reaktion	R^1 (aus 1)	R^2	R^3
1a + 6a \rightarrow 8a	OEt	Me	Me
1a + 6b \rightarrow 8b	OEt	Et	Et
1a + 6c \rightarrow 8c	OEt	$-(\text{CH}_2)_3-$	
1b + 6a \rightarrow 8d	NMe ₂	Me	Me
1b + 6c \rightarrow 8e	NMe ₂	$-(\text{CH}_2)_3-$	
1c + 6a \rightarrow 8f + 9c	NEt ₂	Me	Me
1c + 6c \rightarrow 8g	NEt ₂	$-(\text{CH}_2)_3-$	
1b + 6b \rightarrow 9a	NMe ₂	Et	Et
1b + 6d \rightarrow 9b	NMe ₂	Ph	Ph

Das Allene **1b** reagiert mit den Malonylchloriden **6b, d** nicht zu Oxetanonen, sondern zu den Allenen **9a, b** (Ausbeuten 53, 61%; $K_p = 75^\circ\text{C}/0.05 \text{ Torr}$, $F_p = 177^\circ\text{C}$) (Tabelle 1).

Tabelle 1. Spektroskopische Daten der Allenen **9**.

9a , IR (Film): 1950 ($=\text{C}=$), 1635 cm^{-1} ($\text{C}=\text{O}$); $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 1.13$ (t, 6 H, CH_3), 2.17 (q, 4 H, CH_2), 3.17 (s, 12 H, NCH_3); $^{13}\text{C-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 12.38$ (CH_3), 25.30 (CH_2), 35.37 und 38.86 (NCH_3), 100.47 und 113.42 ($=\text{C}$), 165.36 ($\text{C}=\text{O}$), 198.90 ($=\text{C}=$)
9b , IR (KBr): 1950 ($=\text{C}=$), 1635 cm^{-1} ($\text{C}=\text{O}$); $^1\text{H-NMR}$ (C_6D_6): $\delta = 2.63$ (s, 6 H, CH_3), 2.73 (s, 6 H, CH_3), 7.13 (mc, 6 arom. H); 7.50 (mc, 4 arom. H); $^{13}\text{C-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 35.43$ und 38.95 (CH_3), 100.35 und 114.79 ($=\text{C}$), 128.38, 128.74 und 133.84 (arom. C), 164.30 ($\text{C}=\text{O}$), 202.21 ($=\text{C}=$)
9c , IR (KBr): 1970 ($=\text{C}=$), 1630 cm^{-1} ($\text{C}=\text{O}$); $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 1.12$ (t, 12 H, CH_3), 1.75 (s, 6 H, CH_3), 3.36 (q, 8 H, CH_2); $^{13}\text{C-NMR}$ (CDCl_3): $\delta = 12.68$, 14.01 und 17.78 (CH_3), 39.74 und 43.26 (CH_2), 96.65 und 100.04 ($=\text{C}$), 164.90 ($\text{C}=\text{O}$), 196.82 ($=\text{C}=$)

Bei der Umsetzung des Allens **1c** mit Dimethylmalonylchlorid **6a** erhält man neben **8f** das Allene **9c** (Ausbeute 21%; $F_p = 68^\circ\text{C}$) (Tabelle 1). Da **8f** unter den Reaktionsbedingungen nicht zu **9c** decarboxyliert^[9], sind die Betaine **7**^[10] wohl als gemeinsame Vorstufe von **8** und **9** aufzufassen. In Abhängigkeit von der sterischen Wechselwirkung zwischen R^1 und R^2/R^3 zerfällt **7** in **8** (Weg **A**: Spaltung einer C-Cl-Bindung) oder in die Butadiene **10** (Weg **B**: Spaltung einer C-C-Bindung). Aus **10** entstehen unter spontaner Eliminierung von CO_2 und Ethylchlorid schließlich die Allenen **9**.



Umallenierungen spielten bisher in der Cumulenchemie kaum eine Rolle. Die zu den Allen-1,1-dicarboxamiden **9**^[11] führende einfache neue Umallenierungsmethode ist bei Auswahl geeigneter Substituentenkombinationen breit anwendbar. Die gut zugänglichen Allene **1b, c** fungieren



als Äquivalente der Dianionen **11** von Malonamid und die disubstituierten Malonylchloride **6a, b, d** als Äquivalente der 1,1-Vinyliden-Dikationen **12**.

Eingegangen am 25. Januar,
in veränderter Fassung am 12. Juni 1984 [Z 690]

- [1] R. W. Saalfrank, W. Rost, *Angew. Chem.* 95 (1983) 328; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 22 (1983) 321; *Angew. Chem. Suppl.* 1983, 451.
- [2] Tetraethoxyallen **1a** wird aus Tetraethoxyethylen [3] in Anlehnung an die Synthesevorschrift für Tetramethoxyallen [4] hergestellt.
- [3] D. Bellus, H. Fischer, H. Greuter, P. Martin, *Helv. Chim. Acta* 61 (1978) 1784.
- [4] R. W. Hoffmann, W. Schäfer, U. Bressel, *Chem. Ber.* 105 (1972) 2111; R. D. Mackenzie, T. R. Blohm, J. M. Grisar, *J. Med. Chem.* 16 (1973) 688.
- [5] D. C. England, C. G. Krespan, *J. Org. Chem.* 35 (1970) 3322.
- [6] Die Allene **1b, c** werden aus den Malonyldialkylamiden in Anlehnung an [7, 8] mit Triethylxonium-tetrafluoroborat (Alkylierungsmittel) und Natrium-bis(trimethylsilyl)amid (Base) hergestellt. Ausbeuten der vier Syntheseschritte: 86 bis 98%.
- [7] H. Bredereck, F. Effenberger, H. P. Beyerlin, *Chem. Ber.* 97 (1964) 3081.
- [8] H. G. Viehe, Z. Janousek, R. Gompper, D. Lach, *Angew. Chem.* 85 (1973) 581; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 12 (1973) 566; R. Gompper, C. S. Schneider, *Synthesis* 1979, 213.
- [9] Vgl. dazu: J. Starting, A. H. Alberts, H. Wynberg, *Chem. Commun.* 1970, 818; T. L. Jacobs, R. A. Meyers, *J. Am. Chem. Soc.* 86 (1964) 5244; E. U.

- Elam, R. D. Clark, J. C. Martin, *Br. Pat.* 1014653; *Chem. Abstr.* 64 (1966) 11092d.
 [10] Vgl. dazu: H. W. Moore, W. G. Duncan, *J. Org. Chem.* 38 (1973) 156.
 [11] Vgl. dazu: G. Himbert, L. Henn, *Angew. Chem.* 94 (1982) 631; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 21 (1982) 620; *Angew. Chem. Suppl.* 1982, 1473; G. Himbert, K. Diehl in: *Chemiedozententagung 1984, Wissenschaftliches Programm und Vortragsreferate*, Verlag Chemie, Weinheim 1984, S. 24.

Hochdrucksynthesen: Die Henry-Reaktion**

Von Kiyoshi Matsumoto*

Die Henry- oder Nitroaldol-Reaktion ist eine der wichtigsten Methoden zur CC-Verknüpfung, insbesondere, da die Nitrogruppe der entstehenden aliphatischen Nitroverbindungen in andere funktionelle Gruppen wie Amine, Alkohole, Aldehyde und Ketone umgewandelt werden kann^[1]. Die Reaktion hängt jedoch stark von sterischen Faktoren ab und „verläuft umso schlechter, je mehr Substituenten an den zu verbindenden C-Atomen sitzen“^[2]. Abgesehen von Umsetzungen mit Nitromethan sind die Ausbeuten sehr niedrig, wenn auch einige Verbesserungen gelangen^[2,3]. So war keine Henry-Reaktion von Nitroalkanen mit 2-Methylcyclohexanon bekannt, und mit höheren Nitroalkanen ergaben 3- und 4-Methylcyclohexanon nur geringe Ausbeuten an Nitroalkoholen^[4]. Wir haben jetzt gefunden, daß sich hoher Druck und Zugabe von *n*Bu₄NF als Katalysator in einigen Fällen positiv auswirken^[5,6].

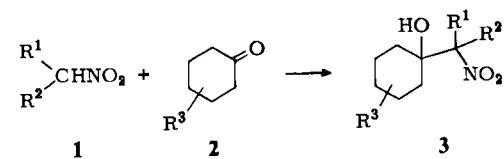


Tabelle 1. Bildung von Nitroalkoholen 3 [a] aus Nitroalkanen 1 und Ketonen 2 (9 kbar, 30°C, 4 d) [6].

R ¹	R ²	R ³	Ausb. [%] [a]	Kp [°C/Torr] Fp [°C]
H	H	2-CH ₃	50 (0 [4])	68-69/2
		3-CH ₃	61 (29 [4])	79-80/2
CH ₃	H	2-CH ₃	41 [b] (0 [4])	78-79/2
		3-CH ₃	87 [c] (10 [4])	74-75/2
		4-CH ₃ [d]	60 (14 [4])	73-75/2
C ₂ H ₅	H	2-CH ₃	40 (0 [4])	88-89/2
		3-CH ₃	81 (5 [4])	84-85/2
		4-CH ₃	89 (10 [4])	85-86/2
		[e]	86 (40 [7]; 20 [8])	90-92/9
		CH ₃	74 (45 [8])	56-57 [f]
		[e]	53 (19 [8])	66-70 [g]

[a] Die Ausbeuten wurden nicht optimiert. Neue Nitroalkohole wiesen korrekte Elementaranalysen auf; alle Produkte ergaben befriedigende IR- und ¹H-NMR-Spektren. Literaturausbeuten in Klammern. [b] Mit Piperidin als Katalysator 14%. [c] Mit Piperidin als Katalysator 52%. [d] 6 kbar. [e] Als Keton wurde Aceton verwendet. [f] Umkristallisiert aus *n*-Pentan. [g] Bei 70-75°C (Badtemp.)/9 Torr sublimiert.

Tabelle 1 zeigt, daß sogar 2-Methylcyclohexanon die entsprechenden Nitroalkohole in respektablen Ausbeuten liefert und daß mit 3- und 4-Methylcyclohexanon die Ausbeuten wesentlich erhöht werden konnten^[9]. *n*Bu₄NF ist ein besserer Katalysator als Piperidin (siehe Fußnoten [b, c] in Tabelle 1). Durch Erhöhung des Drucks kann dem-

nach der Anwendungsbereich der Henry-Reaktion erweitert werden.

Eingegangen am 2. April,
in veränderter Fassung am 1. Juni 1984 [Z 784]

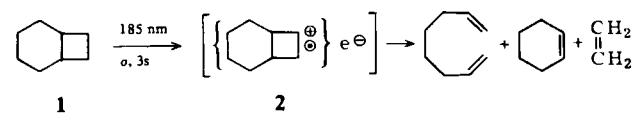
- [1] Zusammenfassung über die Verwendung nitroaliphatischer Verbindungen und die Henry-Reaktion in der Organischen Synthese. D. Seebach, E. W. Colvin, F. Lehr, T. Weller, *Chimia* 33 (1979) 1; H. Baer, L. Urbas in H. Feuer: *The Chemistry of the Nitro and Nitroso Groups*, Interscience, New York 1970, S. 75; zit. Lit.
 [2] D. Seebach, F. Lehr, *Angew. Chem.* 88 (1976) 540; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* 15 (1976) 505.
 [3] E. W. Colvin, D. Seebach, *J. Chem. Soc. Chem. Commun.* 1978, 689.
 [4] D. V. Nightingale, F. B. Erickson, N. C. Knight, *J. Org. Chem.* 15 (1950) 782.
 [5] Beschreibung der Hochdruckapparatur: K. Matsumoto, A. Sera, T. Uchida, *Synthesis*, im Druck; neuere Zusammenfassungen über Hochdruckreaktionen: P. Welzel, *Nachr. Chem. Techn. Lab.* 31 (1983) 148; W. J. le Noble, *Chem. Unserer Zeit* 17 (1983) 152.
 [6] Arbeitsvorschrift: Eine Mischung aus Keton 2 (16 mmol) und Nitroalkan 1 (24 mmol) wird mit einer 1 M Lösung von *n*Bu₄NF in Tetrahydrofuran versetzt und 4 d in einer 10mL-Teflonampulle bei ca. 30°C und 9 kbar aufbewahrt. Anschließend wird die Reaktionsmischung mit 9 mL Benzol und 3 mL Essigsäure verdünnt und zur Entfernung des Katalysators mehrmals mit Wasser gewaschen. Die organische Phase wird mit MgSO₄ getrocknet, eingeengt und unter reduziertem Druck von Solvens und Ausgangsmaterialien befreit. Der Rückstand wird umkristallisiert oder im Vakuum destilliert (siehe Tabelle 1).
 [7] F. Lehr, J. Gonnermann, D. Seebach, *Helv. Chim. Acta* 62 (1979) 2258.
 [8] L. M. Kozlov, E. F. Fink, G. B. Liorber, *Tr. Kazan. Khim. Tekhnol. Inst.* 23 (1957) 148; *Chem. Abstr.* 52 (1958) 8933i.
 [9] Statt durch hohen Druck können die meisten Reaktionen auch durch Verwendung der Lithium- α -lithionitronate Li⁰[RCLi=NO₂⁰] erzwungen werden [7].

Direkte photochemische Spaltung des Cyclobutanrings in Bicyclo[4.2.0]octan durch 185nm-Bestrahlung in Lösung**

Von Waldemar Adam* und Thomas Oppenländer

Analog zu Cyclopropanen, deren interessante und vielfältige 185nm-Photochemie in Kohlenwasserstoff-Lösung kürzlich beschrieben wurde^[1], sollten Cyclobutane im Vakuum-UV-Bereich photoaktiv sein, da sie unterhalb von 200 nm absorbieren ($\sigma^* \leftarrow \sigma$ - und Rydberg-Übergänge)^[2]. Cyclobutane lassen sich effektiv durch photochemisch induzierten Elektronen-Transfer mit Chinonen spalten^[3], die dabei als Elektronenacceptoren wirken. Diese Photospalzung, die über radikalaktionische Zwischenstufen verläuft, spielt eine entscheidende Rolle bei der Zersetzung von Thymin-Dimeren durch enzymatische Photoreaktivierung^[4]. Da (σ , 3s)-Rydberg-Anregung zu Zwischenstufen mit radikalaktionischem Charakter führt^[2], erschien es uns wichtig, die photochemische Spaltung von Cyclobutanen ohne chromophore Substituenten durch 185nm-Photonen in Lösung zu untersuchen. Daß diese Spaltung möglich ist, zeigen wir am Beispiel von Bicyclo[4.2.0]octan 1.

Bestrahlung einer 0.044 M Lösung von 1 in *n*-Pentan mit einer Quecksilber-Niederdrucklampe (ca. 10% 185 nm,



[*] Prof. Dr. W. Adam, Dipl.-Chem. T. Oppenländer
Institut für Organische Chemie der Universität
Am Hubland, D-8700 Würzburg

[**] Diese Arbeit wurde vom Fonds der Chemischen Industrie und von der Deutschen Forschungsgemeinschaft unterstützt. T. O. dankt dem Fonds der Chemischen Industrie für ein Stipendium.

[*] Prof. Dr. K. Matsumoto
Department of Chemistry, College of Liberal Arts and Sciences
Kyoto University, Kyoto 606 (Japan)

[**] Diese Arbeit wurde vom japanischen Erziehungsministerium unterstützt.