

selektivität legend, gelang uns eine erhebliche Verbesserung der Stereoregularität dieses Copolymers und vor allem die erste Synthese eines regioregulären Poly(1-oxo-2-methyltrimethylens). Abbildung 1 zeigt die Carbonylbereiche der ^{13}C -NMR-Spektren der bisher „regulärsten“ Copolymere, welche nach den beiden oben erwähnten Möglichkeiten erhalten wurden. Das erste Copolymer (Abb. 1, Spektrum a) wurde durch Modifizierung des katalytischen Systems mit (*R,R*)-2,4-Pentandiylbis(diphenylphosphan) (bdpp)^[22] bei sonst gleichen Bedingungen wie bei Verwendung des achiralen dppp-Liganden erhalten. Das ^{13}C -NMR-Spektrum zeigt einen bemerkenswerten Anstieg sowohl der Regio- als auch der Stereoselektivität. Das Intensitätsverhältnis der Signale mit den Schwerpunkten bei $\delta = 215.5$, 212.0 und 207.8 beträgt in diesem Fall ungefähr 1:9.9:1. Die Ursache der neuen Signale bei $\delta \approx 209$ und 213 ist ungeklärt. Die höhere Regularität dieses Materials spiegelt sich auch in der Anwesenheit von (mindestens) zwei thermischen Übergängen wider, von denen der höhere vermutlich der Schmelzpunkt ist. Die Modifikation des katalytischen Systems mit 1,2-Propandiylbis(diisopropylphosphan) (dipp)^[23] ergibt ein Polymer, dessen ^{13}C -NMR-Spektrum (Abb. 1, Spektrum c) die perfekte Regioselektivität und die gute Stereoselektivität der Polymerisation zeigt. Dieselben regioregulären Eigenschaften wurden auch bei der Fraktion beobachtet, die nach Zugabe von Methanol in Lösung bleiben. Das weniger lösliche Produkt zeigt thermische Übergänge bei 95 und 260 °C. Die verbesserte stereochemische Kontrolle kann auch aus der geringen Linienbreite der Signale im Methylbereich ersehen werden (Abb. 2). Leider war der Anstieg der Regularität

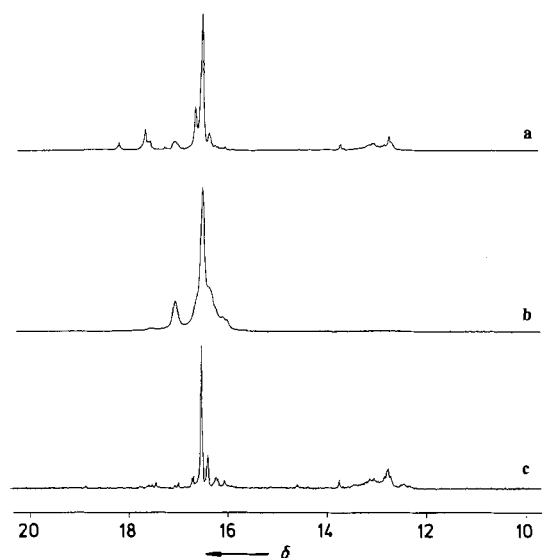


Abb. 2. ^{13}C -NMR-Spektren (125.8 MHz, CDCl_3) des Methylbereichs der mit Palladium-Katalysatoren mit verschiedenen Liganden (bdpp (a), dppp (b) und dipp (c)) erhaltenen Propen-Kohlenmonoxid-Copolymere.

hinsichtlich Konstitution und Konfiguration mit einer Abnahme des Molekulargewichtes verbunden: $M_n = 25100$ (dppp), 4420 (bdpp), 2100 (dipp); die höhere Konzentration an endständigen Methylgruppen ist vermutlich für das Signal bei $\delta \approx 13$ verantwortlich.

Die Resultate zeigen deutlich den Zusammenhang zwischen Enantioselektivität und Regioselektivität; dieser wurde für andere Additionsreaktionen an Olefine schon früher diskutiert^[24]. In der Tat kann die Regioselektivität in enantioselektivierenden Reaktionen verschieden auf den entgegengesetzten Seiten des Substrates sein. Weiter kann eine hohe regioselektive Ordnung die Kon-

trolle des Kettenendes auf das zu inserierende Olefin stark vergrößern. Diese Resultate zeigen außerdem mögliche Wege zur Verbesserung der Mikrostruktur dieses und anderer Copolymere mit anderen α -Olefinen.

Eingegangen am 1. Oktober 1991 [Z 4947]

CAS-Registry-Nummern:

[(dppp)Pd(CF₃COO)₂], 138488-62-7; bdpp, 96183-46-9; dipp, 138459-85-5; Propen-Kohlenmonoxid-Copolymer, 29612-55-3.

- [1] P. Pino, F. Piacenti, M. Bianchi in *Organic Synthesis via Metal Carbonyls Vol. II* (Hrsg.: I. Wender, P. Pino), Wiley, New York, 1977, S. 43–296.
- [2] B. Cornils in *New Syntheses with Carbon Monoxide* (Hrsg.: J. Falbe), Springer, New York, 1980, S. 1–225.
- [3] L. Markó, *J. Organomet. Chem.* **1991**, 404, 325; zit. Lit.
- [4] G. Consiglio, M. Marchetti, *Chimia* **1976**, 30, 26.
- [5] G. Consiglio, *J. Organomet. Chem.* **1977**, 132, C26.
- [6] Y. Sugí, K. Bando, S. Shin, *Chem. Ind. (London)* **1975**, 397.
- [7] K. Bando, Y. Sugí, *Chem. Lett.* **1976**, 727.
- [8] G. Consiglio, S. C. A. Neffens, C. Pisano, F. Wenzinger, *Helv. Chim. Acta* **1991**, 74, 323.
- [9] K. Bittler, N. von Kutevov, D. Neubauer, H. Reis, *Angew. Chem.* **1968**, 80, 352; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1968**, 7, 329.
- [10] Für analoge Betrachtungen auf einem anderen Gebiet der Polyinsertion, d.h. bei der Ziegler-Natta-Katalyse siehe: P. Pino, R. Mühlhaupt, *Angew. Chem.* **1980**, 92, 869; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1980**, 19, 857.
- [11] E. Drent, *Eur. Pat. Appl.* **1986**, 229408 [*Chem. Abstr.* **1988**, 108, 6617].
- [12] P. Corradini, C. De Rosa, A. Panunzi, G. Petrucci, P. Pino, *Chimia* **1990**, 44, 52.
- [13] M. Barsacchi, G. Consiglio, L. Medici, G. Petrucci, U. W. Suter, *Angew. Chem.* **1991**, 103, 992; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1991**, 30, 989.
- [14] E. Drent, R. L. Wife, *Eur. Pat. Appl.* **1985**, 181 014; siehe auch *Neth. Appl. NL 8403035* [*Chem. Abstr.* **1985**, 105, 98172].
- [15] E. Drent, *Eur. Pat. Appl.* **1988**, 322018 [*Chem. Abstr.* **1988**, 111, 221150].
- [16] E. Drent, J. A. M. van Broekhoven, M. J. Doyle, *J. Organomet. Chem.* **1991**, 417, 235.
- [17] E. Pretsch, T. Clerc, J. Seibl, W. Simon, *Strukturaufklärung organischer Verbindungen*, 3. Aufl., Springer, Berlin, **1986**.
- [18] P. K. Wong, *Eur. Pat. Appl.* **1989**, 384 517 [*Chem. Abstr.* **1991**, 114, 103079].
- [19] Zur Enantioselektivitätsdiskriminierung bei Carbonylierungen von Olefinen siehe: G. Consiglio, P. Pino, *Top. Curr. Chem.* **1982**, 105, 77; G. Consiglio, P. Pino, *Adv. Chem. Ser.* **1982**, 77, 371.
- [20] J. A. Van Doorn, P. K. Wong, O. Sudmeier, *Eur. Pat. Appl.* **1989**, 376 364 [*Chem. Abstr.* **1991**, 114, 24797].
- [21] P. W. N. M. van Leeuwen, C. F. Roobeek, P. K. Wong, *Eur. Pat. Appl.* **1989**, 393 790 [*Chem. Abstr.* **1991**, 114, 103034].
- [22] P. A. MacNeil, N. K. Roberts, B. Bosnich, *J. Am. Chem. Soc.* **1981**, 103, 2273.
- [23] K. Tani, E. Tanigawa, Y. Tatsuno, S. Otsuka, *J. Organomet. Chem.* **1985**, 279, 87.
- [24] P. Pino, A. Stefani, G. Consiglio in *Catalysis in Chemistry and Biochemistry, Theory and Experiments* (Hrsg.: B. Pullman), Reidel, Dordrecht, **1979**, S. 347.

Zwei stereoisomere [4.5.5]Fenestrane durch intramolekulare [2 + 2]-Cycloaddition**

Von Reinhart Keese*

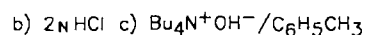
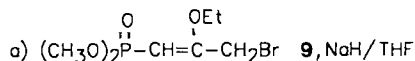
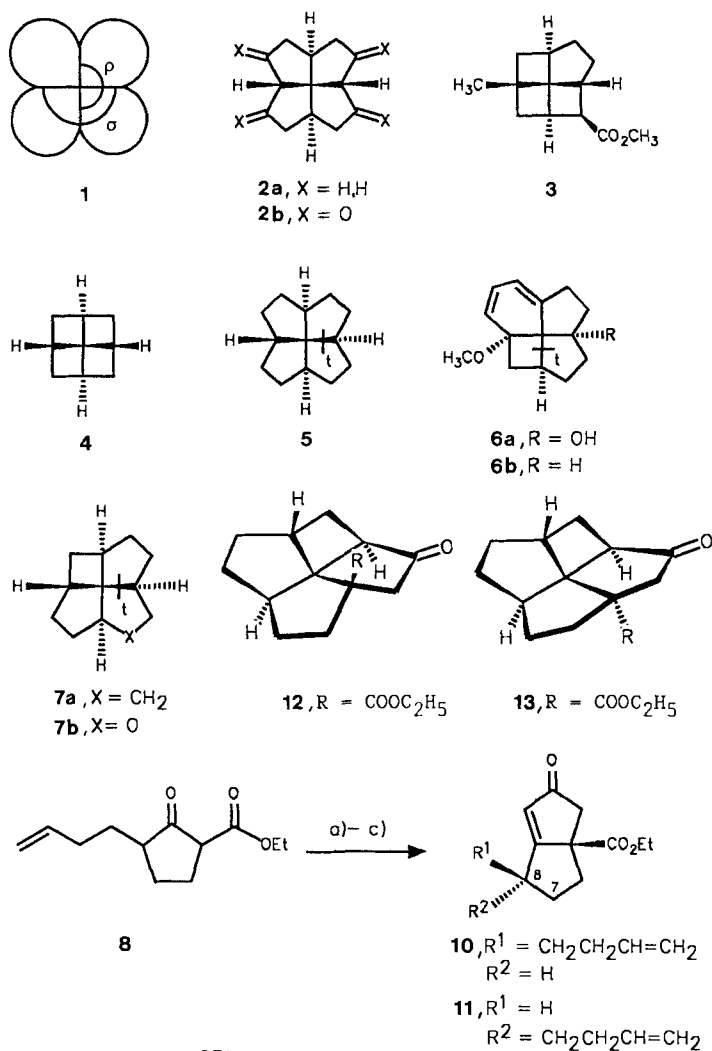
In Fenestrane vom Typ 1 werden durch Strukturveränderungen in der Peripherie am quartären C-Atom zwei gegenüberstehende Bindungswinkel aufgeweitet^[1]. Während in all-*cis*-[5.5.5]Fenestran 2a die Bindungswinkel ρ und σ 115°^[2] betragen, weist ein Derivat des [4.4.4.5]Fenestrans 3

[*] Prof. Dr. R. Keese
Institut für organische Chemie der Universität
Freiestrasse 3, CH-3012 Bern (Schweiz)

[**] Diese Arbeit wurde vom Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der Wissenschaften unterstützt. B. Herzog danke ich für geschickte experimentelle Mitarbeit, Priv.-Doz. Dr. P. Bigler und Dr. C. Müller für NMR-Untersuchungen. – Ein Teil der hier beschriebenen Resultate wurde auf dem Int. Chem. Congr. of Pacific Basin Chemical Societies, Honolulu, Dezember 1989, vorgetragen; siehe *Nachr. Chem. Techn. Lab.* **1990**, 38, 322.

solche von 128.3° bzw. 129.2° auf^[3]. Für das all-*cis*-[4.4.4]Fenestran **4** wurden Bindungswinkel von 130° berechnet^[4]. Die bisher synthetisierten Fenestrane der all-*cis*-Reihe haben Bindungswinkel, die zwischen denen von **2** und **4** liegen^[1]. Stereoisomere Fenestrane, die nicht vier *cis*-Bicyclo[x.y.0]alkan-Einheiten, sondern mindestens eine *trans*-verknüpfte Subeinheit enthalten und somit an einem der Brückenköpfe „invertiert“ sind, weisen am quartären C-Atom nach unseren MNDO-Rechnungen ebenfalls Bindungswinkel auf, die größer als 109.47° sind und z.B. im *cis,cis,cis,trans*-[5.5.5.5]Fenestran **5** 122° und 127.4° betragen^[1a].

Über die Synthese stereoisomerer Fenestrane ist bisher nur vereinzelt berichtet worden. Bei der photochemisch induzierten, intramolekularen Cycloaddition von 1-(But-3-enyl)-7-methoxyindan impliziert eines der Produkte die intermediäre Bildung des [4.5.5.6]Fenestradiens **6**, das eine *trans*-Bicyclo[3.2.0]heptan-Substruktur aufweist^[5]. In jüngerer Zeit haben Grieco et al. über die Synthese eines Derivates von **7a** via Claisen-Umlagerung in H₂O berichtet^[6], und Smits und Caple et al. haben zwei Derivate vom Oxafenestran **7b** beschrieben^[7].



Wir berichten hier über die Synthese der stereoisomeren [4.5.5.5]Fenestrane **12** und **13**, von denen **13** eine *trans*-Bicy-

clo[3.3.0]octan-Einheit enthält. Schlüsselschritt war die photochemisch induzierte, intramolekulare (2 + 2)-Cycloaddition, die bisher nur für Synthesen von all-*cis*-Fenestrane genutzt wurde^[8].

Durch doppelte Deprotonierung mit NaH-*n*BuLi wird 2-Oxocyclopentancarbonsäureethylester mit 4-Brombuten in 3-Stellung unter Bildung von **8** alkyliert. Anellierung von **8** mit dem Bromid **9**^[9] ergab ein Gemisch von **10** und **11**, das sich chromatographisch trennen ließ^[10]. Bei der Bestrahlung von **10** in Hexan mit einer 125 W-Niederdrucklampe in einem Quarzgefäß entstand wie erwartet das Fenestran **12** in 89% Ausbeute. Überraschend ist **11** ebenfalls photoreaktiv und reagiert mit 86% Ausbeute zu einem einzigen Produkt, bei dem es sich nach NRM-Studien (2D, NOE- und Hetero-NOE-Analysen) um das stereoisomere *cis,trans,cis,cis*-[4.5.5.5]Fenestran **13** handelt (Tabelle 1)^[11]. Dies ist das

Tabelle 1. NMR-Daten von **12** und **13** [a].

Zuordnung [b]	12		13 [c]	
	¹³ C	¹ H	¹³ C	¹ H
C(1)H	48.12	2.65 (m)	45.51	2.8 (d, 8.1)
C(2)	218.66	—	221.30	—
C(3)H ₂	50.27	3.08 (dd, 17.3, 0.8, H _{cis}) 2.38 (dd, 17.3, 1.5, H _{trans})	45.91	2.5 (d, H _{cis} , 18.0) 2.7 (d, H _{trans} , 18.0)
C(4)	55.63	—	59.14	—
C(5)H ₂	39.81	2.58 (m, H _{cis}) ≈ 1.65 (m, H _{trans})	29.10	1.3 (dd, H _{cis}) 2.2 (m, H _{trans})
C(6)H ₂	32.01	≈ 1.66 (m, H _{trans}) 1.85 (m, H _{cis})	32.29	2.25 (m, H _{cis}) 1.3 (m, H _{trans})
C(7)H	52.44	2.45 (m)	39.39	2.4 (m)
C(8)H ₂	32.57	≈ 1.58 (m, H _{cis}) ≈ 2.05 (m, H _{trans})	27.59	2.15 (m, H _{cis}) 1.8 (m, H _{trans})
C(9)H ₂	34.68	≈ 1.75 (m, H _{cis}) 2.07 (m, H _{trans})	32.287	1.5 (m, H _{cis}) 1.65 (m, H _{trans})
C(10)H	40.10	2.30 (m) ≈ 1.85 (m, H _{trans})	45.505	2.7 (m)
C(11)H ₂	25.26	≈ 2.15 (m, H _{cis}) ≈ 1.85 (m, H _{trans})	25.261	1.8 (m) 1.8 (m)
C(12)	68.80	—	72.228	—

[a] ¹³C- und ¹H-NMR (CDCl₃, TMS, δ-Werte, J in Hz), Bruker AM400. [b] Sequenz gemäß Numerierung mit CO₂Et = 1'-3'. [c] NOE-Angaben: eingestrahlt bei C(X)H_{cis,trans}: Signalverstärkung bei C(Y)H_{cis,trans} zur Estergruppe; **13**: C(1)H: C(7)H; Hetero-NOE von **13**: C(3)H_{cis}: C(1')H: C(7)H[C(6)H_{cis}]: C(1')H.

erste Beispiel einer photochemisch induzierten, intramolekularen [2 + 2]-Cycloaddition auf der *endo*-Seite eines Bicyclo[3.3.0]oct-1-en-3-ons unter Bildung eines *trans*-Bicyclo[3.3.0]octan-Gerüsts. An den quartären C-Atomen der Grundgerüste von **12** und **13** wurden für die zwei gegenüberliegenden Bindungswinkel Werte von ρ = 120.8° bzw. 133° und σ = 120° bzw. 126° berechnet^[12]. Somit sind **13**, **3** und **7a** sowie das O-haltige **7b** die einzigen tetracyclischen Verbindungen mit C(C)₄-Struktureinheiten, die gemäß MNDO-Rechnung zwei gegenüberliegende Bindungswinkel von jeweils gemittelten 129° aufweisen^[13].

Eingegangen am 19. Oktober 1991 [Z 4978]

CAS-Registry-Nummern:

8, 138608-14-1; **9**, 73542-48-0; **10**, 138608-15-8; **11**, 138608-16-9; **12**, 138608-17-0; **13**, 138665-06-2.

[1] a) W. Luef, R. Keese, *Helv. Chim. Acta* **1987**, 70, 543; b) *J. Mol. Struct. Theochem.* **1992**, im Druck.

[2] MNDO-Resultate für **2a**; die Röntgenstrukturanalyse von **2b** ergab Bindungswinkel von 115.1 und 117.5°: R. Mitschka, J. Oehldrich, K. Takahashi, J. M. Cook, U. Weiss, J. V. Silverton, *Tetrahedron* **1981**, 37, 4521. In Fenestrindan wurden Bindungswinkel von 116.5° gemessen: D. Kuck, H. Bögge, *J. Am. Chem. Soc.* **1986**, 108, 8107.

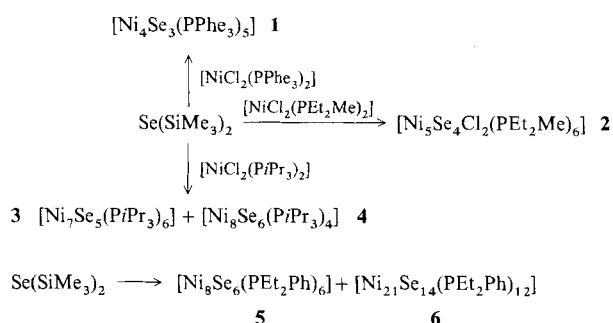
[3] Aus der Struktur eines Derivates von **3**: B. R. Venepalli, W. C. Agosta, *Chem. Rev.* **1987**, 87, 399.

- [4] E.-U. Würthwein, J. Chandrasekhar, E. D. Jemmis, P. von R. Schleyer, *Tetrahedron Lett.* **1981**, 22, 843.
- [5] a) J. Mani, S. Schüttel, Cong Zhang, P. Bigler, C. Müller, R. Keese, *Helv. Chim. Acta* **1989**, 72, 487; b) Cong Zhang, D. Bourgin, R. Keese, *Tetrahedron* **1991**, 47, 3059.
- [6] a) P. A. Grieco, E. B. Brandes, S. McCann, J. D. Clark, *J. Org. Chem.* **1989**, 54, 5851; b) P. A. Grieco, J. D. Clark, C. T. Tagoe, *J. Am. Chem. Soc.* **1991**, 113, 5488.
- [7] W. A. Smits, S. M. Buhanjuk, S. O. Simonyan, A. S. Shashkov, Y. T. Struchkov, A. I. Yanovsky, R. Caple, A. S. Gybin, L. G. Anderson, J. A. Whiteford, *Tetrahedron Lett.* **1991**, 32, 2105.
- [8] a) W. G. Dauben, D. M. Walker, *Tetrahedron Lett.* **1982**, 23, 711; b) M. T. Crimmins, *Chem. Rev.* **1988**, 88, 1467.
- [9] E. Piers, B. Abeysekera, *Can. J. Chem.* **1982**, 60, 1114.
- [10] Die Synthese wurde analog einer anderen (M. Thommen, P. Gerber, R. Keese, *Chimia* **1991**, 45, 21) durchgeführt und ergab 48% **10** sowie 4.8% **11**.
- [11] Die spektroskopischen Daten (NMR, IR, MS) und Elementaranalysen der neuen Verbindungen sind mit den angegebenen Strukturen vereinbar.
- [12] Für zwei weitere intramolekulare Beispiele siehe [7]. Die *endo*-seitige [2 + 2]-Cycloaddition bei einem Bicyclo[3.3.0]oct-1-en-3-on gelingt auch intermolekular: D. Bourgin, *Dissertation*, Universität Bern, **1991**.
- [13] MNDO-Ergebnisse: W. Luef, R. Keese, unveröffentlicht.

Neue Zwischenstufen bei der Synthese großer Nickelcluster**

Von Dieter Fenske*, Harald Krautscheid und Michael Müller

Phosphankomplexe der Halogenide elektronenreicher Übergangsmetalle reagieren in organischen Lösungsmitteln mit Silylderivaten der Elemente P, As, Sb, S, Se und Te unter Abspaltung von SiMe_3Hal zu metallreichen Clustern^[1]. So konnten z.B. bei der Umsetzung von $[\text{NiCl}_2(\text{PPh}_3)_2]$ mit $\text{Se}(\text{SiMe}_3)_2$ Nickelcluster mit 3 bis 34 Nickelatomen isoliert werden^[1, 2]. Bei diesen Reaktionen entstehen immer Gemische von Clusterkomplexen, wobei die Strukturen vom Lösungsmittel, dem stöchiometrischen Verhältnis der Edukte und den Eigenschaften der tertiären Phosphane beeinflusst werden. Um diesen Einfluß zu prüfen, haben wir $\text{Se}(\text{SiMe}_3)_2$ mit $[\text{NiCl}_2(\text{PR}_2\text{R}')_2]$ ($\text{R} = i\text{Pr}$, Phe ($\text{Phe} = \text{C}_2\text{H}_4\text{Ph}$), Et ; $\text{R}' = i\text{Pr}$, Me , Ph) in THF umgesetzt^[3]. Dabei konnten wir neben bereits beschriebenen Clusterkomplexen die Verbindungen **1–6** isolieren und durch Kristallstrukturanalyse charakterisieren^[4, 5].



Die Clusterkomplexe **1–6** bilden schwarze Kristalle, deren IR- und NMR-Spektren wenig aussagekräftig sind. Verfolgt man den Ablauf der Clusterbildung ³¹P-NMR-spektroskopisch, so stellt man fest, daß a) die Reaktionen erst nach 15–20 Tagen abgeschlossen sind, b) als Nebenprodukt

[*] Prof. Dr. D. Fenske, Dr. H. Krautscheid, Dipl.-Chem. M. Müller
Institut für Anorganische Chemie der Universität
Engesserstraße, Geb.-Nr. 30.45, W-7500 Karlsruhe

[**] Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft und dem Fonds der Chemischen Industrie gefördert.

immer das Phosphanselenid $\text{R}_2\text{R}'\text{PSe}$ entsteht und c) in der Reaktionslösung neben anderen Verbindungen immer Komplexe der Formel $[\text{Ni}_3\text{Se}_2\text{X}_2(\text{PR}_2\text{R}')_4]$ ($\text{X} = \text{Cl}$, SeSiMe_3) **7** gebildet werden^[6]. **7** enthält einen von μ_3 -Se-Liganden überbrückten Ni_3 -Cluster, in dem an die Ni-Zentren zusätzlich noch $\text{PR}_2\text{R}'$ -Gruppen und Cl^- - oder SeSiMe_3 -Liganden gebunden sind. Möglicherweise ist **7** eine wichtige Zwischenstufe bei der Synthese metallreicher Cluster. So kann man die Bildung von **1** und **2** als Folge einer Reaktion von $\text{Se}(\text{SiMe}_3)_2$ und $[\text{NiCl}_2(\text{PPh}_3)_2]$ bzw. $[\text{NiCl}_2(\text{PEt}_2\text{Me})_2]$ an den reaktiven Ni-X-Bindungen von **7** verstehen.

Abbildung 1 zeigt oben die Clusterstruktur von **1**. Danach liegt ein stark verzerrtes Ni_4 -Tetraeder vor (Ni-Ni : 239.3–288.9 pm), in dem als Folge der sterischen Abschirmung durch die PPh_3 -Liganden nur zwei (von vier) Tetraederflächen von μ_3 -Se (Se1 , Se2) bedeckt werden können. Zusätzlich wirkt Se3 als μ_2 -Brücke. Durch die an Ni koordinierten Phosphane erhalten nur Ni3 und Ni4 eine ähnliche chemische Umgebung, Ni2 ist trigonal-planar an P2 , Se1 und Se2 gebunden, und Ni1 ist tetraedrisch koordiniert. **1** erfüllt mit 60 Valenzelektronen (VE) die 18e-Regel für Cluster mit Tetraederstruktur. Im Widerspruch dazu ist der Ni_4 -Cluster jedoch sehr stark verzerrt.

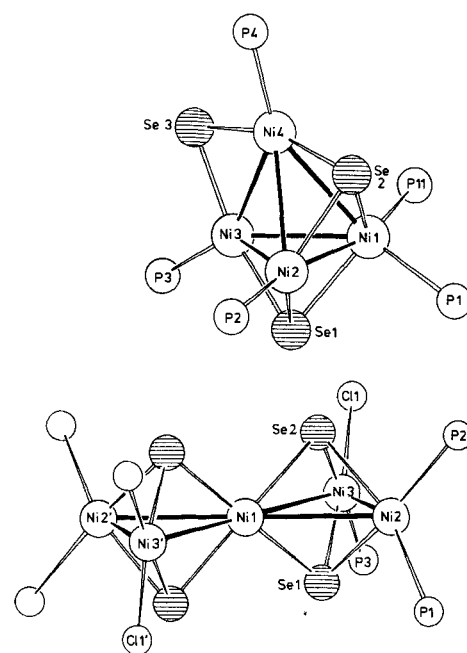


Abb. 1. Molekülstrukturen von **1** (oben) und **2** (unten) im Kristall (ohne C-Atome). Wichtigste Abstände (± 0.3 pm) und Winkel ($\pm 0.1^\circ$): **1**: Ni1-Ni2 239.3, Ni1-Ni3 283.3, Ni1-Ni4 279.5, Ni2-Ni3 288.9, Ni2-Ni4 288.3, Ni3-Ni4 265.8 (μ_3 -Se)-Ni 223.0–238.6, (μ_2 -Se)-Ni 221.9–223.4; Ni3-Se3-Ni4 73.3, $\text{Ni}-(\mu_3\text{-Se})\text{-Ni}$ 61.4–79.2, Ni-Ni-Ni 49.4–67.0. **2**: Ni1-Ni2 294.2, Ni1-Ni3 322.8, Ni2-Ni3 298.3, (μ_3 -Se)-Ni 229.2–234.5, Ni3-Cl1 223.3; Ni-Se-Ni 78.5–89.2, Ni2-Ni1-Ni3 57.6, Ni1-Ni3-Ni2 56.4, Ni1-Ni2-Ni3 66.0, Ni2-Ni1-Ni2' 180.0, Ni2-Ni1-Ni3' 122.4.

2 (Abb. 1, unten) besteht aus einem ebenen spirocyclischen Ni_5 -Cluster mit $\bar{1}$ -Symmetrie, der durch Eckenverknüpfung von zwei Ni_3 -Einheiten gebildet wird und dessen Ni_3 -Flächen von jeweils zwei μ_3 -Se-Liganden verbrückt werden. Der strukturelle Zusammenhang mit **7** wird dadurch deutlich, daß auch in **2** ein Ni-Atom (Ni2) an zwei PEt_2Me -Liganden und Ni3 an einen Cl^- - und einen PEt_2Me -Liganden gebunden sind. Dadurch erhalten alle Ni-Atome eine schwach verzerrte planar-quadratische Koordination. Die Struktur von **2** ähnelt den Strukturen von $[\text{Pd}_5\text{Se}_4\text{Cl}_2(\text{PPh}_3)_6]$ und $[\text{NiPd}_4\text{S}_4\text{Cl}_2(\text{PPh}_3)_6]$ ^[7]. Erst kürzlich berichte-