

zeichnet. Die OCL weist hier zweifellos auf einen Phasenübergang hin. Abweichend zu Lit.^[13] stellten wir fest, daß das System nach Abschalten der O₂-Zufuhr zum ursprünglichen ungestörten Zustand zurückkehrt. Dieses reversible Verhalten tritt naturgemäß nur im Flußexperiment auf.

Eingegangen am 17. Oktober 1991 [Z 4974]

CAS-Registry-Nummern:

[Ru(bpy)₃]²⁺, 15158-62-0; Malonsäure, 141-82-2; O₂, 7782-44-7.

- [1] a) B. P. Belousov, *Sb. Ref. Radiats. Med.* **1959**, 145; b) A. M. Zhabotinskij, *Selbsterregte Konzentrationsschwingungen* (russ.), Nauka, Moskau, **1974**.
- [2] G. Nicolis, I. Prigogine, *Self-Organisation in Non-Equilibrium Systems*, Wiley, New York, **1977**.
- [3] a) U. F. Franck, *Angew. Chem.* **1978**, 90, 1; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1978**, 17, 1; b) R. J. Field in *Oscillations and Travelling Waves in Chemical Systems* (Hrsg.: R. J. Field, M. Burger), Wiley, New York, **1985**, Kap. 2.
- [4] L. Györgi, T. Turanyi, R. J. Field, *J. Phys. Chem.* **1990**, 94, 7162.
- [5] A. D. Karavaev, G. S. Parshin, V. P. Kazakov, *Izvest. Akad. Nauk SSSR, Ser. Khim.* **1980**, 221.
- [6] a) F. Bolletta, V. Balzani, *J. Am. Chem. Soc.* **1982**, 104, 4250; b) H. R. Weigt, H. Ritschel, G. Junghänel, *Z. Chem.* **1983**, 23, 152; H. R. Weigt, G. Junghänel, *ibid.* **1985**, 25, 382; c) A. D. Karavaev, V. P. Kazakov, G. A. Tolstikov, *Teor. Eksp. Khim.* **1986**, 65.
- [7] R. J. Watts, *J. Chem. Educ.* **1983**, 60, 834.
- [8] a) F. E. Lytle, D. M. Hercules, *Photochem. Photobiol.* **1971**, 13, 123; b) I. Rubinstein, A. J. Bard, *J. Am. Chem. Soc.* **1981**, 103, 512.
- [9] A. Pacault, P. Hanusse, P. De Kepper, C. Vidal, J. Boissonade, *Acc. Chem. Res.* **1976**, 9, 438.
- [10] a) Die Chemilumineszenz wurde über einen Photovervielfacher (M 12 FC 51, WF Berlin) unter Zwischenschaltung eines Hochintensitätsmonochromators (Bausch & Lomb) registriert. Gemessen wurde beim OCL-Wellenlängenmaximum von 610 nm (spektrale Bandbreite: 10 nm). Das OCL-Spektrum stimmt sowohl mit dem der stationären Photolumineszenz (vgl. Lit. [6a,b] sowie H. R. Weigt, Dissertation, Pädagogische Hochschule Potsdam, **1984**) als auch mit dem der oszillierenden Photolumineszenz (H. R. Weigt, unveröffentlicht) überein; b) gemessen wurde das Potential einer Platin-Redoxelektrode (MC 20, Meinsberg) gegenüber einer Silberchloridelektrode (SE 20, Meinsberg).
- [11] A. D. Karavaev, V. P. Kazakov, *Teor. Eksp. Khim.* **1990**, 566.
- [12] P. Ruoff, R. M. Noyes, *J. Phys. Chem.* **1989**, 93, 7394.
- [13] H. Saigusa, *Chem. Phys. Lett.* **1989**, 157, 251.
- [14] Sauerstoff (technische Qualität) wurde über eine Kapillare in den unteren Teil des Reaktors eingeleitet. Der Gasdurchsatz wurde mit einem Durchflußmesser (TG 400, Medingen) bestimmt.

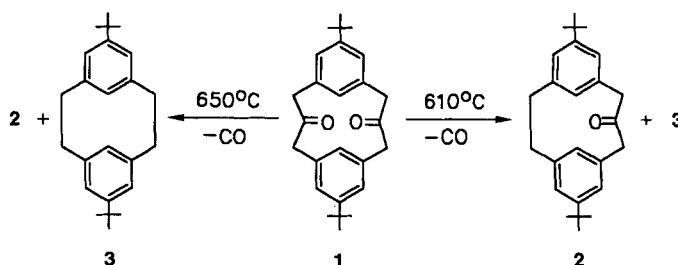
Selektive Ketonpyrolyse: Neue Synthesemethode für mono- und polycyclische Kohlenwasserstoffe**

Von Jörg Breitenbach, Frank Ott und Fritz Vögtle*

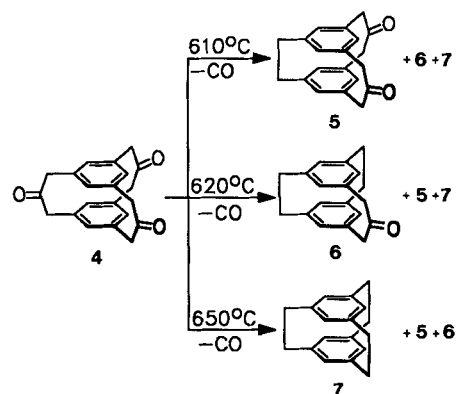
Das Interesse an polycyclischen, annähernd kugelförmigen Molekülgerüsten ist nicht zuletzt durch die Erfolge auf dem Dodecahedran^[1] und Fulleren-Gebiet^[2] gestiegen. Wir streben Großhohlraum-Käfigverbindungen an, die zu Fulleren-ähnlichen Polycyclen isomerisiert und dehydriert werden könnten und solche, die Gastmoleküle auf Dauer binden^[3]. In diesem Zusammenhang suchten wir nach Synthesemethoden für makropolycyclische Kohlenwasserstoffe. Diese können zwar aus entsprechenden cyclischen Sulfonen durch Abspaltung von Schwefeldioxid erhalten werden^[4], Schwerlöslichkeit, hohe Schmelzpunkte und unzureichende Verdampfbarkeit von Sulfonen sowie die Empfindlichkeit mancher Thiole und Sulfide bereiten jedoch Schwierigkeiten. Auch die Entfernung der Heteroatome aus Aza-^[5] und Sele-

nocyclophanen^[6] verläuft nicht ohne Probleme. Wir fanden nun, daß sich cyclische Ketone unter CO-Abspaltung und C-C-Bindungsknüpfung präparativ ringverengen lassen. Als Substrate zur Ausarbeitung der Synthesemethodik wählten wir zunächst Cyclophane, die Vergleiche mit der Sulfonpyrolyse erlauben. Die dort eingesetzte einfache experimentelle Anordnung (waagrechtes evakuiertes Quarzrohr, zwei Ringöfen) bewährte sich auch hier.

Die Optimierung der Pyrolyse des Zwölfring-Diketons **1**^[7] ergab, daß die Bedingungen (Heiz- und Pyrolysetemperatur, Vakuum) auf das gewünschte Produkt (Monoketon **2**, Ausbeute 23%; Kohlenwasserstoff **3**, Ausbeute 22% aus **1**^[8]) eingestellt werden können^[9]. Auch das erstmals synthe-



tisierte [3.3.3]Cyclophantrion **4** konnte selektiv zunächst in die bislang unbekannten Ketone **5** (25% Ausbeute) und **6** (20% Ausbeute aus **4**)^[10] und schließlich in den Kohlenwasserstoff **7** (31% Ausbeute bezogen auf **4**)^[11] übergeführt werden.



In der Paracyclophan-Reihe gelingt diese wenige Minuten erfordernde Pyrolyse ebenso unproblematisch: Aus [3.3]-Paracyclophan-2,12-dion^[12] entsteht bei 625°C das [2.2]-Paracyclophan mit 30% Ausbeute; das intermediäre Monoketon ([3.2]Paracyclophan-2-on) konnte bei 614°C in 32% Ausbeute erhalten werden^[13].

Die Ketonpyrolyse bietet also außer der Herstellung der Kohlenwasserstoffe die Möglichkeit, bisher nicht bekannte, anderweitig schwierig zugängliche makrocyclische Ketone zu erhalten. Aus den vorliegenden Beispielen schließen wir, daß die Bindungsknüpfung – wie bei der Sulfonpyrolyse – weitgehend intramolekular verläuft. Auch wenn es sich bei der Pyrolyse um eine Konsekutivreaktion handelt, bei der die Zwischenprodukte nicht voneinander getrennt auftreten, ist durch die Wahl der Temperatur doch die bevorzugte Bildung eines der Produkte zu erreichen.

Bei der Herstellung der Ketone erwies sich die TosMIC-Cyclisierung als vorteilhaft^[12, 14]. Abgesehen von der guten Zugänglichkeit der Bausteine, der einfachen Durchführung

[*] Prof. Dr. F. Vögtle, Dipl.-Chem. J. Breitenbach, cand.-chem. F. Ott
Institut für Organische Chemie und Biochemie der Universität
Gerhard-Domagk-Straße 1, W-5300 Bonn 1

[**] Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (SFB 334) gefördert.

Tabelle 1. Physikalische und spektroskopische Daten sowie Ausbeuten der neuen Verbindungen **2–6** und **8**. NMR-Spektren bei 250 MHz (^1H) und 50.3 MHz (^{13}C), stets in CDCl_3 .

2: Ausb. 23% [8]; Fp = 115–116 °C; ^1H -NMR: δ = 1.32 (s, 18H; CH_3), 2.20 (AA', 2H; CH_2), 3.04 (XX', 2H; CH_2), 3.39–3.55 [(AB)₂, 4H; CH_2], 4.98 (s, 2H; CH_{arom}), 7.10 (s, 4H; CH_{arom}); MS (70 eV): m/z 348.2447 [M^+], ber. 348.2453.

3: Ausb. 22% [8]; Fp = 176–178 °C; ^1H -NMR: δ = 1.35 (s, 18H; CH_3), 2.09 (AA', 4H; CH_2), 3.05 (XX', 4H; CH_2), 4.08 (s, 2H; CH_{arom}), 7.05 (s, 4H; CH_{arom}); MS (70 eV): m/z 320.2510 [M^+], ber. 320.2504.

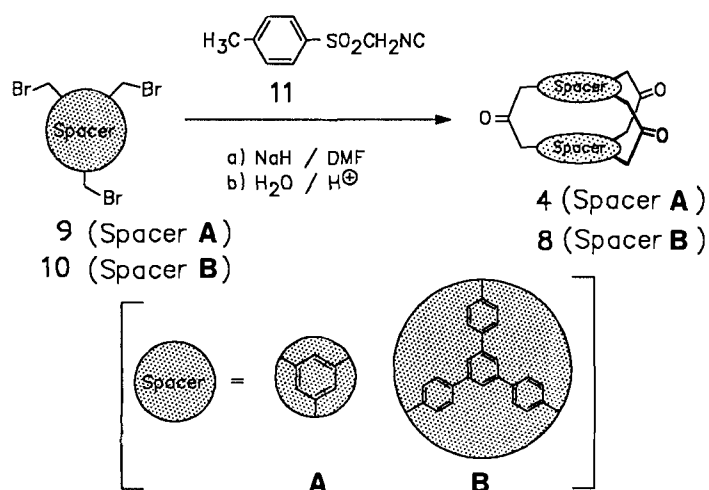
4: Ausb. 7%; Fp = 289–291 °C; ^1H -NMR: δ = 3.77 (s, 12H; CH_2), 6.87 (s, 6H; CH_{arom}); MS (70 eV): m/z 318.1256 [M^+], ber. 318.1386.

5: Ausb. 25% [10]; Fp = 261 °C; ^1H -NMR: δ = 3.11 (s, 4H; CH_2), 3.68 (s, 8H; CH_2), 6.39 (s, br, 4H; CH_{arom}), 7.00 (s, br, 2H; CH_{arom}); MS (70 eV): m/z 290.1308 [M^+], ber. 290.1310.

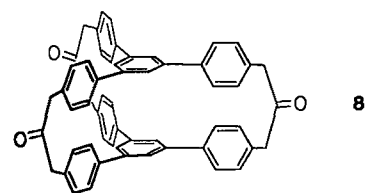
6: Ausb. 20% [10]; Fp = 210 °C; ^1H -NMR: δ = 2.88–3.08 (AA'BB', 8H; CH_2), 3.54 (s, 4H; CH_2), 5.61 (s, br, 2H; CH_{arom}), 6.51 (s, br, 4H; CH_{arom}); MS (70 eV): m/z 262.1351 [M^+], ber. 262.1357.

8: Ausb. 10%; Fp = > 250 °C (Zers.); ^1H -NMR: δ = 3.82 (s, 12H; CH_2), 6.90 (AA', 12H; CH_{arom}), 7.08 (BB', 12H; CH_{arom}), 7.29 (s, 6H; CH_{arom}); MS (FAB $^+$): m/z 775.3 [M^+ + H].

und den guten Ausbeuten sind die entstehenden Ketone ohne Probleme isolierbar und leicht löslich. Ausgehend von den Tris(brommethyl)verbindungen **9**^[15] und **10**^[16] erhielten wir mit Toluol-4-sulfonylmethylisocyanid (TosMIC) **11**^[17] die Cyclophane **4** und **8** in einem Schritt mit 7% bzw. 10% Ausbeute^[18].



Abweichend von bisher beschriebenen Cyclisierungen mit TosMIC **11** unter Verdünnungsbedingungen^[19] und in Lösungsmittelgemischen^[20] führten wir die Cyclisierungen in Dimethylformamid (DMF) durch, wobei die Lösungsmittelmenge so verkleinert werden kann, daß die Konzentration der Reaktanten die selektive Darstellung der gewünschten Makrocyclen begünstigt^[21].



Orientierende Untersuchungen zeigten, daß wie bei der Sulfonpyrolyse auch nicht-benzylische und alicyclische Ketone^[22] nach dieser Methode präparativ ringverengt werden

können. Sogar Benzophenone ergeben unter analogen Bedingungen Biphenyle^[23]. Die Selektivität der Methode in Abhängigkeit von Pyrolysetemperatur und Verweilzeit rückt daher auf vielen Gebieten neue Syntheseeziele in greifbare Nähe, wobei Ringspannung und – anders als bei der Sulfonpyrolyse – oxidable Gruppen keine limitierenden Faktoren sind.

Arbeitsvorschriften

Keton-Pyrolyse: 20 mg (0.06 mmol) **4** wurden bei 10^{-5} Torr in einem mit Quarzwolle gefüllten, einseitig abgeschmolzenen Quarzrohr (Durchmesser 0.3 cm, Länge 22 cm) mit Hilfe eines Rohrofens verdampft. Das Rohr wurde zuvor im Bereich der Quarzwolle (Pyrolysezone) mit einem zweiten Rohrofen auf einer Länge von 10 cm auf 610–650 °C erhitzt. Das Produkt kondensiert im Quarzrohr nach Austritt aus der Pyrolysezone als gelblicher Feststoff. Aus dem Pyrolysat erhält man durch präparative Dickschichtchromatographie mit Dichlormethan/Methanol (100:1, v/v) die Verbindungen **5** (R_F = 0.58, Pyrolysetemperatur 610 °C), **6** (R_F = 0.84, Pyrolysetemperatur 620 °C) und **7** (R_F = 1.0, Pyrolysetemperatur 650 °C). Ansätze bis 100 mg verliefen analog.

Darstellung der Oligoketone mit TosMIC (am Beispiel von **4** und **8**): Zu einer Lösung von 26.35 mmol des Trisbromids **9** bzw. **10** und 39.52 mmol TosMIC **11** in 200 mL über Molekularsieb (4 Å) getrocknetem DMF gibt man während 45 min eine Suspension von 2.84 g (118 mmol) Natriumhydrid in 50 mL trockenem DMF. Man rührt 5 h bei Raumtemperatur, hydrolysiert dann durch Zugabe von 200 g Eis und trennt die organische Phase unter Zugabe von 100 mL Dichlormethan ab. Nach Einengen auf ca. 30 mL wird mit 15 mL konzentrierter Salzsäure versetzt und 15 min gerührt. Die organische Phase wird wieder abgetrennt, mit 50 mL Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet, eingengt und an Kieselgel (60–100 µm) chromatographiert [Gradientenelution, Dichlormethan, Dichlormethan/Methanol (20:1, v/v)]. Man erhält 281 mg **4** (7%) bzw. 1.07 g **8** (10%).

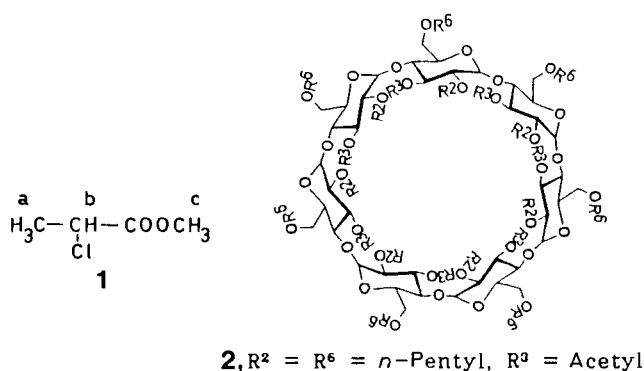
Eingegangen am 17. September 1991 [Z 4919]

CAS-Registry-Nummern:

1, 138513-50-5; **2**, 138435-61-7; **3**, 69080-01-9; **4**, 127395-53-3; **5**, 138435-62-8; **6**, 138435-63-9; **7**, 27165-88-4; **8**, 138458-93-2; **9**, 18226-42-1; **10**, 42837-44-5; **11**, 36635-61-7.

- [1] P. von R. Schleyer in *Cage Hydrocarbons* (Hrsg.: G. A. Olah, Wiley, New York, 1990, S. 1–38.
- [2] W. Krätschmer, L. D. Lamb, K. Fostiropoulos, D. R. Huffman, *Nature (London)* **1990**, *347*, 354–358; F. Diederich, R. L. Whetten, *Science* **1991**, *252*, 548–556.
- [3] Vgl. D. J. Cram, M. E. Tanner, R. Thomas, *Angew. Chem.* **1991**, *103*, 1048–1051; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, **30**, 1024–1027.
- [4] Übersicht: F. Vögtle, L. Rossa, *Top. Curr. Chem.* **1983**, *113*, 1–86; F. Vögtle, J. Dohm, *ibid.* **1991**, *161*, 68–106.
- [5] H. Takemura, T. Shinmyozu, T. Inazu, *Tetrahedron Lett.* **1988**, *29*, 1031–1032.
- [6] Darstellung von **7** durch Photodeselenierung. H. Higuchi, K. Tani, T. Otsubo, Y. Sakata, S. Misumi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **1987**, *60*, 4027–4036.
- [7] Darstellung: J. Breitenbach, R. Hoss, M. Nieger, K. Rissanen, F. Vögtle, *Chem. Ber.* **1992**, im Druck.
- [8] Bei der Pyrolyse konnte das Edukt zu 55% zurückgewonnen werden. Auf die Umsetzung allen Edukts berechnet beträgt die Ausbeute bei der Pyrolyse von 1 51% für **2** und 49% für **3**.
- [9] Zur Ausbeuteoptimierung bei Sulfonpyrolysen siehe: H. A. Staab, W. R. K. Reibel, C. Krieger, *Chem. Ber.* **1985**, *118*, 1230–1253; G. Bodwell, L. Ernst, M. W. Haenel, H. Hopf, *Angew. Chem.* **1989**, *101*, 509–510; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1989**, *28*, 455–456.
- [10] Berücksichtigt man wieder zurückgewonnenes Edukt (36%), so betragen die Ausbeuten für **5** 40% und für **6** 31%.
- [11] Die Sulfonpyrolyse, bei der in der Regel Ausgangsmaterial nicht zurückgewonnen wird, lieferte naturgemäß nur den Kohlenwasserstoff **7** mit lediglich 20% Ausbeute: V. Boekelheide, R. A. Hollins, *J. Am. Chem. Soc.* **1973**, *95*, 3201–3208; N. Nakazaki, K. Yamamoto, Y. Miura, *J. Chem. Soc. Chem. Commun.* **1977**, 206–207.
- [12] Darstellung: Verdünnungsbedingungen, Phasentransferkatalyse: K. Kurosawa, M. Suenaga, T. Inazu, T. Yoshino, *Tetrahedron Lett.* **1982**, *23*, 5335–5338.
- [13] Die Sulfonpyrolyse ergab nur den Kohlenwasserstoff (in 70–80% Ausbeute): V. Boekelheide, *Top. Curr. Chem.* **1983**, *113*, 87–143. Mit jeweils 30% Umsatz errechnet sich eine Gesamtausbeute an [2.2]Paracyclophan aus dem 2,12-Dion von 45%. Werden größere Mengen des [3.3]Paracyclophandions bei 650 °C pyrolysiert, so entsteht ein Polymerfilm an der Rohrrinnenwand, der im IR-Spektrum keine Carbonylbände mehr zeigt und dem „Parylen“ (Poly-*para*-xylylen) entspricht. Unter diesen Bedingungen ist die Grenze von intra- zu intermolekularer C-C-Knüpfung für die *para*-Substitution überschritten.
- [14] J. Breitenbach, F. Vögtle, *Synthesis* **1992**, im Druck.

- [15] F. Vögtle, M. Zuber, R. G. Lichtenthaler, *Chem. Ber.* **1973**, *106*, 717–719.
 [16] N. Sendhoff, W. Kißener, F. Vögtle, S. Franken, H. Puff, *Chem. Ber.* **1988**, *121*, 2179–2185.
 [17] A. M. van Leusen, G. J. M. Boerna, R. B. Helmholtz, H. Siderius, J. Strating, *Tetrahedron Lett.* **1972**, 2367–2368.
 [18] Die Verbindungen **1**, **4** und **8** konnten wir durch Röntgenstrukturanalysen charakterisieren.
 [19] A. M. van Leusen, R. J. Bouma, O. Possel, *Tetrahedron Lett.* **1975**, 3487–3488; T. Shinmyozu, Y. Hirai, T. Inazu, *J. Org. Chem.* **1986**, *51*, 1551–1555.
 [20] D. Hoppe, *Angew. Chem.* **1974**, *86*, 878–893; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1974**, *13*, 789–840. H. Siderius, B. E. Hoogenboom, D. van Leusen, A. M. van Leusen, *Tetrahedron Lett.* **1972**, 5337–5340.
 [21] C.-O. Dietrich-Buchecker, J. Guilhem, A. K. Khemiss, J.-P. Kitzinger, C. Pascard, J. P. Sauvage, *Angew. Chem.* **1987**, *99*, 711–714; *Angew. Chem. Int. Ed.* **1987**, *26*, 661–664; N. Sendhoff, K. H. Weißbarth, F. Vögtle, *ibid.* **1987**, *26*, 794–795 bzw. **1987**, *26*, 777–778; J.-C. Rodriguez-Ubis, B. Alpha, D. Plancherel, J.-M. Lehn, *Helv. Chim. Acta* **1984**, *67*, 2264–2269.
 [22] Pyrolytische Entfernung von CO aus Chrysen-6,12-dion und einigen anderen Chinonen: G. Schaden, *Angew. Chem.* **1977**, *89*, 50–51; *Angew. Chem. Int. Ed.* **1977**, *16*, 50–51; Vgl. auch: G. Seybold, *ibid.* **1977**, *16*, 377–385 bzw. **1977**, *16*, 365–373; P. Schiess, S. Rutschmann, *Chimia*, **1985**, *39*, 213–224; U. E. Wiersum, *Recl. Trav. Chim. Pays-Bas*, **1982**, *101*, 317–332.
 [23] Bei der Pyrolyse von Cyclododecanon bei 600 °C konnten wir Cycloundecan isolieren (9% Ausbeute); bei der Pyrolyse von Benzophenon bei 700 °C wird Biphenyl in 9% Ausbeute isoliert; vgl. G. R. Newkome, H. C. R. Taylor, *J. Org. Chem.* **1979**, *44*, 1362–1363. Auch bei diesen Ansätzen kann nicht umgesetztes Ausgangsmaterial zurückgewonnen werden, womit sich Ausbeuten von 40 bzw. 35% errechnen.



(*R*)-Enantiomern um bis zu $\Delta\delta = 0.5$ zu tieferem Feld verschoben (Abb. 1). Darüber hinaus liefert das Methinproton

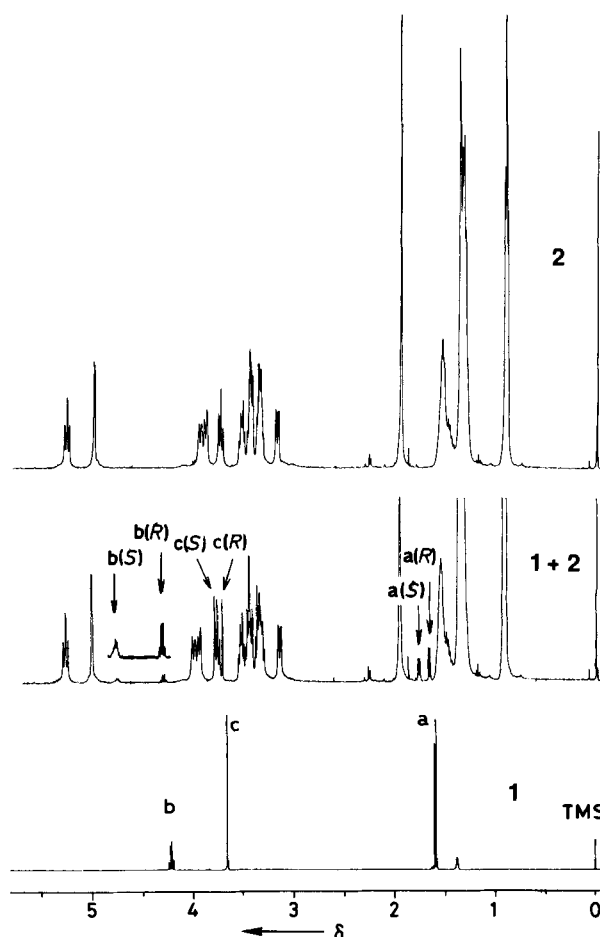


Abb. 1. 400 MHz- ^1H -NMR-Spektren von (*R,S*)-**1** (unten) mit den Signalen der Methyl- (a), Methin- (b) und Methoxygruppe (c), von (*R,S*)-**1** und **2** im Molverhältnis 1:2.25 (Mitte; die Resonanzsignale a, b und c weisen für die Enantiomere unterschiedliche chemische Verschiebungen auf) und von **2** (oben). Alle Spektren wurden in $[\text{D}_{12}]\text{Cyclohexan}$ aufgenommen.

Cyclodextrinderivate als chirale Selektoren – Untersuchung der Wechselwirkung mit (*R,S*)-Methyl-2-chlorpropionat durch enantio-selektive Gaschromatographie, NMR-Spektroskopie und Moleküldynamiksimulation**

Von Jutta E. H. Köhler, Manfred Hohla, Martina Richters und Wilfried A. König*

Professor Ernst Bayer zum 65. Geburtstag gewidmet

Enantiomere Substrate bilden mit Cyclodextrinen und deren Derivaten energetisch und strukturell unterscheidbare Wirt-Gast-Komplexe. Dies zeigt sich beispielsweise bei der Untersuchung chiraler Substrate in Gegenwart von Cyclodextrinen durch enantioselektive Chromatographie^[1], NMR-Spektroskopie^[2] und Röntgenstrukturanalyse^[3]. Für das Verständnis der Wirt-Gast-Wechselwirkung und damit der chiralen Erkennung wäre es von großem Nutzen, Informationen über räumliche Beziehungen zwischen Wirt- und Gastmolekülen in den Molekülkomplexen zu erhalten.

Bei dem von uns untersuchten Modell handelt es sich um (*R,S*)-Methyl-2-chlorpropionat **1** im Komplex mit Heptakis(3-*O*-acetyl-2,6-di-*O*-pentyl)- β -CD (Lipodex D, **2**)^[4]. An Kapillarsäuren, belegt mit **2**, werden die Enantiomere von **1** mit ungewöhnlich großem Trennfaktor ($\alpha = 2.02$ bei 333 K an einer 25 m langen „Fused-Silica“-Kapillare, entsprechend $\Delta\Delta G_{R,S}^0 = 2 \text{ kJ mol}^{-1}$) getrennt.

Im ^1H -NMR-Spektrum einer Lösung von **1** und **2** in einem unpolaren Solvens ($[\text{D}_{12}]\text{Cyclohexan}$, $[\text{D}_{14}]\text{Hexan}$) treten deutlich unterschiedliche Signale für (*R*)-**1** und (*S*)-**1** auf. Alle Signale des (*S*)-Enantiomers sind gegenüber denen des

von (*S*)-**1** kein Quartett sondern ein Signal höherer Ordnung (Abb. 2). Dies könnte auf eine Nichtäquivalenz der koppelnden CH_3 -Protonen infolge einer spezifischen Wechselwirkung mit dem chiralen Wirtsmolekül im Einschlußkomplex hindeuten.

Die Unterschiede in den Werten der chemischen Verschiebung nehmen mit steigender Temperatur und mit zunehmendem Wirt-Gast-Verhältnis ab. Ähnliche, jedoch weniger ausgeprägte Effekte traten bei ^1H -NMR-Messungen an Lösungen von **2** und (*R,S*)-Methyl-2-brompropionat, (*R,S*)-

[*] Prof. Dr. W. A. König, M. Richters
 Institut für Organische Chemie der Universität
 Martin-Luther-King-Platz 6, W-2000 Hamburg 13
 Dr. J. E. H. Köhler, M. Hohla
 Consortium für Elektrochemische Industrie
 Zielstattstraße 20, W-8000 München 70

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