

intensivere, wobei das Verhältnis von 5:3 (2) bis >10:3 (3) variiert. Alle Spektren können gemäß der excitonischen Deutung des CD-Spektrums von BR-Pigmenten^[13] in zwei Anteile zerlegt werden: in einen einphasig positiven (negativ bei 6), der in Form und Lage mit dem Absorptionsspektrum übereinstimmt und der durch den verdreht eingelagerten Farbstoff oder die Wechselwirkung zum Protein hervorgerufen wird, sowie einen zweiphasig konservativen Anteil, der aus der Wechselwirkung der Chromophoranregungen untereinander resultiert.^[14]

Untersuchungen zur photochemischen Aktivität mit der Blitzphotolyse ergaben, daß sich die neu hergestellten Pigmente deutlich anders als BR verhalten. Im Zeitbereich aller nach photochemischer Bildung des Primärintermediats K im Dunklen ablaufenden kinetischen Prozesse im BR-Photocyclus (ca. 100 ns bis 10 ms) ist für keine der Cyaninverbindungen eine Veränderung der Grundzustandsabsorption nachweisbar. Allerdings konnten bei den BR-Derivaten 4 und 5 durch Lichtabsorption bisher unbekannte thermisch kontrollierte Konformationsänderungen induziert werden (gezeigt am Beispiel des BR-Derivats 4, Abb. 3): Schmalbandige Langzeitbelichtung des

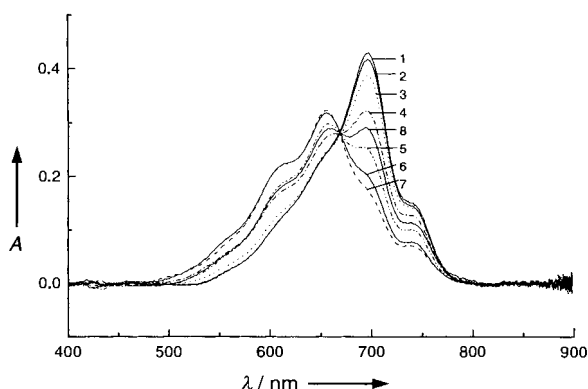


Abb. 3. Photochemisches Verhalten des aus 4 und BO gebildeten Pigments. Kurve 1: Absorption nach vollständiger Rekonstitution, direkt vor Belichtung; Kurve 2: nach 10 min Belichtung; Kurve 3–8: wie bei Kurve 2, gefolgt von 2, 4, 6, 7, 8 bzw. 20 h Dunkelinkubation. Es ist zu beachten, daß die Kurve 8 bereits die thermische Rückreaktion wiedergibt.

Ausgangszustands ($\lambda_{\text{max}} = 698 \text{ nm}$, Kurve 1) unter Verwendung eines Interferenzfilters ($\lambda_{\text{ex}} = 654 \pm 10 \text{ nm}$) für ca. zehn Minuten führt zunächst zu einer kaum wahrnehmbaren Änderung der Absorption im Bereich des Maximums (Kurve 2). Infolge dieser photochemischen Reaktion kommt es zu sehr langsam ablaufenden, thermisch getriebenen Umwandlungen. Im Verlauf mehrerer Stunden nimmt im Dunkeln die Absorption im Bereich des Ausgangszustands bei 698 nm ab, während gleichzeitig – unter Ausbildung eines isosbestischen Punkts – eine Absorptionzunahme um 654 nm zu beobachten ist (Kurven 3–7). Die Bildung der kürzerwellig absorbierenden Form ist nicht vollständig, sondern wird im Verlauf einer mehrtägigen Dunkelinkubation durch eine noch langsamere Reaktion überlagert, durch die die ursprünglich bei 698 nm absorbierende Spezies anteilig wieder hergestellt wird (Kurve 8). Diese Vorgänge sind eindeutig photoinduziert, wie die Dunkelinkubation (ohne vorherige Belichtung) einer identischen Probe für den Beobachtungszeitraum ergab. Eine derartige Probe zeigt keinerlei Veränderung der Absorptionen, so daß sich thermisch einstellende Gleichgewichte vorhandener E,Z-Isomere als Ursache ausgeschlossen werden können. Zur Erklärung dieser Vorgänge schlagen wir vor, daß die Belichtung dieses Cyaninfarbstoffs mit geringer Quantenausbeute zur Bildung eines nahezu identisch

absorbierenden Isomers führt, das allerdings in der Proteinbindungstasche eine sterisch ungünstige Konformation einnimmt, so daß es in einer langsamen thermischen Folgereaktion zur Bildung eines neuen Zustands mit hypsochromer Absorption kommt. Diese Spezies stellt sich mit einer extrem langsamen Kinetik mit dem Ausgangszustand ins Gleichgewicht. Weiterführende Untersuchungen, durch die, wie für andere, modifizierte Chromophore bereits berichtet, auch deutlich schneller ablaufende photochemische Prozesse charakterisiert werden können,^[15–17] werden derzeit durchgeführt.

Eingegangen am 4. November 1996,
veränderte Fassung am 11. April 1997 [Z 9716]

Stichworte: Bacteriorhodopsin · Chromophore · Circular-dichroismus · Cyanine · Photochemie

- [1] K. Nakanishi, *Pure Appl. Chem.* **1985**, 57, 769.
- [2] R. A. Mathies, S. W. Lin, J. B. Ames, W. T. Pollard, *Annu. Rev. Biophys. Biochem. Chem.* **1991**, 20, 491.
- [3] D. Oesterheld, *Angew. Chem.* **1976**, 88, 16; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1976**, 15, 17.
- [4] K. Gerwert, G. Souvignier, B. Hess, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **1990**, 87, 9774.
- [5] J. K. Lanyi, *Biochim. Biophys. Acta* **1993**, 1183, 241.
- [6] M. G. Motto, M. Sheves, K. Tsujimoto, V. Balogh-Nair, K. Nakanishi, *J. Am. Chem. Soc.* **1980**, 102, 7947.
- [7] K. Nakanishi, R. Crouch, *Isr. J. Chem.* **1996**, 35, 253.
- [8] A. E. Asato, X.-Y. Li, D. Mead, G. M. L. Patterson, R. S. H. Liu, *J. Am. Chem. Soc.* **1990**, 112, 7398.
- [9] R. S. H. Liu, E. Krogh, X.-Y. Li, D. Mead, L. U. Colmenares, J. R. Thiel, J. Ellis, D. Wong, A. E. Asato, *Photochem. Photobiol.* **1993**, 58, 701.
- [10] F. Derguini, C. G. Caldwell, M. G. Motto, V. Balogh-Nair, K. Nakanishi, *J. Am. Chem. Soc.* **1983**, 105, 646.
- [11] G. Scheibe, E. Daltrozzo, O. Wörz, J. Heiss, *Z. Phys. Chem. NF* **1969**, 64, 97.
- [12] M. Stockburger, T. Alshuth, D. Oesterheld, W. Gärtner in *Spectroscopy of Biological Systems*. (Hrsg.: R. J. H. Clark, R. E. Hester), Wiley, New York, **1986**, S. 483.
- [13] B. Becher, T. G. Ebrey, *Biochem. Biophys. Res. Comm.* **1976**, 69, 1.
- [14] J. Y. Cassim, *Biophys. J.* **1992**, 63, 1432.
- [15] H.-J. Polland, M. A. Franz, W. Zinth, W. Kaiser, E. Kölling, D. Oesterheld, *Biochim. Biophys. Acta* **1984**, 767, 635.
- [16] N. Friedman, M. Sheves, M. Ottolenghi, *J. Am. Chem. Soc.* **1989**, 111, 3203.
- [17] T. L. Brack, J. K. Delaney, G. H. Atkinson, A. Albeck, M. Sheves, M. Ottolenghi, *Biophys. J.* **1993**, 65, 964.

Synthese eines neuartigen stabilen GM₃-Lacton-Analogons als Hapten für eine mögliche Immunisierung gegen Krebs**

Lutz F. Tietze* und Holger Keim

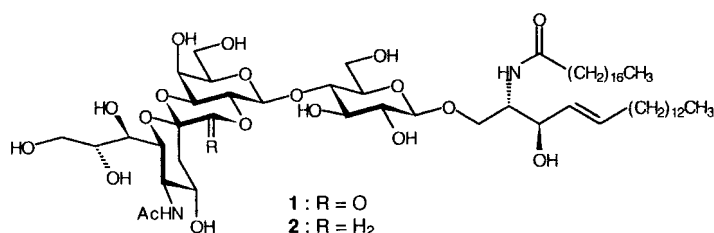
Professor Waldemar Adam zum 60. Geburtstag gewidmet

Neben Proteinen und Lipiden sind Kohlenhydrate wesentliche Elemente der Zelloberfläche, unter denen Ganglioside einen großen Anteil ausmachen. Sie sind mit dem Ceramidteil in der Lipiddoppelschicht der Membran verankert, während der Kohlenhydratanteil an der Außenseite exponiert ist. Ganglioside spielen eine wichtige Rolle bei der Zell-Zell- und der Zell-Matrix-Erkennung und sind für das Zellwachstum bedeutsam,

[*] Prof. Dr. L. F. Tietze, Dr. H. Keim
Institut für Organische Chemie der Universität
Tammannstraße 2, D-37077 Göttingen
Telefax: Int. + 551/39-9476
E-mail: ltietze@gwdg.de

[**] Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (SFB 500) und vom Fonds der Chemischen Industrie gefördert. H. K. dankt dem Fonds für ein Doktorandenstipendium.

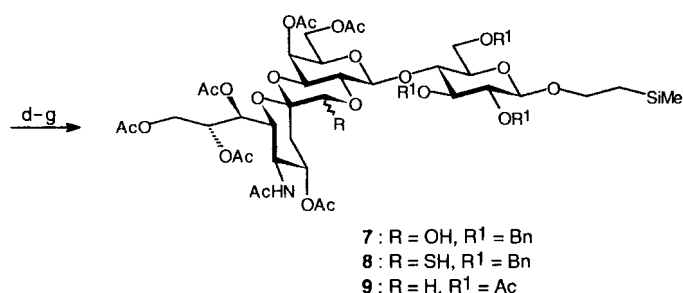
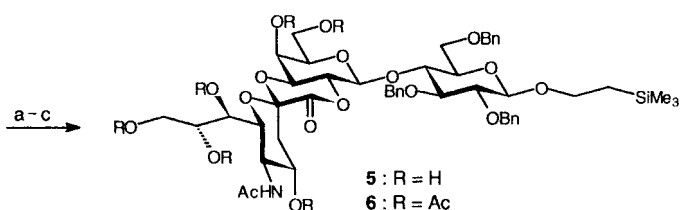
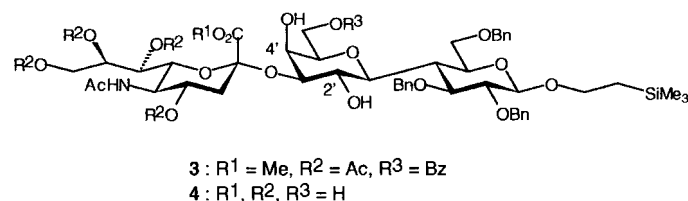
da sie mit vielen Wachstumsrezeptoren, z. B. mit dem Epidermal-Growth-Factor-Rezeptor,^[1] wechselwirken. Das GM₃-Gangliosid ist das kleinste Gangliosid und zugleich auch das in menschlichen und tierischen Geweben am weitesten verbreitete. Es wurde in Hirn- und Nervenzellen sowie in den Zellmembranen von Melanom- und Leberkarzinomzellen in erhöhter Konzentration gefunden.^[2] Immunisierungsversuche mit monoklonalen Antikörpern deuten allerdings darauf hin, daß nicht das GM₃-Gangliosid, sondern seine Lactonform **1** das eigentliche tumorassoziierte Antigen ist.^[3] So wurde eine stark erhöhte Dichte des GM₃-Lactons auf Melanomzellen gefunden und die Existenz eines Grenzwertes nachgewiesen, bei dem der Antikörper die Zelle erkennt.^[4] Das bisher zur Gewinnung von Antikörpern verwendete GM₃-Gangliosid-Lacton^[4] und -Lactam^[5] sind allerdings unter physiologischen Bedingungen nicht hydrolysebeständig. Daher besteht großes Interesse, hydrolysestabile Analoga von **1** zu entwickeln und damit ein genau definiertes Immunogen für die Immunisierung zur Verfügung zu stellen. Hier beschreiben wir die Synthese des hydrolysestabilen GM₃-Gangliosid-Lacton-Analogons **2** mit einer Ethergruppe.



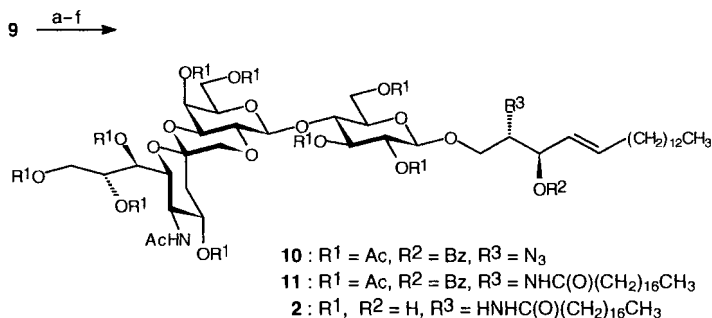
Bei der Synthese von **2** wurde zunächst versucht, das Trisaccharid **3**^[6] mit freien Hydroxygruppen an C-2' und C-4', das aus Glucose, Galactose und Neuraminsäure nach bekannten Verfahren selektiv aufgebaut wurde, mit 1,8-Diazabicyclo[5.4.0]undec-7-en (DBU) in Dichlormethan zum C-2'-Gal-Lacton **5** zu cyclisieren (Schema 1). Man erhielt hierbei jedoch durch Reaktion der freien Hydroxygruppen die beiden möglichen Lacton-Isomere in 86% Ausbeute als nicht trennbares Gemisch im Verhältnis 1.7:1. Die säurekatalysierte Umsetzung des partiell entschützten Trisaccharids **4**, die für das isolierte GM₃-Gangliosid bereits beschrieben wurde,^[7] lieferte dagegen selektiv das gewünschte GM₃-Gangliosid-Lacton **5** in 57% Ausbeute. Zur Überführung von **5** in das Analogon **9** wurde zunächst zu **6** peracetyliert und anschließend die Lacton-Funktionalität unter Bildung des Lactols **7** reduziert, das in das Thiohalbacetal **8** überführt wurde. Hydrogenolytische Abspaltung der Thiolgruppe vollendete die Sequenz. Für die Reduktion der Carboxygruppe erwies sich das Red-Al-Derivat Na[AlH(OCH₂CH₂OCH₃)₂OEt]^[8] als das beste Reagens, das **7** unter Erhaltung der Acetylgruppen in 80% Ausbeute lieferte. Die Umsetzung mit Diisobutylaluminiumhydrid (DIBAL) führte überwiegend zu desacetylierten Produkten, und LiBH₄ sowie NaBH₄ gaben erwartungsgemäß hauptsächlich die entsprechenden unerwünschten Dirole. Die Überführung des Halbacetals in **7** in die Ether-Funktion in **9** erwies sich hauptsächlich wegen der geringen Reaktivität der Hydroxygruppe als ausgesprochen schwierig und hätte fast zu einem Scheitern des Projektes geführt. Bei allen Versuche, die Hydroxygruppe direkt reduktiv zu entfernen, z. B. mit Triethylsilan und Bortrifluorid-Etherat, wurde die glycosidische Bindung an C-1 gespalten. Auch die naheliegende Überführung in ein O,S-Acetal scheiterte zunächst. Es gelang zwar, die Hydroxygruppe durch Überführung in das Acetat oder Trichloracetimidat nach Standardmethoden

in sehr guten Ausbeuten zu aktivieren, bei der nachfolgenden Reaktion mit Thiophenol in Gegenwart von Bortrifluorid-Etherat oder Trimethylsilyltriflat (TMSOTf) kam es jedoch zu einer Konkurrenzreaktion an C-1 der Glucose unter Bildung der Dithiophenylglycoside. Erst durch Umsetzung mit jeweils fünf Äquivalenten Bispyridiniumdisulfid und *n*-Tributylphosphan^[9] gelang die gewünschte Transformation des Lactols. Bemerkenswerterweise wurde hier nicht das erwartete S-Pyridylderivat, sondern das freie Thiohemiacetal **8** durch Überreduktion in 71% Ausbeute erhalten. Die nachfolgende Umwandlung zum acetylgeschützten GM₃-Lacton-Analogon **9**^[10] erfolgte durch Hydrierung mit H₂ und Raney-Nickel unter gleichzeitiger Abspaltung der Benzylgruppen in ausgezeichneter Ausbeute von 85%. Der Beweis für das Vorliegen des Ethers **9** ließ sich NMR-spektroskopisch durch ¹H-¹H-Korrelation erbringen. Man findet zwei Dubletts bei $\delta = 3.44$ und 3.89 mit jeweils ²*J*(H,H) = 11.5 Hz, die den beiden geminalen Protonen an C-1'' zugeordnet werden.

Zur Überführung von **9** in das vollständige GM₃-Gangliosid-Lacton-Analogon **2** wurde die Schutzgruppe an C-1 durch Umsetzung mit Trifluoressigsäure in Dichlormethan entfernt (Schema 2). Leider fand hierbei zu ca. 17% eine Epimerisierung an C-2 der Neuraminsäure zum thermodynamisch stabileren β -Anomer statt, das allerdings erfreulicherweise auf der Stufe von **10** leicht chromatographisch (Kieselgel) abgetrennt werden konnte. Die Unterscheidung der beiden Anomere gelingt durch Vergleich der ¹H-NMR-Signale für 3''-H_{aq} mit $\delta = 2.50$ für das α -Anomer und 1.96 für das β -Anomer. Lewis-Säuren wie Bortri-



Schema 1. a) NaOMe, MeOH, 30 h, RT; b) HOAc, 3 d, RT, 57% (zwei Stufen); c) Ac₂O, Pyridin, 4-(Dimethylamino)pyridin (DMAP), 14 h, RT, 94%; d) Na[AlH(CH₂CH₂OCH₃)₂OEt], Toluol, -55°C, 1 h, 80%; e) 5 Äquiv. (PyS)₂, 5 Äquiv. *n*Bu₃P, CH₂Cl₂, 3 d, RT, 6 h Rückfluß, 71%; f) Raney-Nickel, EtOH, H₂ (1 atm), 30 h, RT; g) Ac₂O, Pyridin, DMAP, CH₂Cl₂, 14 h, RT, 85% (zwei Stufen).



Schema 2. a) CF₃COOH/CH₂Cl₂ (2/1), 30 min, RT; b) 30 Äquiv. CCl₃CN, DBU, CH₂Cl₂, 1 h, 0°C, 93% (zwei Stufen); c) CH₂Cl₂, 3 Äquiv. Azido-Sphingosin, 3 Äquiv. BF₃·Et₂O, 4-Å-Molekularsieb, 1 h, -40°C, 66%; d) 5 Äquiv. NEt₃, 5 Äquiv. PhSH, 5 Äquiv. (PhS)₂Sn, CH₂Cl₂, 4 h, RT; e) 5 Äquiv. Stearinsäure, 5 Äquiv. EDC, CH₂Cl₂, 2 h, RT, 73% (zwei Stufen); f) NaOMe, MeOH, 20 h, RT, 77%.

fluorid-Etherat oder Zinkchlorid zur Abspaltung der Schutzgruppe an C-1 führten zu einer fast vollständigen Epimerisierung, und mit Tetrabutylammoniumfluorid trat keine Reaktion ein. Zur weiteren Überführung in das Gangliosid **10** wurde die Hydroxygruppe an C-1 unter Bildung des Trichloracetimidats umgesetzt. Die nachfolgende Glycosylierung mit Azido-Sphingosin^[11] unter Bortrifluorid-Etherat-Katalyse bei -40°C in Dichlormethan lieferte in zwei Stunden das Sphingosin-Derivat **10**. Dabei wurde unter den Reaktionsbedingungen keine weitere Epimerisierung beobachtet. Die Reduktion der Azidgruppe in **10** zum entsprechenden Amin gelang in guten Ausbeuten mit NH₄Et₃⁺[(PhS)₂Sn]⁻.^[12] Auch hier waren zunächst zahlreiche andere Reagentien wie Triphenylphosphan, 1,3-Propandithiol und H₂S eingesetzt worden, die jedoch zu weit schlechteren Ergebnissen führten. Zum Abschluß der Synthese des freien GM₃-Lacton-Analogons **2** wurde das Amin mit Stearinsäure unter Zusatz von 1-Ethyl-3-(3-dimethylaminopropyl)carbodiimid (EDC) zum Ceramid **11** umgesetzt, das durch Solvolysen mit Natriummethanolat in Methanol entschützt wurde.

Zur Zeit werden in Zusammenarbeit mit den Abteilungen für Hämatologie und Onkologie sowie Immunologie der Universität Göttingen die biologische Aktivität von **2** geprüft sowie Konjugate mit Rinderserumalbumin (BSA) und mit dem Häemocyanin der Schlüssellock-Napfschnecke (KLH) hergestellt und zur Immunisierung eingesetzt.

Eingegangen am 19. Dezember 1996 [Z9907]

Stichworte: Acetale · Ganglioside · Glycosylierungen · Neuraminsäuren · Tumorthherapie

- [1] Q. Zhou, S. Hakomori, K. Kitamura, Y. Igarashi, *J. Biol. Chem.* **1994**, 269, 1959.
 [2] a) W. B. Hamilton, F. Helling, K. O. Lloyd, P. O. Livingston, *Int. J. Cancer* **1993**, 53, 566; b) C.-C. Sung, D. K. Pearl, S. W. Coons, B. W. Scheithauer, P. C. Johnson, A. J. Yates, *Cancer* **1994**, 74, 3010.
 [3] G. Magnusson, K. Ding, U. Nilsson, A. K. Ray, A. Rosén, H.-O. Sjögren in *Complex Carbohydrates in Drug Research* (Hrsg.: K. Bock, H. Clausen), Kopenhagen, **1994** (*Alfred Benzon Symp.* **1994**, 36, 89).
 [4] G. A. Nores, T. Dohi, M. Taniguchi, S. I. Hakomori, *J. Immunol.* **1987**, 139, 3171.
 [5] M. Wilstermann, L. O. Kononov, O. Nilson, A. K. Ray, G. Magnusson, *J. Am. Chem. Soc.* **1995**, 117, 4742.
 [6] A. Hasegawa, K. Adachi, M. Yoshida, M. Kiso, *J. Carbohydr. Chem.* **1992**, 11, 95.
 [7] R. K. Yu, T. A. W. Koerner, S. Ando, H. C. Yohe, J. H. Prestegard, *J. Biochem.* **1985**, 98, 1367.
 [8] R. Kanazawa, T. Tokoroyama, *Synthesis* **1976**, 526.
 [9] A. O. Stewart, R. M. Williams, *J. Am. Chem. Soc.* **1985**, 107, 4289.

[10] ¹H-NMR (500 MHz, CDCl₃, 25°C, TMS): δ = 0.01 (s, 9 H; SiMe₃), 0.93 (m, 2 H; CH₂SiMe₃), 1.87 (dd, ³J(H,H) = 10.5, ²J(H,H) = 13.5 Hz, 1 H; 3''-H_{ax}), 1.90 (s, 3 H; CH₃CON), 2.03, 2.06, 2.08, 2.09, 2.13, 2.15 (s, 27 H; 9 CH₃CO), 2.60 (dd, ³J(H,H) = 5.5, ²J(H,H) = 13.5 Hz, 1 H; 3''-H_{eq}), 3.44 (d, ²J(H,H) = 11.5 Hz, 1 H; 1''-H_{ax}), 3.59 (dd, ³J(H,H) = 7.5, 10.5 Hz, 1 H; 2'-H), 3.52–3.58 (m, 1 H; OCH₂CH₂Si), 3.64 (dt, ³J(H,H) = 3.5, 10.0 Hz, 1 H; 5-H), 3.71 (dd, ³J(H,H) = 3.0, 10.5 Hz, 1 H; 3'-H), 3.81 (t, ³J(H,H) = 9.5 Hz, 1 H; 4-H), 3.80–3.91 (m, 4 H; 5'-H, 5''-H, 6'-H_{ax}, 6''-H), 3.89 (d, ²J(H,H) = 11.5 Hz, 1 H; 1''-H_{eq}), 3.92–3.99 (m, 1 H; OCH₂CH₂Si), 4.02–4.13 (m, 2 H; 6-H_{ax}, 6''-H_{ax}), 4.10 (dd, ³J(H,H) = 6.0, ²J(H,H) = 12.0 Hz, 1 H; 9''-H_{ax}), 4.35 (d, ²J(H,H) = 7.5 Hz, 1 H; 1'-H), 4.38–4.43 (m, 2 H; 6-H_{eq}, 9''-H_{eq}), 4.49 (d, ²J(H,H) = 8.0 Hz, 1 H; 1-H), 4.88 (dd, ³J(H,H) = 8.0, 9.5 Hz, 1 H; 2-H), 5.21 (t, ³J(H,H) = 9.5 Hz, 1 H; 3-H), 5.15–5.23 (m, 2 H; 4''-H, 8''-H), 5.25 (dd, ³J(H,H) = 2.0, 6.5 Hz, 1 H; 7''-H), 5.29 (dd, ³J(H,H) = 1.5, 3.0 Hz, 1 H; 4'-H), 5.32 (d, ³J(H,H) = 9.0 Hz, 1 H; NH); [α]_D²⁰ = -6.6 (c = 0.5 in CHCl₃); MS (DCI): m/z (%): 1098.3 (100) [M + NH₃ + H]⁺.

[11] R. R. Schmidt, P. Zimmermann, *Angew. Chem.* **1986**, 98, 722; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1986**, 25, 725.

[12] M. Bartra, F. Urpi, J. Vilarraza, *Tetrahedron Lett.* **1987**, 28, 5941.

Anomale Verschiebung in den Fluoreszenzspektren eines Dendrimers hoher Generation in unpolaren Lösungsmitteln**

Chelladurai Devadoss, P. Bharathi und Jeffrey S. Moore*

Charge-Transfer(CT)-Zustände sind durch Absorptions- und Emissionsspektren mit breiten, nichtstrukturierten Banden gekennzeichnet. Mit zunehmender Polarität des Mediums wird die Emissionsbande gewöhnlich rotverschoben (bathochrome Verschiebung).^[1] Dieses Phänomen der Solvatochromie, die Verschiebung des Emissionsmaximums bedingt durch Änderungen der Polarität des Mediums, wurde zur Untersuchung der Nahordnung in Micellen,^[2] des Härungsgrades in Epoxidharzen,^[3] der Beweglichkeit von Polymerketten,^[4] der Struktur von Poly(ethylenglycol)-Gerüsten^[5] sowie der Polarität und Viskosität einiger biologischer und anderer heterogener Systeme angewendet.^[6] Fréchet et al. verknüpften das solvatochrome Chromophor 4-(N-Benzyl-N-methylamino)-1-nitrobenzol mit der fokalen Gruppe dendritischer Polyether-Makromoleküle und studierten die Solvatochromie der Produkte in Abhängigkeit von der Generationenzahl.^[7] Beim Übergang von der dritten zur vierten Generation beobachteten sie eine deutliche Änderung des Absorptionsmaximums in Lösungsmitteln mit niedriger Polarität und ordneten dies dem Übergang von einer ausgedehnten zu einer kugelförmigen Struktur zu. Eine solche Änderung der Form entsprach den Ergebnissen ihrer Untersuchungen der intrinsischen und der Schmelzviskositäten dieser Materialien.^[8, 9] Diese Befunde sowie frühere Moleküldynamikrechnungen anderer^[10] sprechen dafür, daß die Dendrimere mit höheren Generationenzahlen kompakte, kugelförmige Strukturen aufweisen, die sich ab einer bestimmten Generation aus einer offenen, ausgedehnten Form bilden. Wir berichten hier über eine außergewöhnliche spektrale Verschiebung des Fluoreszenzmaximums eines CT-Zustands eines Phenylacety-

[*] Prof. J. S. Moore, Dr. C. Devadoss, Dr. P. Bharathi
 Department of Chemistry, Materials Science and Engineering
 and the Beckman Institute for Advanced Science and Technology
 University of Illinois at Urbana-Champaign
 Urbana, IL 61801 (USA)
 Telefax: Int. + 217/244-8068
 E-mail: moore@aries.scs.uiuc.edu

[**] Diese Arbeit wurde von der National Science Foundation (Grant DMR 95-20402) gefördert.