

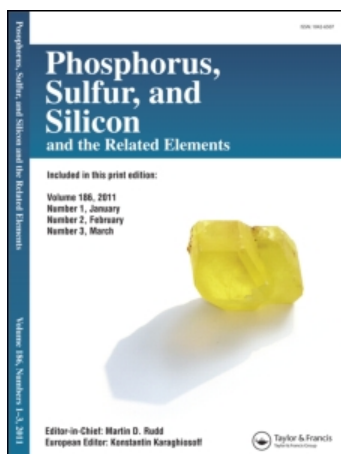
This article was downloaded by:

On: 29 January 2011

Access details: *Access Details: Free Access*

Publisher *Taylor & Francis*

Informa Ltd Registered in England and Wales Registered Number: 1072954 Registered office: Mortimer House, 37-41 Mortimer Street, London W1T 3JH, UK



Phosphorus, Sulfur, and Silicon and the Related Elements

Publication details, including instructions for authors and subscription information:

<http://www.informaworld.com/smpp/title~content=t713618290>

N-YLIDENBENZOLSULFONAMIDE AUS THIOXOHETEROCYCLEN UND PHENYLSULFONYLAZIDEN

Friedrich Boberg^a; Gunter Nink^a; Bernd Bruchmann^a; Barbara Korall^a; Reglindis Weber^a

^a Institut für Organische Chemie der Technischen Universität Clausthal, Clausthal-Zellerfeld

To cite this Article Boberg, Friedrich , Nink, Gunter , Bruchmann, Bernd , Korall, Barbara and Weber, Reglindis(1991) 'N-YLIDENBENZOLSULFONAMIDE AUS THIOXOHETEROCYCLEN UND PHENYLSULFONYLAZIDEN', *Phosphorus, Sulfur, and Silicon and the Related Elements*, 61: 1, 145 – 150

To link to this Article: DOI: 10.1080/10426509108027347

URL: <http://dx.doi.org/10.1080/10426509108027347>

PLEASE SCROLL DOWN FOR ARTICLE

Full terms and conditions of use: <http://www.informaworld.com/terms-and-conditions-of-access.pdf>

This article may be used for research, teaching and private study purposes. Any substantial or systematic reproduction, re-distribution, re-selling, loan or sub-licensing, systematic supply or distribution in any form to anyone is expressly forbidden.

The publisher does not give any warranty express or implied or make any representation that the contents will be complete or accurate or up to date. The accuracy of any instructions, formulae and drug doses should be independently verified with primary sources. The publisher shall not be liable for any loss, actions, claims, proceedings, demand or costs or damages whatsoever or howsoever caused arising directly or indirectly in connection with or arising out of the use of this material.

N-YLIDENBENZOLSULFONAMIDE AUS THIOXHETEROCYCLEN UND PHENYLSULFONYLAZIDEN

FRIEDRICH BOBERG,* GUNTER NINK, BERND BRUCHMANN,
BARBARA KORALL und REGLINDIS WEBER

*Institut für Organische Chemie der Technischen Universität Clausthal,
Leibnizstraße 6, D-3392 Clausthal-Zellerfeld*

(Received October 30, 1990; in final form December 10, 1990)

Thioxoheterocycles (1–9) react with phenylsulfonylazides (10) to give N-ylidenebenzenesulfonamides (11–20).

Thioxoheterocyclen (1–9) reagieren mit Phenylsulfonylaziden (10) zu N-Ylidenbenzolsulfonamiden (11–20).

Key words: 2- and 4-pyridinethiones; 4-pyranthiones; 1,4-dimethylpiperazine-2,5-dithione; phenylsulfonylazides, N-ylidenebenzenesulfonamides.

Wir haben über Reaktionen von N-substituierten Pyridinthionen mit Natrium-N-chlorbenzolsulfonamiden berichtet, die zu S-Dihydropyridylden-N-phenylsulfonylsulfimiden, N,N'-Bis(phenylsulfonyl)-S-pyridiniosulfodiimidaten und N-Dihydropyridyldenbenzolsulfonamiden führen.¹

Nach mechanistischen Vorstellungen ist die Bildung der genannten Verbindungen und entsprechender Verbindungen mit anderen heterocyclischen Resten auch aus Thioxoheterocyclen und Phenylsulfonylaziden denkbar. Dazu bieten sich Phenylsulfonylnitrene, die aus den Aziden unter Stickstoffabspaltung entstehen,² oder Addukte, die aus den Thioxoheterocyclen und den Phenylsulfonylaziden durch 1,3-dipolare Addition gebildet werden,² als Vorstufen für Sulfimide an.

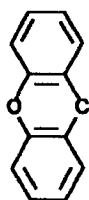
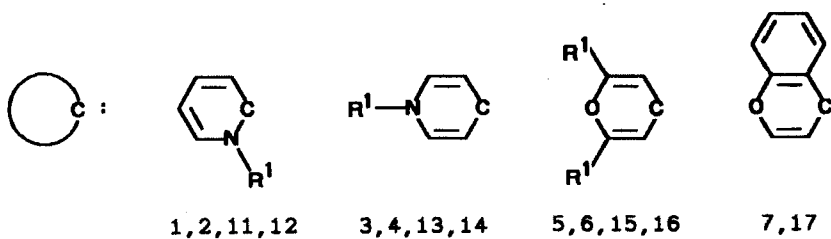
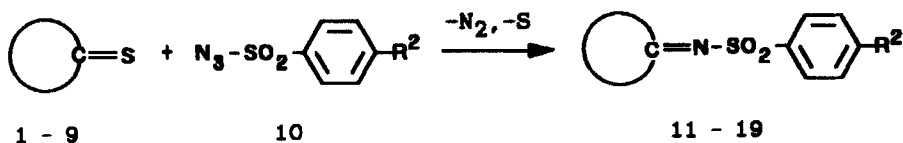
Unter diesem Gesichtspunkt haben wir Reaktionen von Phenylsulfonylaziden 10 mit den Pyridin-2- und Pyridin-4-thionen 1–4, den 4H-Pyran-4-thionen 5–8 und dem Piperazin-2,5-dithion 9 untersucht. Es sind nur die in Tabelle I zusammengestellten und in den Tabellen II und III näher beschriebenen N-Ylidenbenzolsulfonamide 11–20 angefallen.

Dazu lagen Untersuchungen von Schönberg und Urban² vor, die die Darstellung des N-Ylidenbenzolsulfonamids 18a aus 8 und 10a beschrieben haben. 18b haben Schönberg und Singer³ aus Xanthenonhydrazon und Chloramin T, Campbell und Evgenius⁴ aus Xanthenthion und Chloramin T hergestellt.

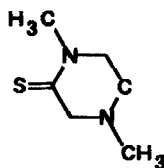
Unsere erfolglosen Versuche zum Nachweis von Sulfimiden und Sulfodiimidaten schließen nicht aus, daß diese Verbindungen Intermediate für die isolierten N-Ylidenbenzolsulfonamide sind. Die Reaktionstemperaturen für die Umsetzungen von 1–9, 19c mit 10 liegen nämlich im Bereich der Zersetzungstemperaturen für die bekannten N-Phenylsulfonyl-S-pyridyldensulfimide.¹

Die bekannten N-Pyridyldenbenzolsulfonamide 11–14 wurden aus den Thionen

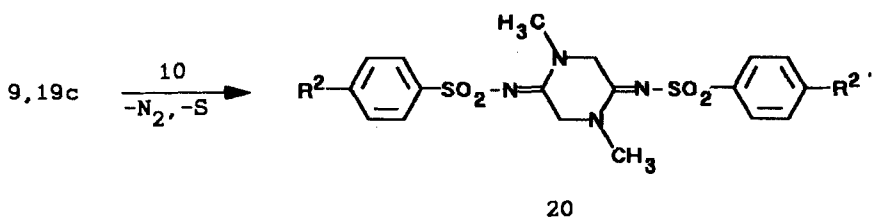
* Korrespondenz bitte an diesen Autor richten.



8, 18



9, 19

20b: $\text{R}^2, \text{R}^{2'} = \text{CH}_3$ 20c: $\text{R}^2, \text{R}^{2'} = \text{OCH}_3$ 20d: $\text{R}^2 = \text{CH}_3, \text{R}^{2'} = \text{OCH}_3$

1–4 mit Natrium-N-chlorbenzolsulfonamiden¹ oder durch Thermolyse von entsprechenden N-Phenylsulfonyl-S-ylidensulfimiden,¹ N,N'-Bis(phenylsulfonyl)sulfodiimidaten,¹ N-Phenylsulfonylsulfoximidaten,¹⁶ N-Phenylsulfonylpyridiniumsulfonamidaten¹⁶ dargestellt. Die unbekannten N-Pyranylidenbenzolsulfonamide **16b**, **16c**, **18c** haben wir auch aus **6** und **8** mit Natrium-N-chlorbenzolsulfonamiden erhalten, was die Konstitutionen beweist.

TABELLE I
N-Ylidenbenzolsulfonamide 11–20

11–20	Darstellung aus
11c	1 ⁵ + 10c ⁶
12a	2 ⁷ + 10a ⁸
12c	2 + 10c
13a	3 ⁹ + 10a
13c	3 + 10c
14a	4 ¹ + 10a
14c	4 + 10c
15b	5 ¹⁰ + 10b ¹¹
15c	5 + 10c
16b	6 ¹² + 10b
16c	6 + 10c
17b	7 ¹³ + 10b
17c	7 + 10c
18b	8 ¹⁴ + 10b
18c	8 + 10c
19b	9 ¹⁵ + 10b
19c	9 + 10c
20b	9 + 10b
20c	9 + 10c
20d	19c + 10b

TABELLE II
R² für 10–19

10–19	R ²
a	H
b	CH ₃
c	OCH ₃

TABELLE III
R¹ für 1–6, 11–16

1–6, 11–16	R ¹
5, 15	H
1, 3, 6, 11, 13, 16	CH ₃
2, 4, 12, 14	C ₆ H ₅

EXPERIMENTELLER TEIL

Allgemeine Angaben siehe Lit.¹ Literaturangaben zur Darstellung der Thione 1–9 und der Phenylsulfonylazide 10 siehe Tabelle I.

N-Pyridylidenbenzolsulfonamide 11–14 aus den Pyridinthionen 1–4 und den Phenylsulfonylaziden 10. Allgemeine Arbeitsvorschrift: Man läßt zur siedenden Mischung aus 5.0 mmol Thion 1, 2, 3 oder 4 und 0.5 g CuCl in 50 ml trockenem Xylol unter Stickstoff 7.5 mmol Phenylsulfonylazid 10a oder 10c in 40 ml trockenem Xylol tropfen, läßt danach noch 2.5 h siedend, filtriert, destilliert vom Filtrat das Lösungsmittel ab und chromatographiert den Rückstand mit Ethylacetat an Kieselgel. Physikalische Daten von 11–14 siehe Lit.¹

N-(1,2-Dihydro-1-methyl-2-pyridyliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (11c). Ausbeute 0.14 g (10%).

N-(1,2-Dihydro-1-phenyl-2-pyridyliden)benzolsulfonamid (**12a**). Ausbeute 0.57 g (37%).

N-(1,2-Dihydro-1-phenyl-2-pyridyliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**12c**). Ausbeute 0.85 g (50%).

N-(1,4-Dihydro-1-methyl-4-pyridyliden)benzolsulfonamid (**13a**). Ausbeute 0.04 g (3%).

N-(1,4-Dihydro-1-methyl-4-pyridyliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**13c**). Ausbeute 0.01 g (1%).

N-(1,4-Dihydro-1-phenyl-4-pyridyliden)benzolsulfonamid (**14a**). Ausbeute 0.05 g (3%).

N-(1,4-Dihydro-1-phenyl-4-pyridyliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**14c**). Ausbeute 0.37 g (22%).

N-Pyranlylidenbenzolsulfonamide **15–18** aus den Pyranthionen **5–8** und Phenylsulfonylaziden **10**. Allgemeine Arbeitsvorschrift: Die Lösung von 5.0 mmol Thion **5**, **6**, **7** oder **8** in 50 ml trockenem Xylol wird mit 0.5 g CuCl unter Stickstoff auf 130°C erhitzt. Man tropft die Lösung von 5.5 mmol Phenylsulfonylazid **10b** oder **10c** in 40 ml trockenem Xylol zu, erhitzt danach 6 h unter Rückfluß, filtriert heiß und wäscht den Rückstand mit 30 ml heißem Xylol. Nach Zugabe von 3–4 g Kieselgel wird das Lösungsmittel abdestilliert und der Rückstand 2mal an Kieselgel chromatographiert: 1. Säule mit Toluol/Ethylacetat 2:1, 2. Säule mit Ethylacetat.

N-(4*H*-Pyran-4-yliden)-*p*-toluolsulfonamid (**15b**). Ausbeute 0.28 g (19%). Schmp. 142°C (aus Ethylacetat). –IR (KBr): 1530 (C=N), 1275, 1140, 1085 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 2.43 (s; 3H, CH₃), 6.34–8.09 (m; 8H, Benzol- und Pyran-H). –C₁₂H₁₁NO₃S (249.3): Ber.: C, 57.82; H, 4.45; N, 5.62; S, 12.86. Gef.: C, 57.81; H, 4.55; N, 5.52; S, 12.92.

N-(4*H*-Pyran-4-yliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**15c**). Ausbeute 0.06 g (4%). Schmp. 98°C (aus Toluol). –IR (KBr): 1515 (C=N), 1260, 1135, 1085 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 3.93 (s; 3H, CH₃), 6.38–8.21 (m; 8H, Benzol- und Pyran-H). –C₁₂H₁₁NO₄S (265.3): Ber.: C, 54.33; H, 4.18; N, 5.28; S, 12.09. Gef.: C, 54.33; H, 4.20; N, 5.24; S, 12.16.

N-(2,6-Dimethyl-4*H*-pyran-4-yliden)-*p*-toluolsulfonamid (**16b**). Ausbeute 0.26 g (19%). Schmp. 142°C (aus Ethylacetat). –IR (KBr): 1500 (C=N), 1290, 1140, 1080 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 2.30 (s; 6H, Pyran-CH₃), 2.39 (s; 3H, Toluol-CH₃), 6.34–8.07 (m; 6H, Benzol- und Pyran-H). –C₁₄H₁₅NO₃S (277.3): Ber.: C, 60.63; H, 5.45; N, 5.05; S, 11.56. Gef.: C, 60.81; H, 5.60; N, 5.08; S, 11.66.

N-(2,6-Dimethyl-4*H*-pyran-4-yliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**16c**). Ausbeute 0.07 g (5%). Schmp. 133°C (aus Toluol). –IR (KBr): 1510 (C=N), 1265, 1140, 1085 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 2.43 (s; 6H, Pyran-CH₃), 3.98 (s; 3H, O–CH₃), 6.38–8.28 (m; 6H, Benzol- und Pyran-H). –C₁₄H₁₅NO₄S (293.3): Ber.: C, 57.33; H, 5.15; N, 4.78; S, 10.93. Gef.: C, 57.31; H, 5.39; N, 4.75; S, 10.93.

N-(4*H*-1-Benzopyran-4-yliden)-*p*-toluolsulfonamid (**17b**). Ausbeute 0.34 g (27%). Schmp. 196°C (aus Ethylacetat). –IR (KBr): 1530 (C=N), 1300, 1145, 1100 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 2.44 (s; 3H, CH₃), 7.22–8.52 (m; 10H, Benzol- und Benzopyran-H). –C₁₆H₁₃NO₃S (299.4): Ber.: C, 64.20; H, 4.38; N, 4.68; S, 10.71. Gef.: C, 64.34; H, 4.35; N, 4.64; S, 10.51.

N-(4*H*-1-Benzopyran-4-yliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**17c**). Ausbeute 0.15 g (11%). Schmp. 155°C (aus Toluol). –IR (KBr): 1525 (C=N), 1260, 1150, 1105 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 3.98 (s; 3H, CH₃), 6.94–8.53 (m; 10H, Benzol- und Benzopyran-H). –C₁₆H₁₃NO₄S (315.4): Ber.: C, 60.94; H, 4.16; N, 4.44; S, 10.17. Gef.: C, 60.91; H, 4.28; N, 4.46; S, 10.28.

N-(9*H*-Xanthen-9-yliden)-*p*-toluolsulfonamid (**18b**). Ausbeute 0.36 g (21%). Schmp. 176°C (aus Ethanol, Lit.³ 167–168°C, Lit.⁴ 170–171°C). –IR (KBr): 1525 (C=N), 1310, 1130, 1085 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 2.43 (s; 3H, CH₃), 7.17–8.97 (m; 12H, Benzol- und Xanthen-H).

N-(9*H*-Xanthen-9-yliden)-*p*-methoxybenzolsulfonamid (**18c**). Ausbeute 0.13 g (7%). Schmp. 168°C (aus Ethanol). –IR (KBr): 1525 (C=N), 1260, 1140, 1085 cm⁻¹ (SO₂). –¹H-NMR (CDCl₃): δ = 4.07 (s; 3H, CH₃), 7.04–10.07 (m; 12H, Benzol- und Xanthen-H). –C₂₀H₁₅NO₄S (365.4): Ber.: C, 65.74; H, 4.14; N, 3.83; S, 8.78. Gef.: C, 65.66; H, 4.47; N, 3.90; S, 8.82.

N-Pyranlylidenbenzolsulfonamide **16** und **18** aus den Pyranthionen **6** und **8** und Natrium-*N*-chlorbenzolsulfonamiden. Allgemeine Arbeitsvorschrift: Zur gerührten Suspension von 20 mmol Chloramin T oder Chloramin M¹⁷ in 100 ml trockenem Ethanol wird tropfenweise die Lösung von 5.0 mmol Thion

6 oder **8** in 100 ml trockenem Chloroform gegeben, danach wird weitergerührt; Reaktionstemperatur und -zeit stehen bei den Verbindungen. Man saugt ab, destilliert das Lösungsmittel ab, kristallisiert den Rückstand um oder chromatographiert an Kieselgel mit Toluol/Ethylacetat 2:1 und kristallisiert dann um.

16b aus **6** und Chloramin T, -20°C , 1 h, Chromatographie. Ausbeute 0.02 g (1%). Schmp. 142°C (aus Ethylacetat).

16c aus **6** und Choramin M, -5°C , 1 h, Chromatographie. Ausbeute 0.03 g (2%). Schmp. 133°C (aus Toluol).

18b aus **8** und Choramin T, -20°C , 0.5 h. Ausbeute 1.23 g (70%). Schmp. 176°C (aus Ethanol).

18c aus **8** und Choramin M, -5°C , 0.5 h. Ausbeute 0.64 g (35%). Schmp. 168°C (aus Ethanol).

Piperazinyliidenbenzolsulfonamide 19 und Piperazindiylidendibenzolsulfonamide 20b, 20c aus 1,4-Dimethylpiperazin-2,5-dithion (9) und Phenylsulfonylaziden 10. Zur 130°C warmen, gerührten Suspension von 0.87 g (5.0 mmol) Dithion **9** in 50 ml trockenem Xylol läßt man die Lösung von 20 mmol Phenylsulfonylazid **10b** oder **10c** in 50 ml trockenem Xylol zutropfen. Anschließend erhitzt man weiter unter Rückfluß, die Reaktionszeiten stehen bei den Verbindungen. Man dekantiert heiß, extrahiert das Ungelöste 3mal mit je 30 ml heißem Ethylacetat/Ethanol 1:1, destilliert von den vereinigten Lösungen das Lösungsmittel ab und chromatographiert den Rückstand an Kieselgel. Es werden eluiert mit Toluol: Schwefel, Phenylsulfonylazid **10**, danach mit Toluol/Ethylacetat (3:1): Thion **9**, danach mit Ethylacetat: N-Yliidenbenzolsulfonamid **19**, danach mit Ethylacetat/Ethanol (4:1): N,N'-Diylidendibenzolsulfonamid **20b** oder **20c**.

N-(1,4-Dimethyl-5-thioxopiperazin-2-yliden)-p-toluolsulfonamid (19b), 7 h. Ausbeute 0.54 g (35%). Zers.-P. 191°C (aus Ethylacetat).-IR (KBr): 1270, 1140, 1085 cm^{-1} (SO_2).- $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ = 2.40 (s; 3H, C-CH₃), 3.06 (s; 3H, N-CH₃), 3.47 (s; 3H, N-CH₃), 4.49 (s; 2H, CH₂), 4.93 (s; 2H, CH₂), 7.28 (d, J = 8Hz; 2H, C-3-, C-5-Benzol-H), 7.82 (d, J = 8Hz; 2H, C-2-, C-6-Benzol-H).-C₁₃H₁₇N₃O₂S₂ (311.4): Ber.: C, 50.14; H, 5.50; N, 13.49; S, 20.59. Gef.: C, 50.27; H, 5.46; N, 13.20; S, 20.36.

N-(1,4-Dimethyl-5-thioxopiperazin-2-yliden)-p-methoxybenzolsulfonamid (19c), 12 h. Ausbeute 0.41 g (25%). Zers.-P. $157\text{--}158^{\circ}\text{C}$ (aus Ethylacetat).-IR (KBr): 1250, 1135, 1085 cm^{-1} (SO_2).- $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ = 3.07 (s; 3H, N-CH₃), 3.50 (s; 3H, N-CH₃), 3.88 (s; 3H, O-CH₃), 4.53 (s; 2H, CH₂), 4.97 (s; 2H, CH₂), 7.01 (d, J = 9Hz; 2H, C-3-, C-5-Benzol-H), 7.94 (d, J = 9Hz; 2H, C-2-, C-6-Benzol-H).-C₁₃H₁₇N₃O₃S₂ (327.4): Ber.: C, 47.69; H, 5.23; N, 12.83; S, 19.58. Gef.: C, 47.76; H, 5.28; N, 12.90; S, 19.55.

p,p'-Dimethyl[N,N'-(1,4-dimethylpiperazin-2,5-diyliden)dibenzolsulfonamid] (20b), 7 h. Ausbeute 0.29 g (13%). Zers.-P. $267\text{--}271^{\circ}\text{C}$ (aus Ethylacetat/Ethanol 1:1), ab ca. 250°C Braunfärbung.-IR (KBr): 1268, 1137, 1082 cm^{-1} (SO_2).- $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ = 2.43 (s; 6H, C-CH₃), 3.12 (s; 6H, N-CH₃), 4.86 (s; 4H, CH₂), 7.31 (d, J = 8Hz; 4H, C-3-, C-3'-, C-5-, C-5'-Benzol-H), 7.84 (d, J = 8Hz; 4H, C-2-, C-2'-, C-6-, C-6'-Benzol-H).-C₂₀H₂₄N₄O₄S₂ (448.6): Ber.: C, 53.55; H, 5.39; N, 12.49; S, 14.30. Gef.: C, 53.62; H, 5.63; N, 12.31; S, 14.30.

p,p'-Dimethoxy[N,N'-(1,4-dimethylpiperazin-2,5-diyliden)dibenzolsulfonamid] (20c), 12 h. Ausbeute 0.36 g (15%). Zers.-P. $247\text{--}248^{\circ}\text{C}$ (aus Ethylacetat/Ethanol 1:1), ab ca. 235°C Braunfärbung.-IR (KBr): 1260, 1140, 1080 cm^{-1} (SO_2).- $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ = 3.12 (s; 6H, N-CH₃), 3.89 (s; 6H, O-CH₃), 4.87 (s; 4H, CH₂), 6.99 (d, J = 9Hz; 4H, C-3-, C-3'-, C-5-, C-5'-Benzol-H), 7.90 (d, J = 9Hz; 4H, C-2-, C-2'-, C-6-, C-6'-Benzol-H).-C₂₀H₂₄N₄O₆S₂ (480.6): Ber.: C, 49.99; H, 5.03; N, 11.66; S, 13.34. Gef.: C, 50.33; H, 5.13; N, 11.73; S, 13.42.

p-Methoxy-p-methyl[N,N'-(1,4-dimethylpiperazin-2,5-diyliden)dibenzolsulfonamid] (20d). Man läßt zur siedenden Suspension von 1.15 g (3.5 mmol) **19c** in 50 ml trockenem Xylol die Lösung von 3.45 g (10.5 mmol) **10b** in 50 ml trockenem Xylol tropfen und dann noch 12 h kochen. Es wird heiß dekantiert und der Rückstand 3mal mit je 30 ml heißem Ethylacetat/Ethanol 1:1 extrahiert. Von den vereinigten Lösungen wird das Lösungsmittel abdestilliert. Der Rückstand wird mit Ethylacetat/Ethanol 4:1 an Kieselgel chromatographiert. Ausbeute 0.63 g (27%). Zers.-P. $265\text{--}267^{\circ}\text{C}$ (aus Ethylacetat/Ethanol 1:1), ab ca. 250°C Braunfärbung.-IR (KBr): 1270, 1140, 1090 cm^{-1} (SO_2).- $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ = 2.43 (s; 3H, C-CH₃), 3.12 (s; 6H, N-CH₃), 3.88 (s; 3H, O-CH₃), 4.86 (s; 4H, CH₂), 6.98 (d, J = 9Hz; 2H, C-3-, C-5-Methoxybenzol-H), 7.31 (d, J = 8Hz; 2H, C-3-, C-5-Methylbenzol-H), 7.83 (d, J = 8Hz; 2H, C-2-, C-6-Methylbenzol-H), 7.88 (d, J = 9Hz; 2H, C-2-, C-6-Methoxybenzol-H).-C₂₀H₂₄N₄O₅S₂ (464.6): Ber.: C, 51.71; H, 5.21; N, 12.06; S, 13.80. Gef.: C, 51.70; H, 5.17; N, 11.99; S, 13.40.

DANK

Wir danken den Fonds der Chemischen Industrie für die finanzielle Unterstützung.

LITERATUR

1. F. Boberg, B. Bruchmann, G. Nink und A. Garming, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, **44**, 267 (1989).
2. A. Schönberg und W. Urban, *J. Chem. Soc.*, **1935**, 530.
3. A. Schönberg und E. Singer, *Chem. Ber.*, **101**, 3445 (1968).
4. M. M. Campbell und D. M. Evgenios, *J. Chem. Soc.*, Perkin Trans. 1, **1973**, 2866.
5. H. Pauls und F. Kröhnke, *Chem. Ber.*, **109**, 3653 (1976).
6. L. Horner und A. Christmann, *Chem. Ber.*, **96**, 388 (1963).
7. J. Becher und E. G. Frandsen, *Acta Chem. Scand.*, Ser. B **30**, 863 (1976).
8. O. C. Dermer und M. T. Edmison, *J. Am. Chem. Soc.*, **77**, 70 (1955).
9. C. H. Boehringer Sohn, *Belg.*, 621, 644, Feb. 22, 1963; *Ger. Appl.*, Aug. 25, 1961 [C. A. **60**, 1712h (1964)].
10. J. N. MacDonald, S. A. Mackay und J. K. Tyler, *J. Chem. Soc.*, Faraday Trans. 2, **77**, 79 (1981).
11. R. Huisgen, L. Möbius, G. Müller, H. Stangl, G. Szeimies, J. M. Vernon, *Chem. Ber.*, **98**, 3992 (1965).
12. F. Arndt, *Rev. Fac. Sci. Univ. Istanbul*, **A13**, 57 (1948).
13. A. I. Kiprianov und A. A. Tolmachev, *J. Gen. Chem. USSR (Engl. Transl.)*, **29**, 2828 (1959).
14. R. Meyer und J. Szanecki, *Ber. Dtsch. Chem. Ges.*, **33**, 2577 (1900).
15. S. Ishikawa, *Scient. Papers Inst. Phys. Chem. Res.*, **11**, 119 (1929) Tokyo [Chem. Zentralbl. **1929**, 1920].
16. F. Boberg, G. Nink, B. Bruchmann und A. Garming, *Phosphorus, Sulfur, and Silicon*, im Druck.
17. I. Kapovits, F. Ruff und Á. Kucsman, *Tetrahedron* **28**, 4413 (1972).