

Thermolyse von Oxazolin-5-onen, XI¹⁾***N*-Acylimine und Enamide durch Gasphasenpyrolyse von 4-Alkyl-2-oxazolin-5-onen**

Stefan Jendrzewski und Wolfgang Steglich*

Institut für Organische Chemie und Biochemie der Universität Bonn,
Gerhard-Domagk-Str. 1, D-5300 Bonn

Eingegangen am 14. August 1980

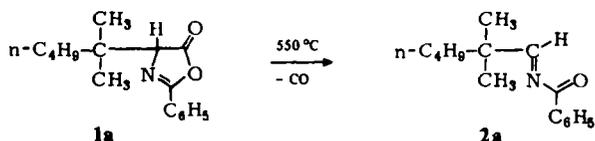
4-Alkyl-2-oxazolin-5-one **1** liefern bei der Gasphasenpyrolyse unter CO-Verlust *N*-Acylimine **2**, die sich beim Vorhandensein α -ständiger H-Atome in die stabileren Enamide **3** umlagern. Ist diese Umlagerung durch ein quartäres C-Atom verhindert, so lassen sich die *N*-Acylimine (z. B. **2a**) isolieren. Im Falle des 4,4-dialkylsubstituierten Oxazolinons **1o** entstehen Gemische von *N*-Acylimin **2o** und Enamid **3o**, wobei der Anteil des letzteren bei Erhöhung der Pyrolysetemperatur zunimmt.

Thermolysis of Oxazolin-5-ones, XI¹⁾***N*-Acylimines and Enamides via Gas Phase Pyrolysis of 4-Alkyl-2-oxazolin-5-ones**

On gas phase thermolysis 4-alkyl-2-oxazolin-5-ones **1** undergo CO elimination to yield *N*-acylimines **2**, which rearrange into more stable enamides **3** if α -hydrogens are present. *N*-Acylimines (e. g. **2a**) may be isolated in cases where the rearrangement is prevented by a quarternary C-atom. The 4,4-dialkylsubstituted oxazolinone **1o** yields mixtures of *N*-acylimine **2o** and enamide **3o**, the amount of the latter increasing at higher pyrolysis temperatures.

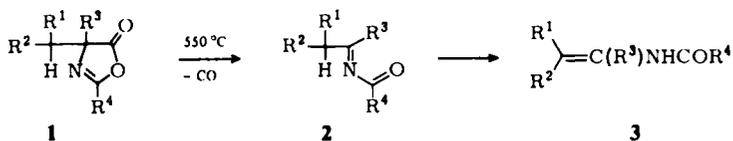
Beim Erhitzen von trisubstituierten 2- und 3-Oxazolin-5-onen in Lösung oder Schmelze wurde bisher überwiegend CO₂-Abspaltung zu Nitril-yliden²⁾, gelegentlich aber auch CO-Eliminierung zu *N*-Acyliminen und deren Folgeprodukten beobachtet³⁻⁵⁾. Wentrup und Mitarbeiter⁶⁾ fanden kürzlich, daß die Blitzthermolyse von 4-Phenyl-2-oxazolin-5-onen unter CO-Eliminierung glatt zu *N*-Acyliminen aromatischer Aldehyde und Ketone führt. Dies veranlaßt uns, über unsere Untersuchungen zur Gasphasenpyrolyse von 4-Alkyl-2-oxazolin-5-onen zu berichten.

Leitet man Dämpfe von 4-(1,1-Dimethylpentyl)-2-phenyl-2-oxazolin-5-on (**1a**) bei 0.2 Torr durch ein auf 550 °C erhitztes Quarzrohr, so scheidet sich in der Vorlage in 92proz. Ausbeute analysenreines *N*-Acylimin **2a** ab:



Die Konstitution dieser Verbindung wird durch eine breite IR-Bande (CHCl₃) im Carbonylbereich bei 1705–1650 cm⁻¹ und das Singulett des Imino-Protons im ¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃) bei $\delta = 7.94$ bewiesen⁷⁾.

Enthält der 4-Substituent des Oxazolinons in α -Stellung Wasserstoffatome, so lagert sich das primär entstehende *N*-Acylimin **2** in das stabilere Enamid **3** um:



	R ¹	R ²	R ³	R ⁴		R ¹	R ²	R ³	R ⁴		R ¹	R ²	R ³	R ⁴
b	H	H	H	CH ₃	g	CH ₃	CH ₃	H	C ₆ H ₅	l	C ₆ H ₅	H	H	C ₆ H ₅
c	H	H	H	C ₆ H ₅	h	(CH ₃) ₂ CH	H	H	CH ₃	m	ECH ₂	H	H	CH ₃
d	CH ₃	H	H	CH ₃	i	(CH ₃) ₂ CH	H	H	C ₆ H ₅	n	ECH ₂	H	H	C ₆ H ₅
e	CH ₃	H	H	C ₆ H ₅	j	C ₂ H ₅	CH ₃	H	C ₆ H ₅	o	H	H	CH ₃	C ₆ H ₅
f	CH ₃	CH ₃	H	CH ₃	k	C ₆ H ₅	H	H	CH ₃	p	CH ₃	CH ₃	CH ₃ CO	C ₆ H ₅
										q	E	H	H	C ₆ H ₅

E = CH₃OCO-

Im Falle des 4,4-Dimethyl-2-phenyl-2-oxazolin-5-ons (**1o**) ist das entstehende *N*-Isopropylidenbenzamid (**2o**) durch die beiden Methylgruppen so stabilisiert, daß es im Pyrolysat neben dem Enamid **3o** ¹H-spektroskopisch nachweisbar ist. Wie Tab. 1 lehrt, nimmt der Anteil von **2o** mit steigender Pyrolysetemperatur ab.

Tab. 1. Bildung von *N*-Acylketimin **2o** und Enamid **3o** bei der Gasphasenpyrolyse von **1o** in Abhängigkeit von der Temperatur

Pyrolysetemperatur [°C]	1o [%]	2o [%]	3o [%]
425	47	45	8
455	9	65	26
480	—	59	41
550	—	49	51
650	—	24	76

Die Gasphasenpyrolyse eignet sich zur Synthese von Enamiden **3**^{8,9)} im Gramm-Maßstab, vorausgesetzt, das Oxazolinon ist im Vakuum unzersetzt verdampfbar (Tab. 2). Die bei **3**, R¹ ≠ R², auftretenden Gemische der *E/Z*-Isomeren lassen sich gaschromatographisch exakt analysieren und mit Ausnahme von **3j** durch Chromatographie an Kieselgel auftrennen¹⁰⁾. Die Konfigurationszuordnung folgt eindeutig aus den ¹H-NMR-Spektren¹¹⁾.

Die bei der Gasphasenpyrolyse zu beobachtenden *E/Z*-Verhältnisse spiegeln die thermodynamische Stabilität der Stereoisomeren wider. So werden annähernd gleiche *E/Z*-Verhältnisse erzielt, wenn man die reinen Stereoisomeren **3** den Thermolysebedingungen unterwirft (vgl. exp. Teil).

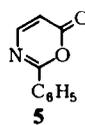
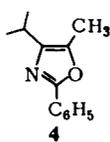
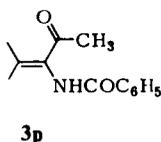
Bei 4-Acyloxazolinonen wie **1p** läßt sich die bekannte Cycloeliminierung von CO₂¹²⁾ nicht unterdrücken, so daß bei der Pyrolyse ein 1 : 1-Gemisch von α -Acylamino-enon **3p** und Oxazol **4** erhalten wird. (5-Oxo-2-phenyl-2-oxazolin-4-yl)essigsäure-methylester (**1q**) liefert bei der Pyrolyse in guter Ausbeute 2-Phenyl-1,3-oxazin-6-on (**5**), was auf ei-

Tab. 2. Durch Gasphasenpyrolyse dargestellte Enamide 3

Name der Verbindung	Verdampfungs-temp. von 1 [°C]	Pyrolyse-temp. [°C]	Ausb. [%]	E/Z
3b N-Vinylacetamid	40	550	32	—
c N-Vinylbenzamid	100	550	95	—
d N-(1-Propenyl)acetamid	30	520	74 ^{a)}	52/48
e N-(1-Propenyl)benzamid	90	550	99	47/53
f N-(2-Methyl-1-propenyl)-acetamid	100	500	100	—
g N-(2-Methyl-1-propenyl)-benzamid	100	500	95	—
h N-(3-Methyl-1-butenyl)-acetamid	80	550	90	66/34
i N-(3-Methyl-1-butenyl)-benzamid	130	550	75	63/37
j N-(2-Methyl-1-butenyl)-benzamid	130	550	95	60/40
k N-Styrylacetamid	100	550	83	59/41
l N-Styrylbenzamid	140	550	17 ^{b)}	^{c)}
m 4-(Acetylamino)-3-buten-säure-methylester	130	550	88	50/50
n 4-(Benzoylamino)-3-buten-säure-methylester	240	550	92	43/57
o N-Isopropenylbenzamid	110	650	76 ^{d)}	—
p 3-(Benzoylamino)-2-methyl-2-penten-4-on	150	480	48 ^{e)}	—

^{a)} Ausbeute bezogen auf verdampftes Oxazolinon, sonst 48%. — ^{b)} Oxazolinon zersetzt sich beim Verdampfen. — ^{c)} Nur E-Form isoliert. — ^{d)} ¹H-NMR-spektroskopisch bestimmt, neben 24% **2o** (vgl. Tab. 1). — ^{e)} Bei der Pyrolyse entstehen daneben 48% Oxazol **4**.

ne Methanolabspaltung aus dem intermediär gebildeten Enamid **3q** zurückzuführen ist^{5,13}). Wird die Pyrolyse bei 440°C durchgeführt, so sind im ¹H-NMR-Spektrum des Pyrolysats neben den Olefinsignalen von **5** die der E/Z-Isomeren von **3q** zu erkennen.



Wir danken dem *Fonds der Chemischen Industrie* für die Unterstützung dieser Arbeit.

Experimenteller Teil

IR-Spektren: Pye Unicam SP 100. — ¹H-NMR-Spektren: Varian EM 360 und EM 390 (TMS als innerer Standard, δ -Werte). — Kugelrohrdestillation: Büchi GKR 50 (bei Destillationen wird die Temperatur des Luftbades angegeben). — Gaschromatograph: Perkin Elmer F 22 (Säule: Chromosorb G, AW-DMCS 80–100, Nitrilsilikonöl XE 60; Trenntemp. 140–220°C). — Die zur Pyrolyse benötigten Oxazolinone **1** wurden nach der üblichen Methode dargestellt¹⁴).

Allgemeine Vorschrift zur Darstellung der Enamide 3 durch Gasphasenpyrolyse von 1: Die Pyrolyseapparatur besteht aus einem regelbaren Rohrofen von 30 cm Länge, durch den ein

Quarzrohr führt (Länge 43 cm, Innenquerschnitt 1.1 cm, am Ofenausgang um 90°C gewinkelt). Die Innentemperatur des Quarzrohrs wird mit einem Thermoelement bestimmt ($\pm 5^\circ\text{C}$). Am Eingang des Quarzrohrs befindet sich der Eduktkolben, der mit einem Kugelrohrföfen, Büchi GKR 50, beheizt wird. Man fängt das Produkt in einem Vorlagekolben mit Verbindung zur Vakuumpumpe auf. 2 g Oxazolinon **1** werden bei den angegebenen Temperaturen (Tab. 2) und 0.1–0.2 Torr innerhalb von 1–2 h verdampft und bei 500–600°C pyrolysiert. Wegen der leichten Zersetzlichkeit von **1n** empfiehlt es sich, das Oxazolinon in Portionen von 0.5 g bei 240°C schnell zu verdampfen. Die Produkte fallen als leicht gefärbte Öle an, die $^1\text{H-NMR}$ -spektroskopisch rein sind und zum Teil kristallisieren. Die *E/Z*-Gemische werden mit Ausnahme von **3d** und **3f** durch Chromatographie an Kieselgel (Eluent Petrolether 40–60°C/Chloroform (1:1) mit unterschiedlichem Anteil Methanol) aufgetrennt.

N-(2,2-Dimethylhexyliden)benzamid (**2a**): 0.46 g 4-(1,1-Dimethylpentyl)-2-phenyl-2-oxazolin-5-on (**1a**)¹⁵ liefern bei der Pyrolyse (Verdampfungstemp. 150°C, Pyrolysetemp. 550°C) 0.38 g (93%) analysenreines **2a** als farblose Flüssigkeit, die unter N_2 gehandhabt werden muß. – IR

Tab. 3. Physikalische Daten und Verbrennungsanalysen der Enamide **3**

	Sdp. ^{a)} °C/Torr	Schmp. °C	Summenformel (Molmasse)	Verbrennungsanalyse			
				C	H	N	
3b		48–49 (roh); Lit. 53 ¹⁰ , 47–48 ¹⁶					
c		101–102 (roh); Lit. 104 ¹⁰ , 102–103 ¹⁶					
d		Öl (<i>E/Z</i> -Gemisch); Lit. Ö1 ¹⁰					
e		<i>E</i> : 107; Lit. 111 ¹⁰ <i>Z</i> : 78; Lit. 77 ¹⁰	$\text{C}_{10}\text{H}_{11}\text{NO}$ (161.2)	Ber.	66.10	10.30	11.01
				(<i>E</i>) Gef.	65.92	10.51	11.26
				(<i>Z</i>) Gef.	66.47	10.45	11.06
f	80/0.1	49; Lit. 48–50 ¹⁷					
g		69 (Petrolether/ CHCl_3); Lit. 71 ¹⁰					
h		<i>E</i> : 55 <i>Z</i> : 79–80 (nach Subl. ab 65°C)		Ber.	76.16	7.99	7.40
				(<i>E</i>) Gef.	76.16	8.05	7.33
i		<i>E</i> : 127 (Nadeln, Petrolether/ CHCl_3) <i>Z</i> : 90 (Blättchen, Petrolether 60–90°C)	$\text{C}_{12}\text{H}_{13}\text{NO}$ (189.3)	(<i>E</i>) Gef.	76.16	8.05	7.33
				(<i>Z</i>) Gef.	75.74	8.00	7.46
j	150/0.2	Öl (<i>E/Z</i> -Gemisch)	$\text{C}_{12}\text{H}_{13}\text{NO}$ (189.3)	Ber.	76.16	7.99	7.40
k	130/0.2	<i>E</i> : 113 (Ether); Lit. 114–115 ¹⁸ <i>Z</i> : Öl	$\text{C}_{10}\text{H}_{11}\text{NO}$ (161.2)	Gef.	75.72	7.93	7.23
l		<i>E</i> : 174 (Methanol); Lit. 180 ¹⁰	$\text{C}_{15}\text{H}_{13}\text{NO}$ (223.3)	Ber.	53.49	7.05	8.91
				(<i>E</i>) Gef.	53.27	7.15	9.08
m	<i>E</i> : 180/0.15 <i>Z</i> : 160/0.15	47–50 Öl	$\text{C}_7\text{H}_{11}\text{NO}_3$ (157.2)	(<i>Z</i>) Gef.	53.93	7.31	8.79
n		<i>E</i> : 105 (Petrolether 60–90°C) <i>Z</i> : 170/0.3 Öl	$\text{C}_{12}\text{H}_{13}\text{NO}_3$ (219.2)	Ber.	65.74	5.98	6.39
				(<i>E</i>) Gef.	65.62	6.00	6.32
				(<i>Z</i>) Gef.	65.90	6.08	6.13

^{a)} Luftbadtemperatur der Kugelrohrdestillation.

Tab. 4. $^1\text{H-NMR}$ -Spektren ausgewählter Enamide **3** (in CDCl_3)

(<i>E</i>)- 3i	0.97, d, $J = 6.5$ Hz [6]; 2.20, m [1]; 5.20, dd, $J = 14$ und 7 Hz [1]; 6.72, verbr. dd, $J = 14$ und 10 Hz [1]; 7.03–7.32, m [3]; 7.44–7.71, m [2]; 8.16, br. d, $J = 10$ Hz [1]
(<i>Z</i>)- 3i	1.03, d, $J = 6.5$ Hz [6]; 2.51, m [1]; 4.70, dd, $J = 9$ und 9 Hz [1]; 6.75, dd, $J = 11$ und 9 Hz [1]; 7.23–7.54, m [3]; 7.58–7.89, m [3]
(<i>E</i>)- 3m	2.05, s [3]; 3.08, verbr. d, $J = 7.5$ Hz [2]; 3.67, s [3]; 5.27 dt, $J = 15$ und 7.5 Hz [1]; 6.84, verbr. dd, $J = 15$ und 12 Hz [1]; 6.98, br. s [1]
(<i>Z</i>)- 3m	2.04, s [3]; 3.05, d, $J = 7.5$ Hz [2]; 3.68, s [3]; 4.79, dt, $J = 8.5$ und 7.5 Hz [1]; 6.82, verbr. dd, $J = 10.5$ und 8.5 Hz [1]; 8.20, br. s [1]
(<i>E</i>)- 3n	3.07, verbr. d, $J = 7.5$ Hz [2]; 3.65, s [3]; 5.45, dt, $J = 15$ und 7.5 Hz [1]; 7.06, verbr. dd, $J = 15$ und 10.5 Hz [1]; 7.31–7.58, m [3]; 7.73–7.94, m [2]; 8.32, br. d, $J = 10.5$ Hz [1]
(<i>Z</i>)- 3n	3.12, verbr. d, $J = 7.5$ Hz [2]; 3.70, s [3]; 4.93, dt, $J = 9$ und 7.5 Hz [1]; 7.08, verbr. dd, $J = 10.5$ und 9 Hz [1]; 7.35–7.59, m [3]; 7.81–8.00, m [2]; 9.22, br. s [1]

(CHCl_3): 3085–2900, 1705–1650, 1603, 1584, 1491–1451, 1262, 1065 und 915 cm^{-1} . – $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ 0.55–2.0, m [9]; 1.15, s [6]; 7.2–7.6, m [3]; 7.88–8.15, m [2]; 7.94, s [1].

$\text{C}_{15}\text{H}_{21}\text{NO}$ (231.3) Ber. C 77.89 H 9.15 N 6.06 Gef. C 78.05 H 9.21 N 6.14

N-(Isopropyliden)benzamid (**2o**) und *N*-(Isopropenyl)benzamid (**3o**): 0.20 g 4,4-Dimethyl-2-phenyl-2-oxazolin-5-on (**1o**) werden bei steigenden Temperaturen von 425–650°C pyrolysiert. Die erhaltenen farblosen Flüssigkeiten werden sofort $^1\text{H-NMR}$ -spektroskopisch untersucht (Feuchtigkeitsausschluß!). – $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): **2o**: δ 2.05, s [6]; 7.3–7.55, m [3]; 7.8–8.1, m [2]; **3o**: 2.01, s [3]; 4.52, verbr. s [1]; 5.55, s [1]; 7.16–7.43, m [3]; 7.62–7.88, m [2]. – IR (CHCl_3 , 1:1-Gemisch von **2o** und **3o**): 3480, 3150, 1705–1645, 1602, 1583, 1545–1490, 1275 und 1020 cm^{-1} .

$\text{C}_{10}\text{H}_{11}\text{NO}$ (161.2) Ber. C 74.50 H 6.88 N 8.69 Gef. C 74.60 H 6.73 N 8.64

3-(Benzoylamino)-2-methyl-2-penten-4-on (**3p**) und 4-Isopropyl-5-methyl-2-phenyloxazol (**4**): 1.0 g 4-Acetyl-4-isopropyl-2-phenyl-2-oxazolin-5-on (**1p**)¹² wird bei 480°C/0.1 Torr (Verdampfungstemperatur 150°C) pyrolysiert. Als Rohprodukt fällt ein gelbliches Öl an, das mit kaltem Ether digeriert wird. Man filtriert den Feststoff ab und kristallisiert aus Ether um. Ausb. 0.30 g (34%), farblose Nadeln vom Schmp. 163°C. – IR (KBr): 3335, 2935–2960, 1697, 1630–1655, 1580, 1530, 1309, 712, 688 und 650 cm^{-1} . – $^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3): δ 1.85, s [3]; 2.08, s [3]; 2.22, s [3]; 7.29–7.58, m [3]; 7.7–8.05, m [3].

$\text{C}_{13}\text{H}_{15}\text{NO}_2$ (217.3) Ber. C 71.85 H 6.96 N 6.45 Gef. C 71.53 H 7.12 N 6.41

Das Filtrat enthält hauptsächlich das Oxazol **4**, das durch Kugelrohrdestillation gereinigt werden kann. Ausb. 0.40 g (48%), stimmt in seinen Eigenschaften mit der authentischen Verbindung überein¹².

2-Phenyl-1,3-oxazin-6-on (**5**): 0.375 g (5-Oxo-2-phenyl-2-oxazolin-4-yl)essigsäure-methylester (**1q**) werden bei 250°C/0.1 Torr verdampft und innerhalb von 6 min durch den auf 600°C erhitzten Ofen geschickt. Man erhält ein rötliches Harz, das an Kieselgel chromatographiert wird (Eluent: Petrolether/Chloroform/Methanol = 10/10/0.2). Ausb. 0.234 g (84%), farblose Kristal-

le vom Schmp. 86–87°C. – IR (KBr): 1785–1710 (breit), 1610 (breit), 1240, 688 und 559 cm⁻¹. – ¹H-NMR (CDCl₃): δ 6.19, d, *J* = 7 Hz [1]; 7.32–7.63, m [3]; 7.78, d, *J* = 7 Hz [1]; 8.05–8.33, m [2].

C₁₀H₇NO₂ (173.2) Ber. C 69.34 H 4.07 N 8.09 Gef. C 69.29 H 4.14 N 7.94

Das bei 440°C erhaltene Pyrolysat zeigt im ¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃) Olefinsignale von **3q** bei δ 5.20, d, *J* = 8.5 Hz (*Z*-Form) bzw. 5.62, *J* = 14.0 Hz (*E*-Form).

Versuche zur thermischen Äquilibrierung der *E/Z*-Isomeren von **3**: Ca. 0.1 g des reinen *E*- oder *Z*-Isomeren werden unter den gleichen Bedingungen durch den Ofen geschickt, wie bei der Pyrolyse der Oxazolinone **1**. Anschließend wird das *E/Z*-Verhältnis gaschromatographisch bestimmt.

	<i>E/Z</i> -Verhältnis [%] bei Pyrolyse von		
	1	<i>E</i> - 3	<i>Z</i> - 3
3e	47/53	45/55	46/54
3h	66/34	66/34	66/34
3i	63/37	62/38	62/38
3k	59/41	56/44	58/42
3m	50/50	52/48	51/49
3n	43/57	37/63	37/63

- 1) X. Mitteil.: G. Schulz und W. Steglich, Chem. Ber. **113**, 770 (1980).
- 2) Vgl. z. B. W. Steglich, P. Gruber, H.-U. Heininger und F. Kneidl, Chem. Ber. **104**, 3816 (1971); S. Götz, Dissertation, TU Berlin 1975.
- 3) P. Gruber, L. Müller und W. Steglich, Chem. Ber. **106**, 2863 (1973).
- 4) M. R. Johnson und L. R. Sousa, J. Org. Chem. **42**, 2439 (1977).
- 5) S. Götz und W. Steglich, Chem. Ber. **109**, 2327 (1976).
- 6) H.-M. Bersiermann, R. Harder, H.-W. Winter und C. Wentrup, Angew. Chem. **92**, 555 (1980); Angew. Chem., Int. Ed. Engl. **19**, 564 (1980); vgl. auch C. Wentrup und W. Reichen, Helv. Chim. Acta **59**, 2615 (1976).
- 7) *N*-Benzoyl-trifluoroacetaldimin zeigt IR-Banden bei 1712 und 1686 cm⁻¹ (CCl₄) und ein Iminsignal im NMR bei δ = 7.97 (CCl₄): F. Weygand, W. Steglich, I. Lengyel, F. Fraunberger, A. Maierhofer und W. Oeltmeier, Chem. Ber. **99**, 1944 (1966).
- 8) Übersicht über Methoden zur Enamidsynthese: G. R. Lenz, Synthesis **1978**, 489.
- 9) Neueste Methode: J. K. Stille und Y. Becker, J. Org. Chem. **45**, 2139 (1980).
- 10) D. Ben-Ishai und R. Giger, Tetrahedron Lett. **1965**, 4523.
- 11) Die in Lit.⁹⁾ auch bei acyclischen Enamiden beobachtete gehinderte Rotation um die Amidbindung können wir nicht bestätigen. Bei der Aufspaltung der α-Olefinsignale im ¹H-NMR-Spektrum bei Raumtemperatur handelt es sich um eine Kopplung mit dem vicinalen NH-Proton, bestätigt durch Entkopplungsexperimente.
- 12) G. Höfle und W. Steglich, Chem. Ber. **104**, 1408 (1971).
- 13) W. Steglich, E. Buschmann und O. Hollitzer, Angew. Chem. **86**, 596 (1974); Angew. Chem., Int. Ed. Engl. **13**, 533 (1974).
- 14) Vgl. G. Schulz, P. Gruber und W. Steglich, Chem. Ber. **112**, 3221 (1979), und darin zitierte Literatur.
- 15) G. Schulz, Dissertation, Universität Bonn 1980. **1a** wurde analog den in Lit.¹⁴⁾ aufgeführten Beispielen dargestellt.
- 16) E. Husemann (Erf. G. Welzel und G. Greber), D. B. P. 1 088 479 (5. März 1959) [Chem. Abstr. **55**, 15353 a (1961)].
- 17) P. Kurtz und H. Disselnkötter, Liebigs Ann. Chem. **764**, 69 (1972).
- 18) W. Zielinski und S. Goszczynski, Roczn. Chem. **12**, 2061 (1969) [Chem. Abstr. **72**, 100237 n (1970)].

[272/80]