

Heterocyclische  $\beta$ -Enaminoester, 49<sup>1,2)</sup>

# Furo[3,2-*e*]chinazoline, Furo[2,3-*f*]phthalazin und [4 + 2]-Addukte des 4-Phenyl-1,2,4-triazolin-3,5-dions an Benzofurane, Indole und Benzo[*b*]thiophene

Heinrich Wamhoff\*<sup>a</sup>, Franz-Josef Faßbender<sup>3)</sup><sup>a</sup> und Martin Nieger<sup>b</sup>

Institut für Organische Chemie und Biochemie<sup>a</sup> und Anorganisch-Chemisches Institut<sup>b</sup> der Universität Bonn, Gerhard-Domagk-Straße 1, D-5300 Bonn 1

Eingegangen am 20. Mai 1988

Die Tetrahydrobenzofurane **1a–e**, das Indol **2** und das Benzo[*b*]thiophen **3** ergeben mit 4-Phenyl-1,2,4-triazolin-3,5-dion (4-Ph-TAD) die [4 + 2]-Addukte **4a–e**, **5** und **6**. **1a, b** reagieren mit Phenyl- bzw. Tolylisocyanat, via Carbodiimide **A**, mit Alkoholen zu den Isoharnstoffen **10a–d**. In Gegenwart primärer Amine entstehen die intermediären Guanidine **B**, die zum neuen Ringgerüst der Furo[3,2-*e*]chinazoline **11a–c** reagieren. Die Konstitution von **11a** wird durch Röntgenstrukturanalyse ermittelt. **1c** ergibt mit Hydrazinhydrat das neuartige Furo[2,3-*f*]phthalazin **12**.

**Heterocyclic  $\beta$ -Enamino Esters, 49<sup>1,2)</sup>. – Furo[3,2-*e*]quinazolines, Furo[2,3-*f*]phthalazine, and [4 + 2] Adducts with 4-Phenyl-1,2,4-triazoline-3,5-dione to Benzofurans, Indoles, and Benzo[*b*]thiophenes**

The tetrahydrobenzofurans **1a–e**, the indole **2**, and the benzo[*b*]thiophene **3** afford with 4-phenyl-1,2,4-triazoline-3,5-dione the [4 + 2] adducts **4a–e**, **5**, and **6**. With phenyl or tolyl isocyanate, **1a, b** give via the carbodiimides **A** with alcohols the isoureas **10a–d**. In the presence of primary amines, the intermediary guanidines **B** cyclize to give the novel furo[3,2-*e*]quinazolines **11a–c**. The structure of **11a** is established by X-ray diffraction. **1c** forms with hydrazine hydrate the novel furo[2,3-*f*]phthalazine **12**.

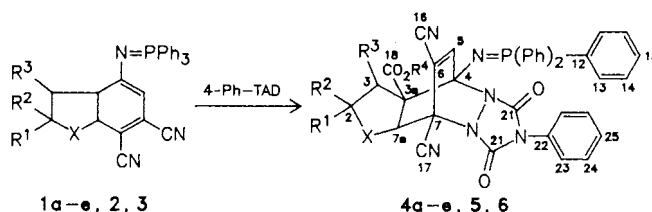
Kürzlich haben wir über die [2 + 2 + 2]-Cocyclisierung der 2-Iminophosphorane heterocyclischer  $\beta$ -Enaminoester mit Cyanacetylen zu Benzo[*b*]heterocyclen berichtet<sup>4,5)</sup>; auf verwandtem Wege entstehen aus 6,7-Dihydroazepin- $\beta$ -enaminoestern mit Acetylendicarbonsäureestern unter Ringverengung und Umlagerung Tetrahydroindole<sup>6)</sup>. Nun beschreiben wir die Reaktivität dieser Anellierungsprodukte – insbesondere der Benzofurane – gegenüber 4-Ph-TAD, Isocyanaten und Hydrazinhydrat. Eine Leitlinie der im folgenden beschriebenen Reaktionen besteht darin, die latente Funktionalität der Iminophosphoran-„Schutzgruppe“ auf ihre präparative Einsetzbarkeit zur Heterocyclensynthese zu untersuchen.

4-Ph-TAD<sup>7)</sup> reagiert mit dem Dien-System der Benzo[*b*]heterocyclen **1a–e**, **2** und **3** erwartungsgemäß<sup>8)</sup> unter [4 + 2]-Cycloaddition zu den Addukten **4a–e**, **5** und **6** (Schema 1). Bemerkenswert ist, daß z. B. 6,7-Dihydro-2-[(triphenylphosphoranylid)amino]azepincarbonsäureester als analog gebaute vinyloge, phosphorylierte Dienaminoester-Systeme unter diesen Bedingungen nicht am heterocyclischen Dien-Chromophor, sondern unter [2 + 2]-Cycloaddition an der polaren 4,5-Doppelbindung zum [1,2,4]-Triazololo[1',2':1,2]diazet[3,4-*d*]azepin **7** reagieren<sup>6)</sup>.

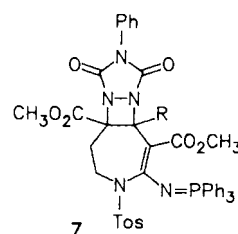
Die Benzofurane **1a–e** sind durch Konjugation bemerkenswert mesomeriestabilisiert: eine Reaktion des Iminophosphoranrestes, wie z. B. Abspaltungsversuche ( $H^+$ ,  $OH^-$ ) sind daher sehr erschwert.

Wie stark die Iminophosphorgruppe an der Enamino-carbonyl-Resonanz beteiligt ist<sup>9)</sup>, kann man auch daran erkennen, daß **1a–e** durch Synthese direkt aus den Furan- $\beta$ -

Schema 1

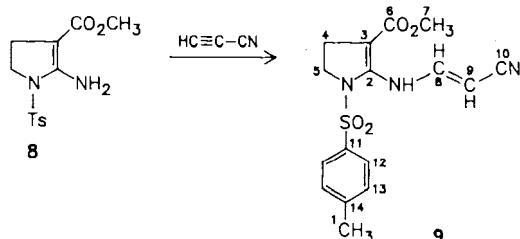


1, 4	X	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>
a	O	<sup>z</sup> CH <sub>3</sub>	H	H	<sup>19</sup> CH <sub>2</sub> - <sup>20</sup> CH <sub>3</sub>
b	O	<sup>z</sup> CH <sub>3</sub>	<sup>z</sup> CH <sub>3</sub>	H	<sup>19</sup> CH <sub>2</sub> - <sup>20</sup> CH <sub>3</sub>
c	O	<sup>z</sup> CH <sub>3</sub>	H	<sup>3</sup> CH <sub>3</sub>	<sup>19</sup> CH <sub>2</sub> - <sup>20</sup> CH <sub>3</sub>
d	O	<sup>z</sup> CH <sub>2</sub> <sup>z'</sup> CH <sub>3</sub>	H	H	<sup>19</sup> CH <sub>2</sub> - <sup>20</sup> CH <sub>3</sub>
e	O	<sup>z</sup> C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	<sup>19</sup> CH <sub>2</sub> - <sup>20</sup> CH <sub>3</sub>
2/5	-N-SO <sub>2</sub>	<sup>9</sup> CH <sub>3</sub>	H	H	<sup>20</sup> CH <sub>3</sub>
3/6	S	H	H	H	<sup>19</sup> CH <sub>2</sub> - <sup>20</sup> CH <sub>3</sub>



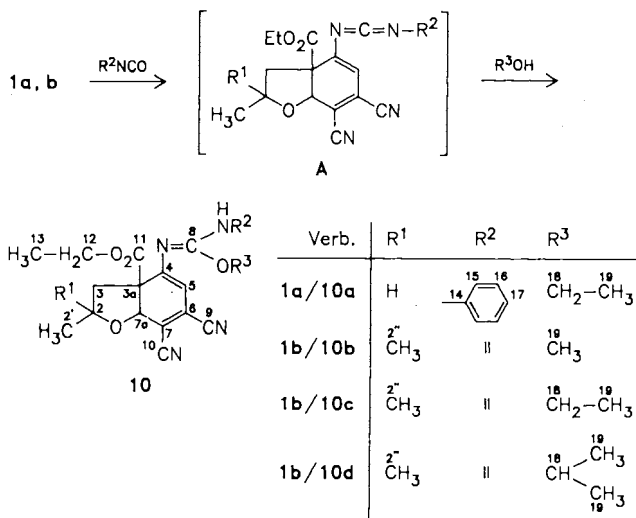
enaminoestern und Cyanacetylen nicht zugänglich sind. Nur im Falle des 2-Amino-4,5-dihydropyrrrol-3-carbonsäure-methylesters (**8**) beobachteten wir eine Michael-Addition der 2-Aminfunktion an das Cyanacetylen unter Bildung von **9**, eine bei Furan- $\beta$ -enaminoestern vereinzelt gefundene Reaktion<sup>11</sup>.

Schema 2



Die Iminophosphorgruppe in **1a, b**, eine Schutzgruppe mit latenter Funktionalität, reagiert jedoch bei erhöhter Temperatur glatt mit den reaktiven Phenyl- und Tolylyscyanaten zu den nicht immer isolierbaren Carbodiimiden **A**<sup>12</sup>; diese reagieren mit den zur Kristallisation verwendeten Alkoholen zu den *O*-Alkylisoharnstoffen **10a–d**.

Schema 3

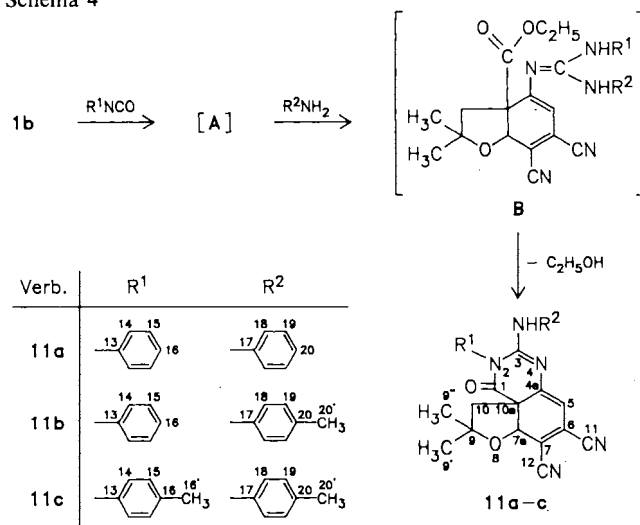


Fügt man den unter wasserfreien Bedingungen erzeugten Carbodiimiden **A** primäre Arylamine zu, so findet über gleichfalls nicht faßbare Guanidine **B**<sup>13</sup> nach kurzem Erhitzen und unter Kondensation von Alkohol Ringschluß zu den neuartigen Furo[3,2-*e*]chinazolinen **11a–c** statt.

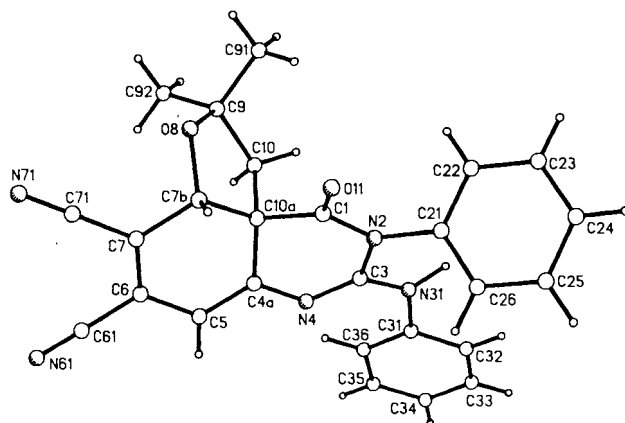
Die komplexe Struktur von **11a–c** wurde am Beispiel von **11a** durch eine Einkristall-Röntgenstrukturanalyse gesichert.

Mit einem 10fachen Überschuß an Hydrazinhydrat entsteht nach 1wöchiger Einwirkung auf **1c** in siedendem Ethanol ein Produkt, das nach chromatographischer Trennung als gelbes, feinkristallines Pulver gewonnen wurde; aus MS und <sup>1</sup>H-NMR-Spektren ist abzulesen, daß die Estergruppe

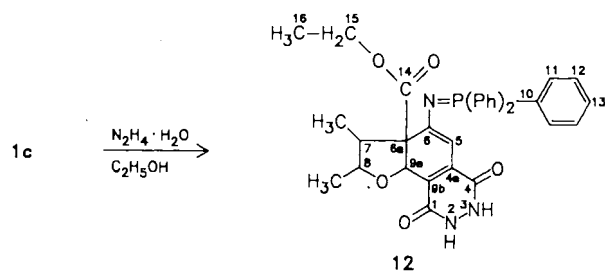
Schema 4



unverändert geblieben ist. Im IR-Spektrum fehlen die Nitrilbanden. Diese Befunde und die übrigen spektroskopischen Daten belegen, daß das Hydrazinhydrat mit beiden vicinalen Nitrilgruppen reagiert hat, wobei das neue Gerüst eines Furo[2,3-*f*]phthalazins **12** entstanden ist.

Abb. 1. Struktur von **11a** im Kristall

Schema 5



Die Arbeit wurde vom *Fonds der Chemischen Industrie*, dem *Minister für Wissenschaft und Forschung des Landes Nordrhein-Westfalen* und der *Bayer AG* unterstützt. F.-J.F. dankt der *Hanns-Seidel-Stiftung* für ein Promotionsstipendium.

## Experimenteller Teil

IR-Spektren: Perkin-Elmer 157-G. —  $^1\text{H-NMR}$ -Spektren: Bruker WP-80, WP-90 und AC-200, TMS als interner Standard. —  $^{13}\text{C-NMR}$ -Spektren: Bruker WP-90 und AC-200,  $\text{CDCl}_3$ , 77.10 ppm, int. Standard. — MS: MS-30 und MS-50 der A.E.I. (Kratos). — Schmelzpunkte: nicht korrigiert. — Elementaranalysen: Analytische Abteilung des Instituts und Mikroanalytisches Laboratorium Pascher, D-5480 Remagen.

*Allgemeine Vorschrift zur Darstellung der 4-Ph-TAD-Addukte 4a–d, 5 und 6:* Zu 5 mmol **1–3**, gelöst in 15 ml Acetonitril, werden 5.5 mmol 4-Ph-TAD<sup>7)</sup> gefügt. Anschließend wird bei Raumtemp. ca. 4 h gerührt, das Solvens i.Vak. entfernt und der Rückstand in Ethanol aufgenommen. Nach dem Erkalten fällt das Addukt in leuchtend gelben Kristallen aus; Umkristallisation aus Ethanol oder chromatographische Reinigung (Petrolether, Sdp. 40–60 °C/Aceton, 2:1, v/v). — Die Addukte **4a–d**, **5** und **6** erweisen sich als sehr thermolabil und zersetzen sich bereits nach kurzem Stehenlassen. In einigen Fällen konnten daher keine korrekten Elementaranalysen erhalten werden; auch frischbereitete Lösungen zersetzen sich z.T. bereits während der NMR-Messungen.

*[4 + 2]-Addukt 4a aus 4-Ph-TAD und 1a:* Ausb. 2.7 g (78%); Schmp. 265 °C (Zers.). —  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 1.15 (q,  $J$  = 7 Hz, 20-H), 1.25 (d,  $J$  = 8.2 Hz, 2-H), 2.50 (m, 3-H), 3.15 (d,  $J_{\text{PH}}$  = 1 Hz, 5-H), 4.07 (t,  $J$  = 7 Hz, 19-H), 4.20 (d,  $J$  = 6 Hz, 2'-H), 4.81 (d,  $J_{\text{PH}}$  = 2 Hz, 7a-H), 7.1–7.4 (m, 23, 24, 25-H), 7.5–7.9 (m, 13, 14, 15-H). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 14.01 (q, C-20), 25.79 (q, C-2''), 45.71 (t, C-3), 62.51 (s, C-3a), 65.73 (t, C-19), 74.21 (t, C-2), 78.21 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 1 Hz, C-7a), 82.21 (s, C-7), 104.41 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 11.2 Hz, C-5), 104.72 (s, C-16), 105.43 (s, C-17), 124.63 (s, C-6), 128.20–133.12, C-12, 13, 14, 15 und C-22, 23, 24, 25), 152.34 (d,  $^2J_{\text{CP}}$  = 6.2 Hz, C-4), 162.24 (s, C-21), 172.31 (d,  $^4J_{\text{PC}}$  = 12.8 Hz, C-18). — MS:  $m/z$  = 708 ( $\text{M}^+$ ).

$\text{C}_{40}\text{H}_{33}\text{N}_6\text{O}_5\text{P}$  (708.7) Ber. C 67.79 H 4.69 N 11.85  
Gef. C 66.35 H 4.65 N 11.07

*[4 + 2]-Addukt 4b aus 4-Ph-TAD und 1b:* Ausb. 2.9 g (81%); Schmp. 270 °C (Zers.). —  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 1.17 (q,  $J$  = 7 Hz, 20-H), 1.25 (d,  $J$  = 20 Hz, 2'', 2'''-H), 2.70 (m, 3-H), 3.31 (d,  $J_{\text{PH}}$  = 1 Hz, 5-H), 4.12 (t,  $J$  = 7 Hz, 19-H), 4.86 (d,  $J_{\text{PH}}$  = 2 Hz, 7a-H), 7.1–7.4 (m, 23, 24, 25-H), 7.5–7.9 (m, 13, 14, 15-H). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 13.98 (q, C-20), 27.77 (q, C-2''), 29.51 (q, C-2'), 48.81 (t, C-3), 62.27 (s, C-3a), 65.51 (t, C-19), 77.48 (dd,  $^4J_{\text{PC}}$  = 1 Hz, C-7a), 81.14 (s, C-7), 81.37 (s, C-2), 104.80 (s, C-16), 105.31 (s, C-17), 105.45 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 11.7 Hz, C-5), 125.71 (s, C-6), 129.08–133.09 (C-12, 13, 14, 15, 22, 23, 24, 25), 152.72 (d,  $^2J_{\text{PC}}$  = 6.6 Hz, C-4), 161.12 (s, C-21), 171.14 (d,  $^4J_{\text{CP}}$  = 13.9 Hz, C-18). — MS:  $m/z$  = 722 ( $\text{M}^+$ ).

$\text{C}_{41}\text{H}_{35}\text{N}_6\text{O}_5\text{P}$  (722.7) Ber. C 68.14 H 4.88 N 11.62  
Gef. C 67.93 H 4.92 N 11.36

*[4 + 2]-Addukt 4c aus 4-Ph-TAD und 1c:* Ausb. 2.8 g (79%); Schmp. 257 °C (Zers.). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 8.95 (q, C-3'), 14.09 (q, C-2''), 15.29 (q, C-20), 46.98 (d, C-3), 62.47 (t, C-19), 68.66 (s, C-3a), 76.32 (d, C-2), 77.26 (dd,  $^4J_{\text{PC}}$  = 3.2 Hz, C-7a), 105.40 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 12.3 Hz, C-5), 105.69 (s, C-7), 113.62 (s, C-16), 116.57 (s, C-17), 124.78 (s, C-6), 125.98–129.70 (C-12, 13, 14, 15), 132.46–133.40 (C-22, 23, 24, 25), 152.12 (s, C-21), 159.55 (d,  $^2J_{\text{PC}}$  = 1 Hz, C-4), 172.63 (s, C-18). — MS:  $m/z$  = 722 ( $\text{M}^+$ ).

*[4 + 2]-Addukt 4d aus 4-Ph-TAD und 1d:* Ausb. 2.8 g (77%); Schmp. 211 °C (Zers.). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 10.30 (q, C-2''), 13.90 (q, C-20), 28.31 (t, C-2'), 43.22 (t, C-3), 62.07 (t, C-19), 64.36 (s, C-3a), 79.05 (dd,  $^4J_{\text{PC}}$  = 4.5 Hz, C-7a), 80.51 (d, C-2), 104.80 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 14.5 Hz, C-5), 105.13 (s, C-7), 113.48 (s, C-16), 116.16 (s, C-17), 124.60 (s, C-6), 127.44–129.62 (C-12, 13, 14, 15), 130.99–133.00

(C-22, 23, 24, 25), 152.43 (s, C-21), 161.38 (d,  $^2J_{\text{PC}}$  = 2.6 Hz, C-4), 171.17 (s, C-18). — MS:  $m/z$  = 722 ( $\text{M}^+$ ).

$\text{C}_{14}\text{H}_{35}\text{N}_6\text{O}_5\text{P}$  (722.7) Ber. N 11.62 Gef. N 10.80

*[4 + 2]-Addukt 4e aus 4-Ph-TAD und 1e:* Ausb. 2.7 g (72%); Schmp. 236 °C (Zers.). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 13.75, 13.98 (q, C-2'', C-20; Zuordnung vertauschbar), 25.63 (s, C-2'), 33.30 (t, C-3), 61.82 (t, C-19), 64.44 (d, C-3a), 78.16 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 13.1 Hz, C-5), 85.22 (d, C-2), 87.11 (dd,  $^4J_{\text{PC}}$  = 3.6 Hz, C-7a), 104.12 (s, C-7), 113.51 (s, C-16), 116.78 (s, C-17), 125.58–129.34 (C-12, 13, 14, 15), 126.68 (s, C-6), 131.05–132.67 (C-22, 23, 24, 25), 150.83 (s, C-21), 152.51 (d,  $^2J_{\text{PC}}$  = 1 Hz, C-4), 171.42 (s, C-18). — MS:  $m/z$  = 750 ( $\text{M}^+$ ).

$\text{C}_{43}\text{H}_{36}\text{N}_6\text{O}_5\text{P}$  (750.8) Ber. N 11.19 Gef. N 11.04

*[4 + 2]-Addukt 5 aus 4-Ph-TAD und 2:* 3.2 g (78%); Schmp. 163 °C (Zers.). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 13.95 (q, C-20), 28.28 (t, C-3), 40.00 (t, C-2), 49.28 (d, C-7a), 62.04 (t, C-19), 66.48 (d,  $^3J_{\text{PC}}$  = 18.6 Hz, C-3a), 107.75 (s, C-7), 113.52 (s, C-16), 116.83 (s, C-17), 122.58 (s, C-6), 125.68 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 3.9 Hz, C-5), 127.36–129.45 (C-12, 13, 14, 15), 130.91–133.09 (C-22, 23, 24, 25), 152.54 (s, C-21), 160.71 (d,  $^2J_{\text{PC}}$  = 5.7 Hz, C-4), 170.43 (d,  $^4J_{\text{PC}}$  = 20.1, C-18). — MS:  $m/z$  = 833 ( $\text{M}^+$ ).

$\text{C}_{45}\text{H}_{36}\text{N}_7\text{O}_6\text{PS}$  (833.9) Ber. C 64.82 H 4.35 N 11.76  
Gef. C 63.81 H 4.38 N 10.73

*[4 + 2]-Addukt 6 aus 4-Ph-TAD und 3:* Ausb. 2.5 g (69%); Schmp. 196 °C (Zers.). —  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 2.33 (s, 1-H), 2.93 (s, 20-H), 3.17 (m, 3-H), 3.51 (q,  $J$  = 7 Hz, 2-H), 5.08 (s, 5-H), 5.44 (s, 7a-H), 7.0–8.0 (m, 9, 10, 13, 14, 15, 23, 24, 25-H). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 21.58 (q, C-1), 34.70 (t, C-3), 45.87 (t, C-2), 52.80 (q, C-20), 58.36 (d, C-7a), 63.49 (d,  $^3J_{\text{PC}}$  = 19.4 Hz, C-3a), 107.12 (s, C-7), 113.42 (s, C-16), 116.52 (s, C-17), 125.79 (dd,  $^3J_{\text{PC}}$  = 6.9 Hz, C-5), 127.85 (s, C-6), 128.12–130.08 (C-12, 13, 14, 15), 129.98–135.10 (C-8, 9, 10, 11), 131.10–134.89 (C-22, 23, 24, 25), 151.76 (s, C-21), 170.33 (d,  $^4J_{\text{PC}}$  = 26.4 Hz, C-18). — MS:  $m/z$  = 710 ( $\text{M}^+$ ).

*2-(2-Cyanvinylamino)-4,5-dihydro-1-(4-methylphenylsulfonyl)-3-pyrrolcarbonsäure-methylester (9):* Zu 1.5 g (5.0 mmol) **8** in 150 ml absol. Acetonitril werden 0.25 g (5.0 mmol) Cyanacetylen gefügt. Nach 2 h Rühren bei Raumtemp. wird das Solvens i.Vak. verdampft und der Rückstand in Ethanol aufgenommen und mit Aktivkohle behandelt; Ausb. 0.7 g (41%), gelbe Kristalle vom Schmp. 168 °C (Zers.). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 21.68 (C-1), 29.16 (C-4), 46.90 (C-5), 53.40 (C-7), 58.65 (C-3), 101.92 (C-9), 115.29 (C-10), 127.43 (C-13), 130.02 (C-12), 133.58 (C-11), 145.55 (C-14), 150.67 (C-8), 158.92 (C-2), 168.28 (C-6). — MS:  $m/z$  = 347 ( $\text{M}^+$ ).

$\text{C}_{16}\text{H}_{17}\text{N}_3\text{O}_4\text{S}$  (347.4) Ber. C 55.31 H 4.93 N 12.09  
Gef. C 55.15 H 5.00 N 12.16

*Allgemeine Vorschrift zur Darstellung der O-Alkylisoharnstoffe 10a–d:* Zu 5 mmol der Iminophosphorane **1a, b** in 5 ml Benzol fügt man unter Argon 10 mmol des jeweiligen Isocyanates und erhitzt anschließend 25 h zum Sieden. Nach Entfernen des Solvens und überschüssigen Isocyanates i.Vak. wird der Rückstand mit 10–15 ml des entsprechenden Alkohols 1 h zum Sieden erhitzt. Nach dem Erkalten fallen **10a–d** langsam als gelbe Kristalle aus.

*6,7-Dicyan-4-(2-ethyl-1-phenyl-3-isoureido)-2,3,3a,7a-tetrahydro-2-methylbenzofuran-3a-carbonsäure-ethylester (10a):* Ausb. 0.9 g (42%); Schmp. 153 °C. — IR (KBr): 3340  $\text{cm}^{-1}$  (NH), 2240, 2210, (C=N), 1735 (CO), 1635, 1600, 1530 (C=C, C=N). —  $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 1.18 (t,  $J$  = 6.5 Hz, 19-H), 1.22 (t,  $J$  = 7 Hz, 2'-H), 1.29 (t,  $J$  = 7 Hz, 13-H), 1.97 (m, 3-H), 2.98 (q,  $J$  = 6.5 Hz, 18-H), 4.13 (d,  $J$  = 8 Hz, 2-H), 4.22 (q,  $J$  = 7 Hz, 12-H), 4.58 (s, 5-H), 5.57 (s, 7a-H), 6.76 (NH), 7.1–7.4 (m, 15, 16, 17-H). —  $^{13}\text{C-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ ):  $\delta$  = 14.08 (q, C-13), 14.17 (q, C-19), 19.90 (q, C-2'), 44.60 (t, C-3),

59.52 (s, C-3a), 62.53 (t, C-12), 64.12 (t, C-18), 73.50 (d, C-2), 78.07 (d, C-7a), 102.99 (d, C-5), 107.58 (s, C-7), 115.45 (s, C-9), 116.58 (s, C-10), 121.21 (d, C-15), 124.35 (d, C-16), 128.37 (s, C-14), 129.14 (d, C-17), 137.23 (s, C-6), 151.57 (s, C-8), 157.21 (s, C-4), 171.71 (s, C-11). — Hochaufl. MS:  $M^+$  ber. 420.472, gef. 420.2826.

$C_{23}H_{24}N_4O_4$  (420.5) Ber. C 65.70 H 5.75 N 13.32  
Gef. C 65.34 H 4.81 N 12.45

*6,7-Dicyan-2,3,3a,7a-tetrahydro-2,2-dimethyl-4-(2-methyl-1-phenyl-3-isoureido)benzofuran-3a-carbonsäure-ethylester (10b)*: Ausb. 1.0 g (46%); Schmp. 149 °C. — IR (KBr): 3350  $cm^{-1}$  (NH), 2220, 2210 (C≡N), 1730 (C=O), 1630, 1605, 1535 (C=C, C=N). —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 1.25 (t,  $J$  = 6 Hz, 13-H), 1.31 (q,  $J$  = 7 Hz, 2-H), 1.40 (t,  $J$  = 7 Hz, 2'-H), 2.70 (s, 3-H), 3.74 (s, 19-H), 4.20 (q,  $J$  = 6 Hz, 12-H), 4.86 (s, 5-H), 5.68 (s, 7a-H), 6.95 (NH), 7.0–7.4 (m, 15,16,17-H). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 13.99 (q, C-13), 27.87 (q, C-2'), 28.69 (q, C-2''), 47.99 (t, C-3), 54.75 (q, C-19), 60.14 (s, C-3a), 62.66 (t, C-12), 76.87 (d, C-7a), 81.08 (s, C-2), 104.23 (d, C-5), 108.17 (s, C-7), 115.40 (s, C-9), 116.75 (s, C-10), 121.45 (d, C-15), 124.48 (d, C-16), 124.89 (s, C-14), 129.06 (d, C-17), 137.23 (s, C-6), 151.85 (s, C-8), 156.24 (s, C-4), 171.02 (s, C-11). — Hochaufl. MS:  $M^+$  ber. 420.472, gef. 420.1814.

$C_{23}H_{24}N_4O_4$  (420.5) Ber. C 65.70 H 5.75 N 13.32  
Gef. C 65.40 H 5.39 N 12.25

*6,7-Dicyan-4-(2-ethyl-1-phenyl-3-isoureido)-2,3,3a,7a-tetrahydro-2,2-dimethylbenzofuran-3a-carbonsäure-ethylester (10c)*: Ausb. 1.1 g (49%); Schmp. 136 °C. — IR (KBr): 3380  $cm^{-1}$  (NH), 2220, 2205, (C≡N), 1735 (C=O), 1630, 1600, 1550 (C=C, C=N). —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 1.25 (t,  $J$  = 7 Hz, 13-H), 1.26 (t,  $J$  = 7 Hz, 19-H), 1.35 (q,  $J$  = 8 Hz, 2'-H), 1.40 (t,  $J$  = 7 Hz, 2'-H), 2.68 (dd, 3-H), 4.18 (q,  $J$  = 7 Hz, 18-H), 4.30 (q,  $J$  = 7 Hz, 12-H), 4.85 (s, 5-H), 5.66 (s, 7a-H), 6.92 (NH), 7.0–7.4 (m, 15,16,17-H). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 14.03 (q, C-13), 14.19 (q, C-19), 27.91 (q, C-2'), 28.71 (q, C-2''), 48.05 (t, C-3), 60.20 (t, C-18), 62.65 (s, C-3a), 64.09 (t, C-12), 76.92 (d, C-7a), 81.06 (s, C-2), 104.04 (d, C-5), 107.89 (s, C-7), 115.45 (s, C-9), 116.76 (s, C-10), 121.12 (d, C-15), 124.27 (d, C-16), 124.96 (s, C-14), 129.07 (d, C-17), 137.21 (s, C-6), 151.34 (s, C-8), 156.48 (s, C-4), 171.05 (s, C-11). — Hochaufl. MS:  $M^+$  ber. 434.500, gef. 434.3261.

$C_{24}H_{26}N_4O_4$  (434.5) Ber. C 66.34 H 6.03 N 12.89  
Gef. C 66.16 H 6.19 N 12.98

*6,7-Dicyan-2,3,3a,7a-tetrahydro-2,2-dimethyl-4-(2-isopropyl-1-phenyl-3-isoureido)benzofuran-3a-carbonsäure-ethylester (10d)*: Ausb. 1.0 g (43%); Schmp. 130 °C. — IR (KBr): 3360  $cm^{-1}$  (NH), 2240, 2220 (C≡N), 1730 (C=O), 1630, 1605, 1530 (C=C, C=N). —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 1.25 (t,  $J$  = 7 Hz, 13-H), 1.27 (q,  $J$  = 6 Hz, 2'-H), 1.33 (t,  $J$  = 7 Hz, 2'-H), 1.41 (t,  $J$  = 6.5 Hz, 19-H), 2.67 (dd, 3-H), 4.02 (q,  $J$  = 7 Hz, 12-H), 4.84 (s, 5-H), 5.06 (d,  $J$  = 6.5 Hz, 18-H), 5.66 (s, 7a-H), 6.94 (NH), 7.0–7.3 (m, 15,16,17-H). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 14.03 (q, C-13), 21.69/21.81 (qq, C-19), 27.91 (q, C-2''), 28.72 (q, C-2'), 48.12 (t, C-3), 60.27 (s, C-3a), 62.62 (t, C-12), 72.09 (d, C-18), 77.02 (d, C-7a), 81.00 (s, C-2), 103.67 (d, C-5), 107.85 (s, C-7), 115.00 (s, C-9), 116.80 (s, C-10), 120.95 (d, C-15), 124.14 (d, C-16), 124.96 (s, C-14), 129.04 (d, C-17), 137.29 (s, C-6), 150.99 (s, C-8), 156.68 (s, C-4), 171.08 (s, C-11). — Hochaufl. MS:  $M^+$  ber. 448.527, gef. 448.2108.

$C_{25}H_{28}N_4O_4$  (448.5) Ber. C 66.94 H 6.29 N 12.49  
Gef. C 67.09 H 6.50 N 12.68

*Allgemeine Vorschrift zur Darstellung der Furo[3,2-*e*]chinazoline 11a–c*: Zu 2.74 g (5.0 mmol) des Iminophosphorans **1b** in 25 ml Benzol fügt man unter Schutzgas 10 mmol des jeweiligen Isocyanates und erhitzt 25 h zum Sieden; dann werden Solvens und über-

schüssiges Isocyanat i. Vak. verdampft, und der Rückstand wird mit 5 ml des entsprechenden Amins versetzt und nochmals 1 h bei 60 °C gerührt. Das Rohrprodukt wird aus Ethanol umkristallisiert oder chromatographisch (Petrolether, Sdp. 40–60 °C/Aceton, 2:1, v/v) gereinigt.

*3-Anilino-2,7a,9,10-tetrahydro-9,9-dimethyl-1-oxo-2-phenyl-1H-furo[3,2-*e*]chinazolin-6,7-dicarbonitril (11a)*: Ausb. 0.8 g (35%); Schmp. 219 °C. — IR (KBr): 3340  $cm^{-1}$  (NH), 2245, 2210 (C≡N), 1720 (C=O). —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 1.34 (s, 9',9''-H), 2.56 (s, 10-H), 5.61 (s, 7a-H), 5.84 (s, 5-H), 6.08 (NH), 7.1–7.7 (m, 14,15,16,18,19,20-H). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 27.83 (q, C-9'), 29.06 (q, C-9''), 53.95 (t, C-10), 55.54 (s, C-10a), 75.35 (d, C-7a), 80.43 (s, C-9), 104.85 (d, C-5), 112.83 (s, C-6), 115.19 (s, C-12), 116.23 (s, C-11), 121.80 (d, C-14), 122.25 (s, C-7), 125.65 (d, C-15), 128.75 (d, C-16), 129.14 (d, C-18), 130.89 (d, C-19), 131.02 (d, C-20), 133.19 (s, C-13), 136.26 (s, C-17), 146.45 (s, C-3), 152.42 (s, C-1), 169.67 (s, C-4a). — Hochaufl. MS:  $M^+$  ber. 435.490, gef. 435.1695.

$C_{26}H_{21}N_5O_2$  (435.5) Ber. C 71.70 H 4.86 N 16.08  
Gef. C 71.03 H 5.14 N 16.90

*2,7a,9,10-Tetrahydro-9,9-dimethyl-3-(4-methylanilino)-1-oxo-2-phenyl-1H-furo[3,2-*e*]chinazolin-6,7-dicarbonitril (11b)*: Ausb. 0.5 g (22%); Schmp. 188 °C. — IR (KBr): 3300  $cm^{-1}$  (NH), 2240, 2200 (C≡N), 1725 (C=O). —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 1.31 (s, 9',9''-H), 2.44 (s, 20'-H), 2.54 (s, 10-H), 5.83 (s, 5-H), 6.17 (NH), 6.60 (s, 7a-H), 7.1–7.7 (m, 14,15,16,18,19,20-H). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 21.36 (q, C-20'), 27.84 (s, C-9'), 29.17 (s, C-9''), 53.95 (t, C-10), 55.57 (s, C-10a), 75.35 (d, C-7a), 80.45 (s, C-9), 106.78 (d, C-5), 112.86 (s, C-6), 115.20 (s, C-12), 116.20 (s, C-11), 121.70 (d, C-14), 122.02 (s, C-7), 125.58 (d, C-15), 128.40 (d, C-16), 129.66 (d, C-18,19), 131.63 (s, C-13,20), 141.35 (s, C-17), 146.72 (s, C-3), 152.35 (s, C-1), 169.70 (s, C-4a). — MS:  $m/z$  = 449 ( $M^+$ ).

$C_{27}H_{33}N_5O_2$  (449.5) Ber. C 72.14 H 5.15 N 15.58  
Gef. C 72.70 H 5.39 N 15.34

*2,7a,9,10-Tetrahydro-9,9-dimethyl-3-(4-methylanilino)-2-(4-methylphenyl)-1-oxo-1H-furo[3,2-*e*]chinazolin-6,7-dicarbonitril (11c)*: Ausb. 0.6 g (24%); Schmp. 182 °C. — IR (KBr): 3340  $cm^{-1}$  (NH), 2240, 2205 (C≡N), 1720 (C=O). —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 1.31 (s, 9',9''-H), 2.28 (s, 20'-H), 2.43 (s, 16'-H), 2.53 (s, 10-H), 5.60 (s, 7a-H), 5.80 (s, 5-H), 6.09 (NH), 7.0–7.8 (m, 14,15,16,18,19,20-H). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 20.90 (q, C-20'), 21.33 (q, C-16'), 27.80 (q, C-9'), 29.03 (q, C-9''), 53.92 (t, C-10), 55.54 (t, C-10a), 75.31 (d, C-7a), 80.36 (s, C-9), 106.42 (d, C-5), 112.31 (s, C-6), 115.22 (s, C-12), 116.29 (s, C-11), 122.31 (s, C-7), 128.98 (d, C-14), 129.53 (d, C-15), 129.60 (s, C-16), 131.57 (d, C-18), 132.22 (d, C-19), 132.67 (s, C-20), 135.55 (s, C-13), 141.25 (s, C-17), 147.04 (s, C-3), 152.80 (s, C-1), 169.76 (s, C-4a). — MS:  $m/z$  = 463 ( $M^+$ ).

$C_{28}H_{25}N_5O_2$  (463.5) Ber. C 72.55 H 5.43 N 15.10  
Gef. C 71.32 H 6.00 N 14.33

*1,2,3,4,6a,7,8,9a-Octahydro-7,8-dimethyl-1,4-dioxo-6-(triphenylphosphoranylidenamino)furo[2,3-*f*]phthalazin-6a-carbonsäure-ethylester (12)*: Zu 2.2 g (4 mmol) des Iminophosphorans **1c** in 10 ml Ethanol fügt man 25 g (0.5 mol) Hydrazinhydrat und erhitzt sodann 7 d zum Rückflusssieden. Das Solvens wird i. Vak. verdampft, und der Rückstand wird mehrfach mit Ethanol gewaschen. Chromatographische Trennung (Petrolether, Sdp. 40–60 °C/Aceton, 1:1, v/v) ergibt 200 mg (9%); Schmp. 154 °C. —  $^1H$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 0.65 (t,  $J$  = 6 Hz, 16-H), 1.12 (s, 8'-H), 1.14 (s, 7'-H), 4.07 (d,  $J$  = 5.7 Hz, 8-H), 4.16 (q,  $J$  = 6 Hz, 15-H), 4.65 (d,  $J$  = 5.7 Hz, 7-H), 5.22 (d,  $J$  = 0.5 Hz, 9a-H), 5.50 (d,  $J$  = 1 Hz, 5-H),  $\approx$  7.4 (m, 11,12,13-H), 7.97 (2,3-NH). —  $^{13}C$ -NMR (CDCl<sub>3</sub>):  $\delta$  = 8.41 (q, C-7), 14.20 (q, C-8'), 15.30 (q, C-16), 45.12 (d, C-7), 61.33 (t, C-15).

66.75 (d,  $J = 24.17$  Hz, C-6a), 75.22 (d, C-8), 77.60 (dd,  $J = 15.38$  Hz, C-9a), 95.48 (dd,  $J = 10.26$  Hz, C-5), 115.36 (s, C-9b), 128.80 (d,  $J = 100.32$ , C-10), 128.86 (dd,  $J = 12.42$  Hz, C-11), 129.09 (dd,  $J = 11.41$  Hz, C-12), 130.66 (s, C-4a), 132.72 (dd,  $J = 9.53$  Hz, C-13), 148.56 (s, C-4), 155.62 (d,  $J = 1.46$  Hz, C-6), 158.60 (s, C-1), 175.01 (s, C-14). – MS:  $m/z = 581$  ( $M^+$ ).

$C_{33}H_{32}N_3O_5P$  (581.6) Ber. C 68.15 H 5.55 N 7.22  
Gef. C 68.59 H 5.73 N 7.44

**Strukturaufklärung der Verbindung 11a:** Durch Kristallisation aus einer ethanolischen Lösung geringer Konzentration werden orange Kristalle von **11a** erhalten. Die Datensammlung erfolgte auf einem Vierkreisdiffraktometer (Nicolet R3m) mit Graphit-monochromatisierter Mo- $K_{\alpha}$ -Strahlung ( $\lambda = 0.71069$  Å). Es wurden 3666 Reflexe gemessen. 2852 unabhängige Reflexe mit  $|F| > 3\sigma(F)$  wurden zur Strukturlösung und -verfeinerung verwendet. Die Strukturlösung erfolgte mittels Direkter Methoden (SHELXS 86<sup>14</sup>). C-, N- und O-Atome wurden anisotrop verfeinert. Alle H-Atome sind durch Differenzelektronendichte-Bestimmung lokalisiert und wurden mit einem „riding“-Modell verfeinert (SHELX 76<sup>15</sup>). – Es existiert eine intermolekulare Wasserstoffbrücke zwischen dem H-Atom der Aminogruppe (H-31) und dem Carbonylsauerstoff (O-11).

Kristallgröße [mm]:  $0.4 \times 0.5 \times 0.6$ ; Kristallsystem orthorhombisch; Raumgruppe:  $Pna2_1$  (Nr. 33); Summenformel:  $C_{26}H_{21}N_3O_2$ ; Molekülmasse: 435.5;  $a = 11.613(4)$ ,  $b = 20.897(7)$ ,  $c = 9.555(5)$  Å;  $V = 2319(2)$  Å<sup>3</sup>;  $d_{r,ber.} = 1.25$  g · cm<sup>-3</sup>;  $Z = 4$ ; gemessener Bereich:  $3^\circ < 2\theta < 50^\circ$ ; unabhängige Reflexe: 3542; Anzahl „beobachteter Reflexe“ [ $|F| > 3\sigma(F)$ ]: 2852; Anzahl der verfeinerten Parameter: 297;  $R = 0.052$ ;  $R_w = 0.052$  [ $w^{-1} = \sigma^2(F) + 0.0007 F^2$ ].

Tab. 1. Atomkoordinaten ( $\times 10^4$ ) und äquivalente isotrope Temperaturfaktoren ( $\times 10^3$ ) [Å<sup>2</sup>]<sup>a)</sup>

Atom	X	Y	Z	U(eq)
C(1)	1466(3)	5541(1)	3963	50(1)
N(2)	512(2)	5544(1)	3102(4)	49(1)
C(3)	260(3)	6105(1)	2321(5)	52(1)
N(4)	764(2)	6646(1)	2503(5)	62(1)
C(4A)	1686(3)	6676(1)	3390(5)	58(1)
C(5)	2086(3)	7239(2)	3851(6)	77(1)
C(6)	3109(3)	7270(2)	4680(6)	77(1)
C(7)	3692(3)	6750(2)	5103(5)	71(1)
C(7B)	3253(3)	6081(1)	4817(5)	62(1)
O(8)	4140(2)	5662(1)	4385(5)	91(1)
C(9)	4154(3)	5587(2)	2867(6)	81(2)
C(10)	3047(3)	5890(2)	2358(5)	73(1)
C(10A)	2336(3)	6065(1)	3675(5)	50(1)
O(11)	1591(2)	5136(1)	4866(4)	61(1)
C(21)	-308(3)	5032(1)	3219(5)	48(1)
C(22)	-31(3)	4436(1)	2700(5)	60(1)
C(23)	-831(4)	3951(2)	2817(6)	81(2)
C(24)	-1889(4)	4063(2)	3379(6)	83(2)
C(25)	-2176(3)	4657(2)	3882(6)	76(1)
C(26)	-1370(3)	5142(2)	3815(5)	63(1)
N(31)	-598(2)	6029(1)	1386(5)	55(1)
C(31)	-1178(3)	6506(1)	600(5)	53(1)
C(32)	-2242(3)	6343(2)	116(6)	71(1)
C(33)	-2846(4)	6759(2)	-721(7)	112(2)
C(34)	-2405(5)	7342(2)	-1019(7)	130(3)
C(35)	-1344(5)	7507(2)	-542(7)	121(2)
C(36)	-712(3)	7093(2)	286(6)	80(1)
C(61)	3530(4)	7900(2)	5052(6)	99(2)
N(61)	3857(4)	8395(2)	5315(6)	140(2)
C(71)	4722(5)	6803(2)	5867(6)	105(2)
N(71)	5548(5)	6850(3)	6469(8)	172(3)
C(91)	4192(5)	4871(2)	2639(8)	135(3)
C(92)	5187(4)	5920(3)	2323(9)	159(3)

<sup>a)</sup> U(eq) berechnet als 1/3 der Spur des orthogonalen  $U_{ij}$ -Tensors.

Weitere Einzelheiten zur Kristallstrukturuntersuchung können beim Fachinformationszentrum Energie, Physik, Mathematik GmbH, D-7514 Eggenstein-Leopoldshafen 2, unter Angabe der Hinterlegungsnummer CSD-53119, der Autoren und des Zeitschriftenzitats angefordert werden.

Tab. 2. Ausgewählte Bindungslängen [Å]

C(1) - N(2)	1.380 (4)
C(1) - C(10A)	1.515 (4)
C(1) - O(11)	1.217 (3)
N(2) - C(3)	1.419 (3)
N(2) - C(21)	1.437 (3)
C(3) - N(4)	1.286 (3)
C(3) - N(31)	1.348 (4)
N(4) - C(4A)	1.366 (4)
C(4A) - C(5)	1.338 (4)
C(4A) - C(10A)	1.509 (4)
C(5) - C(6)	1.429 (5)
C(6) - C(7)	1.341 (5)
C(7) - C(7B)	1.514 (4)
C(7B) - O(8)	1.414 (4)
C(7B) - C(10A)	1.525 (4)
O(8) - C(9)	1.459 (5)
C(9) - C(10)	1.513 (5)
C(10) - C(10A)	1.550 (5)
N(31) - C(31)	1.419 (4)

Tab. 3. Ausgewählte Bindungswinkel [°]

C(10A) - C(1) - N(2)	115.1(2)
C(3) - N(2) - C(1)	118.9(2)
N(4) - C(3) - N(2)	124.2(3)
C(4A) - N(4) - C(3)	118.8(2)
C(10A) - C(4A) - N(4)	117.7(2)
C(10A) - C(4A) - C(5)	120.7(3)
C(6) - C(5) - C(4A)	120.8(3)
C(7) - C(6) - C(5)	123.3(3)
C(7B) - C(6) - C(5)	121.6(3)
C(10A) - C(7B) - C(7)	112.6(2)
C(10A) - C(7B) - O(8)	106.7(3)
C(9) - O(8) - C(7B)	111.4(3)
C(10) - C(9) - O(8)	105.4(3)
C(10A) - C(10) - C(9)	106.9(3)
C(4A) - C(10A) - C(1)	108.2(2)
C(7B) - C(10A) - C(4A)	117.4(2)
C(10) - C(10A) - C(7B)	102.3(2)
C(31) - N(31) - C(3)	128.2(2)

#### CAS-Registry-Nummern

**1a:** 115512-53-3 / **1b:** 115483-74-4 / **1c:** 115483-75-5 / **1d:** 115483-76-6 / **1e:** 115483-77-7 / **2:** 115483-78-8 / **3:** 115483-79-9 / **4a:** 115483-80-2 / **4b:** 115483-81-3 / **4c:** 115483-82-4 / **4d:** 115512-54-4 / **4e:** 115512-55-5 / **5:** 115483-83-5 / **6:** 115483-84-6 / **8:** 50625-05-3 / **9:** 115483-85-7 / **10a:** 115511-77-8 / **10b:** 115483-86-8 / **10c:** 115483-87-9 / **10d:** 115483-88-0 / **11a:** 115483-89-1 / **11b:** 115483-90-4 / **11c:** 115483-91-5 / **12:** 115483-92-6 / 4-Ph-TAD: 4233-33-4 / HC $\equiv$ C-CN: 1070-71-9 / PhNCO: 103-71-9 / 4-MeC<sub>6</sub>H<sub>4</sub>NCO: 622-58-2

<sup>1)</sup> 48. Mitteilung: Y.-F. Ming, N. Horlemann, H. Wamhoff, *Chem. Ber.* **120** (1987) 1427.

<sup>2)</sup> Zugleich Heterocyclensynthesen mit Dihalogentriphenylphosphoranen, 17; 16. Mitteilung Lit.<sup>1)</sup>

<sup>3)</sup> Aus der *Dissertation* F. J. Faßbender, Univ. Bonn 1987.

<sup>4)</sup> H. Wamhoff, F. J. Faßbender, D. Hermes, F. Knoch, R. Appel, *Chem. Ber.* **119** (1986) 2723.

<sup>5)</sup> H. Wamhoff, F. J. Faßbender, J. Paasch, *Chem. Ber.* **119** (1986) 3515.

<sup>6)</sup> H. Wamhoff, F. J. Faßbender, G. Hendrikx, H. Puff, P. Woller, *Chem. Ber.* **119** (1986) 2114; H. Wamhoff, H. Wintersohl, Publikation in Vorbereitung.

- <sup>7)</sup> H. Wamhoff, K. Wald, *Org. Prep. Proc. Int.* **7** (1975) 251; H. Wamhoff, G. Kunz, *Angew. Chem.* **93** (1981) 832; *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **20** (1981) 797; Bayer AG (H. Wamhoff, G. Kunz, Erf.), D.O.S. DE 3244658 (1984) [*Chem. Abstr.* **101** (1984) 191 946]; Bayer AG (F. Jonas, R. Merten, H. Wamhoff, G. Kunz, Erf.), D.O.S. DE 3244657 (1984) [*Chem. Abstr.* **101** (1984) 211 149].
- <sup>8)</sup> Vgl. H. Wollweber, *Diels-Alder-Reaktion*, Thieme, Stuttgart, 1972; H. Wurziger, *Kontakte (Merck)*, **2** (1985) 17.
- <sup>9)</sup> H. Wamhoff, F. J. Faßbender, R. A. Firestone, *Kem. Közl.*, im Druck.
- <sup>10)</sup> Dupont of Canada Ltd (K. M. Phibbs, K. Murray, P. A. Sipos, Erf.), Can. Pat. 1068301 (1979) [*Chem. Abstr.* **93** (1976) P 45994p].
- <sup>11)</sup> H. Wamhoff, G. Hendrikx, *Chem. Ber.* **118** (1985) 863.
- <sup>12)</sup> H. Staudinger, E. Hauser, *Helv. Chim. Acta* **4** (1921) 861; L. Horner, K. Hofmann, *Angew. Chem.* **68** (1956) 473; F. Kurzer, K. Duraghi-Zadeh, *Chem. Rev.* **67** (1967) 107.
- <sup>13)</sup> F. Kurzer, P. M. Sanderson, *J. Chem. Soc.* **1960**, 3240; G. Tennant in *Comprehensive Organic Chemistry* (D. H. R. Barton, W. D. Ollis, Hrsg.), Bd. 2 (I. O. Sutherland, Hrsg.), S. 521 ff, Pergamon Press, Oxford 1979.
- <sup>14)</sup> G. M. Sheldrick in *Crystallographic Computing 3* (M. Sheldrick, C. Krüger, R. Goddard, Hrsg.), S. 175, Oxford University Press, Oxford 1985.
- <sup>15)</sup> G. M. Sheldrick, *Program for Crystal Structure Determination*, Cambridge 1976.

[137/88]