

Elektronenbeugungs-Untersuchung der Konformation des Biscyclobutyls^a

A. de MEIJERE^b

*Chemisches Institut der Universität Oslo, Norwegen und
Organisch-Chemisches Institut der Universität Göttingen, Deutschland*

The structure and the conformational behaviour of biscyclobutyl have been investigated by the electron diffraction method. The conformational problem was complicated because of the non-planarity of the cyclobutane-ring. Distinguishing between equatorial and axial positions on a cyclobutane-ring, one has to take into account three possible conformations according to whether the two rings are both substituted equatorially (ee-form), both axially (aa-form) or the one equatorially and the other one axially (ea-form). In addition, internal rotation about the central C—C-single bond may produce different rotational isomers of all three forms. It was shown that at least the ee-*s-trans*-form, the ea-*s-trans*-form and the ee-*gauche*-form are present in the gaseous equilibrium mixture; a smaller fraction of the ea-*gauche*-form may also be present.

Energy differences between the different conformers were estimated from the roughly determined concentrations.

Im Rahmen einer Reihe von systematischen Untersuchungen über die Rotationsisomerie der niederen Biscycloalkyle^{1,2} wurde die Elektronenbeugungs-Methode (E.B.) auf das Biscyclobutyl angewandt. Ein Vergleich der IR-Spektren von flüssigem und kristallisiertem Biscyclobutyl hatte den Hinweis erbracht, dass im flüssigen Zustand mehrere Konformere auftreten, während im Kristall höchstwahrscheinlich nur eine einzige Form vorliegt.³ Ziel der hier berichteten E.B.-Untersuchung an der gasförmigen Substanz war es, die Struktur der verschiedenen Konformeren des freien Moleküls sowie ihre relative Häufigkeit im Gemisch zu ermitteln.

^a Nach den IUPAC-Nomenklatur-Regeln sollte diese Verbindung eigentlich als Biscyclobutyl oder Bicyclobutan bezeichnet werden. Der Name Bicyclobutyl oder Bicyclobutan ist jedoch irreführend, weil die Vorsilbe Bi- zur Bezeichnung bicyclischer Ringsysteme (z. B. Bicyclo-[1.1.0]-butan) bereits vergeben ist. Zudem entspricht nur die Vorsilbe Bis- den nach der IUPAC-Nomenklatur für Anordnungen von drei, vier usw. Ringen gleicher Grösse vorgesehenen Vorsilben Ter-, Quater- usw.

^b Gegenwärtige Adresse: Organisch-Chemisches Institut, 34 Göttingen, Windausweg 2, Deutschland.

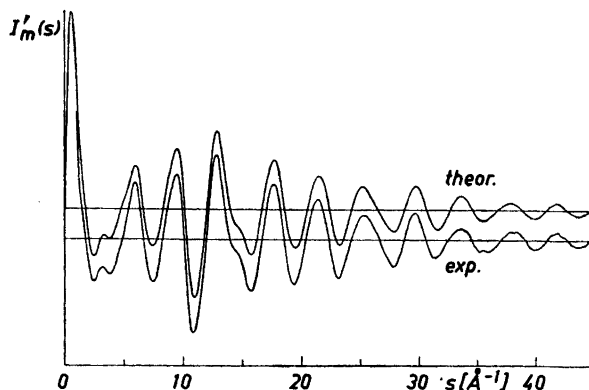


Abb. 1. Experimentelle und beste theoretische molekulare Intensitätskurve.

EXPERIMENTELLES UND GANG DER STRUKTURUNTERSUCHUNG

Von gaschromatographisch gereinigtem ($> 99,5\%$) Biscyclobutyl³ wurden in den Osloer Apparaturen 3 Serien von je 6 Beugungsaufnahmen bei rd. 180 cm, 48 cm und 19 cm Abstand der photographischen Platten von der Gasdüse hergestellt. Je 4 einwandfreie Platten wurden mit einem Mikrophotometer photometriert, die erhaltenen Photometerkurven in der üblichen Weise⁴ weiterbehandelt. Nach Subtraktion der Untergrundstreuung und Zusammenfügen der drei Teilkurven resultierte die in Abb. 1 wiedergegebene „experimentelle Intensitätskurve“.

Die Intensitätsdaten aus den Aufnahmen mit 180 cm Abstand von Platte zur Gasdüse wurden nicht wie üblich auf eine der anderen Teilkurven normiert, sondern erst zu einem späteren Zeitpunkt der Untersuchung mit in die Rechnung einbezogen. Zunächst arbeitete man nur mit den Intensitätsdaten aus dem 48 cm- und 19 cm-Abstand; nach Ermittlung eines brauchbaren Molekülmodells berechnete man für dieses Modell die theoretische Intensitätskurve. Die Daten des 180 cm-Abstandes wurden auf die theoretische Intensitätskurve und dann auf die experimentelle 48 cm-Kurve normiert, im s -Bereich 1,00 bis $5,00 \text{ \AA}^{-1}$ verwendete man diese Daten anstelle derjenigen von der 48 cm-Kurve für eine neue Fourier-Transformation. Die daraus gewonnene exp. R. V.-Kurve unterschied sich von der ersten nur durch einen geringeren Envelope-Effekt. Aus ihr wurde nach Subtraktion der empirischen Envelope das endgültige Molekülmodell ermittelt.

Nach Fourier-Transformation und anschließender Subtraktion einer Envelope erhielt man daraus die experimentelle Radial-Verteilungskurve (R.-V.-Kurve) (siehe Abb. 2a).

Die Maxima der ersten vier Peaks dieser Kurve wurden näherungsweise als Maxima von Gauss-Peaks berechnet. Die ersten beiden Peaks entsprechen dem C—H- und C—C-Bindungsabstand; die Lage des dritten wird etwa zu gleichen Teilen vom C...C-Diagonalabstand im Vierring und C...H-Abstand über einen Winkel bestimmt, während der vierte hauptsächlich vom C...C-Abstand über einen Winkel ($C_4 \dots C_5$ in Abb. 3) herrührt. Die Maximallagen

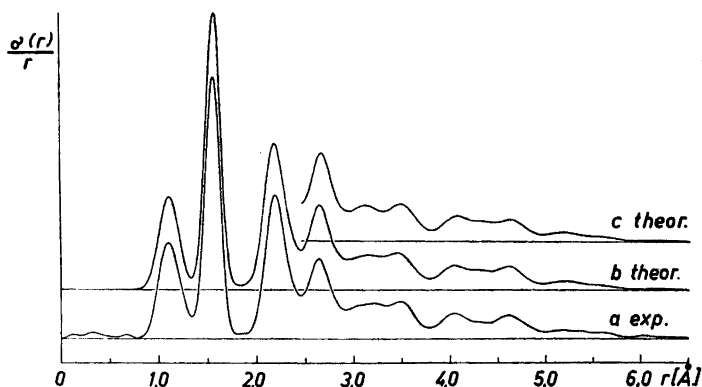


Abb. 2. Die experimentelle und zwei theoretische Radial-Verteilungskurven von Biscyclobutyl (Dämpfungskonstante $k = 0.0015$); a) Experimentelle R.-V.-Kurve; b) Theoretische R.-V.-Kurve für eine Mischung von 60 % *s-trans*-Isomeren-Gemisch und 40 % *gauche*-Isomeren-Gemisch, Torsionswinkel φ der *ee-gauche*-Form 60° ; c) wie (b), jedoch Torsionswinkel der *ee-gauche*-Form 45° .

der Peaks 1, 2 und 4 wurden als Parameter für das in Abb. 3 gezeigte Molekülmodell verwendet, dabei nahm man an, dass die zentrale C—C-Bindung kürzer als die Cyclobutan-C—C-Bindungen und zwar etwa gleich der C—C-Bindungslänge im Äthan⁵ (1,536 Å) ist. Zur Festlegung des C...C-Diagonalabstandes wurde der von Skancke⁶ für Cyclobutan und von Walloe⁷ für verschiedene 1,3-Dihalogenocyclobutane ermittelte Winkel $\beta = 33^\circ$ übernommen (siehe Abb. 3). Ebenso wurde zur Festlegung der H-Atome in den CH₂-Gruppen die von Skancke und von Walloe gefundenen Winkel $\alpha_3 = \alpha_4 = 55^\circ$ benutzt. Der Winkel α_2 ist durch die beiden C—C-Bindungslängen und den Abstand C₄...C₅ bestimmt; die Positionen der beiden tertiären H-Atome an C₁ und C₅ wurden so angenommen, dass der Winkel H—C₁—C₅ bzw. H—C₅—C₁ gleich den H—C—H-Winkeln (also $\approx 110^\circ$) wurde (siehe Tabelle 1).

Tabelle 1. Experimentelle Strukturparameter und zugehörige Fehlerabschätzungen für Biscyclobutyl.

Abstand	Länge [Å]	<i>u</i> -Wert [Å] ^a
C—C (im Ring)	1,548 ± 0,004	0,052 ± 0,003
C—C (zwischen den Ringen) ^b	1,536 ± 0,016	0,051 ± 0,005
C—H	1,104 ± 0,01	0,085 ± 0,006
C ₄ ...C ₅	2,625 ± 0,02	0,075 ± 0,005
\angle H—C—H = $\alpha_3 + \alpha_4$	110,0 ± 4,0°	
$\alpha_3 = \alpha_4$	55,0 ± 2,0° ^{6,7}	
α_2	51,6 ± 2,0°	
α_1	58,5 ± 2,0°	
β	33,0 ± 2,0° ^{6,7}	

^a *u*-Wert = Wurzel aus dem mittleren Quadrat der Schwingungsamplitude. Die angegebenen *u*-Werte wurden durch Anpassung der theoretischen an die experimentelle Intensitätskurve nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate verfeinert.

^b Gleich der C—C Bindungslänge im Äthan angenommen.

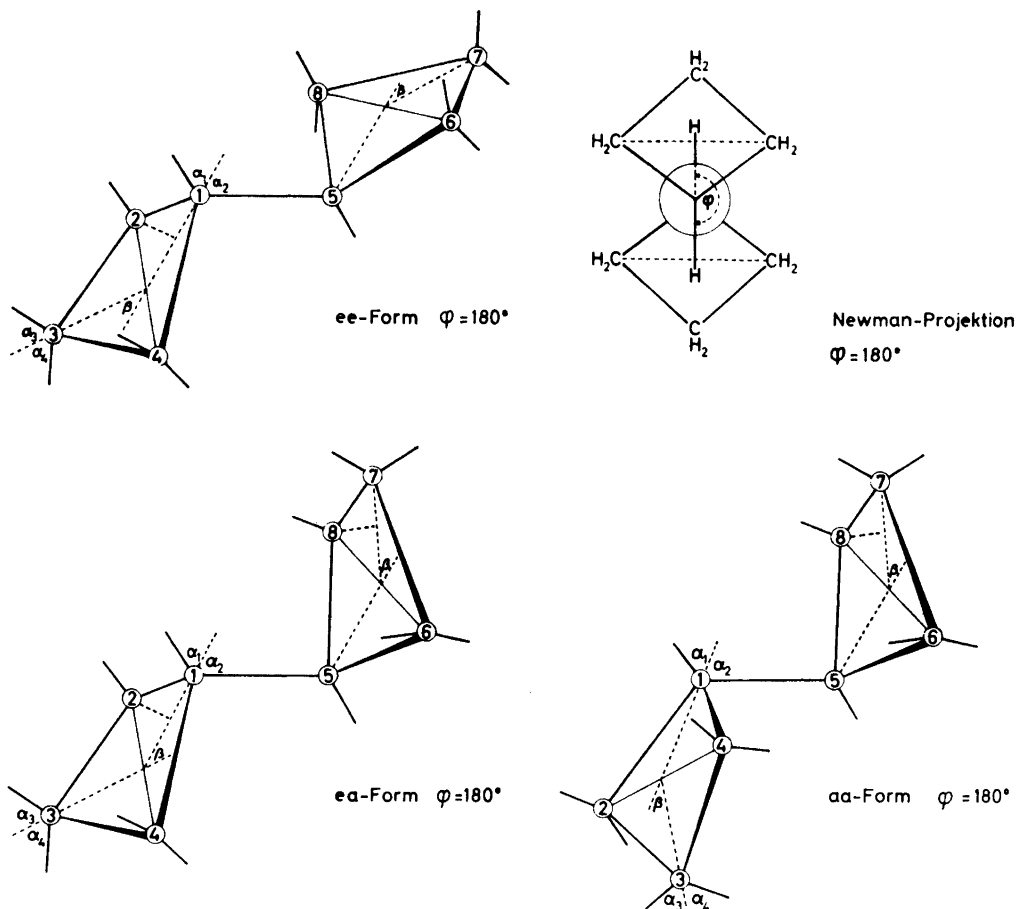


Abb. 3. Molekülmodell des Biscyclobutyls in *s-trans*-Konformation.

Da der Cyclobutanring nicht eben gebaut ist^{6,7} — die Abweichung von der ebenen Form wird durch den Diederwinkel β gekennzeichnet — kann man wie beim Cyclohexan zwischen einer äquatorialen (e-) und einer axialen (a-) Stellung eines Substituenten unterscheiden. Folglich sind bei Verknüpfung von 2 Cyclobutanringen unabhängig von der Rotationsisomerie um die verknüpfende Bindung drei „klappisomere“ Verknüpfungsformen denkbar, je nachdem ob beide Ringe äquatorial (ee-Form), beide axial (aa-Form) oder ob der eine äquatorial und der andere axial (ea-Form) substituiert sind (siehe Abb. 3). Bei der Untersuchung der Frage nach der Rotationsisomerie des Biscyclobutyls musste somit die Möglichkeit berücksichtigt werden, dass jede rotationsisomere Form in einer, zwei oder allen drei dieser „klappisomeren“ Formen vorliegen könnte.

Sämtliche Informationen über die „Klappisomerie“ und die Rotationsisomerie des freien Biscyclobutyl-Moleküls sind in dem Bereich 2,75 bis 6,5 Å

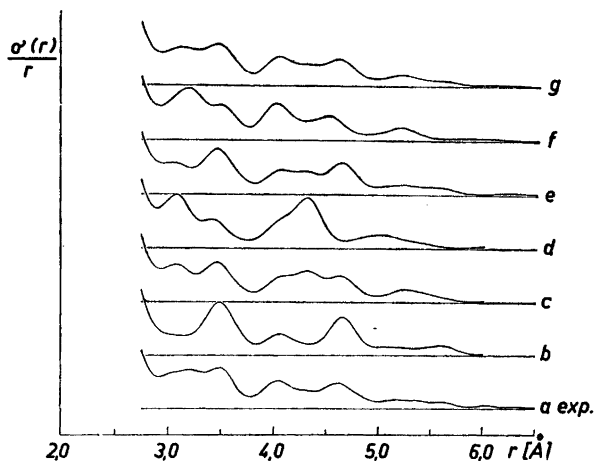


Abb. 4. Die experimentelle und sechs theoretische Radial-Verteilungskurven von Biscyclobutyl (Dämpfungskonstante $k = 0.0015$) im Bereich 2,75 bis 6,5 Å; a) Experimentelle R.-V.-Kurve; b-g) Theoretische R.-V.-Kurven; b) ee-*s-trans*-Form; c) ea-*s-trans*-Form; d) aa-*s-trans*-Form; e) Mischung aus 52 % ee-*trans*-, 40 % ea-*trans*- und 8 % aa-*trans*-Form; f) ee-*gauche*-Form, $\varphi = 60^\circ$ (ee-60°-Form); g) Mischung aus 31 % ee-*trans*-, 24 % ea-*trans*-, 5 % aa-*trans*- und 40 % ee-60°-Form.

der experimentellen R.-V.-Kurve enthalten, da alle von der Konformation abhängigen Abstände des Moleküls in diesem Bereich liegen.

Zunächst wurden für die drei „klappisomeren“ *s-trans*-Formen ($\varphi = 180^\circ$) theoretische Radial-Verteilungskurven berechnet (siehe Abb. 4 b, c, d). Keine dieser drei Kurven stimmt auch nur annähernd mit der experimentellen Kurve (Abb. 4a) überein. Damit ist ausgeschlossen, dass eine der drei *trans*-Formen des Biscyclobutyls in der Gasphase als einzige Form existiert. Dagegen zeigt die theoretische R.-V.-Kurve einer Mischung von 52 % ee-*s-trans*-, 40 % ea-*s-trans* und 8 % aa-*s-trans*-Form (Abb. 4 e) eine verhältnismässig grosse Ähnlichkeit zur experimentellen Kurve.

Für das Mischungsverhältnis wurde die Annahme zugrunde gelegt, dass der Energieunterschied zwischen der ee-*trans*- und der ea-*trans*-Form gleich dem zwischen der ea-*trans*- und der aa-*trans*-Form ist. Unter Berücksichtigung des statistischen Gewichtes 2 für die ea-Form ergaben sich dann nach Festsetzung des Anteiles einer Form die Anteile der beiden anderen gemäss dem Boltzmann'schen Verteilungssatz.

Zwischen der theoretischen Kurve der *trans*-Mischung und der experimentellen Kurve bestehen jedoch bezeichnende Unterschiede, besonders in den Bereichen 3,0 bis 3,3 Å und 4,0 bis 4,1 Å. Diese Diskrepanzen in der theoretischen Kurve konnten durch Veränderung der Anteile der verschiedenen *trans*-Formen nicht behoben werden, sie zeigen somit an, dass neben den „klappisomeren“ *trans*-Formen noch irgendwelche rotationsisomere Formen im Gemisch vorliegen.

Zum Auffinden möglicher Torsionswinkelbereiche für die nicht-*trans*-Formen wurden folgende zwei Kriterien herangezogen:

- 1) die intramolekulare H...H-Wechselwirkung
- 2) das sog. „Abstandsdiagramm“ für die φ -abhängigen C...C- und C...H-Abstände.

Im einzelnen berechnete man für alle drei „klappisomeren“ Formen sämtliche Abstände im Molekül in Abhängigkeit vom Torsionswinkel φ , dieser wurde dabei von 0 bis 180° in Schritten von je 10° variiert. Aus den gewonnenen H...H-Abständen (R_{HH}) berechnete man nach der von Bartell⁸ für den intramolekularen Fall als brauchbar angegebenen Formel

$$E_{HH} = -49,2 R_{HH}^{-6} + 6600 \exp(-4,09 R_{HH}) \text{ [kcal/Mol]}$$

die H...H-Wechselwirkungsenergien (E_{HH}). Die Summe aller H...H-Wechselwirkungsenergien im Molekül wurde als Funktion des Torsionswinkels graphisch dargestellt (vgl. Abb. 5); aus den resultierenden drei Potentialkurven, je eine für ee-, ea- und aa-Form, konnte man die Lagen der Minima als wahrscheinliche Torsionswinkel des freien Moleküls entnehmen. Die berechneten C...C- und C...H-Abstände im Bereich 2,75 bis 6,5 Å wurden ebenfalls als Funktion des Torsionswinkels graphisch dargestellt und die so erhaltenen Abstandsdiagramme mit der experimentellen R.-V.-Kurve verglichen. Sie erlaubten eine Abschätzung, bei welchen Torsionswinkeln die zu erwartende theoretische R.-V.-Kurve mit der experimentellen vereinbar ist.

Die für die Minima in den H...H-Potentialkurven abgelesenen Torsionswinkel ($\varphi = 45^\circ$ für die ee-, $\varphi = 70^\circ$ für die ea- und $\varphi = 93^\circ$ für die aa-Form) liessen gemäss dem Abstandsdiagramm theoretische R.-V.-Kurven erwarten, die der experimentellen Kurve nicht widersprechen. Darum wurden für die drei „gauche-Klappisomeren“ des Moleküls, ee-45°, ea-70°- und aa-93°-Form, die theoretischen R.-V.-Kurven berechnet. Da, wie erwartet, keine dieser

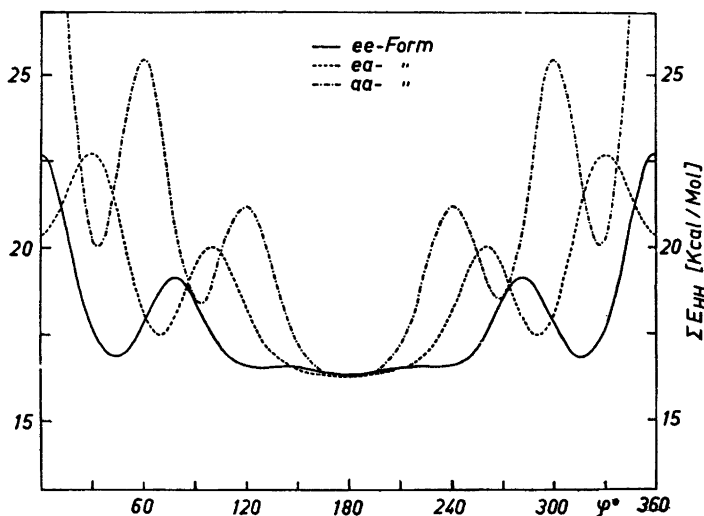


Abb. 5. Summe der H...H-Wechselwirkungsenergien im Bicyclobutylmolekül in Abhängigkeit vom Torsionswinkel φ (H...H-Wechselwirkung berechnet nach Bartell;⁸ $E_{HH} = -49,2 R_{HH}^{-6} + 6600 \cdot \exp[-4,09 \cdot R_{HH}]$).

Einzelkurven die experimentelle erfüllte, mischte man nach dem gleichen Prinzip wie bei den drei *trans*-Isomeren diese *gauche*-Formen und kombinierte die resultierende Kurve in verschiedenen Gewichtsverhältnissen mit derjenigen für die Mischung der *trans*-Formen. Bei einem Verhältnis von 60 % *trans*- zu 40 % *gauche*-Formen war die Übereinstimmung zwischen theoretischer und experimenteller Kurve am besten (siehe Abb. 2 c). Sie liess sich noch etwas verbessern, wenn man den Anteil der ee-45°-Form in der Mischung der *gauche*-Formen von 52 auf 65 % erhöhte, doch blieb eine bezeichnende Diskrepanz zwischen theoretischer und experimenteller Kurve bei 3,0 bis 3,3 Å auch dann bestehen.

Da ausserdem der dritte Peak in der theoretischen Kurve, der vom Viering-Diagonalabstand und vom C...H-Abstand über einen Winkel herrührt, gegenüber dem in der experimentellen Kurve zu einem niedrigeren Wert verschoben war, war zu vermuten, dass die beiden Vierringe im Biscyclobutyl weniger stark gefaltet sind als das Cyclobutan selbst. Der Diagonalabstand im theoretischen Modell wurde daher so vergrössert, dass die Peaklagen in der theoretischen und experimentellen Kurve übereinstimmten, was einem β -Winkel von 22° entsprach. Bei der Wiederholung der gesamten Rechnung nach dem geschildertem Schema mit diesem Wert für β zeigte sich, dass die für $\beta = 33^\circ$ erreichte Übereinstimmung im Bereich 2,75 bis 6,5 Å völlig verlorenging. Eine genaue Untersuchung ergab, dass auf jeden Fall für die *trans*-Formen der Winkel β etwa 33° gross sein muss, denn für sie würde eine stärkere Einebnung der Ringe eine Vergrösserung der Gesamt-H...H-Wechselwirkungsenergie mit sich bringen; für die *gauche*-Formen in der ea- und aa-Konformation hingegen würde diese Einebnung eine Verminderung der H...H-Wechselwirkungsenergie bei gleichzeitiger Verschiebung der Minima in der H...H-Potentialkurve nach 63° bzw. 77° bedeuten; für die ee-*gauche*-Form würde sich das Minimum von 45° nach 48° verschieben und die Gesamt-H...H-Wechselwirkungsenergie geringfügig vergrössern. Nur für die ea- und die aa-*gauche*-Form wäre also eine Abflachung der Ringe wahrscheinlich. Lässt man die H...H-Wechselwirkungs-Potentialkurve ausser acht, so stellt man fest, dass die theoretische R.-V.-Kurve einer ee-*gauche*-Form mit $\varphi = 60^\circ$ wesentlich besser zur experimentellen Kurve passt als diejenige der ee-45°-Form (vgl. Abb. 4f). Dementsprechend liess sich die Übereinstimmung mit der experimentellen Kurve im Bereich 3,0 bis 3,3 Å weiter verbessern, wenn anstelle der Mischung von *gauche*-Formen (ee-45°, ea-70°- und aa-93°-Form) 40 % der ee-60°-Form mit dem Gemisch der *trans*-Konformerer kombiniert wurden (siehe Abb. 4g).

Die beste Übereinstimmung zwischen theoretischer und experimenteller R.-V.-Kurve im gesamten Bereich 2,75 bis 6,5 Å ergab sich bei Annahme der in Tabelle 2 aufgeführten Zusammensetzung des Konformerengemisches, (siehe Abb. 2b). Die für dasselbe Gemisch berechnete theoretische Intensitätskurve ist in Abb. 1 der experimentellen Kurve gegenübergestellt.

DISKUSSION DER ERGEBNISSE UND FEHLERGRENZEN

Die Fehlergrenze der für die verschiedenen Konformerer in Tab. 2 angegebenen Torsionswinkel beträgt ca. $\pm 10^\circ$. An Hand der experimentellen

Radial-Verteilungskurve ist das Vorliegen der Konformeren *ee-s-trans* ($\varphi = 180^\circ$), *ea-s-trans* ($\varphi = 180^\circ$) und *ee-gauche* ($\varphi = 60^\circ$) sicher nachgewiesen; der Anteil der *ea-gauche*-Form ($\varphi = 63^\circ$) liegt knapp an der Grenze der Nachweisbarkeit, während die sehr kleinen Anteile der *aa-s-trans*-($\varphi = 180^\circ$) und *aa-gauche*-Form ($\varphi = 77^\circ$) nicht direkt, sondern nur aus statistischen Überlegungen anzunehmen sind. Die Fehlergrenze für die ermittelten prozentualen Anteile muss nämlich nach allgemeiner Erfahrung mit rd. $\pm 10\%$ angesetzt werden. Trotzdem lassen sich aus dem gefundenen Mischungsverhältnis Anhaltswerte für die Energieunterschiede zwischen den verschiedenen Formen gewinnen. Danach stellt die *ee-s-trans*-Form die energetisch günstigste dar; die *ee-gauche*-Form und die *ea-s-trans*-Form haben innerhalb der Fehlergrenze gleiche Häufigkeit und sind um rd. 500 bis 600 cal/Mol energiereicher als die *ee-s-trans*-Form. Für die *ea-gauche*-Form ergibt sich ein Energieunterschied von rd. 1400 cal/Mol zur *ee-s-trans*-Form, wenn das statistische Gewicht 4 für diese Form berücksichtigt wird.

Die für die *gauche*-Formen gefundenen Gleichgewichtstorsionswinkel zeigen an, dass die Torsionspotentialkurve des Biscyclobutyls wie diejenige von Äthanderivaten dreizählig ist. Ausser der H...H-Wechselwirkung, die bei der *ee-gauche*-Form einen Torsionswinkel von 45° begünstigen würde, muss noch ein anderer Faktor (evtl. σ -Bindungswechselwirkung) für das Torsionspotential massgebend sein, der einen nahe bei 60° liegenden Torsionswinkel für die *gauche*-Form stärker begünstigt.

Die Untersuchung der Rotationsisomerie des Biscyclopropyls hatte sichere Hinweise auf die Torsionsamplituden der im Gaszustand vorliegenden *gauche*- und *trans*-Form ergeben.² In der vorliegenden Untersuchung des Biscyclobutyls hingegen liess sich auch schon bei Annahme eines Gemisches starrer Konformerer gute Übereinstimmung zwischen theoretischer und experimenteller R.-V.-Kurve erzielen. Dies deutet darauf hin, dass die Torsionsamplituden dieses Moleküls kleiner sind als die des Biscyclopropyls. Wegen der grösseren Vielfalt an Konformeren ist beim Biscyclobutyl die Frage nach der Grösse der Torsionsamplitude allerdings auch schwieriger zu entscheiden. Weitere Rechnungen zur Beantwortung dieser Frage wurden daher nicht angestellt.

Der für die C—C-Bindung im Ring ermittelte Wert von 1,548 Å stimmt gut mit den von anderen Autoren für Cyclobutan^{6,9} und einige Cyclobutan-derivate⁷ gefundenen Werten überein. Die Länge der C—C-Bindung zwischen

Tabelle 2. Aus der experimentellen Radial-Verteilungskurve abgeleitete Zusammensetzung des Konformeren-Gemisches im gasförmigen Biscyclobutyl.

φ	ee-Form	ea-Form	aa-Form
180°	31 %	24 %	(5 %)
60°	26 %	—	—
63°	—	12 % ^a	—
77°	—	—	(2 %) ^a

^a Für diese Formen wurde der Winkel $\beta = 22^\circ$ verwendet (vgl. Abb. 3). Die eingeklammerten Anteile waren nicht direkt nachweisbar.

den Ringen liess sich nicht genau bestimmen, da sie nur im Verhältnis 1:8 neben den anderen C—C-Bindungen vorhanden ist. Es scheint vernünftig, für sie einen kleineren Wert als für die Ring-C—C-Bindung anzunehmen, obwohl die experimentelle R.-V.-Kurve keinen direkten Hinweis darauf liefert. Die relativ grosse Unsicherheit in dieser Annahme ist für das Konformationsproblem allerdings ohne Bedeutung. Ebenso hat die Unsicherheit in den u -Werten, die für alle vom Torsionswinkel abhängigen Abstände geschätzt und proportional zu diesen Anständen gewählt wurden, keinen Einfluss auf das Ergebnis der Konformations-Untersuchung.

Die während der Untersuchung nötigen numerischen Rechnungen wurden je zur Hälfte auf der elektronischen Rechenanlage der Universität Oslo (Typ IBM 1620 II) und im Rechenzentrum der Aerodynamischen Versuchsanstalt in Göttingen (Typ IBM 7040/1401) vorgenommen.

Herrn Prof. Dr. O. Bastiansen, Oslo, danke ich herzlich für die freundliche Aufnahme in seinem Institut, für viele anregende Diskussionen und Hinweise sowie für die kritische Durchsicht dieses Manuskriptes. Herr Prof. Dr. W. Lüttke, Göttingen, regte ursprünglich diese Untersuchung an; dafür und für sein stets förderndes Interesse möchte ich ihm danken. Besonderer Dank gilt auch Herrn cand.real. A. Almenningen, Oslo, der die sorgfältige Durchführung der Beugungsaufnahmen besorgte. Nicht zuletzt danke ich der Dr.-Karl-Merk-Stiftung für ein Reisestipendium sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft, Bad Godesberg, dem Fonds der Chemischen Industrie, Düsseldorf, und der Badischen Anilin- und Sodafabrik, Ludwigshafen, für die Unterstützung dieser Arbeit durch Sachbeihilfen.

LITERATURHINWEISE

1. Lüttke, W., de Meijere, A., Wolff, H., Ludwig, H. und Schrötter, H. W. *Angew. Chem.* **78** (1966) 141.
2. Bastiansen, O. und de Meijere, A. *Angew. Chem.* **78** (1966) 142; *Acta Chem. Scand.* **20** (1966) 516.
3. Lüttke, W. und de Meijere, A. *Chem. Ber.* **99** (1966). *Im Druck.*
4. Bastiansen, O. und Skancke, P. N. *Advan. Chem. Phys.* **3** (1961) 323.
5. Almenningen, A. und Bastiansen, O. *Acta Chem. Scand.* **9** (1955) 815.
6. Bastiansen, O. und Skancke, P. N. *Acta Chem. Scand.* **15** (1961) 711.
7. Bastiansen, O. und Walloe, L. *Erscheint demnächst.*
8. Bartell, L. S. *J. Chem. Phys.* **32** (1960) 827.
9. Lord, R. C. und Stoicheff, B. P. *Can. J. Phys.* **40** (1962) 725.

Eingegangen am 14. Dezember 1965.