

## **CNDO/CI-Untersuchungen der Elektronenspektren von Chinon- und Chinonmethidmodellen\***

Von

**Milan Remko und Jan Polčín**

Forschungsinstitut für Papier und Zellstoff, Bratislava, Tschechoslowakei

Mit 1 Abbildung

(Eingegangen am 7. Dezember 1976)

*LCAO MO Investigations on Lignin Model Compounds. V.  
CNDO/CI Calculations on Electronic Spectra of Quinoide and  
Quinone Methide Structures*

The CNDO method in the modification of *Del Bene* and *Jaffé* was used for investigations on the electronic spectra of o-benzoquinone, 4-methyl-o-benzoquinone, hydroxy-p-benzoquinone and p-quinone methide.

### Einführung

Zum Unterschied von Ligninchromophoren, welche durch Konjugation des Benzolringes mit dem Carbonyl oder der Doppelbindung in der Seitenkette entstehen, sind die Ligninchromophore vom Chinon- und Chinonmethid-Typ ein erweiterter Chromophortyp aus konjugierten Doppelbindungen und Carbonylen. Die einfachen chinoiden Strukturen sind leicht gefärbte Chromogene, deren Farbe mit der Einführung eines auxochromen Substituenten (Hydroxyl, Methoxyl) stark ansteigt.

In der vorliegenden Arbeit werden die Elektronenspektren von o-Benzochinon theoretisch untersucht, weiters der Einfluß einer OH- und CH<sub>3</sub>-Substitution auf die Elektronenspektren des Hydroxy-p-benzochinons und 4-Methyl-o-benzochinons, sowie des p-Chinonmethids mit Verwendung der semi-empirischen „all valence“ CNDO-Methode mit spektraler Parametrisierung<sup>1</sup>.

Die Elektronenspektren dieser Stoffe wurden mit experimentellen Methoden in vielen Arbeiten<sup>2-5</sup> untersucht. Theoretisch wurden die

\* Teil 5: LCAO MO-Untersuchung von Lignin-Modellsubstanzen. Teil 4: Chem. Zvesti 31 (1977), im Druck.

Elektronenspektren einiger Chinoidstrukturen insbesondere mit der PPP-Methode<sup>6</sup> interpretiert. *Stevenson*<sup>7</sup> führte eine CNDO/CI-Untersuchung des Effekts einer Methylsubstitution auf das Elektronenspektrum des p-Benzochinons durch.

### Berechnungsmethode und Geometrie

Die Elektronenspektren und die Elektronenstruktur der untersuchten Moleküle wurden mit der CNDO-Methode in der Modifizierung von *Del Bene* und *Jaffé*<sup>1</sup> berechnet.

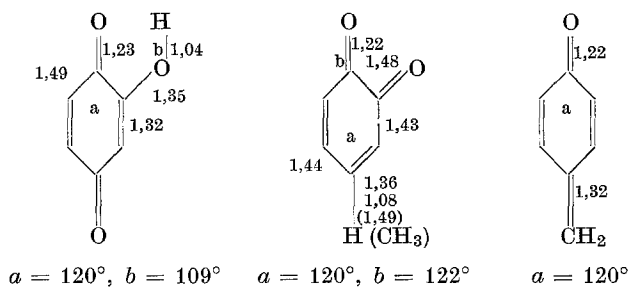


Abb. 1. Bindungslängen in den untersuchten Strukturen (in Å)

Die doppelzentrischen Repulsionsintegrale wurden mit der Approximation von *Mataga—Nishimoto*<sup>8</sup> berechnet. In der Konfigurationenentwicklung wurden in allen Fällen 30 der niedrigsten einfach angeregten Konfigurationen in Betracht gezogen. Die Berechnungen wurden mit dem Program QCPE am Rechner Siemens 4004/150 des Forschungsrechenzentrums der Komensky-Universität in Bratislava durchgeführt. Bei den Berechnungen wurde die Parametrisierung von *Kuehnlenz* und *Jaffé*<sup>9</sup> verwendet. Wir gingen von den Versuchsdaten der Röntgenanalyse von p-Benzochinon aus<sup>10</sup>. Die übrigen für die Berechnung verwendeten Dimensionen sind in Abb. 1 angegeben. Das Koordinationssystem wurde nach den Regeln von *Jaffé* gewählt<sup>11</sup>.

### Ergebnisse und Diskussion

#### *Hydroxy-p-benzochinon*

Im unpolaren Lösungsmittel besteht das experimentelle Spektrum des Hydroxy-p-benzochinons aus zwei gut von einander unterscheidbaren Banden, welche den zwei niedrigsten  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergängen entsprechen. Durch die Einführung des auxochromen Substituenten in

Form der Hydroxylgruppe werden diese Banden bathochrom zu längeren Wellenlängen verschoben, so daß der wenig intensive langwellige Übergang  $n \rightarrow \pi^*$  im experimentellen Spektrum nicht zu erfassen ist. Der theoretisch errechnete Wert der Transferenergie, 23,5 kK (Tab. 1), wird hauptsächlich vom Ladungsübergang vom Carbonylsauerstoff O-8 auf den Carbonylsauerstoff O-7 (Tab. 2) begleitet mit den dominierenden Konfigurationen  $22 \rightarrow 24$  und  $20 \rightarrow 26$ . Das Orbital 20 vom Typ  $n$  ist überwiegend (68%) in beiden C=O-Gruppen lokalisiert. Das  $\sigma$ -Orbital 22 ist über das ganze Molekül delokalisiert. Die Orbitale 24

Tabelle 1. *Elektronenspektrum von Hydroxy-p-benzoquinone*

Energie <sup>a</sup>			<i>f</i>	
Gef. <sup>14</sup>	Ber.		Gef. <sup>14</sup>	Ber.
—	23,5	$n \rightarrow \pi^*$	—	0
	26,3	$\sigma \rightarrow \pi^*$	—	0
27,4	34,7	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,03	0,038
39,4	46,3	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,22	0,271

<sup>a</sup> In kK.

und 26 sind  $\pi^*$ -Orbitale. Das Orbital 24 ist über das ganze  $\pi$ -System delokalisiert, das Orbital 26 hingegen ist überwiegend an C-2 (35%), C-5 (25%), O-7 und O-8 (24%) lokalisiert. Die nächsten zwei berechneten  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergänge sind um 6 kK höher als im experimentellen Spektrum (Tab. 1). Der  $\sigma \rightarrow \pi^*$ -Übergang (26,3 kK) mit den dominanten einfach angeregten Konfigurationen  $20 \rightarrow 24$  (66%) und  $22 \rightarrow 26$  (24%) wurde im experimentellen Spektrum nicht beobachtet. Diese  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergänge bestehen überwiegend aus folgenden einfach angeregten Konfigurationen:

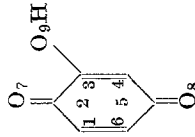
34,7 kK; 87%  $23 \rightarrow 24$ , 11%  $21 \rightarrow 24$

46,3 kK; 74%  $21 \rightarrow 24$ , 13%  $23 \rightarrow 25$

Die im Grundzustand besetzten  $\pi$ -Orbitale 21 und 23 sind hauptsächlich am Ring mit bedeutenden Beiträgen AO's beider Sauerstoffe O-7 und O-8 lokalisiert. Das  $\pi^*$ -Orbital 25 ist ringförmig lokalisiert, mit 25% an den C-1, C-3, C-4 und C-6.

Wie die atomare Populationsanalyse gezeigt hat (Tab. 2), wird der erste  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang von einem Ladungsübergang hauptsächlich vom Hydroxyl- und O-8-Carbonylsauerstoff in den Bereich des aromatischen Ringes begleitet. Der zweite  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang begleitet den Ladungsübergang beider Carbonylsauerstoffe in den Bereich des aromatischen Ringes.

Tabelle 2. Berechnete Ladungsdichten und Dipolmomente für den Grundzustand und einige angeregte niedrige Singulettzustände von Hydroxy-p-benzoquinon



$\nu$ , kK	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	O-7	O-8	O-9	$\mu \cdot 10^{29}$ , C. m.
0	-0,018	0,287	0,185	-0,056	0,263	0,019	-0,392	-0,398	-0,243	0,90
23,5	-0,105	0,227	0,118	-0,051	0,288	-0,054	-0,399	-0,219	-0,238	0,53
26,3	0,116	0,076	0,095	-0,153	-0,009	0,025	0,166	-0,145	-0,231	1,45
34,7	-0,166	0,127	0,275	0,342	0,167	-0,147	-0,483	-0,373	-0,113	1,64
46,3	0,156	0,068	0,029	-0,115	0,023	0,151	-0,320	-0,216	-0,235	1,42

*o-Benzochinon und 4-Methyl-o-benzochinon*

Im experimentellen Spektrum des *o*-Benzochinons, welches in einem unpolaren Lösungsmittel gemessen wurde, befinden sich außer einem wenig intensiven  $n \rightarrow \pi^*$ -Übergang bei 17,7 kK zwei  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Banden mittlerer Intensität bei 28,0 und 39,5 kK und eine starke  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Bande bei etwa 50,0 kK. Diese  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Banden sind im 4-Methyl-*o*-benzochinon zu kleineren Energien verschoben.

Tabelle 3. *Elektronenspektrum des o-Benzochinons*

Energie <sup>a</sup>			<i>f</i>	
Gef. <sup>6</sup>	Ber.		Gef. <sup>6</sup>	Ber.
17,7	18,3	$n \rightarrow \pi^*$	0	0
28,0	26,8	$\sigma \rightarrow \pi^*$	0,05	0
39,5	38,1	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,03	0,08
	39,7	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
	48,4	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
	49,9	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
	54,5	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
50,0	54,9	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,2	0,027
	55,6	$\pi \rightarrow \pi^*$		0,025

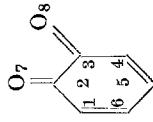
<sup>a</sup> In kK.

Die CNDO/CI-Berechnungen (Tab. 3, 5) der Elektronenspektren des *o*-Benzochinons und des 4-Methyl-*o*-benzochinons sind mit dem Experiment in sehr guter Übereinstimmung. Der erste berechnete Übergang im *o*-Benzochinon ist vom  $n \rightarrow \pi^*$ -Typ und besteht vor allem aus den einfach angeregten Konfigurationen  $19 \rightarrow 21$  (76%) und  $19 \rightarrow 22$  (12%). Das  $\sigma$ -Orbital 19 ist über das ganze Molekül, das  $\pi^*$ -Orbital 21 über das ganze  $\pi$ -System delokalisiert, während das  $\pi^*$ -Orbital 22 vorwiegend an C-1, C-3, C-6 (75%) lokalisiert ist. Die nächsten zwei berechneten Übergänge (von den Typen  $\sigma \rightarrow \pi^*$  und  $\pi \rightarrow \pi^*$ ) bestehen hauptsächlich aus den folgenden einfach angeregten Konfigurationen:

26,8 kK; 41%  $18 \rightarrow 21$ , 15%  $19 \rightarrow 23$ , 11%  $19 \rightarrow 24$   
 38,1 kK; 96%  $20 \rightarrow 21$

Das  $\sigma$ -Orbital 18 ist über das ganze Molekül delokalisiert, hingegen ist das  $\pi$ -Orbital 20 vor allem an C-1, C-4 und C-6 (75%) lokalisiert. Das  $\pi^*$ -Orbital 21 ist ringförmig delokalisiert und das  $\pi^*$ -Orbital 23 ist ringförmig zu je 25% an C-1, C-4, C-5 lokalisiert. Das delokalisierte  $\pi^*$ -Orbital 24 hingegen enthält einen bedeutenden Beitrag der AO's

Tabelle 4. Berechnete Ladungsdichten und Dipolmomente für den Grundzustand und einige angeregte niedrige Singulettzustände von *m*-Benzochinon



$\nu$ , kK	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	O-7	O-8	$\mu \cdot 10^{20}$ , C.m
0	— 0,001	0,284	0,722	— 0,006	0,019	— 0,025	— 0,353	— 0,367	2,29
18,3	— 0,084	0,274	0,280	— 0,014	— 0,013	— 0,170	— 0,326	— 0,225	1,54
26,8	0,009	0,102	0,205	— 0,010	0,109	— 0,051	— 0,186	— 0,399	2,93
38,1	0,159	0,135	0,151	0,132	— 0,004	— 0,001	— 0,394	— 0,374	3,05
54,9	— 0,123	0,149	0,116	— 0,048	0,032	— 0,121	— 0,161	— 0,044	1,07
55,6	0,391	— 0,079	0,136	0,032	— 0,241	0,166	— 0,332	— 0,261	2,98

C-2 und C-3. Vor den nächsten zwei  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergängen gibt es vier  $\sigma \rightarrow \pi^*$ -Übergänge 39,7; 48,3; 49,9; 54,5, welche im experimentellen Spektrum nicht beobachtet wurden. Die zwei berechneten  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergänge entsprechen im experimentellen Spektrum (Tab. 3) einem starken  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang und bestehen hauptsächlich aus folgenden einfach angeregten Konfigurationen:

$$54,9 \text{ kK}; 83\% \quad 20 \rightarrow 22$$

$$55,6 \text{ kK}; 80\% \quad 20 \rightarrow 23, \quad 11\% \quad 17 \rightarrow 21$$

Das  $\pi$ -Orbital 17 ist an C-5 (26%), C-6 (22%) und O-8 (19%) lokalisiert.

Tabelle 5. *Elektronenspektrum des 4-Methyl-o-benzochinons*

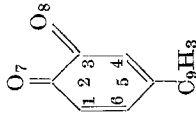
Energie <sup>a</sup>			<i>f</i>	
Gef. <sup>14</sup>	Ber.		Gef. <sup>14</sup>	Ber.
	12,3	$n \rightarrow \pi^*$		0
25,6	24,9	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,017	0,253
	26,5	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
	31,3	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
30,3	32,0	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,002	0,015
	31,7	$\pi \rightarrow \pi^*$		0,003
	35,3	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
	35,8	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
	40,5	$\sigma \rightarrow \pi^*$		0
37,0	41,8	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,031	0,119

<sup>a</sup> In kK.

Wie aus der Ladungsverteilungsanalyse (Tab. 4) hervorgeht, wird der  $n \rightarrow \pi^*$ -Übergang von einem Ladungsübergang von O-8, der  $\sigma \rightarrow \pi^*$ -Übergang von einem Ladungsübergang von O-7 in den Bereich des Ringes begleitet. Der erste  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang wird von einem Ladungsübergang aus dem Ring an die beiden Sauerstoffe O-7 und O-8 begleitet. Die letzten zwei  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergänge werden in verschiedenem Maße von Ladungsverschiebungen aus beiden Sauerstoffen in den Ring begleitet.

Der erste berechnete Übergang im 4-Methyl-o-benzochinon ist der  $n \rightarrow \pi^*$ -Übergang mit der Energie von 12,3 kK (Tab. 5); verglichen mit dem analogen  $n \rightarrow \pi^*$ -Übergang im o-Benzochinon ist er bathochrom verschoben. Er besteht aus mehreren einfach angeregten Konfigurationen, von denen das größte statistische Gewicht die Konfigurationen  $23 \rightarrow 26$  (36%);  $23 \rightarrow 29$  (20%) und  $23 \rightarrow 30$  (16%) haben. Auf diesen Übergang folgt der erste  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang mit der

Tabelle 6. Berechnete Ladungsdichten und Dipolmomente für den Grundzustand und einige angeregte niedrige Singulettzustände von 4-Methyl-o-benzochinon



$\nu$ , kK	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	O-7	O-8	C-9	$\mu \cdot 10^{29}$ , C. m
0	— 0,235	0,256	0,273	— 0,308	0,146	0,109	— 0,422	— 0,426	— 0,555	2,53
12,3	0,018	0,258	0,217	— 0,289	— 0,051	— 0,053	— 0,363	— 0,417	— 0,197	2,86
24,9	0,107	0,253	0,178	— 0,298	— 0,143	— 0,155	— 0,313	— 0,367	— 0,041	2,73
32,0	— 0,142	0,127	0,144	0,084	— 0,116	— 0,311	— 0,426	— 0,353	— 0,172	3,59
33,4	— 0,191	0,286	0,356	— 0,337	— 0,049	— 0,218	— 0,257	— 0,211	— 0,459	0,24
41,8	— 0,039	0,256	0,267	— 0,283	0,038	— 0,048	— 0,366	— 0,399	— 0,153	2,36



Energie von 24,9 kK und mit der dominierenden einfach angeregten Konfiguration  $23 \rightarrow 24$  (96%). Das  $\pi^*$ -Orbital 23 ist bedeutungsvoll am C-10 (56%) lokalisiert, während das  $\pi^*$ -Orbital 24 über den ganzen Ring delokalisiert ist; daher muß dieser Übergang von einer starken Ladungsverschiebung von der  $\text{CH}_3$ -Gruppe in den Ring begleitet werden, was auch die berechneten Ladungsdichten für den Ausgangszustand und einige angeregte Singlettzustände in Tab. 6 bestätigen. Auf diesen Übergang folgen zwei  $\sigma \rightarrow \pi^*$ -Übergänge (26,5 kK, 31,3 kK), welche im experimentellen Spektrum nicht beobachtet wurden.

Tabelle 7. Elektronenspektrum von *p*-Chinonmethid

Energie <sup>a</sup>			<i>f</i>	
Gef. <sup>12</sup>	Ber.		Gef. <sup>12</sup>	Ber.
—	26,7	$n \rightarrow \pi^*$	—	0
35,5	41,6	$\pi \rightarrow \pi^*$	0,4	0,5
—	43,4	$\pi \rightarrow \pi^*$	—	0,003

<sup>a</sup> In kK.

Die weiteren zwei berechneten Übergänge sind vom  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Typ. Sie bestehen hauptsächlich aus folgenden einfach angeregten Konfigurationen:

32,0 kK; 56%  $23 \rightarrow 25$ , 42%  $22 \rightarrow 24$

33,4 kK; 52%  $22 \rightarrow 24$ , 39%  $23 \rightarrow 25$

Das  $\pi$ -Orbital 22 enthält einen bedeutungsvollen Beitrag des AO's C-10 (26%) und O-8 (10%). Das  $\pi^*$ -Orbital 25 ist über den ganzen Ring delokalisiert. Dem letzteren experimentell gefundenen Kurzwellenübergang vom  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Typ mit der Energie von 37,0 kK entspricht der gleiche berechnete Übergang mit der Energie von 41,8 kK. Vor diesem Übergang fanden drei im experimentellen Spektrum nicht beobachtete  $\sigma \rightarrow \pi^*$ -Übergänge mit Energien 35,3; 35,8 und 40,5 kK statt. Bei diesem Übergang dominiert die einfach angeregte Konfiguration  $22 \rightarrow 25$  (94%). Die berechneten Ladungsdichten für den Ausgangszustand und einige angeregte Singletts sind in Tab. 6 angeführt.

#### *p*-Chinonmethid

Das *p*-Chinonmethid ist bei normaler Temperatur sehr unbeständig, deshalb kann sein Spektrum nur schwer experimentell gemessen werden. Von *Musil* et al.<sup>12</sup> wurde ein intensiver Übergang bei 35,5 kK

Tabelle 8. Berechnete Ladungsdichten und Dipolmomente für den Grundzustand und einige angeregte niedrige Singulettzustände von *p*-Chinonmethid



$\nu$ , kK	C-1	C-2	C-3	C-4	C-5	C-6	C-7	O-8	$\mu \cdot 10^{29}$ , C. m
0	0,030	-0,019	0,030	-0,065	0,289	-0,065	-0,018	-0,428	1,99
26,7	-0,078	-0,016	-0,078	-0,056	0,283	-0,056	-0,111	-0,205	0,36
41,6	0,034	0,029	0,034	0,070	-0,019	0,070	-0,047	-0,440	2,56
43,4	0,105	-0,114	0,105	0,096	0,174	0,096	-0,324	-0,426	0,44

gefunden. *Copping* und *Bauer*<sup>13</sup> fanden approximativ aus einem ähnlichen  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang im p-Benzochinon den Wert 37,1 kK.

Aus unserer CNDO/CI-Berechnung (Tab. 7) geht hervor, daß der erste Übergang vom  $n \rightarrow \pi^*$ -Typ ist und die Energie 26,7 kK hat. Dieser Übergang besteht hauptsächlich aus den einfach angeregten Konfigurationen  $19 \rightarrow 21$  (64%) und  $19 \rightarrow 23$  (20%). Das  $\sigma$ -Orbital 19 ist hauptsächlich an O-8 (40%) und C-4, C-5, C-6 (38%) lokalisiert. Das  $\pi^*$ -Orbital 21 ist ringförmig delokalisiert und enthält einen bedeutungsvollen Beitrag des AO's C-7. Das  $\pi^*$ -Orbital 23 ist im Ring an C-2 (31%), C-5 (25%) und C-7 (23%) lokalisiert. Die nächsten zwei berechneten Übergänge sind vom  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Typ und bestehen insbesondere aus den folgenden einfach angeregten Konfigurationen:

41,6 kK; 94%  $20 \rightarrow 21$

43,4 kK; 98%  $18 \rightarrow 21$

Das  $\pi$ -Orbital 18 ist ringförmig mit je 25% an C-1, C-3, C-4 und C-6 lokalisiert. Der erste berechnete intensive  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang ist um etwa 6 kK größer als der experimentell gefundene (35,5 kK). Wie die Ladungsverteilungsanalyse (Tab. 8) gezeigt hat, wird der  $n \rightarrow \pi^*$ -Übergang von einem großen Ladungstransfer vom Sauerstoff O-8 zu C-7 begleitet. Den ersten  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang begleitet insbesondere der Ladungstransfer aus dem Chinonmethidring zu C-7 und O-8. Der zweite  $\pi \rightarrow \pi^*$ -Übergang wird von einer Ladungstransfer aus dem Ring in die Methidgruppe  $C=CH_2$  begleitet.

### Zusammenfassung

Die CNDO/CI-Methode wurde auf die theoretische Interpretation der Elektronenspektren der Chinonen und des p-Chinonmethids angewendet. Die berechneten Transferenergien sind in guter Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Gültigkeit der CNDO/CI-Rechnungen aber hängt von der vorausgesetzten Parametrisierung ab. Die bei uns verwendete Parametrisierung von *Kuehnlenz* und *Jaffé*<sup>9</sup> wurde erfolgreich zur Untersuchung der Elektronenspektren vielen organischen Verbindungen benutzt<sup>15</sup>.

### Literatur

- <sup>1</sup> J. Del Bene und H. H. Jaffé, J. Chem. Phys. **48**, 1807 (1968).
- <sup>2</sup> G. Aulin-Erdtman, Svensk Papperst. **47**, 91 (1944); **50**, 81 (1947); **51**, 471 (1948); **55**, 745 (1952); **56**, 91 (1953); **57**, 745 (1954); **59**, 363 (1956); **61**, 187 (1958).
- <sup>3</sup> K. Freudenberg und K. Schuhmacher, Sitzber. Heidelberger Akad. Wiss., Mathem.-naturwiss. Kl. 3 sbh. (1953—55), 127.

- <sup>4</sup> J. Polčín und W. H. Rapson, Pulp and Paper Mag. Can. **70**, T 555 (1969); Chem. Abstr. **72**, 16 (1970).
- <sup>5</sup> J. C. Pew and W. J. Connors, TAPPI **54**, 245 (1971).
- <sup>6</sup> A. Kuboyama, S. Matsuzaki, H. Takagi und H. Arano, Bull. Chem. Soc. Japan **47**, 1604 (1974) und dort zitierte Lit.
- <sup>7</sup> E. P. Stevenson, J. Phys. Chem. **76**, 2424 (1972).
- <sup>8</sup> N. Mataga und K. Nishimoto, Z. Phys. Chem. [Frankfurt/M.] **13**, 140 (1957).
- <sup>9</sup> G. Kuehnlenz und H. H. Jaffé, J. Chem. Phys. **58**, 2238 (1973).
- <sup>10</sup> L. E. Sutton, Tables of Interatomic Distances and Configuration in Molecules and Ions. Spec. Publ. N. 11 and 18, Chem. Soc. London 1958, 1965.
- <sup>11</sup> M. Orchin und H. H. Jaffé, Symetry, Orbitals, and Spectra. Wiley-Interscience. 1971.
- <sup>12</sup> L. Musil, M. Pišová, J. Pospíček und M. Souček, Coll. Czechoslov. Chem. Comm. **41**, 2238 (1976).
- <sup>13</sup> G. M. Coppinger und R. H. Bauer, J. Phys. Chem. **67**, 2846 (1963).
- <sup>14</sup> J. Polčín, unveröffentl. Ergebnisse.
- <sup>15</sup> R. L. Ellis, H. Kuehnlenz und H. H. Jaffé, Theor. chim. Acta **26**, 131 (1972).

Korrespondenz und Sonderdrucke:

Dr. M. Remko  
Forschungsinstitut für Papier  
und Zellstoff  
Lamačská 7  
CS-890 20 Bratislava  
Tschechoslowakei