

Massenspektrometrische Bestimmung der thermodynamischen Aktivitäten von flüssigen Gold—Kobalt-Legierungen*

Von

Adolf Neckel, László Erdélyi und Eveline Buschmann

Institut für Technische Elektrochemie, Technische Hochschule Wien,
Österreich

und

Hans Nowotny

Institut für Physikalische Chemie, Universität Wien, Österreich

Mit 9 Abbildungen

(Eingegangen am 13. November 1974)

Mass Spectrometric Determination of the Thermodynamic Activities of the Liquid System Gold—Cobalt

The thermodynamic activities and the heats of mixing of liquid Au—Co alloys have been determined using a *Knudsen* cell in combination with a mass spectrometer. At 1770 K the maximum value of the excess *Gibbs* free energy, ΔG^E , is 790 cal/g-atom (63 at% Co), the maximum value of the heat of mixing, ΔH , is 1930 cal/g-atom (42 at% Co).

In der vorliegenden Arbeit wird über die Bestimmung der thermodynamischen Aktivitäten von flüssigen Gold—Kobalt-Legierungen mit Hilfe der *Knudsen*-Effusionsmethode in Verbindung mit einem Massenspektrometer berichtet.

Der Partialdruck p_i einer Komponente i in der *Knudsenzelle* ist mit der gemessenen Intensität I_i des Ionenstroms durch Gl. (1) verknüpft

$$p_i = \frac{k I_i T}{\sigma_i \gamma_i N_i^k} \quad (1)$$

k : apparativer Faktor; T : absol. Temperatur; σ_i : Ionisierungsquerschnitt für Elektronenstoßionisierung; γ_i : Ausbeutefaktor des Sekundärelektronenvervielfachers; N_i^k : relative Häufigkeit des Isotops k .

Die Bestimmung der Aktivität a_i einer Komponente durch unabhängige Messung des Partialdruckes p_i und des Dampfdruckes p_{i0}

* Herrn Prof. Dr. *Richard Kieffer* zum 70. Geburtstag gewidmet.

der reinen Komponente wird durch den Umstand erschwert, daß der apparative Faktor k bei einem Probenwechsel vielfach in unkontrollierbarer Weise verändert wird. Die dadurch bedingten Probleme können jedoch durch Bildung des Verhältnisses der Partialdrücke der Komponenten eines binären Legierungssystems umgangen werden¹:

$$\frac{p_i}{p_j} = \frac{I_i \sigma_j \gamma_j N_j^l}{I_j \sigma_i \gamma_i N_i^k}. \quad (2)$$

Zu einer Beziehung zwischen dem gemessenen Verhältnis der Intensitäten der Ionenströme und einer thermodynamischen Mischungsgröße kann man auf folgendem Wege gelangen:

Für eine binäre Mischung ist das totale Differential der freien Zusatzenthalpie ΔG^E bei konstantem Druck und konstanter Temperatur gegeben durch

$$d(\Delta G^E) = x_1 RT d \ln f_1 + x_2 RT d \ln f_2 + RT \ln f_1 dx_1 + RT \ln f_2 dx_2. \quad (3)$$

x_i : Molenbruch der Komponente i ; f_i : Aktivitätskoeffizient der Komponente i .

Berücksichtigt man für konstante Temperatur und konstantem Druck die *Gibbs—Duhemsche* Beziehung

$$(1 - x_2) RT d \ln f_1 + x_2 RT d \ln f_2 = 0, \quad (4)$$

so erhält man aus Gl. (3)

$$\frac{\partial \Delta G^E}{\partial x_2} = RT \ln \frac{f_2}{f_1} = RT \ln \frac{p_2 (1 - x_2)}{p_1 x_2} + RT \ln \frac{p_{01}}{p_{02}}. \quad (5)$$

p_{0i} : Dampfdruck der reinen Komponente i .

Ersetzt man das Partialdruckverhältnis (p_2/p_1) in Gl. (5) nach Gl. (2), so gelangt man zu

$$\frac{\partial \Delta G^E}{\partial x_2} = RT \ln \frac{I_2 x_1}{I_1 x_2} + C_G, \quad (6)$$

$$C_G = RT \ln \frac{p_{01} \sigma_1 \gamma_1 N_1^k}{p_{02} \sigma_2 \gamma_2 N_2^l}. \quad (7)$$

Gl. (6) stellt die gesuchte Beziehung zwischen dem Verhältnis der Ionenströme und einer thermodynamischen Mischungsgröße dar. Die Konstante C_G bestimmt man durch Integration von Gl. (6) in

den Grenzen $x_2 = 0$ und $x_2 = 1$

$$C_G = - \int_{x_2=0}^{x_2=1} RT \ln \frac{I_2 x_1}{I_1 x_2} dx_2. \quad (8)$$

Für die freie Überschußenthalpie ΔG^E erhält man somit

$$\begin{aligned} \Delta G^E(x_2) &= \int_{x_2=0}^{x_2} \frac{\partial \Delta G^E}{\partial x_2} dx_2 = \\ &= RT \int_{x_2=0}^{x_2} \ln \frac{I_2 x_1}{I_1 x_2} dx_2 + C_G x_2. \end{aligned} \quad (9)$$

Die chemischen Überschußpotentiale ermittelt man mit Hilfe der Gleichungen

$$\Delta G_1^E = \Delta G^E - x_2 \frac{\partial \Delta G^E}{\partial x_2}, \quad (10 a)$$

$$\Delta G_2^E = \Delta G^E + (1 - x_2) \frac{\partial \Delta G^E}{\partial x_2}. \quad (10 b)$$

Für die Mischungsenthalpie ΔH führt eine analoge Betrachtung zu den Beziehungen¹

$$\frac{\partial \Delta H}{\partial x_2} = \Delta H_2 - \Delta H_1 = R \frac{\partial \ln (I_2/I_1)}{\partial (1/T)} + C_H, \quad (11)$$

$$C_H = -R \int_{x_2=0}^{x_2=1} \frac{\partial \ln (I_2/I_1)}{\partial (1/T)} dx_2 = H_2^{0v} - H_1^{0v}. \quad (12)$$

$$\Delta H(x_2) = R \int_0^{x_2} \frac{\partial \ln (I_2/I_1)}{\partial (1/T)} dx_2 + C_H x_2. \quad (13)$$

Die Konstante C_H ist gleich der Differenz der Verdampfungsenthalpien H_i^{0v} der Reinstoffe².

Für die Anwendung dieses Verfahrens erweist es sich als vorteilhaft, wenn die Partialdrucke der beiden Komponenten etwa von gleicher Größenordnung sind.

Da das Dampfdruckverhältnis ($p_{0\text{Co}}/p_{0\text{Au}}$) im System Co—Au im untersuchten Temperaturbereich (1570—1880 K) zwischen 0,11 und 0,16 liegt, ist das System für eine massenspektrometrische Untersuchung besonders geeignet.

Experimenteller Teil

Für die Messungen wurde ein Massenspektrometer Varian-MAT, Modell CH 4 mit einer *Knudsen*-Zelle MS 22 benützt. Die Reinstoffe (Au-Blech, 99,99%, Fa. Bauer, Wien; Co-Stangen, 99,998%, Koch-Light Lab. Ltd., England) im Gewicht von 0,7—1,5 g wurden in einen Al_2O_3 -Tiegel eingewogen, der in die *Knudsen*-zelle eingesetzt wurde. Die Proben wurden im Massenspektrometer erschmolzen und etwa 30 Min. auf 1550°C gehalten. Nachdem sich die Intensitäten der Ionenströme auf einen konstanten Wert eingestellt hatten, wurde mit den Messungen begonnen. Um eine raschere Gleichgewichtseinstellung zu erreichen, wurden die

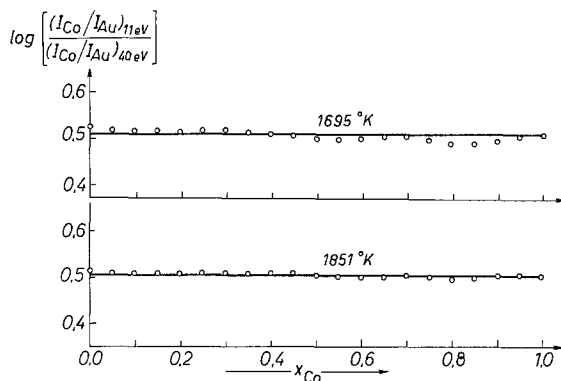


Abb. 1. Verhältnis der unter den Ionisierungsbedingungen von 11 eV und 40 eV erhaltenen $\log(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})$ -Werte

Intensitäten mit fallender Temperatur gemessen. Mit zunehmendem Co-Gehalt wurde die tiefste Temperatur des jeweiligen Meßbereichs erhöht, um Auskristallisieren zu vermeiden. Dementsprechend wurden auch bei den kobaltreichen Legierungen die Messungen zu höheren Temperaturen ausgedehnt ($T_{\text{max}} = 1877\text{ K}$). Die Temperaturmessung erfolgte mit einem Glühfaden-Teilstrahlungs-pyrometer (Pyro-Werke, Hannover) mit dessen Fernrohr die Effusionsöffnung der *Knudsen*-zelle anvisiert werden konnte. Diese Anordnung erlaubt die direkte Messung der Temperatur der Probenoberfläche.

Die Messungen wurden sowohl mit einer Ionisierungsspannung von 11 eV als auch 40 eV ausgeführt. Tritt keine Fragmentierung molekularer Species auf, so muß das Verhältnis $\ln(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})_{11\text{eV}}/\ln(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})_{40\text{eV}}$ über den gesamten Mischungsbereich konstant sein³. Einen solchen Test zeigt Abb. 1. Eine Verfälschung der Intensitäten der Atomionen durch Fragmentierung erscheint bei dem vorliegenden System ausgeschlossen, da bei $x_{\text{Co}} = 0,5$ ($T = 2000\text{ K}$) die Intensität von Au_2^+ etwa 850mal und die Intensität von AuCo^+ etwa 810mal geringer als die Intensität der Au^+ -Ionen ist. Bei beiden Meßreihen betrug die Stromstärke des ionisierenden Stromes $20\ \mu\text{A}$. Insgesamt wurden 35 Legierungen verschiedener Konzentration untersucht.

Meßergebnisse und Diskussion

Die ermittelten $\lg(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})$ -Werte für die untersuchten Konzentrationen sind in Abb. 2 gegen $1/T$ aufgetragen. Aus dieser Darstellung wurden für 1965 K und 1852 K die $\lg(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})$ -Werte interpoliert (Tab. 1). Anschließend wurden die $\lg(I_{\text{Co}}x_{\text{Au}}/I_{\text{Au}}x_{\text{Co}})$ -Werte für die beiden oben genannten Temperaturen sowie die $\partial \lg(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})/$

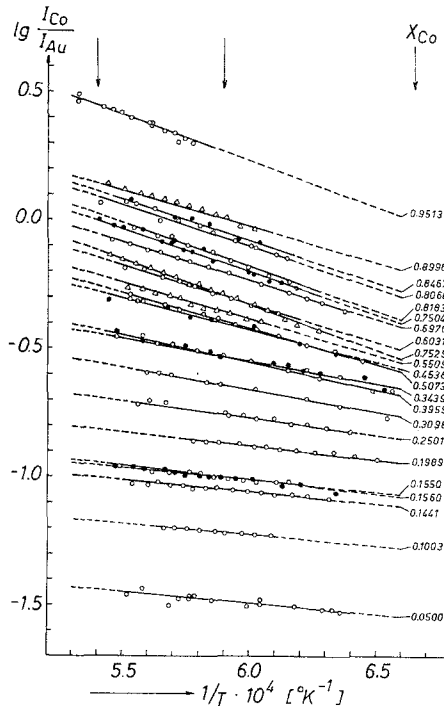


Abb. 2. $\lg(I_{\text{Co}}/I_{\text{Au}})$ vs. $1/T$ -Diagramm

$\partial(1/T)$ -Werte gebildet (Tab. 1, Abb. 3). Aus den graphisch ausgeglichenen $\lg(I_{\text{Co}}x_{\text{Au}}/I_{\text{Au}}x_{\text{Co}})$ -Kurven (Abb. 4 und 5) wurden die freien Überschußenthalpien ΔG^E und die partiellen molaren freien Überschußenthalpien ΔG_i^E für 1695 K und 1852 K berechnet (Tab. 3). Für eine mittlere Temperatur (1770 K) sind die ΔG^E -Werte in der Tab. 4 angegeben und in Abb. 6 graphisch dargestellt.

Die entsprechende Auswertung für die Mischungswärmen ΔH liefert die in Tab. 4 und Abb. 7 dargestellten Werte.

Den angegebenen thermodynamischen Daten liegen die bei 40 eV Ionisierungsspannung ermittelten Meßwerte zugrunde, da diese wegen

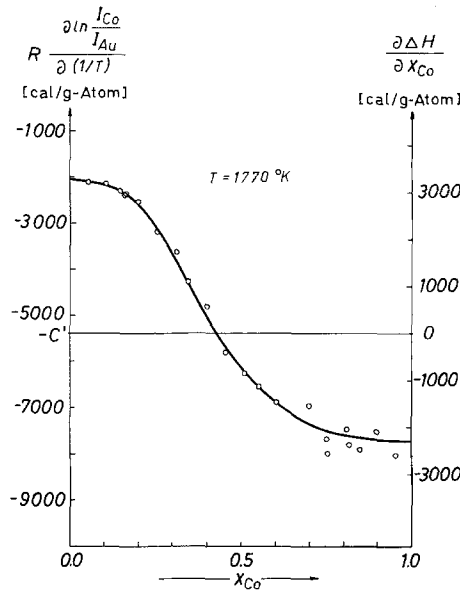


Abb. 3. $\partial R \ln(I_{Co}/I_{Au})/\partial (1/T)$ als Funktion der Kobaltkonzentration für die Temperatur 1770 K

Tabelle 1. $\lg(I_{Co}x_{Au}/I_{Au}x_{Co})$ - und $\partial \lg(I_{Co}/I_{Au})/\partial (1/T)$ -Werte

x_{Co}	$\lg(I_{Co}x_{Au}/I_{Au}x_{Co})$		$\partial \lg(I_{Co}/I_{Au})/\partial (1/T)$
	1695 K	1851 K	
0,3098	— 0,2931	— 0,2141	— 0,0790
0,1989	— 0,2650	— 0,2095	— 0,0555
0,1003	— 0,2672	— 0,2202	— 0,0470
0,3959	— 0,3500	— 0,2445	— 0,1055
0,8183	— 0,7995	— 0,6285	— 0,1710
0,6031	— 0,4827	— 0,3322	— 0,1505
0,6976	— 0,5720	— 0,4200	— 0,1520
0,5073	— 0,4082	— 0,2712	— 0,1370
0,2501	— 0,2831	— 0,2141	— 0,0690
0,1441	— 0,2783	— 0,2283	— 0,0500
0,8996	— 0,9523	— 0,7883	— 0,1640
0,5509	— 0,4508	— 0,3078	— 0,1430
0,7529	— 0,7788	— 0,6038	— 0,1750
0,3434	— 0,2525	— 0,1595	— 0,0930
0,8060	— 0,6935	— 0,5305	— 0,1630
0,4538	— 0,3265	— 0,1995	— 0,1270
0,0500	— 0,2074	— 0,1614	— 0,0460
0,7504	— 0,6501	— 0,4821	— 0,1680
0,8467	— 0,8032	— 0,6302	— 0,1730
0,1554	— 0,2689	— 0,2169	— 0,0520
0,9513	— 1,0243	— 0,8488	— 0,1755
0,1561	— 0,2671	— 0,2151	— 0,0520

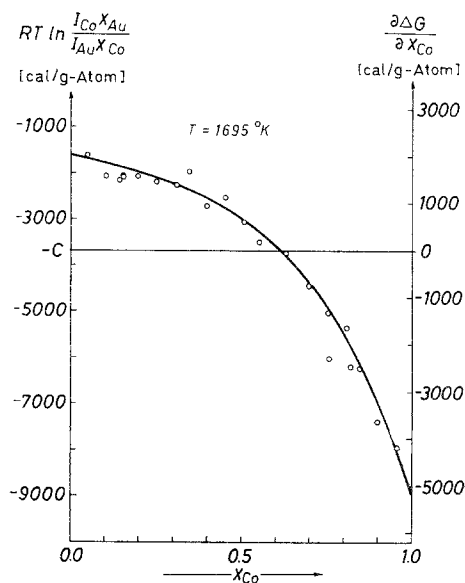


Abb. 4. $RT \ln(I_{\text{Co}}^x \text{Au} / I_{\text{Au}}^x \text{Co})$ als Funktion der Kobaltkonzentration für die Temperatur 1695 K

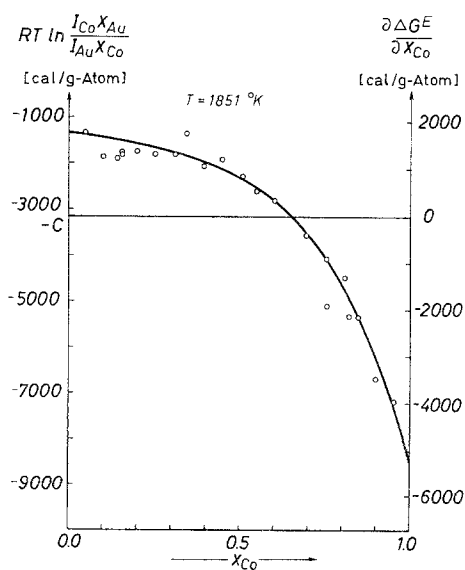


Abb. 5. $RT \ln(I_{\text{Co}}^x \text{Au} / I_{\text{Au}}^x \text{Co})$ als Funktion der Kobaltkonzentration für die Temperatur 1851 K

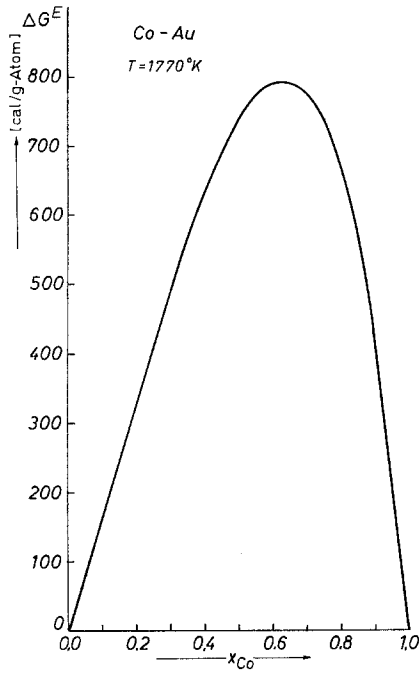


Abb. 6. Molare freie Überschenthalpie ΔG^E für die mittlere Temperatur 1770 K

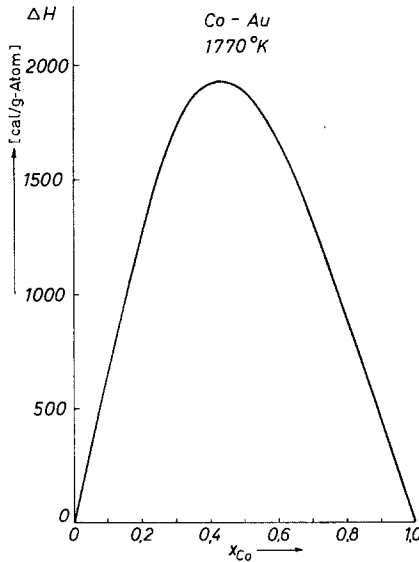


Abb. 7. Molare Mischungswärme ΔH bei 1770 K

der höheren Absolutintensitäten als genauer angesehen werden. Diese Daten unterscheiden sich aber nur unwesentlich von jenen, die auf den 11-eV-Messungen beruhen.

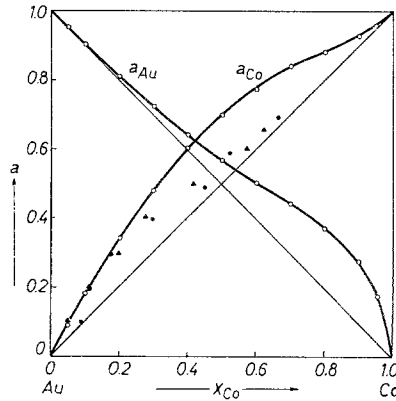


Abb. 8. Vergleich der Aktivitäten dieser Arbeit mit den Werten von Wang und Toguri⁴. —○—: diese Arbeit, 1770 K; ▲: Kobaltaktivitäten nach Wang und Toguri, 1523 K; ●: Kobaltaktivitäten nach Wang und Toguri, 1608 K

Tabelle 2. Kobalt- und Goldaktivitäten bei 1770 K

x_{Co}	a_{Co}	a_{Au}	f_{Co}	f_{Au}
0,0	0,000	1,000	1,610	1,000
0,1	0,161	0,900	1,608	1,000
0,2	0,318	0,802	1,590	1,002
0,3	0,464	0,708	1,545	1,012
0,4	0,596	0,620	1,489	1,033
0,5	0,694	0,547	1,388	1,095
0,6	0,772	0,482	1,287	1,205
0,7	0,833	0,415	1,190	1,382
0,8	0,889	0,344	1,112	1,719
0,9	0,917	0,278	1,019	2,777
1,0	1,000	0,000	1,000	3,949

Die Aktivitäten und die Aktivitätskoeffizienten für die mittlere Temperatur 1770 K sind in Tab. 2 wiedergegeben.

Die Aktivitäten von Kobalt in flüssigen Gold—Kobalt-Legierungen für $x_{Co} = 0$ bis 0,75 wurden von Wang und Toguri⁴ im Temperaturbereich 1520—1610 K gemessen. Diese Autoren setzen die Legierung in einer CO/CO₂-Atmosphäre mit bekanntem Sauerstoffpartialdruck mit

festem CoO ins Gleichgewicht. Die Kobaltaktivitäten wurden aus dem Kobaltgehalt der Legierung nach Gleichgewichtseinstellung bestimmt. Die Goldaktivitäten wurden durch Integration der *Gibbs—Duhemschen* Gleichung ermittelt. In Abb. 8 sind die von *Wang* und *Toguri* bestimmten Aktivitäten mit den in dieser Arbeit erhaltenen verglichen. Während man im Konzentrationsbereich $x_{\text{Co}} = 0$ bis 0,20 gute Übereinstimmung der Kobaltaktivitäten beobachtet, liegen für höhere Kobaltkonzentrationen die in der vorliegenden Untersuchung erhaltenen Werte beträchtlich positiver. *Predel* und *Zehnpfund*⁵ haben die Mischungswärmen flüssiger Gold—Kobalt-Legierungen im Konzentrationsbereich $x_{\text{Co}} = 0$ bis 0,313 bestimmt. Die ΔH -Werte dieser Autoren sind etwas kleiner als die der vorliegenden Arbeit; so beträgt der Unterschied bei der höchsten Kobaltkonzentration $x_{\text{Co}} = 0,31$ etwa 300 cal/g-Atom; er verringert sich bei kleineren Kobaltkonzentrationen.

Predel und *Zehnpfund*⁵ haben auf Grund des Schmelzdiagramms und mit Hilfe der kalorimetrisch bestimmten Mischungswärmen der festen und flüssigen Gold—Kobalt-Legierungen die Überschußentropien der flüssigen Legierungen im Konzentrationsbereich $x_{\text{Co}} = 0$ bis $x_{\text{Co}} = 0,20$ ermittelt. Die von diesen Autoren angegebenen Werte stimmen gut mit den in dieser Arbeit erhaltenen überein.

Die von *Kubik* und *Alcock*⁶ an Gold—Kobalt-Mischkristallen mit Hilfe galvanischer Festkörperzellen durchgeführten Bestimmungen der thermodynamischen Aktivitäten ergaben starke positive Abweichungen vom idealen Verhalten. Auf positive Abweichungen läßt bereits das Auftreten der Mischungslücke im festen Zustand schließen. Es war daher zu vermuten, daß auch die freien Überschußenthalpien ΔG^E und die Mischungswärmen ΔH für Gold—Kobalt-Schmelzen positiv sind. Tatsächlich beobachtet man positive ΔG^E -Werte mit einem Maximum von 790 cal/g-Atom ($T = 1770$ K) bei einem Molenbruch $x_{\text{Co}} = 0,65$. Die ΔG^E -Kurve (Abb. 6) verläuft unsymmetrisch, wobei das Maximum zu höheren Co-Konzentrationen verschoben ist. Die partiellen molaren freien Überschußenthalpien sind im gesamten Konzentrationsbereich positiv. Wie man aus den Tab. 3 und 4 ersieht, ist jeweils der Grenzwert von ΔG_{Co}^E wesentlich höher (4830 cal/g-Atom; $T = 1770$ K) als der Grenzwert von ΔG_{Au}^E (1670 cal/g-Atom; $T = 1770$ K). Die Mischungswärme ist endotherm mit einem Maximum von 1930 cal/g-Atom bei einem Molenbruch $x_{\text{Co}} = 0,43$. Auch die Mischungswärme zeigt einen unsymmetrischen Konzentrationsverlauf. Das Maximum ist aber im Gegensatz zur freien Überschußenthalpie zu höheren Goldkonzentrationen verschoben.

Die Überschußentropie ΔS^E (Tab. 4, Abb. 9) ist über den gesamten Mischungsbereich positiv mit einem Maximumwert von 0,72 cal/g-Atom · Grad bei einem Molenbruch $x_{\text{Co}} = 0,38$.

Das Verhalten der thermodynamischen Größen der festen Gold—Kobalt-Legierungen wird verständlich, wenn man beachtet, daß der Atomradius von Gold um etwa 13% größer ist als jener von Kobalt.

Tabelle 3. *Freie Überschüßenthalpien und partielle freie Überschüßenthalpien bei 1695 und 1852 K*

x_{Co}	1695 K			1852 K		
	ΔG^E cal/g-Atom	ΔG_{Au}^E cal/g-Atom	ΔG_{Co}^E cal/g-Atom	ΔG^E cal/g-Atom	ΔG_{Au}^E cal/g-Atom	ΔG_{Co}^E cal/g-Atom
0,0	0	0	2116	0	0	1776
0,1	205	8	1975	173	5	1680
0,2	391	40	1799	334	26	1565
0,3	554	111	1589	479	74	1425
0,4	689	220	1391	602	163	1261
0,5	784	431	1136	697	309	1085
0,6	824	774	858	753	571	874
0,7	794	1299	577	748	1063	612
0,8	673	2074	322	653	1872	349
0,9	425	3406	93	419	3319	97
1,0	0	5198	0	0	5163	0

Tabelle 4. *Freie Überschüßenthalpien, partielle freie Überschüßenthalpien, Mischungswärmen und Überschüßentropien bei 1770 K*

x_{Co}	ΔG^E	ΔG_{Au}^E	ΔG_{Co}^E	ΔH	ΔS^E
	cal/g-Atom	cal/g-Atom	cal/g-Atom	cal/g-Atom	cal/g-Atom · Grad
0,0	0	0	1674	0	0
0,1	167	0	1670	660	0,27
0,2	332	7	1631	1261	0,51
0,3	488	41	1530	1717	0,68
0,4	629	114	1400	1927	0,72
0,5	736	319	1153	1886	0,65
0,6	790	657	887	1659	0,49
0,7	776	1137	612	1314	0,31
0,8	678	1904	372	903	0,14
0,9	419	3590	66	459	0,02
1,0	0	4828	0	0	0

Dieses Radienverhältnis liegt unmittelbar an der von *Hume-Rothery* angenommenen Grenze für Substitutionslöslichkeit. Im Mischkristall ist daher mit dem Auftreten einer beträchtlichen Spannungsenergie zu rechnen, die sich beim Übergang zum flüssigen Zustand zwar ver-

mindern sollte, jedoch nicht verschwinden wird. Der Fehlpassungsenergie⁷ dürften jedoch stabilisierende elektronische Effekte entgegenwirken. *Busch* und Mitarb.⁸ haben Messungen des Hall-Effektes und der magnetischen Suszeptibilität flüssiger Legierungen von Gold mit Eisen, Kobalt und Nickel durchgeführt. Auf Grund dieser Untersuchungen schließen die Autoren, daß die 3d-Zustände der Übergangsmetallatome in den Legierungen mit Gold nicht aufgefüllt sind. Diese Befunde stehen in Übereinstimmung mit Messungen des Mößbauer-Effektes an ¹⁹⁷Au in festem Ni⁹ und von ⁵⁷Fe in festem Au¹⁰.

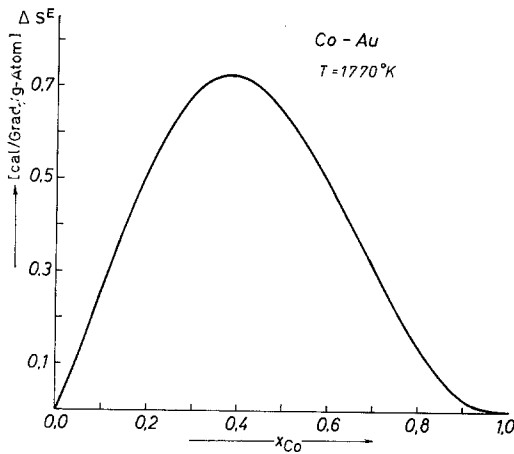


Abb. 9. Molare Überschußentropie bei 1770 K

Barrett und Mitarb.⁹ führen die von ihnen beobachteten chemischen Verschiebungen der Mößbauer-Linien von ¹⁹⁷Au auf eine Erhöhung der Elektronendichte am Goldkern zurück. Demnach tritt in festen Gold—Nickel-Legierungen ein Transfer von Elektronen des Nickels zum Gold-6s-Band auf. Diese Befunde legen die Annahme nahe, daß in den flüssigen Legierungen von Gold mit Eisen, Kobalt und Nickel ebenfalls eine Ladungsüberführung zum Gold stattfindet. Auch ein Vergleich der Elektronegativitäten ϵ von Gold ($\epsilon = 2,4$)¹¹ mit den Elektronegativitäten von Eisen, Kobalt und Nickel ($\epsilon = 1,8$)¹¹ läßt einen Elektronentransfer in der beobachteten Richtung erwarten. Eine derartige Ladungsüberführung hat eine stabilisierende ionische Bindungskomponente zur Folge.

Dem Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung danken wir für die Bereitstellung der massenspektrometrischen Einrichtung.

Literatur

- ¹ *A. Neckel und S. Wagner*, Ber. Bunsenges. phys. Chem. **73**, 210 (1969).
- ² *S. Wagner, G. Sodeck und A. Neckel*, High Temp. Sci. **3**, 481 (1971).
- ³ *J. P. Hager, S. H. Howard und J. H. Jones*, Met. Trans. **4**, 2383 (1973).
- ⁴ *S. S. Wang und J. M. Toguri*, Canad. J. Chem. **51**, 2362 (1973).
- ⁵ *B. Predel und E. Zehnpfund*, Z. Metallkde. **64**, 782 (1973).
- ⁶ *A. Kubik und C. B. Alcock*, Met. Sci. J. **1**, 19 (1967).
- ⁷ *T. Heumann und B. Predel*, Arch. Eisenhüttenw. **39**, 783 (1968).
- ⁸ *G. Busch, H. J. Güntherodt, H. U. Künzi, H. A. Meier und L. Schlapbach*, Met. Res. Bull. **5**, 567 (1970).
- ⁹ *P. H. Barrett, R. W. Grant, M. Kaplan, D. A. Keller und D. A. Shirley*, J. Chem. Phys. **39**, 1035 (1963).
- ¹⁰ *B. Window*, Phys. Rev. **6**, 2013 (1972).
- ¹¹ *L. Pauling*, The Nature of the Chemical Bond. Ithaca, N. Y.: Cornell University Press. 1960.

Korrespondenz und Sonderdrucke:

*Prof. Dr. A. Neckel
Institut für Technische Elektrochemie
Technische Hochschule Wien
Getreidemarkt 9
A-1060 Wien
Österreich*