

## Das mittlere Quadrat des Abstands des Elektrons von der interatomaren Achse im Zweizentrenproblem

DAVID ILTEN und HERMANN HARTMANN

Institut für Physikalische Chemie der Universität Frankfurt am Main

Eingegangen am 13. März 1967

Das mittlere Quadrat des Abstands des Elektrons von der interatomaren  $z$ -Achse,  $\overline{\varrho^2}$ , für das Problem mit zwei gleichen Coulombschen Zentren wurde am Beispiel des  $H_2^+$  für die zwei tiefsten Zustände als eine Funktion des Kernabstands  $R$  einmal exakt und außerdem nach zwei Näherungsmethoden berechnet. Alle drei Verfahren führen zu dem Resultat, daß für kleine Werte von  $R$   $\overline{\varrho^2}$  für den ersten angeregten Zustand ( $2p\sigma_u$ ) größer ist als für den  $1s\sigma_g$ -Grundzustand. Wenn  $R$  größer als 2,8 a. E. ist, ist  $\overline{\varrho^2}$  für den  $2p\sigma_u$ -Zustand kleiner als für den  $1s\sigma_g$ -Zustand. Das heißt, daß sich das Elektron im Grundzustand im Mittel weiter von der  $z$ -Achse entfernt aufhält als im ersten angeregten Zustand.

The expectation value of the square of the distance of the electron from the interatomic  $z$ -axis,  $\overline{\varrho^2}$ , for the problem with two equal Coulombic centers was calculated in the case of  $H_2^+$  for the two lowest energy levels as a function of  $R$ , the nuclear separation, exactly and also according to two approximate methods. All three procedures lead to the result that for small values of  $R$ ,  $\overline{\varrho^2}$  is greater for the first excited state ( $2p\sigma_u$ ) than for the  $1s\sigma_g$ -ground state. When  $R$  is greater than 2.8 a. u., then  $\overline{\varrho^2}$  is smaller for the  $2p\sigma_u$  state than for the  $1s\sigma_g$ -state. That is, the electron is located on the average farther from the  $z$ -axis in the ground state than in the first excited state.

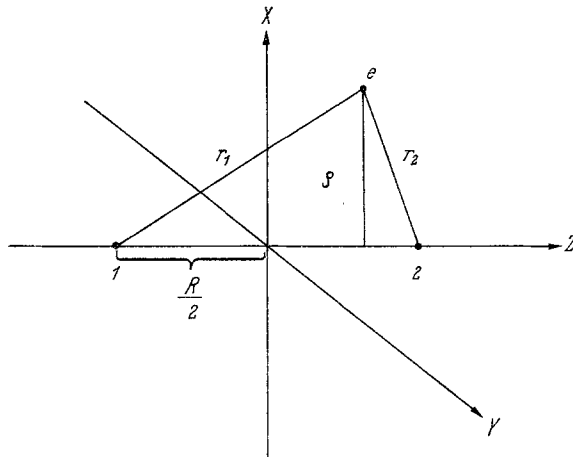
Le carré probable de la distance de l'électron de l'axe interatomique  $z$ ,  $\overline{\varrho^2}$ , a été calculé dans le cas de 2 centres coulombiques égaux ( $H_2^+$ ) comme fonction de la distance des noyaux  $R$ . Un calcul exact et deux méthodes approchées montrent que pour  $R$  petit,  $\overline{\varrho^2}$  est plus grand pour l'état excité  $2p\sigma_u$  que pour l'état fondamental  $1s\sigma_g$ . Quand  $R$  est plus grand que 2,8 u. a.,  $\overline{\varrho^2}$  est plus petit pour l'état  $2p\sigma_u$  que pour l'état  $1s\sigma_g$ , c. à d. l'électron se trouve plus éloigné de l'axe  $z$  à l'état fondamental que dans l'état excité.

### 1. Einleitung

Das mittlere Quadrat des Abstands des Elektrons von der interatomaren  $z$ -Achse für ein molekulares Gebilde mit zwei gleichen Coulombschen Zentren, z. B.  $H_2^+$ , bezogen auf das Koordinatensystem in Abb. 1 ist gegeben durch den Ausdruck

$$\varrho_{ii}^2 = \langle \psi_i | \varrho^2 | \psi_i \rangle, \quad (1.1)$$

wobei  $\varrho^2 = x^2 + y^2$  und  $\psi_i$  die Wellenfunktionen des Elektrons sind. Dieser Mittelwert ist eine Funktion des Kernabstands  $R$  und kann exakt berechnet werden, weil bekanntlich das Zweizentrenproblem in der Born-Oppenheimer-Näherung [1, 2] streng lösbar ist. Exakte Werte von  $\overline{\varrho^2}$  für die Zustände  $1s\sigma_g$  und  $2p\sigma_u$  wurden mit  $\psi$ -Funktionen berechnet, die nach HELFRICH und HARTMANN [3, 4]

Fig. 1. Koordinatensystem für das Zweizentrenproblem (1,2 Protonen,  $e$  Elektron)

gewonnen worden waren. Sie sind in Abb. 2 und Tab. 1 dargestellt. Bei kleineren Kernabständen liegen die Werte für  $\bar{\rho}^2$  für den  $2p\sigma_u$ -Zustand höher als diejenigen für den  $1s\sigma_g$ -Zustand, ungefähr wie erwartet. Überraschenderweise überschneiden sich die Kurven, die die Ergebnisse darstellen, bei größeren Abständen, und die Werte für  $\bar{\rho}^2$  für den  $2p\sigma_u$ -Zustand liegen tiefer als die für den  $1s\sigma_g$ -Zustand; d. h. das Elektron befindet sich im Grundzustand von der  $z$ -Achse im Mittel weiter entfernt als im ersten angeregten Zustand.

Im Hinblick auf die Untersuchung komplizierterer Fälle war es von Interesse, einfache Näherungsverfahren zu studieren, um festzustellen, ob sie zumindest qualitativ gleiche Ergebnisse liefern wie die exakte Rechnung. Um brauchbare

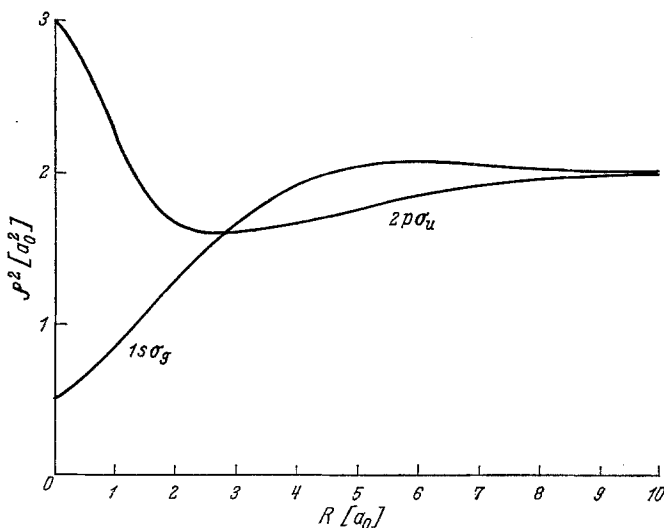
Fig. 2. Berechnung von  $\bar{\rho}^2$  mit exakten Lösungsfunktionen des Zweizentrenproblems

Tabelle 1. Berechnung von  $\bar{\varrho}^2$  mit den exakten Lösungsfunktionen des Zweizentrenproblems

$R(a_0)$	$\bar{\varrho}^2$		$R(a_0)$	$\bar{\varrho}^2$	
	$1s\sigma_g$	$2p\sigma_u$		$1s\sigma_g$	$2p\sigma_u$
0	0,500	3,000	5	2,037	1,772
1	0,847	2,266	6	2,066	1,851
2	1,283	1,668	7	2,053	1,908
3	1,656	1,605	8	2,031	1,946
4	1,912	1,680	9	2,016	1,969
			10	2,006	1,982

Näherungswerte für den Bereich  $0 < R < \infty$  zu bekommen, wurde Gebrauch von zwei Methoden gemacht, einem Vereinigten-Atom-Verfahren (VA), gültig für  $R < a_0$  (Bohrscher Radius), und einem LCAO-MO-Verfahren für größere Werte von  $R$ .

## 2. VA-Methode

In der VA-Rechnung werden die wasserstoffähnlichen Funktionen

$$\psi_b = \sqrt{(\alpha^3/\pi)} e^{-\alpha r} \quad (2.1)$$

für den bindenden  $1s\sigma_g$ -Grundzustand und

$$\psi_l = \sqrt{(\alpha^5/32\pi)} e^{-\alpha r/2} r \cos \theta \quad (2.2)$$

für den lockernden ersten angeregten Zustand ( $2p\sigma_u$ ) benutzt. Die gesuchten Werte  $\varrho_{bb}^2$  und  $\varrho_{ll}^2$  lassen sich in Kugelkoordinaten berechnen, wobei der Operator

$$\varrho^2 = r^2 \sin^2 \theta \quad (2.3)$$

lautet. Die zu berechnenden Integrale sind

$$\varrho_{bb}^2 = (\alpha^3/\pi) \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} e^{-2\alpha r} r^4 \sin^3 \theta \, dr d\theta d\phi = 2/\alpha^2 \quad (2.4)$$

$$\varrho_{ll}^2 = (\alpha^5/32\pi) \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} e^{-\alpha r} r^6 \sin^3 \theta \cos^2 \theta \, dr d\theta d\phi = 12/\alpha^2. \quad (2.5)$$

Der Parameter  $\alpha$  ist im allgemeinen eine Funktion des Kernabstands  $R$  und wird durch Minimierung der Elektronenenergie nach dem Variationsprinzip ermittelt.

In atomaren Einheiten ausgedrückt, ist der Hamiltonoperator für  $H_2^+$  (bei Vernachlässigung der Wechselwirkung der Kerne untereinander)

$$H = -\frac{1}{2} \Delta - \sum_{i=1}^2 \frac{1}{r_i}. \quad (2.6)$$

### a) Grundzustand

Für den  $1s\sigma_g$ -Zustand ist die kinetische Energie gegeben durch

$$\begin{aligned} E_{\text{kin}}^b &= -\frac{1}{2} \langle \psi_b | \Delta | \psi_b \rangle \\ &= (\alpha^4/\pi) \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} e^{-2\alpha r} (2r - \alpha r^2) \sin \theta \, dr d\theta d\phi \\ &= \alpha^2/2. \end{aligned} \quad (2.7)$$

Die potentielle Energie

$$E_{\text{pot}}^b = \langle \psi_b \left| \sum_{i=1}^2 -\frac{1}{r_i} \right| \psi_b \rangle \quad (2.8)$$

wird mit Hilfe der Neumannschen Entwicklung berechnet

$$\sum_{i=1}^2 \frac{1}{r_i} = \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=-k}^k \frac{4\pi}{2k+1} \cdot \frac{r_{<}^k}{r_{>}^{k+1}} Y_{k,m}(\theta_\lambda, \phi_\lambda) \sum_{i=1}^2 Y_{k,m}(\theta_i, \phi_i), \quad (2.9)$$

wobei  $r_{<}$  der kleinere und  $r_{>}$  der größere Wert von  $r$  und  $a$  ist.

Der Index  $i$  bezieht sich auf die Protonen und der Index  $\lambda$  auf das Elektron. Nachdem die Integration in (2.8) durchgeführt worden ist, ist

$$E_{\text{pot}}^b = \sum_{i=1}^2 \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{m=-k}^k \frac{4\pi}{2k+1} Y_{k,m}(\theta_i, \phi_i) F_k \int_0^\pi \int_0^{2\pi} Y_{k,m}(\theta, \phi) \Theta(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi \quad (2.10)$$

wobei

$$F_k = \left( \frac{1}{a^{k+1}} \right) \int_0^a R(r)^2 r^{k+2} dr + a^k \int_a^\infty R(r)^2 r^{1-k} dr \quad \text{mit } a = \frac{R}{2} \quad (2.11)$$

$\Theta(\theta, \phi)$  der winkelabhängige und  $R(r)$  der radialabhängige Teil des Quadrats der Wellenfunktion sind.

Im kugelsymmetrischen  $1s\sigma_g$ -Zustand ist  $\Theta = 1 = \sqrt{4\pi} Y_{0,0}$ . Wegen der Orthogonalität der Kugelfunktionen

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} Y_{k,m}^* Y_{k',m'} \sin \theta d\theta d\phi = \delta_{kk'} \delta_{mm'} \quad (2.12)$$

verschwinden alle Glieder der Summe (2.10) außer dem Term mit  $k = 0$  und  $m = 0$ . Deshalb ergibt sich

$$\begin{aligned} E_{\text{pot}}^b &= -8\pi F_0 \\ &= (2/a) [1 - (1 + \alpha a) e^{-2\alpha a}]. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Nach Minimierung der Gesamtenergie ergibt sich der Ausdruck

$$\alpha = 2(1 + \kappa) e^{-\kappa} \quad (2.14)$$

wobei  $\kappa = 2\alpha a$  ist.

### b) Erster angeregter Zustand

Für den  $2p\sigma_u$ -Zustand ist die kinetische Energie

$$E_{\text{kin}}^l = -(\alpha^6/64) \int_0^\infty e^{-\alpha r} (\alpha r^4/4 - 2r^3) dr \int_0^\pi \cos^2 \theta \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} d\phi = \alpha^2/8. \quad (2.15)$$

Um die potentielle Energie zu berechnen, betrachtet man, daß

$$\Theta = \cos^2 \theta = \frac{\sqrt{4\pi}}{3} \left( \frac{2}{\sqrt{5}} Y_{2,0} + Y_{0,0} \right) \quad (2.16)$$

ist. Aus Orthogonalitätsgründen verschwinden alle Terme der Gl. (2.10) außer

Tabelle 2. Berechnung von  $\bar{\varrho}^2$  nach der VA-Methode

$R(a_0)$	$1s\sigma_g$		$2p\sigma_u$	
	$\alpha$	$\bar{\varrho}^2$	$\alpha$	$\bar{\varrho}^2$
0,0	2,000	0,500	2,000	3,000
0,1	1,966	0,517	2,004	2,989
0,25	1,843	0,589	2,025	2,928
0,50	1,613	0,769	2,093	2,740
0,75	1,422	0,989	2,188	2,508
1,00	1,273	1,234	2,274	2,321
1,50	1,058	1,786	2,307	2,254
2,00	0,912	2,406	2,193	2,495
2,50	0,805	3,085	2,036	2,894
3,00	0,724	3,820	1,881	3,389
3,50	0,659	4,607	1,742	3,953
4,00	0,606	5,443	1,619	4,576
5,00	0,525	7,254	1,418	5,971
6,00	0,465	9,242	1,261	7,550
7,00	0,419	11,396	1,135	9,298
8,00	0,382	13,708	1,035	11,208
9,00	0,352	16,173	0,951	13,276
10,00	0,326	18,784	0,880	15,497

denen mit  $k = 0$ ,  $m = 0$  und  $k = 2$ ,  $m = 0$ , wonach

$$E_{\text{pot}}^l = -\frac{8\pi}{3} (F_0 + \frac{2}{5} F_2) \quad (2.17)$$

ist.

Die Ausdrücke  $F_k$  können mit Hilfe der Integrale

$$J_n(0, a) = \int_0^a e^{-y} y^n dy = \frac{n!}{\alpha^{n+1}} \left( 1 - e^{-x} \sum_{m=0}^n x^m / m! \right) \quad (2.18)$$

$$J_n(a, \infty) = \int_a^\infty e^{-y} y^n dy = \frac{n!}{\alpha^{n+1}} \left( e^{-x} \sum_{m=0}^n x^m / m! \right) \quad (2.19)$$

wobei  $x = \alpha a = \alpha R/2$  ist, berechnet werden. Daraus ergibt sich für die Gesamtenergie

$$E_l = \alpha^2/8 - (\alpha/x) (24 + 2x^2 - (24 + 24x + 14x^2 + 11x^3/2 + 3x^4/2 + x^5/4) e^{-x}). \quad (2.20)$$

Weil der  $2p\sigma_u$ -Zustand zum  $1s\sigma_g$ -Zustand orthogonal ist, kann dessen Energie unabhängig vom Grundzustand minimisiert werden, dies führt zu dem Resultat

$$\alpha = (x^3 + 3x^2 + 10x + 34 + 96/x + 192/x^2 + 192/x^3) e^{-x} - 192/x^3. \quad (2.21)$$

Die oben stehenden Ausdrücke für  $\alpha$  und  $E$  stimmen mit denen überein, die von MATSEN [5] für das VA-Modell durch Störungstheorie abgeleitet worden sind.

Die Ergebnisse für  $\alpha$  und  $\bar{\varrho}^2$  sind in Tab. 2 und in Abb. 3 gegeben.

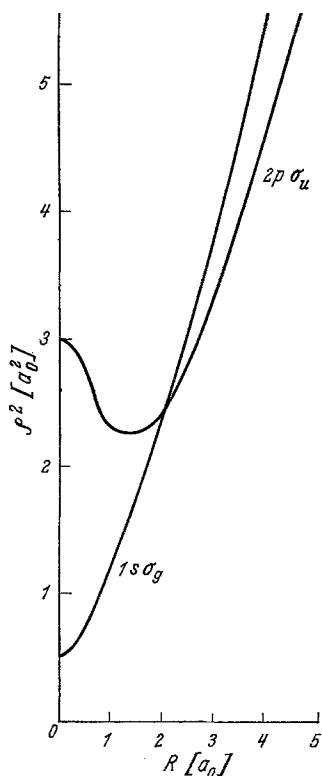


Fig. 3. Berechnung von  $\bar{q}^2$  nach der VA-Methode

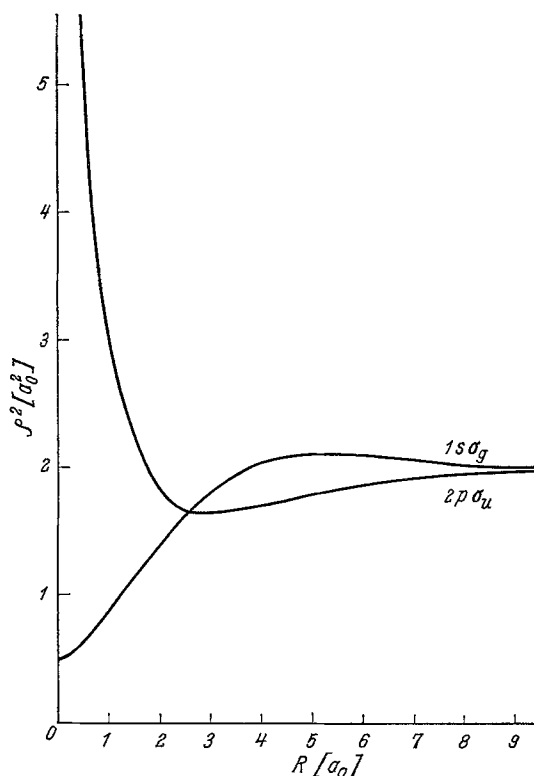


Fig. 4. Berechnung von  $\bar{q}^2$  nach der LCAO-Methode

Tabelle 3. Berechnung von  $\bar{q}^2$  nach der LCAO-Methode

$R(a_0)$	$1s\sigma_g$		$2p\sigma_u$	
	$\alpha$	$\bar{q}^2$	$\alpha$	$\bar{q}^2$
0,00	2,000	0,500	0,400	7,500
0,10	1,980	0,511	0,420	6,809
0,25	1,913	0,551	0,452	5,873
0,50	1,779	0,646	0,514	4,582
0,75	1,651	0,761	0,584	3,603
1,00	1,538	0,888	0,658	2,899
1,50	1,361	1,154	0,798	2,103
2,00	1,239	1,410	0,900	1,779
2,50	1,154	1,634	0,962	1,667
3,00	1,099	1,817	0,995	1,648
3,50	1,055	1,953	1,010	1,671
4,00	1,028	2,043	1,016	1,711
4,50	1,012	2,094	—	—
5,00	1,002	2,114	1,015	1,801
6,00	0,995	2,101	1,010	1,876
7,00	0,995	2,067	1,006	1,928
8,00	0,997	2,038	1,003	1,961
9,00	0,998	2,020	1,002	1,980
10,00	0,999	2,010	1,001	1,990

## 3. LCAO-Methode

Um die Mittelwerte für  $\varrho^2$  für  $H_2^+$  nach der Methode von FINKELSTEIN und HOROWITZ [7], zu ermitteln, werden zwei Linearkombinationen der Atomwellenfunktionen

$$u_1 = \sqrt{(\alpha^3/\pi)} e^{-\alpha r_1} \quad (3.1)$$

und

$$u_2 = \sqrt{(\alpha^3/\pi)} e^{-\alpha r_2} \quad (3.2)$$

gebildet, eine symmetrische

$$\psi_b = (u_1 + u_2)/\sqrt{[2(1+S)]} \quad (3.3)$$

und eine antimetrische

$$\psi_l = (u_1 - u_2)/\sqrt{[2(1-S)]} . \quad (3.4)$$

Dabei sind  $S = \langle u_1 | u_2 \rangle$  das Überlappungsintegral zwischen  $u_1$  und  $u_2$ ,  $\psi_b$  der bindende Molekülzustand ( $1s\sigma_g$ ), und  $\psi_l$  der lockernde Molekülzustand ( $2p\sigma_u$ ). Der Mittelwert des Operators  $\varrho^2$  wird für den  $1s\sigma_b$ - bzw.  $2p\sigma_u$ -Zustand ausgedrückt durch

$$\left. \begin{aligned} \varrho_{bb}^2 &= \langle \psi_b | \varrho^2 | \psi_b \rangle \\ \varrho_{ll}^2 &= \langle \psi_l | \varrho^2 | \psi_l \rangle \end{aligned} \right\} = 1/(1 \pm S) [\langle u_1 | \varrho^2 | u_1 \rangle \pm \langle u_1 | \varrho^2 | u_2 \rangle] \\ = (\varrho_{11}^2 \pm \varrho_{12}^2)/(1 \pm S) . \quad (3.5)$$

Der Wert  $\varrho_{11}^2 = 2/\alpha^2$  ist oben in (2.3) gegeben. Um  $\varrho_{12}^2$  berechnen zu können, werden elliptische Koordinaten eingeführt. Dann ergeben sich die Formeln

$$\varrho^2 = a^2(\mu^2 - 1)(1 - \nu^2) \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} \varrho_{12}^2 &= (\alpha^3 a^5/\pi) \int_0^\infty \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} e^{-\kappa\mu} (\mu^2 - 1)(1 - \nu^2)(\mu^2 - \nu^2) d\mu d\nu d\phi \\ &= (\alpha^3 a^5/\pi) (5A_4 - 6A_2 + A_0) , \end{aligned} \quad (3.7)$$

wobei

$$\begin{aligned} A_n &= J_n(1, \infty), \quad \kappa = \alpha a, \quad a = \frac{R}{2}, \quad \mu = (r_1 + r_2)/R, \\ \nu &= (r_1 - r_2)/R \end{aligned} \quad (3.8)$$

sind.

Wenn die Terme  $A_n$  entwickelt worden sind, lauten die Gleichungen

$$\varrho_{12}^2 = a^2 e^{-\kappa}/15 \{5!(1 + \kappa)/\kappa^2 + 48 + 8\kappa\} \quad (3.9)$$

$$\varrho_{bb}^2 = 1/(1 + S) \{2/\alpha_b^2 + (a^2 e^{-\kappa}/15 \kappa^2) (5!(1 + \kappa) + 48\kappa^2 + 8\kappa^3)\} \quad (3.10)$$

$$\varrho_{ll}^2 = 1/(1 - S) \{2/\alpha_l^2 - (a^2 e^{-\kappa}/15 \kappa^2) (5!(1 + \kappa) + 48\kappa^2 + 8\kappa^3)\} \quad (3.11)$$

wobei  $S = (1 + \kappa + \kappa^2/3) e^{-\kappa}$  ist.

Die Energie wird gegeben durch

$$H_{bb} = (H_{11} + H_{12})/(1 + S) = \alpha_b A + \alpha_b^2 B \quad (3.12)$$

$$H_{ll} = (H_{11} - H_{12})/(1 - S) = \alpha_l C + \alpha_l^2 D$$

$$\left. \begin{array}{l} A \\ C \end{array} \right\} = (1 \pm (1 + \kappa - \kappa^2/3) e^{-\kappa})/(1 \pm S) \quad (3.13)$$

$$\left. \begin{array}{l} B \\ D \end{array} \right\} = (-2(1 + 1/\kappa)(1 - e^{-\kappa}) \pm 2(1 + \kappa) e^{-\kappa})/(1 \pm S) . \quad (3.14)$$

Minimierung der Energieausdrücke ergibt

$$\alpha_b = - \left( B + \kappa \frac{dB}{d\kappa} \right) / \left( 2A + \kappa \frac{dA}{d\kappa} \right) \quad (3.15)$$

$$\alpha_l = - \left( D + \kappa \frac{dD}{d\kappa} \right) / \left( 2C + \kappa \frac{dC}{d\kappa} \right). \quad (3.16)$$

Die Werte für  $\alpha$  und  $\bar{\rho}^2$  sind in Tab. 3 und Fig. 4 eingetragen.

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

Die VA-Methode liefert befriedigende Werte für  $\bar{\rho}^2$  wenn  $R < a_0$  ist; wenn jedoch  $R$  groß wird, geht  $\bar{\rho}^2$  gegen unendlich, statt gegen 2, weil  $\alpha$  und die Energie gegen Null streben. Die von MATSEN [5] nach der VA-Methode berechneten Energiewerte stimmen gut mit den von TELLER [8] berechneten Werten überein, besonders für  $R < a_0$ ; für  $R > a_0$  sind die zuverlässig bis  $R = 6a_0$ . Es ist zu berücksichtigen, daß die exakten Wellenfunktionen so approximiert werden, daß sich möglichst gute Energiewerte ergeben; solche Näherungen sind nicht unbedingt auch dazu geeignet, befriedigende Näherungswerte für andere Operatoren, z. B.  $\bar{\rho}^2$  zu liefern [10].

Die nach der LCAO-MO-Methode ermittelten Werte werden zu groß bei sehr kleinen Kernabständen, aber streben nach den richtigen asymptotischen Werten bei großen Werten von  $R$ . Im allgemeinen stimmen sie viel besser mit den richtigen Werten überein als die durch die VA-Theorie gewonnenen Werte. Wenn für  $R > a_0$  die durch die LCAO-Methode berechneten Werte benutzt werden, und für  $R < a_0$  die durch die VA-Methode, weichen die Näherungswerte um weniger als 10% von den exakten Werten für den ganzen Bereich  $0 < R < \infty$  ab.

Die Ergebnisse aller drei Methoden zeigen eine Überschneidung der Kurven für  $\bar{\rho}^2$  für den  $1s\sigma_g$ - und den  $2p\sigma_u$ -Zustand. Der Kreuzungspunkt liegt bei  $2,20 a_0$  für die VA-Methode und bei  $2,57 a_0$  für die LCAO-Methode. Der exakte Wert ist  $2,81 a_0$ . Zum Vergleich: Im Grundzustand ist der Gleichgewichtskernabstand für  $\text{H}_2^+$   $2,025 a_0$  [8, 9].

Die Rechnungen wurden an der Rechenanlage ZUSE Z 23 im Institut für physikalische Chemie (Frankfurt/M.) durchgeführt.

Wir sind der Deutschen Forschungsgemeinschaft und der Alexander-von-Humboldt-Stiftung zum Dank verpflichtet für die Unterstützung dieser Arbeit.

#### Literatur

1. BORN, M., u. R. OPPENHEIMER: Ann. Physik **84**, 457 (1927).
2. HELFRICH, K., u. H. HARTMANN: Theoret. chim. Acta **3**, 21 (1965).
3. — Dissertation, Frankfurt 1966.
4. —, u. H. HARTMANN: Arbeit in Vorbereitung.
5. MATSEN, F.: J. chem. Physics **21**, 928 (1953).
6. MORSE, P. M., and E. C. STUECKELBERG: Physic. Rev. **33**, 932 (1927).
7. FINKELSTEIN, B. N., u. G. H. HOROWITZ: Z. Physik **48**, 118 (1928).
8. TELLER, E.: Z. Physik **61**, 458 (1930).
9. JAFFÉ, G.: Z. Physik **87**, 535 (1934).
10. GOODISMAN, J.: J. chem. Physics **41**, 820 (1966).

Dr. D. ILTEN  
 Institut für physikalische Chemie  
 6000 Frankfurt/M. 1  
 Robert Mayer-Straße 11