

PROTON VA N₂ O'ZARO TA'SIRI UCHUN O'ZARO BOG'LIQ ELEKTRON POTENTIAL ENERGIYA SIRTLARI.

Erkinova Mahliyo¹

Ismatov Abduxali²

Raxmonov Bahodir³

Madaliyeva Marjona⁴

^{1,2,3,4}TDTU Olmaliq filiali, Kimyoviy texnologiya kafedrası talabalari.

Abstrakt. Keng diapazondagi nisbiy masofalar va yadrolararo koordinatalar qiymatlarida tizimning quyi elektron holatlari (N₂-H⁺) uchun yuqori korrelyatsiya qilingan kvant hisoblari amalga oshirildi. H⁺ - N₂ kirish kanali uchun chiqarilgan protonning ikkita asosiy yondashuvi ko'rib chiqiladi: kollinear va perpendikulyar yondashuvlar.

Tebranish matritsasi elementlari va anizotrop koeffitsientlar kabi dinamik jihatdan muhim xususiyatlarning kuchi va shakli bo'yicha hozirgi natijalar shuni ko'rsatadiki, asosiy holatning potensial energiya yuzasi zaryad o'tkazish (KT) jarayonlari uchun javobgar bo'lgan qo'zg'aluvchan elektron holatlar bilan juda zaif bog'lanishdan o'tadi. shuning uchun eksperimentlar to'qnashuv jarayonida bunday yakuniy kanallar yo'qligini aniqladi.

Bundan tashqari, molekuladagi protonning to'qnashuvi natijasida hosil bo'lgan bog'lanish buzilishining ta'siri ham juda kichik va faqat cheklangan yo'nalishlar diapazonida va nisbiy masofalarda sodir bo'ladi, bu tomonidan topilgan tebranish rejimining zaif qo'zg'alishiga muvofiq. hozirgi tizimda kesishgan nurli tajribalar.

1.Kirish

Protonlarning oddiy molekularlar (H, N₂, CO, NO) bilan o'zaro ta'sirini aniq bilish ko'plab mikroskopik hodisalarda katta ahamiyatga ega. Yulduzlararo bulutlarda bu o'zaro ta'sir elektron zamin holatlarida qo'zg'aluvchan tebranish darajasida bog'langan molekulyar ionlarga olib kelishi mumkin va bu turlar ularning radio-astronomik spektrida ko'rinadigan narsalar uchun mumkin bo'lgan manbalar bo'lishi mumkin. Bundan tashqari, bunday molekulyar ionlar elektr razryadlarining kinetikasida, olov tarkibida va past haroratlarda plazma kimyosida muhim rol o'ynaydi.

Xususan, N₂ H⁺ ioni yulduzlararo bulutlarda aniqlangan va uning tebranish zonasi intensivligi ham laboratoriya tajribalarida o'lchanganligi sababli so'nggi adabiyotlarda ko'proq e'tibor qaratilmoqda. Natijada, bir qator hisob-kitoblar amalga oshirildi va unda keltirilgan havolalar molekulyar muvozanat geometriyasi atrofida turli asoslar majmualaridan foydalangan va asosan infraqizil intensivliklarni

belgilashga va tebranishlarning cho'zilish chastotasini baholashga qaratilgan. $N_2 H^+$ (va uning izotopik analoglari). Bu chiziqli muvozanat tuzilmasini ko'rsatadigan va yuqori sifatli hisob-kitoblar kuzatilgan chiziq intensivligini juda aniq bashorat qila oladigan tur. Shunga qaramay, eksperimental qiymatlar bu yerda $= 35\%$ hisoblanganlardan past bo'lsa, tafovutlar asosan eksperiment noaniqliklari bilan bog'liq deb hisoblangan va yaxshiroq o'lchovlar hali ham olinmaydi.

Dinamik s tomonida. Oddiy diatonik molekulalardan protonlarning noelastik tarqalishi so'nggi uch o'n yillikda tarqalish tajribalarida o'rganildi va shuning uchun proton energiyasi oldida kuzatilgan tebranish-aylanish qo'zg'alishlari haqida ko'p ma'lumotlar mavjud bo'ldi. -parvoznig yo'qolishi va vaqti spektrlari. Ikkinchisi, odatda, tebranish-aylanish modellariga hatto o'xshash diatomik nishonlar orasida ham o'tkazilishi mumkin bo'lgan to'qnashuv energiyasi bo'yicha ajoyib selektivlikni namoyish etadi. Misol uchun, proton to'qnashuvi energiyasining o'xshash diapazonlari ko'rib chiqilsa, O_2 va H_2 da kuzatilgan tebranish qo'zg'alish miqdori N^2 ga qaraganda ancha katta ekanligini va oxirgi nishon juda past tebranish egiluvchanligini ko'rsatadi. . Yana bir misol sifatida. CO va NO kabi qutbli molekulalar ham past tebranish qo'zg'alishlarini ko'rsatadi N_2 tomonidan namoyish etilganlardan juda farq qilmaydi. Tajribalar qo'shimcha ravishda shuni ko'rsatadiki, N_2 va CO ning aylanish qo'zg'aluvchanligi NO va O_2 ga qaraganda ikki baravar ko'pdir va HF asosan aylanma egiluvchanligini namoyon qiladi, agar u juda katta bo'lsa, ozgina tebranish qo'zg'alishi bilan. to'qnashuv energiyalari hosil bo'ladi. Ilgari ta'kidlangan edi ion-molekulalarning past energiyali to'qnashuvi va kichik burchakli sochilishi uchun uzoq masofali statik o'zaro ta'sirning anizotrop qismi doimiy dipol momentga ega bo'lgan molekulalarning aylanish qo'zg'alishlarida muhim rol o'ynaydi. zaryad-dipol o'zaro ta'sirining ko'tarilishi. Boshqa tomondan, tizimli elektron xususiyatlari yo'qligi sababli, H^+ snaryadlari ajratilgan molekulaning umumiy zaryad taqsimotini deformatsiya qilish orqali maqsadli molekulyar zaryad buluti bilan kuchli ta'sir o'tkazadi. . Shuning uchun, "kimyoviy" kuchlar eng ko'p harakat qiladigan kichikroq zarba traektoriyalari uchun. er bilan va qo'zg'atilgan elektron holatlar bilan bog'liq bo'lgan potentsial-energiya sirtlarining (PES) xatti-harakatlari muhim bo'lib qoladi va ularning bilimlari mexanizmlarni batafsilroq va chuqurroq tushunish uchun zarur bo'ladi. tebranish-aylanish dinamikasida chaqirilgan . Xususan, $H^+—H$ sistema ildizi ko'plab eksperimental va nazariy tadqiqotlar mavzusi bo'lgan, bunda tebranish-aylanish qo'zg'alishi ko'proq tebranish qo'zg'alishi uchun aylana holatida sodir bo'lishi ko'rsatilgan elektron sirt tebranish qo'zg'alish u erda "bog'lanishni suyultirish" effektlari (ya'ni, o'tayotgan proton tomonidan molekulyar bog'dan vaqtinchalik zaryad zichligi) orqali sodir bo'ladi. Aylanma egiluvchanligi esa bu tizimning qisqa masofali anizotropiyasi bilan bevosita bog'liq edi.

Yana $\langle i$ misol sifatida, $H + \text{---}O$ dagi tebranish qo'zg'alishning katta miqdori; $H-O$ o'tishlariga olib keladigan vaqtinchalik zaryad o'tkazish jarayonidan kelib chiqadigan ko'rsatilgan. Ikki zaryad holati bilan bog'langan ikkita PES, shuning uchun ushbu molekulaning vibratsional qo'zg'alishida muhim rol o'ynaydi. H' bilan to'qnashuvda N , CO va NO bilan kuzatiladigan vibratsional-aylanish elastikligini mavjud molekulyar xossalari nuqtai nazaridan tushuntirishga turli xil urinishlar bo'lgan va dinamikada rol o'ynashi mumkin bo'lgan potentsial-energiya sirtlarining mumkin bo'lgan xususiyatlari. Biroq, bizning ma'lumotlarga ko'ra, hech qanday hozirgacha bu kabi ilmiy tadqiqotlar haqida xabar berilgan tizimlar, asosan, to'liq PES ishtirokining miqdoriy jihatlari bo'yicha batafsil ma'lumotlarning yo'qligi bilan bog'liq. Masalan, $H^{\text{---}}HF$ tizimi uchun aniq, ab initio PES olindi va unda kvant dinamikasi ham amalga oshirildi. Shuning uchun biz ko'p qirrali konfiguratsiya o'zaro ta'sirini (MRDCI) hisob-kitobini amalga oshirdik, bu bizga $H + N$ to'qnashuvlari haqida qo'shimcha ma'lumot berishi mumkin, bu erda er va ba'zi qo'zg'aluvchan elektron holatlar bilan bog'liq bo'lishi mumkin. Biz quyida $N\text{---}N$ va $N\text{---}H$ bog'lanish masofalarining funksiyasi sifatida $H^{\text{---}}$ ning N_2 ga kollinear va perpendikulyar yondoshuvlari natijalarini keltiramiz. Keyingi bo'limda biz tanlangan baza to'plamlari va biz qo'llagan MRDCI protsedurasi tafsilotlarini tasvirlaymiz, shu bilan selektiv dinamik .energiyaning jismoniy kelib chiqishini miqdoriy tasdiqlaydi.

Yuqorida aytib o'tilganidek, $H^{\text{---}}N$ uchun ab initio hisoblarining aksariyati kollinear muvozanat geometriyasi atrofida joylashgan. Ilgari ab initio hisob-kitoblar N_2 $H^{\text{---}}$ ning $N\text{---}H$ cho'zilishi [20] funksiyasi sifatida yer va qo'zg'atilgan elektron holatlarga dissotsilanish mahsulotini va N ning protonlanishini tavsiflashga qaratilgan edi. minimal energiya yo'li proton yaqinlashganda NN bog'lanish masofasida ozgina o'zgarish bo'lganligini ko'rsatdi. Shunday qilib, bu xususiyat to'qnashuvlar vaqtida «bog'lanishni suyultiruvchi» kuchlar ta'sirida yuzaga kelishi mumkin bo'lgan tebranish qo'zg'alish miqdorini juda kichik bo'lishini taxmin qilish mumkin edi.

Yaqinda va neytral $N_2 H$ molekulasini uchun qo'zg'atilgan Au PESning keyingi tavsifi bilan bog'liq holda, $N_2 H$ assotsiatsiyasining Rydberg shtatlari uchun yangi hisoblar xabar qilindi. - HND ga tegishli. Biroq, dinamik o'rganish nuqtai nazaridan amaliy foydalanish mumkin bo'lgan to'liq PES hali ham mavjud emas edi va shuning uchun biz tarqalib ketgan savollarga javob berish uchun bir qator hisob-kitoblardan boshlashni zarur deb topdik. Yuqorida aytib o'tilgan tajribalar. Shuningdek, biz N_2 va NQ fragment turlari va elektron asosiy holat uchun PES uchun olingan natijalar haqida xabar beramiz.

Ushbu tizimning keyingi hayajonlangan holatlari dinamika natijalari bo'yicha o'ynaganligi 3-bo'limda muhokama qilinadi va tahlil qilinadi. 4-bo'limda biz nihoyat past tebranish egiluvchanligining jismoniy sabablarini aniq ko'rsatadigan turli dinamik atributlarning umumiy xususiyatlari haqida xabar beramiz. tizimda oldingi molekulyar

nurli tajribalar orqali kuzatilgan. Yakuniy xulosalar bizning oxirgi 5-bo'limda qisqacha ko'rib chiqiladi.

2. Hisob-kitoblarning tafsilotlari

Tanlangan atom asosi Li va Shefer ishlaridan olingan. Shu sababli, ushbu tadqiqotda ikki tomonlama polarizatsiya va diffuz funktsiyalarga ega bo'lgan uchta zeta asosi to'plami (TZ + 2p + diffuz) ishlatilgan. N uchun u 12s7p asosdan (7s4p gacha siqilgan) ikkita d-tipli qutblanish funksiyasidan (ko'rsatkichlar = 1,5 va 0,35) va bitta s-tipli va bitta p tipidagi diffuz orbitaldan (mos ravishda = 0,058 va 0,045) iborat edi. H uchun asos ikkita p-tipli polarizatsiya bilan to'ldirilgan 6s ibtidoiy to'plami edi funktsiyalari (= 1,4 va 0,25) va bitta diffuz s-orbital (= 0,030) Shunday qilib. NH ni tavsiflash uchun jami 80 ta siqilgan Gauss orbitallari mavjud edi.

2.2. MRDCI hisob-kitoblari

Hisob-kitoblar Bonn universitetining MRDCI dasturiy paketi yordamida amalga oshirildi CI konfiguratsiya maydoni cheklangan Hartree-Fok (HF) hisob-kitoblari yordamida yaratilgan. Fazoviy simmetriya uchun ochiq yoki yopiq qobiq o'z-o'zidan mos keladigan maydon (SCF) ning turli plombalari tanlangan (CI natijalari tanlovga befarq ekanligi aniqlandi). O'ta yuqori orbital energiyaga ega bo'lgan ikkita molekulyar orbital CI dan chiqarildi, pastki ikkitasi (asosan N-yadro orbitallari) CI qo'zg'alishi jarayonida ikki barobar ishg'ol qilindi. Ma'lumki, bu taxminlar yakuniy o'zaro ta'sir energiyasiga ahamiyatsiz ta'sir ko'rsatadi, shu bilan birga hisoblash harakatlarida sezilarli tejash imkonini beradi. Shunday qilib, CI davolashda qo'zg'alish uchun 76 molekulyar orbital (MO) mavjud edi.

PES hisob-kitoblari uchun tanlangan geometriya 1 1 N 2-H' masofalar (R H 0,8-7,5 ag) 7 N-N masofaga (R NH = 1,4-4,5) ko'paytirilgan panjara edi kollinear (Cg,) va perpendikulyar (C 2,) uchun geometriya. Ko'p darajali CI uchun mos yozuvlar konfiguratsiyalari har bir geometriya uchun optimallashtirildi, ya'ni mos keladigan simmetriyaning 3 dan 6 gacha pastki ildizlarigacha yakuniy CI to'lqin funktsiyalarini avtomatik ravishda tahlil qilish orqali mos yozuvlar konfiguratsiyasining dastlabki taxminlari yaxshilandi. Ushbu iterativ sxema har bir geometriya uchun konfiguratsiyalarning mos yozuvlar to'plami oldindan belgilangan o'z-o'zidan izchillik darajasiga etgunga qadar bir necha marta (4 dan 8 marta) takrorlandi. Ko'pgina geometriyalar va fazoviy simmetriyalar uchun (nuqtalar guruhining qaytarilmas tasviri) asosiy konfiguratsiyalar to'plami oxir-oqibat 20-60 elementdan iborat edi.

MRDCI usulida yakuniy CI maydonining o'lchami konfiguratsiyani tanlash bosqichida tanlash chegarasiga bog'liq. 6-27 H chegara qiymatlarida 1,0-3,5 106 ta yakka va ikkilamchi qo'zg'atilgan konfiguratsiyalar mavjud bo'lib, ulardan 13 000-1 6 000 ta konfiguratsiyalar tanlangan va Gamilton matritsalarini qurish uchun ishlatilgan. Keyinchalik ularning o'ziga xos qiymatlari ekstrapolyatsiya qilindi. O'zgartirilgan Davidson tuzatish yordamida yuqori qo'zg'alishlar tufayli effektlar uchun to'liq bo'sh

joy (nol tanlash chegarasiga to'g'ri keladi) hosil bo'ladi va tuzatiladi (batafsil ma'lumot uchun ga qarang). Natijalarni muhokama qilish bilan birga matndagi ekstrapolyatsiya qilingan va sozlangan qiymatlar haqida xabar beramiz.

Yuqoridagi protseduradan so'ng yakuniy CI to'lqin funksiyalari mos yozuvlar bo'shlig'ida juda yaxshi ifodalangan: mos yozuvlar konfiguratsiyasining kvadrat koeffitsientlari yig'indisi ko'pgina geometriyalarning asosiy holati uchun 0,91 dan 0,95 gacha bo'lgan. Shunday qilib, to'liq PESni qurish uchun ishlatiladigan geometriyalarning butun diapazonida o'lchovli izchillik xatosi kichik bo'lishi kutilmoqda.

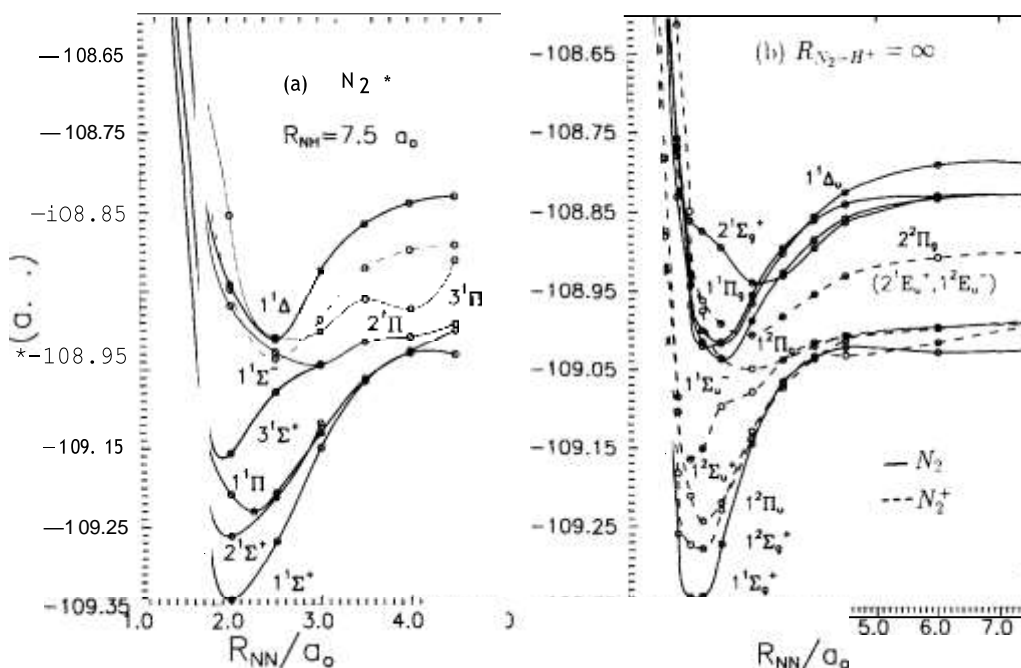
3. Iitolekulyar fragmentlar uchun hisoblar

N_2 va NQ ning tegishli, asimptotik potentsial-energiya egri chiziqlarini (PEC) olish uchun biz yuqorida ko'rsatilgan protsedura bo'yicha ushbu molekular uchun bir qator MRDCI hisob-kitoblarini amalga oshirdik va to'liq bazaviy to'planning tegishli funksiyalari to'plamidan (70 MO's) foydalandik. PES hisob-kitoblarimizda qabul qilingan. H atomi uchun biz 10 ta vodorod MO ni ishlatdik va 0,63 va to'liq CI elektron yaqinligini oldik .

1-rasmdagi egri chiziqlar H va N ning ba'zi PE egri chiziqlarini o't R funksiyasi sifatida tasvirlaydi. N asosiy holatdagi muvozanat masofasi (R_q) HA h bu yerda l deb topildi. 1 t17 A (Expt. 1.0977 A [28]). N (XIL^*) va NQ ($X'L$) ning mos keladigan dissotsilanish energiyalari (D.) eksperimental ravishda 9,9 eV [28] va 5,7 eV [29] orasida bo'lishi tavsiya etilgan turli tajribalar natijasida aniqlangan. qiymati 9,903 eV bo'lishi kerak. Bizning hozirgi hisob-kitoblarimiz mos ravishda 8,8 va 7,5 eV qiymatlarini beradi. Eksperimental baholar bilan nomuvofiqlikni, asosan, ajratilgan atom azot turlarining asimptotik mintaqalarining hali yetarlicha tavsiflanmaganligi bilan bog'lashimiz mumkin va N muvozanat masofasiga yaqinroq bo'lgan o'zaro ta'sir energiyasidagi xatoni 0,5 dan kam deb hisoblashimiz mumkin.

Agar biz eng past eksperimental qo'zg'alish energiyalariga murojaat qilsak, N uchun X—Al H va N2 uchun X—B Lu qo'zg'alishlar = 0,05 eV xatolikda, ikkinchisi esa qo'zg'alishda ekanligini ko'ramiz. Holatlar (mos ravishda B 'IJ u va 2 Zi) bu erda R da = 0,4 eV taxminiy xato bilan tavsiflanadi.

1-rasim. Egri chiziqlar H va N ning ba'zi PE egri chiziqlarini R funksiyasida sifatida tasviri.



Kengayish elektron asosiy holatlarni ham, pastroqda joylashgan joyni ham juda real tarzda tasvirlaydi neytral uchun dastlabki bir necha hayajonlangan davlatlarning sionlarifrap•ment va molekulyar ion uchun.

4. Vibratsiyali birikma matritsasi elementlari.

Koplinp topologiyasining dinamik jihatlarini batafsilroq o'rganish uchun biz diagonal va diagonaldan tashqari tebranish matritsasining elementlarini kolinear va perpendikulyar yondashuvlarda yuzaga kelishi mumkin bo'lgan qo'zg'alishlar uchun hisoblab chiqdik. Ushbu elementlarning umumiy xususiyatlari katta ahamiyatga ega, chunki elastik dinamikaning tafsilotlari hal qiluvchi darajada ularga bog'liq. Ularni hisoblash uslubimiz avval [1 6,33] ko'p marta ta'riflangan va bu yerda bundan keyin muhokama qilinmaydi. 10a-rasmda diagonal elementlarning tipik shakli V0q va V 1, R ,, ning kollinearida, R ning perpendikulyar geometriyadagi funksiyasi sifatida ko'rsatilgan. Quyidagi xususiyatlarni kuzatish mumkin: (i) egri chiziqlar ikkala yo'nalish uchun masofalarga nisbiy silliq funksiyalardir va bir-biriga juda o'xshash ko'rinadi, garchi kollinear yondashuv ilgari ko'rsatilganidek, qisqa masofalarda chuqurroq quduqni ko'rsatadi; (ii) ulanish kuchi ham bu erda belgilangan funktsiyaga o'xshaydi. 11-rasmda biz turli An o'tishlari uchun diagonaldan tashqari elementlarni qo'shimcha ravishda xabar qilamiz. Cg-da, yondashuv birlashmaning umuman zaif

ekanligini va biz ko'rib chiqqan grippga o'tish uchun ahamiyatsiz deb hisoblanishi mumkin va hatto H⁺ ning kichikroq yondashuvlarida. Boshqa tomondan, C 2 uchun orientatsiya qisqa masofalarda bog'lanish sezilarli bo'ladi, lekin masofa = 2 ag dan larper bo'lishi bilan u tezda juda ahamiyatsiz bo'lib qoladi. Shuni yodda tutingki, faqat Vb va V 2 qisqa masofalarda sezilarli darajada kuchli bog'lanishni ko'rsatadi, V₂ va V 3 esa deyarli barcha masofalar oralig'ida yana juda kichikdir. Bu natija nurli eksperimentlarning eksperimental topilmasini tasdiqlaydi, bunda $v = 0 \rightarrow 1$ uchun tebranish qo'zg'alish cho'qqisini eng ko'p hal qilish mumkin bo'lsa, barcha yuqori qo'zg'alishlar to'qnashuvning ancha keng diapazonida bu tizim uchun aniqlanmaslik uchun juda zaif edi.

5. Xulosalar

Tarqalish tajribalarida kuzatilgan H—N₂ tizimidagi past tebranish egiluvchanligi bilan bog'liq holda biz asosiy holat va ba'zi bir past qo'zg'aluvchan elektron holatlarning potentsial energiya sirtlari uchun umumiy xususiyatlarni juda ehtiyotkorlik bilan hisoblab chiqdik. MRDCI hisob-kitoblaridan foydalanish. Dastlabki tahlil sifatida biz ushbu tadqiqotni protonning N nishonga kollinear va perpendikulyar yondashuvlari uchun o'tkazdik.

Molekulyar ion uchun asosiy holat PES ning hisoblangan muvozanat geometriya parametrlari avvalroq xabar qilingan nazariy hisob-kitoblar va mavjud eksperimental natijalar bilan yaxshi mos kelishi aniqlandi. Hozirgi hisob-kitoblar ham atom qiymatlari proton yaqinligini oldingi hisob-kitoblar va tajribalar bilan miqdoriy muvofiqlikda baholash uchun ishlatiladi. PESning asosiy holatini turli xil "kesishlar" nuqtai nazaridan tahlil qilish, protonning yaqinlashishi bilan N-N bog'ining induktsiyalangan deformatsiyasi va boshqalar, "bog'lanish" mexanizmi orqali sodir bo'lishi mumkin bo'lgan tebranish qo'zg'alishini ko'rsatadi. suyultirish kuchlari kollinear geometriyada ahamiyatsiz darajada kichikdir. Perpendikulyar geometriya uchun esa H⁺ ning maqsadli molekulaga yaqinroq bo'lganida oz miqdorda "bog'lanishning suyultirilishi"ni ko'rish mumkin, garchi u R ning ortishi bilan tezda ahamiyatsiz bo'lib qoladi. Hisoblangan anizotropiya koeffitsientlari, TO va V2, qisqa masofalarda kuchli quduqni ko'rsatadi, bu esa ancha yaxshi ekanligini ko'rsatadi. H⁺ ionining maqsadli molekulyar bulutga kirib borishi natijasida yuzaga keladigan kuchli bezovtalanish va kollinear yondashuvdagi to'qnashuvlar energiya jihatidan qulaydir. Ikki yo'nalishdagi asosiy holat PESning hisoblangan dinamik atributlari bu erda tebranish harakati va o'zaro ta'sir kuchlari o'rtasida mavjud bo'lgan juda kichik bog'lanishni ko'rsatadi.

Foydalangan adabiyotlar

1. C.-Y. Ng, T. Baer and I. Powis, eds., Unimolecular and bimolecular ion—molecule reaction dynamics, Wiley Series in Ion Chemistry and Physics (Wiley, New York, 1994).

2. C.S. Gudeman and R.J. Saykally, *Ann. Rev. Phys. Chem.* 35 (1984) 387.
1. S. Green, J.A. Montgomery and P. Thaddeus, *Astrophys. J.* 193 (1974) L89.
2. R.J. Saykally, D.A. Dixon, T.G. Anderson, P.E. Szanto and R.C. Woods, *Astrophys. J. Lett.* 205 (1976) 101 .
3. K.V.L.N. Sastry, P. Helminger, E. Herbst and F.C. Delucia, *Chem. Phys. Lett.* 84 (1981) 286; F.C. van der Heuvel and
4. A. Dymann, *Chem. Phys. Lett.* 92 (1982) 219; S.C. Gudeman, M.H. Bagemann, J. Pfaff and R.J. Saykally, *J. Chem. Phys.* 78 (1983) 5837; S.C. Foster and A.R.W. McKellar, *J. Chem. Phys.* 81 (1984) 3424; E.R. Keim, M.L. Polak, J.C. Owrutsky, J.V. Coe and R.J. Saykally, *J. Chem. Phys.* 93 (1990) 3111 .
5. J.C. Owrutsky, E.R. Keim, J.V. Coe and R.J. Saykally, *J. Phys. Chem.* 93 (1989) 5960.