

Winkelbreiten auch nur einigermaßen derjenigen des Idealkristalls nahekommende Reflexionskurven.

Die zur Durchführung der berichteten Versuche benötigten apparativen Hilfsmittel wurden zum grössten Teil von der Deutschen Forschungsgemeinschaft zur Verfügung gestellt, wofür ich ihr auch an dieser Stelle verbindlichsten Dank ausspreche.

Literaturverzeichnis

- ALLISON, S. K. (1932). *Phys. Rev.* **41**, 1.
 BEARDEN, J. A. & ROSEBERRY, H. H. (1935). *Phys. Rev.* **48**, 110.
 BORRMANN, L. (1954). *Z. Kristallogr.* **106**, 109.
 DARWIN, C. G. (1914a). *Phil. Mag.* **27**, 315.
 DARWIN, C. G. (1914b). *Phil. Mag.* **27**, 675.

- DAVIS, B. & STEMPEL, W. (1921). *Phys. Rev.* **17**, 608.
 DUMOND, J. (1937). *Phys. Rev.* **52**, 872.
 EHRENBERG, W. & MARK, H. (1927). *Z. Phys.* **42**, 807.
 EWALD, P. P. (1918). *Ann. Phys., Lpz.* **54**, 419.
 HOERNI, J. A. & IBERS, J. A. (1954). *Acta Cryst.* **7**, 744.
 JAMES, R. W. (1950). *The Optical Principles of the Diffraction of X-rays*. London: Bell.
 KOHLER, M. (1930). *Ann. Phys., Lpz.* **18**, 265.
 LAUE, M. v. (1931). *Z. Phys.* **72**, 472.
 MILLER, F. (1935). *Phys. Rev.* **47**, 209.
 PARRATT, L. G. (1932). *Phys. Rev.* **41**, 561.
 PARRATT, L. G. (1935). *Rev. Sci. Instrum.* **6**, 387.
 PRINS, I. A. (1930). **63**, 477.
 RENNINGER, M. (1934). *Z. Kristallogr.* **89**, 344.
 RENNINGER, M. (1938). *Z. Kristallogr.* **99**, 181.
 RENNINGER, M. (1952). *Acta Cryst.* **5**, 711.
 RENNINGER, M. (1953). *Naturwissenschaften*, **40**, 50.

Acta Cryst. (1955). **8**, 606

Beitrag zur Kenntnis der röntgenographischen Unterschiede zwischen den beiden Diamant-Typen

VON M. RENNINGER

Kristallographisches Institut der Universität Marburg, Deutschland

(Eingegangen am 31. Januar 1955)

Extreme representatives of type I and type II diamonds have been used for measuring the intensities of reflected X-rays. In all strong reflexions the observed large differences of reflecting power (type II stronger than type I) are readily explained by the well known difference of perfection of the two types. Type I, with strong primary extinction, approaches the extreme of the perfect crystal, type II that of the ideal mosaic crystal. Contrary to the findings of other authors 'indirect reflexion' (*Umweganregung*) of (222) occurs in both types, though at very different rates. This again can be explained by the differences of perfection. The reflecting power of (222), when unperturbed by simultaneous reflexions, yields a structure factor of 1.1–1.2 electrons per cell, in confirmation of an earlier determination by the author. This is now shown to be the same for both types. The assumption of a difference of electron-density distribution in the two types is thus in no way supported.

1. Einleitung

Die von Robertson, Fox & Martin (1934) festgestellten beiden Diamanttypen stellen Extremfälle dar, denen immerhin die Mehrzahl aller untersuchten Steine nahezukommen scheint. U. a. spielt bei der Diskussion um das Wesen des Unterschieds eine erhebliche Rolle der röntgenographische Befund, der eine offenbar generell gegebene Verschiedenheit der Wachstumsgüte zwischen beiden Typen sicher stellt: Typ I (Absorptionsbande im Ultrarot, ultraviolett durchlässig bis 3000 Å) ist als dem Idealkristall, Typ II (keine Ultrarotbande, ultraviolett durchlässig bis 2250 Å) dem idealen Mosaikkristall nahestehend anzusehen. Darüberhinaus aber erklären manche Autoren diese Verschiedenheit als nicht ausreichend zur Deutung des gesamten Beobachtungsmaterials, sie glauben auf eine wesent-

liche Strukturverschiedenheit, d. h. Verschiedenheit der Elektronendichteverteilung schliessen zu müssen. Insbesondere deutet Grenville-Wells (1951) die photographisch festgestellte Verschiedenheit der Intensität des 'verbotenen' (222)-Reflexes bei beiden Typen, die nach ihrer Meinung zu gross ist, um als eine lediglich *relative*, d. h. auf die starken Reflexe bezogene zu gelten, als struktur- und nicht nur texturbedingt, wobei Typ I die höhere (222)-Intensität liefere, weil in ihm die Elektronendichte um das einzelne Atom stärker von der Kugelsymmetrie abweiche als in Typ II. Ein weiterer sehr auffallender Unterschied soll darin bestehen (Grenville-Wells, 1951), dass die vom Verfasser (Renninger, 1937a) mitgeteilte Erscheinung der 'Umweganregung' (*indirect reflexion*) nur bei Typ II, nicht aber bei Typ I mit merklicher Intensität aufträte. Eine dritte Gruppe von Verschiedenheiten

schliesslich bezieht sich auf die 'diffusen Reflexe' von denen die eine Sorte, die 'sekundären', nur bei Typ I beobachtet werden (Lonsdale, 1942). Diese 'secondary extra spots' sollen nach Hoerni & Wooster (1952) nur durch eine tetragonale Gitterverzerrung in kleinen Bereichen deutbar sein.

Als Beitrag zur Klärung der Frage nach dem Wesen der Verschiedenheit der beiden Typen wurde in der nachstehenden Untersuchung ein Absolutvergleich der Reflexionsintensitäten, insbesondere von (222), vorgenommen und zugleich nachgeprüft, inwieweit das Fehlen von Umweganregung bei Typ I sich bestätigt. Nicht einbezogen in die Untersuchung wurden vorläufig die diffusen Reflexe.

2. Messungen

Es standen für die Messungen durch freundliche Vermittlung von Miss Grenville-Wells einige Steine zur Verfügung, an welchen bereit ein Teil der vorstehend zitierten Untersuchungen im University College, London, ausgeführt worden ist. Die Messungen wurden an je zwei fast genau gleich grossen, möglichst extremen Vertretern der beiden Typen I und II vorgenommen. Es sind durchweg recht schön ausgebildete, nahezu reguläre Oktaeder, ein Paar mit Kantenlänge von 0,7 mm., $A/4$ (Typ I) und $A/22$ (Typ II), ein anderes mit Kantenlängen 1,7–1,9 mm., $B/3$ (Typ I) und $BB/35$ (Typ II). Die Ergebnisse waren bei beiden Paaren in allen Wesenszügen dieselben. Quantitativ verwertet wurden jedoch nur diejenigen an dem kleineren Paar, und zwar deshalb, weil Intensitätsmessungen an Kristallen solch geringer Grösse nur mit der 'Bademethode' möglich sind und für einwandfreie Anwendung dieser Methode Voraussetzung ist, dass jedes Volumelement des Kristalls von derselben Primärintensität getroffen wird ('Intensität' hier im eigentlichen Sinn gemeint als Leistung cm^{-2}). Hierzu muss der Kristall so klein sein, dass die ihn durchsetzenden Strahlen keine merkliche Schwächung durch Absorption erleiden. Selbst das kleinere der genannten Kristallpaare erfüllt allerdings diese Forderung nur sehr unvollkommen: Der Absorptionskoeffizient des Diamanten für $\text{Cu } K\alpha$ ist $\mu = 19 \text{ cm}^{-1}$, die Halbwertsdicke somit etwa 0,4 mm. Ein Übergang zu kürzerer Wellenlänge (etwa $\text{Mo } K\alpha$) verbot sich, da dann eine nicht durch Umweganregung gestörte Messung von (222) überhaupt nicht mehr möglich ist (Renninger, 1937a). Andererseits kann auch für $\text{Cu } K\alpha$ die Gesamtschwächung der Interferenzen durch echte Absorption 50% kaum übersteigen, und sie ist zudem für alle Interferenzen ungefähr gleich gross zu erwarten. Daher wurde von Absorptions-Korrekturen Abstand genommen, zumal zur Lösung der gestellten Aufgabe nur qualitative, bzw. grob quantitative Absolutvergleiche ausreichend waren. Das einzige, halb unbeabsichtigte, quantitative Ergebnis bedürfte vielleicht einer Absorptionskorrektur, die aber sicherlich unerheblich klein ist.

Für die Messungen wurde ein Spezial-Kristallhalter (Goniometerkopf) zum Aufsetzen auf den bereits beschriebenen Intensitäts-Messtisch (Renninger, 1952) (Spektrometer) gebaut, ähnlich dem früher (Renninger, 1937a) bei Untersuchung der Umweganregung verwendeten (Fig. 1(a)). Er erlaubt Kristalldrehung

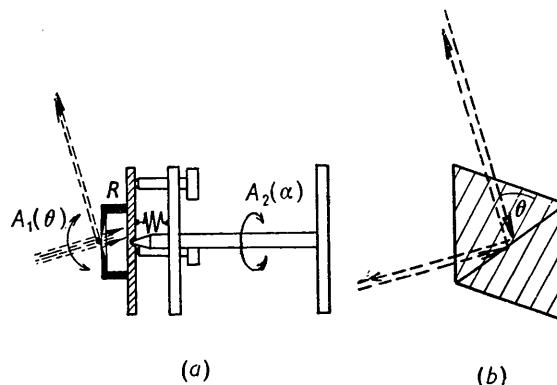


Fig. 1. (a) Kristallträger, schematisch. (b) Strahlverlauf bei Reflexion einer Interferenz (hhl), speziell (311).

um eine horizontale Achse A_2 und ist als ganzes drehbar mit der Vertikalachse des Spektrometers, A_1 . Die Kriställchen werden zur Messung mit einer Oktaederfläche aufgeklebt auf eine über den Messring R gespannte Cellon-Folie. Justiervorrichtungen erlauben, den Kristall genau in den Schnittpunkt beider Achsen zu bringen und ausserdem neigungsmässig so zu justieren, dass eine der (111)-Flächen genau senkrecht zur Achse A_2 steht. Auf Grund des Umstands, dass sämtliche beim Diamanten mit $\text{Cu } K\alpha$ auftretenden Interferenzen vom Typus (hhl) sind ((111), (220), (113), (222), (004) und (331)), lassen sie sich mit dieser Vorrichtung alle bei einer und derselben Kristalljustierung messen, zugleich mit Aufnahme der Umweganregung bei (222). In sechs verschiedenen Winkelstellungen um die Achse A_2 steht jeweils die Achse einer Zone (hhl), die sämtliche reflektierenden Netzebenenarten enthält, vertikal. Von diesen um 60° getrennten Winkelstellungen, sind je drei um 120° getrennte unter sich völlig gleichartig in Bezug auf die Orientierung des Kristall-Oktaeders, jeweils 2 um 180° getrennte aber unterscheiden sich durch Umkehrung des Strahlengangs an jeweils derselben Netzebenen-schar. Bei den drei Stellungen der einen Sorte bildet den grösseren Winkel mit der Normalfläche der Achse A_2 der Primärstrahl ('streifender Austritt'), bei den drei andern der Interferenzstrahl ('streifender Eintritt'). Fig. 1(b) veranschaulicht die Verhältnisse am Beispiel von (311).* Die 'symmetrischen' Oktaeder-

* Überdies stehen bei jeder der sechs Winkelstellungen für jede der Interferenzordnungen noch mehrere derselben Zone angehörige Netzebenscharen zur Wahl, aber nur solche kommen für die Messung in Frage, deren Winkel mit der A_2 -Normalfläche genügend klein ist, sodass sowohl Primärstrahl wie Interferenzrichtung noch einen positiven Winkel mit dieser Fläche bilden. Nur bei (331) blieb hiernach noch die Wahl

Reflexe (111) und (222) andererseits sind natürlich in jeder beliebigen Winkelstellung in Bezug auf A_2 messbar. Mit Hilfe dieser Reflexe erfolgte auch röntgenographisch die genaue Neigungsjustierung der Kristalle, nämlich so, dass für Konstanz der reflektierten Intensität (Maximalwert) bei Drehung des Kristalls um A_2 gesorgt wird.

Die Messung der Reflexions-Intensitäten (unter 'Intensität' einer Interferenz wird hier und im Folgenden durchweg ihr 'integrales Reflexionsvermögen' verstanden) geschieht nach Justierung in üblicher Weise: Ein mit einem LiF-Kristall vormonochromatisiertes Primärstrahlbündel von mehreren mm.² Querschnitt wird genau auf den Schnittpunkt der beiden Achsen A_1 und A_2 gerichtet und die vom Kristall reflektierte Strahl-Leistung wird in Abhängigkeit von der Winkelstellung (in Bezug auf θ , d.h. um A_1) registriert. Messorgan (Zählrohr nach Berthold-Trost), sowie Mess- und Registriertechnik sind schon mehrfach beschrieben (Renninger, 1952; auch voranstehende Arbeit).

Zur Messung der Umweganregung an (222), die ja in einer Änderung des (222)-Reflexionsvermögens mit dem Einfall-Azimet besteht, muss für eine kontinuierliche Drehung der (111)-Ebene in sich selbst, d.h. um A_2 , gesorgt werden. Dies geschah mit Hilfe eines Spezial-Synchronantriebs (wahlweise 1/26 oder 1/72 Umdrehungen/Min.), der auf seiner Antriebsachse eine Kupplungsscheibe trägt. Auf einem gesonderten Stativ angebracht, lässt diese sich stirnseitig gegen die Achse A_2 schieben, an deren rückwärtigem Ende sich die Kupplungs-Gegenscheibe befindet. Für die ungestörte Intensitätsmessung von (222) muss natürlich darauf geachtet werden, dass dabei die Winkelstellung des Kristalls in Bezug auf A_2 möglichst weit von Umweganregungs-Maximis entfernt ist.

3. Ergebnisse

An beiden Kristallpaaren wurden die 'Intensitäten' aller Interferenzen, jeweils in allen sechs der im letzten Abschnitt genannten Winkelstellungen in Bezug auf die Horizontalachse gemessen, ferner auch diejenigen der 'symmetrischen' Reflexionen (111) und (222) in mehreren verschiedenen Azimet-Stellungen. Die Messungen waren relative, indem sie nicht an den Primärstrahl angeschlossen wurden, jedoch lassen sich die Intensitäten verschiedener Kristalle aufeinander beziehen, da auf Einhaltung gleicher (bzw. definiert verschiedener) Versuchsbedingungen geachtet wurde, vor allem bezüglich der Primärstrahlintensität durch Strom und Spannungsregelung.

Es zeigte sich nun, dass bei beiden Exemplaren des grösseren Paares, $B/3$ und $BB/35$ die gemessenen Intensitäten in den beiden jeweils zusammengehörigen Stellungen mit umgekehrtem Strahlengang sich verhältnismässig stark verschieden ergaben: Durchweg liegt

zwischen zwei Ordnungen. Auch hier erfolgten die Messungen an derjenigen, die den kleineren Winkel mit der A_2 -Normalfläche bildet.

die bei 'streifendem Eintritt' gemessene um einen Faktor 1,5–2,3 höher als die bei streifendem Austritt gemessene. Bei dem kleineren Paar, $A/4$ und $A/22$ dagegen waren diese Unterschiede sehr klein, überschritten bei keinem Reflex 10%, so dass arithmetische Mittelbildung aus den Werten jeweils aller sechs Winkelstellungen gerechtfertigt erschien. Ausserdem gibt dieser Befund eine beruhigende Bestätigung der Annahme, dass der durch Vernachlässigung des Absorptionsfaktors begangene Fehler bei dem kleineren Paar unerheblich ist. Dies ist verständlich, da sich die Volumina der kleinen und der grossen Kriställchen etwa um den Faktor 15 unterscheiden.

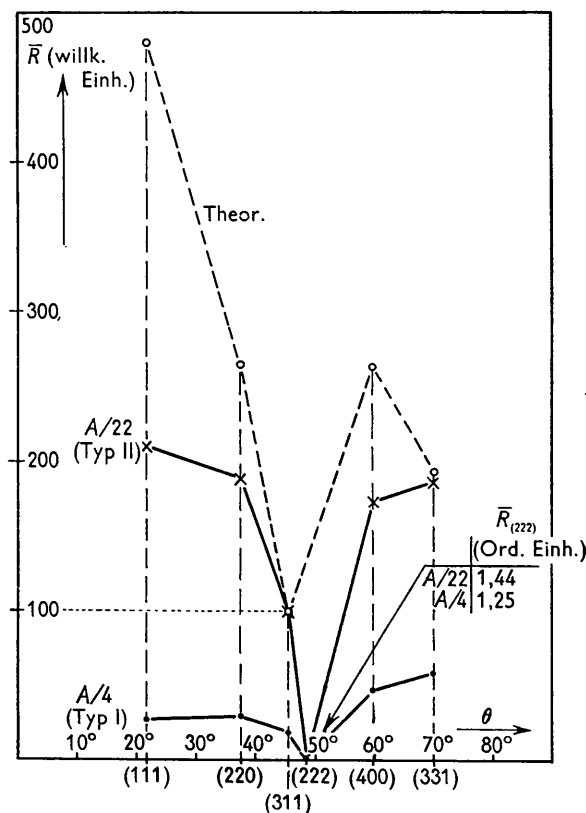


Fig. 2. Gemessene Intensitäten an Kristallpaar $A/4$ und $A/22$.

Fig. 2 zeigt die Ergebnisse an $A/4$ und $A/22$. Wegen der fast gleichen Grösse beider Kriställchen sind die Werte ohne Umrechnung direkt vergleichbar. Der ausserordentlich grosse Intensitäts-Unterschied, vor allem bei den starken Reflexen, zeigt die starke Verschiedenheit der Extinktion und damit der Wachstumsgüte zwischen Typ I und Typ II. Dagegen ist der sehr schwache (222)-Reflex, für welchen Extinktion auch bei gutem Wachstum kaum zu erwarten ist (Renninger, 1937b), bei beiden Typen fast genau gleich stark. Gestrichelt sind in die Fig. 2 noch eingetragen die theoretischen, für den 'idealen Mosaikkristall' zu erwartenden Intensitätswerte, angeglichen an $A/22$ auf Intensitätsgleichheit für den schwächsten der normalen

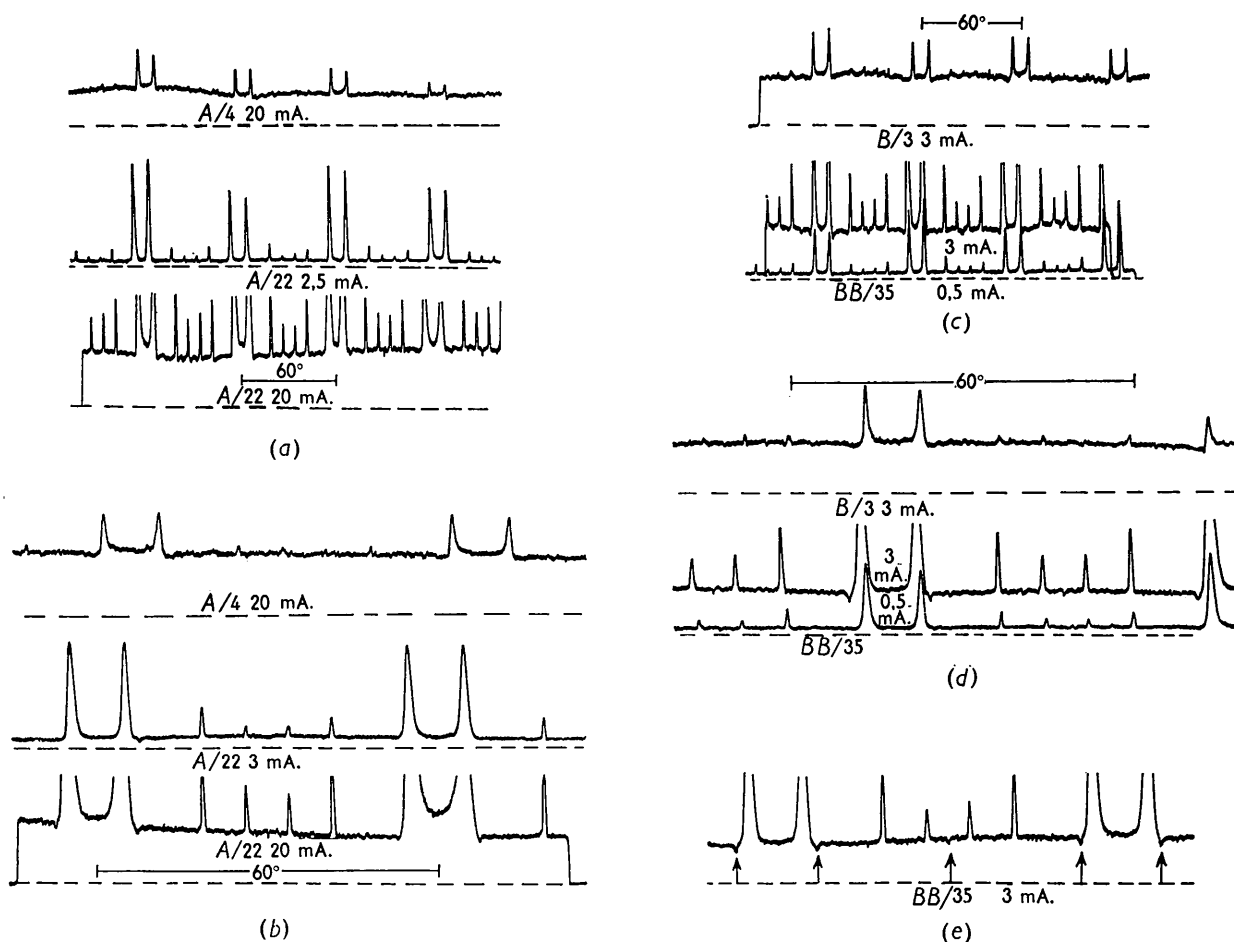


Fig. 3. (a, b) Umweganregung bei Kristallpaar A/4 und A/22. (c, d) Umweganregung bei Kristallpaar B/3 und BB/35. ((a) u. (c) mit schnellerer, (b) u. (d) mit langsamerer Azimutdrehung.) (e) 'Aufhellungs'-Minima.

Reflexe (311),* dessen Intensität gleich 100 gesetzt ist. Die Angleichung ist offensichtlich nicht ganz korrekt, denn der Vergleich zwischen den Intensitätswerten von A/22 und den theoretischen zeigt, dass auch dieser Kristall noch mit einiger Extinktion behaftet ist. Also gilt dies zweifellos auch für (311). Immerhin darf wohl Kristall A/22 wenigstens in Bezug auf die schwächeren Reflexe als idealer Mosaikkristall betrachtet werden. Dies erlaubt, aus dem Intensitätsverhältnis $\bar{R}_{222}/\bar{R}_{311} = 0,0144$ den (222)-Strukturfaktor zu errechnen. Er ergibt sich in fast zu guter Übereinstimmung mit dem früher mit Absolutmessungen ermittelten Wert (Renninger, 1937c) zu etwa 1,2 Elektronen pro Zelle (früher 1,1 El./Z.). Der durch Vernachlässigung der Extink-

* Von der Hoerni-Ibers'schen Neuberechnung (1954) der F -Kurve von C ist hier noch kein Gebrauch gemacht. Eine überschlägige Rechnung zeigt, dass ihre Berücksichtigung nur für (111) einen wesentlich (hier allerdings sehr stark, $1\frac{1}{2}$ -fach) veränderten \bar{R} -Wert zur Folge hätte. Gerade (111) interessiert aber wegen des starken Extinktionseinflusses für die vorliegende Arbeit kaum.

tion von (311) begangene Fehler kann keinesfalls gross sein (F geht ja mit der Wurzel von \bar{R}). Seine Berücksichtigung würde aber die Übereinstimmung mit dem früheren Wert noch weiterhin verbessern.

Die Umweganregung bei (222) andererseits tritt, entgegen den anderweitigen Befunden bei *beiden* Typen auf, allerdings in sehr verschiedenem Ausmass. Fig. 3 gibt die Registrierungen der Maximalintensität von (222) bei festgehaltenem θ in Funktion des Einfallsazimuts wieder, Fig. 3(a, c) jeweils bei der schnelleren, Fig. 3(b, d) bei der langsameren Azimutdrehung. Sie zeigen das bekannte Bild (Renninger, 1937a, c) der in regelmässigen Abständen von je 60° Azimutdrehung wiederkehrenden Intensitätsmaxima. Gestrichelt ist jeweils der absolute Intensitäts-Nullwert eingetragen, wie er sich zu Beginn und Ende der Registrierungen durch Schliessen des Röntgenröhren-Fensters anzeigt. Man sieht, die höchsten der Umweganregungs-Maxima überhöhen die ungestörte (222)-Intensität bei den Kristallen der Type I, A/4 und B/3, auf nicht mehr als etwa das Doppelte, bei der Mosaiktype II, A/22

und BB/35, dagegen auf das 10–20-fache. Die Registrierungen an den letzteren sind jeweils bei zwei verschiedenen Primärstrahl-Leistungen (mA.-Werten des Röhrenstroms) aufgenommen: Einmal bei derselben, bei der die entsprechende Registrierung des zugehörigen Partners der Kristalltype I ausgeführt ist, und ausserdem bei einem zur Erfassung der Gesamthöhe der Maxima stark reduzierten Röhrenstrom. Aus den ersteren erkennt man die ungefähre Gleichheit der (222)-Grund-Intensität bei beiden Typen, aus den letzteren das Ausmass der Verschiedenheit in der Stärke der Umweganregung.

Die Verschiedenheit der Stärke der Umweganregung bei beiden Typen ist auf Grund der Intensitätsverschiedenheit der normalen, starken Reflexe zu erwarten gemäss einer primitiven Überlegung: Die Umweganregung kommt ja zustande durch Hintereinanderschaltung jeweils zweier Interferenzen, so dass sich deren Intensitätsverschiedenheiten bei verschiedenen Kristall-exemplaren *multiplikativ* auf das Verhältnis der Umweganregung dieser Kristall-exemplare auswirken muss.—Man muss berücksichtigen, dass die Winkelöffnungen der Bündel, mit denen diese Messungen gemacht wurden, so gross sind, dass auch bei einer festen Winkelstellung des Kristalls (in Bezug auf θ), nämlich Einstellung auf das Reflexionsmaximum, die reflektierte Leistung proportional dem integralen Reflexionsvermögen ist! Anders lägen die Verhältnisse, wenn mit extrem scharfen und monochromatischen Bündeln gearbeitet würde (Mehrfachspektrometer (Renninger, 1955)). Dabei würde zweifellos der Idealkristall höhere Umweganregungs-Maxima liefern als der Mosaikkristall (abgesehen von einer auf Grund der dynamischen Theorie zu erwartenden Feinstruktur der Erscheinung beim Idealkristall).

Gegenüber den früher (Renninger, 1937a) wiedergegebenen Registrierungen ist das winkelmässige Auflösungsvermögen wesentlich erhöht, erkenntlich an der grösseren Schärfe der Umweganregungs-Maxima, sowie an dem wesentlich tiefer liegenden Untergrund zwischen den Partnern des höchsten der Maximums-Paare (an welchem ja nur die α_1 -Linie beteiligt ist). Hierdurch tritt eine neue Einzelheit hervor, besonders gut kenntlich in Fig. 3(e): einige schwache Minima ausser den Maximis (mit Pfeilen bezeichnet). Es sind dies 'Aufhellungs'-Minima, die entstehen durch Nebenanregung von Interferenzen vom Typus (220). In dem früher mitgeteilten Bild (Renninger, 1937a, Fig. 3) des 'vollständigen Reflexsystems' nach Kossel, speziell für Cu $K\alpha$ an Diamant, das alle zustandekom-

menden Umweganregungs-Maxima zu deuten erlaubt durch Schnitte des (222)-Kreises mit Kreisen anderer Ordnung, treten zusätzlich noch Schnitte mit Kreisen vom Typus (220) auf. Umweganregung vermögen diese nicht zu verursachen, da die 'Umwege' selbst wieder über Interferenzen vom verbotenen Typus führen würden. Daher macht sich die nach (220) abgestrahlte Energie nur durch leichte Aufhellungs-Minima bemerkbar.

Die in Fig. 2 eingetragenen Messwerte der ungestörten (222)-Intensität sind erhalten bei Azimutstellungen etwa mitten zwischen den höchsten und den benachbarten zweithöchsten Maxima. Dort ist die Gefahr einer Fälschung am geringsten.

Alles in Allem kann wohl aus den Ergebnissen der Schluss gezogen werden, dass die Unterschiede zwischen den Diamanttypen nur solche der Wachstums-güte oder Textur, nicht solche der Struktur sind, soweit mit dieser die Elektronendichteverteilung innerhalb der kubischen Elementarzelle gemeint ist. Ob diese selbst etwa die von Wooster behaupteten Verzerrungen aufweist, darüber sagen die vorliegenden Versuche nichts aus. Weiterhin kann die Absolutgrösse des (222)-Struktur-faktors mit 1,1–1,2 Elektronen pro Zelle als erneut bestätigt und für *alle* Diamanten, unabhängig von ihrer Typenzugehörigkeit, sichergestellt gelten.

Die apparativen Hilfsmittel sind grösstenteils von der Deutschen Forschungsgemeinschaft zur Verfügung gestellt, wofür nochmals verbindlichster Dank ausgedrückt werden soll. Ferner danke ich dem University College, London (Prof. Kathleen Lonsdale und Dr Judith Grenville-Wells) für freundliche leihweise Überlassung der Diamanten.

Literaturverzeichnis

- GRENVILLE-WELLS, H. J. (1951). Thesis, London.
 HOERNI, J. A. & IBERS, J. A. (1954). *Acta Cryst.* **7**, 744.
 HOERNI, J. & WOOSTER, W. A. (1952). *Experientia*, **8**, 297.
 LONSDALE, K. (1942). *Proc. Roy. Soc. A*, **179**, 315.
 LONSDALE, K. (1947). *Philos. Trans. A*, **240**, 219.
 RENNINGER, M. (1937a). *Z. Phys.* **106**, 141.
 RENNINGER, M. (1937b). *Z. Kristallogr.* **97**, 95.
 RENNINGER, M. (1937c). *Z. Kristallogr.* **97**, 107.
 RENNINGER, M. (1952). *Acta Cryst.* **5**, 711.
 RENNINGER, M. (1955). *Acta Cryst.* **8**, 597.
 ROBERTSON, R., FOX, J. J. & MARTIN, A. E. (1934). *Philos. Trans. A*, **232**, 463.