

Röntgeninterferenz und Röntgenbeugung als Quanteneffekt

Ein (quasi)korpuskulares Modell

von H. Weyerer⁺⁾

(eingegangen am 6.8.1972)

X-Ray-Diffraction as a Quantum Effect. - A (quasi)corpuscular model -

To account for the interference behaviour of X-ray quanta a simple (quasi)corpuscular model is presented, modifying the well known Duane's concept. Our model postulates an interaction cyclus photon - crystal phonons - photon in connection with the laws of conservation of energy and momentum transfer between every interfering X-ray quantum and the interacting crystal-atoms. The predictions of this corpuscular model are compared with our experimental results obtained so far. These results seem to be a critical proof of the thesis that single X-ray quanta interfere with the reflecting crystal and agree well with the proposed model. A wavelike explanation of our experimental results was not successful.

Zusammenfassung. Mit Hilfe eines (quasi)korpuskularen Modells wird eine Quantenvorstellung der Röntgenbeugung und der Röntgeninterferenz entwickelt und dazu eine Kausalkette Photon - Phononen - Photon postuliert (s. Abb. 1). Eigene Experimentalergebnisse unterstreichen die Nützlichkeit des vorgeschlagenen Teilchenbildes.

⁺⁾ Anschrift des Verfassers: Dr. Hermann Weyerer,
8058 Erding bei München, Rotkreuz-Str. 62 B

Einleitung

Meßergebnisse von röntgendiffraktometrischen Experimenten, die seit kurzem vorliegen (WEYERER 1967 - 1973), scheinen sich der konventionellen Deutung durch die Wellentheorie zu entziehen. Diese Experimente wurden unter sonst nicht üblichen Versuchsbedingungen durchgeführt und verfolgten das Ziel, den Beugungs- und den Interferenzvorgang detaillierter kennenzulernen.

Anhand einer korpuskularen Modellvorstellung wird der Versuch unternommen, die Quanteninterferenz zusammen mit den neuen Experimentalergebnissen zu erklären. Dieses Modell, das auf Quantenvorstellungen aufbaut, wird nunmehr zur Diskussion gestellt.

Problemstellung

Eine korpuskulare Beschreibung faßt die Wechselwirkung zwischen den Photonen (Lichtquanten; Röntgenquanten) und dem Interferenzapparat (Gitter; Kristall) als eine Abfolge oder Kombination von Erzeugungs- und Vernichtungsprozessen auf. Sie besteht im Fall der Röntgenstreuung darin, daß sowohl bei der Absorption eines einfallenden Photons (Energie $E = h\nu = hc/\lambda$, Impuls $p = h\nu/c = h/\lambda = hk$) als auch bei seiner in Beugungsrichtung erfolgenden Re-Emission (E' , p') eine Gesamtanregung des Kristallgitters (Energie ξ ; Quasi-Impuls $\pi = h\kappa$) eintritt und dabei, gemäß dem Energie- und Impuls-Erhaltungssatz, die Beziehungen

$$\xi = E - E' = \frac{p^2 - p'^2}{2m}$$

und

$$|\pi| = p - p'$$

gelten (Masse $m = h\nu/c^2$, Lichtgeschwindigkeit c , Plancksche Konstante h , Wellenlänge λ , Ausbreitungsvektoren k, κ und G).

Die Braggsche Reflexion, die empirisch als elastische Streuung erkannt ist ($k = k' = 1/\lambda$), wird in der Literatur pauschal durch den Erhaltungssatz der Ausbreitungsvektoren

$$k = k' = -G \text{ (Ewaldsche Konstruktion)}$$

bzw. durch die Gleichung

$$2 \cdot \sin \vartheta / \lambda = 1/d \text{ (Braggsches Reflexionsgesetz)}$$

beschrieben. Dabei ist $G = 1/d$ (d Abstand der reflexionsfähigen Netzebenen) ein beliebiger Vektor im reziproken Gitter und ϑ der Braggsche Reflexionswinkel, d.h. der Glanzwinkel zwischen Strahl und Netzebenenchar). Einzelheiten des Interferenzprozesses lassen sich hieraus noch nicht ablesen.

Für ein korpuskular-mechanisches Interferenzmodell genügt es, wenn - ohne mathematischen Aufwand - drei Gesichtspunkte zusätzlich expliziert werden (s. Abb. 1):

a) Beide Impulskomponenten des Photons, sowohl $p_{\parallel} = p \cdot \cos \vartheta$ längs der Netzebenen bzw. Gitterlinie, als auch $p_{\perp} = p \cdot \sin \vartheta$ quer dazu, sind für den Interferenzmechanismus von Bedeutung. - Das bekannte Konzept einer Quantenbeugung von Duane (Proc. Nat. Acad. Sci. 9 (1923) 158) zieht nur eine einzige Impulskomponente der einfallenden Phononen in Betracht; es arbeitet zudem mit der Vorstellung einer gequantelten Bewegung des gesamten Interferenzapparates um Beträge, die ein ganzzahliges Vielfaches von h/d ausmachen sollen und weiterhin mit der Annahme, daß der Interferenzapparat als Ganzes, wegen seiner großen Masse, keine Energie aufnehmen könne. In all diesen Punkten gehen die hier entwickelten Vorstellungen einen anderen Weg.

b) Die Beträge und Richtungen beider p -Komponenten sollen von geeigneten Gitterphononen übernommen bzw. beeinflußt werden (Absorption bzw. Beugung des Photons). Dabei soll der Impulserhaltungssatz Gültigkeit besitzen. Dann kann $p_{\perp} = \pi_{\perp}$ und $p_{\parallel} = \pi_{\parallel}$ gesetzt werden. Noch nicht verfügt ist darüber, wie die π_{\perp} - und π_{\parallel} -Quasi-Impulse auf Gitterphononen (deren Art noch bestimmt werden muß) aufzuteilen sind. Aus der Braggschen Reflexionsbedingung läßt sich nur soviel entnehmen, daß das Interferenzverhalten vom Gittervektor $G = 2 \cdot \pi_{\perp} / h$ geprägt wird, also wesentlich vom Betrag der p_{\perp} -Photonenimpulskomponente und somit von λ und ϑ abhängt. Es liegt nahe anzunehmen, daß p_{\perp} ein vorhandenes Schallquant der Fortpflanzungsgeschwindigkeit $v_s \approx 10^5$ cm/s zusätzlich anregt (ε_v, π_v), abgekürzt als " π_{\perp} -Phonon" genannt, und daß p_{\parallel} eine hypothetische (vgl. nächsten Abschnitt), mit annähernd Lichtgeschwindigkeit c laufende Störung im Gitterfeld hervorruft (ε_c, π_c), die mit " π_{\parallel} -Phonon" bezeichnet werden soll. Weiterhin nähren die Ewaldsche Konstruktion und der Borrmann-Effekt die Vermutung, daß der Interferenzfall, und nur dieser, durch eine Vielfach-Reflexion von $\pm \pi_{\perp}$ an gegenüberliegenden Gittergraden bzw. Netzebenen charakterisiert wird; demnach könnte eine iterative Richtungsumkehr der π_{\perp} -Komponente solange erfolgen, bis am Kristallende

die beiden π_{\perp} - und π_{\parallel} -Quasi-Impulse gerade wieder zusammentreffen (Rekombination) und, ausgelöst durch einen weiteren Anregungszustand des Kristallgitters (s. Punkt c), eine Rückverwandlung in ein "gebogenes" Photon möglich wird (Re-Emission, der Umkehrprozeß der Photonenabsorption). - Die Wellentheorie kennt demgegenüber nur einen pauschalen, sofort vollzogenen Impulsübergang $n \cdot h/d$ (n Laufzahl) ; sie muß zudem, vermöge ihres Kontinuumcharakters, eine Ausmittelung über eine Vielzahl von Photonen voraussetzen. Im Gegensatz dazu funktioniert die Quanteninterferenz gerade auch im Fall isoliert auftretender Photonen.

c) Für jede derartige Kausalkette Photon - Phononen - Photon soll auch der Energie-Erhaltungssatz gewährleistet sein. Schallquanten leisten dies nicht; die von ihnen transportierten Energiebeträge (rund $m \cdot v_s^2 \approx 10^{-1}$ eV) sind ebenso wie die im Elektronensystem des Gitters ausgetauschten Energiebeträge (etwa $m_e \cdot v_e^2 \approx 10^1$ eV) um Größenordnungen kleiner als die Energien üblicher Röntgenquanten ($h\nu \approx 10^4$ eV). Um diese Röntgenenergie optimal übernehmen zu können, hat man aber eine weitere, mit $v = c$ laufende Sorte von Quasi-Teilchen zu postulieren (s. folgender Abschnitt). Außerdem verlangt der empirische Befund von scharfen, unverschobenen Interferenzlinien, daß die auf den Kristall übertragenen Energien der Röntgenquanten praktisch verlustlos bis zum Ort der Re-Emission gebracht werden und daß dabei weite Strecken zurückgelegt werden können (ausgedehnte lineare Kohärenzbereiche). Die Existenz solcher "lichtartigen" π_{\parallel} -Quasi-Teilchen (Photonen) wird in dieser Form wohl von der Quanteninterferenz zum ersten Mal gefordert. - Nach dem Wellenbild sind Energieerhaltung und Kohärenzeigenschaften durch das Postulat erfüllt, wonach in der kurzen Zeitspanne von einer Gitterschwingung (10^{-13} s) in weiten Kristallbereichen (etwa 10^5 Atomabstände als Linearabmessung) die an allen Gitteratomen gleichartig gebundenen Elektronen fast gleichzeitig vom "Strahlungsfeld" zu erzwungenen Eigenschwingungen veranlaßt würden.

Insgesamt hängt die physikalische Interpretation des kooperativen Gesamtvorgangs der Quanten-Interferenz ersichtlich von der Art der Phononen sowie vom Betrag der mit den einzelnen (Quasi)-Impulsen verbundenen Energiemengen ab (s. nächster Abschnitt). Im übrigen schreibt die Quantenauffassung, wie eben skizziert, dem Kristall eine aktive Rolle beim Interferenzmechanismus zu; folglich muß das

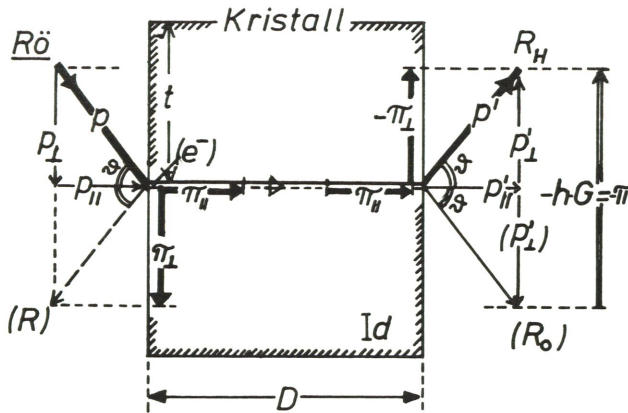


Abb.1 Zur Quanteninterferenz (schematisch)

a) Röntgeninterferenz. Elastische Streuung (Reflexion) eines einzelnen Röntgenquants (R_0) an einem Einkristall (Linearabmessung D ; Abstand der reflektierenden Netzebenen d). p bzw. p' Impulse des Photons vor bzw. nach der Reflexion, $p_{||} = p \cdot \cos \vartheta$ und $p_{\perp} = p \cdot \sin \vartheta$ seine Impulskomponenten. ϑ Reflexionswinkel. $\pm \pi_{||}$ und $\pm \pi_{\perp}$ Komponenten der über Photoeffekt (e^-) angeregten Quasi-Impulse der Gitterphononen. $hG = \tau = -2 \cdot \pi_{\perp}$ (G fiktiver Vektor des reziproken Gitters). Charakteristisch für den Kollektivvorgang der Röntgeninterferenz sind die π_{\perp} -Quasi-Impulse: Borrmann-Reflexe R_H (für $-\pi_{\perp}$) und R_0 (für $+\pi_{\perp}$), jeweils bezogen auf $+\pi_{||}$. Die Quanteninterferenz kennt zusätzlich die Erscheinungen der außer-braggischen Rückreflexe (für $-\pi_{||}$ und $\pm \pi_{\perp}$ und ϑ ; R ist für $+\pi_{\perp}$ gezeichnet) und der Parallelanregung von Laue-Bragg-Reflexen (für $+\pi_{||}$ und $\pm \pi_{\perp}$, aber bei streifender Inzidenz und unter besonderen Streubedingungen), vgl. WEYERER 1972/73.

b) Röntgenbeugung. Reflexion und Abbeugung eines Röntgenquants, das streifend gegen das Profil (Breite D , Höhe t) eines polykristallin aufgedampften Gitterstreifens eines optischen Rastergitters trifft (Heidenhainsches Gitter). Sonst analoge Überlegungen wie in a). Bei diesen Rastergittern treten beispielsweise die wellentheoretisch verbotenen geraden Beugungsordnungen in voller Intensität auf, vgl. WEYERER 1972/73.

Auftreten von Interferenz- und Beugungserscheinungen grundsätzlich an ein materielles Medium gebunden sein; Interferenzen sind demnach im Vakuum nicht zu realisieren.

Es muß noch auf eine Schwierigkeit prinzipieller Art hingewiesen werden: in den Beziehungen $E = h\nu$ und $p = h/\lambda$ tritt jeweils eine teilchenartige Größe (E ; p) mit einer wellenartigen Größe (ν ; λ) auf. In einer konsequent durchgeführten Korpuskelausdeutung ist aber für Welleneigenschaften kein Platz; sie müssen umgedeutet werden. Über eine Möglichkeit dieser Art wird in Kürze berichtet.

Quantenmodell der Interferenz und der Beugung

Die Erklärungsansätze des letzten Abschnitts fordern für die Quanten-Interferenz einen Mehr-Phononenprozeß. Solche Prozesse laufen im allgemeinen recht kompliziert ab. Vereinfachungen sind unerläßlich. Daher beschränken sich die folgenden Überlegungen darauf, das Interferenzgeschehen pauschal zu beschreiben und auf den Fall eines einzelnen Röntgenquants zu reduzieren.

Die Absorption energiereicher Photonen im Kristallgitter führt primär zur Anhebung eines Kristall-Elektrons auf das Niveau des Leitungsbandes (Photo-Ionisierung); dabei bleibt ein Loch, also ein Defektelektron, im Valenzband zurück (Polarisation). Röntgenquanten ($h\nu/c^2 \approx 10^{-29}$ g) erzeugen Elektronen-Loch-Paare in tief gelegenen Gitterbändern; sie fördern aber auch die Entkoppelungswahrscheinlichkeit jedes Paares, dessen Partner eine relativ hohe kinetische Energie erworben haben; somit drängt sich die Annahme auf, daß die Röntgenpolarisation, neben dem Röntgen-Photoeffekt, am Geschehensablauf der Röntgeninterferenz maßgeblich mitbeteiligt ist; dies muß sich im einzelnen in einer getrennten Energie-Impuls-Weitergabe äußern, etwa in Gestalt induzierter Dipolmomente innerer Schalen, die längs linearer Gitterverbände weitergegeben werden. Im ganzen darf man daher den Interferenz-Anregungsvorgang gedanklich in zwei Teilvorgänge unterteilen; dementsprechend muß summarisch die Entstehung von zwei unterschiedlichen Sorten von Anregungsquanten (Gitterphononen) postuliert werden. Diese Quasi-Teilchen entstehen und vergehen gemeinsam, durchqueren aber getrennt den Kristall. Es sind die bereits erwähnten π_{\perp} -Schallquanten (ε_{\perp} , π_{\perp}) und die neu geforderten π_{\parallel} -Gitterfeldquanten (ε_{\parallel} , π_{\parallel}).

Im Zug einer simplifizierenden Veranschaulichung sieht man von den Defekt-Elektronen ab und stellt sich vor, daß das vom Röntgenquant gestoßene Elektron zunächst eine Beschleunigung erfährt, bevor es seinen (höher-energetischen) Gleichgewichtszustand erreicht und daß gerade diese beiden Stoßphasen, über Folgeprozesse und gegen konkurrierende Vorgänge, die behauptete Zweiteilung der Phononenarten verursachen.

Die Beschleunigungsdauer des gestoßenen Elektrons kann mit $\tau_{\parallel} = a/v_e = 10^{-16}$ bis 10^{-17} s abgeschätzt werden ($a \approx 3 \cdot 10^{-8}$ cm Periodizitätsabstand der Gitteratome, v_e mittlere Stoßgeschwindigkeit des Gitterelektrons). Mit dieser 1. Stoßphase wird man eine plötzliche Polarisation der Gitterumgebung des gestoßenen Elektrons verbinden müssen; man hat mit einer phononartigen Weitergabe dieser lokalen Störung ("Coulomb-Stoßanregung"; Polarisationsquant) zu rechnen. Erfolgt diese Weitergabe innerhalb des elektrostatischen Kraftfeldes des Gitterverbandes, so erreicht ihre Ausbreitungsgeschwindigkeit annähernd die Lichtgeschwindigkeit ($v \approx c = 3 \cdot 10^{10}$ cm/s). Diese "Gitterfeldquanten" werden mit den π_{\parallel} -Phononen gleichgesetzt. Sie überstreichen dann in der Zeitspanne τ_{\parallel} eine Strecke von $l = 10^{-6}$ bis 10^{-7} cm. Innerhalb gut geordneter Kristallbereiche darf man eine fast ungestörte Wanderung solcher Quasi-Teilchen, einschließlich ihrer Rückreflexion an Oberflächen, erwarten. Diese Gitterfeldquanten ($\epsilon_c, \pi_c = \pi_{\parallel} / \cos \vartheta$) stellen im Quantenmodell eine notwendige Anregungsart dar; doch wirken sie sich auf den Interferenzvorgang nicht auf eine primär-spezifische Weise aus.

Anschließend an den Beschleunigungsvorgang muß das ausgelenkte Photo-Elektron, noch vor seiner Neutralisierung, im Gitter eine Abbremsung erfahren. Diese 2. Stoßphase muß unter Erzeugung der verschiedensten Gitteranregungen vor sich gehen, auch solcher mit kollektivem Anregungscharakter. Für die Quanteninterferenz sind aber nur die gut definierten Schallquanten ($\epsilon_v, \pi_v = \pi_{\perp} / \sin \vartheta$) von Bedeutung, vornehmlich solche, deren Querimpuls ($n \cdot h/d$) gerade den Abständen d oder d/n zwischen zwei benachbarten Gittergeraden entspricht und daher zu einer Hin- und Her-Reflexion, mit alternierenden Vorzeichen $\pm \pi_{\perp}$, befähigt ist (π_{\perp} -Phononen). Die Lebensdauer solcher in Differenzabsorption erzeugten π_{\perp} -Phononen ist dann relativ groß; doch übersteigt sie nicht die Relaxationszeit τ_{\perp} , die zum Erreichen des Phononengleichgewichts nach erfolgter Elektron-Phonon-

Wechselwirkung benötigt wird und durch die mittlere freie Weglänge $l_{e-ph} = \tau_{\perp} \cdot v_s$ gekennzeichnet ist. Mit dieser Einflußlänge $l_{e-ph} = 10^{-6}$ bis 10^{-7} cm wird die Mindestausdehnung l_{\perp} einer zur Röntgeninterferenz gerade noch ausreichenden Kristallitabmessung D bezeichnet. Für $D \lesssim l_{\perp}$, also mit einem Unterschreiten dieser kritischen Kohärenzlänge, ist auch die verlustfreie $\pm\pi_{\perp}$ -Vielfachreflexion und damit die definierte Photon-Phononen-Photon-Kette gefährdet. Es ist evident, daß für die Röntgeninterferenz die viel schwächere Elektron-Elektron-Wechselwirkung ($l_{ee} = 10^{-3}$ cm) außer Konkurrenz bleibt. - Insgesamt muß gerade den (ε_v, π_v) -Schallquanten eine primäre Bedeutung für das Interferenzgeschehen zuerkannt werden; diese π_{\perp} -Phononen stellen das Kriterium für die Laue-Bragg-Reflexe dar; sie fundieren die Ewald-Konstruktion. Doch sind sie auf das Zusammenspiel mit den Gitterfeldquanten (ε_c, π_c) , somit auf die π_{\parallel} -Phononen angewiesen; als hoch angeregte Schallquanten sind sie nur kurze Zeit existenzfähig ($l_{ph-ph} = 10^{-7}$ cm). Im übrigen koppeln, wie es sein muß, die bei der Röntgenabsorption entstandenen Zwischenzustände und Gitteranregungen, also der aufeinanderfolgende 2-Phononen-Zerfall, stärker an die Gitterphononen als an Photonen an; denn die freie Weglänge der Photon-Kristall-Wechselwirkung ist relativ groß ($l_{R\ddot{o}} \approx 10^{-5}$ cm). Anderenfalls würde die Re-Emissionswahrscheinlichkeit des Photons dominieren, und damit das Anlaufen des Interferenzmechanismus im Kristallgitter behindern.

Erst das Zusammenwirken der hoch angeregten Schallquanten (π_{\perp} -Phononen) mit den vermuteten Gitterfeldquanten (π_{\parallel} -Phononen) ermöglicht im vorliegenden Modell den quantenhaften Interferenzmechanismus. Eine allgemeine Voraussetzung dafür ist die merklich verschiedene Fortpflanzungsgeschwindigkeit der beiden Phononenarten sowie der große Unterschied ihrer Energien.

Die π_{\parallel} -Phononen laufen per definitionem als Gitterfeldquanten annähernd mit Lichtgeschwindigkeit (c). Sie transportieren, falls sie existieren, den größten Teil der Photonenenergie; sonst könnte beim Energie-Impuls-Übergang die Relation $(E/p)_{R\ddot{o}} = (E/p)_{ph} = c$ nicht erfüllt werden, weder im Fall der Photonenabsorption, noch bei seiner Re-Emission, und der Interferenzvorgang verlief nicht effektiv genug. Anschaulich wird man die π_{\parallel} -Quasi-Teilchen als Verdichtungsstöße ansehen dürfen, die ihre Anregungsenergie mit $v = c$ von Gitterplatz zu Gitterplatz weitertragen (LO-Typ) und dabei, fast verlustfrei, innerhalb derselben Gittergeraden verbleiben (Bevorzu-

gung dicht besetzter kristallographischer Richtungen), kleineren Gitterstörungen leicht auszuweichen vermögen, und bei größeren Störungen zu benachbarten Gittergeraden überwechseln (gekrümmter oder verwackelter "Lichtweg"). An äußeren Grenzflächen (Kristalloberflächen) sollten diese Gitterfeldquanten eine Rückreflexion ins Innere des Kristalls erleiden; ihre veränderten Ausbreitungsvektoren liegen nicht mehr in der Brillouin-Zone. - Vermerkt sei, daß sich eine ausreichend große Zahl von π_{\parallel} -Phononen im Kristall ähnlich benimmt wie die von der Wellentheorie postulierten Gitterwellenfelder. Im übrigen stehen Gitterfeldquanten von allen Gitterphononen den Lichtquanten am nächsten.

Die π_{\perp} -Phononen (TA-Typ) dagegen besitzen nur eine kurze Lebensdauer ($\tau_{\perp} = 10^{-12}$ s). Doch kann ihr Zerfall durch anharmonische Wechselwirkung aufgehalten werden, und zwar dadurch, daß sie von π_{\parallel} -Phononen überrollt werden und dabei momentan, durch Rekombination zu einem π_{\perp} - π_{\parallel} -Doppelquant von der Energie des ursprünglichen Röntgenquants, energetisch stabilisiert werden. Die Begegnungswahrscheinlichkeit der beiden Phononenarten wächst offensichtlich mit kleiner werdenden Kristallitabmessungen D an; die Grenzwerte von D liegen zwischen $c \cdot \tau_{\perp}$ und $v_s \cdot \tau_{\perp}$; daher dürften die günstigsten Abmessungen bei etwa $D_{\text{opt}} \approx 10^{-8}$ cm zu suchen sein (Mosaikblocklänge); bei $D = D_{\text{opt}}$ vermag ein-energiereiches- π_{\parallel} -Phonon, oftmals an den Kristalloberflächen zurückreflektiert, mit einem π_{\perp} -Phonon viele Male zusammenzutreffen, während dieses π_{\perp} -Phonon lediglich ~~noch~~ den Wirkungsbereich eines einzigen Gitteratoms durchläuft. Für $D > D_{\text{opt}}$ dagegen fällt die Begegnungswahrscheinlichkeit wieder ab (Extinktionseffekt). Jede innerkristalline Rekombination wird im allgemeinen das Zusammenspiel der Partner fördern: nach der Wiederauftrennung kann sich für das π_{\parallel} -Phonon eine Stabilisierung seiner Laufrichtung, für das π_{\perp} -Phonon aber eine Verlängerung seiner Lebensdauer ergeben. Beide Phononen erfüllen während des Interferenzgeschehens nur gemeinsam den Energie- und Impulssatz; sie entstammen den beiden Phononenzweigen.

Die Re-Emission eines Photons, also seine Abstrahlung unter dem - zur reflektierenden Netzebenenchar gemessenen - Glanzwinkel ϑ , findet seine Erklärung am besten durch die Annahme, daß die Re-Emission den Umkehrprozeß zur Absorption eines unter dem Einstrahlwinkel ϑ einfallenden Photons darstellt. Die Rekombination findet

jetzt am Kristallende statt; hier begegnen sich die π_{\parallel} - und π_{\perp} -Phononen einander in gleicher Laufrichtung; sie benötigt zunächst, analog zum Röntgen-Photoeffekt, die Mitwirkung eines Gitteratoms; daher liegt die Stelle der Photo-Emission nur bis auf rund 10^{-8} cm fest; weiterhin sollte die Rekombination in der Regel über ein Störstellenniveau (Mosaikblockgrenze) oder vermittels von Oberflächenzuständen (Kristallbegrenzung) erfolgen, wo die Kopplung der Phononen an das Photon wieder die Oberhand gewinnt. Die Erhaltungssätze regeln die Re-Emission des Photons. So entscheidet über die Emissionsrichtung des ausgesandten Röntgenquants die Richtung des zufällig zuletzt wirkenden $+\pi_{\perp}$ - oder $-\pi_{\perp}$ -Phonons (Borrmann-Effekt mit den R_0 - und R_{\parallel} -Reflexen); es kann auch eine Rekombination mit einem rückreflektierten $-\pi_{\parallel}$ -Phonon stattfinden (außerbraggsche Reflexe R, S. Abb. 1). Interferenz-Reflexe werden als elastisch bezeichnet, wenn beim Interferenzvorgang der Energiesatz und der Impulssatz streng erhalten bleiben; sonst treten inelastische ($+\Delta E$) oder diffuse ($+\Delta p$) Reflexe auf, die im Extremfall von $\Delta E/\Delta p$ -Überlagerungen zu einem Bremskontinuum entartet. Stets hat man bei der Absorption und bei der Re-Emission, wie erwähnt, mit zahlreichen und wenig übersichtlichen Wechselwirkungs- und Anregungseinflüssen zu rechnen; sie lassen sich auch bei Einkristallen nicht unterdrücken.

Die Energiebilanz, die sich aus der Wechselwirkung eines Röntgenquants ($\nu_{R\ddot{0}} = 10^{18}$ Hz) bzw. der π_{\parallel} -Phononen (10^{18} Hz) mit den π_{\perp} -Phononen (10^{13} Hz) ergibt, läßt sich mit $E = h \cdot (10^{18} \pm 10^{13})$ erg angeben, wobei für die Phononen $\nu_{\perp} = v_s \cdot \kappa_{\perp}$ und $\nu_{\parallel} = c \cdot \kappa_{\parallel}$ gilt; die Ausbreitungsvektoren κ_{\perp} und κ_{\parallel} belaufen sich auf rund 10^8 cm $^{-1}$. - Eine adäquate Frequenzaddition fordert die Laue-sche Fassung einer dynamischen Theorie der Röntgenstrahlen; nur wird sie auf bewegte Einzelatome (und nicht, wie hier, auf Gitteranregungen) zurückgeführt. Weiterhin bietet der wellentheoretische Formalismus Formeln für Linienbreiten (β) und Brechungsindex (\bar{n}) an; analog dazu schätzt man im Quantenmodell die Linienbreite bzw. die Einstrahlbreite sehr grob mit $\beta \approx a/D$ ab; im Gegensatz zur Wellendeutung sollte aber β in Bereichen $D < 10^{-6}$ cm, wo der Quantenmechanismus noch nicht voll entwickelt ist, extrem stark ansteigen. Schließlich deutet der Umstand, daß sich der Brechungsindex für Röntgenstrahlen erfahrungsgemäß auf $\bar{n} = 1 - \delta$ beläuft ($\delta \approx 10^{-5}$), auf eine geringfügige Geschwindigkeitsdifferenz zwischen Röntgenquant und π_{\parallel} -Phonon (Gitterfeldquant) hin, die wel-

lentheoretisch durch den Begriff der Phasengeschwindigkeit erklärt wird.

Man kann den Ablauf der Quanteninterferenz noch weiter vereinfachen. Dazu betrachtet man lediglich das Schallquant (ε_v , π_v); das energiestabilisierende Gitterfeldquant bleibt unbeachtet; seine Mitwirkung wird indirekt dadurch berücksichtigt, daß man sich die Impulskomponente $\pi_v = \pi_{\perp} / \sin \vartheta$ in einer verlustlosen Dauerfolge von reinen U-Prozessen vorstellt, die in rascher Aufeinanderfolge an zwei Gittergeraden (Sprungflächen der Energiebelegung) stattfindet und jedesmal den Gegendruck $h.G = 2.\pi_{\perp} = h/d$ provoziert, während seine π_{\parallel} -Komponente konstant bleibt. Trotz dieser Simplifizierung resultiert wieder die Braggsche Gleichung $2.d.\sin \vartheta = \lambda$ bzw. die Impulskonstruktion $2.(h/\lambda) . \sin \vartheta = h/d$ und bestätigt das Experimentalergebnis, wonach die Röntgeninterferenz nur den Austausch von diskreten, ganzzahligen Impulswerten $n.(h/d)$ zwischen Röntgenquanten und Kristall kennt. Bei dieser Vereinfachung nimmt man in Kauf, daß das eigentliche physikalische Geschehen nur unzulänglich erfaßt wird.

Wenn die Röntgeninterferenz in Kristallen einer quantenhaften Deutung zugänglich ist, so sollte eine entsprechende Behandlung auch für die Röntgenbeugung an Liniengittern möglich sein.

Die Röntgenbeugung an optischen Liniengittern wird sich vermutlich mittels repräsentativer, von auftreffenden Röntgenquanten erzeugter Anregungszustände erfassen und somit wieder nach dem Schema eines Zusammenspiels von π_{\parallel} - und π_{\perp} -Phononen behandeln lassen. Doch verlangt die Röntgenbeugung, im Unterschied zur röntgenometrischen Laue-Bragg-Interferenz, sehr kleine Einstrahlwinkel ϑ , hier als Glanzwinkel ψ bezeichnet, während die Gitterkonstante b und die Breite der Linienprofile $B = b/2$ der verwendeten metallischen Aufdampfgitter die Größenordnung 10^{-3} bis 10^{-4} cm annehmen (Röntgenwellenlänge $\lambda \approx 10^{-8}$ cm). Daraus folgt, daß die Impulskomponente $p_{\perp} = (h/\lambda) . \sin \psi = p . \psi$ des einfallenden Röntgenquants um mehrere Größenordnungen kleiner ist als sein Vorwärtsimpuls $p_{\parallel} \approx p = h/\lambda$; daher muß man dem Schallquant (ε_v , π_v) mit seinem Querimpuls $\pi_{\perp} = (h/\lambda) . \sin \psi = h/d^+$ einen entsprechend breiten Reflexionskanal d^+ zuordnen, während der Vorwärtsimpuls $\pi_{\parallel} = h/a$ des wegbereitenden Gitterfeldquants (ε_c , π_c) eine überragende Rolle spielt. Vereinfachend wird die Röntgenwellenlänge λ mit dem Atomabstand a des Aufdampfmaterials gleichgesetzt; denn die im Experiment verwendeten Heidenhain-

Gitter besaßen statt der Gitterstriche kantig aufgedampfte Gitterlinien aus polykristallinem Material (Vorzugsorientierung der 111-Ebenen parallel zur Gitteroberfläche); wenn die Linienbreiten B (in Abb. 1 mit D angegeben) $4 \mu\text{m}$ betragen und die Einstrahlwinkel ψ zwischen $10'$ und $50'$ lagen, so konnten die Röntgenquanten an den Flanken der Aufdampflinien ungehindert bis zu einer Tiefe $t = B \cdot \psi$, also bis $t = 10^{-6}$ bis 10^{-5} cm, auftreffen (Schattenwirkung der benachbarten Aufdampflinie, s. Abb. 1). Damit war die Voraussetzung geschaffen, daß in den Aufdampflinien der Transport von Phononenimpulsen bis herab zu Beträgen von $\pi_{\perp} = h/t$ gesichert war.

Das Beugungsspektrum besteht bekanntlich aus der intensiven reflektierten Linie (Beugungsordnung $n = 0$) und aus einer Reihe von Beugungslinien ($\pm n > 0$). Im Quantenkonzept benötigt die reguläre Reflexion (Einfallswinkel gleich Ausfallswinkel) den Querimpuls $-\pi_{\perp} = -(h/\lambda) \cdot \sin \psi = -h/d^{\perp} = -p \cdot \psi$; in diesem Fall muß der Interferenzapparat (die Aufdampflinie) den Gegendruck $-h \cdot G = -2 \cdot \pi_{\perp}$ aufbringen; für die Beugungslinien muß er zusätzlich noch die Beugungsimpulse (Beugungswinkel α_n) liefern; angenommen, die Komponente $\pi_{\parallel} = h/\lambda = h/a$ löst vermittelt der Feldquantenanregung und ohne merklichen Energieverlust eine Vielzahl von Schallquanten aus, dann werden nur solche Quasi-Teilchen eine Überlebenswahrscheinlichkeit besitzen, die gut definierte, in p_{\parallel} -Richtung laufende Quasi-Impulse $\pi_{\parallel} = h/B = N \cdot (h/b)$ oder ein Vielfaches davon aufweisen (N ist ganzzahlig); um also ein Röntgenquant in Richtung $(\psi + \alpha_n)$ der n -ten Beugungslinie re-emittieren zu können, muß außer $p \cdot \psi$ der n -fache Beugungsimpuls $-\pi_{\parallel}(\alpha_n) = n \cdot p \cdot \alpha$ zur Verfügung stehen und gemeinsam am Kristallit- oder Linienprofil-Ende mit dem π_{\perp} -Gitterfeldquant rekombinieren.

Im übrigen wird die Bereitstellung von Phononenimpulsen abhängig sein von der Art der Einstrahlung (Einzelquanten oder einzelne Schwärme von wenigen Quanten) und sich, wie im Analogfall der Interferenzlinien, im Koinzidenz- und Intensitätsverhalten der Beugungslinien bemerkbar machen; auch die Versuchstemperatur wird Einfluß auf den Beugungsvorgang nehmen müssen.

Zusammen mit den Ausbreitungsvektoren $G = (2/a) \cdot \sin \psi$ und unter Benutzung der Beziehung $n/b = \alpha/\lambda$ ergibt sich im Fall der Röntgenbeugung n -ter Ordnung nunmehr die Impulskonstruktion

$$k - k' = -(G + \frac{n}{b}) = -(\frac{1}{d^{\perp}} + \frac{n}{b});$$

aus ihr erhält man sofort die skalare Form der Gittergleichung

$$\frac{h}{\lambda} \cdot [\cos \psi - \cos(\psi + \alpha_n)] = n \cdot \frac{h}{S};$$

sie ist wiederum Ausdruck eines diskreten Impulsaustausches zwischen Röntgenquant und Beugungsgitter (Aufdampflinie). Aus diesem Quantenmechanismus ersieht man qualitativ, daß die Linien höherer Beugungsordnungen an Intensität gewinnen müssen, wenn man den Einstrahlwinkel vergrößert und dabei die Wahrscheinlichkeit einer n-fachen Iterativübertragung des Beugungsimpulses auf ein re-emittiertes Röntgenquant erhöht. Diese Voraussage steht mit dem Experimentalbefund in Übereinstimmung; eine wellentheoretische Deutung ist nicht bekannt.

Für den maximalen Senkrechtimpuls $\pi_{\perp} = h/a \approx h/d$ ist nach diesen Vorstellungen ein auf d bzw. a konzentrierter Laufweg verbunden, innerhalb dessen die alternierende Vielfachreflexion eines $\pm\pi_{\perp}$ -Phonons längs benachbarter Gittergeraden stattfindet. Diese Verhältnisse bei der Röntgenbeugung ähneln der Netzebenenreflexion im Fall der Laue-Bragg-Interferenzen, nur mit dem Unterschied, daß unter den Bedingungen der Röntgenbeugungs-Experimente gearbeitet wird (streifende Inzidenz; polykristallines Aufdampfmaterial mit Textur parallel zur Gitterfläche der Heidenhain-Gitter; $\pi_{\parallel} \gg \pi_{\perp}$). Eine derartige Röntgenanregung von Gitterphononen kann als eine direkte, polaritonähnliche Kopplung von Röntgenquant und Phonon angesehen werden (TO-Typ). Solen Röntgeninterferenzen wirklich durch eine Paralleleinstrahlung ($\psi \equiv \vartheta \rightarrow \sigma$) hervorgerufen werden, so muß auf irgendeine Weise die Anregung der interferenzspezifischen Querimpulse (π_{\perp}) besorgt werden; sie werden nicht direkt vom Röntgenquant geliefert ($p_{\perp} \ll p_{\parallel}$); doch steht der Annahme nichts im Wege, daß hierfür Streuprozesse innerhalb eines polykristallinen Gefüges mit glatter Oberflächenbegrenzung aufzukommen vermögen, an welche die Gitteranregungen ankoppeln (Absorptionsdifferenz). Tatsächlich wurde im Experiment ($0,2^{\circ} < \psi < 1^{\circ}$), zusätzlich zu den Beugungslinien, eine ganze Reihe von Interferenzlinien - bei langer Registrierzeit - nachgewiesen; sie traten genau unter dem Braggischen Winkel auf. Dieses vom Wellenbild nicht vorausgesagte Phänomen ("Parallelanregung") kann als weitere Stütze für das vorgelegte Quantenmodell gelten.

Um zusammenzufassen: Die bisherigen Erörterungen wollten klar legen, daß die Interferenz- und Beugungsvorgänge im Korpuskelbild teilweise instruktiver dargestellt werden können als im Wellenbild.

Jedes Quantenmodell der Interferenz impliziert die Auffassung, daß man im Prinzip auf eine Wellen- bzw. Feldvorstellung verzichten kann. Das vorgelegte Quantenmodell erlaubt darüberhinaus, unbeschadet seiner (bereits erwähnten) prinzipiellen Begrenzung, eine sehr allgemeine Schlußfolgerung: Sollte es sich erweisen, daß die Impulskonstruktion (Abb. 1) nicht nur ein leerer Formalismus ist, dann muß man auf eine praktisch unbegrenzte Variationsmöglichkeit im Energie-Impuls-Verhältnis der Photonen und der Gitterphononen schließen und die Koppelvorgänge zwischen ihnen mit hinzunehmen. Dann aber kommt man nicht umhin, ausgehend von der bewährten diskreten Energieformel $E = h \cdot \nu$, auf eine diskrete Innenstruktur der Photonen, Gitterfeldquanten und Phononen weiterzuschließen. Sonst könnte man sich im Teilchenbild schwerlich die Vielfalt der Versuchsvarianten und den Reichtum der Interferenz- und Beugungsdiagramme erklären. Man sieht sich also zur Hypothese kleinster "Sub-Teilchen" genötigt. Dieses Problem greift eine nachfolgende Abhandlung auf.

Experimentelle Prüfung

Mit Hilfe des eben besprochenen Modells der Quanteninterferenzen und der Quantenbeugung lassen sich, trotz der getroffenen Vereinfachungen, auch die neuerdings gewonnenen Experimentalergebnisse in adäquater Weise erklären.

Gut registrierbare Rauggitter-Interferenzen wurden, entgegen der wellentheoretischen Voraussage, an sehr dünn aufgedampften Metallschichten gefunden, wobei sich die Intensitäten mit abnehmender mittlerer Aufdampfdichte t stetig verminderten; die Halbwertsbreiten dagegen stiegen erst im Gebiet der Tröpfchenstrukturen ($D \approx t$; $D \lesssim 10^{-2} \cdot a$) dann aber recht abrupt an. $D_0 \approx 10^2 \cdot a$ stellt einen kritischen Grenzwert in der Quanteninterferenz dar, nicht aber in der Wellentheorie; im Wellenbild wird eine stetige Linienverbreiterung verlangt, die proportional mit $1/t$ anwächst. Die Winkelunschärfe β der Interferenzen ist für $D \gtrsim D_0$ zu rund $1/2$ Winkelgrad bestimmt worden; sie entspricht dem aus dem Korpuskelmodell resultierenden Relativbetrag $\beta \approx a/D$; der wellentheoretische Wert liegt um den Faktor 2 oder 3 höher.

Die Quanteninterferenz läßt die Möglichkeit zu, ein $\pi_n - \pi_1$ -Phononenpaar auch durch Einwirkung eines fast parallel (ψ) zu den Netzebenen ausgerichteten Röntgenstrahls zu erzeugen. Experimente be-

stätigten diese für die Wellentheorie wenig plausible Überlegung: an partiell ausgerichteten Kristalliten einer planen Gitterfläche wurden alle Röntgenreflexe des Bragg-Laue-Diagrammes nachgewiesen, die durch die (oben skizzierte) "Parallelanregung" erzeugt wurden; die Interferenzlinien lagen bei den üblichen Braggschen Winkeln ϑ ; demnach war der Ablenkwinkel von $(\vartheta + \vartheta) = 2\vartheta$ (Wellentheorie) auf nicht ganz die Hälfte dieses Wertes, nämlich auf $(\psi + \vartheta) \approx \vartheta$ reduziert; der Eintrittswinkel ψ lag beispielsweise bei $15'$. Im Korpuskelbild ist dieser Befund verständlich, aber nur dann, wenn außer den π_{II} -Phononen noch die (auch für höhere Indizierungen benötigten) π_{I} -Phononen zur Verfügung standen; für diese Gitteranregungen sorgte offensichtlich die polykristalline Struktur der isoliert aufgedampften Gitterlinien, vermutlich durch Streu-, Ablenk- oder Reflexionseinwirkung der eingestrahelten Röntgenquanten. In Analogie dazu kann die bekannte Erscheinung einer Reflexionsverstärkung an polykristallinen Kristalloberflächen gesehen werden.

Als wellentheoretisch "verbotener" Effekt muß die sonst merkwürdig erscheinende Beobachtung von Interferenzlinien bewertet werden, die in Rückwärtsrichtung (R in Abb. 1) emittiert wurden, also von der Eintrittsfläche des Idealkristalls ausgingen. Dieser Effekt einer außer-braggschen Reflexion wurde auch an Mehrkristallanordnungen gefunden. Das Korpuskelmodell erklärt diesen Befund damit, daß die beiden Phonontypen eine Wahrscheinlichkeit zur inneren Reflexion an den Begrenzungsflächen des Kristalls besitzen; dann ist eine Re-Emission des Photons grundsätzlich an beiden Kristallflächen, wenn auch mit unterschiedlicher Wahrscheinlichkeit, möglich.

Die quanteninterferentielle Vorstellung von einer normalen Anregungsdauer $\tau \approx D/v_s$ in einem reflexionsfähig bestrahlten Kristall sollte sich auch in Koinzidenzversuchen nachweisen lassen. Entnimmt man nämlich in Einzelphotonen-Experimenten die Röhrenversorgung einem Wechselstromgenerator, so kann man mit einer Anhäufung der Photonen in den Spannungsspitzen rechnen; sie bewirkt, daß ein nachfolgendes Photon den Kristall noch im Anregungszustand vorfindet und einen praktisch gleichzeitigen Abbau des (doppelten) Anregungszustandes veranlaßt. Tatsächlich wurde eine geringfügige Rate an systematischen Koinzidenzen zwischen unterschiedlichen Reflexrichtungen, R_0 und R_H in Abb. 1, aufgefunden, aber nur bei Halbwellenschaltung der Röntgenröhre, nicht bei Gleichrichterschaltung. Eine Verzögerung

dieser Größenordnung (beispielsweise 10^{-5} s) kennt die Wellentheorie nicht; ihre Zeitverzögerungen $\Delta\tau = -\Delta\varphi \cdot 2\pi/\nu$ infolge einer sogenannten Phasenänderung $\Delta\varphi$ ist bei Röntgenstrahlen jedesmal von der Größenordnung 10^{-18} s.

Weiterhin wird durch die Existenz einer endlichen Anregungsdauer des Kristalls die wellentheoretisch geforderte Unabhängigkeit der Relativintensitäten einer Interferenzfigur von der Primärstrahlintensität in Frage gestellt; je öfter dieser Doppel- und Mehrfachabbau, in beliebige Interferenzrichtungen hinein, erzwungen wird (höhere Röhrenströme bei konstant gehaltener Wechselspannung), desto seltener wird in einer fixierten Interferenzrichtung der Photon-Phononen-Photon-Prozeß ungestört ablaufen können. Im Experiment ruft dies, trotz steigender Primärstrahlintensität, ein stetig reduzierte Intensität der reflektierten Strahlung hervor; es wurden sogar, wieder nur im Halbwellenbetrieb, abfallende Intensitäten registriert.

Daß Anregungszustände auch bei der Röntgenbeugung an optischen Liniengittern vorkommen, zeigt das Meßergebnis einer periodisch mit ψ schwankenden Reflexionsintensität. Die Oszillationen überlagerten sich den Totalreflexionskurven von Aufdampfgittern nach Art der Energie-Verlust-Spektren. Es bildeten sich relativ breite Minima aus; ihre Lagen stimmten mit den Ablenkswinkeln der Röntgenbeugungslinien überein, ihre Muldentiefen stellten ein ungefähres Maß für die Liniensintensität dar.

Es wurde auch ein energetischer Zusammenhang zwischen der Intensität der regulär reflektierten Strahlung und den gebeugten Linien nachgewiesen. Mit wachsendem Einstrahlwinkel ψ waren zunächst die 1. positive Beugungsordnung, dann die 2., 3. usw. bevorzugt mit Intensität versorgt worden. Überschritt der Einstrahlwinkel den Grenzwinkel der Totalreflexion, dann folgten, in der gleichen Reihenfolge, die negativen Ordnungen. Stets ging die Intensitätsverstärkung einer Linie auf Kosten der übrigen Liniensintensitäten.

Auffallend war noch der Befund, daß trotz der verwendeten Rastergitter alle Beugungsordnungen, die negativen wie die positiven, auftraten. Nach der Wellentheorie sollten die geraden Ordnungen weginterferiert werden, da die Gitterlinien genauso breit waren (B) wie die Abstände zwischen ihnen. Im übrigen kongruierten die gefundenen Breiten der Beugungslinien recht gut mit der Verbreiterung $\beta \approx \alpha/B = 3 \cdot 10^{-8} / 4 \cdot 10^{-4} \approx 10''$. Wegen der relativ großen Meßunsicher-

heit der β -Messung konnte allerdings nur die größenordnungsmäßige Übereinstimmung festgestellt werden; so war auch ein Experimentalergebnis recht unsicher, wonach der Einfluß einer Verkleinerung der Gitterfläche (auf $1/2$, $1/3$, $1/4$ der ursprünglichen Länge) auf die Breite der Beugungslinien hinter der wellentheoretischen Erwartung einer reziprok linearen Abhängigkeit zurückblieb.

Schlußbemerkung

Die Vorstellung von einer Quanteninterferenz wirft eine Fülle von Problemen auf: zunächst ist es wünschenswert, daß von anderer Seite die aufgeführten (und an a.O. beschriebenen) Experimentalergebnisse nachvollzogen und erweitert werden. Außerdem erscheint das vorgelegte (quasi)korpuskulare Modell einer gründlichen Durcharbeitung bedürftig; es würde aber seine Aufgabe erfüllen, wenn es Orientierungshilfen für die Problematik der Quanten-Interferenz und der Quantenbeugung zu geben vermag.

Gesetzt den Fall, man dürfte endgültig eine für die Interferenz- und Beugungserscheinungen einheitlich durchgeführte Teilchenvorstellung als bestätigt ansehen. Dann ist der Anspruch der Wellentheorie unbegründet, daß nur sie die einzig mögliche Erklärung für das Interferenzgeschehen anbieten könne.

Die Folgerungen sind einschneidend. Man wäre gezwungen, so tiefgreifende Ergebnisse der modernen Quantentheorie, wie den Dualismus oder die Frage nach einer objektiv-realen Mikrowelt nochmals zu überdenken. Die heutige Quantentheorie baut ja in ihren Schlußfolgerungen auf das (jetzt in Frage gestellte) Ergebnis einer Intensitätsunabhängigkeit der Interferenzfiguren auf; sie arbeitet nach einem in sich geschlossenen mathematischen Formalismus. Jeder derartige Formalismus kann aber - grundsätzlich - in mehrfacher Weise ausgedeutet werden. Das wird in der Quantentheorie nicht anders sein. Es ist daher nur konsequent, eine Bemühung anzuerkennen, die sich ein Loslösen des Denkens von gewohnten, aber logisch keineswegs unentbehrlichen Voraussetzungen zum Ziel gesetzt hat.

Wie auch immer die künftige Entwicklung laufen mag: einer Abkehr von wellentheoretischen Hilfsvorstellungen und Rechenverfahren soll nicht das Wort geredet werden; sie haben sich für die in der Praxis vorkommenden Lichtintensitäten und Versuchsbedingungen aufs beste bewährt; insofern können und sollen sie beibehalten werden.

Doch gilt diese Konzession nicht mehr für den Fall, daß nach dem physikalischen Geschehen beim Interferenz- und Beugungsvorgang gefragt wird. Hier muß dem Einzel-Quantenversuch die Stimme gegeben werden. Derartige Versuche tragen offensichtlich das Merkmal eines beachtenswerten experimentum crucis.

L i t e r a t u r

- WEYERER, H., Z. Naturf. 22 a (1967) 574
Acta Cryst. A 28 (1972) 295
Ann. Physik 28 (1972) 85; 187
Acta Phys. Austriaca 36 (1972) 44; 234
Acta Albertina Ratisb. 33 (1973) 21; 33
Acta Phys. Hungarica 34 (1973), demnächst.

