

## Messung der elastischen Elektronenbeugungsintensitäten polykristalliner Aluminium-Schichten

VON M. HORSTMANN UND G. MEYER

*Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg, Deutschland*

(Eingegangen am 28. April 1961)

By means of a retarding field apparatus the intensities of electrons scattered elastically by polycrystalline Al-foils have been measured (Horstmann, Meyer & Raether, 1959; Horstmann & Meyer, 1961). The influence of crystal size (35–250 Å) and electron energy (20–50 keV) on the relative intensities of the Debye-Scherrer-rings has been investigated systematically. For crystals smaller than ca. 90 Å the results agree within 10% with the values calculated from the kinematical theory. If the crystal size exceeds 90 Å deviations from the kinematical intensity values are observed, which can be interpreted quantitatively by the two-beam approximation of the dynamical theory.

The half-width of the different rings is discussed. The mean crystal size calculated from the width of the rings is compared with the mean thickness of the crystals determined from the dynamical extinction effects.

### 1. Einleitung

Die Bestimmung von Kristallstrukturen mit Elektroneninterferenzen erfordert die Messung der elastischen Elektronenbeugungsintensitäten. Da die kinematische Theorie der Elektronenstreuung einen einfachen Zusammenhang zwischen der Struktur des Streukörpers [Potentialverteilung  $V(\mathbf{r})$ ] und der elastischen Streuverteilung liefert, wird sie meistens zur Durchführung der Strukturanalysen herangezogen. Wenn jedoch bei starker elastischer Streuung dynamische Beugungseffekte merklich ins Spiel kommen, wird der Zusammenhang zwischen Struktur und Streuintensität im allgemeinen recht kompliziert. Falls allerdings die dynamische Beeinflussung der Streuintensitäten durch die Zweistrahl-näherung der dynamischen Theorie beschrieben werden kann, sind die Intensitätsmessungen relativ einfach auszuwerten.

Das Ziel der hier beschriebenen Messungen war es nun, am Beispiel des Aluminiums die Intensitäten der elastischen Elektronenbeugung systematisch zu untersuchen und die Anwendbarkeit der kinematischen Streuformel und der dynamischen Zweistrahlkorrektur zu prüfen.

Alle Messungen sind Relativmessungen und wurden in gefilterten Streudiagrammen durchgeführt, welche durch Abtrennung der unelastisch gestreuten Elektronen erhalten werden (siehe 4.2). Die Vorteile des Filterns wie auch die Ergebnisse von absoluten Intensitätsmessungen wurden in einer früheren Arbeit (Horstmann & Meyer, 1961*b*) dargestellt.

### 2. Theoretische Vorbemerkungen

In der *kinematischen Theorie* wird die *schwache* elastische Elektronenstreuung behandelt; d. h. die zeit-unabhängige Schrödingergleichung wird unter der Voraussetzung gelöst, dass die Streuwelle  $\psi_s(\mathbf{r})$  inner-

halb des Streukörpers schwach ist im Vergleich zur einfallenden Primärwelle  $\psi_0(\mathbf{r})$ , die als ebene Welle angenommen wird.

Nach der kinematischen Theorie erhält man für die Streuintensität einer polykristallinen Schicht, die aus  $K$  Kristalliten mit je  $N$  Elementarzellen besteht, folgenden Ausdruck (Laue, 1944):

$$I_{\mathfrak{h}} = j_0 \cdot (2\pi^2 \cdot m_0^2 \cdot e_0^2 / h^4) K \cdot N \cdot V_{\text{zelle}} \cdot p_{\mathfrak{h}} \cdot |V_{\mathfrak{h}}|^2 \cdot \lambda^2 / |\mathfrak{h}|. \quad (1)$$

Hierin bedeuten  $I_{\mathfrak{h}}$  die integrale Intensität des Interferenzringes ( $\mathfrak{h}$ ),  $j_0$  die Primärstrahlstromdichte am Orte des Objekts,  $\lambda$  die Wellenlänge der Primärelektronen,  $V_{\text{zelle}}$  das Volumen der Elementarzelle,  $p_{\mathfrak{h}}$  die Flächenhäufigkeitszahl und  $V_{\mathfrak{h}} = V_{\mathfrak{h}}(0^\circ) \cdot \exp(-M_{\mathfrak{h}})$  den temperaturkorrigierten Fourierkoeffizienten des Kristallpotentials [siehe Gl. (2) und Fussnote auf S. 272]. Dabei ist vorausgesetzt, dass die Kristallite isotrop orientiert sind und dass interkristalline Interferenzen vernachlässigt werden können. Die letztere Voraussetzung trifft bei den hier vorliegenden Verhältnissen bezüglich Schichtdicke, Kristallitgröße und Größe des bestrahlten Objektbereiches mit sehr guter Genauigkeit im Winkelbereich  $\sin \frac{1}{2}\theta/\lambda \geq 0,1 \text{ \AA}^{-1}$  zu.

Die Beziehung (1) lässt folgende Sachverhalte erkennen:

1) Die integralen Ringintensitäten sind nicht von Form und Größe der Kristallite abhängig, sondern nur von der Gesamtzahl  $K \cdot N$  der Elementarzellen.

2) Das Verhältnis der Ringintensitäten untereinander ist nur durch die Größen  $|\mathfrak{h}|$ ,  $p_{\mathfrak{h}}$ ,  $|V_{\mathfrak{h}}|$  des Gitters bestimmt; es hängt also insbesondere nicht von der Elektronenwellenlänge  $\lambda$  und der Kristallitgröße  $D$  ab.

Durch die Temperaturbewegung der Kristallatome wird die Intensitätsverteilung im Streudiagramm mo-

difiziert. Im Falle unkorrelierter Schwingungen der Atome werden die Ringintensitäten  $I_{\eta}(0^{\circ})$  um den Debye-Faktor  $\exp(-2M_{\eta})$  geschwächt, wobei

$$M_{\eta} = |\eta|^2 \cdot (3h^2/2mk\Theta) \left[ \frac{1}{4} + \frac{T^2}{\Theta^2} \int_0^{\Theta/T} \frac{x dx}{e^x - 1} \right] \quad (2)$$

( $T$  = Temperatur des Kristalls;

$\Theta$  = Debye-Temperatur;  $m$  = Atommasse)

ist. Die Intensitäten  $I_{\eta}(0^{\circ}) \cdot [1 - \exp(-2M_{\eta})]$  sind als kontinuierlicher Untergrund diffus über das Streudiagramm verteilt.\*

Bei der Behandlung der *starken* elastischen Streuung im Rahmen der *dynamischen Theorie* wird das Wellenfeld im Kristall, das sich beim Auftreffen einer ebenen Elektronenwelle ausbildet, als eine Superposition unendlich vieler ebener Wellen dargestellt. Durch stetige Fortsetzung der Partialwellen in den Aussenraum ergeben sich die Amplituden aller Interferenzwellen, wobei zur Vereinfachung der Stetigkeitsbedingungen das Modell einer planparallelen Kristallplatte zugrunde gelegt wird.

Die strenge Durchführung der Theorie, d. h. die exakte Berechnung aller Teilwellenamplituden ist nicht möglich. Man beschränkt sich deshalb auf die Untersuchung eines Mehrstrahlproblems, bei dem ausser dem Primärstrahl nur wenige Interferenzstrahlen in Betracht gezogen werden. Besonders einfach liegen die Verhältnisse bei der Zweistrahl-Näherung, in der das aus dem Primärstrahl und einem starken Interferenzstrahl gebildete Wellenfeld im Kristall berechnet wird. Wenn auch die Anwendbarkeit des Ergebnisses beschränkt ist, so ist zum mindesten die Möglichkeit gegeben, die Korrektur abzuschätzen, welche wegen der Kopplung zwischen den Amplituden der Primär- und einer starken Interferenzwelle an dem kinematischen Intensitätswert des starken Reflexes angebracht werden muss.

Nach der Zweistrahl-Näherung der dynamischen Theorie ergibt sich für das Verhältnis  $(I_{\text{dyn.}}/I_{\text{kin.}})_{\eta}$  der *integralen* Reflexintensitäten einer planparallelen Kri-

\* Bei einer Berücksichtigung der Korrelation der thermischen Bewegung durch die Gitterschwingungen (Warren, 1953) ergibt sich, dass anstatt des kontinuierlichen Untergrundes diffuse Maxima mit einer integralen Intensität  $I_{\eta}(0^{\circ}) \cdot [1 - \exp(-2M_{\eta})]$  auftreten, die an den Stellen der Interferenzringe (Intensität:  $I_{\eta}(0^{\circ}) \cdot \exp[-2M_{\eta}]$ ) liegen und deren Winkel- ausdehnung grösser ist als die Abstände benachbarter Interferenzringe.

Obwohl also im Prinzip die Gesamtintensität eines Interferenzringes (einschliesslich des diffusen Maximums) unabhängig von der Kristalltemperatur sein sollte, bedingt die starke Überlappung der diffusen Maxima, dass beim Abtrennen der Interferenzringe vom kontinuierlichen Untergrund (vgl. S. 275) nur ein Teil der Intensität des diffusen Maximums erfasst und dem entsprechenden Interferenzring zugeordnet wird. Dieser Teil ist aber, wie eine Abschätzung zeigt, bei den im folgenden beschriebenen Experimenten so klein, dass der Einfluss der Temperatur auf die Ringintensitäten in guter Näherung durch den Schwächungsfaktor  $\exp[-2M_{\eta}]$  beschrieben werden kann.

stallplatte der Dicke  $D$  folgende Beziehung (Blackman, 1939):

$$(I_{\text{dyn.}}/I_{\text{kin.}})_{\eta} = (1/A_{\eta}) \int_0^{A_{\eta}} \mathcal{J}_0(2x) dx \quad (3)$$

$$A_{\eta} = c \cdot |V_{\eta}| \cdot D \cdot \lambda; \quad c = 2,09 \cdot 10^{-2} [1/V \cdot \text{\AA}^2].$$

$\mathcal{J}_0(2x)$  ist die Besselfunktion nullter Ordnung. Die Abhängigkeit des Verhältnisses  $(I_{\text{dyn.}}/I_{\text{kin.}})_{\eta}$  von dem Parameter  $A_{\eta} = c \cdot |V_{\eta}| \cdot D \cdot \lambda$  ist aus Fig. 6 zu sehen. Aus Gl. (3) entnimmt man folgendes:

1) Das Verhältnis  $(I_{\text{dyn.}}/I_{\text{kin.}})_{\eta}$  hängt nach der Zweistrahl-Näherung von  $A_{\eta} = c \cdot |V_{\eta}| \cdot D \cdot \lambda$  ab. Daher ist das Intensitätsverhältnis der Reflexe untereinander von  $D$  und von  $\lambda$  abhängig, sobald dynamische Extinktionseffekte ins Spiel kommen. Diese Tatsache wird bei den folgenden Experimenten benutzt, um dynamische Effekte zu identifizieren.

2) Für kleine Werte des Parameters  $A_{\eta}$ , also für sehr dünne Kristalle oder für kurze Wellenlängen der eingeschossenen Elektronen, wird das Verhältnis  $(I_{\text{dyn.}}/I_{\text{kin.}})_{\eta}$  ungefähr 1, d. h. die dynamische Intensitätsformel geht in die kinematische über.

Im folgenden werden die gemessenen Streuintensitäten der polykristallinen Al-Folie mit den nach Gl. (3) berechneten verglichen, obwohl die Anwendung von Gl. (3) auf einen polykristallinen Streukörper nur eine grobe Näherung darstellt; denn bei einer strengen Behandlung müsste die Streuintensität eines polyedrisch begrenzten Kristalls berechnet (Kato, 1952) und eine vorgegebene Form- und Grössenverteilung der Kristallite berücksichtigt werden.

Die Frage, wie stark sich die Intensitätsformeln der *Zweistrahl-* und der *Mehrstrahl-*Näherung voneinander unterscheiden, ist allgemein nicht einfach zu beantworten. Sicher ist, dass insbesondere die systematische Kopplung aller derjenigen Interferenzstrahlen eine Rolle spielt, die den auf ein und derselben Geraden liegenden reziproken Gitterpunkten zugeordnet sind.

Fujimoto (1959, 1960) konnte zeigen, dass bei der Anregung von höheren Ordnungen der intensiven Reflexe [z. B. (3,3,3)] die Mehrstrahl-Näherung wesentlich andere Intensitätsaussagen liefert als die Zweistrahl-Näherung (vgl. 5.1).

### 3. Problemstellung

Um sowohl den Anwendbarkeitsbereich der kinematischen Streuformel als auch Abweichungen von dieser infolge dynamischer Extinktionseffekte experimentell zu bestimmen, sollten die Änderungen der relativen Reflexintensitäten bei systematischer Variation des Parameters  $A_{\eta} = c \cdot |V_{\eta}| \cdot D \cdot \lambda$  gemessen werden.

Um die Abhängigkeit von  $|V_{\eta}|$  zu untersuchen, werden Intensitätsmessungen an möglichst vielen verschiedenen Reflexen benötigt. Deshalb ist es zweckmässig, einen polykristallinen Streukörper zu benutzen, bei welchem alle Reflexe simultan angeregt

werden. Für die Anwendbarkeit der Intensitätsformeln ist es nötig, dass die polykristalline Schicht texturfrei ist.

Wir haben als Untersuchungssubstanz Aluminium gewählt. Dabei sind wegen der niedrigen Ordnungszahl ( $Z=13$ ) die (reellen) Fourierkoeffizienten  $V_{\mathbf{h}}$  des Kristallpotentials relativ klein.\*

Die Variation der Wellenlänge  $\lambda$  der eingeschossenen Elektronen ist bei der benutzten Gegenfeldanordnung (siehe 4.2.) im Bereich  $5,5 \cdot 10^{-2}$  bis  $9 \cdot 10^{-2}$  Å leicht durchzuführen.

Zur Variation der Kristallitgröße  $D$  wurde die Al-Folie schrittweise getempert. Der Variationsbereich der Kristallitgröße beträgt 35 bis 250 Å. Nach jeder Temperung wurde kontrolliert, ob die Folie hinreichend texturfrei geblieben war (siehe 4.1.).

Durch Variation dieser Größen  $|V_{\mathbf{h}}|$ ,  $D$  und  $\lambda$  kann die Abhängigkeit der integralen Ringintensitäten von dem Parameter  $A_{\mathbf{h}}$  im Bereich zwischen 0,05 und 2,5 gemessen und mit der Theorie verglichen werden.

Da die Bestimmung der für die dynamischen Extinktionseffekte massgebenden Kristallitgröße  $D$  allein aus Intensitätsmessungen problematisch ist, war es notwendig, darüber hinaus durch Analyse der Ringprofile Informationen über die Kristallitgröße zu erhalten.

#### 4. Durchführung der Messungen

##### 4.1. Der Streukörper

4.1.1. *Herstellung.* Nach den Überlegungen des vorigen Abschnitts war es das Ziel, texturfreie polykristalline Al-Schichten herzustellen. Die Folien sollten freitragend untersucht werden; denn die Auswertung der gemessenen Intensitätsverteilungen wird erheblich erschwert, wenn dem Elektronen-Streudiagramm der eigentlichen Untersuchungssubstanz der kontinuierliche Streuuntergrund einer Trägerfolie überlagert ist.

Bei der Präparation der Al-Schichten wurde folgender Weg eingeschlagen: Als Unterlage diente eine polykristalline, polierte KBr-Spaltfläche. Beim Polieren eines KBr-Kristalls wird dessen Oberfläche in regellos liegende kleine Kristallite ( $\approx 50$  Å) aufgebrochen, und das Reflexions-Pulverdiagramm einer polierten KBr-Fläche zeigt praktisch keine Faserstruktur (Raether, 1957). Der KBr-Kristall wurde auf die Temperatur der flüssigen Luft abgekühlt und das Aluminium aus einem  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tiegel auf die polierte KBr-Fläche verdampft. Die so erhaltenen Aluminium-Schichten sind

\* Die Fourierkoeffizienten des Kristallpotentials  $V(\mathbf{r})$  ergeben sich unter der Annahme, dass die Kristallatome (Ordnungszahl  $Z$ ) eine kugelsymmetrische Ladungsverteilung besitzen, aus folgender Beziehung:

$$V_{\mathbf{h}} = (e_0/4\pi^2 \cdot \epsilon_0 \cdot V_{\text{Zelle}} \cdot |\mathbf{h}|^2) \cdot S(\mathbf{h}) \cdot [Z - f_R(|\mathbf{h}|)] \cdot \exp(-M_{\mathbf{h}})$$

Die in der vorliegenden Arbeit angegebenen Werte  $V_{\mathbf{h}}$  für Aluminium [Strukturfaktor  $S(\mathbf{h})=4$ ] sind unter Benutzung der von Tomie und Stam (1958) tabellierten Atomformamplituden  $f_R(|\mathbf{h}|)$  für Röntgenstrahlen mit Berücksichtigung der Temperaturkorrektur  $\exp(-M_{\mathbf{h}})$  für  $T=340$ °K. berechnet worden.

praktisch texturfrei (siehe 4.1.3), und die Kristallitgröße beträgt etwa 35 Å.

Bei der Verdampfung aus Wolframschiffchen zeigen die Al-Schichten noch eine merkliche Vorzugsorientierung. Gleichzeitig sind die Kristallite verhältnismässig gross ( $\approx 100$  Å). Offenbar werden bei der Verdampfung aus Wolfram-Schiffchen Keime mitverdampft, welche die Ausbildung einer Textur und die Entstehung grosser Kristallite begünstigen (Lennander, 1954; Meyerhoff, 1957).

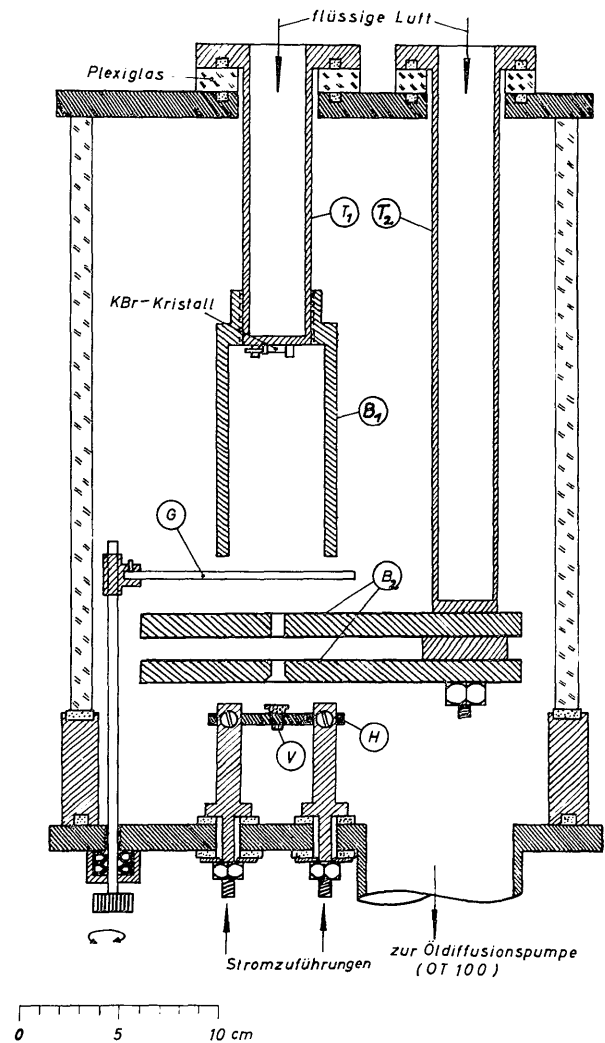


Fig. 1. Aufdampfanlage. (Bezeichnungen im Text).

Fig. 1 zeigt einen Schnitt durch die Aufdampfanlage. Der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tiegel (V) (Fa. Degussa), aus welchem das Aluminium verdampft wird, ist zwischen zwei Tantalbändern (H) vom Querschnitt  $0,1 \times 5$  mm<sup>2</sup> eingeklemmt. Auf der Unterseite eines zylindrischen Topfes ( $T_1$ ), der mit flüssiger Luft gefüllt ist, wird der einseitig polierte KBr-Kristall von zwei Klemmböcken gehalten, wodurch ein guter Wärmekontakt mit dem Kühlzylinder gewährleistet ist. Um zu verhindern,

dass Fremdmoleküle auf der gekühlten Kristalloberfläche kondensieren, wurden Abschirmungen ( $B_1, B_2$ ) eingebaut, die ebenfalls mit flüssiger Luft (Behälter  $T_1, T_2$ ) gekühlt sind.

Der Druck im Rezipienten beträgt während des Aufdampfprozesses weniger als  $2 \cdot 10^{-6}$  Torr. Zu Beginn des Aufdampfprozesses wird der Kristall durch eine in den Atomstrahl schwenkbare Glasplatte ( $G$ ) abgeschattet. Nach einigen Minuten wird der Kristall zur Bedampfung freigegeben. Die Kondensationsgeschwindigkeit beträgt einige  $\text{\AA}/\text{sec}$ . Am Schluss des Aufdampfprozesses wird die Glasplatte wieder in den Dampfstrahl geschwenkt.

Die so hergestellten Al-Schichten wurden in destilliertem Wasser vom KBr-Kristall abgelöst und auf einem Lektromesh-Streifen von  $100 \mu$  Maschenweite aufgefangen. Ein Nachteil, den man bei der Herstellung freitragender Folien in Kauf nehmen muss, ist der, dass die Schicht der Luft und dem Lösungsmittel für die Unterlage ausgesetzt wird, so dass insbesondere eine Oxydation der Al-Schicht nicht zu vermeiden ist (Horstmann & Meyer, 1961b). Die Folie, mit der die im folgenden beschriebenen Intensitätsmessungen durchgeführt wurden, war etwa  $400 \text{\AA}$  dick.

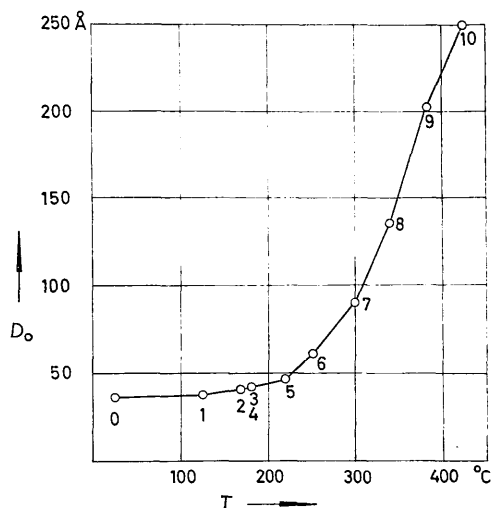


Fig. 2. Die durch Tempern der Al-Folie bei der Temperatur  $T$  erreichte Kristallitgröße  $D_0$

**4.1.2. Temperung.** Wenn das Streudiagramm der Folie bei einer Kristallitgröße ausgemessen war, wurde die Folie in einem Vakuum von etwa  $5 \cdot 10^{-6}$  Torr bei Temperaturen bis zu  $450 \text{ }^\circ\text{C}$ . getempert, um die Kristallitgröße zu variieren. Nach der Temperung wurde das Elektronen-Streudiagramm sofort untersucht. Das Tempern dauerte jeweils einige Minuten. Es zeigte sich, dass praktisch nur die Folientemperatur und nicht die Temperungsdauer massgebend für das Kristallitwachstum ist. Fig. 2 zeigt den Zusammenhang zwischen der Folientemperatur und der Kristallitgröße  $D_0$  (siehe 5.2). Die Zahlen 0 bis 10 kennzeichnen die Folienzustände nach den jeweiligen Temperungen.

**4.1.3. Textur.** Für die Anwendbarkeit der Intensitätsformel (1) ist eine isotrope Richtungsverteilung der Kristallite in der Schicht Voraussetzung. Es ist aber bekannt, dass aufgedampfte Schichten häufig eine gewisse Vorzugsorientierung in Form einer Faserstruktur besitzen können. Beim Schwenken der Folie um eine zum Primärstrahl senkrechte Achse ändern sich nun die relativen Ringintensitäten in einer für die jeweilige Art der Textur charakteristischen Weise, so dass aus Streumessungen bei geneigter Folie der Einfluss der Textur abgeschätzt werden kann. Wir haben das Debye-Scherrer-Diagramm in der Richtung senkrecht zur Schwenkachse der Folie registriert. Fig. 3 zeigt die Änderung der relativen Ringintensitäten mit dem Neigungswinkel  $\alpha$  der Folie gegenüber dem Primärstrahl. Die Variation der Ringintensität ist beim

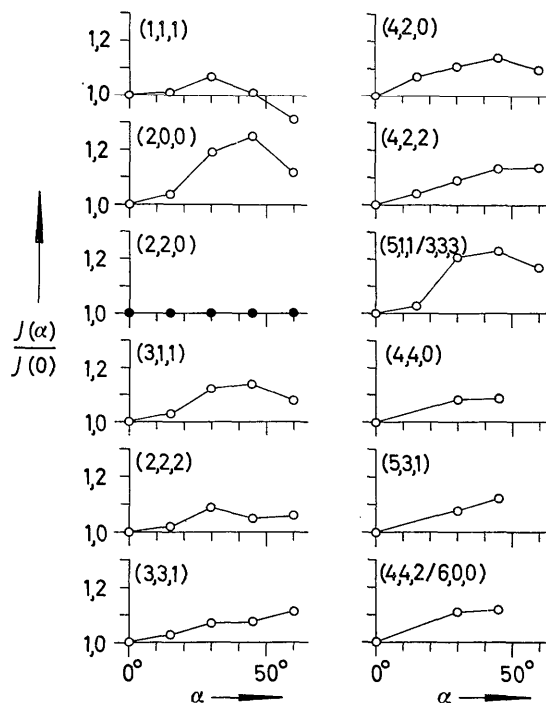


Fig. 3. Änderung der relativen Ringintensitäten mit dem Neigungswinkel  $\alpha$  der Folie gegenüber dem Primärstrahl.  $\{[I(\alpha)/I(0)]_{220} \text{ gleich } 1 \text{ gesetzt}\}$ .

(2,0,0)-Ring am stärksten und beträgt zwischen  $0^\circ$  und  $45^\circ$  etwa 25%. Der Verlauf der Ringintensitäten mit dem Neigungswinkel  $\alpha$  spricht dafür, dass es sich um eine schwache [1,1,1]-Textur mit starker Verwacklung der Faserachse handelt. Da der Texturgrad nur gering ist, kann der Einfluss der Textur auf die bei  $\alpha = 0^\circ$  gemessenen relativen Ringintensitäten dadurch ausreichend eliminiert werden, dass man anstelle der Intensitätswerte bei  $0^\circ$  den Mittelwert aus den drei Messungen bei  $\alpha = 0^\circ, 15^\circ, 30^\circ$  verwendet. So wurden bei jedem Ring Korrekturen angebracht, die zwischen 0 und 12% liegen (vgl. Tabelle 1). Die Textur änderte sich beim Tempern der Folie nicht merklich.

Tabelle 1. Die zur Eliminierung des Textureinflusses an den Intensitäten der Interferenzringe angebrachten Korrekturen

$(h,k,l)$	$\Delta I_h/I_h$	$(h,k,l)$	$\Delta I_h/I_h$
(1,1,1)	3,5%	(4,2,2)	5%
(2,0,0)	10	(5,1,1/3,3,3)	12
(2,2,0)	0	(4,4,0)	0
(3,1,1)	7	(5,3,1)	5
(2,2,2)	5	(4,4,2/6,0,0)	6
(4,0,0)	10	(6,2,0)	12
(3,3,1)	4	(5,3,3)	10
(4,2,0)	7	(6,2,2)	6

#### 4.2. Registrierung und Auswertung der Streudiagramme

Die Intensitätsmessungen wurden mit der von Horstmann & Meyer (1960), Haberstroh & Raether (1955) und Haberstroh (1956) beschriebenen Gegenfeldanordnung durchgeführt. Das elektrische Gegenfeld hat die Wirkung eines Energiefilters: Alle unelastisch gestreuten Elektronen, deren Energieverluste grösser sind als der jeweils eingestellte Schwellenwert  $e_0 \Delta U_g$  ( $\Delta U_g$  = Potentialdifferenz zwischen Messkäfig und Kathode), können den Messkäfig nicht erreichen, werden also abgefiltert. Entsprechend dem Energieauflösungsvermögen der Gegenfeldanordnung (siehe unten) verstehen wir unter unelastisch gestreuten Elektronen solche, die bei der Streuung grössere Energieverluste als etwa 2 eV erlitten haben. Der in den Messkäfig gelangende Elektronenstrom wird mit einem Gleichstromverstärker gemessen.

Als Messblende vor dem Gegenfeld wurde ein Spalt mit dem Öffnungswinkel  $0,3 \cdot 10^{-3} \times 3 \cdot 10^{-3} \text{ rad}^2$  verwendet. Das Winkelaufklärungsvermögen beträgt dann etwa  $5 \cdot 10^{-4} \text{ rad}$ . Die Schwenkbewegung der Gegenfeldanordnung erfolgte in radialer Richtung durch das Debye-Scherrer Diagramm bis zu einem Winkel von 0,1 rad.

Um im Streudiagramm Stromdichten zu erhalten, die bei dem oben genannten Winkelaufklärungsvermögen mit dem Gleichstromverstärker gut zu messen sind, mussten Primärstrahlstromdichten bis zu  $1,9 \cdot 10^{-3} \text{ A/cm}^2$  gewählt werden. Diese Stromdichte bedingt ein Energieauflösungsvermögen der Messanordnung von etwa 1,5 eV. Das Aufwachsen von Fremdschichten auf dem Objekt infolge der starken Objektbelastung wurde durch eine Kühlvorrichtung weitgehend unterdrückt (Horstmann & Meyer, 1960).

Alle Debye-Scherrer Diagramme wurden bei der Filterspannung  $\Delta U_g = 2,5 \text{ V}$  untersucht. Es wurden jeweils bei konstanten Parametern: Elektronenenergie, Kristallitgrösse und Folienneigung mindestens vier Diagramme nacheinander von  $\theta = 0$  bis 0,1 rad und zurück registriert, um den Einfluss zufälliger Schwankungen und zeitlich kontinuierlicher Änderungen der apparativen Parameter und des Objektzustandes eliminieren zu können.

Zur Bestimmung der Intensitäten müssen die Interferenzringe vom kontinuierlichen Untergrund, der ja einer anderen Streugruppe angehört, abgetrennt werden. Zu diesem Zweck wurde der Verlauf der Unter-

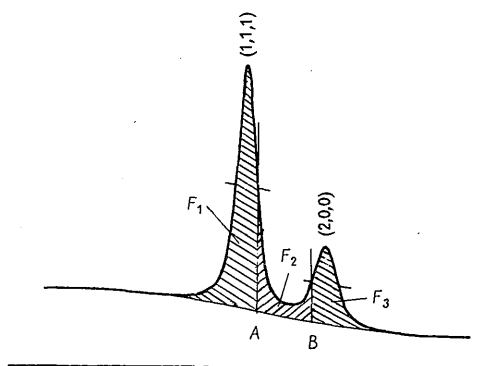


Fig. 4. Abtrennung der Interferenzringe (1,1,1) und (2,0,0) vom kontinuierlichen Untergrund und Separation der überlappenden Ringprofile.

grundintensität unterhalb der Interferenzringe graphisch interpoliert (vgl. Fig. 4). Mit einem Polarplanimeter wurde die Fläche unter dem Ringprofil zur Bestimmung der Gesamtintensität des Interferenzringes ausgemessen\* und ausserdem dessen Halbwerts-

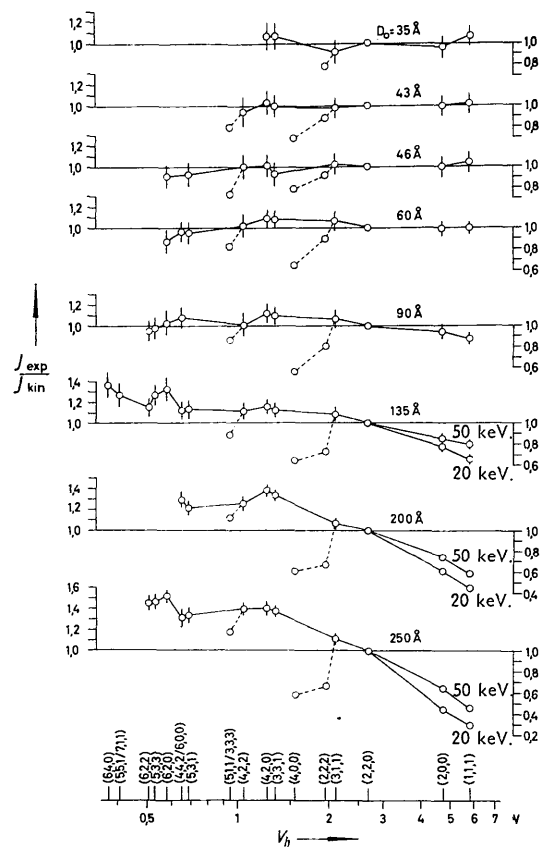


Fig. 5. Vergleich der gemessenen Intensitäten  $I_{\text{exp}}$  mit den nach der kinematischen Theorie berechneten, temperaturkorrigierten Werten  $I_{\text{kin}}$  für verschiedene Kristallitgrössen und Elektronenenergien.

\* Für die Durchführung eines grossen Teils dieser Auswertearbeit danken die Verfasser ganz besonders den Herren Dipl.-Phys. H. Mielke und Dipl.-Phys. W. Hartl.

breite bestimmt. Vom Standpunkt der kinematischen Theorie aus hat beim Vergleich mit den theoretischen Intensitätswerten die Benutzung der integralen Ringintensitäten den Vorteil, dass diese im Gegensatz zu den Intensitäten in den Ringmaxima nicht von den Parametern abhängen, die (wie z. B. die Kristallitform)

das Profil und die Breite der Interferenzringe bestimmen (vgl. S. 278).

Beim Planimetrieren wurden zur Trennung von zwei sich überlappenden Ringen folgende Verfahren eingeschlagen: Bei sehr starker Überlappung wurde die Gesamtfläche unter beiden Ringen planimetriert

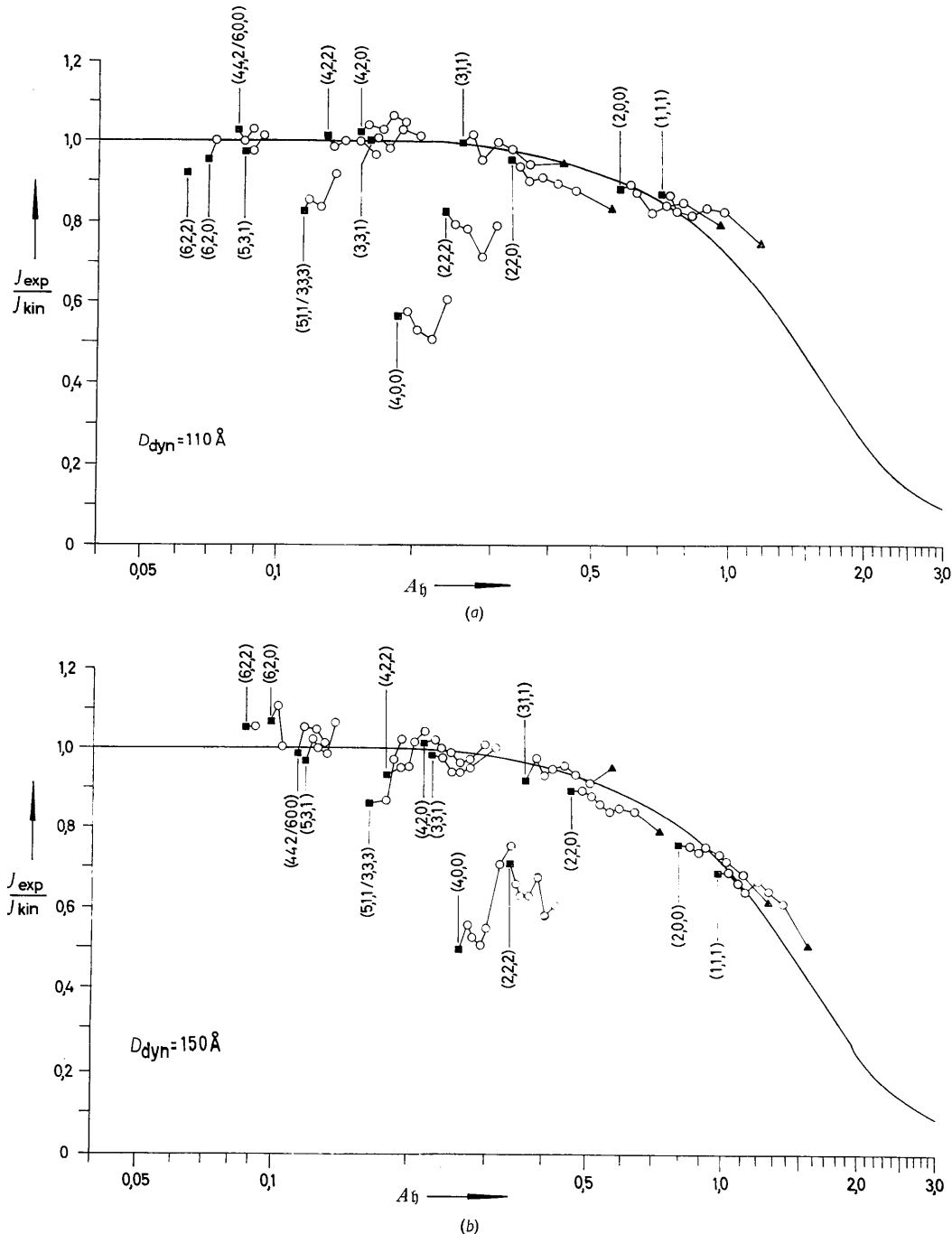


Fig. 6. Abhängigkeit des Verhältnisses  $J_{exp}/I_{kin}$  vom Parameter  $A_h = c \cdot |V_h| \cdot D_{dyn} \cdot \lambda$  ( $c = 2,09 \cdot 10^{-2} [V \text{ \AA}^2]^{-1}$ ) für vier mittlere Kristallitgrößen  $D_{dyn}$ . Die stark ausgezogenen Kurven stellen das nach dem Zweistrahlfall der dynamischen Theorie berechnete Verhältnis  $I_{dyn}/I_{kin}$  dar. Um die Abhängigkeiten von den Parametern  $|V_h|$  und  $\lambda$  getrennt hervorzuheben, sind für jeden Interferenzring die zu verschiedenen Elektronenenergien zwischen 20 keV ( $\blacktriangle$ ) und 50 keV ( $\blacksquare$ ) gehörenden Messpunkte miteinander verbunden.

und das Ergebnis im Verhältnis der kinematischen Intensitätswerte aufgeteilt. Dieses Verfahren fand Anwendung bei den Ringpaaren (3,1,1)-(2,2,2), (3,3,1)-(4,2,0), (5,3,1)-(6,0,0), (5,3,3)-(6,2,2). Da für das Ringpaar (1,1,1)-(2,0,0) die kinematischen Werte bei grossen Kristalliten nicht ohne weiteres benutzt werden dürfen, wurde hier folgendes, auf der Annahme symmetrischer Ringprofile beruhendes Verfahren gewählt (vgl. Fig. 4): Die Gesamtfläche beider Ringprofile

wurde durch zwei senkrechte Geraden *A* und *B* dort unterteilt, wo nach Massgabe der ungestörten Flanken die Intensität der Interferenzringe auf je die Hälfte des Maximalwertes abgefallen ist. Diese Lage wurde gewählt, weil dann die überlappenden Teile der Ringprofile praktisch vollständig zwischen *A* und *B* liegen. Alle drei Flächenstücke wurden getrennt planimetriert, dann das mittlere ( $F_2$ ) im Verhältnis der beiden anderen ( $F_1, F_3$ ) geteilt und zu ihnen addiert.

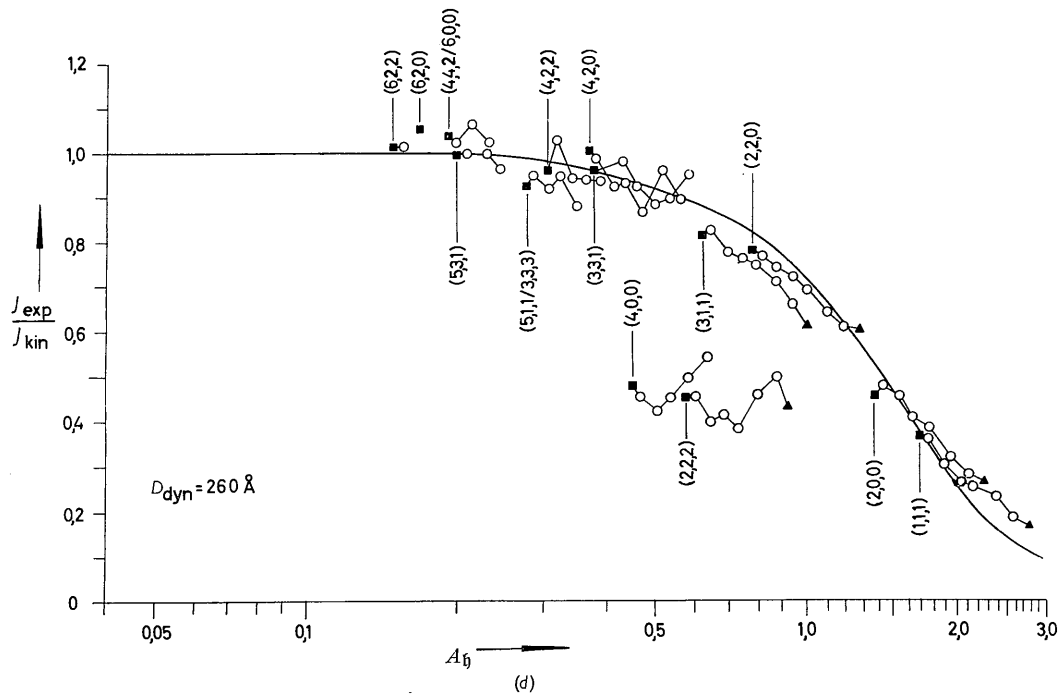
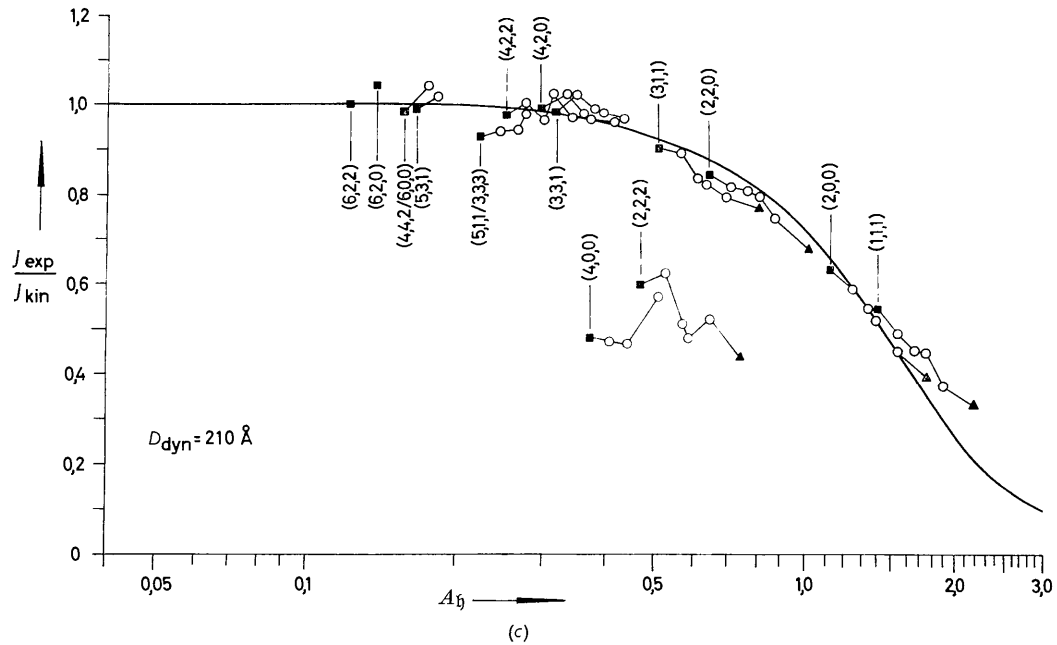


Fig. 6.

## 5. Ergebnisse

### 5.1. Die relativen Ringintensitäten

Die im gefilterten Diagramm gemessenen Gesamtintensitäten  $I_{\text{exp.}}$  der Debye-Scherrer-Ringe wurden mit den kinematischen temperaturkorrigierten Werten  $I_{\text{kin.}}$  verglichen. Bei der Berechnung des Debye-Faktors wurde eine Objekttemperatur von 340 °K. zugrunde gelegt; dies entspricht einer Objekterwärmung durch den Elektronenstrahl von etwa 40 °C. Da der (2,2,0)-Ring sehr intensiv und durch benachbarte Ringe nur wenig gestört ist, wurde er als Bezugsreflex gewählt und das Verhältnis  $(I_{\text{exp.}}/I_{\text{kin.}})_{220}$  gleich 1 gesetzt.

In Fig. 5 ist das Verhältnis  $I_{\text{exp.}}/I_{\text{kin.}}$  für die verschiedenen Interferenzringe sowie für verschiedene Kristallitgrößen und Elektronenenergien dargestellt. Die verschiedenen Ringe sind in der  $V_{\text{h}}$ -Skala der Abszisse markiert. Die angegebenen Fehlergrenzen sind durch Addition der statistischen Streubreite der Messergebnisse und des geschätzten systematischen Fehlers erhalten worden (vgl. Anhang).

Für kleine Kristallite ergibt sich innerhalb der Fehlergrenzen eine Übereinstimmung zwischen den gemessenen und den kinematischen Werten.\* Hieraus kann auf die Anwendbarkeit der kinematischen Streuformel zur Berechnung aller Ringintensitäten mit einer Genauigkeit von mindestens 10% für Elektronenenergien zwischen 20 und 50 keV und Kristallitgrößen unterhalb von etwa 90 Å geschlossen werden.

Oberhalb von 90 Å zeigt sich eine mit wachsender Kristallitgröße zunehmende Abweichung der starken Reflexintensitäten von den kinematisch berechneten Intensitäten. Diese Abweichungen hängen ausserdem von der Elektronenenergie ab, wodurch sie eindeutig als dynamische Effekte identifiziert sind. Um diese dynamischen Extinktionseffekte näher zu untersuchen, wurden die Verhältnisse  $I_{\text{exp.}}/I_{\text{kin.}}$  mit den nach Gl. (3) berechneten Verhältnissen  $I_{\text{dyn.}}/I_{\text{kin.}}$  verglichen. In Fig. 6 sind die Werte  $I_{\text{exp.}}/I_{\text{kin.}}$  als Funktion des Parameters  $A_{\text{h}} = c \cdot |V_{\text{h}}| \cdot D \cdot \lambda$  aufgetragen.

Bei der Bestimmung des Parameters  $A_{\text{h}}$  entsteht die Schwierigkeit, die Kristallitgröße  $D$  festzulegen. Denn mit  $D$  ist hier die mittlere Dicke der Kristallite in Strahlrichtung gemeint, die nicht notwendig mit der aus der Ringbreite bestimmten mittleren Ausdehnung der Kristallite senkrecht zur Strahlrichtung übereinstimmt. Deshalb wurde für die verschiedenen Folienzustände eine Kristallitgröße  $D_{\text{dyn.}}$  so angenommen, dass die Abhängigkeit der Verhältnisse  $(I_{\text{exp.}}/I_{\text{kin.}})$  von dem Parameter  $(|V_{\text{h}}| \cdot \lambda) \cdot D_{\text{dyn.}}$  für alle Ringe und alle benutzten Wellenlängen zugleich durch die theoretische Kurve optimal dargestellt wird. Auf die Unterschiede zwischen  $D_{\text{dyn.}}$  und den aus den Halbwertsbreiten der Debye-Scherrer-Ringe bestimmten Kristallitgrößen  $D_{\text{h}}$  wird im folgenden Abschnitt 5.2 eingegangen.

Man erkennt aus Fig. 6, dass die schwachen Re-

\* Eine Ausnahme bilden die Reflexe höherer Ordnung (vgl. unten).

flexe sich kinematisch verhalten, während sich bei den starken Reflexen dynamische Extinktionseffekte bemerkbar machen. Aus der guten Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den theoretischen Werten können wir den Schluss ziehen, dass die Abhängigkeit der Ringintensitäten vom Parameter  $A_{\text{h}} = c \cdot |V_{\text{h}}| \cdot D_{\text{dyn.}} \cdot \lambda$  recht gut durch die Zweistrahl-näherung der dynamischen Theorie wiedergegeben wird. Und zwar werden Abweichungen von den kinematischen Werten bis zu einem Faktor 5 einiger-massen richtig beschrieben. Dieses Ergebnis ist im Hinblick auf die vereinfachenden Annahmen, die in der Zweistrahl-näherung enthalten sind (vgl. 2), sehr bemerkenswert.

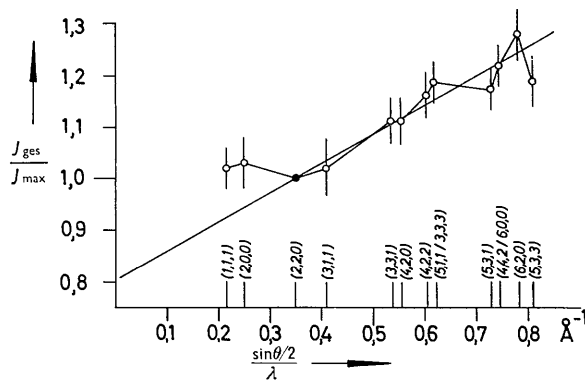


Fig. 7. Variation des Quotienten aus integraler Ringintensität  $J_{\text{ges.}}$  und Intensität im Ringmaximum  $J_{\text{max.}}$  (integrale Ringbreite) mit dem Streuwinkel, bezogen auf  $(J_{\text{ges.}}/J_{\text{max.}})_{220} = 1$ . (Folienzustand 9; Kristallitgröße  $D_0 = 200$  Å). Wie in Fig. 8 zeigen auch hier die Interferenzringe (1,1,1) und (2,0,0) eine dynamische Verbreiterung.

Auch bei den Intensitäten in den Ringmaxima  $(I_{\text{max.}})_{\text{h}}$  machen sich die dynamischen Extinktionseffekte in etwa gleicher Weise bemerkbar. Allerdings bestehen zwischen den Werten  $(I_{\text{max.}})_{\text{h}}$  und den integralen Ringintensitäten  $(J_{\text{ges.}})_{\text{h}}$  systematische Unterschiede, wie aus Fig. 7 hervorgeht. Das Verhältnis  $(I_{\text{ges.}}/I_{\text{max.}})_{\text{h}}$  ist proportional zur integralen Breite des Interferenzringes ( $\text{h}$ ) und zeigt eine ähnliche Zunahme mit wachsendem Streuwinkel wie die Halbwertsbreite der Ringe (vgl. Fig. 8). Wegen dieser Variation der Ringbreite ist die Verwendung der integralen Ringintensitäten bei der Prüfung der Streutheorie vorzuziehen. (Vgl. S. 275).

Auffällig ist in Fig. 5 und 6 das Verhalten der Reflexe höherer Ordnung [(2,2,2), (4,0,0), (3,3,3)]. Diese Messpunkte fallen deutlich aus dem sonst monotonen Kurvenverlauf heraus. So weichen z. B. bei einer Kristallitgröße von 60 Å die Intensitäten der Ringe (2,2,2) und (4,0,0) schon erheblich von den kinematischen Intensitätswerten ab, während die intensivsten Reflexe (1,1,1) und (2,0,0) noch keine dynamische Beeinflussung zeigen. Dass die Reflexe höherer Ordnung stärker dynamisch beeinflusst werden als die in der  $V_{\text{h}}$ -Skala benachbarten Reflexe, liegt daran, dass bei Anregung eines Reflexes höherer



Ordnung das dynamische Verhalten nicht durch das Zweistrahl-Wellenfeld, sondern durch das Mehrstrahl-Wellenfeld aller simultan angeregten Interferenzstrahlen bestimmt wird. Befindet sich z. B. der Kristall in der (2,2,2)-Reflexionsstellung, so wird u. a. auch der starke (1,1,1)-Reflex mit einiger Intensität angeregt. Dadurch wird der Primärstrahl stärker geschwächt als durch den schwachen (2,2,2)-Interferenzstrahl allein. Diese stärkere Schwächung des Primärstrahls führt dann auch zu einer merklich geringeren Intensität des (2,2,2)-Reflexes als es dem Zweistrahlfall [Primärstrahl und (2,2,2)-Interferenzstrahl] entspricht.

Für das spezielle Beispiel des (3,3,3)-Reflexes von Aluminium hat Fujimoto (1959, 1960) theoretisch gezeigt, dass die dynamische Beeinflussung im systematischen Mehrstrahlfall schon bei ( $\lambda \cdot D$ )-Werten sehr merklich ist, bei denen eine dynamische Beeinflussung der Intensität des (1,1,1)-Reflexes noch unwesentlich ist.

Abschliessend soll unser experimenteller Befund mit den Ergebnissen von Streuexperimenten anderer Autoren verglichen werden. Solche Intensitätsmessungen wurden fast ausnahmslos in ungefilterten Streudiagrammen durchgeführt und lieferten zum Teil sehr widersprechende Ergebnisse. Es liegen allerdings nur wenige Messungen der Elektronenstreuintensitäten polykristalliner *Aluminium*-Folien vor.

Die Untersuchungen von Mark & Wierl (1930) an polykristallinen Al-Schichten ergaben im Rahmen der von den Autoren für photographische Intensitätsmessungen angegebenen Messgenauigkeit von 5–8% eine Bestätigung der kinematischen Streuformel für Elektronen im Energiebereich von 30–50 keV.

Auch Yamzin & Pinsker (1949) fanden, dass die photographisch gemessenen Interferenzintensitäten von Aluminium bei einer Elektronenenergie von 45 keV und bei Kristallitgrössen um 140 Å mit den kinematischen Intensitäten übereinstimmen.

Nun sind aber unter diesen Bedingungen schon dynamische Extinktionseffekte zu erwarten. Da von Yamzin keine Temperaturkorrektur der Messwerte vorgenommen wurde, könnte die scheinbare Übereinstimmung mit der kinematischen Theorie dadurch bedingt sein, dass sich die dynamischen Abweichungen und die Temperaturkorrektur annähernd kompensieren (Kuwabara, 1957).

Merkliche Abweichungen von den kinematischen Intensitätswerten hat z. B. Lennander (1954) bei Zählrohrmessungen von Al-Interferenzintensitäten festgestellt. Die Elektronenenergie betrug 27 keV und die Kristallitgrösse etwa 110 Å. Es wurden nur Folien mit sehr geringer Vorzugsorientierung verwendet, und die verbleibende Textur wurde bei der Auswertung berücksichtigt. Eine Interpretation der gefundenen Diskrepanzen zwischen den gemessenen und den kinematischen Intensitätswerten im Rahmen der dynamischen Theorie wurde von Lennander nicht durchgeführt.

Die erste experimentelle Arbeit, in welcher systematisch der Einfluss der Kristallitgrösse auf die Interferenzintensitäten polykristalliner Schichten aus verschiedenen Substanzen untersucht wurde, stammt von Kuwabara (1957). Von jeder Substanz wurden durch Variation der Aufdampfbedingungen Folien mit annähernd gleicher Schichtdicke aber unterschiedlicher Kristallitgrösse hergestellt. Die drei Kristallitgrössen der Al-Folien lagen im Bereich 100–150 Å; die Elektronenenergie betrug 48 keV. Die von Kuwabara gefundenen Abweichungen der gemessenen von den nach der kinematischen Theorie berechneten relativen Ringintensitäten stimmen annähernd mit den von Blackman angegebenen dynamischen Korrekturen [Gl. (3)] der kinematischen Streuformel überein. In der Arbeit sind allerdings keine detaillierten Angaben über Textureinfluss, Kristallitgrössenbestimmung und Fehlerquellen gemacht. Ferner wurde auch die Abhängigkeit der relativen Ringintensitäten von der Elektronenenergie nicht untersucht.

## 5.2. Kristallitgrösse und Ringbreite

Der theoretische Zusammenhang zwischen der mittleren Kristallitgrösse  $D$  und der Winkelbreite  $\beta$  des Interferenzringes ist durch die Beziehung

$$\beta = k \cdot \lambda / D \quad (4)$$

gegeben (Stokes & Wilson, 1942). Die Scherrer-Konstante  $k$  ist von der Grössenordnung 1, hängt aber davon ab, ob unter  $\beta$  die integrale oder die Halbwertsbreite des Interferenzringes verstanden wird. Ausserdem hängt die Konstante  $k$  empfindlich von der Form- und Grössenverteilung der Kristallite ab. [Nimmt man für *kugelförmige* Kristallite eine *Maxwellverteilung* als Grössenverteilung an, so hat  $k$  z. B. den Wert 0,73 gegenüber 1,07 für *einheitliche* Kristallitkugeln]. Die Bestimmung der mittleren Kristallitgrösse aus der integralen oder Halbwertsbreite der Interferenzringe ist deshalb mit erheblichen Unsicherheiten behaftet. Da die Form- und Grössenverteilung der Kristallite nicht bekannt ist, wird im folgenden  $k=1,0$  angenommen.

Bei der Bestimmung der Ringbreite  $\beta$  muss die Verbreiterung eliminiert werden, die durch das begrenzte Winkelaufklärungsvermögen der Messanordnung bedingt ist. Dies geschah auf folgende Weise:

Die integrale oder die Halbwertsbreite des Interferenzringes am Ort der Messblende nennen wir  $b = L \cdot \beta$  ( $L$  = Abstand Objekt-Messblende). Eine fiktive Spaltbreite  $a$  bestimmen wir nun so, dass diese zugleich den Einfluss der wahren Spaltbreite und den der Primärstrahldivergenz wiedergibt, also das Winkelaufklärungsvermögen der Messanordnung kennzeichnet. Die scheinbare, also gemessene Ringbreite bezeichnen wir mit  $b'$ . Für die relative Ringverbreiterung infolge des Winkelaufklärungsvermögens der Messanordnung ergibt sich dann näherungsweise:

$$(b' - b)/b = A \cdot (a/b)^2 \quad \text{für } a/b \lesssim 1 \quad (5)$$

und zwar sowohl für die integrale als auch für die Halbwertsbreite.  $A$  ist eine vom Ringprofil abhängige Konstante von der Grössenordnung  $\frac{1}{4}$ .

Da nach Gl. (4)  $(b/\lambda)$  unabhängig von  $\lambda$  ist, schreibt man Gl. (5) zweckmässigerweise in folgender Form

$$b'/\lambda = (b/\lambda) + (1/150)[1/V \cdot \text{Å}^2] \cdot A \cdot a^2 \cdot U_0/(b/\lambda) \quad (6)$$

Unter Benutzung dieser Beziehung konnten die Grösse  $(Aa^2)$  und die wahre Breite  $b$  der Interferenzringe ermittelt werden, indem  $b'/\lambda$  bei verschiedenen Elektronenenergien  $eU_0$  bestimmt wurde. Dabei ergab sich, dass im Energiebereich 20–50 keV die Grössen  $Aa^2$  und  $b/\lambda$  auch bei den durch dynamische Effekte verbreiterten Interferenzringen (siehe unten) nicht von der Elektronenenergie abhängen, wodurch das benutzte Verfahren zur Elimination der apparativen Ringverbreiterung auch in diesen Fällen gerechtfertigt ist.

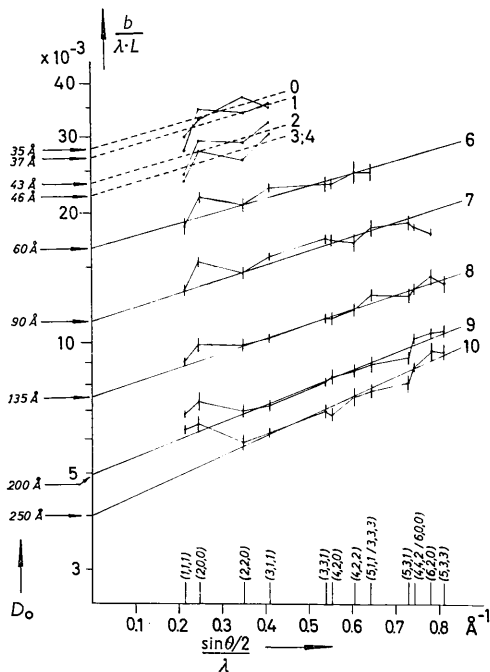


Fig. 8. Variation der Grösse  $b/\lambda.L$  mit dem Streuwinkel. (Folienzustände 0 bis 10;  $b/L$  = Halbwertsbreite der Interferenzringe im Winkelmass).

Die Grössen  $(b/\lambda.L)_h = D_h^{-1}$  der verschiedenen Interferenzringe ( $h$ ) sind in Fig. 8 dargestellt für die Folienzustände nach den 10 Temperungen (siehe 4.1.2).

Am auffälligsten ist in dieser Darstellung die monotone Zunahme der Ringbreite mit wachsendem Streuwinkel.\* Diese Tendenz ist auch im ungefilterten Dia-

\* Übrigens ist es bemerkenswert, dass alle Ringradien der Bragg'schen Gleichung  $\sin \frac{1}{2}\theta_h/h = \text{const.}$  mit einer Genauigkeit von  $5 \cdot 10^{-4}$  genügen. Dies ergab sich durch Ausmessung einer photographischen Interferenzaufnahme der Folie im Zustand 10. Die Aufnahme stellte uns dankenswerterweise Herr Dipl.-Phys. J. Ungelenk in einer Feinstrahlapparatur (Ehlers, 1956) her.

gramm zu bemerken und wird z.B. von Lennander (1954) erwähnt. Eine solche monotone Ringverbreiterung kann z. B. durch Gitterverzerrungen oder durch Streuung an Gitterschwingungen bedingt sein. Allerdings ist es im Rahmen unserer Messungen nicht möglich, zwischen den beiden Ursachen zu unterscheiden. In beiden Fällen erscheint es jedoch gerechtfertigt, diesen Einfluss durch Extrapolation der Breiten  $b/\lambda.L$  auf den Ringradius Null zu eliminieren. Die unter der Voraussetzung  $k=1$  aus dem Wert  $(b/L.\lambda)_{\theta=0}$  erhaltenen Werte  $D_0$  sind in der folgenden Tabelle 2 angegeben.

Tabelle 2. Vergleich der nach verschiedenen Methoden (siehe Text) bestimmten mittleren Kristallitgrössen

Folienzustand	$D_0$	$D_{\text{dyn}}$	$D_{220}$
7	90 Å	110 Å	70 Å
8	135	150	100
9	200	210	145
10	250	260	170

Zum Vergleich ist auch die aus der Halbwertsbreite des  $(2,2,0)$ -Ringes bestimmte Kristallitgrösse  $D_{220}$  und diejenige Kristallitdicke  $D_{\text{dyn}}$  eingetragen, die durch optimale Anpassung der relativen Ringintensitäten an die theoretische Kurve [Gl. (3)] erhalten wurden (siehe 5.1). Die Übereinstimmung zwischen den auf vollkommen unabhängigen Wegen bestimmten Kristallitgrössen  $D_0$  und  $D_{\text{dyn}}$  für alle Folienzustände 7–10 ist sehr bemerkenswert und rechtfertigt die Bezeichnung des Parameters  $D_{\text{dyn}}$  als mittlere Kristallitdicke.

Weiterhin tritt in Fig. 8 bei dem  $(2,0,0)$ -Ring stets eine systematische Abweichung vom linearen Verlauf im Sinne einer Ringverbreiterung auf, die vermutlich durch die Kristallform bedingt ist.

Hingegen scheinen die Abweichungen, die der  $(1,1,1)$ -Ring und auch der  $(2,0,0)$ -Ring zusätzlich bei den Folienzuständen 9 und 10 aufweisen, auf einer Verbreiterung infolge dynamischer Effekte zu beruhen.

Auch die Halbwertsbreiten der in Fig. 8 nicht eingetragenen Interferenzringe zweiter Ordnung  $(2,2,2)$  und  $(4,0,0)$ , welche nach den Fig. 5 und 6 stark dynamisch beeinflusst sind, sind bis zu etwa 30% grösser als die der benachbarten Ringe.

### 6. Anhang. Fehlerdiskussion

Die Ungenauigkeit der Ergebnisse infolge zufällig schwankender Fehlerquellen liegt meist unter 5%. Die Tabelle 3 gibt einige Beispiele. Die dort angegebenen Fehler setzen sich aus den Beiträgen folgender Fehlerquellen zusammen: Inkonstanz der Messanordnung, Objektverschmutzung, ungenügende Reproduzierbarkeit bei der graphischen Interpolation des kontinuierlichen Untergrundes, Ungenauigkeiten beim Ausmessen der Registrierkurven.

Unter denjenigen Parametern, die einen syste-

Tabelle 3. Die zufälligen Fehler der mittleren integralen Ringintensitäten für einige Folienzustände und Elektronenergien

Folienzustand:	0	2	6	8	10					
Kristallitgröße $D_0$ :	35	50	60	135	250	(Å)				
Elektronenenergie:	25	45	30	50	50	20	40	20	46	(keV)
(1,1,1)	4%	2%	3%	2%	1%	5%	2%	2%	2%	
(2,0,0)	2	2	2	3	2	5	2	4	3	
(2,2,0)	—	—	—	Bezugsreflex						
(3,1,1)	7	4	5	2	4	4	2	2	6	
(2,2,2)	8	4	—	7	4	4	3	4	5	
(4,0,0)	—	2	—	6	—	—	3	9	5	
(3,3,1)	—	4	—	5	3	—	3	8	5	
(4,2,0)	—	4	—	5	3	—	3	7	3	
(4,2,2)	—	—	—	—	3	—	3	—	2	

matischen Einfluss auf das Messergebnis haben können, sollen zunächst ohne nähere Diskussion diejenigen genannt werden, deren Einfluss gegenüber den statistischen Fehlern vernachlässigbar gering ist, wie durch geeignete Experimente geprüft wurde: Unterschiede der relativen Ringintensitäten in entgegengesetzten Streurichtungen  $\theta_{\text{H}}$  und  $-\theta_{\text{H}}$  des Diagramms, die Zeitabhängigkeit der Messwerte infolge der Objektverschmutzung, die Abhängigkeit von der Einstellung der Gegenspannung im Bereich  $\Delta U_g = -2$  bis  $+5$  Volt, d.h. im Bereich der Energieverteilung der Primärelektronen, die Nichtlinearität des Verstärkers und subjektive Fehler beim Ausmessen der Registrierkurven.

Die Hauptfehlerquelle der Messungen ist die graphische Interpolation des kontinuierlichen Untergrundes. Zwar konnte im gefilterten Diagramm eine gute Reproduzierbarkeit (siehe Tabelle 3) erreicht werden, aber die systematischen Fehler des Abtrennverfahrens können nur grob abgeschätzt werden, weil der wahre Verlauf des kontinuierlichen Untergrundes nicht genau bekannt ist. Die durch das Abtrennverfahren im gefilterten Diagramm bedingten systematischen Fehler wurden dadurch abgeschätzt, dass die Unterschiede der relativen Ringintensitäten oberhalb verschiedener, aber als gleich wahrscheinlich anzusehender Verläufe des kontinuierlichen Untergrundes bestimmt wurden. Eine ausführliche Diskussion ergab, dass aufgrund

Tabelle 4. Mögliche systematische Verfälschung der integralen Ringintensitäten bei der graphischen Interpolation des kontinuierlichen Untergrundes

(Die angegebenen Werte sind Mittelwerte für die Elektronenenergien 25 und 48 keV.)

Folienzustand:	6	7	8	9	10
Kristallitgröße $D_0$ :	60	90	135	200	250 (Å)
(1,1,1)	6%	3%	1%	1%	1%
(2,0,0)	5	3	2	1	1
(2,2,0)	—	Bezugsreflex —			
(3,1,1)	4	4	4	1	1
(3,3,1)	4	3	2	1	1
(4,2,0)	4	3	2	1	1
(4,2,2)	8	8	2	1	1

dieser nicht vermeidbaren Unsicherheit die wahren relativen Ringintensitäten um die in der folgenden Tabelle 4 angegebenen Beträge von den aus den Flächen der Ringprofile ermittelten Intensitätswerten abweichen können.

Diese Abschätzungen zeigen, dass die systematischen Fehler bei kleinen Kristalliten die Sicherheit des Ergebnisses stärker beeinträchtigen als die zufälligen Fehler.

Die Verfasser danken Herrn Prof. Dr. H. Raether, dem Leiter des Instituts, herzlich für die Anregung zu dieser Arbeit und für sein förderndes Interesse. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken die Verfasser für die Bereitstellung finanzieller Mittel und verschiedener Geräte.

## Literatur

- BLACKMAN, M. (1939). *Proc. Roy. Soc. A*, **173**, 68.  
 EHLERS, H. (1956). *Z. Naturforsch.* **11a**, 359.  
 FUJIMOTO, F. (1959). *J. Phys. Soc. Japan*, **14**, 1558.  
 FUJIMOTO, F. (1960). *J. Phys. Soc. Japan*, **15**, 859.  
 HABERSTROH, G. & RAETHER, H. (1955). *Naturwiss.* **42**, 531.  
 HABERSTROH, G. (1956). *Z. Phys.* **145**, 20.  
 HORSTMANN, M., MEYER, G. & RAETHER, H. (1959). *Z. Phys.* **154**, 633.  
 HORSTMANN, M. & MEYER, G. (1960). *Z. Phys.* **159**, 563.  
 HORSTMANN, M. & MEYER, G. (1961). *Naturwiss.* **48**, 41.  
 HORSTMANN, M. & MEYER, G. (1961). *Z. Phys.* **164**, 21.  
 KATO, N. (1952). *J. Phys. Soc. Japan*, **7**, 397, 406.  
 KUWABARA, S. (1957). *J. Phys. Soc. Japan*, **12**, 637.  
 LAUE, M. v. (1944). *Materiewellen und ihre Interferenzen*. S. 143 ff. Leipzig: Akad. Verlagsges.  
 LENNANDER, S. (1954). *Ark. Fys.* **8**, 551.  
 MARK, H. & WIERL, R. (1930). *Z. Phys.* **60**, 741.  
 MEYERHOFF, K. (1957). *Z. Naturforsch.* **12a**, 23.  
 RAETHER, H. (1957). *Handbuch der Physik*, XXXII, p. 530. Berlin: Springer.  
 STOKES, A. R. & WILSON, A. J. C. (1942). *Proc. Camb. Phys. Soc.* **38**, 313.  
 TOMIE, Y. & STAM, C. H. (1958). *Acta Cryst.* **11**, 126.  
 WARREN, B. E. (1953). *Acta Cryst.* **6**, 803.  
 YAMZIN, I. I. & PINSKER, Z. G. (1949). *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, **65**, 645.