

2,2'-Dipyridylanionradikal befinden sich auch in dieser Substanz die N-Atome an den Stellen solcher C-Atome des zugrunde liegenden aromatischen Kohlenwasserstoffes, an denen im entsprechenden Anionradikal die Spindichten relativ niedrig sind³. Dies legt folgende Deutung der gefundenen Abweichungen nahe:

Erfolgt die N-Substitution an einer Stelle niedriger Dichte des ungepaarten Elektrons, so wird durch sie die Symmetrie sowie die Lage der Knotenflächen der zugehörigen Eigenfunktion verändert. Diese Störung kann so groß werden, daß sie sich durch die

HÜCKELSCHE Theorie in ihrer einfachsten Form nicht mehr zufriedenstellend berücksichtigen läßt. Beim 2,2'-Dipyridyl könnten jedoch auch Abweichungen von der planaren Konfiguration ähnliche Folgen haben¹⁷.

Die Autoren danken Prof. H. L. SCHLÄFER, Frankfurt a. M., und Prof. K.-H. HELLWEGE, Darmstadt, für die Unterstützung der vorliegenden Arbeit, Prof. S. HERZOG, Greifswald, für wertvolle Hinweise sowie Herrn D. STEPHAN vom IPM der TH Darmstadt für die Durchführung der numerischen Berechnungen.

¹⁷ A. ALMENNINGEN u. O. BASTIANSEN, K. Norske Vidensk. Selsk. Skr. No. 4 [1958].

Über eine Anordnung zur Filterung von Elektroneninterferenzen

Von KARL BRACK

Aus dem Institut für angewandte Physik der Universität Hamburg
(Z. Naturforschg. 17 a, 1066—1070 [1962]; eingegangen am 15. Oktober 1962)

The following paper describes a device in order to separate the inelastically scattered electrons from the electron diffraction pattern. By means of an electric and magnetic deflecting system the diffraction pattern is swept across the small entrance aperture of a filter lens. In this way an electron beam with a small divergence passes the filter lens. Behind the filter lens the electron beam is deflected by another deflection system, which is synchronised with the first. So one gets a diffraction pattern, the angular width of which is determined by the maximum deflection angle of the deflecting system. If the retarding potential of the filter lens is high enough, one can photograph the filtered electron diffraction pattern. By reducing the retarding potential one gets unfiltered diagrams.

Zur Abtrennung der unelastisch gestreuten Elektronen in Beugungsdiagrammen und in elektronenmikroskopischen Abbildungen wurden verschiedene Methoden entwickelt. So läßt sich in der Elektronenmikroskopie eine Filterlinse¹ verwenden, mit der neben einer Filterung (d. h. Abtrennung der unelastisch gestreuten Elektronen) gleichzeitig auch eine Abbildung erzielt wird. Dabei muß man sich auf kleine Strahldivergenzen beschränken, um noch brauchbare Abbildungen zu erhalten; jedoch kann mit einer solchen Filterlinse nicht gleichzeitig der große Winkelbereich eines Interferenzbildes (etwa 0,1 rad) erfaßt werden.

Um die durch astigmatische und chromatische Linsenfehler bedingten Schwierigkeiten zu vermeiden, wurde bei der vorliegenden Apparatur mit einer Blende vor einer Filterlinse ein Strahl von nur geringer Divergenz ausgesondert und das Interferenzbild mit Hilfe von elektronischen Ablenksystemen

rasterförmig abgetastet. Hinter der Filterlinse wird das Bild durch Ablenksysteme wieder aufgebaut². Gleichzeitig läßt sich der ausgebündelte Strahl durch magnetische Felder auf die Photoplatte fokussieren. Die Filterlinse übernimmt also lediglich die Aufgabe, die unelastisch gestreuten Elektronen abzutrennen, dagegen wird die Größe des Bildausschnittes durch die Ablenksysteme bestimmt. Auf diese Weise ist es möglich, Interferenzdiagramme mit Hilfe einer Filterlinse aufzunehmen.

1. Versuchsanordnung

Das Schema der Versuchsanordnung ist in Abb. 1 dargestellt. Dicht hinter dem Objekt F befindet sich eine Ablenkeinheit A₁, die aus einem Plattenpaar für die vertikale und aus zwei Spulen für die horizontale Auslenkung der gestreuten Elektronen aufgebaut ist. Das elektrostatische und das magnetische Ablenksystem sind jeweils mit einem Sägezahngenerator verbunden,

¹ G. MÖLLENSTEDT u. O. RANG, Z. angew. Phys. 3, 187 [1951]. — H. BOERSCH, Z. Phys. 134, 156 [1953]. — J. A. SIMPSON u. L. MARTON, Rev. Sci. Instrum. 32 (7), 802 [1961].

² Über eine ähnliche Anordnung im Elektronenmikroskop siehe: H. WATANABE u. R. UYEDA, J. Phys. Soc., Japan 17, 569 [1962].



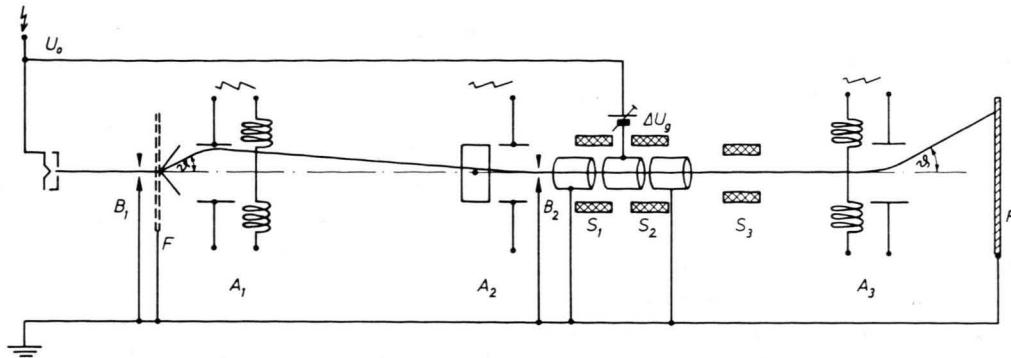


Abb. 1. Versuchsanordnung (schematisch).

wobei das Frequenzverhältnis der horizontalen zur vertikalen Ablenkspannung etwa 1 : 400 beträgt. Das so ausgelenkte Beugungsdiagramm wird mit der Meßblende B_2 ($100 \mu \text{m}$ \varnothing) rasterförmig abgetastet. Vor der Meßblende befindet sich eine weitere Ablenkeinheit A_2 , die mit A_1 nach Höhe und Phase der Ablenkspannungen derart verkoppelt ist, daß der mit einer Halbwertsbreite von $1 \cdot 10^{-4}$ rad ausgeblendete Elektronenstrahl stets in der optischen Achse der Linse verläuft.

Die Elektronen laufen in der Filterlinse gegen das Bremspotential der Mittelelektrode, die etwa auf Kathodenpotential liegt. Dieses Potential kann durch eine variable Zusatzspannung ΔU_g gegenüber dem Kathodenpotential verändert werden. Nur die Elektronen, die vermöge ihrer hinreichend großen Energie das Bremspotential überwinden können, durchlaufen die Filterlinse. Gleichzeitig wird der Elektronenstrahl durch das axiale Magnetfeld der Spulen S_1 und S_2 fokussiert.

Eine dritte Spule S_3 hinter dem Filter verringert den Strahlquerschnitt der Elektronen noch weiter, so daß man am Ort der Photoplatte P eine Abbildung der Meßblende B_2 etwa im Verhältnis 1 : 1 erzielt. Das entspricht, von der Ablenkeinheit A_3 aus gerechnet, einer Winkelhalbiersbreite des Elektronenstrahles von etwa $2 \cdot 10^{-4}$ rad. Diese Breite bestimmt das Winkelauflösungsvermögen der gesamten Anordnung.

Die Ablenkeinheit A_3 , die identisch mit A_1 ist, lenkt den so fokussierten Elektronenstrahl synchron zu A_1 bzw. A_2 aus und zeichnet auf die Photoplatte P das Interferenzbild. Durch Einstellen der Gegenspannung ΔU_g läßt sich wahlweise ein gefiltertes oder ein ungefiltertes Abbild des Interferenzdiagrammes erhalten.

2. Die Filterlinse

Die Filterlinse ist aus einem System von drei rotationssymmetrischen Elektroden aufgebaut (Abb. 2). Die beiden äußeren Elektroden E_1 und E_3 befinden sich auf Erdpotential, während die mittlere Elektrode E_2 auf Bremspotential (Kathodenpotential plus variable Zusatzspannung ΔU_g) liegt.

Der Feldverlauf im Bereich des Potentialsattelpunktes ist durch die Form der Mittelelektrode bestimmt.

Eine optimale Energieauflösung erfordert einen möglichst flachen Verlauf des Bremspotentials senkrecht zur optischen Achse der Filterlinse. Aus diesem Grunde wurde das Verhältnis der Länge zum Durchmesser der Bremselektrode groß und die beiden Elektrodenöffnungen d_a kleiner als der innere Durchmesser d_i gewählt³. Bei dieser Konstruktion weicht das Potential des Sattelpunktes nur etwa 1 Volt von der angelegten Elektrodenspannung ab.

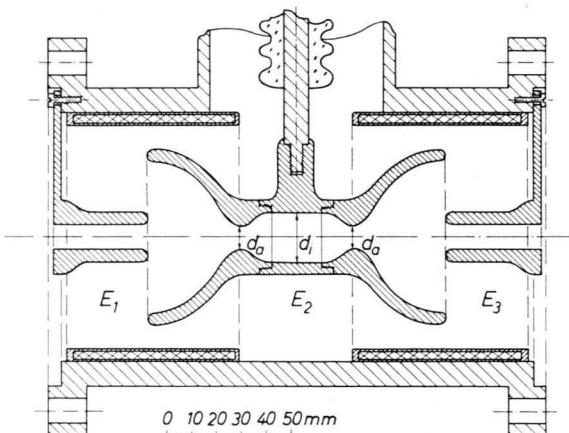


Abb. 2. Längsschnitt der Filterlinse.

Für die Bestimmung des Energieauflösungsvermögens der Filterlinse wurde die Intensität des Primärstrahles mit Hilfe eines Zählrohres hinter der Spule S_3 bei ausgeschalteten Ablenkspannungen gemessen. Mit dieser Anordnung läßt sich durch Variation der Gegenspannung ΔU_g die integrale Energieverteilung der Primärelektronen aufnehmen.

Betrachten wir die integrale Energieverteilung zweier Elektronenstrahlen, von denen der eine in der optischen Achse der Filterlinse verläuft, während

³ K. KECK u. H. DEICHSEL, Optik 17, 401 [1960].

der andere in bezug auf die optische Achse den Abstand r und den Neigungswinkel α besitzt, so sind diese Energieverteilungen im Gegenspannungsdia-gramm für den Fall, daß $\alpha = \text{const} \cdot r$ ist, näherungsweise um

$$\Delta U_g^* = C_3 \alpha^2$$

gegeneinander verschoben⁴.

Um die Konstante C_3 zu ermitteln, wurde die Meßblende B_2 vor dem Filter entfernt und die Filterlinse mit dem Primärstrahl (Winkelhalbwertsbreite $4 \cdot 10^{-5}$ rad) durch Schwenken der Kathode um die Objektblende bis zu einem Winkel von $\pm 5 \cdot 10^{-4}$ rad abgetastet.

Abb. 3 zeigt die Verschiebung der Energieverteilungen in Abhängigkeit von α , woraus sich $C_3 = 2,5 \cdot 10^6$ Volt/rad und

$$\Delta U_g^* = 2,5 \cdot 10^6 \alpha^2 \text{ Volt}$$

ermitteln läßt.

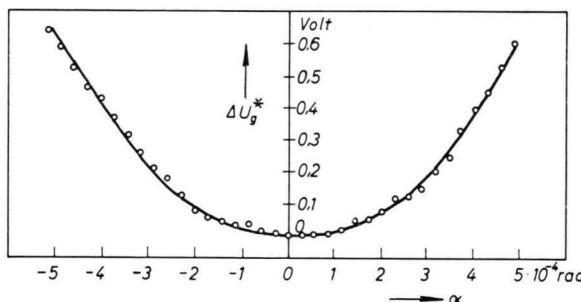


Abb. 3. Verschiebung ΔU_g^* der Energieverteilung eines um den Winkel α gegen die optische Achse geneigten Primärstrahles.

Die in der Anordnung (Abb. 1) verwendete Meßblende B_2 bedingt eine Winkelhalbwertsbreite von $2 \alpha_0 = 10^{-4}$ rad, so daß die integrale Energieverteilung eines Elektronenstrahles mit einer solchen Di- vergenz um

$$\Delta U_g^*(\alpha_0) = 6 \cdot 10^{-3} \text{ Volt}$$

verbreitert wird.

Das Energieauflösungsvermögen der Filterlinse beträgt dementsprechend etwa

$$E_i^* = e \Delta U_g^*(\alpha_0) = 6 \cdot 10^{-3} \text{ eV}$$

Dieser Wert ist im allgemeinen gegenüber der integralen Energiebreite der Primärelektronen (einige $1/10$ eV) zu vernachlässigen und ist auch noch

klein gegenüber der bisher erreichten Energiebreite bei Verwendung von Monochromatoren ($25 \cdot 10^{-3}$ eV)⁵.

Die Linseneigenschaft des Filters bewirkt, daß die Elektronen die Filterlinse bei gewissen Gegen- spannungen als stark divergentes Strahlenbündel verlassen. Diese Divergenz wird durch ein zusätz- liches axiales Magnetfeld von etwa 90 Gauß (Spulen S_1 und S_2) herabgesetzt.

Um den Einfluß des Magnetfeldes auf die Brechkraft $1/f$ der Filterlinse genauer zu untersuchen, wurde die Brennweite als Funktion der Gegenspannung ΔU_g aus- gemessen. Dabei zeigte sich, daß bei eingeschaltetem Magnetfeld die Brechkraft des Systems dem Betrage nach auf 1/5 des ursprünglichen Wertes vermindert wird. Zugleich wird der Verlauf von $1/f$ geändert: Während ohne Magnetfeld die Brechkraft in einem Gegenspannungsbereich von 1 bis 300 Volt nur nega- tive Werte annimmt und für $\Delta U_g < 1$ Volt oszilliert⁶, wechselt $1/f$ auch in dem Bereich von 1 bis 300 Volt das Vorzeichen. Diese Oszillationen wirken sich durch das Magnetfeld der Spule S_3 (langbrennweite Linse) nicht störend aus.

3. Ablenkeinrichtung

Mit der Ablenkeinrichtung A_1 sollen die beim Durchgang durch die Folie F in einen Winkelbereich von etwa 0,1 rad gestreuten Elektronen so stark zur optischen Achse hin abgelenkt werden, daß sie nach einer weiteren Umlenkung mit Hilfe der Ablenkeinheit A_2 die Meßblende B_2 in axialer Richtung passieren können. Da die Entfernung von A_1 zum Objekt nicht beliebig klein gewählt werden kann – das Objekt ist zur Reduktion der Verschmutzung von einer Kühlfallen umgeben⁴ –, müßten bei Ver-wendung eines elektrostatischen Ablenksystems die Ablenkplatten für diesen Winkelbereich einen sol- chen Abstand voneinander haben, daß bei Elektronenenergien von 40 keV Sägezahnspannungen von etwa 3 kV_{ss} zur Auslenkung erforderlich wären.

Wesentlich einfacher ist die Verwendung eines magnetischen Ablenksystems, weil die für die oben- genannte Winkelablenkung notwendigen Spulenströme mit relativ geringem Aufwand erzeugt wer- den können. Allerdings muß man sich auf eine nied- rige Ablenkfrequenz beschränken, wenn der lineare Stromverlauf durch die Induktivität der Spulen noch nicht verformt werden soll.

⁴ M. HORSTMANN u. G. MEYER, Z. Phys. 159, 563 [1960].

⁵ W. LEGLER, Z. Phys., im Druck.

⁶ Vergleiche hierzu W. GLASER, Grundlagen der Elektronen- optik, Springer-Verlag, Wien, S. 327 ff.

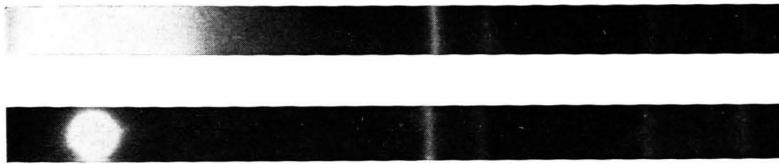


Abb. 4. Ausschnitt aus einem Elektronen-Beugungsdiagramm einer polykristallinen Ag-Schicht, 175 Å dick, Primärenergie 40 keV, Winkelbereich $5 \cdot 10^{-2}$ rad.
a) Ungefiltert ($\Delta U_g = 250$ Volt);
b) gefiltert bei $\Delta U_g = 2$ Volt.

Aus diesem Grunde wurde die horizontale Ablenkung für Winkel bis zu 0,1 rad bei 50 Hz mit einem magnetischen Ablenksystem (Ablenkspulen) aufgebaut. Für die vertikale Ablenkung muß wegen der für eine rasterförmige Abtastung des Beugungsdiagramms erforderlichen hohen Ablenkfrequenz ein elektrostatisches Ablenksystem benutzt werden. Hier wird eine Frequenz von 20 kHz verwendet, wobei die vertikale Ablenkung einen Winkelbereich von $\leq 10^{-2}$ rad erfaßt.

Die Ablenkeinheit A_3 hinter der Filterlinse ist ebenso aus zwei Spulen und einem Plattenpaar aufgebaut, während A_2 aus zwei Plattenpaaren für beide Ablenkrichtungen besteht, da hier die Auslenkungen nur etwa 1/30 der Ablenkinkel in A_1 bzw. A_2 betragen.

Durch die Verkopplung der horizontalen und der vertikalen Ablenksysteme mit jeweils einem Sägezahngenerator ist die Synchronisation der Ablenkeinheiten gewährleistet. Die Amplituden der Spannungen bzw. Ströme lassen sich im Verhältnis zueinander beliebig ändern, so daß man z. B. auf der Photoplatte das vergrößerte Abbild eines Reflexes und dessen Umgebung aufnehmen kann. Insbesondere läßt sich die Umgebung des Primärfeckes (Kleinwinkelstreuung) aufnehmen. Durch eine Schwenkbewegung des Primärstrahles zusammen mit der Folie (um das Objekt als Drehzentrum) kann ein beliebiger Bildausschnitt aus dem Interferenzbild gewählt werden.

Infolge der punktförmigen Abtastung des Beugungsdiagramms muß man einen erheblichen Intensitätsverlust in Kauf nehmen. Die Intensität des Interferenzbildes hinter der Filterlinse ist, abgesehen von der Filterung, gegenüber der Intensität vor der Meßblende B_2 im Verhältnis des Blendenausschnittes zur Fläche des photographierten Bildes verringert. Bei einem Bildausschnitt von $3 \times 50 \text{ mm}^2$, wie er in Ab. 4 erfaßt ist, beträgt dieses Verhältnis $5 \cdot 10^{-5}$. Trotzdem erhält man Aufnahmen bei Belichtungszeiten von nur wenigen Minuten, wenn man mit Strahlstromdichten von etwa 10^{-3} A/cm^2 arbeitet.

Zur Bestimmung der Intensitätsverhältnisse in den Photometerkurven werden vor der Aufnahme des Interferenzbildes Graustufen aufgenommen, um die Schwärzungskurve der Photoplatte zu ermitteln. Hierzu wird der Primärstrahl mit der Ablenkeinheit A_3 hinter der Filterlinse zu einem Rechteck aufgefächert und dieses in kleinen, zeitlich genau definierten Schritten verschoben.

4. Ergebnisse

In Abb. 4 sind zwei Aufnahmen eines gefilterten und eines ungefilterten Beugungsdiagramms einer polykristallinen Silberschicht gegenübergestellt. Die Aufnahmen erfassen das DEBYE-SCHERRER-Diagramm bis zum 222-Ring. Das entspricht einem Winkelbereich von $5 \cdot 10^{-2}$ rad. Man erkennt eine Verminde rung des Untergrundes besonders in der Umgebung des Primärfeckes. Dieser Unterschied wird in der photometrischen Auswertung der Aufnahmen noch deutlicher (Abb. 5).

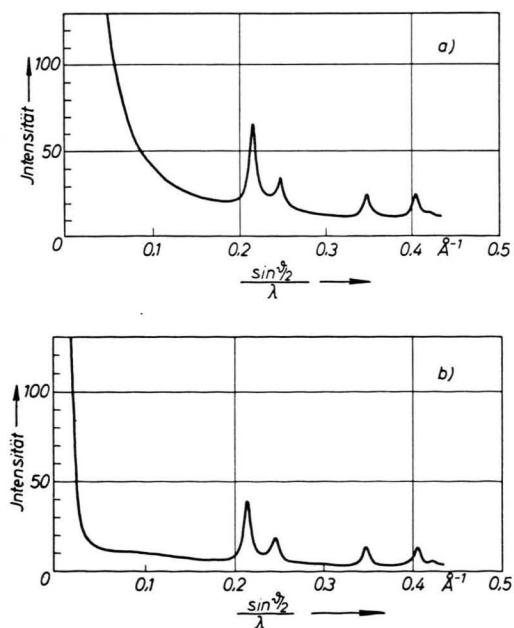


Abb. 5. Winkelverteilungen der Beugungsdiagramme in Abb. 4 a u. 4 b. Die Ordinatenwerte sind willkürlich gewählte Einheiten und geben die aus den Photometerkurven ermittelten relativen Intensitätsverhältnisse an. a) Ungefiltert, b) gefiltert.

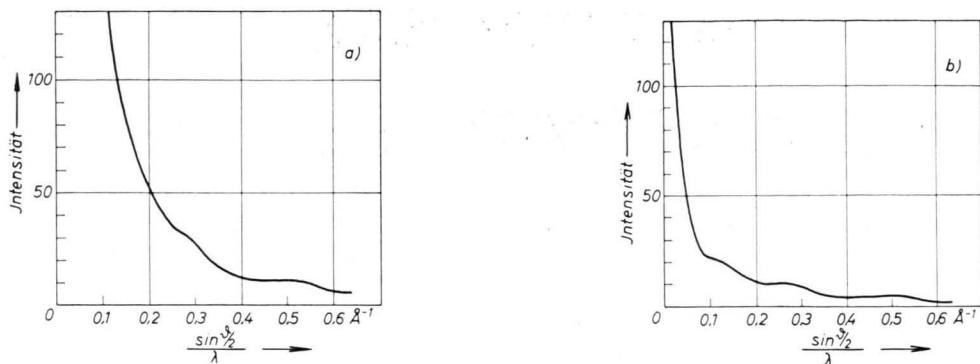


Abb. 6. Beugungsdiagramm einer amorphen Kohlenstoffschicht, etwa 200 Å dick. Primärenergie 40 keV, Winkelbereich $8 \cdot 10^{-2}$ rad. Die Intensitätsverhältnisse wurden aus den Photometerkurven der entsprechenden Aufnahmen ermittelt.
a) Ungefiltert, b) gefiltert bei $\Delta U_g = 1$ Volt.

Abb. 6 a und b zeigen die ungefilterten bzw. gefilterten Beugungsdiagramme einer amorphen Kohlenstoffschicht (ca. 200 Å dick). Während in Abb. 6 a der erste Interferenzring nicht zu erkennen ist, wird dieser in dem gefilterten Diagramm durch eine Verminderung des Untergrundes sichtbar (Abb. 6 b).

Die Intensitätsverteilungen in Abb. 5 und Abb. 6 wurden mit Hilfe der Schwärzungskurve aus der photographischen Registrierung gewonnen.

Mit dieser Anordnung wurden auch Reflexionsdiagramme an einer Silizium-111-Spaltsfläche untersucht. Dabei zeigt sich, daß die KIKUCHI-Linien bei der Filterung verschwinden, während die Reflexe erkennbar bleiben.

Herrn Professor Dr. H. RAETHER danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für das fördernde Interesse. Ferner danke ich den Herren Dr. M. HORSTMANN und Dr. G. MEYER für zahlreiche anregende Diskussionen.