

Elektronenoptischer Phasenkontrast

II. Berechnung mit komplexen Atomstreuamplituden für Atome und Atomgruppen

L. REIMER

Physikalisches Institut der Universität Münster/Westf.

(Z. Naturforsch. **24 a**, 377—389 [1969]; eingegangen am 3. Dezember 1968)

Complex atomic scattering amplitudes calculated by the WKB-method and verified experimentally in earlier work are used to compute the decrease in intensity if imaging single atoms, plane arrays of atoms or atomic monolayers, especially of platinum atoms. By calculating the decrease of intensity in the centre of an atomic image for a large number of different objective apertures α and defocussing parameters Δf one gets a better survey for the limits of optimal underfocus. We used constants of spherical aberration $C_\delta = 0.5, 1, 2$ and 4 mm. The energy of the electrons is 100 keV. Some calculations are done up to 1200 keV.

The use of complex scattering amplitudes does not justify to distinguish between amplitude and phase contrast. Both limiting cases are obtained in the used theory. Two platinum atoms in nearest distance can be resolved in the optimal underfocus only for $C_\delta = 0.5$ and 1 mm. But for larger C_δ there exists a region at larger α with a much better resolution. These results show that there is a continuous transition from the resolution of an atomic pair up to that of the lattice planes in crystal films.

Disks of 7 and 19 atoms in a two-dimensional dense packing are calculated and some deviations in optimal focus are found compared to the results of single atoms. At low α beyond the Bragg angle of the dense packed atomic rows no large difference exist if varying C_δ and α . The single atoms are not resolved, but the decrease of intensity should be large enough for observation. Further calculations have been done about the contrast of a mono-atomic layer considering the influence of a vacancy too.

The influence of a finite aperture of illumination and the energy distribution of the electrons are considered by folding the results with a distribution like a Gaussian error function.

In einer früheren Arbeit¹ wurde der Phasenkontrast phasenschiebender Scheibchen untersucht. Es wurde dabei die 1. Bornsche Näherung zugrunde gelegt. Da diese keine komplexe Atomstreuamplitude liefert, ist die gestreute Welle gegenüber der ungestreuten um 90° phasenverschoben. Durch WKB-Rechnungen lassen sich komplexe Atomstreuamplituden

$$f(\vartheta) = |f(\vartheta)| e^{i\eta(\vartheta)} \quad (1)$$

gewinnen², mit denen in³ eine befriedigende quantitative Darstellung des Streukontrastes amorpher und feinkristalliner Schichten im Energiebereich zwischen 17 und 1200 keV gelang.

Es sollen im folgenden mit derartigen Streuamplituden die Kontrastverhältnisse bei der Abbildung von Einzelatomen diskutiert werden. Zu diesem Problem liegt schon eine Reihe von Arbeiten

vor^{4—7}, in denen aber zu ungenaue Atomstreuamplituden benutzt wurden. Insbesondere die Berücksichtigung der dichtesten Packung von Atomen liefert kleinere Streuamplituden als bei „unendlich ausgedehnten“ Atomen (s. hierzu Abb. 11 in³). Es wird mit $r_0 = 1,38$ Å, dem halben dichtesten Abstand der Platinatome im kubisch flächenzentrierten Gitter, gerechnet. Die Rechnungen beschränken sich im wesentlichen auf Platin, da es experimentell als erstes gelingen wird, Atome mit hoher Ordnungszahl abzubilden. Außerdem wird nur die Variation des Kontrastes in Abhängigkeit von der Objektivapertur und der Defokussierung im Hellfeld betrachtet. Zonenblenden bzw. Dunkelfeldabbildungen werden nicht diskutiert. An Bildfehlern werden nur der Öffnungs- und Beugungsfehler berücksichtigt. Die Rechnungen beschränken sich ferner auf die elastische Streuung. Daher werden auch keine quantitativen

¹ L. REIMER, Z. Naturforsch. **21 a**, 1489 [1966].

² L. REIMER u. K. H. SOMMER, Electron Microscopy 1968, Vol. I, 63, Rom 1968.

³ L. REIMER u. K. H. SOMMER, Z. Naturforsch. **23 a**, 1569 [1968].

⁴ R. D. HEIDENREICH u. R. W. HAMMIG, Bell System Techn. J. **44**, 207 [1965].

⁵ C. B. EISENHANDLER u. B. M. SIEGEL, J. Appl. Phys. **37**, 1613 [1966]; Appl. Phys. Letters **8**, 258 [1966].

⁶ R. LANGER u. W. HOPPE, Optik **24**, 470 [1966]; **25**, 413 [1967]; **25**, 507 [1967].

⁷ E. ZEITLER, VI. Intern. Congr. Electron Microscopy, Vol. I, 43, Tokio 1966.



Aussagen über den Einfluß des Farbfehlers gemacht. Außerdem wird zunächst mit parallel einfallendem Elektronenstrahl gerechnet und damit der Einfluß der Bestrahlungsapertur α_B unberücksichtigt gelassen. Diese würde in erster Näherung zu einer Verwaschung eines Bildpunktes um $\Delta r = \Delta f \alpha_B$ führen. Wenn $\alpha_B < 10^{-4}$, kann im interessierenden Defokussierungsbereich der Einfluß der Bestrahlungsapertur vernachlässigt werden. Es ist allgemein bekannt (siehe u. a.⁸), daß zur Beobachtung von Phasenkontrasten derartig kleine Bestrahlungsaperturen unbedingt nötig sind.

Mit einer Verbesserung des Auflösungsvermögens ist die klassische Vorstellung des Auflösungsvermögens eines Elektronenmikroskopes zu revidieren. In der bisherigen wellenoptischen Theorie des Auflösungsvermögens⁹ werden zwei inkohärent leuchtende Punkte als Objekt angesetzt. Bei der normalen Hellfeldabbildung und hinreichend kleiner Bestrahlungsapertur handelt es sich aber um kohärent beleuchtete Objekte. Die kleinste Objekteinheit ist ein Atom, genauer das abgeschirmte Coulomb-Potential des Atomkernes, wenn man sich auf die rein elastische Streuung beschränkt. Bei den schweren Elementen ist diese Beschränkung zulässig. Es wird deshalb das Auflösungsvermögen an Hand von 2 benachbarten Platinatomen durchgerechnet. Als nächstgrößere Atomanordnungen werden 7 und 19 Platinatome in Form eines Scheibchens diskutiert. Diese Anordnung führt auf das in¹ diskutierte phasenschiebende Scheibchen zurück. Schließlich wird der Übergang zu einer monoatomaren kristallinen Schicht vollzogen, dessen Ergebnisse direkt mit Messungen des Streukontrastes³ verglichen werden können. Dadurch ist eine einheitliche Beschreibung des Phasen- und Streukontrastes (Amplitudenkontrastes) möglich.

Es sei darauf hingewiesen, daß bei Benutzung einer komplexen Atomstreuamplitude eine strenge Unterscheidung zwischen Amplituden- und Phasenkontrast nicht möglich ist. Dies wird durch folgende Situation am eindrucksvollsten belegt. Bei Bornscher Näherung ohne Phasenschiebung ($\eta = 0$ für alle Streuwinkel ϑ) erfaßte man bei der Berechnung des Streukontrastes alle Elektronen, welche in Streuwinkel ϑ größer als die Objektivapertur α gestreut werden¹⁰. Die Kontrastdicke x_k in einem exponen-

tiellen Schwächungsgesetz

$$T = I/I_0 = \exp(-x/x_k), \quad x = \text{Massendicke} \quad (2)$$

berechnet sich zu

$$\frac{1}{x_k} = \frac{N_L}{A} \int_{-\pi}^{\pi} |f(\vartheta)|^2 2\pi \sin \vartheta \, d\vartheta. \quad (3)$$

(N_L/A bedeutet die Zahl der Atome/cm² in einer Schicht der Massendicke 1 g cm⁻²).

Mit der komplexen Atomstreuamplitude kann man das Optische Theorem ausnutzen, welches besagt, daß der Imaginärteil der Atomstreuamplitude für $\vartheta = 0$ mit dem totalen elastischen Streuquerschnitt zusammenhängt

$$\sigma_{el} = \frac{4\pi}{k_0} \operatorname{Im} f(0) = 2\lambda |f(0)| \sin \eta(0). \quad (4)$$

Daher kann man die Kontrastdicke auch in der Form

$$\frac{1}{x_k} = \frac{N_L}{A} [2\lambda \operatorname{Im} f(0) - \int_0^{\pi} |f(\vartheta)|^2 2\pi \sin \vartheta \, d\vartheta] \quad (5)$$

darstellen, in der jetzt nur die komplexen $f(\vartheta)$ -Werte derjenigen Elektronen benötigt werden, welche die Objektiv-Aperturblende passieren. Der erste Term in (5) ist identisch mit der reziproken „Aufhellungsdicke“ x_a . Bei dieser Art der Berechnung des Streukontrastes amorpher Objekte wird wegen der statistischen Phasenbeziehungen gleich durch $|f(\vartheta)|^2$ über die Intensitätsbeiträge aus den einzelnen Raumwinkelementen $2\pi \sin \vartheta \, d\vartheta$ summiert. Bei der folgenden Berechnung des Phasenkontrastes einzelner Atome und Atomgruppen ist zunächst über die Amplitude $f(\vartheta)$ zu integrieren und anschließend wird durch Bildung des Amplitudenquadrates die Bildintensität erhalten. Es wird weiter unten an Beispielen gezeigt, daß dies Verfahren zum gleichen Streukontrast führt, wenn die Atomstruktur eines ausgedehnten Objektes nicht aufgelöst wird.

1. Abbildung von Einzelatomen

Es wird im folgenden eine 1:1-Abbildung vorausgesetzt. Die Bildkoordinate r' korrespondiert mit der Objektkoordinate r . Aus der komplexen Atomstreuamplitude (1) läßt sich unter Berücksichtigung der Phasenschiebung

$$\Delta = \frac{\pi}{2} - \frac{\pi}{2\lambda} (C_0 \vartheta^4 - 2\Delta f \vartheta^2) \quad (6)$$

⁸ F. THON, Z. Naturforsch. **20 a**, 154 [1965]; **21 a**, 476 [1966].

⁹ W. GLASER, Grundlagen der Elektronenoptik, Springer-Verlag, Wien 1952.

¹⁰ F. LENZ, Z. Naturforsch. **9 a**, 185 [1954].

durch den Öffnungsfehler C_0 und die Defokussierung Δf die Bildamplitude berechnen¹:

$$B(r') = \frac{A_0}{\lambda} \int_{-\pi}^{+\pi} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) \exp(i\Delta) \cdot \exp\left(-\frac{2\pi i}{\lambda} r' \vartheta \cos \chi\right) \vartheta d\vartheta d\chi \quad (7)$$

mit χ als Azimutalwinkel in der Beugungsebene des Objektivs. Bei rotationssymmetrischen Objekten lässt sich die Integration über die χ -Koordinate elementar durchführen:

$$B(r') = \frac{A_0}{\lambda} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) \exp(i\Delta) \cdot J_0\left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \vartheta\right) \vartheta d\vartheta \quad (8)$$

Mit (1), (6) und der Abkürzung

$$\Phi(\vartheta) = \eta(\vartheta) - \frac{\pi}{2\lambda} (C_0 \vartheta^4 - 2\Delta f \vartheta^2) \quad (9)$$

erhält man wegen $A_0^2 = I_0$ die Bildintensität (s. Abb. 1)

$$\begin{aligned} I(r') &= I_0 \{ [1 - \text{Im } B(r')]^2 + [\text{Re } B(r')]^2 \} \\ &= I_0 \left\{ \left[1 - \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) \sin \Phi(\vartheta) J_0\left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \vartheta\right) \vartheta d\vartheta \right]^2 + \left[\frac{2\pi}{\lambda} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) \cos \Phi(\vartheta) J_0\left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \vartheta\right) \vartheta d\vartheta \right]^2 \right\}. \end{aligned} \quad (10)$$

Bei kleinen Intensitätsänderungen sind die quadratischen Glieder zu vernachlässigen. Bei numerischen Rechnungen mit dem Computer ist es jedoch kein Mehraufwand, den vollständigen Ausdruck (10) zu benutzen.

Auf folgende Weise kann man leicht zeigen, daß in (10) der Streukontrast mitenthalten ist. Es sei angenommen, daß die Objektivapertur α so klein ist, daß die Phasenschiebung $\Delta \cong \pi/2$. Da $|f(\vartheta)|$ und $\eta(\vartheta)$ eine horizontale Tangente für $\vartheta = 0$ besitzen, gelte außerdem $|f(\vartheta)| \sin \eta(\vartheta) \cong \text{const} = |f(0)| \sin \eta(0)$. In (10) seien ferner die quadratischen Glieder vernachlässigt. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned} I(r') &= I_0 \left\{ 1 - \frac{4\pi}{\lambda} |f(0)| \sin \eta(0) \int_0^{\infty} J_0\left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \vartheta\right) \vartheta d\vartheta \right\} \\ &= I_0 \left\{ 1 - \frac{2\pi}{r'} |f(0)| \sin \eta(0) J_1\left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \alpha\right) \right\} = I_0 - \Delta I. \end{aligned} \quad (11)$$

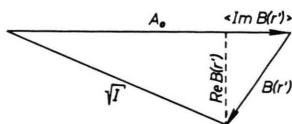


Abb. 1. Überlagerung der Amplitude A_0 der ungestreuten Welle und $B(r')$ der gestreuten Welle im Bildpunkt und Berechnung der Bildintensität I .

Den gesamten Beitrag eines Atoms zum Streukontrast erhält man durch ein Integral

$$\begin{aligned} 2\pi \int_0^{\infty} \Delta I r' dr' &= 4\pi \alpha |f(0)| \sin \eta(0) \frac{\lambda}{2\pi \alpha} \int_0^{\infty} J_1(x) dx \quad (12) \\ &= 2\lambda |f(0)| \sin \eta(0) = \sigma_{el}. \end{aligned}$$

Das heißt, die mittlere Intensitätsschwächung pro Atom kann man auch anschaulich dadurch ersetzen, daß innerhalb eines Kreises mit der Fläche des totalen elastischen Streuquerschnittes σ_{el} die Intensität auf Null abfällt (Abb. 2). Dann ist die „Phasenkontrastgleichung“ (10) mit der „Streukontrastgleichung“ (5) verknüpft, denn letztere liefert für kleine α nur den ersten Term. Während man also bei der Bornschen Näherung den Streukontrast künstlich dem Phasenkontrast überlagern muß¹, wird bei Verwendung komplexer Atomstreuamplituden gleichzeitig die Summe aus Streu- und Phasenkontrast erhalten. In Abb. 2 ist ferner der Beitrag von σ_{el} zum Streukontrast eingezeichnet, wenn die Intensitätsabnahme gleichmäßig auf ein Scheibchen vom Radius $r_0 = 1,38 \text{ \AA}$ verteilt ist. Wenn die Einzelatome nicht aufgelöst werden, ist die Intensitäts-

erniedrigung von 3% gleich dem Streukontrast einer monoatomaren Schicht aus Pt-Atomen. Eine eingezeichnete Kurve des optimalen Phasenkontrastes (s. u.) bei der Abbildung eines Pt-Atoms demonstriert die Zunahme durch Phasenkontrast gegenüber reinem Streukontrast.

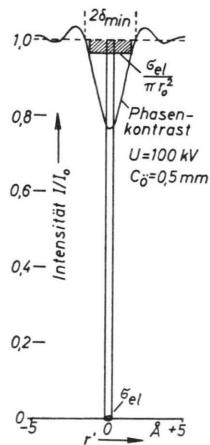


Abb. 2. Veranschaulichung des totalen elastischen Streuquerschnittes σ_{el} als Wirkungsquerschnitt für vollständige Absorption. Die Umrechnung auf die Fläche πr_0^2 eines Pt-Einzelatoms gibt mit $\sigma_{el}/\pi r_0^2$ den Streukontrastbeitrag eines Einzelatoms an. Zum Vergleich ist der optimale Phasenkontrast bei $U = 100$ keV und $C_0 = 0,5$ mm eingezeichnet.

Die Berechnung der komplexen Atomstreuamplitude wurde bereits früher beschrieben^{2,3}. Berechnungen der Bildintensität mit (10) ergeben „Atombilder“ in Form von Fehlerscheibchen, wie sie in den Abb. 3 a – c im oberen linken Bildrand für optimale Unterfokussierung aufgezeichnet sind. Die relativen Intensitätsabnahmen der Fehlerscheibchen für den Bildmittelpunkt ($r' = 0$) wurden ferner in Defokussierungsschritten von $\Delta f = 20$ Å und Aperturschritten von $4 \cdot 10^{-5}$ berechnet und daraus Linien gleicher Intensitätsabnahme $-\Delta I/I_0$ konstruiert. Mit dieser Darstellung gewinnt man einen besseren Überblick über die Lösungsmannigfaltigkeit des Phasenkontrastes bei Defokussierung. Schnitte AA' und BB' durch den Optimalfokus zeigen ferner, daß bei Öffnung der Apertur über die optimale Apertur hinaus keine wesentlichen Änderungen in der Intensität erfolgen. In Abhängigkeit von der Defokussierung ergeben sich jedoch Oszillationen, die besonders bei kleinen Öffnungsfehlern ausgeprägt sind.

Nach der SCHERZERSchen Theorie¹¹ sollte für die optimale Unterfokussierung gelten:

$$\alpha_{opt} = 1,41 \sqrt[4]{\lambda/C_0}, \quad (13a)$$

$$\delta_{min} = 0,43 \sqrt[4]{C_0/\lambda^3}, \quad (13b)$$

$$\Delta f_{opt} = \sqrt{C_0 \lambda}. \quad (13c)$$

¹¹ O. SCHERZER, J. Appl. Phys. **20**, 20 [1949].

In den Abb. 4 a – c sind diese Größen in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung gestrichelt aufgetragen. Die nach den Scherzerschen Formeln (13) erhaltenen Werte stimmen befriedigend mit den berechneten Werten für den Punkt des maximalen Kontrastes (ausgezogen) überein. Als „Auflösungsvermögen“ δ_{min} wurde der Abstand r' vom Mittelpunkt gewählt, bei dem die Intensität durch 1 hindurchgeht (s. Abb. 2). Dies entspricht der Auflösungsdefinition selbstleuchtender Punkte, bei denen das Auflösungsvermögen durch den Abstand des 1. Minimums in der Airy-Verteilung definiert ist.

Über die Bildintensität kann die einfache geometrische Theorie des Auflösungsvermögens keine Aussagen machen. Dies gelingt nur durch Einsetzen hinreichend genauer Werte von $f(\vartheta)$ in (10). Die Abhängigkeit der maximalen Intensitätserniedrigung $-\Delta I/I_0$ vom Öffnungsfehler und der Strahlspannung ist in Abb. 4 d aufgetragen. Es ergibt sich das auf den ersten Blick paradoxe Resultat, daß die Intensitätserniedrigung mit wachsender Beschleunigungsspannung zunimmt. Man muß aber beachten, daß die Bilder im Durchmesser entsprechend kleiner werden (s. Abnahme von δ_{min} in Abb. 4 b). Dadurch nimmt das Integral (12) wie zu erwarten mit wachsendem U ab. Weiter unten wird gezeigt, daß der Flächenkontrast und der Beugungskontrast bei Zweistrahlinterferenzen in der Tat mit wachsendem U abnimmt (Abb. 13). In der Praxis ist auch noch zu berücksichtigen, daß zwar für 100 kV Kondensor-Objektiv-Einfeldlinsen mit $C_0 \approx 0,5$ mm realisierbar sind, dagegen nicht für höhere Strahlspannungen (s. RUSKA¹², Tabelle II).

Es sei erwähnt, daß im Optimalfokus der Einfluß der Atomstreuamplitude – bis auf ihren Absolutbetrag – gering ist. Für ein Pt-Atom bei $U = 100$ kV und $C_0 = 0,5$ mm wurden z. B. folgende Fälle durchgerechnet: a) vollständige komplexe Atomstreuamplitude $f(\vartheta)$, b) reelle Streuamplitude mit $|f(\vartheta)|$ aber $\eta(\vartheta) = 0$ und c) konstante mittlere Atomstreuamplitude innerhalb des Streukegels mit $\vartheta \leq \alpha$. Die Halbwertsbreiten (s. Abb. 3 a – c) blieben praktisch unverändert. Die Maximalintensitäten bei $r' = 0$ betragen: a) $-\Delta I/I_0 = 23,8\%$, b) 23,1%, c) 23,0%. Es hat also keinen starken Einfluß auf den Optimalfokus, ob man komplex oder reell rechnet, bzw. den schwachen Abfall in $f(\vartheta)$ mit wachsendem ϑ durch

¹² E. RUSKA, Adv. Optical and Electron Microscopy, Vol. I, 116, London 1966.

einen konstanten Mittelwert ersetzt. Von entscheidender Bedeutung ist aber der Absolutbetrag von $f(\vartheta)$. Atomstreuamplituden nach IBERS-VAINSSTEIN und IBERS-HOERNI¹³ liefern entschieden zu große Werte (s. Abb. 14 in³). Weiter unten wird gezeigt, daß der hier benutzte Wert von $|f(0)| \sin \eta(0)$ aus WKB-Rechnungen nur ca. 20% größer ist als der aus experimentellen Streukontrastwerten erhaltene Wert für Platin.

Abb. 5 zeigt die maximale Intensitätserniedrigung im Optimalfokus für Pt sowie Ge und C bei $U = 100$ kV. Diese bleibt bei Kohlenstoff auch bei dem niedrigsten Öffnungsfehler von 0,5 mm unterhalb 5%, der allgemein angenommenen Erkennbarkeitsgrenze. Die optimale Defokussierung verschiebt sich nur geringfügig, z. B. $\Delta f = 490$ nm bei Pt, 500 nm bei Ge und 520 nm bei C. Die optimalen Aperturen betragen $1,42 \cdot 10^{-2}$, $1,43 \cdot 10^{-2}$ bzw. $1,49 \cdot 10^{-2}$. Die Form der Kurven gleicher Intensitätsabnahme

in Abb. 3 bleibt bis auf diese Verschiebungen erhalten. Die Ursache dieser Verschiebung des Optimalfokus ist in der unterschiedlichen Phasendrehung zu sehen. Sie beträgt bei 100 kV:

$$\begin{array}{ll} \text{für} & \text{Pt: } \eta(0) = 0,287, \\ \text{für} & \text{Ge: } \eta(0) = 0,166, \\ \text{für} & \text{C: } \eta(0) = 0,046 \text{ rad.} \end{array}$$

2. Abbildung von Atomgruppen

Zur Berechnung des Phasenkontrastes von ebenen Atomgruppen kann das Integral (7) am einfachsten ausgewertet werden, wenn die Anordnung der n Atome in bezug auf ein Zentrum spiegelsymmetrisch ist. [Zu jedem Atom mit den Koordinaten $r_k = (x_k, y_k)$ gibt es auch ein Atom mit $\bar{r}_k = (-x_k, -y_k)$.] Die Summe über die Exponentialfunktionen in (14 a) läßt sich dann in eine Summe von Cosinus-Funktionen umformen.

$$B(r') = \frac{A_0}{\lambda} \int_{-\pi}^{+\pi} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) \left\{ \sum_{i=1}^n \exp[2\pi i(\mathbf{k} - \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}_i] \right\} e^{i\Delta} \exp \left[\frac{2\pi i}{\lambda} r' \vartheta \cos \chi \right] \vartheta d\vartheta d\chi \quad (14 \text{ a})$$

$$= \frac{2A_0}{\lambda} \int_0^{\pi} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) e^{i\Delta} \left\{ 1 + 2 \sum_{k=1}^{(n-1)/2} \cos \left(\frac{2\pi}{\lambda} (x_k \cos \chi + y_k \sin \chi) \right) \right\} \cos \left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \vartheta \cos \chi \right) d\vartheta d\chi \quad (14 \text{ b})$$

$$= \frac{2A_0}{\lambda} \int_0^{\alpha} f(\vartheta) e^{i\Delta} G(r', \vartheta) \vartheta d\vartheta. \quad (14 \text{ c})$$

Der Wert 1 oder 0 in der geschweiften Klammer von (14 b) ist einzusetzen, je nachdem ob ein Zentralatom $\mathbf{r} = (0, 0)$ vorhanden ist oder nicht. Die Integration über den Azimutalwinkel χ in der Beugungsebene läßt sich nicht mehr elementar durchführen. Bei der Berechnung wurde die Integration über χ in Form der Matrix $G(r', \vartheta)$ gespeichert (14 c). Für $r' = 0$ liefert diese Funktion die Gitteramplitude der Atomanordnung gemittelt über ein Ringelement $2\pi \vartheta d\vartheta$ der Beugungsebene (Abb. 6). Bei $\vartheta_{\text{BR}} = 1,55 \cdot 10^{-2}$ rad liegt das Beugungsmaximum für die „Bragg-Reflexion“ an dichtest gepackten Gittergeraden mit $d = 2,39$ Å.

a) Abbildung zweier benachbarter Atome

Abb. 7 zeigt an Hand einiger Beispiele, wie sich der Kontrast zweier Platinatome im dichtesten Ab-

stand von $2r_0 = 2,76$ Å bei einem Öffnungsfehler $C_0 = 0,5$ mm verändert, wenn die optimale Apertur $\alpha = 1,4 \cdot 10^{-2}$ rad eingehalten und die Defokussierung verändert wird. Im Optimalfokus $\Delta f = 48$ nm beobachtet man in 1. Näherung eine Überlagerung der einzelnen Atombilder von Abb. 3 a. Geringe Abweichungen vom Optimalfokus rufen jedoch schon durchgreifende Veränderungen des Bildes hervor.

Bei den größeren Öffnungsfehlern ($C_0 = 2$ und 4 mm) (Abb. 8, links) wird jedoch im Optimalfokus das Atompaar nicht aufgelöst. Eine Abtastung des auch in der Abb. 3 überstrichenen Bereiches bis zu Aperturen von $3 \cdot 10^{-2}$ zeigte jedoch, daß es bei größeren Aperturen optimale Auflösung gibt (Abb. 8, rechts), bei der eine Trennung mit einer Schärfe möglich ist, die auf Grund des klassischen theoretischen Auflösungsvermögens nicht zu erwarten ist. Dies erfolgt insbesondere durch eine günstige Phasendrehung zwischen $\vartheta = 1 \cdot 10^{-2}$ und $2 \cdot 10^{-2}$, wo $G(0, \vartheta)$ (Abb. 5) negativ ist, d. h. eine zusätzliche

¹³ J. A. IBERS u. B. V. VAINSSTEIN, Intern. Tables of X-Ray Crystallography, Vol. III, 218, Kynoch Press, Birmingham 1962. — J. A. IBERS u. J. A. HOERNI, ebd., Vol. III, 222.

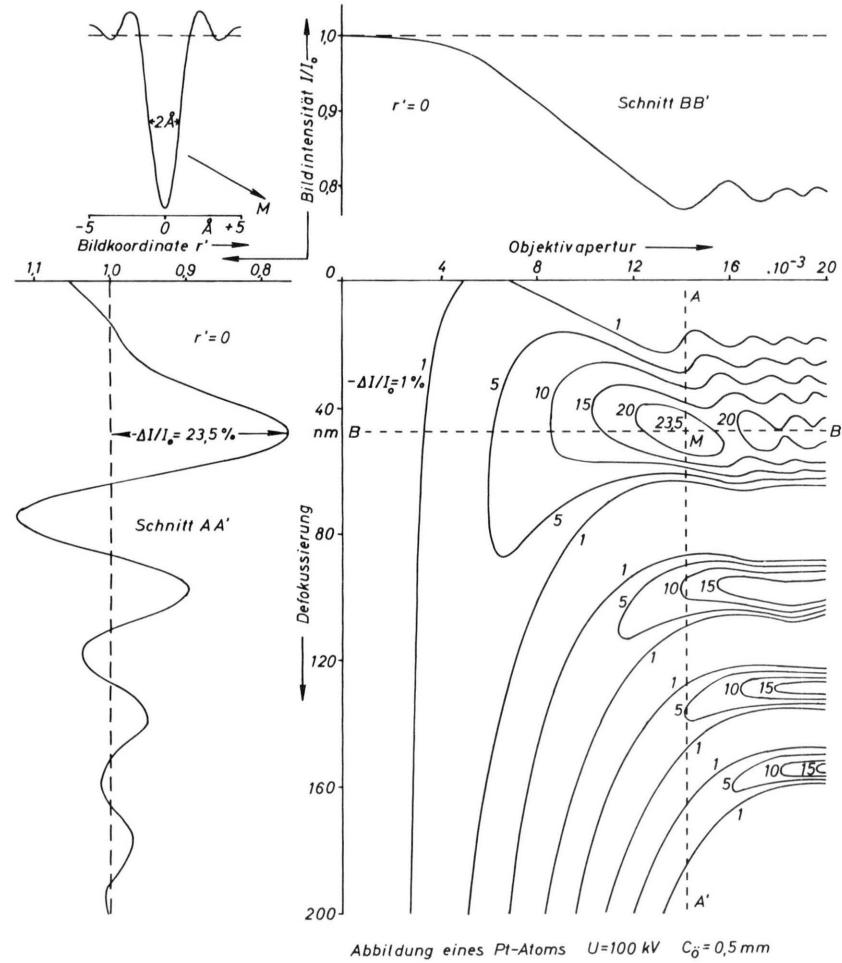


Abb. 3 a.

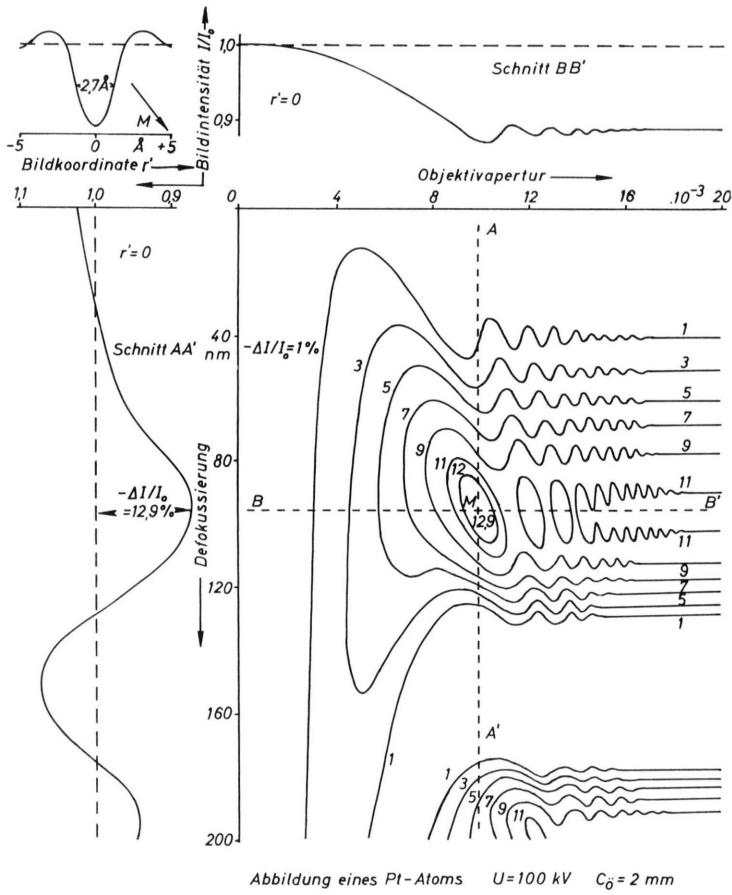


Abb. 3 b.

Abb. 3. Linien gleicher Intensitätsänderung $-\Delta I/I_0$ im Zentrum des Bildes eines Pt-Atoms bei Variation der Objektivapertur α und der Defokussierung Δf (Unterfokussierung). Die Schnitte AA' und BB' geben die Variation der Bildintensität bei α_{opt} bzw. $\Delta f_{\text{opt}} = \text{const}$ durch den Optimalfokus mit größtem Kontrast wieder. Oben links ist das gesamte „Bild“ des Pt-Atoms für den Optimalfokus M eingezeichnet. Strahlspannung $U=100 \text{ kV}$, Öffnungsfehler: a) 0,5 mm, b) 2 mm und c) 4 mm.

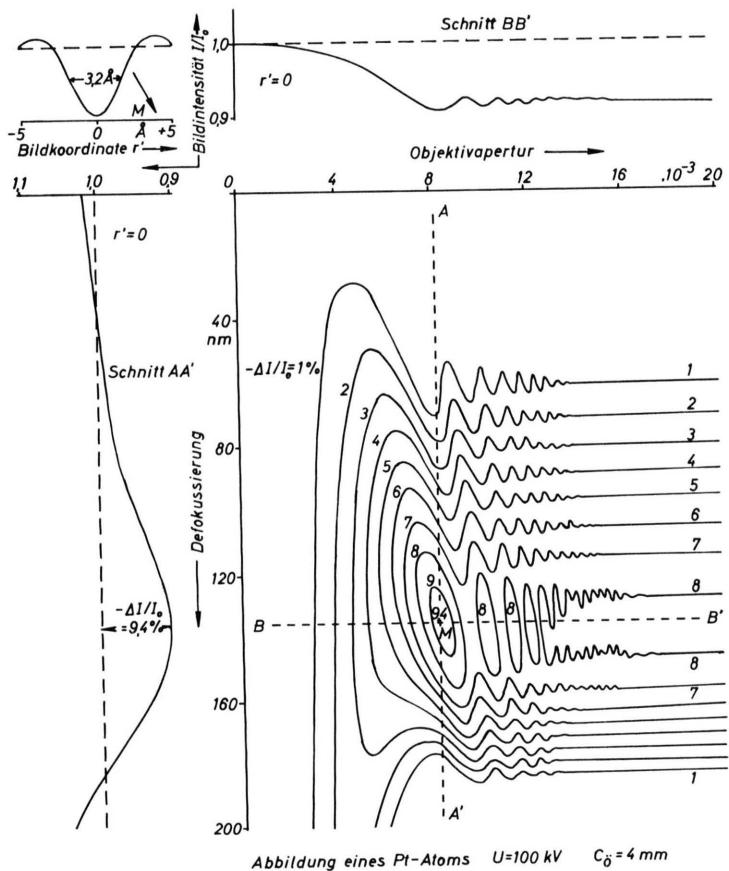


Abb. 5. Maximale Intensitätserniedrigung $-\Delta I/I_0$ eines Pt-, Ge- und C-Atoms bei 100 kV in Abhängigkeit vom Öffnungsfehler.

Abb. 6. Gitteramplitude der angeführten Atomanordnungen gemittelt über ein Ringelement $2\pi \sin \theta d\theta$ der Beugungsebene im Abhängigkeit vom Streuwinkel.

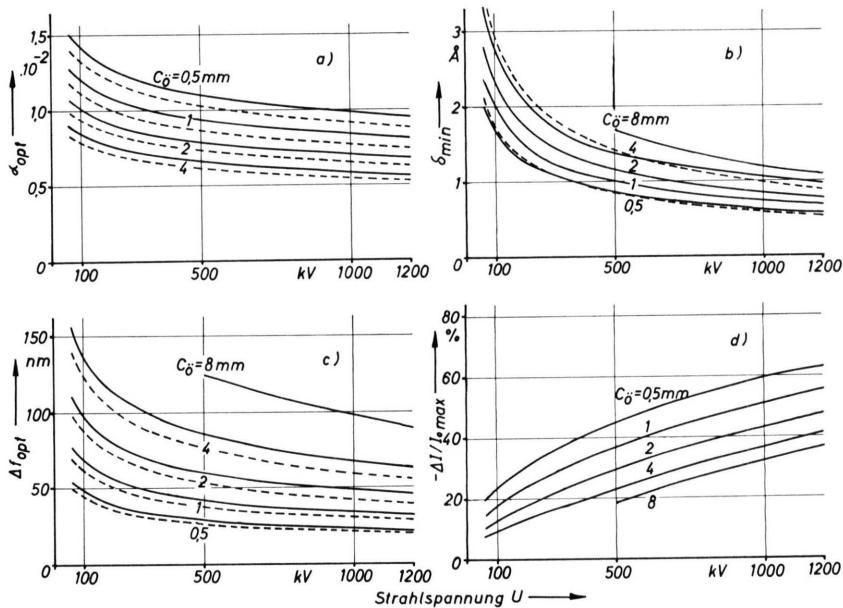


Abb. 4.

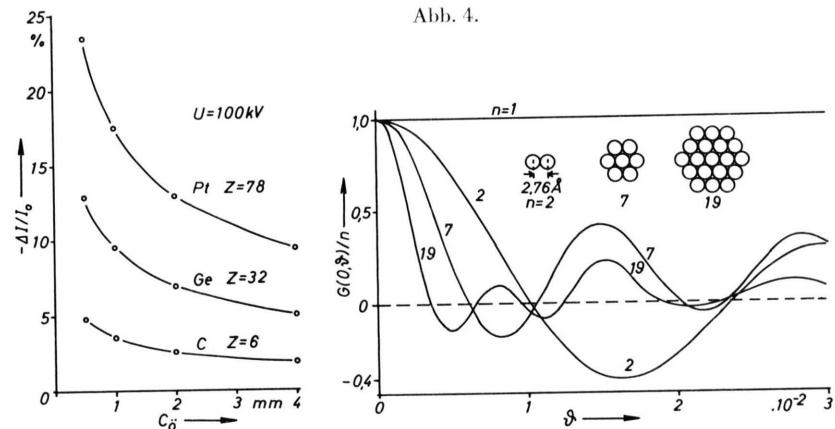
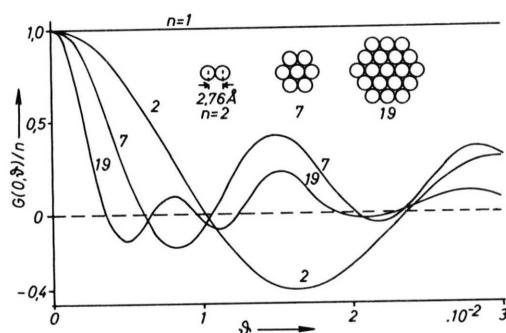


Abb. 4. Strahlspannungsabhängigkeit a) der optimalen Apertur α_{opt} und c) der optimalen Defokussierung Δf_{opt} mit d) der größten Intensitätsänderung im Zentrum des Atombildes bei $r'=0$. b) „Auflösungsvermögen“ des Atombildes (Definition s. Abb. 2). Die gestrichelten Kurven sind die Ergebnisse der Scherzerschen Formeln (13).

Abb. 6.



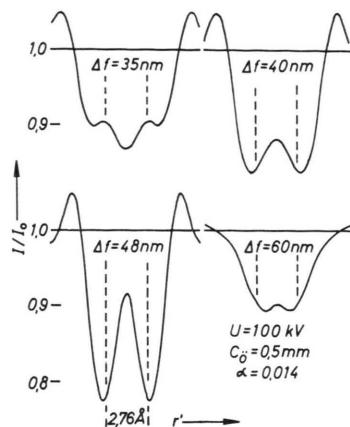


Abb. 7. „Bilder“ von 2 Pt-Atomen im dichtesten Abstand $2 r_0 = 2,76 \text{ \AA}$ bei $U = 100 \text{ kV}$, $C_0 = 0,05 \text{ mm}$ und Defokussierungen $\Delta f = 35, 40, 48$ und 60 nm . Die Objektivapertur beträgt $\alpha = 0,014$. Der Optimalfokus für ein Einzelatom liegt bei $\Delta f_{\text{opt}} = 48 \text{ nm}$ und $\alpha_{\text{opt}} = 0,014 \text{ rad}$.

Phasenschiebung von 180° aufweist. Bei $C_0 = 0,5$ und 1 mm wurde diese optimale Auflösung nicht gefunden, weil offenbar die Aperturen des Optimalfokus schon hoch genug liegen. (Diese Auflösung bei größeren Aperturen ist sogar bei $C_0 = 4 \text{ mm}$ besser als bei 2 mm .)

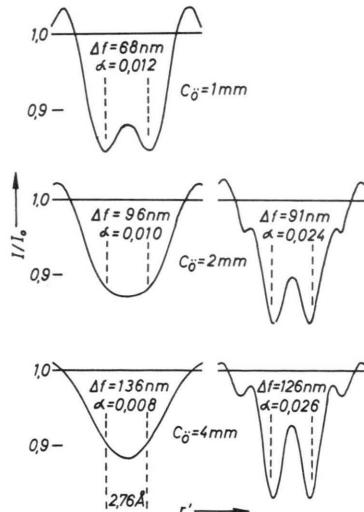


Abb. 8. „Bilder“ von 2 Pt-Atomen im dichtesten Abstand $2 r_0 = 2,76 \text{ \AA}$ bei $U = 100 \text{ kV}$ und $C_0 = 1, 2$ und 4 mm , links im Optimalfokus des entsprechenden Öffnungsfehlers, rechts im Optimum der Punktauflösung (tiefste Einstellung zwischen den Gipfelintensitäten).

Hieraus folgt, daß es den scheinbaren Unterschied zwischen Punkt- und Netzebenen-Auflösungsvermögen nicht gibt (s. a. Abb. 12), sondern daß ein kontinuierlicher Übergang erfolgt. Bei der Abbildung

von Netzebenen handelt es sich um Zweistrahl- (bzw. Mehrstrahl-) Interferenzen, bei denen die Streuung auf einzelne Bragg-Winkel konzentriert ist. Eine Phasenschiebung Δ nach (6) ruft nur eine Verschiebung der Streifenlage hervor. Bei der Abbildung eines Atompaars liegen auch „Zweistrahl-Interferenzen“ vor, wobei allerdings die Beugungsmaxima sich über einen größeren Winkelbereich erstrecken, innerhalb dem die Phasenschiebung Δ stark variiert. Dadurch treten stark destruktive Phasenschiebungen auf und nur unter günstigen Bedingungen können die in Abb. 8 rechts gezeigten Fälle auftreten.

b) Dichteste Packung von Atomen

Es wurden ebene Scheibchen von 7 und 19 Atomen durchgerechnet (s. Skizzen in Abb. 6). Der Kontrast des Zentralatoms wird durch die Nachbaratome verstärkt. Zur Auflösung der Atomabstände muß natürlich der Beugungsreflex von den dichtest gepackten Atomzeilen bei $\vartheta_{\text{BR}} = 1,55 \cdot 10^{-2} \text{ rad}$ durch die Aperaturblende gelassen werden. Für $\alpha = 2 \cdot 10^{-2}$ zeigt Abb. 9 a als gestrichelte Linie die Abhängigkeit der Intensitätsabnahme von der Defokussierung für ein Einzelatom. Während der Schnitt AA' in Abb. 3 a im Optimalfokus erfolgte, liegt dieser entsprechende Schnitt bei der größeren Apertur von $2 \cdot 10^{-2}$. Diese Kurve für das Einzelatom ist dreifach überhöht ge-

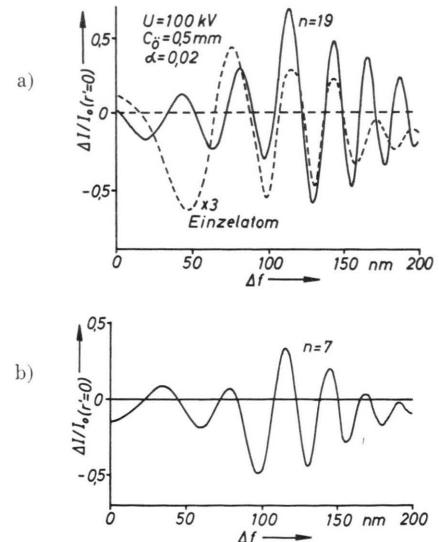


Abb. 9. Schnitt AA' (s. Abb. 3) bei $U = 100 \text{ kV}$, $C_0 = 0,5 \text{ mm}$, $\alpha = 0,02 \text{ rad}$ für: a) ein Einzelatom (gestrichelte Linie, 3-fach überhöht) und für das Zentralatom in einer Scheibe mit 19 Atomen (s. Abb. 6); b) für das Zentralatom in einer Scheibe mit 7 Atomen.

zeichnet und hat ihre maximale Intensitätserniedrigung bei der optimalen Defokussierung $\Delta f = 48 \text{ nm}$. Das Zentralatom in einem Scheibchen von 19 Atomen (ausgezogene Linie) erreicht einen dreimal größeren Maximalwert bei einer wesentlich größeren Defokussierung $\Delta f = 130 \text{ nm}$. Dicht daneben bei $\Delta f = 115 \text{ nm}$ schwingt die Intensität am höchsten über den Wert 1 hinaus. Für diese beiden Defokussierungen ist die Intensität als Funktion der Bildkoordinate r' in Abb. 10 aufgetragen. Die Intensität der Nachbaratome fällt nach außen ab. Das kleinere Scheibchen mit 7 Atomen zeigt eine geringere Intensitätserniedrigung des Zentralatoms (Abb. 9 b). Das Maximum der Intensitätserniedrigung liegt bei einer geringeren Defokussierung $\Delta f = 95 \text{ nm}$.

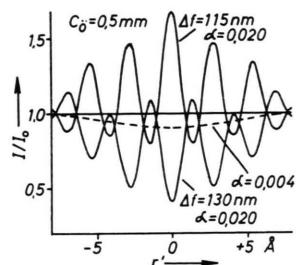


Abb. 10. „Bild“ eines Atomscheibchens mit 19 Atomen für $\Delta f = 115 \text{ nm}$ und 130 nm ($U = 100 \text{ kV}$, $\alpha = 0,020 \text{ rad}$, $C_0 = 0,5 \text{ mm}$). Bei Verringerung der Apertur auf $\alpha = 0,004$ keine Auflösung der Atomabstände, sondern nur Phasenkontrastbild des Scheibchens (gestrichelte Linie).

Wenn man die Aperturblende sehr klein wählt ($\alpha = 4 \cdot 10^{-3}$, $20 \mu\text{m}$ -Blende im Elmiskop), so daß der Beugungsreflex nicht hindurchgelassen wird, wird — wie zu erwarten — die Atomstruktur nicht aufgelöst und man findet ein schwaches Phasenkontrastbild der Atomscheibe (gestrichelte Linie in Abb.

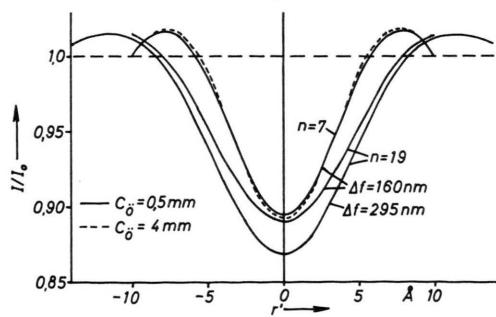


Abb. 11. Optimaler Phasenkontrast eines Scheibchens mit $n=7$ Atomen bei $C_0 = 0,5 \text{ mm}$ und $C_0 = 4 \text{ mm}$ (gestrichelt) und einer kleinen Apertur von $\alpha = 0,004$, $\Delta f = 160 \text{ nm}$. Phasenkontrast eines Scheibchens mit $n=19$ Atomen bei der gleichen Defokussierung und bei einer höheren Defokussierung, bei der für dieses Scheibchen der optimale Phasenkontrast auftritt.

10). Unter diesen Beobachtungsbedingungen liegt das Optimum des Phasenkontrastes jedoch bei $\Delta f = 295 \text{ nm}$ (Abb. 11). Die entsprechende Defokussierung für ein Scheibchen mit 7 Atomen beträgt $\Delta f = 160 \text{ nm}$. Der Öffnungsfehler hat unter diesen Bedingungen nur einen geringen Einfluß, da der entsprechende Term in der Phasenschiebung Δ (6) proportional ϑ^4 ansteigt. Eine Vergrößerung der Apertur über $8 \cdot 10^{-3}$ hinaus hat ebenfalls keinen starken Einfluß. Ein derartiges Ergebnis wurde auch bereits früher¹ bei der Berechnung phasenschiebender Scheibchen gefunden. Danach sollte ein Scheibchen aus 19 oder 7 Atomen ohne weiteres abbildbar sein. Die Intensitätserniedrigungen bei einer optimalen Defokussierung liegen in der Größenordnung 10% und die Halbwertsbreiten der Scheibchenbilder betragen 9,4 bzw. 6,8 Å.

Wenn bei einem größeren Öffnungsfehler von $C_0 = 4 \text{ mm}$ die Apertur weiter geöffnet wird ($\alpha = 0,026$), so ist nicht nur bereits ein Atompaa (Abb. 8, unten rechts) auflösbar, sondern auch die Einzelatome der Scheibe aus 19 Atomen (Abb. 12).

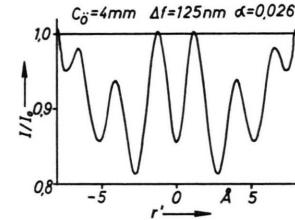


Abb. 12. „Bild“ eines Atomscheibchens mit 19 Atomen für $C_0 = 4 \text{ mm}$, $\Delta f = 125 \text{ nm}$, $\alpha = 0,026 \text{ rad}$ und $U = 100 \text{ kV}$.

c) Dichtest gepackte Monolage

Bei einer Erhöhung der Zahl der Atome wird die Breite des Null-Reflexes und des Bragg-Reflexes an den dichtest gepackten Atomzeilen schmäler. Bei sehr vielen Atomen ist der Reflex so schmal, daß für ihn eine einheitliche Phasenschiebung bei dem betreffenden Bragg-Winkel ϑ_{BR} angesetzt werden kann. In der Praxis wird dann die Reflexbreite durch die Bestrahlungsapertur begrenzt, die aber zunächst außer Betracht gelassen wird.

Für die Reflexe benötigt man daher die Gesamtamplitude. Die Berechnung ist einfacher, wenn man eine quadratische Atomanordnung mit n Atomen in x - und m Atomen in y -Richtung betrachtet. Die „Gitteramplitude“ beträgt dann

$$F(\vartheta) = f(\vartheta) \frac{\sin(n \pi a \xi / \lambda)}{\sin(\pi a \xi / \lambda)} \cdot \frac{\sin(m \pi a \eta / \lambda)}{\sin(\pi a \eta / \lambda)} \quad (15)$$

(a = Atomabstand; ξ, η Winkelkoordinaten in der Beugungsebene, $\xi^2 + \eta^2 = \vartheta^2$). Für einen Reflex ergibt sich daher folgender Beitrag zur Bildamplitude, wenn man nach einer Substitution die Beziehung

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\sin u}{u} du = \pi \quad \text{ausnutzt:}$$

$$\frac{A_0}{\lambda} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} F(\vartheta) d\xi d\eta = A_0 \frac{f(\vartheta) \lambda}{a^2}. \quad (16)$$

Das Ergebnis ist, wie zu erwarten, von n und m unabhängig. $F = a^2$ kann man als Fläche der „Elementarzelle“ deuten und im Falle der hexagonalen Anordnung durch $F = 2 \sqrt{3} r_0^2$ ersetzen.

Die gesuchte Bildamplitude $B(r')$ erhält man durch phasenrichtige Summation über alle k Reflexe, welche durch die Aperturlende hindurchgelassen werden:

$$B(r') = \frac{A_0 \lambda}{F} \left\{ f(0) + \sum_{i=1}^k f(\vartheta_i) e^{i\vartheta} \cdot \exp\left(-\frac{2\pi i}{\lambda} r' \vartheta_i \cos \chi_i\right) \right\}. \quad (17)$$

Dabei kann für den Nullreflex die Phasenschiebung zu Null angesetzt werden. Bei der Variation der Bildkoordinate r' durchläuft der Exponent das Phasenintervall 0 bis 2π , wenn sich r' um $\lambda/\vartheta_i \cos \chi_i = d_i/\cos \chi_i$ ändert. Man erhält die Abbildung der entsprechenden Netzebene. Bei Defokussierung ruft die Veränderung von ϑ eine zusätzliche Phasenschiebung hervor. Das Streifenbild der entsprechenden Netzebene verschiebt sich. Diese Erscheinung ist hinreichend bei der Abbildung von Netzebenen bekannt.

Die maximale Amplitude bei Zweistrahlinterferenzen (Primärstrahl und ein Reflex) beträgt $A_0 \lambda f(\vartheta)/F$. Die hierdurch hervorgerufene Intensitätsänderung beträgt in erster Näherung

$$I = I_0 \left(1 \pm \frac{2\lambda}{F} f(\vartheta) \right) = I_0 \pm \Delta I_d. \quad (18)$$

Die Größe ΔI_d ist in Abb. 13 in Abhängigkeit von der Beschleunigungsspannung aufgetragen und nimmt mit wachsendem U ab. Desgleichen ist die Größe $\Delta I_0 = A_0 \lambda f(0)/F = A_0 \lambda |f(0)| \sin \eta(0)/F$ aufgetragen, welche den Streukontrast der monoatomaren Schicht liefert. Dieser Wert ist mit experimentellen x_a -Werten³ direkt zu vergleichen. Es gilt für den Fall der einkristallinen Schicht für die Transmission $T = \exp(-x/x_a)$. Die Massendicke

der monoatomaren Platinschicht beträgt $x = A/N_L \cdot F$. Die so berechneten Intensitätserniedrigungen ΔI_0 liegen um ca. 20% tiefer als die theoretischen Werte. In Anbetracht der relativ ungenauen Kenntnisse über den wahren Potentialverlauf ist die Übereinstimmung befriedigend.

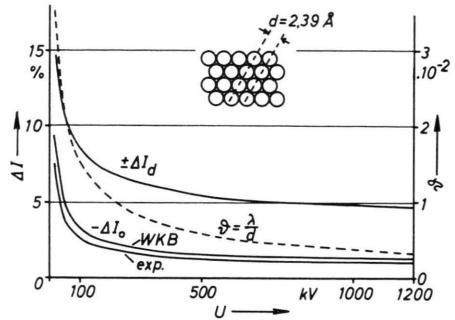


Abb. 13. Intensitätserniedrigung $-\Delta I_0$ einer monoatomaren Pt-Schicht durch Streukontrast nach WKB-Rechnungen und experimentellen Ergebnissen als Funktion der Strahlspannung U . Modulation des „Netzebenenbildes“ mit $d=2,39 \text{ \AA}$ bei Zweistrahlinterferenzen $\pm \Delta I_d$. Gestrichelte Linie: Lage des Beugungsreflexes an den Atomzeilen mit $d=2,39 \text{ \AA}$.

Bei zum Primärstrahl konzentrisch liegender Aperturlende gehen alle 6 Reflexe an den dichtest gepackten Gittergeraden hindurch. Wenn man die Bildintensität in horizontaler Richtung (s. Nebenskizze in Abb. 6) berechnen will, so wird (17) zu

$$B(r') = \frac{A_0 \lambda}{F} \left\{ f(0) + f(\vartheta) e^{i\vartheta} \left(2 + 4 \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} r' \vartheta \cdot 0,866\right) \right) \right\}. \quad (19)$$

Bei 6 Reflexen ist die Amplitude schon nicht mehr gegenüber A_0^2 zu vernachlässigen und es muß die volle Auswertung analog zu (10) erfolgen. Abb. 14 zeigt die daraus resultierende Intensitätsvariation einer Monolage Platinatome. Es wurde hierbei zusätzlich der Fall behandelt, daß im Zentrum der Monolage bei $r'=0$ eine Leerstelle vorhanden ist. Bei der Apertur $\alpha=0,016$ gelangen die bei $\vartheta_{\text{BR}}=0,0155$ liegenden Reflexe durch die Blende. Der Einfluß der Leerstelle auf die Amplitude der Intensitätsvariation ist gering. Auch am Ort der Leerstelle erscheint nach wie vor das „Bild“ eines Atoms. Wenn aber die Apertur kleiner ist als der Beugungswinkel ϑ_{BR} (s. Kurve mit $\alpha=0,014$ in Abb. 14), so beobachtet man außerhalb des Zentrums nur den reinen Streukontrast von 3%, der durch den ersten Term in (19) hervorgerufen wird. Aber die Leerstelle hebt sich als heller Punkt stark hervor. Es sei bemerkt, daß bei der Rechnung so vorgegangen

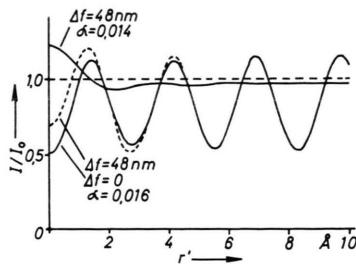


Abb. 14. „Bild“ einer monoatomaren Pt-Schicht bei $U=100$ kV, $C_0=0.5$ mm. Bei einer Apertur $\alpha=0.016$, welche die Reflexe an den Atomzeilen durchläßt, ergibt sich für $\Delta f=0$ die ausgezogene Linie. Bei $r'=0$ befindet sich eine Leerstelle in der dichtest gepackten Monolage. Bei $\Delta f=48$ nm, der optimalen Defokussierung für ein Einzelatom (gestrichelte Linie) ergibt sich eine geringere Intensitätserniedrigung für $r'=0$. Bei $\alpha=0.014$ wird der Beugungsreflex nicht hindurchgelassen. Man findet den Streukontrast der Monolage von 3% und bei $r'=0$ eine Intensitäts erhöhung (komplementäres Phasenkontrastbild wie dasjenige eines Einzelatoms).

wurde, daß eine komplette periodische Anordnung von Atompotentialen mit einem Einzelpotential entgegengesetzten Vorzeichens überlagert wurde. Dann stellt sich die Bildamplitude als Summe von (19) und der negativen Amplitude eines Einzelatoms dar. Danach bildet sich die Leerstelle mit entgegengesetztem Kontrast ab wie ein Einzelatom (s. Abb. 3 a). Eine Gitterrelaxation in der Nähe der Leerstelle wurde nicht berücksichtigt und würde auch keine grundlegenden Änderungen bewirken. Wenn in einer Schicht 7 bzw. 19 Leerstellen in ebener dichtest gepackter Anordnung kondensiert sind, sollte ein entgegengesetzter Phasenkontrast wie in Abb. 11 auftreten. Ein derartiger Phasenkontrast wäre auch in dickeren kristallinen Schichten zusätzlich zu dem Braggschen Kontrast infolge der Gitterverzerrung der Umgebung zu erwarten, bzw. eine derartige Leerstellenanordnung sollte bei Unterfokussierung auch dann als heller Punkt auftreten, wenn infolge der Kristallorientierung ($\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$) kein Braggscher Kontrast auftritt.

3. Zum Einfluß der Bestrahlungsapertur und der Energieverbreiterung

Am Beispiel der Netzebenenabbildung soll die Kontrastabnahme infolge endlicher Bestrahlungsapertur α_B und Energieverbreiterung des Elektronenstrahles $\Delta U/U$ diskutiert werden. Man kann die Bestrahlungsapertur messen, indem man z. B. die Brennebene des Objektivs mit der Zwischenlinse und einem Projektiv vergrößert abbildet (Feinbereichs-

beugung) und den Primärfeleck photometriert. Es ergibt sich dann näherungsweise eine Gaußsche Fehlerkurve mit α_B als halber Halbwertsbreite

$$I(\vartheta) = a \exp\{-\ln 2(\vartheta^2/\alpha_B^2)\}. \quad (20)$$

Da weiter unten die Verwaschung der Netzebenenbilder in r' -Richtung senkrecht zu den Streifen interessiert, ist die Funktion (20) in einer Richtung η des Beugungsbildes zu mitteln, die der Streifenrichtung entspricht. Die zu η senkrechte Winkelkoordinate sei ξ ($\eta^2 + \xi^2 = \vartheta^2$).

$$\int_{-\infty}^{+\infty} I(\xi^2 + \eta^2) d\eta = \frac{a \sqrt{\pi} \alpha_B}{\sqrt{\ln 2}} \exp\{-\ln 2(\xi^2/\alpha_B^2)\}. \quad (21)$$

Es ergibt sich also wieder eine Gaußsche Fehlerkurve mit der Halbwertsbreite α_B . Die Energieverbreiterung gehorcht einer Maxwell-Verteilung. Durch den Boersch-Effekt treten Abweichungen auf¹⁴. Es ist jedoch eine hinreichend gute Näherung, wenn man auch die Energieverteilung durch eine Gaußsche Fehlerkurve approximiert. Da α_B der halben Halbwertsbreite der Winkelverteilung entspricht, soll $\Delta U_{1/2}/U$ die entsprechende Größe der Energieverteilung bedeuten.

Wir betrachten den Zweistrahlfall mit axialer Beleuchtung des Primärstrahles und einem Beugungsreflex. Die Bildintensität kann dann in der Form

$$\frac{I}{I_0} = 1 - \frac{\Delta I_0}{I_0} - \frac{\Delta I_d}{I_0} \cos\left(\frac{2\pi r'}{d} + \Delta\Phi\right) \\ = 1 - \frac{\Delta I_0}{I_0} - \frac{\Delta I_d}{I_0} \cos\left(\frac{2\pi r'}{d} + \frac{2\pi \Delta r'}{d}\right) \quad (22)$$

dargestellt werden. Zur Bedeutung von ΔI_0 und ΔI_d siehe Abb. 13. Eine Phasenschiebung $\Delta\Phi$ zwischen Primär- und abgebeugtem Strahl ruft also eine Streifenverschiebung $\Delta r' = (d/2\pi) \Delta\Phi$ hervor. Setzt man die Phasenschiebung $\Phi = \Delta$, so erhält man durch Bildung des totalen Differentials von (6) den Beitrag durch eine Veränderung des Streuwinkels $\Delta\vartheta$ und durch eine Brennweitenänderung $d(\Delta f) = \Delta f'$ infolge des chromatischen Bildfehlers, für den die Beziehung

$$\Delta f' = C_F \cdot \frac{\Delta U}{U} \text{ gilt.} \quad (23)$$

$$\Delta\Phi = \frac{2\pi}{\lambda} (C_0 \vartheta^3 - \Delta f \vartheta) \Delta\vartheta - \frac{\pi}{\lambda} \vartheta^2 d(\Delta f) \quad (24) \\ = \frac{2\pi}{\lambda} (C_0 \vartheta^3 - \Delta f \vartheta) \Delta\vartheta + \frac{\pi}{\lambda} \vartheta^2 C_F \frac{\Delta U}{U}.$$

¹⁴ H. BOERSCH, Z. Phys. 139, 115 [1954].

Wenn $\Delta\vartheta$ und ΔU nach einer Gaußschen Fehlerkurve verteilt sind, so ruft diese eine Verwaschung $\Delta r'$ eines Bildpunktes hervor. Die doppelte Faltung mit 2 Gaußschen Fehlerkurven der Halbwertsbreiten x_1 und x_2 ruft wieder eine Gaußsche Fehlerkurve mit der Breite $x_3 = \sqrt{x_1^2 + x_2^2}$ hervor. Mit (22) und (24) beträgt also die Halbwertsbreite der Bildverzerrung

$$\Delta r'_{1/2} = d \sqrt{\left(\frac{1}{\lambda} (C_\delta \vartheta^3 - \Delta f \vartheta) \alpha_B\right)^2 + \left(\frac{\vartheta^2 C_F}{2 \lambda} \frac{\Delta U_{1/2}}{U}\right)^2}, \quad (25)$$

wenn man für die Halbwertsbreite $\Delta\vartheta_{1/2} = \alpha_B$ einsetzt.

Anwendung der Faltung auf die Intensitätsverteilung (22) führt zu dem Faltungsintegral

$$\begin{aligned} \frac{I}{I_0} &= \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} (I/I_0) \exp\{-\ln 2 (r'/\Delta r'_{1/2})^2\} dr'}{\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\{-\ln 2 (r'/\Delta r'_{1/2})^2\} dr'} \quad (26) \\ &= 1 - \frac{\Delta I_0}{I_0} - \frac{\Delta I_d}{I_0} \cos\left(\frac{2\pi r'}{d}\right) g(\Delta r'_{1/2}) \end{aligned}$$

mit $g(\Delta r'_{1/2}) = \exp(-\frac{1}{4} y^2) D_0(y);$
 $y = \frac{\pi \sqrt{2}}{\sqrt{\ln 2}} \frac{\Delta r'_{1/2}}{d}.$ (27)

Der Faktor g gibt die Amplitudenerniedrigung durch endliche Bestrahlungssapertur und Energieverbreiterung an und ist in Abb. 15 aufgetragen. $D_0(y)$ in (27) ist die Funktion des parabolischen Zylinders (tabelliert in Jahnke-Emde-Lösch: Tafeln höherer Funktionen).

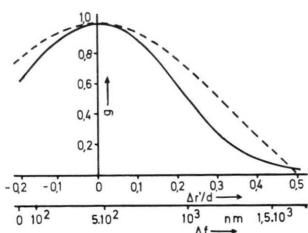


Abb. 15. Reduktionsfaktor g für die Intensitätsvariation bei der Abbildung von Zweistrahlinterferenzen als Funktion von $\Delta r'_{1/2}/d$. Unterer Abszissenmaßstab als Funktion der Defokussierung bei $C_\delta = 0.5$ mm, $d = 2.39$ Å, $U = 100$ kV und $\alpha_B = 10^{-4}$ rad. Ausgezogene Kurve: $\exp(-y^2/4) D_0(y)$ mit $y = 5.336 \Delta r'_{1/2}/d$ und gestrichelte Kurve: $\sin x/x$ mit $x = 2\pi \Delta r'_{1/2}/d$.

Es sei erwähnt, daß DOWELL¹⁵ eine einfachere Verteilung benutzt, die innerhalb des Intervalls $-\alpha_B \leq \Delta\vartheta \leq +\alpha_B$ konstant ist und außerhalb

¹⁵ W. C. T. DOWELL, Optik 20, 535 [1963].

Null. Dann lautet die Funktion

$$g(\Delta r'_{1/2}) = \frac{\sin x}{x}; \quad x = 2\pi \frac{\Delta r'_{1/2}}{d}, \quad (28)$$

welche in Abb. 15 als gestrichelte Linie aufgetragen ist. Es sollen einige Zahlenbeispiele für die Abbildung der Netzgeraden mit $d = 2.39$ Å, $\vartheta_{BR} = 1.55 \cdot 10^{-2}$ diskutiert werden. Zunächst werde der chromatische Fehler außer Betracht gelassen und nur die endliche Bestrahlungssapertur berücksichtigt. Nimmt man $C_\delta = 2$ mm und $\alpha_B = 10^{-4}$ an, so zeigt der untere Abszissenmaßstab in Abb. 15 die Defokussierung an. Der Term mit dem Öffnungsfehler C_δ ruft eine Verschiebung des Maßstabes hervor. Bei den oben gerechneten Defokussierungen bis 200 nm liegt also nur eine geringe Schwächung $g = 0.6 - 0.8$ vor. [Die Defokussierung, bei der $g = 1$ wird, ist dadurch ausgezeichnet, daß bei ihr die Wellenaberrationskurve (6) bei dem betreffenden Beugungswinkel ϑ_{BR} eine horizontale Tangente besitzt.] Bei $\alpha_B = 10^{-4}$ ist die Bildintensität bei hohen Vergrößerungen jedoch schon sehr gering, wenn man nicht die Steigerung des Richtstrahlwertes mit einer Spitzenkathode ausnutzt. Bei der vollen Feinstrahlbeleuchtung mit zwei Kondensorlinsen werden leicht Bestrahlungssaperturen $\alpha_B \cong 10^{-3}$ erreicht. Dann wird der Maßstab von Δf in Abb. 15 um den Faktor 10 gestreckt und das Netzebenenbild verschwindet schon bei ca. $\Delta f = 100$ nm.

Um den Einfluß der Energieverbreiterung abzuschätzen, setzen wir für die Kondensor-Objektiv-Einfeldlinse $C_F \cong 2 C_\delta = 1$ mm und $\Delta U_{1/2}/U = 0.5 \cdot 10^{-5}$. Letzteres entspricht einer Gesamthalbwertsbreite $\Delta U = 1$ eV einer normalen Haarnadelkathode. Es resultiert dann $\Delta r'/d = 0.16$ und nach Abb. 15 eine Reduktion der Intensitätsmodulation um den Faktor $g = 0.7$. Bei den größeren Öffnungsfehlern wird C_F und C_δ von gleicher Größenordnung. Dann zerstört die Energieverbreiterung den Kontrast der hier diskutierten Netzebenenbilder völlig. Die Berechnungen gelten alle für axiale Beleuchtung. Bei schräger Beleuchtung, wenn Primär- und abgebeugter Strahl einen gleichen Winkel mit der optischen Achse des Objektivs einschließen, bestehen bekanntlich günstigere Bedingungen (s. DOWELL¹⁵).

Für die anderen oberen diskutierten Beispiele muß eine entsprechende Faltung numerisch durchgeführt werden, was einen sehr großen Aufwand bedeuten kann. Es sollen nur einige Gesichtspunkte zur Faltung der „Atombilder“ genannt werden. Der

Einfluß der Bestrahlungsapertur kann durch eine direkte Faltung mit einer Gaußschen Fehlerkurve der halben Halbwertsbreite $\Delta r'_{1/2} = \Delta f \alpha_B$ erfolgen. Da $d/\lambda \cong 1/\vartheta$, folgt dies unmittelbar aus (25). Für die Berücksichtigung der Energieverbreiterung kann man (23) ausnutzen und die Abnahme der Intensität $-\Delta I/I_0$ für $r' = 0$ erhalten, indem man die Schnitte AA' (Abb. 3 a – c, links) faltet. Mit obigen Daten

für $C_0 = 0,5$ mm folgt z. B. $\Delta f'_{1/2} = 5$ nm und eine Abnahme der Intensitätserniedrigung von 23,5 auf 21,7%. Die Veränderung in den Atombildern ist also geringfügiger als bei der Abbildung von Netzebenen.

Dem Rechenzentrum der Universität Münster danken wir für die Durchführung der Rechnungen auf einer IBM/360/50.

Zum dielektrischen Verhalten von Triglyzinsulfat im Bereich von 0,5 bis 4,5 GHz

G. LUTHER und H. E. MÜSER

Institut für Experimentalphysik II der Universität Saarbrücken

(Z. Naturforsch. 24 a, 389–392 [1969]; eingegangen am 23. Dezember 1968)

The complex permittivity of Triglycine Sulphate is measured from 0.5 to 4.5 kMc/s as a function of temperature. A dispersion is observed which is of a simple Debye relaxation rather than a resonance type. Thus the form of the relaxation differs from the Gaussian distribution of relaxation times found by HILL and ICHIKI. The relaxation frequency increases linearly with temperature above the Curie point. Above 0.5 kMc/s the real part of the permittivity undergoes a more and more pronounced minimum at the Curie point.

1. Einleitung

Über das dielektrische Verhalten von Triglyzinsulfat (TGS) im Bereich der Dezimeter- und Zentimeterwellen liegen einige Untersuchungen vor, von denen die Ergebnisse von LURIO und STERN¹ und HILL und ICHIKI^{2,3} die meiste Beachtung fanden. Nach HILL und ICHIKI soll die Dielektrizitätskonstante (DK) von TGS in diesem Gebiet ein Relaxationspektrum mit einer Gauß-Verteilung der Zeitkonstanten erfahren. Die bisherigen Arbeiten können jedoch nicht ganz ohne Bedenken hingenommen werden. So haben Lurio und Stern den Imaginärteil der gemessenen Impedanz direkt durch die Probengeometrie und den Realteil der DK ausgedrückt, was nur bei sehr kleinen Verlusten zulässig ist [vgl. Gl. (2)]; tatsächlich ist der Imaginärteil der Impedanz durch den Realteil des Dielektrizitätsmoduls, also des Reziproken der komplexen DK, bestimmt. In einer späteren Arbeit der Autoren über das dielektrische Verhalten von Bariumtitantanat⁴ finden sich die korrekten Beziehungen, jedoch wurden die Ergebnisse an TGS hierbei nicht weiter erwähnt. Hill

und Ichiki machen über die diesbezügliche Auswertung ihrer Ergebnisse keine näheren Angaben.

Bedenklich erscheint ferner, daß quaderförmige Proben als Abschluß einer Koaxialleitung verwendet wurden. Eigentlich kann nur eine Fläche, die von elektrischen und magnetischen Feldlinien aufgespannt wird, durch eine Impedanz charakterisiert werden⁵. Da eine exakte Berechnung der Feldverhältnisse aus den Maxwellschen Gleichungen wegen der komplizierten Geometrie am Leitungsabschluß praktisch kaum möglich sein dürfte und auch offenbar von den Autoren nicht durchgeführt worden ist, könnten hierdurch Fehler entstanden sein. Hill und Ichiki berücksichtigen dies offenbar durch Korrekturen für modes höherer Ordnung im Kristall, doch machen sie hierüber keine näheren Angaben.

Schließlich ist inzwischen bei einigen Substanzen, wie Seignettesalz^{6–9}, $\text{Ca}_2\text{Sr}(\text{C}_2\text{H}_5\text{COO})_6$ ¹⁰ und NaNO_2 ¹¹, die ebenfalls weit unterhalb der Ultrarot-

⁵ H. MEINKE, Theorie der Hochfrequenzschaltungen, Oldenbourg, München 1951, S. 247 ff.

⁶ W. JÄCKLE, Z. Angew. Phys. **12**, 148 [1960].

⁷ P. BÄUMLER, W. BLUM u. H. DEYDA, Z. Phys. **180**, 96 [1964].

⁸ H. DEYDA, Z. Naturforsch. **22 a**, 1139 [1967].

⁹ H. E. MÜSER u. J. POTTSTARST, Phys. Stat. Sol. **24**, 109 [1967].

¹⁰ E. NAKAMURA u. M. HOSOYA, J. Phys. Soc. Japan **23**, 844 [1967].

¹¹ I. HATTA, J. Phys. Soc. Japan **24**, 1043 [1968].

¹ A. LURIO u. E. STERN, J. Appl. Phys. **31**, 1125 [1960].

² R. M. HILL u. S. K. ICHIKI, Phys. Rev. **128**, 1140 [1962].

³ R. M. HILL u. S. K. ICHIKI, Phys. Rev. **132**, 1603 [1963].

⁴ E. STERN u. A. LURIO, Phys. Rev. **123**, 117 [1961].