

# Untersuchungen zum Gültigkeitsbereich der zweiten Näherung der Betheschen Theorie der Elektronenbeugung

B. HERZBERG

Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, Berlin-Dahlem, Germany \*

(Z. Naturforsch. 26 a, 1247—1253 [1971]; eingegangen am 18. Mai 1971)

The validity of the second BETHE approximation<sup>1</sup> (dynamical 2-beam theory using Bethe's potential with weak-beam corrections) was tested for various situations of systematic and accidental interactions. For this test the structure potential  $V_{002}$  of MgO was measured from the fine structure of the diffraction spot which one observes in a single crystal wedge experiment. In the Bethe potentials 119 weak reflections were taken into account; the electron accelerating voltage was 56—67 keV. Except in the neighbourhood of low-indexed zone axes, e. g. [110], the second Bethe approximation allowed to determine the structure potential  $V_{002}$  to be 6.90 V within an accuracy of about 2%. This was in good agreement with the result of GOODMAN and LEHMPFUHL<sup>2</sup>.

Vor Jahrzehnten benutzten BLACKMAN<sup>3</sup>, MCGILLAVRY<sup>4</sup>, HEIDENREICH<sup>5</sup> erstmals dynamische Effekte der Elektronenbeugung an Kristallen zur Bestimmung von Strukturpotentialen niedrig indizierter Reflexe (Fourier-Koeffizienten des Kristallpotentials). Inzwischen hat es sich gezeigt, daß für eine exakte Auswertung der Experimente die einfachste Näherung der Dynamischen Theorie von Bethe (der Zweistrahlfall) nicht ausreicht. Wegen der starken Wechselwirkung ist es stets nötig, die simultane Anregung mehrerer Interferenzen, mindestens die systematischen Nebenanregungen zu berücksichtigen. (Darunter versteht man solche Anregungen, deren Indizes ganzzahlige Vielfache des Indextripels einer starken Welle sind.) Die ersten Mehrstrahlrechnungen dieser Art führten HOWIE und WHELAN<sup>6</sup> aus. Mit der von COWLEY und MOODIE<sup>7</sup> entwickelten Phasengittermethode konnten GOODMAN<sup>8</sup> und MOODIE<sup>9</sup> unter Berücksichtigung von 13 Strahlen die Intensitäten in Beugungsbildern berechnen. Höhere Näherungen der dynamischen Theorie benutzen ebenfalls: GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup> für Kossel-Möllenstedt-Diagramme im konvergenten Bündel an planparallelen Kristallplatten; LEHM-

PFUHL und REISSLAND<sup>10</sup> zur Sichtbarmachung der Dispersionsfläche durch Drehkristall-Aufnahmen an keilförmigen Kristallbereichen; KREUTLE und MEYER-EHMSSEN<sup>11</sup> bei Drehkristall-Aufnahmen an einer planparallelen Platte. FISHER<sup>12</sup> zeigte durch Vielstrahlrechnungen mit der Matrixmethode nach FUJIMOTO<sup>13</sup> und NIEHRS<sup>14</sup>, daß die Näherungsverfahren erst bei Verwendung von mehr als 50 Strahlen konvergieren.

Leider sind die höheren Näherungsverfahren wegen ihrer Kompliziertheit wenig anschaulich und übersichtlich. Ihre Lösung ist nur unter Verwendung von Rechenautomaten mit z. Tl. erheblichem Zeitaufwand möglich. Um die oft sehr extensiven Rechenprogramme von Vielstrahluntersuchungen zu vereinfachen, hat COWLEY<sup>15</sup> eine modifizierte Zweistrahlrechnung entwickelt, die den Einfluß dynamischer Vielstrahleffekte auf die Intensität von Beugungserscheinungen zu erfassen gestattet. Diese Näherung ist der von BETHE<sup>2</sup> stammenden Zweistrahl-näherung unter Berücksichtigung dynamischer Zusatzpotentiale sehr ähnlich. Diese Bethesche Näherung wird im folgenden als zweite Bethesche Näherung bezeichnet, um sie von der ersten Bethe-

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. K. MOLIÈRE, Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft, D-1000 Berlin 33, Faraday-Weg 4—6.

\* Abteilung Prof. Dr. K. MOLIÈRE.

<sup>1</sup> H. A. BETHE, Ann. Phys. Leipzig **87**, 55 [1928].

<sup>2</sup> P. GOODMAN u. G. LEHMPFUHL, Acta Cryst. **22**, 14 [1967].

<sup>3</sup> M. BLACKMAN, Proc. Roy. Soc. London A **173**, 68 [1939].

<sup>4</sup> C. H. MCGILLAVRY, Physica **7**, 329 [1940].

<sup>5</sup> R. D. HEIDENREICH, Phys. Rev. **62**, 291 [1942].

<sup>6</sup> A. HOWIE u. M. J. WHELAN, Proc. Europ. Reg. Conf. Electr. Micr., Delft 1960, S. 181.

<sup>7</sup> J. M. COWLEY u. A. F. MOODIE, Acta Cryst. **10**, 609 [1957].

<sup>8</sup> P. GOODMAN, Proc. Int. Conf. on Electr. Diffraction and Cryst. Defects, Melbourne 1965, I-D2.

<sup>9</sup> A. F. MOODIE, Proc. Int. Conf. on Electr. Diffraction and Cryst. Defects, Melbourne 1965, I-D1.

<sup>10</sup> G. LEHMPFUHL u. A. REISSLAND, Z. Naturforsch. **23 a**, 544 [1968].

<sup>11</sup> M. KREUTLE u. G. MEYER-EHMSSEN, Phys. Stat. Sol. **35**, K 17 [1969].

<sup>12</sup> P. M. J. FISHER, J. Appl. Phys. **7**, 191 [1968].

<sup>13</sup> F. FUJIMOTO, J. Phys. Soc. Japan **14**, 1558 [1959].

<sup>14</sup> H. NIEHRS, Z. Phys. **156**, 446 [1959].

<sup>15</sup> J. M. COWLEY, Proc. Int. Conf. of Cryst., New York 1969, S. 206.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

schen Näherung zu unterscheiden, die einen reinen Zweistrahlfall ohne dynamische Zusatzpotentiale behandelt.

Untersuchungen, die die 2. Bethesche Näherung zur Interpretation der Ergebnisse heranzogen, stammen von MOLIÈRE und WAGENFELD<sup>16</sup>, LEHMPFUHL und MOLIÈRE<sup>17</sup> sowie HORSTMANN und MEYER<sup>18</sup>. Neuere Untersuchungen von WATANABE, UYEDA und FUKUHARA<sup>19</sup> zeigten, daß unter Verwendung der 2. Betheschen Näherung aus dem Verschwinden von Kikuchi-Linien bei einer bestimmten Beschleunigungsspannung infolge des relativistischen Effektes Struktur Faktoren mit großer Genauigkeit zu bestimmen sind. Der Grad der Genauigkeit war durch Verwendung der strengeren Mehrstrahlrechnung nicht zu verbessern. Dies soll allerdings nach COWLEY<sup>20</sup> nur ein Sonderfall sein.

Es erschien uns daher interessant genug, durch systematische Untersuchungen die Güte und die Grenzen der 2. Betheschen Näherung zur Strukturpotentialbestimmung aufzuzeigen. Von MOLIÈRE und WAGENFELD<sup>16</sup> wurden die Experimente mit submikroskopischen MgO-Kristallen durchgeführt. Es war nicht möglich, gewünschte Orientierungen exakt einzustellen und zu verändern. Die von uns angewandte Methode der Durchstrahlung makroskopischer Kristallkeile<sup>17</sup> erlaubt dagegen in gewissen Grenzen jede gewünschte Orientierung durch Beobachtung eines Kikuchi-Diagramms einzustellen und genau zu bestimmen. Es ist daher möglich, definierte Störungen des Zweistrahlfalles durch Nebenanregungen zu erhalten. Die von uns experimentell bestimmten Werte des (002)-Strukturpotentials von MgO wurden mit den Ergebnissen anderer Untersuchungen und einem theoretischen Wert verglichen. Den experimentellen Ergebnissen von GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup> wird dabei eine besondere Bedeutung beigemessen, da sie sowohl die Korrektur durch schwache Nebenanregungen als auch die relativistischen Einflüsse berücksichtigten. Der theoretische Wert des Strukturpotentials ist unter Verwendung der Atomformamplituden von  $Mg^{++}$ - und  $O^{--}$ -Ionen berechnet worden. Unsere Untersuchungen sollen zeigen, ob mit der 2. Betheschen Näherung das Strukturpotential  $V_{002}$  aus Dublettstabs-

messungen mit der gleichen Genauigkeit zu bestimmen ist wie mit Hilfe von Vielstrahlrechnungen.

## I. Die zweite Bethesche Näherung der dynamischen Theorie

Zur Darstellung der für die Behandlung unseres Problems notwendigen theoretischen Zusammenhänge benutzen wir die von MOLIÈRE und NIEHRS<sup>21</sup> sowie die von LEHMPFUHL und MOLIÈRE<sup>17</sup> angegebene dimensionslose Schreibweise. Als Anregungsfehler ist folgender Ausdruck definiert:

$$Q_m = \frac{1}{2} (1 - S_m^2).$$

Wenn als Abkürzung  $S_m = S_0^e + \lambda \mathbf{b}_m$  eingeführt ist. Es bedeutet:  $S_0^e$  den Einheitsvektor in Richtung der einfallenden Elektronenwelle;  $\lambda$  deren Wellenlänge und  $\mathbf{b}_m$  einen reziproken Gittervektor. Der Index  $m$  steht für ein Tripel  $m_1, m_2, m_3$ .

Als Auswahlkriterium für die nach Bethe immer nur in beschränkter Anzahl  $j$  auftretenden starken Bloch-Wellen kann man die Anregungsfehler der ihnen zuzuordnenden Interferenzen heranziehen und bekommt

$$|Q_j| \ll v_0, \quad (1)$$

wobei  $v_0$  das durch die Beschleunigungsspannung  $E$  dividierte mittlere innere Potential  $V_{000}$  bedeutet.

BETHE<sup>1</sup>, wie auch später NIEHRS und WAGNER<sup>22</sup>, zeigte, daß es grundsätzlich möglich ist, das unendliche Grundgleichungssystem der dynamischen Theorie zu reduzieren. Die Diagonalglieder  $D_m$  des reduzierten Systems müssen für Indextripel  $j$  der starken Bloch-Wellen der Bedingung

$$|D_m| \ll v_0 \quad (2)$$

genügen, wobei nach wie vor (1) erfüllt sein muß.

Auch die von Bethe entwickelte, durch Berücksichtigung schwacher Nebenanregungen verbesserte Zweistrahlnäherung verlangt keine anderen als die durch (1) und (2) gegebenen Voraussetzungen. Die für diese Näherung charakteristischen als Bethesche Zusatzpotentiale bezeichneten Größen<sup>17</sup>

$$\Sigma_{rs} \cong - \sum_{m \neq 0, g}'' \frac{v_{r-m} v_{m-s}}{2 Q_m} \quad (3)$$

$r, s = 0, g$

<sup>16</sup> K. MOLIÈRE u. H. WAGENFELD, Z. Kristallogr. **110**, 175 [1958].

<sup>17</sup> G. LEHMPFUHL u. K. MOLIÈRE, Z. Phys. **164**, 389 [1961].

<sup>18</sup> M. HORSTMANN u. G. MEYER, Z. Phys. **182**, 380 [1965].

<sup>19</sup> D. WATANABE, R. UYEDA u. A. FUKUHARA, Acta Cryst. **A 24**, 580 [1968].

<sup>20</sup> J. M. COWLEY, Acta Cryst. **A 25**, 129 [1969].

<sup>21</sup> K. MOLIÈRE u. H. NIEHRS, Z. Phys. **137**, 445 [1954].

<sup>22</sup> H. NIEHRS u. E. H. WAGNER, Z. Phys. **143**, 285 [1955].

werden wesentlich durch die Anregungsfehler der schwachen Nebenanregungen bestimmt, da für die Diagonalglieder schwacher Bloch-Wellen näherungsweise  $2Q_m$  zu setzen ist, wenn  $|Q_m| \gg v_0$ .

Im Experiment ist es streng genommen unmöglich, reine Zweistrahlfälle einzustellen. Mit dem von LEHMPFUHL und MOLIÈRE<sup>17</sup> entwickelten Untersuchungsverfahren gelingt es dagegen leicht, Zweistrahlfälle zu realisieren, die nur durch schwache Nebenanregungen gestört sind. Bei bekannter Beschleunigungsspannung, Beugungslänge und genauer Kenntnis der Orientierung des Kristalls ist aus dem gemessenen Dublettabstand  $T_{002}$  und dem Wert des inneren mittleren Potentials das Strukturpotential  $V_{002}$  zu bestimmen<sup>17</sup>.

Die in unseren Experimenten benutzten relativ hohen Elektronenenergien verlangen genau genommen eine auf der relativistisch invarianten Dirac-Gleichung und nicht auf der Schrödinger-Gleichung beruhende dynamische Theorie. Nach FUJIWARA<sup>23</sup> kann man den Einfluß relativistischer Effekte mit hinreichender Genauigkeit erfassen, wenn man die Strukturpotentiale der unrelativistischen Bethe-Theorie mit einem Korrekturfaktor  $C$  versieht, wie er von GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup> verwendet wurde.

$$C \cong \frac{1}{2} [1 + (1 - \beta^2)]^{1/2}, \quad (4)$$

wobei  $\beta$  der Quotient aus Elektronen- und Lichtgeschwindigkeit ist.

Für Elektronenstrahlen lassen sich die Fourier-Koeffizienten  $V_m$  des Kristallpotentials aus Strukturfaktoren, die aus tabellierten Atomformfaktoren zu bestimmen sind, berechnen. Der Einfluß thermischer Schwingungen auf den Wert der Atomformfaktoren  $f_{el}$  für Elektronen ist durch die Beziehung

$$f_{el}(T) = f_{el} e^{-B(\sin \theta/\lambda)^2} \quad (5)$$

( $B$ : Debye-Waller-Faktor,  $\theta$ : Bragg-Winkel) zu erfassen.

## II. Experimente

Die durch Abspalten von einem größeren MgO-Kristall gewonnenen Kriställchen von 1–2 mm Kantenlänge wurden in der bei Lehmpfuhl und Molière ausführlich beschriebenen Beugungsapparatur untersucht. Die präzise einstellbare Orientierung des Kristallkeils zum Elektronenstrahl ermöglicht ein Präparatthalter mit mehreren translatorischen und rotatorischen Freiheitsgraden (LEHMPFUHL<sup>24</sup>). Zur Feinstrukturanalyse

wurde der (002)-Reflex photographisch registriert. Infolge der kleinen Dublettabstände, die in unseren Experimenten etwa 80–100  $\mu$  betrugen, war die Verwendung hochauflösender Kodak-MR-Photoplatten erforderlich. Während der langen Expositionszeiten von ca. 60 sec war der Elektronenstrahl nicht genügend stabil. Die Aufnahmedauer konnte verkürzt werden durch die Verwendung einer W-Spitzenkathode, da diese gegenüber herkömmlichen Strahlerzeugungssystemen einen höheren Richtstrahlwert besitzt. In einer Kammer unterhalb des Präparates befand sich ein verschiebbares, gekreuztes, elektrostatisches Ablenssystem. Seine Ablenkplatten waren parallel bzw. senkrecht zur untersuchten Kristallkante angeordnet. Mit einem elektrischen Ablenkkfeld konnten die punktförmigen Reflexe zu Strichen ausgelenkt werden und somit das gegenüber der Punktauflösung höherer Linienauflösungsvermögen der Photoplatten ausgenutzt werden.

Die Untersuchungen am Reflex (002) wurden für verschiedene Beschleunigungsspannungen zwischen 56 und 67 kV bei konstantem Anregungsfehler  $Q_{002} \cong 0$  in Abhängigkeit von zufälligen, nicht systematischen

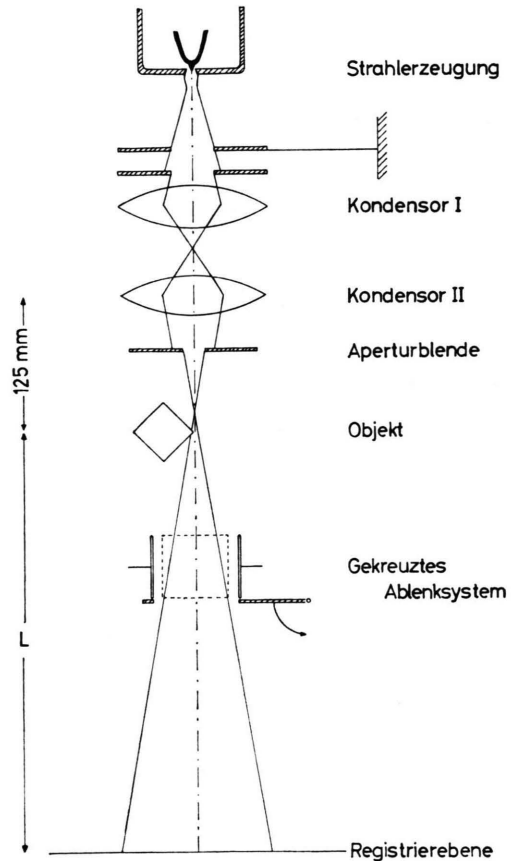


Abb. 1. Schematischer Aufbau der Beugungsapparatur und Strahlengang.

<sup>23</sup> K. FUJIWARA, J. Phys. Soc. Japan 16, 2226 [1961].

<sup>24</sup> G. LEHMPFUHL, Dissertation, Freie Universität Berlin 1960.

Nebenanregungen durchgeführt. Neben den immer vorhandenen systematischen Nebenanregungen erreichte man die Anregung dieser zufälligen Interferenzen durch Verkippen des Kristalls um eine Achse parallel zur Keilkante [001]. In der Ausgangsstellung war der einfallende Strahl parallel zu [110]. Der Drehwinkel konnte im Kikuchi-Diagramm durch den Abstand der (220)-Linie vom Nullreflex charakterisiert werden. In den graphischen Darstellungen wurde folgender Verkipppungsparameter benutzt:

$$x_{hh0} = (2h \varrho_{hh0} / |\lambda \mathbf{b}_{hh0}|^2) + h. \quad (6)$$

Er ist so gewählt, daß  $x_{hh0} = h$  gilt, wenn  $\varrho_{hh0} = 0$  ist. Bei kleinem  $x_{hh0}$  waren im Beugungsbild noch eine Vielzahl anderer Reflexe mit unterschiedlichen Anregungsfehlern erkennbar. Eine Vergrößerung des Verkipppungsparameters im Experiment bis auf Werte  $x_{hh0} > 10$  führte zu Zweistrahlfällen, die nur noch durch systematische Nebenanregungen gestört waren. Die Gültigkeit der zweiten Betheschen Näherung wurde in Abhängigkeit vom Parameter  $x_{hh0}$  untersucht, der Art und Größe der Nebenanregungen kennzeichnet.

### III. Auswertung

Die zur Bestimmung der Beschleunigungsspannung, des Anregungsfehlers  $\varrho_{002}$  und der Richtungskosinus der Kristallorientierung benötigten Meßdaten wurden einem Kikuchi-Diagramm entnommen, das unmittelbar vor dem Laue-Diagramm aufgenommen wurde<sup>2</sup>. Aus letzterem wurden die Dublettstände im untersuchten Laue-Reflex photometrisch mit einem mittleren quadratischen Fehler von  $\pm 0,5\%$  ermittelt. Es wurden zunächst in erster Näherung ohne Berücksichtigung der Zusatzpotentiale ein effektives Strukturpotential  $V_{002}^{0B}$ , dann unter Verwendung der Zusatzpotentiale der genaue Wert  $V_{002}^{mB}$  des Strukturpotentials bestimmt. Die Berechnungen wurden mit einem Computer durchgeführt.

Im Bethe-Verfahren wurde die Wechselwirkung von maximal 119 Strahlen berücksichtigt, deren reziproke Gitterpunkte in der reziproken (110)-Ebene liegen. Die Rechnungen zeigten, daß zur Bestimmung der  $V_{002}$  in den Bethe-Summen auch solche Interferenzen berücksichtigt werden mußten, die zwar infolge großer Anregungsfehler  $\varrho_m \cong 10^{-3}$  keine merkliche Intensität zum Beugungsbild lieferten, der zugehörige Bethe-Korrekturterm  $\Sigma_{g0}$  aber wegen eines großen Fourier-Koeffizienten des Kristallpotentials noch wesentlich war. Als Beispiel diene der Reflex (222), der in allen Untersuchungen einen großen Anregungsfehler hatte, dessen Produkt  $v_{222} \cdot v_{220}$  aber einen beachtlichen Wert er-

reichte. Die Aussage, welche der 119 Reflexe im Einzelfall der Untersuchungen im Bethe-Verfahren wesentliche Korrekturbeiträge lieferten, konnte an Hand einer besonderen, später noch näher beschriebenen Rechnung erfolgen, in der der Korrekturbeitrag jeder Interferenz einzeln bestimmt wurde. In den Bethe-Summen wurden schließlich nur die Interferenzen berücksichtigt, die den korrigierten Strukturpotentialwert um Beträge von mehr als  $10^{-3}$  Volt veränderten.

Die Strukturpotentiale in den Bethe-Summen wurden aus Atomformfaktoren berechnet. Die Strukturpotentiale der niedrig indizierten Reflexe weichen je nach der Wahl des der Berechnung zugrunde liegenden Atommodells um 5–10% voneinander ab. Die Verwendung der mit einem Fehler dieser Größenordnung behafteten Werte im Bethe-Verfahren hatte auf den Korrekturbetrag als kleine Größe zweiter Ordnung keinen wesentlichen Einfluß. Thermische Einflüsse auf die im Bethe-Verfahren benutzten, berechneten Strukturpotentiale, die durch Korrektur der Atomformfaktoren mit dem Debye-Waller-Faktor zu erfassen wären, wurden nicht berücksichtigt. Sie hätten ebenfalls nur eine unwesentliche Änderung des Korrekturbetrages bewirkt.

### IV. Ergebnisse und deren Diskussion

Um über die Güte und den Gültigkeitsbereich der zweiten Betheschen Näherung bei ihrer Verwendung zur Strukturpotentialbestimmung Aussagen machen zu können, wurde zu Vergleichszwecken das genau bekannte Strukturpotential  $V_{002}$  herangezogen. Dieser Wert wurde experimentell von GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup> mit großer Genauigkeit bestimmt. Es stehen auch theoretische, aus Atomformfaktoren zu bestimmende Werte zur Verfügung. Strukturfaktoren von MgO für Röntgen-Strahlen, die eng mit denen für Elektronenstrahlen verknüpft sind, wurden experimentell von TOGAWA<sup>25</sup> bestimmt. Sie zeigten die beste Übereinstimmung mit den Werten, die aus Atomformfaktoren für das  $Mg^{2+}$ -Ion und das  $O^{2-}$ -Ion (TOKONAMI<sup>26</sup>) berechnet wurden. Während sich die Streukurve für kleine Streuwinkel für das neutrale Mg von der des  $Mg^{++}$ -Ions nicht wesentlich unterscheidet, weichen die Kurven für das O-Atom und die verschiedener Modelle des  $O^{--}$ -Ions erheblich voneinander ab. Unter die-

<sup>25</sup> S. TOGAWA, J. Phys. Soc. Japan **20**, 742 [1964].

<sup>26</sup> M. TOKONAMI, Acta Cryst. **19**, 486 [1965].



sem Gesichtspunkt kommt dem von uns bestimmten (002)-Strukturpotential eine besondere Bedeutung zu, da bei einer genauen Bestimmung Rückschlüsse auf das zur Beschreibung am besten geeignete quantenchemische Modell gezogen werden können.

Auf Grund des Betrages der Anregungsfehler  $Q_m$  [ $m \neq (000), (002)$ ] kann man Aussagen über die Qualität der Zweistrahlfälle machen, da zur Anwendung der Zweistrahl nähierung für die schwachen Bloch-Wellen der Quotient  $v_0/|Q_m|$  in Strenge nur sehr klein gegen eins sein darf. In den Experimenten traten mitunter auch solche Nebenanregungen  $m$  auf, für die  $v_0/|Q_m| \geq 1$  war. Die Zweistrahlfälle wurden mit Hilfe dieses Quotienten  $v_0/|Q_m|$  klassifiziert. In Tab. 1 sind die von uns experimentell bestimmten und mit relativistischer Korrektur versehenen Strukturpotentiale von (002) zusammengestellt.  $V_{002}^0$  bezeichnet die Strukturpotentiale, die ohne Bethesche Zusatzpotentiale,  $V_{002}^{mB}$  diejenigen, die mit Zusatzpotentialen bestimmt wurden. Sie sind in Gruppen für jeweils bestimmte  $v_0/|Q_m|$  angeordnet. Der Mittelwert aller Strukturpotentiale aus Zweistrahlfällen, die nur durch systematische Nebenanregungen gestört wurden (Spalte 3 a), ergab  $V_{002} = 6,86$  Volt.

Dieser Wert gilt für Raumtemperatur und stimmt gut mit dem von GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup> gemessenen und dem mit TOKONAMIS<sup>26</sup> Atomformfaktoren für  $O^{--}$  berechneten überein. Auf Grund dieser Übereinstimmung kann man auf eine gute Verwendung der zweiten Betheschen Näherung in

Tab. 1. Experimentelle Werte von  $V_{002}$ .

$E$ kV	$V_{002}^0$ V	$V_{002}^{mB}$ V	$v_0/ Q_m $ $m \neq (000), (002)$
1	2	a	b
66,5	7,55	6,84	
64,7	7,26	6,84	
	7,18	6,75	
	7,50	6,91	
	7,45	6,86	
61,5	7,53	6,91	
	7,41	6,79	
	7,65	6,98	
66,5	7,60		7,13
	7,79		7,20
	7,41		6,80
	7,40		6,77
64,7	7,42		6,80
61,5	7,31		7,11
	7,31		6,77
	7,25		6,92
	7,40		6,86
56,5	7,36		6,87

Tab. 2.

	$V_{002}$ (300 °K)	$V_{002}$ (0 °K)
Theoretische Werte		
TOKONAMI: für $O^{--}$	6,92 Volt	7,01 Volt
STRAND u. BONHAM: für neutrale Atome	7,29 Volt	7,39 Volt
Experimentelle Werte		
GOODMAN u. LEHMPFUHL:	6,92 Volt	7,01 Volt
Vorliegender Wert	6,90 V $\pm$ 2%	7,00 V $\pm$ 2%

diesen nur durch systematische Nebenanregungen gestörten Fällen schließen, in denen die Voraussetzungen zur Anwendung der Zweistrahl nähierung gut erfüllt sind.

Damit wird auch von unseren Experimenten der theoretische Wert des Strukturpotentials  $V_{002}$  für Ionen und nicht der für neutrale Atome (STRAND und BONHAM<sup>27</sup>) bestätigt. In Tab. 2 sind der von uns ermittelte Wert des Strukturpotentials  $V_{002}$  und die wichtigsten experimentell und theoretisch bestimmten Werte zusammengestellt. Eine Anwendung der gewöhnlichen Zweistrahl nähierung ohne Zusatzpotentiale zur Interpretation liefert dagegen in allen Fällen erheblich größere Strukturpotentiale (Spalte 2), was auch für die Zweistrahlfälle der anderen Gruppe in Tab. 1 gilt.

Die Strukturpotentiale der auch durch nicht-systematische Nebenanregungen gestörten Zweistrahlfälle sind in Spalte 3 b zusammengestellt. In diesen Fällen sind die Voraussetzungen zur Anwendung der Zweistrahl nähierung nicht für alle Interferenzen  $m$  streng erfüllt.

Um zu Aussagen über die Gültigkeit der Näherung zu gelangen, wurden die Dublett abstände  $T_{002}$  der exakt angeregten (002)-Interferenz in Bethescher Näherung unter Verwendung des genauesten Wertes für  $V_{002} = 6,90$  Volt in Abhängigkeit vom Parameter  $x_{hh0}$  berechnet. Es wurden in den Betheschen Summen die gleichen Indextripel berücksichtigt wie bei der Auswertung der Messungen. Die Berechnung der Dublett abstände erfolgte auch für solche Werte  $x_{hh0}$ , für die ein oder mehrere Anregungsfehler  $Q_m$  nahezu Null waren. Die Dublett abstandskurve hatte in diesen Bereichen Singularitäten infolge des Nulldurchgangs der Anregungsfehler  $Q_m$ . Sie sind von unseren weiteren Betrachtungen auszuschließen, da für diese Bereiche die Zweistrahl nähierung selbstverständlich versagen muß. Abbildung 2

<sup>27</sup> T. G. STRAND u. R. A. BONHAM, J. Chem. Phys. **40**, 1686 [1964].

zeigt eine solche Kurve für 61,5 kV mit den entsprechenden experimentellen Punkten. Unsere Experimente wurden im allgemeinen so geführt, daß die Meßpunkte außerhalb der Singularitäten lagen. Für solche Experimente, in denen die Meßpunkte noch sehr nahe der Singularitäten lagen (etwa die um  $x_{hh0} \cong 8$  in Abb. 2), konnte schon an Hand der Dublettbandabstandskurve auf eine Nichtanwendbarkeit der Betheschchen Näherung geschlossen werden. Für Werte  $x_{hh0} < 4$ , das entspricht Einstrahlungen nahe der Zonenachse [10], wurden keine Experimente durchgeführt, da hier Zweistrahlfälle mit schwachen Nebenanregungen nur sehr schwer realisierbar waren. Für Werte  $x_{hh0} \geq 9$  zeigt die Abstandskurve einen nahezu geradlinigen Verlauf, der nur noch von Singularitäten unterbrochen wird, die sich über einen vergleichsweise schmalen  $x_{hh0}$ -Wertebereich erstrecken. In diesem Gebiet sind daher bei Verwendung der Betheschchen Näherung gute Ergebnisse zu erwarten, was durch die Auswertung bestätigt wurde. Alle experimentellen Meßpunkte in diesem Bereich stammten nur von Zweistrahlfällen, die nur durch systematische schwache Nebenanregungen gestört waren. Im Bereich  $4 < x_{hh0} \leq 9$  ist ein durch starke Singularitäten unterbrochener Kurvenverlauf zu beobachten, weshalb über eine Anwendbarkeit der Zweistrahlnäherung im Einzelfall jeder Untersuchung eine im folgenden näher erläuterte Rechnung Hinweise liefern soll.

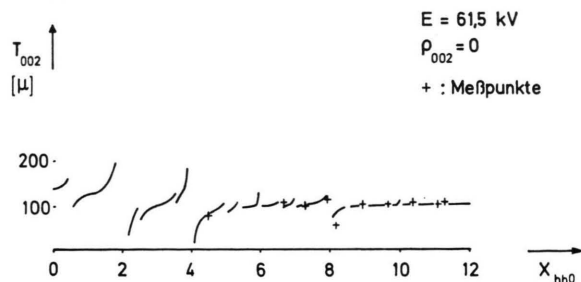


Abb. 2. Berechnete Dublettbandabstandskurve mit experimentellen Meßpunkten.

Aus den Meßdaten der Einzeluntersuchungen wurde der Korrekturbeitrag zu den Bethe-Summen für jede Nebenanregung einzeln ermittelt. Diese Beiträge wurden dann dem Betrage nach in einer abnehmenden Folge geordnet und in dieser Weise das korrigierte Strukturpotential bestimmt. Übertrafen in dieser Rechnung die absoluten Korrektur-

beiträge der immer auftretenden stärksten systematischen Nebenanregungen (002) und (004) die aller anderen Interferenzen, so lieferte die zweite Betheschche Näherung gute Ergebnisse. Das galt allerdings nur mit der Einschränkung, daß die  $V_m$  der Interferenzen mit Anregungsfehlern  $\varrho_m \cong v_0$  kleiner als etwa 1 Volt waren, d. h. nicht zu den Interferenzen der MgO-Struktur mit großem Strukturpotential gehörten.

Die so ausgewählten Zweistrahlfälle, dargestellt in Tab. 1, Spalte 3b, liefern als Mittelwert ein Strukturpotential, das ebenfalls gut mit dem experimentellen von GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup> und dem theoretischen<sup>26</sup> übereinstimmt.

Die in zweiter Betheschcher Näherung berechnete Kurve wurde außerdem noch mit solchen berechneten Kurven verglichen, die unter Verwendung von Mehrstrahlrechnungen zu erhalten waren<sup>28</sup>. Dabei zeigte sich, daß z. B. eine 19-Strahlrechnung die Experimente weniger genau deutete als die zweite Betheschche Näherung, wenn in der Mehrstrahlrechnung zu wenig Strahlen berücksichtigt wurden. Erst wenn man 50 und mehr Strahlen in der Rechnung verwendet<sup>29</sup>, gleichen sich die Dublettbandabstandskurven in den Bereichen zwischen den Singularitäten an.

Die gute Genauigkeit, mit der aus Beugungserscheinungen bei Keildurchstrahlungsexperimenten unter Verwendung der zweiten Betheschchen Näherung Strukturpotentiale zu bestimmen sind, erklärt sich aus der Tatsache, daß der Anregungsfehler der untersuchten Interferenz sehr klein oder nahezu Null ist. Die Meßgenauigkeit, mit der die Einstrahlrichtung zu ermitteln ist, bestimmt damit im wesentlichen den Fehler des experimentellen Strukturpotentials.

Die Verwendung der Zweistrahlnäherung zur Interpretation der Beugungserscheinungen, die beim Arbeiten im konvergenten Bündel zu beobachten sind, lieferte nur deshalb wenig genaue Strukturpotentiale (GOODMAN und LEHMPFUHL<sup>2</sup>), weil hier die Informationen auch aus Einstrahlrichtungen stammen, die nicht mit der Bragg-Richtung des untersuchten Reflexes identisch sind.

Zusammenfassend können wir sagen, daß über große Bereiche unserer Untersuchungen die zweite Betheschche Näherung auch dann gute Ergebnisse lie-

<sup>28</sup> B. HERZBERG, G. LEHMPFUHL u. A. REISSLAND, Anniversary Meeting on Electr. Diffraction, London 1967.

<sup>29</sup> G. LEHMPFUHL, VII. Int. Congr. of Electr. Microscopy, Grenoble 1970, S. 101.

ferte, wenn die Zweistrahlfälle durch viele systematische und nicht-systematische schwache Nebenanregungen gestört waren und die Voraussetzungen zur Anwendung dieser Näherung nicht für alle Nebenanregungen in Strenge erfüllt waren. Sie lieferte sogar bessere Ergebnisse als eine Vielstrahlrechnung, die eine ungenügende Zahl von Strahlen berücksichtigte. Es war im Experiment nur darauf zu achten, daß die Einstrahlrichtungen des Elektronenstrahls nicht mit einer niedrig indizierten Zonenachsenrichtung zusammenfielen oder in deren unmittelbarer Nähe lagen.

Nicht anwendbar war die Bethesche Näherung in solchen Grenzfällen, die zwar keine Mehrstrahlfälle waren, aber eine starke Kopplung der Nebenanregung ( $g-m$ ) zur immer angeregten Interferenz (002) aufwiesen. Im Kikuchi-Beugungsbild verlief dann das Linienpaar ( $g-m$ ) in der Nähe der Reflexe  $g=(002)$  und  $m=(m_1 m_2 m_3)$ , so daß der Anregungsfehler der ( $g-m$ )-ten Interferenz bezüglich (002) nahezu Null war. Eine solche Situation erfaßte die Zweistrahl-näherung nicht, sie lieferte schon dann ungenaue Strukturpotentiale, falls ein  $\varrho_{g-m}^{(002)} \cong v_0$  war.

Die Feinstrukturfigur der Laue-Reflexe, die bei Keildurchstrahlungsexperimenten zu beobachten ist, enthält neben der Information zur Bestimmung der Strukturpotentiale, in ihrer Intensitätsverteilung weitere Informationen, um Absorptionskoeffizienten zu bestimmen. Der Einfluß unelastisch gestreuter Elektronenwellen, der sich in einer Minderung der Intensität in den Laue-Reflexen bemerkbar macht, ist phänomenologisch durch Einführung komplexer Fourier-Koeffizienten des Kristallpotentials zu erfassen<sup>30</sup>. Ein weiterer Teil dieser Arbeit galt daher der Bestimmung des Imaginärteils des Strukturpotentials (002), der eng mit den Absorptions-Koeffizienten der einzelnen Wellenfelder verknüpft ist.

Herrn Professor Dr. K. MOLIERE danke ich vielmals für die Förderung dieser Arbeit. Besonders verpflichtet bin ich Herrn Dr. G. LEHMPFUHL und Herrn Dr. K. KAMBE, die jederzeit zu Diskussionen bereit waren. Ihnen verdanke ich wertvolle Ratschläge und viele Anregungen. — Die Max-Planck-Gesellschaft stellte für diese Arbeit ein Stipendium zur Verfügung, wofür ich hiermit meinen Dank aussprechen möchte.

<sup>30</sup> K. MOLIERE, Ann. Phys. Leipzig **34**, 461 [1939].

## Stationäre Bereiche der Plasmadiode

HANS-PETER GOETZ \* und KARL GERHARD MÜLLER

Physikalisches Institut der Universität Bonn

(Z. Naturforsch. **26 a**, 1253—1263 [1971]; eingegangen am 23. März 1971)

The plane collisionless plasma diode between two hot emitters is investigated. Only potential distributions with not more than one extremum are considered. The condition  $E^2 > 0$  is taken into account. Thus nonphysical solutions as given by other authors are excluded. As independent parameters the diode voltage and the neutral gas current on the emitters are introduced. In diagrams the type of potential distribution and the potential extremum are shown. Regions occur with several solutions or no solution of the Poisson equation. These regions are increased by a difference between the emitter temperatures and are decreased by a trapping of charge carriers near the potential extremum.

### 1. Problemstellung

Die Plasmadiode ist Gegenstand einer Reihe von neueren Veröffentlichungen. In den theoretischen Arbeiten werden Spezialfälle behandelt, die nur einen Bruchteil der experimentell realisierbaren Fälle erfassen. Außerdem wird in vielen Fällen die Bedingung  $E^2 > 0$  für das Quadrat des elektrischen Feldes nicht berücksichtigt. Aus diesem Grunde greifen wir die Berechnung der ebenen, stoßfreien Plasmadiode noch einmal wieder auf.

Als erstes wollen wir an Hand einer skizzierten Berechnung der Plasmadiode in die Problematik einführen.

Die ebene, stoßfreie Plasmadiode besitzt die experimentellen Parameter

Diodenspannung,  
Emittertemperaturen,  
Neutralgasströme auf die Emitter,  
Länge der Plasmadiode.

\* D 5.