

Acta Universitatis Palackianae Olomucensis. Facultas Rerum
Naturalium. Mathematica-Physica-Chemica

Ludvík Hodulák

Rozptyl elektronů v tenkých foliích polymethylmetakrylátu

Acta Universitatis Palackianae Olomucensis. Facultas Rerum Naturalium. Mathematica-Physica-Chemica, Vol.
10 (1969), No. 1, 323--333

Persistent URL: <http://dml.cz/dmlcz/119914>

Terms of use:

© Palacký University Olomouc, Faculty of Science, 1969

Institute of Mathematics of the Academy of Sciences of the Czech Republic provides access to digitized documents strictly for personal use. Each copy of any part of this document must contain these *Terms of use*.



This paper has been digitized, optimized for electronic delivery and stamped with digital signature within the project *DML-CZ: The Czech Digital Mathematics Library* <http://project.dml.cz>

*Katedra experimentální fyziky a metodiky fyziky přírodovědecké fakulty
Vedoucí katedry: Prof. paed. dr. Josef Fuka*

ROZPTYL ELEKTRONŮ V TENKÝCH FOLÍCH POLY- METYLMETAKRYLÁTU

LUDVÍK HODULÁK

(Předloženo 3. 7. 1968)

Úvod

Průchod elektronů pevnou látkou lze kvantitativně vystihnout dosti nesnadno, neboť při něm dochází k celé řadě jevů, zejména ke změně počáteční energie elektronů (případně i k pohlcování elektronů), k rozptylu elektronových svazků a k jejich interferenci. Teoretické zvládnutí této problematiky má však značný význam pro vyhodnocování intenzit v elektronových difraktogramech a ve snímcích z elektronového mikroskopu. Pro uvedené aplikace je možné se omezit na elektrony středních energií (desítky keV) a na vzorky malých tlouštěk, ve kterých dochází jen k nepatrnému pohlcování elektronů. Protože pracujeme vždy s látkami, u kterých jsou stavební částice do jisté míry uspořádány, jde při průchodu svazku elektronů pevnou látkou o difrakci. Máme-li však řešit difrakci, tedy zabývat se interferencí elektronových svazků rozptýlených v pevné látce, je třeba znát, jak se elektrony v pevných látkách rozptylují, tj. zabývat se rozptylem.

Pokud jde o rozptyl elektronů v pevné látce, je třeba po teoretické stránce studovat nejdříve rozptyl elektronů na atomu, tedy rozptyl elektronů v coulombovském poli jádra a rozptyl v elektronovém obalu atomu. Pevná látka se pak považuje za soustavu nahodile uspořádaných rozptylových center, na něž se aplikují výsledky získané pro izolovaná centra, přičemž se bere v úvahu, že výsledná odchylka je obecně výsledkem několika po sobě jdoucích odchylek. Pro experimentální ověření je třeba měřit rozptyl elektronů v tenkých amorfních vrstvách látky známých tlouštěk. O dosavadních výsledcích lze souhrnně říci, že shoda experimentu s teorií není dostatečně dobrá. Proto se v teorii často využívá i poloempirických konstant a funkcí, které vedou k lepšímu souhlasu s experimentem.

V pevných látkách se realizuje pružný i nepružný rozptyl elektronů. K pružnému rozptylu vede interakce dopadajících elektronů s jádry atomů, k nepružnému rozptylu interakce s elektronovými obaly atomů. Nepružný rozptyl vede převážně k odchylkám o velmi malé úhly a převládá v oblasti dostatečně malých úhlů nad pružným rozptylem. Naopak od určité hranice (10^{-2} rad pro středně rychlé elektrony a lehké prvky) směrem k větším úhlům odchylky můžeme rozptyl považovat pouze za pružný. Pro studium rozptylu má podstatný význam i klasifikace podle toho, kolikrát je elektron na své dráze v látce rozptýlen. Jednoduchým rozptylem nazýváme případ kdy elektrony při průchodu nejsou odchý-

leny v průměru více než jedenkrát. Pro oblast, v níž je průměrný počet rozptylových kroků dostatečně velký, takže lze využít statistických rozdělení, použijeme název mnohonásobný rozptyl. Přechodnou oblast mezi dvěma uvedenými typy budeme označovat jako vícenásobný rozptyl.

Úhlové rozdělení elektronů rozptýlených na atomu charakterizujeme obvykle diferenciálním rozptylovým průřezem $d\sigma$ resp. $\frac{d\sigma}{d\Omega}$. Veličina $d\sigma(\vartheta)$ odpovídá pravděpodobnosti, s kterou je elektron rozptýlen do některého ze směrů vymezených úhly odchylky od původního směru ϑ a $\vartheta + d\vartheta$, tj. do prostorového úhlu $d\Omega = 2\pi \sin \vartheta d\vartheta$. Rozptylový průřez $\sigma(\vartheta)$ pak odpovídá pravděpodobnosti, s kterou je elektron rozptýlen do úhlu většího než ϑ . Rozptyl v látce charakterizujeme buď rozdělovací funkcí $f(\vartheta)$ normovanou podmínkou $\int_0^\infty f(\vartheta) \vartheta d\vartheta = 1$ nebo hmotovým rozptylovým průřezem S svázaným s veličinou σ vztahem $S = \sigma \frac{N}{A}$, kde N je Avogadrovo číslo a A je hmotové číslo.

Výchozím bodem pro řešení rozptylu v pevné látce je pokud možno přesné a matematicky jednoduché vyjádření diferenciálního rozptylového průřezu. Mott [11] uvádí diferenciální průřez pro pružný rozptyl ve tvaru

$$d\sigma_M = \frac{4}{a_H^2 q^4} (Z - f)^2 d\Omega \quad (1)$$

a Wentzel ve tvaru

$$d\sigma_W = \frac{4}{a_H^2} \frac{Z^2}{(q^2 + 1/R^2)^2} d\Omega \quad (2)$$

kde $a_H = \frac{4\pi \epsilon_0 \hbar}{e^2 m_0} = 0,529 \text{ \AA}$

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\vartheta}{2}$$

$$f = \int_0^\infty \rho(r) 4\pi r^2 \frac{\sin qr}{qr} dr$$

$\rho(r)$ je rozdělení hustoty elektronů v elektronovém obalu atomu a R je parametr označovaný jako „poloměr atomu“. Burg a Smith [7] aproximovali číselné hodnoty rozptylového průřezu řadou. Diferenciální rozptylový průřez pro nepružný rozptyl vyjádříme

$$d\sigma = \frac{4}{a_H^2 q^4} S d\Omega$$

kde S je funkce charakterizující nepružný rozptyl a q má podle Koppa tvar

$$q = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\vartheta^2 + \left(\frac{J}{4eU}\right)^2}$$

lišící se od proměnné q pro pružný rozptyl členem obsahujícím ionizační energii f a urychlovací napětí U .

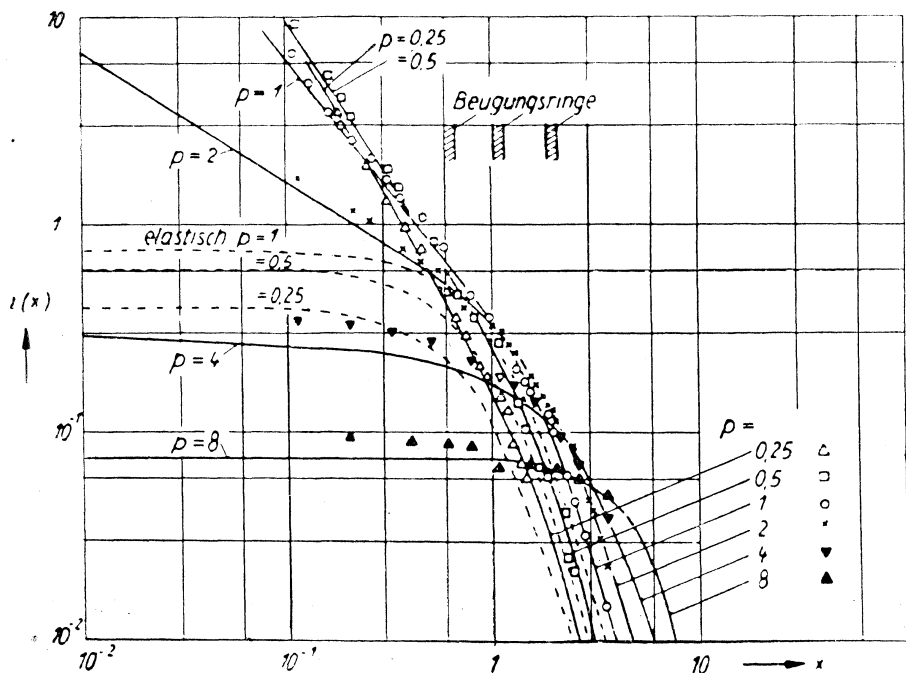
Formální řešení vícenásobného rozptylu je dáno Botheovými rovnicemi

$$f(\vartheta) = \int_0^{\infty} \exp. (2\pi N \gamma l \psi(\chi)) \mathcal{J}_0(\chi \vartheta) d\chi \quad (3)$$

$$\psi(\chi) = \int_0^{\infty} \frac{d\sigma}{d\Omega} [\mathcal{J}_0(\chi \vartheta) - 1] \vartheta d\vartheta$$

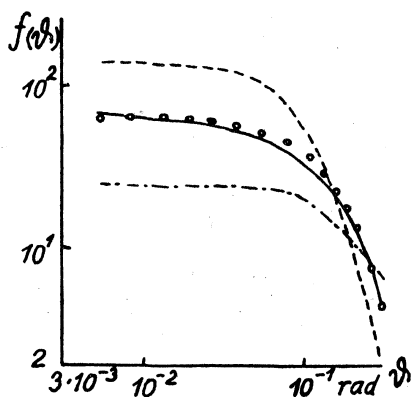
kde $d\sigma/d\Omega$ je diferenciální rozptylový průřez, N je počet atomů v objemové jednotce, l je tloušťka vrstvy a \mathcal{J}_0 je Besselova funkce. Lenz [3] integroval druhou rovnici s použitím $d\sigma_{\text{pr}}$ a redukoval první rovnici do formy umožňující numerickou integraci. Kromě Lenze integrovali Botheovy rovnice také Burg a Smith [8] kteří použili $d\sigma$ vyjádřené řadou.

Rozptyl elektronů o energii 60 keV na foliích chromu měřili Biberman aj. (1949). Výsledky pro relativní tloušťku folie $p = 0,38$ a interval úhlů $3 \cdot 10^{-4} < \vartheta < 3 \cdot 10^{-2}$ rad dobře souhlasí s teoretickými hodnotami podle Lenze. Dobrou shodu s touto teorií získal i Haefler [6] pro uhlíkové vrstvy (obr. 1).



Obr. 1 Úhlové rozdělení proudové hustoty $i(x)$ teoreticky a experimentálně pro různé relativní tloušťky vrstvy p u uhlíku. ($x = \vartheta/\vartheta_0$)

Pozdější měření, která provedli na kovových foliích Cosslet a Thomas [4] nebo Hilgner a Kessler [10] ukazují menší shodu s Lenzovou teorií. Cosslet a Thomas měřili úhlové rozdělení elektronů o energii 20 keV po průchodu vrstvami hliníku, mědi a zlata v rozmezí relativních tloušťek $3 < p < 20$ a pro úhly $7 \cdot 10^{-3} < \vartheta < 5 \cdot 10^{-1}$. Tvar křivek souhlasí dobře s Lenzovými teoretickými hodnotami, ale absolutní hodnoty souhlasí jen u tenčích vzorků. U tlustších vzorků jsou v intervalu $10^{-2} < \vartheta < 10^{-1}$ asi o 40% větší. Při srovnání svých výsledků s teorií Smithe a Burga zjistili mnohem nižší experimentální hodnoty veličiny S a kontrastu. Hilgner a Kessler měřili vícenásobný rozptyl elektronů o energii 100 keV na vrstvách niklu, germania, stříbra a zlata do úhlů $3 \cdot 10^{-3} < \vartheta < 3 \cdot 10^{-1}$. Došli k závěru, že teoretické křivky získané z rozptylových průřezů jak podle Lenze, tak podle Iberse a Vainštejna (odkud odvozovali teoretické křivky Burg a Smith) se shodují s experimentem zcela neuspokojivě (obr. 2).



Obr. 2 Rozptyl elektronů ve vrstvě germania ($256 \mu\text{g cm}^{-2}$), srovnání teorie s experimentem. (o o o o experimentálně, ——— Lenz — $R = 0,115 \text{ \AA}$, - - - - Lenz — $R = 0,279 \text{ \AA}$, - · - · - Iberse.)

Cílem této práce bylo rozšířit experimentální údaje na látku s nízkým pořadovým číslem Z . Byl vybrán polymetylmakrylát, jehož průměrné pořadové číslo je $Z = 3,6$. Výsledky jsou srovnány s Lenzovou teorií, která zatím nejlépe vystihovala experimentální výsledky jiných autorů.

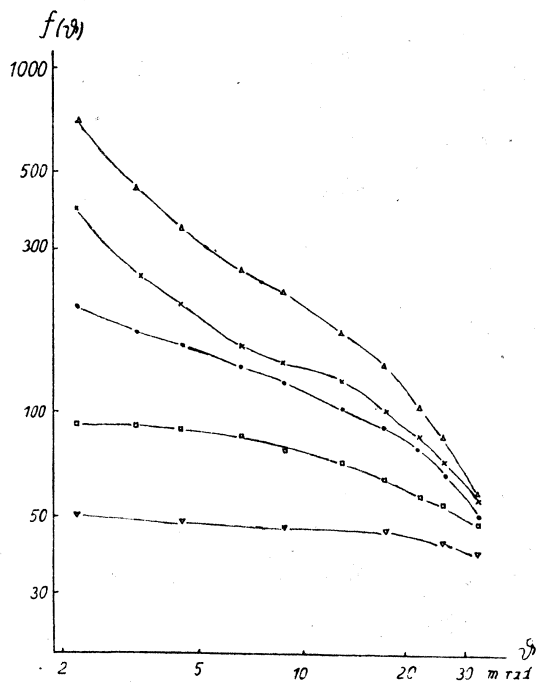
Experimentální hodnoty rozdělování funkce

Folie polymetylmakrylátu byly připravovány smáčením sklíček v jeho chloroformovém roztoku. Tloušťka folií byla ovlivňována koncentrací roztoku a částečně i podmínkami pro odpařování rozpouštědla. Na přibližnou tloušťku vrstev a na její místní změny bylo možno usuzovat z interferenčního zbarvení. K přesnému měření tloušťky sloužila Tolanského metoda.

Pro měření rozptylu byl použit difrakční systém stolního elektronového mikroskopu Tesla BS 242 a fotografická registrace. Na týž film byly naexponovány rozptylové obrazce, čočkami rozšířený primární svazek a škála pro charakteristickou křivku fotomateriálu. Zčernání vyvolaného filmu bylo vyhodnoceno Zeissovým fotometrem a pomocí charakteristické křivky byly vypočteny relativní hodnoty rozdělovací funkce. Ke stanovení absolutních hodnot sloužilo změření expozičních dob a zčernání způsobeného primárním svazkem.

Před měřením bylo provedeno cejchování jmenovitého urychlovacího napětí 60 keV a efektivní vzdálenosti vzorku od roviny filmu, obojí z difrakce na mřížce zlata. Rozptyl byl exponován při malé proudové hustotě jednak proto, abychom omezili změny vzorku během měření, jednak pro přesnější měření expoziční doby. Odolnost folií proti jejich poškození byla kontrolována rozptylovými obrazci získanými před, během a po dlouhodobém ozáření.

Měření bylo provedeno pro pět vzorků s tloušťkami od $0,309 \mu\text{m}$ do $1,53 \mu\text{m}$. Chyby měření tloušťky nepřesahují 3%. Rozptyl byl změřen v úhlovém rozmezí od 2 do 40 mrad. Rozptylové obrazce byly fotometrovány ve dvou směrech na sebe kolmých, takže pro každý zvolený úhel odchytky byly získány čtyři hodnoty zčernání D . Odvozené hodnoty rozdělovací funkce jsou v tabulce 1 a na obr. 3. Pravděpodobná chyba relativních hodnot rozdělovací funkce je kolem 5% s výjimkou hodnot pro $\vartheta < 4$ mrad. Absolutně byla rozdělovací funkce stanovena s menší přesností.



Obr. 3 Experimentální hodnoty rozdělovací funkce pro vzorky 1-5. (1 - △, 2 - ×, 3 - ●, 4 - □, 5 - ▽)

Tabulka 1 Experimentální hodnoty rozdělovací funkce

ϑ mrad	vz. 1 0,309 μm	vz. 2 0,527 μm	vz. 3 0,754 μm	vz. 4 1,06 μm	vz. 5 1,53 μm
1,1		60,4	27,7	9,92	
2,2	71,5	40,0	20,6	9,23	5,00
3,3	44,7	24,7	17,3	9,03	
4,4	34,7	20,8	15,6	8,77	4,80
6,6	26,5	17,4	13,4	8,58	
8,8	22,9	16,0	12,3	7,58	4,62
13,1	17,0	12,6	10,1	7,13	
17,5	13,8	10,1	8,95	6,30	4,47
21,9	10,7	8,48	7,88	5,62	
26,2	8,50	7,13	7,17	5,45	4,16
32,8	5,72	5,63	6,11	4,75	3,88
39,4		4,48		3,38	
43,7				3,20	3,30

Teoretické hodnoty rozdělovací funkce

Integrace Botheových rovnic podle Lenze vede k výrazu pro rozdělovací funkci $f(\vartheta)$

$$\vartheta_0^2 f(\vartheta) = \int_0^\infty \exp \left[\frac{2p}{Z} \left\{ \frac{Z+1}{2} (y K_1(y) - 1) + 2 L(y) \right\} \right] \mathcal{J}_0(xy) y dy \quad (4)$$

v proměnných $x = \vartheta/\vartheta_0$, $y = \chi\vartheta_0$, kde p je relativní tloušťka vrstvy, Z pořadové číslo, K_1 modifikovaná Hankelova funkce $K_1 = -\frac{\pi}{2} H_1^{(1)}(iy)$ a

$$L(y) = -\frac{1}{2} y K_1(y) - K_0(y) - \ln \left(y + \frac{1}{2} \right) - \ln \frac{\gamma}{2}, \quad \ln \gamma = 0,5772.$$

Parametr ϑ_0 je definován vztahem $\vartheta_0 = \lambda/2\pi R$, kde λ je vlnová délka a R je parametr z Wentzelova modelu atomu. Veličinu R jsme vypočetli z obou užívaných závislostí na Z

$$R^{(1)} = a_H Z^{-1/3}$$

$$R^{(2)} = \sqrt{3} a_H Z^{-1/2}$$

a ze závislosti $R^{(3)} = 1,23 a_H Z^{-1/3}$,

která vedla k dobrému souhlasu teorie s experimentem u uhlíku [6]. Průměrný počet rozptylových kroků závisí lineárně na tloušťce t vzorku

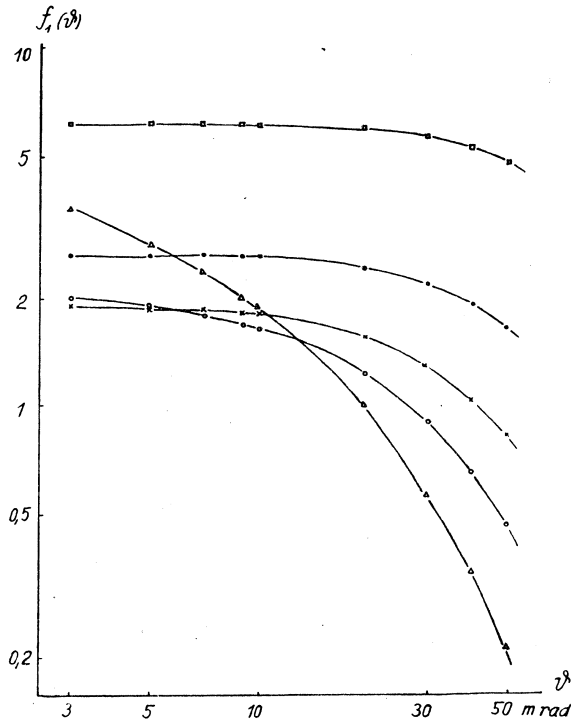
$$p = \gamma t = 1,05 \frac{Z^2 \varrho}{EA} R^2 t$$

kde ϱ je hustota látky, A její hmotové číslo a E je energie elektronů v eV. Ze tří zvolených závislostí pro R byly získány hodnoty p , které jsou uvedeny v tabulce 2.

Tabulka 2 Tloušťky vzorků t a jejich relativní tloušťky p

vzorek	t , μm	$p^{[1]}$	$p^{[2]}$	$p^{[3]}$
1	0,309	1,54	3,03	2,34
2	0,527	2,65	5,16	3,98
3	0,754	3,77	7,39	5,70
4	1,06	5,30	10,4	8,02
5	1,53	7,65	15,0	11,6

Výpočet funkce $f(\vartheta)$ podle vztahu (4) pro zadané hodnoty parametrů ϑ_0, p a argumentu ϑ provedlo Výpočetní středisko university Palackého na počítači Odra. Komplikovanost integrálu a množství počítaných funkčních hodnot vedly k tomu, že výpočet byl zdlouhavý, takže se ukázalo vzhledem k pomalé konvergenci integrandu nereálným normování. Vypočtené relativní hodnoty rozdělovací funkce jsou znázorněny na obr. 4.



Obr. 4a

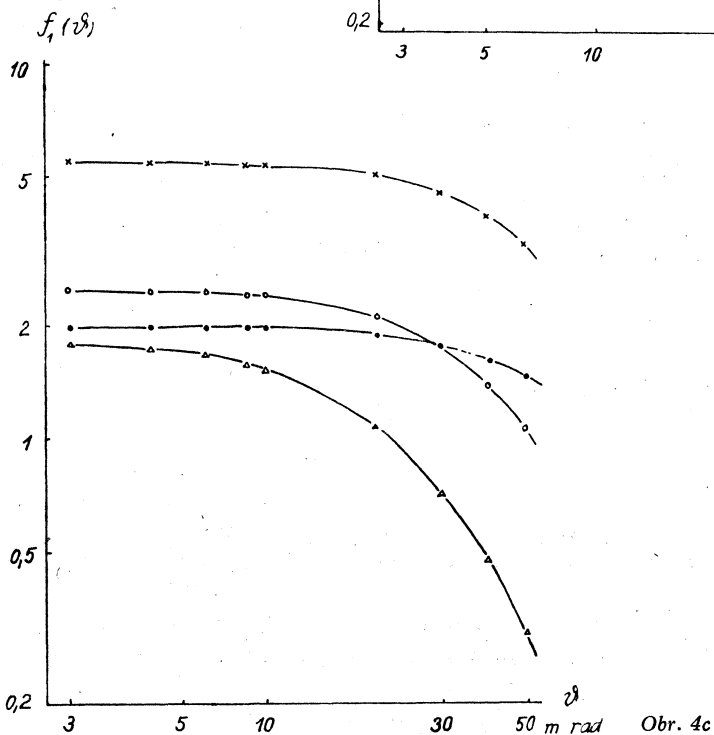
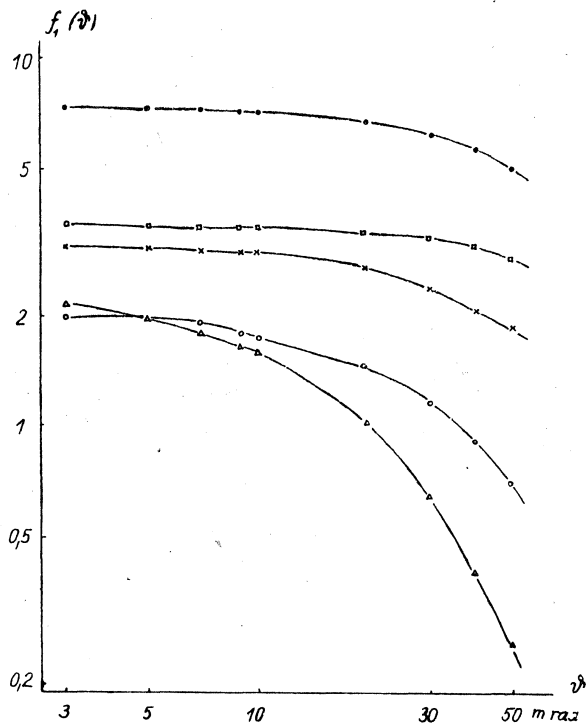
Obr. 4a, b, c. Teoretické hodnoty rozdělovací funkce pro vzorky 1-5. (1 - Δ , 2 - \circ , 3 - \times , 4 - \bullet , 5 - \square)

a) $R = a_H Z^{-1/3}$

b) $R = \sqrt[3]{3} a_H Z^{-1/3}$

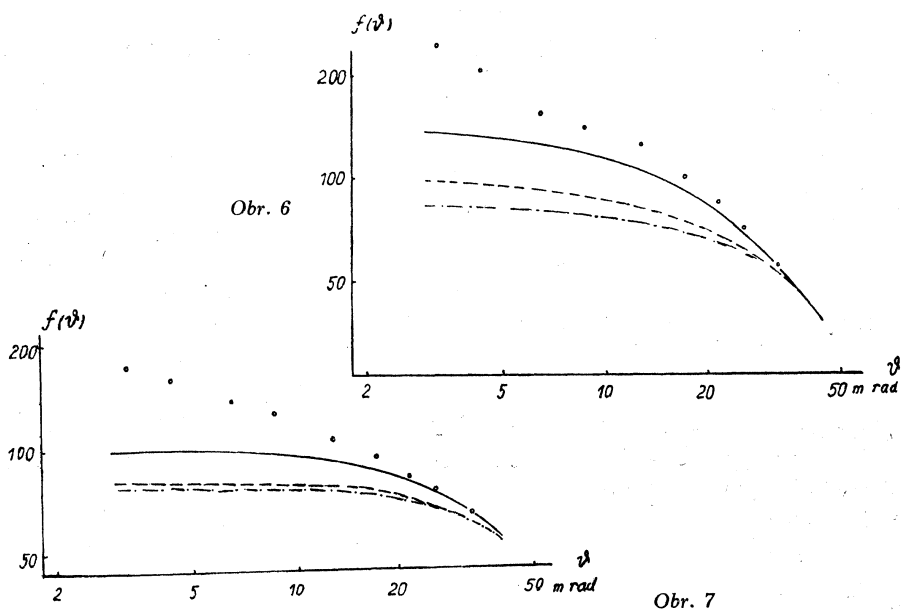
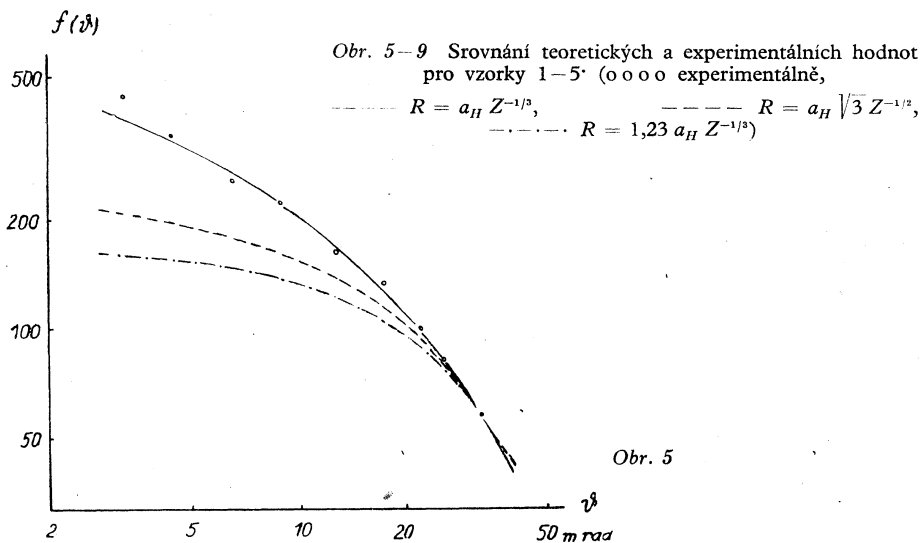
c) $R = 1,23 a_H Z^{-1/3}$

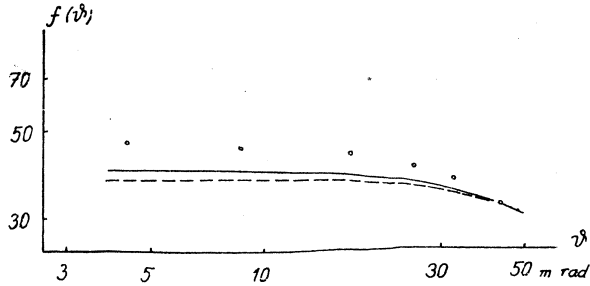
Obr. 4b



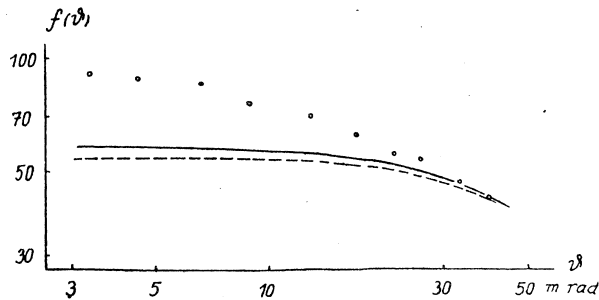
Srovnání teoretických a experimentálních hodnot

Teoretické a experimentální hodnoty mohly být srovnány jen relativně. Pro názorné grafické srovnání, byly teoretické hodnoty násobeny takovou konstantou, aby souhlasily s experimentálními pro argument $\vartheta \sim 35$ mrad. Z obr. 5–9 je





Obr. 8



Obr. 9

vidět, že teoretické hodnoty se nejvíce blíží experimentálním pro $\vartheta_0 = 0,0224$ rad, určené ze závislosti $R = a_H Z^{-1/3}$. Přitom nacházíme velmi dobrý souhlas u vzorku 1, u ostatních vzorků je průběh experimentálních hodnot strmější než průběh hodnot teoretických. Posledně uvedená skutečnost souhlasí s údaji Cosseleta a Thomase [4], kteří na měděných, stříbrných a zlatých foliích získali u tlustších vzorků v oblasti malých úhlů experimentální hodnoty značně vyšší než teoretické, a také s měřením, které provedl Haefer [6] na uhlíkových foliích. Jak je vidět z obr. 1, velmi dobrý souhlas teorie s experimentem nacházíme jen pro malá p . Už pro $p = 2$ mají pro $\vartheta/\vartheta_0 < 0,7$ experimentální hodnoty strmější průběh. Pro $p = 4$ a $p = 8$ je tato tendence ztelnější.

Lenzovu způsobu integrace Botheových rovnic je vytýkáno [10] použití jednoho konkrétního (Wentzelova) modelu rozdělení hustoty elektronů v atomovém obalu s volbou parametru R , který je třeba volit empiricky, neboť používané závislosti R na pořadovém čísle Z často neposkytují nejlepší hodnoty. V daném případě se ukázala jako vhodná volba $R = a_H Z^{-1/3}$. Vážnějším nedostatkem teorie je však to, že i při pečlivé volbě R je souhlas s experimentálními hodnotami pro silnější vzorky nedostatečný, jak to zjistila řada autorů. Výsledky získané na polymetylmetakrylátu s tímto závěrem souhlasí, i když hodnoty mohly být srovnány jen relativně.

LITERATURA

- [1] *Birkhoff*: Handbuch der Physik 34 (1958).
- [2] *Heidenreich*: Fundamentals of Transmission Electron Microscopy, Interscience Publishers, New York 1964.
- [3] *Lenz*: Z. Naturforsch. 9a (1954), 185.
- [4] *Cosselet, Thomas*: Brit. J. Appl. Phys. 15 (1964), 235, 883.
- [5] *Leisegang*: Z. Phys. 132 (1952), 183.
- [6] *Haefer*: Optik 17 (1960), 213.
- [7] *Burg, Smith*: Proc. Phys. Soc. 79 (1962), 673.
- [8] *Burg, Smith*: Proc. Phys. Soc. 81 (1963), 612.
- [9] *Mott*: Proc. Roy. Soc. A 127 (1930), 658.
- [10] *Hilgner, Kessler*: Z. Phys. 187 (1965), 119.

ZUSAMMENFASSUNG

DIE STREUUNG VON ELEKTRONEN IN POLYMETHYLMETA-KRYLATSCHICHTEN

LUDVÍK HODULÁK

Die Geltung der nach Lenz integrierten Botheschen Gleichungen für die Mehrfachstreuung von Elektronen in Festkörpern, wurde experimentell auf Metallen und Kohlenstoff untersucht [4, 6, 10]. Dieser Artikel bringt die Resultate für Polymethylmetakrylat, d. i. für eine Verbindung mit der niedrigen mittleren Atomzahl. Die experimentellen Werte sind mit theoretischen Werten für drei verschiedene Werte des Parameters R verglichen. Der Vergleich zeigt, dass der Wert R , der aus $R = a_H Z^{-1/3}$ gewonnen wurde, zur besten Approximation führt. In diesem Falle ist die Übereinstimmung der theoretischen Kurven mit den experimentellen Kurven den Feststellungen anderer Autoren ähnlich.

SUMMARY

THE SCATTERING OF ELECTRONS IN THE POLYMETHYLMETACRYLATE FOILS

LUDVÍK HODULÁK

Bothe's equations for plural scattering of electrons in solids integrated by Lenz were experimentally verified by some authors on metals and carbon [4, 6, 10]. The present paper gives this verification on compound with low average atomic number, on polymethylmetacrylate. The experimental results are compared with theoretical (relative values only) for three different values of parameter R . The comparison prefers the value given by $R = a_H Z^{-1/3}$. In this case the agreement of theoretical and experimental curves is similar to that obtained by other authors.