

Reichlich Formeln, Worte, Bilder, fehlt nur vorneweg ein Spruch.

Experimentelle Physik

Simulation der Kontrastentstehung bei hoch aufgelösten
elektronenmikroskopischen Elementverteilungsbildern
von orientierten Kristallen

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften im Fachbereich Physik
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster

vorgelegt von
Peter Stallknecht
aus Jugenheim an der Bergstraße
- 1997 -

Inhaltsverzeichnis

Variablenliste	3
1 Einleitung	6
2 Phänomenologische Betrachtung der Kontrastentstehung	9
2.1 Elastische Streuung	9
2.2 Unelastische Streuung an inneren Schalen	10
2.3 Erhaltung des elastischen Kontrasts	12
3 Formale Beschreibung der Kontrastentstehung	15
3.1 Überblick über die formale Beschreibung	15
3.2 Streuprozesse im Kristall	18
3.3 Abbildung im Mikroskop	23
4 Modellrechnungen	32
4.1 Modellsubstanz GaAs	32
4.2 Simulationsparameter	33
4.3 Ergebnisse mit Diskussion	34
5 Grenzfallbetrachtungen	42
5.1 Grenzfall niedrigen Energieverlusts	43
5.2 Grenzfall hohen Energieverlusts	45
6 Zusammenfassung	48

A	Zur elastischen Streuung: dynamische Theorie	50
B	Zur unelastischen Streuung: Greenfunktionen und Auswertung des Übergangsmatrixelements	55
C	Exzitonendarstellung	60
D	Wellenoptische Beschreibung des Abbildungsprozesses	66
E	Literaturverzeichnis	70

Zusammenstellung der kapitelübergreifend verwendeten Variablen

$\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2, \mathbf{a}_3$	Basisvektoren des realen Gitters
b	Bildweite
$\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3$	Basisvektoren des reziproken Gitters
c	Lichtgeschwindigkeit
$c_{\mathbf{g}}^{(j)}$	Entwicklungskoeffizienten der Blochwelle Nr. j , Eigenvektoren der linearisierten Dispersionsgleichung
d	Dicke der Kristallprobe
δ	diracsche δ -Distribution oder Kronecker-Symbol
Δ	Laplace-Differenzialoperator
ΔE	Energieverlust des Primärelektrons
Δf	Defokus
e	Elementarladung
\mathbf{e}_z	Einheitsvektor in z -Richtung
E	kinetische Energie des einfallenden Primärelektrons, zugleich Gesamtenergie des Systems
E_n	Eigenenergien des Kristalls; E_0 : Energie seines Anfangszustands, null gesetzt
ε_0	elektrische Feldkonstante
$\varepsilon^{(j)}$	Anregungskoeffizient der Blochwelle Nr. j
η	Kleinheitsparameter
f	Brennweite
$\varphi_{n_0 l_0 m_0}, \varphi_{\kappa l' m'}$	Anfangs- bzw. Endzustand des Einzelatoms
Φ_n	Eigenzustände des Kristalls; Φ_0, Φ_m : Anfangs- bzw. Endzustand
g	Gegenstandsweite
\mathbf{g}	reziproker Gittervektor
$\gamma^{(j)}$	Differenz zwischen Wellenvektor der Blochwelle Nr. j im Kristall und Vakuumwellenvektor, Eigenwert der linearisierten Dispersionsgleichung
\hbar	plancksches Wirkungsquantum $h/2\pi$
H_E	Hamilton-Operator des freien Primärelektrons

H_{EK}	Hamilton-Operator der Wechselwirkung zwischen Primärelektron und Kristall
H_K	Hamilton-Operator der Gesamtheit der Kristallelektronen
H_{mn}	Übergangsmatrixelement $\langle \Phi_m H_{EK} \Phi_n \rangle$
$H_{mn}^{j'j}$	Übergangsmatrixelement $\langle \psi^{(j')} H_{mn} \psi^{(j)} \rangle$
I_B	Intensität in der Bildebene; I_{0B} , I_{mB} : für rein elastisch bzw. elastisch-unelastisch gestreute Elektronen
j	Nr. der Blochwelle (Bandindex)
\mathbf{k}	Laufvariable für Wellenvektorintegration
$\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_m$	Vakuumwellenvektor des Primärelektrons vor bzw. nach dem unelastischen Streuprozess
$\check{\mathbf{k}}$	Kürzel für (k_x, k_y, k_{mz})
\mathbf{K}	Exzitonenwellenvektor $(K_x, K_y, 0)$; $\hbar \mathbf{K}$: Impulsübertrag auf den Kristall
$\check{\mathbf{K}}$	Kürzel für $(k_{0x} - K_x, k_{0y} - K_y, k_{mz})$
κ	Wellenzahl des herausgeschlagenen Hüllenelektrons
l_0, l', l_1	Bahndrehimpulsquantenzahl: atomarer Anfangszustand, Endzustand bzw. Laufvariable
m_0, m', m_1	Magnetquantenzahl: atomarer Anfangszustand, Endzustand bzw. Laufvariable
m_e	Elektronenmasse
M	Mikroskopvergrößerung
$\mu^{(j)}$	Absorptionskoeffizient der Blochwelle Nr. j
$\mu^{j'j}$	Kürzel für $\mu^{(j)} + \mu^{(j')}$
n_0	Hauptquantenzahl des atomaren Anfangszustands
N_E, N_K	Anzahl aller Hüllenelektronen bzw. Atomkerne des Kristalls
\tilde{N}	Anzahl der Atome mit der interessierenden inneren Schale, die in der Rechnung konkret betrachtet werden; $\tilde{N}_x, \tilde{N}_y, \tilde{N}_z$: Anzahl der Lagen dieser Atome in x -, y - bzw. z -Richtung
$N_{l_0 m_0}$	Besetzungszahl des atomaren Anfangszustands
p	Superindex (p_x, p_y, p_z) , der die konkret betrachteten Atome lagenorientiert in x -, y - und z -Richtung durchnummeriert

ψ	Zustandsfunktion des Primärelektrons; $\psi_X, \psi_L, \psi_A, \psi_B$: in der Objektaustrittsebene, Linsenebene, Aperturebene bzw. Bildebene; ψ_0, ψ_m : vor bzw. nach dem unelastischen Streuprozess; $\psi^{(j)}$: Blochwelle Nr. j
Ψ	Zustandsfunktion des Gesamtsystems aus Primärelektron und Kristall
$\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)$	Streuvektor $\mathbf{k}_0 - \mathbf{k} + \mathbf{g} - \mathbf{g}' + \boldsymbol{\gamma}^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\gamma}^{(j')}(\mathbf{k})$; $\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}$: Einheitsvektor in Richtung dieses Streuvektors
\mathbf{r}	Ortsvektor der Primärelektronenfeldes; $\mathbf{r}_X, \mathbf{r}_L, \mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B$: in der Objektaustrittsebene, Linsenebene, Aperturebene bzw. Bildebene
\mathbf{r}_p	Ortsvektor des Kristallatomelektrons Nr. p ; $\mathbf{r}_p \equiv (x_{px}, y_{py}, z_{pz})$; für die Bedeutung der Teilvektoren $\mathbf{r}_{pU}, \mathbf{r}_{pK}, \mathbf{r}_{pUK}(= \mathbf{r}_{UK}), \mathbf{r}_{pKE}$ siehe Abb. C.1
\mathbf{R}_i	Ortsvektor des Kristallatomkerns Nr. i
\mathbf{R}	Kürzel für $(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_E}; \mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \dots, \mathbf{R}_{N_K})$
T_A	Transmissionsfunktion der Aperturebene, einschließlich Linsenfehler, Defokus und Aperturblieder
Θ_0, Θ_E	charakteristischer elastischer bzw. unelastischer Streuwinkel
V	$V(\mathbf{r}, \mathbf{R})$: Operator der Coulomb-Wechselwirkung der Primärelektronenwelle mit den Hüllenelektronen und den Atomkernen des Kristalls (H_{EK} in Ortsdarstellung); $V(\mathbf{r})$: Kristallpotential $\langle \Phi_n(\mathbf{R}) V(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \Phi_n(\mathbf{R}) \rangle$
$W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}$	Kürzel, definiert in Gl. (B.11)
x, y, z	siehe \mathbf{r}
$\xi_{n_0 l_0}, \xi_{\kappa l'}$	Radialanteil der atomaren Zustandsfunktion $\varphi_{n_0 l_0 m_0}$ bzw. $\varphi_{\kappa l' m'}$
$Y_{l_0 m_0}, Y_{l' m'}$	Kugelfunktion, Winkelanteil der atomaren Zustandsfunktion $\varphi_{n_0 l_0 m_0}$ bzw. $\varphi_{\kappa l' m'}$
Z_i	Ordnungszahl von Kristallatom Nr. i
$\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix}$	3-j-Symbol

Kapitel 1

Einleitung

An der Entstehung eines konventionellen Hochauflösungsbildes im Hochauflösungs-Transmissionselektronenmikroskop (high-resolution transmission electron microscope, HRTEM) sind sowohl elastisch als auch unelastisch gestreute Elektronen beteiligt. Der Anteil der unelastisch gestreuten Elektronen macht sich dabei vornehmlich durch einen mehr oder weniger diffusen Untergrund bemerkbar, der als störend empfunden wird. Um sich seiner zu entledigen, muss man Mikroskope mit integriertem oder nachgeschaltetem abbildendem Energiefilter (energy-filtering transmission electron microscopes, EFTEM) einsetzen. Abb. 1.1 zeigt schematisch, an welcher Stelle in einem EFTEM das Filter sitzt. Das auf Energieverlust $\Delta E = 0$ eingestellte Filter lässt nur die elastisch gestreuten Elektronen passieren und fängt die unelastisch gestreuten (mit $\Delta E > 0$) ab (zero-loss filtering). Auf diese Weise erhält man eine Abbildung mit verbessertem Kontrast und prägnanteren, deutlicher hervortretenden Strukturen. Ein solches zero-loss-gefiltertes HRTEM-Bild eignet sich zudem besser für den quantitativen Vergleich mit begleitenden HRTEM-Simulationsrechnungen, da diese im Allgemeinen nur elastische Streuung berücksichtigen. Gleiches gilt bei der Aufnahme von Beugungsdiagrammen. Aus HRTEM-Aufnahmen von Einheitszellen, Gitterdefekten, Korngrenzen, Oberflächenstrukturen und Grenzschichten konnte viel wertvolle Information über die atomare Struktur einer Vielzahl von Materialien gewonnen werden.

Elastische HRTEM-Bilder dieser Art enthalten jedoch keine direkt zugängliche orts aufgelöste *analytische* Information über die lokale chemische bzw. atomare Zusammensetzung der abgebildeten Probe. Solche analytische Information kann man sich verschaffen, indem man die eigentliche Stärke des EFTEMs nutzt und mit Hilfe seines abbildenden Energiefilters für die Abbildung nur die Elektronen auswählt, die beim Durchgang durch die Probe einen elementspezifischen Energieverlust ΔE erlitten haben, der von der Innerschalen-Ionisation einer bestimmten Atomsorte herrührt. Weil zu einem solchen Energieverlust-

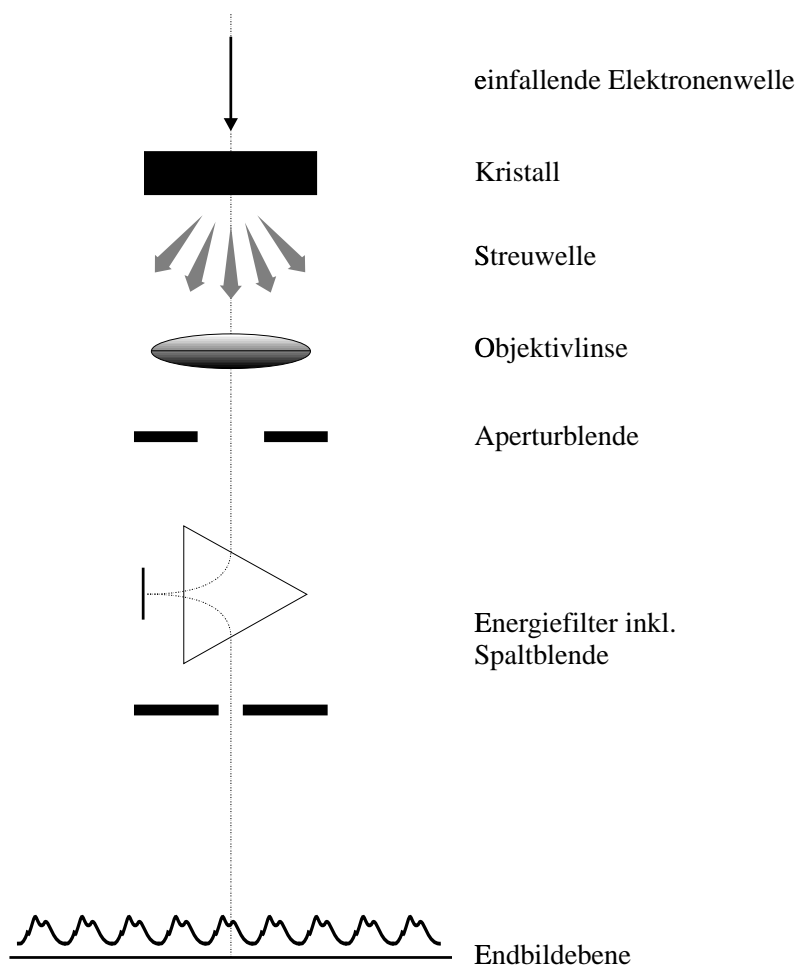


Abbildung 1.1: Schema des mit einer Kristallprobe bestückten EFTEMs. Gezeigt ist die prinzipielle Anordnung der für unsere Betrachtung einer energiegefilterten Abbildung wesentlichen Komponenten. Die einfallende, im Idealfall ebene Elektronenwelle wird in der als „Blackbox“ gezeichneten Kristallprobe elastisch und unelastisch gestreut. Die Streuwellen durchläuft nach Objektivlinse und Aperturblende das abbildende Energiefilter, das die Elektronen je nach ihrem in der Probe erlittenen Energieverlust verschieden stark ablenkt, so dass in der energiedispersiven Ebene mittels einer Spaltblende alle Elektronen abgefangen werden können, die nicht zum Bild in der Endbildebene beitragen sollen.

bild (electron spectroscopic image, ESI) ausschließlich¹ Elektronen beitragen, die mit der Elektronenhülle eines Atoms in unelastische Wechselwirkung getreten sind, das Vertreter

¹Im Rahmen der gesamten Arbeit setzen wir voraus, dass das ESI-Bild um den Beitrag derjenigen Elektronen bereinigt ist, die den per Energiefilter ausgewählten Energieverlust auf andere Weise als durch den charakteristischen Innerschalen-Übergang erlitten haben. Wir reden also durchgängig von bereits „untergrundkorrigierten“ Bildern.

eines bestimmten Elements ist, stellt dieses ESI-Bild ein Elementverteilungsbild (elemental map) dar: Hohe Intensitäten im Bild zeigen die Stellen an, wo das Element vorkommt.

Mit heute auf dem Markt erhältlichen Elektronenmikroskopen ist man in der Lage, ESI-Bilder aufzunehmen, die in ihrer Auflösung an „echte“ (elastische) HRTEM-Bilder heranreichen und wie diese die atomare Struktur der untersuchten Probe sichtbar machen können. Deshalb wollen wir solche ESI-Bilder ebenfalls als „hoch aufgelöst“ bezeichnen. Mit gewissem Recht kann man von der Verschmelzung der beiden Konzepte HRTEM und elementspezifischem EFTEM reden und folglich die Abkürzungen HREFTEM und HRESI einführen. Genau an dieser Stelle tritt jedoch das Problem auf, um das es in der vorliegenden Arbeit geht: Die elastische Streuung, die im HRTEM-Bild den Kontrast im Wesentlichen formt, findet in der Probe natürlich auch dann statt, wenn zur Erzeugung einer HRESI-Abbildung nur bestimmte unelastisch gestreute Elektronen zugelassen werden. Ist die Probe ein Kristall, d. h., bildet sich durch die kollektive elastische Streuung (Beugung) in der Probe ein Elektronenwellenfeld mit mehreren scharf definierten Ausbreitungsrichtungen aus, wird dies nicht ohne Folgen für die Kontrastentstehung in der Bildebene bleiben. Die Frage lautet dann: Was sieht man eigentlich? – Ist mein HRESI-Bild tatsächlich ein Elementverteilungsbild, worin sich die Positionen der gewünschten Atomsorte abzeichnen? Oder wird es vielmehr von der elastischen Streuung beeinflusst oder gar beherrscht („Erhaltung des elastischen Kontrasts“)? Zeichnen sich also trotz Energiefilterung auch die anderen Atomsorten ab – oder wird eine Interpretation des Kontrasts dadurch gänzlich unmöglich?

Zur Klärung dieser Fragen sind Simulationsrechnungen erforderlich, die experimentelle Arbeiten auf dem Gebiet HREFTEM begleiten sollen. Zur Entwicklung der Programme gehen wir von der Schrödingergleichung aus, verwenden für die elastische Streuung den Blochwellenformalismus der dynamischen Theorie und für die unelastische Streuung eine Störungstheorie erster Ordnung unter Einsatz von Greenschen Funktionen. Wichtig ist dabei eine exzitonenartige Darstellung des angeregten Kristallzustands, da sie die numerische Auswertung der sich ergebenden Ausdrücke in endlicher Rechenzeit ermöglicht. Um unsere Rechenmethode zu testen und das Auftreten des vermuteten Kontrastverhaltens zu verifizieren, berechnen wir Dickenserien von Linienprofilen durch HRESI-Netzebenenabbildungen von Galliumarsenid und versuchen, aus der Entwicklung des Kontrasts mit zunehmender Kristalldicke und aus dem Vergleich mit den entsprechenden elastischen Linienprofilen prinzipielle Aussagen abzuleiten.

Einen Gesamtüberblick über die theoretische Beschreibung der Wechselwirkungsprozesse im Kristall und des Abbildungsvorgangs im Mikroskop gibt Abb. 3.1 in Kap. 3.1. Die dort angegebenen Zahlen und Buchstaben zeigen an, in welchen Kapiteln und Anhängen sich die eingehenden Erörterungen der einzelnen Punkte finden. Eingeklammerte Zahlen verweisen auf die entsprechend nummerierten Gleichungen.

Kapitel 2

Phänomenologische Betrachtung der Kontrastentstehung

Dieses Kapitel bringt einige Erläuterungen, welche die am Geschehen im Kristall beteiligten Prozesse veranschaulichen. Was grundsätzlich zu derartigen Veranschaulichungen gesagt werden muss, gilt auch hier: Sie sollen ein beobachtetes Verhalten möglichst einfach und direkt plausibel machen und erheben nicht den Anspruch, der streng formalen Behandlung gleichwertig zu sein und deren Vorhersagekraft zu besitzen. Die Abschnitte dieses Kapitels sind deshalb mit einer gewissen Vorsicht zu genießen. Bei diesen Erläuterungen wird die Abbildung im Mikroskop als ideal angenommen, so dass ein verfälschender Einfluss hierbei außer Acht gelassen werden kann. Nach vorbereitenden allgemeinen Ausführungen über elastische und unelastische Streuung von Elektronen an Atomen werden die beiden Mechanismen erklärt, die zur Kontrastentstehung in einem transmissionselektronenmikroskopischen Energieverlustbild eines Kristalls beitragen. Diese beiden Kontrastmechanismen sind:

- die Ausbildung des „echten“ unelastischen Kontrasts
- die sogenannte „Erhaltung des elastischen Kontrasts“

2.1 Elastische Streuung

Die elastische Wechselwirkung zwischen einem schnellen Elektron und einem ruhenden Einzelatom kann man sich in halbklassischer Betrachtung als kernnahen Vorbeiflug eines geladenen Teilchens vorstellen, das aufgrund des elektrostatischen Coulombpotentials des Kerns aus seiner Flugbahn abgelenkt wird (Abb. 2.1).

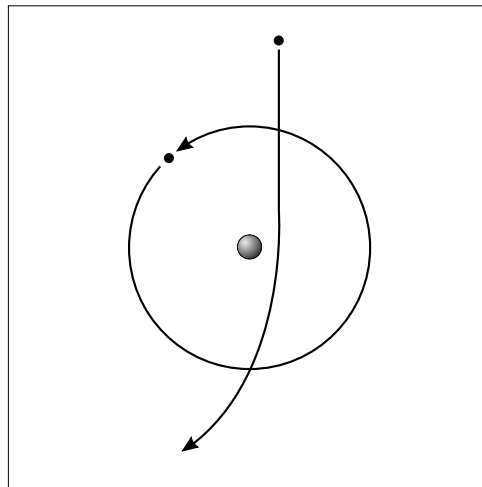


Abbildung 2.1: Veranschaulichung der elastischen Streuung eines Elektrons an einem Atom. Wechselwirkungspartner ist der Atomkern.

Diese Wechselwirkung ist stark lokalisiert, weil für weiter außen vorbeifliegende Elektronen das Kernpotential durch die Hüllenelektronen abgeschirmt wird. Infolgedessen erfolgt die Streuung in große Winkel: Der charakteristische Streuwinkel Θ_0 beträgt einige 10 mrad. Die großen Streuwinkel ermöglichen in einem Elektronenmikroskop, wo solche Elektronen zur Abbildung eingesetzt werden, eine hohe Auflösung.

Wegen der im Vergleich zum Elektron sehr großen Masse des Kerns findet kein bzw. ein vernachlässigbar kleiner Impuls- und Energieübertrag vom Elektron auf den Kern statt, weshalb wir von „elastischer“ Streuung reden können. Im Wellenbild betrachtet, heißt das: An verschiedenen Atomkernen elastisch gestreute Elektronenwellen überlagern sich kohärent. Das kollektive Phänomen einer Gesamtheit von kohärenten elastischen Streuprozessen, wie sie in den uns interessierenden periodischen Kristallstrukturen auftreten, nennt sich Beugung. Lässt man bei einer elektronenmikroskopischen Aufnahme nur die elastisch gestreuten Elektronen zur Bildentstehung beitragen, ergibt sich der „elastische Kontrast“. Dies ist beispielsweise bei zero-loss-gefilterten HRTEM-Bildern der Fall.

2.2 Unelastische Streuung an inneren Schalen

Auch die unelastische Wechselwirkung zwischen einem schnellen Elektron und einem ruhenden Atom soll kurz in halbklassischer Betrachtung veranschaulicht werden. Hierbei interessiert uns nur die Wechselwirkung mit inneren Schalen der Atomhülle, weil deren Ionisierungsenergie eine für die verschiedenen chemischen Elemente charakteristische

Größe ist. Abb. 2.2 deutet an, dass die unelastische Streuung, bei der vom vorbeifliegenden Primärelektron ein Hüllenelektron aus seiner Schale herausgeschlagen wird, weniger stark lokalisiert ist als die elastische: Die Wechselwirkung kann innerhalb eines größeren Raumbereichs erfolgen, eine Impulsübertragung ist auch bei weitem Vorbeiflug möglich. Entsprechend ist die Ablenkung aus der ursprünglichen Flugbahn geringer.

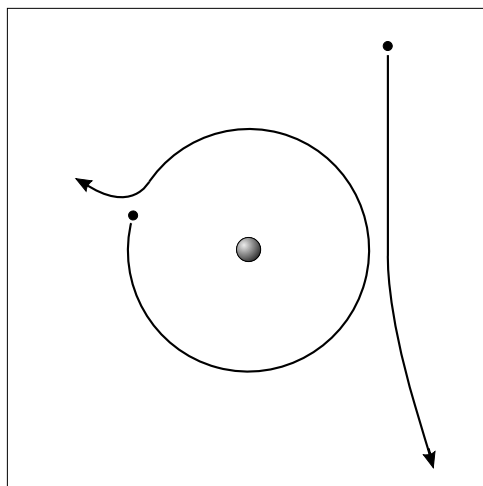


Abbildung 2.2: Veranschaulichung der unelastischen Streuung eines Elektrons an einem Atom. Wechselwirkungspartner ist die Atomhülle.

Plausibel wird diese Aussage durch die Überlegung, dass die Ladung des Hüllenelektrons über einen größeren Bereich verschmiert ist als die des Atomkerns, weshalb die auf das Primärelektron wirkende elektrostatische Kraft schwächer ist als im elastischen Fall. Oder alternativ durch die Überlegung, dass das Hüllenelektron, weil es die gleiche Masse wie sein Stoßpartner hat, während des Wechselwirkungsprozesses mit dem Primärelektron „zurückweicht“. Wie oben bereits gesagt, kann eine solche Betrachtungsweise mehr als eine Plausibelmachung nicht leisten.

Die unelastische Streuung erfolgt deshalb überwiegend in Vorwärtsrichtung. Ihr charakteristischer Streuwinkel Θ_E ist deutlich kleiner als der der elastischen Streuung: Für eine Primärelektronenenergie von 100 keV beträgt er bei einem Energieverlust von 20 eV beispielsweise 0,1 mrad. Bei einem Energieverlust von 1400 eV, wie er in den Modellrechnungen in Kap. 4 für Arsen angenommen wird, sind es 7 mrad. Die mit unelastisch gestreuten Elektronen erzielbare Auflösung in einem Elektronenmikroskop ist demzufolge auch bei größeren Energieverlusten kleiner als im elastischen Fall. Anders gesagt: Wenn man eine Mikrostruktur nicht elementspezifisch abbilden will, sondern höchstmögliche Auflösung anstrebt, wird man für die Abbildung nicht die unelastisch gestreuten Elektronen auswählen, sondern die elastisch gestreuten. Zumal als experimentelle Schwierigkeit

hinzukommt, dass der unelastische Wirkungsquerschnitt sehr klein ist, so dass man ein vergleichsweise schlechtes Signal-Rausch-Verhältnis bekommt.

Die verschiedenen quantenmechanischen Endzustände eines Einzelstreuers nach der unelastischen Wechselwirkung sind sowohl untereinander als auch zu denen der anderen Streuzentren orthogonal, so dass sich die Gesamtstreuwellen im unelastischen Fall aus den inkohärent überlagerten Einzelstreuwellen zusammensetzt.

2.3 Erhaltung des elastischen Kontrasts

Zur Veranschaulichung der beiden Kontrastmechanismen, die die Entstehung des Kontrasts im Energieverlustbild eines Kristallpräparats erklären können, soll Abb. 2.3 dienen. Nach Art eines Gedankenexperiments konstruieren wir uns vier Streuszenarien mit einer einfallenden Elektronenwelle und einem Atom, an dem entweder gar keine Streuung oder ausschließlich unelastische Streuung mit einem bestimmten Energieverlust erfolgen kann. Die resultierende Streuwelle wird in eine Bildebene abgebildet.

Wir nehmen an, dass in den beiden rechten Teilabbildungen die unelastische Streuung an dem Atom, das inklusive Elektronenhülle stilisiert als Kugel dargestellt ist, mit 100 Prozent Wahrscheinlichkeit erfolgt, so dass keine ungestreuten oder am Atom elastisch gestreuten Elektronen in die Bildebene gelangen. Dadurch sparen wir uns das Einzeichnen eines Energiefilters. In den beiden linken Teilabbildungen dagegen soll keine Streuung stattfinden, das Atom sei „deaktiviert“ oder einfach nicht vorhanden. Teilabb. a zeigt den trivialen Fall, dass die einfallende Elektronenwelle eine ebene Welle ist, mit der nichts weiter passiert, so dass in der Bildebene nur konstante Intensität ohne Kontrast zu sehen ist. In Teilabb. b tritt die gleiche ebene Welle mit dem Atom in unelastische Wechselwirkung. Der kürzer gewordene, verbreiterte Pfeil deutet an, dass das einfallende Elektron dabei Energie verliert und hauptsächlich in Vorwärtsrichtung gestreut wird. Was man in der Bildebene sieht, ist der „echte“ unelastische Kontrast, der allein von den am betrachteten Atom unelastisch gestreuten Elektronen erzeugt wird, ohne dass andere Faktoren auf die Form des Elektronenwellenfeldes Einfluss haben.

In Teilabb. c denken wir uns die einfallende Elektronenwelle aus mehreren ebenen Wellen zusammengesetzt, die aus verschiedenen Richtungen kommen und *zueinander kohärent* sind. Genau einen solchen Wellentyp haben wir vorliegen, wenn Elektronen mit einem Kristall elastisch wechselwirken und durch dessen Gitterperiodizität in die Blochwellenform gezwungen werden (vgl. Abb. A.1 und auch Abb. 3.1). Da wie im Fall a an dem gedanklich deaktivierten Atom keinerlei Wechselwirkung erfolgen soll, bleibt das Wellenfeld unverändert und erzeugt in der Bildebene einen Kontrast allein aufgrund der Interferenz seiner ebenen Partialwellen. Somit repräsentiert Szenarium c, wenn wir die Gesamtheit der skizzierten Partialwellen gedanklich mit dem Blochwellenfeld in einem Kristall

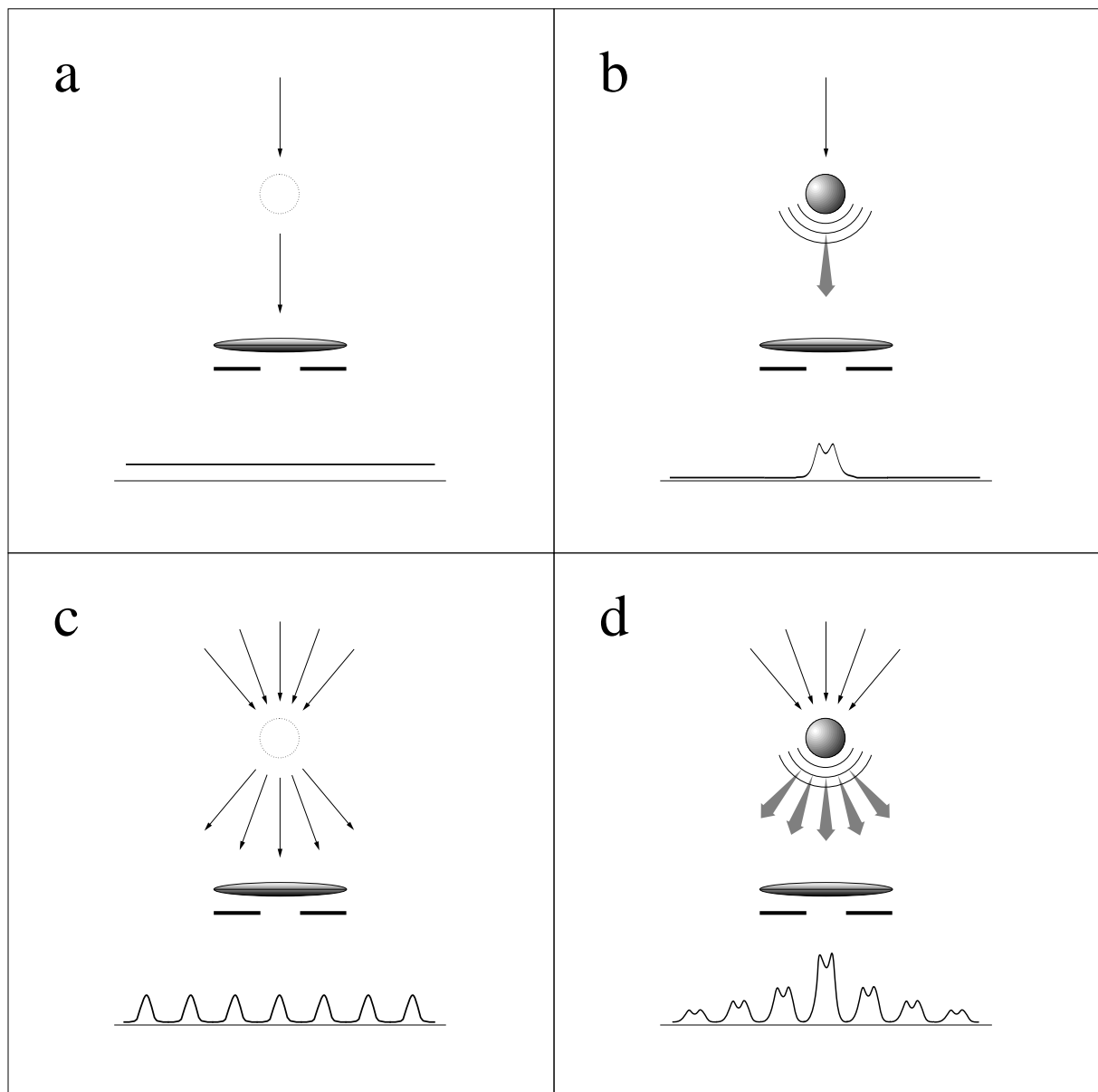


Abbildung 2.3: Vier fiktive Streuszenarien zur anschaulichen Erläuterung der Kontrastmechanismen. Links sei die unelastische Streuwahrscheinlichkeit null, rechts eins. In der Bildebene entsteht: kein Kontrast (a), ein „echter“ unelastischer Kontrast (b), ein rein elastischer Kontrast (c), ein unelastischer Kontrast, der dominiert ist von der „Erhaltung des elastischen Kontrasts“ (d). In keiner der Teilabbildungen ist eine elastische Streuung dargestellt; die Verwendung des Begriffs „elastischer Kontrast“ rechtfertigt sich hier dadurch, dass man sich die Form des einfallenden Wellenfeldes in c und d durch eine vorausgegangene elastische Streuung in einer Kristallstruktur entstanden denken kann.

identifizieren, den Fall der rein elastischen Streuung, die zum elastischen Kontrast in der Bildebene führt. In Teilabb. d schließlich ist die Kombination von Fall b und c gezeigt: Wenn eine (blochwellenförmige) Schar von kohärenten ebenen Wellen auf das Atom einfällt und von ihm (überwiegend in Vorwärtsrichtung) unelastisch gestreut wird, dann wird in der resultierenden Streuwelle die Blochwellenform zwar etwas aufgeweitet werden, aber grundsätzlich erhalten bleiben. Mithin ist anschaulich klar, dass in der Bildebene der aus Fall c bekannte elastische Kontrast nicht völlig verschwunden sein, sondern zumindest teilweise erhalten bleiben wird. Diese „Erhaltung des elastischen Kontrasts“ tritt also als zweiter Mechanismus neben den in Teilabb. b illustrierten Mechanismus der Ausbildung des „echten“ unelastischen Kontrasts, wenn es darum geht, die Kontrastentstehung im Energieverlustbild eines kristallinen Präparats qualitativ zu erklären.

Das Streuszenarium d deckt sich nicht in vollem Umfang mit der Betrachtung eines unelastisch streuenden Kristallatoms. Denn die Streuwelle eines von periodischer Struktur umgebenen Atoms ist in ihrer Gestalt nicht nur von der elastischen Beugung *vor* dem unelastischen Streuprozess geprägt, sondern sie erfährt *danach* einen weiteren Beugungsvorgang, der in der Zeichnung nicht dargestellt ist. Für die Anschauung wird spätestens mit dieser Zusatzüberlegung evident, dass zwischen einzelnen der Partialwellen, aus denen man sich die unelastische Streuwelle zusammengesetzt denken kann, tatsächlich eine Kohärenzbeziehung besteht, so dass der Kontrast in der Bildebene elastische Anteile haben muss.

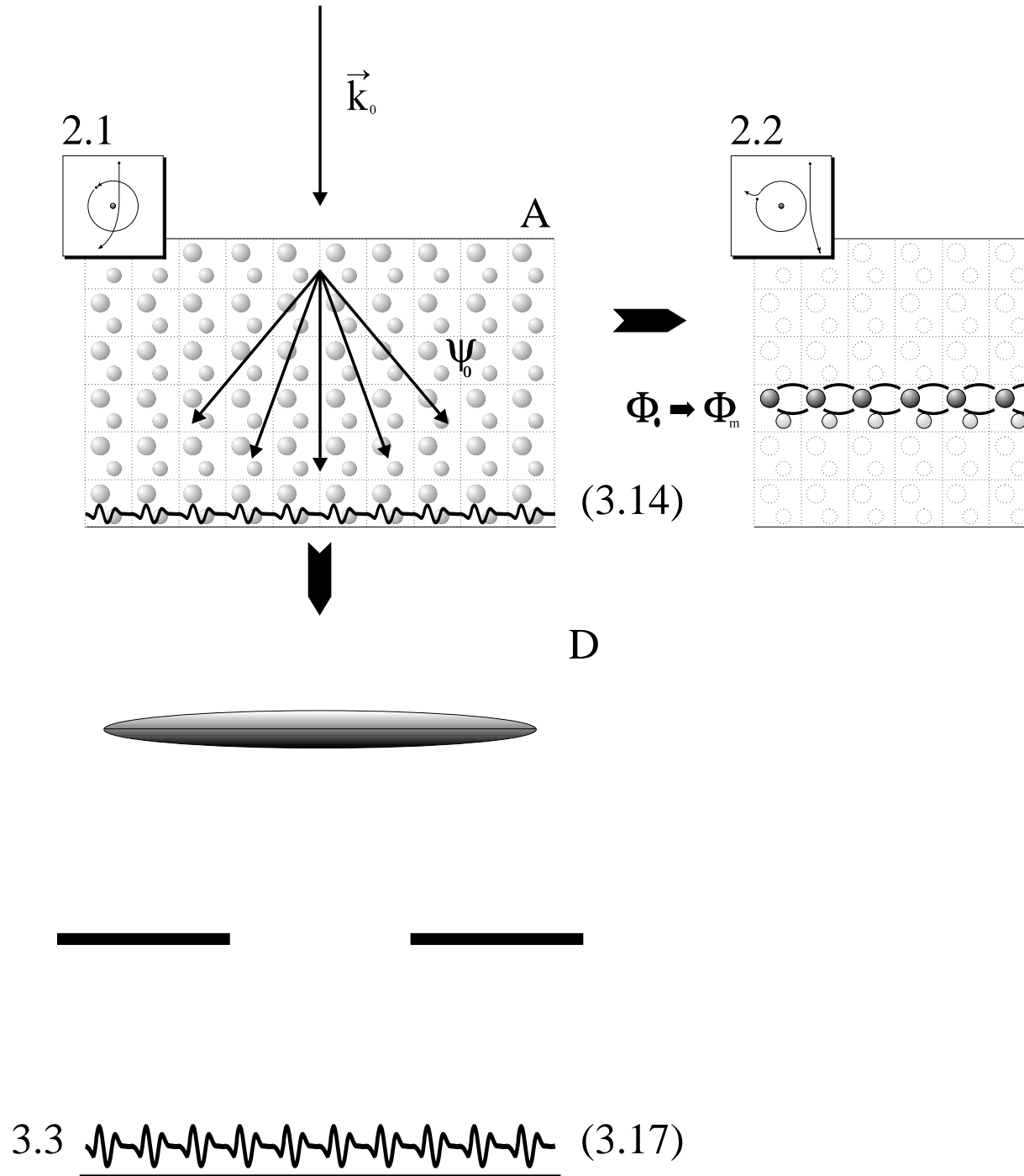
Der Terminus „echter unelastischer Kontrast“ benennt den in einem experimentellen Energieverlustbild erwünschten Kontrastanteil, denn er hat seinen Ursprung allein an den Orten der interessierenden Atomsorte. Gäbe es nur ihn, könnte man jedes Energieverlustbild bedenkenlos als Elementverteilungsbild auffassen. Die „Erhaltung des elastischen Kontrasts“ dagegen ist der störende Effekt, der die Interpretation der Bilder massiv erschweren und im schlimmsten Fall zu Fehldeutungen führen kann.

Kapitel 3

Formale Beschreibung der Kontrastentstehung

3.1 Überblick über die formale Beschreibung

Einen grafischen Gesamtüberblick über unsere Vorgehensweise bei der formalen Beschreibung der Kontrastentstehung gibt Abb. 3.1. Das Schaubild spiegelt die begrifflich-mathematische Modellierung der Wechselwirkungsprozesse im Kristall und des Abbildungsvorgangs im Mikroskop wider. Die Zahlen und großen lateinischen Buchstaben nennen das Kapitel bzw. den Anhang, wo der jeweilige Teilaspekt im Einzelnen behandelt ist. Zahlen in Klammern verweisen auf die zugehörigen Formeln. Die Dreiteilung der Zeichnung liegt darin begründet, dass wir die Prozesse im Kristall als Abfolge von elastischer, unelastischer und nochmaliger elastischer Streuung diskutieren, wie es sich im nächsten Unterkapitel aus der Behandlung der Schrödingergleichung formal ergibt. Oder, als alternative Sichtweise: Wir betrachten die Wahrscheinlichkeit des Übergangs von der elastischen Streuwelle ψ_0 in die elastische Streuwelle ψ_m , wobei zuerst diese beiden elastischen Streuwellen (Blochwellen) berechnet werden müssen und danach das Übergangsmatrixelement, das die unelastische Streuung beschreibt, mit welcher der Übergang des Kristalls vom Anfangszustand Φ_0 in den angeregten Endzustand Φ_m einhergeht.



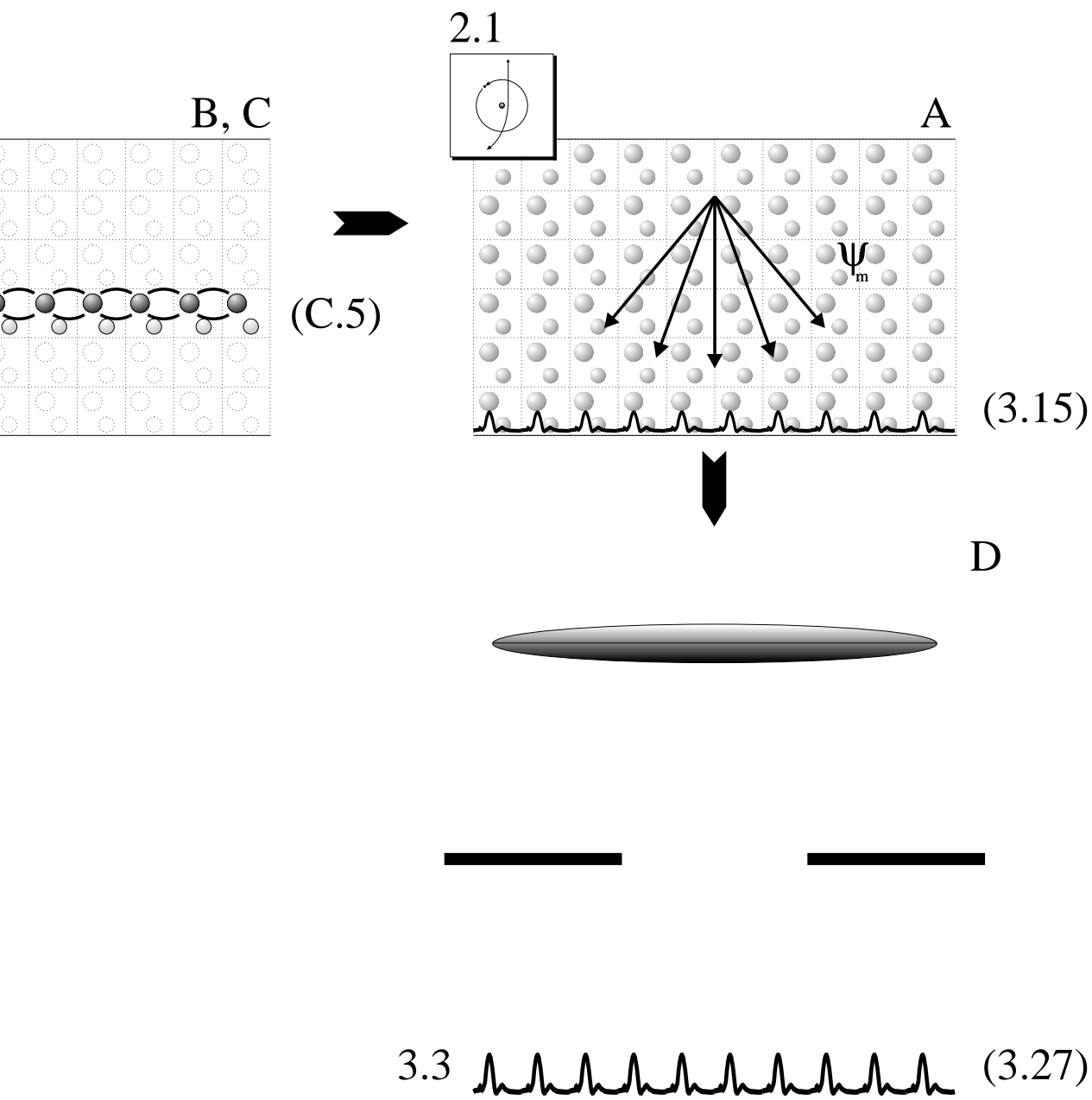


Abbildung 3.1: Gesamtüberblick über die Modellierung der Prozesse im Kristall und im Mikroskop. Erläuterungen im Text.

Die schematische Koppelung einer Kristallatomlage im Mittelteil des Schaubildes deutet die exzitonenartige Darstellung an, die wir im Verlauf der Rechnung schichtweise für den angeregten Kristall verwenden werden. Die Atome aller anderen Schichten sind dabei jeweils „deaktiviert“. Das Energiefilter taucht im Schaubild nicht auf, weil es in der Rechnung dadurch Berücksichtigung findet, dass von vornherein nur diejenige Streuwellen berechnet wird, die zu dem im Experiment mittels Filter ausgewählten Energieverlust gehört.

Das Gesamtschaubild ohne die Schemadarstellung des Abbildungsprozesses links unten zeigt das prinzipielle Vorgehen bei der Simulation eines Energieverlustbildes; Formel (3.27) beschreibt den unelastischen Kontrast, der am Ende in der Bildebene zu sehen ist. Die Schritte, die zur Simulation des rein elastischen Kontrasts nötig sind, kann man ablesen, wenn man nur das linke Drittel des Schaubildes betrachtet.

Darüber hinaus bietet das Schaubild „abgespeckt“ eine zu Abb. 2.3 b alternative Möglichkeit, sich die Bedeutung des Terminus „echter unelastischer Kontrast“ zu veranschaulichen: Wenn die Kristallatome im linken und rechten Drittel des Schaubildes irgendwie „deaktiviert“ oder nicht vorhanden wären, fände vor und nach dem unelastischen Prozess keine elastische Streuung statt. Es würden sich also keine Blochwellen ausbilden, vielmehr wäre der Anfangszustand des Primärelektrons eine einfache ebene Welle und sein Endzustand eine inkohärent aufgeweitete ebene Welle. Zu berechnen wäre in diesem Fall die Wahrscheinlichkeit des Übergangs von der ebenen Welle \mathbf{k}_0 in die ebene Welle \mathbf{k}_m . In der Zeichnung bliebe von den Blochwellenpfeilen jeweils nur der mittlere übrig. Dieses zunächst rein gedankliche Szenarium ist bei der Durchstrahlung sehr dünner Kristallproben insofern verwirklicht, als dort eine ebene Welle gewissermaßen „keine Zeit“ hat, sich in eine Blochwellen umzuwandeln, bzw. der Elektronenstrom bis zum Erreichen der Kristallunterseite noch nicht wesentlich aus dem direkten Strahl in Richtung \mathbf{k}_0 oder \mathbf{k}_m herausgestreut werden kann. Im Fall einer sehr dünnen Probe wird also der echte unelastische Kontrast zu beobachten sein. In Abb. 4.2 ist das Ergebnis einer entsprechenden Beispielrechnung gezeigt.

3.2 Streuprozesse im Kristall

Unsere mathematische Beschreibung der Streuprozesse geht von einem idealen, planparallelen Kristall aus, der in x - und y -Richtung unendlich ausgedehnt sei und in z -Richtung die Dicke d habe. Der Ursprung des Koordinatensystems liege in der Mitte der Kristalloberfläche (Abb. 3.2).

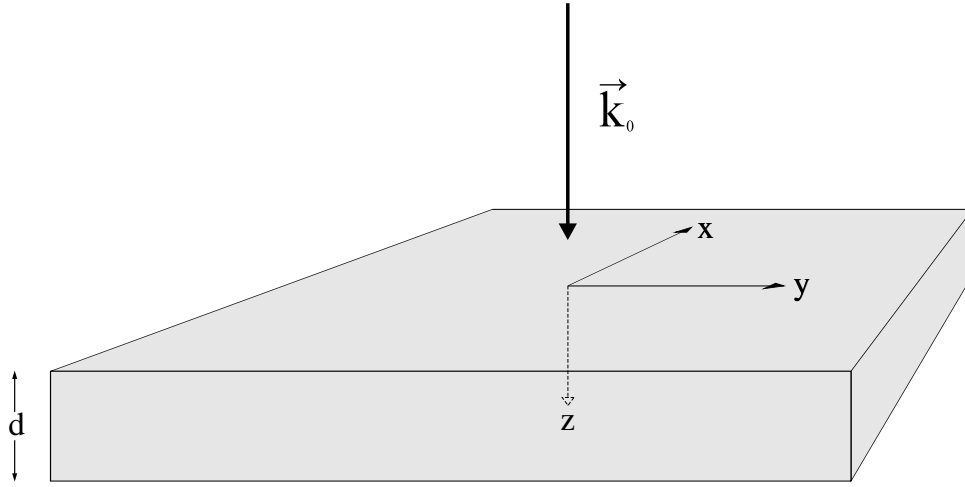


Abbildung 3.2: Zur Wahl des Koordinatensystems

Die Primärelektronenwelle \mathbf{k}_0 mit nahezu senkrechter Einfallsrichtung dringt von oben in den Kristall ein und tritt in Wechselwirkung mit dem Kristallpotential. Um den Zustand $|\Psi\rangle$ des Gesamtsystems aus Primärelektronen und Kristall zu beschreiben, gehen wir wie [28, 9] vor und stellen die zeitunabhängige Schrödingergleichung¹ auf, die innerhalb des Kristalls wie folgt lautet:

$$(H_E + H_K + H_{EK}) |\Psi\rangle = E |\Psi\rangle \quad , \quad (3.1)$$

wobei E die kinetische Energie ist, die ein Primärelektron im Beschleunigungsfeld des Mikroskops erhalten hat. Sie ist gleichzeitig die Gesamtenergie des Systems, da wir die Energie E_0 des Anfangszustands des Kristalls gleich null setzen. Der Operator H_E steht für die Ausbreitung des freien Primärelektrons, H_{EK} für die Wechselwirkung zwischen Primärelektron und Kristall, und H_K ist der Hamilton-Operator der Kristallelektronengesamtheit, die die Eigenzustände $|\Phi_n\rangle$ mit den Energien E_n annehmen kann:

$$H_K |\Phi_n\rangle = E_n |\Phi_n\rangle \quad , \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad , \quad E_0 = 0 \quad . \quad (3.2)$$

Die Austauschwechselwirkung wird vernachlässigt, so dass der Gesamtzustandsvektor $|\Psi\rangle$ nach Eigenzuständen von H_K entwickelt, d. h. als Summe von Produkten aus Primärelektronenzustand $|\psi_n\rangle$ und Kristallzustand $|\Phi_n\rangle$ geschrieben werden darf:

$$|\Psi\rangle = \sum_n |\psi_n\rangle |\Phi_n\rangle \quad . \quad (3.3)$$

¹zur Berücksichtigung der Relativistik siehe Anmerkung in Anhang A

Das Einsetzen von Gl. (3.3) in die Schrödingergleichung (3.1) liefert

$$\sum_n (H_E |\Phi_n\rangle + H_K |\Phi_n\rangle + H_{EK} |\Phi_n\rangle - E |\Phi_n\rangle) |\psi_n\rangle = 0 \quad , \quad (3.4)$$

was durch Multiplikation von links mit $\langle \Phi_m |$ und Ausnutzung der Orthogonalitätsrelation $\langle \Phi_m | \Phi_n \rangle = \delta_{mn}$ zu

$$\sum_n (H_E \delta_{mn} + E_n \delta_{mn} + \langle \Phi_m | H_{EK} | \Phi_n \rangle - E \delta_{mn}) |\psi_n\rangle = 0 \quad (3.5)$$

wird, folglich zu

$$(H_E + E_m - E) |\psi_m\rangle = - \sum_n \langle \Phi_m | H_{EK} | \Phi_n \rangle |\psi_n\rangle \quad . \quad (3.6)$$

Wir verwenden die Abkürzung

$$H_{mn} := \langle \Phi_m | H_{EK} | \Phi_n \rangle \quad (3.7)$$

für das Matrixelement, das ein Maß für die Übergangswahrscheinlichkeit vom Kristallzustand Φ_n in den Kristallzustand Φ_m ist, und die Beziehung

$$E_m - E = - \frac{\hbar^2 k_m^2}{2 m_e} \quad , \quad (3.8)$$

worin m_e die Masse und k_m die Wellenzahl des Primärelektrons vor ($m = 0$) oder nach einem unelastischen Streuprozess ist, und können damit Gl. (3.6) nach

$$\left(H_E - \frac{\hbar^2 k_m^2}{2 m_e} + H_{mm} \right) |\psi_m\rangle = - \sum_{n \neq m} H_{mn} |\psi_n\rangle \quad (3.9)$$

umstellen.

In Ortsdarstellung, zu der wir nun übergehen, lautet diese Formel

$$\left(- \frac{\hbar^2}{2 m_e} \Delta - \frac{\hbar^2 k_m^2}{2 m_e} + H_{mm}(\mathbf{r}) \right) \psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) = - \sum_{n \neq m} H_{mn}(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{k}_n, \mathbf{r}) \quad , \quad (3.10)$$

wobei im Ortsraum

$$H_{mn}(\mathbf{r}) := \int \Phi_m^*(\mathbf{R}) V(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \Phi_n(\mathbf{R}) d^{3(N_E + N_K)} \mathbf{R} \quad (3.11)$$

an die Stelle von Definition (3.7) tritt. Der Vektor \mathbf{r} weist zum Ort des Primärelektrons, das Kürzel $\mathbf{R} \equiv (\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_E}; \mathbf{R}_1, \mathbf{R}_2, \dots, \mathbf{R}_{N_K})$ repräsentiert die Positionen der N_E Elektronen und der N_K Kerne im Kristall. All diese Ortsvektoren zählen vom Mittelpunkt der Eintrittsebene des Kristalls aus (Abb. 3.2). Der Operator $V(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ für die Coulomb-Wechselwirkungen zwischen Primärelektron und Atomelektronen sowie zwischen Primärelektron und den $Z_{\nu'}$ -fach geladenen Atomkernen hat die Form

$$V(\mathbf{r}, \mathbf{R}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\sum_{\nu=1}^{N_E} \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_{\nu}|} - \sum_{\nu'=1}^{N_K} \frac{Z_{\nu'}}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_{\nu'}|} \right) . \quad (3.12)$$

Gleichung (3.10) ist das System gekoppelter Differenzialgleichungen, wie es etwa auch in [9] auftaucht. $\psi(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$ ist die Wellenfunktion des Anfangszustands des Primärelektrons im Kristall. Wenn die unelastische Wechselwirkung nun hinreichend schwach ist, dann sind die entstehenden Wellenfunktionen $\psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r})$, $m \neq 0$, des unelastisch gestreuten Primärelektrons klein im Vergleich zu $\psi(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$. Diesen Fall nehmen wir für den weiteren Rechnungsgang an, so dass wir Näherungen im Sinne einer Störungstheorie erster Ordnung machen können, wodurch Gl. (3.10) die Form

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta - \frac{\hbar^2 k_m^2}{2m_e} + H_{mm}(\mathbf{r}) \right) \psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) \approx \begin{cases} 0 & \text{für } m = 0 \\ -H_{m0}(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}) & \text{für } m \neq 0 \end{cases} \quad (3.13)$$

erhält.

Die obere Zeile von Gl. (3.13) ist eine homogene Gleichung, die die elastische Braggstreuung des in den Kristall eingedrungenen Primärelektrons vor einem unelastischen Streuprozess beschreibt. Dass nur die elastische Streuung erfasst ist, sieht man daran, dass als einziger Wechselwirkungsterm das Matricelement $H_{00}(\mathbf{r})$ auftritt, das ja nach Gl. (3.7) bzw. (3.11) einem Streuprozess ohne Änderung des Kristallzustands zugeordnet ist. Analog beschreibt der homogene Anteil der unteren Zeile die elastische Streuung nach dem unelastischen Streuprozess, bevor das Elektron den Kristall wieder verlässt. Der Unterschied zwischen Grund- und angeregtem Zustand des Kristalls kann für die Betrachtung und Berechnung der elastischen Streuung vernachlässigt werden kann, d. h., $H_{mm}(\mathbf{r})$ ist mit $H_{00}(\mathbf{r})$ gleichzusetzen, welches üblicherweise als „Kristallpotential $V(\mathbf{r})$ “ bezeichnet wird. Dieses Potential $V(\mathbf{r})$ darf nicht mit $V(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ verwechselt werden, mit dem es über die Integration nach Gl. (3.11) verknüpft ist.

Die „elastische Rechnung“ zur Lösung dieser homogenen Problematik erfolgt mit der dynamischen Theorie, die zu diesem Zweck in Anhang A kurz vorgestellt wird und die zu dem dort angegebenen Blochwellen-Ausdruck für $\psi_{hom}(\mathbf{k}_m, \mathbf{r})$ führt, der der Deutlichkeit halber mit dem Index *hom* versehen ist (Gl. (A.9) mit (A.8) und (A.12)).

Setzt man in diesem Ausdruck $z = d$, erhält man die elastische Wellenfunktion in der Kristallaustrittsebene x_X, y_X , die die Verteilung derjenigen Elektronen, die nur elastischen, aber keinen unelastischen Streuprozessen unterworfen waren, an der Kristallunterseite beschreibt:

$$\psi_0(\mathbf{r}_X \equiv (x_X, y_X, d)) := \psi_{hom}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}_X \equiv (x_X, y_X, d)) = \exp\{i \mathbf{k}_0 \mathbf{r}_X\} \sum_j \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{(i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)) d\} \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{i \mathbf{g} \mathbf{r}_X\} \quad (3.14)$$

Die Bedeutung der Größen \mathbf{g} , $c_{\mathbf{g}}^{(j)}$, $\varepsilon^{(j)}$, $\gamma^{(j)}$ und $\mu^{(j)}$ ist in Anhang A erklärt.

Die Inhomogenität in der unteren Zeile von Gl. (3.13) ist es, die die unelastische Streuung beschreibt, bei der der Kristall vom Anfangszustand Φ_0 in den angeregten Zustand Φ_m übergeht. Die „unelastische Rechnung“ wird im Einzelnen in Anhang B vorgeführt, wo für die Anwendung der Methode der Greenfunktionen auf das Ergebnis der elastischen Rechnung aus Anhang A zurückgegriffen wird und wo eine in Anhang C eingeführte und begründete exzitonenartige Darstellung des angeregten Kristalls zum Einsatz kommt.

Das Ergebnis des Rechengangs im Anhang (Gl. (B.3) mit (B.8) und (B.9)) für die unelastische Wellenfunktion der Elektronen, die sowohl elastischen als auch unelastischen Streuprozessen unterworfen waren, lautet an der Kristallunterseite

$$\begin{aligned} \psi_{m(\kappa l' m'; K_x K_y p_z)}(\mathbf{r}_X \equiv (x_X, y_X, d)) = & -\frac{2 m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2} \sum_{j', j} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{k_z} \int_{k_y} \int_{k_x} \sum_{\mathbf{g}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\mathbf{k}) \\ & \exp\{i (\mathbf{k} + \boldsymbol{\gamma}^{(j')}(\mathbf{k}) + i \boldsymbol{\mu}^{(j')}(\mathbf{k}) + \mathbf{g}'') \mathbf{r}_X\} \frac{1}{k_z^2 - k_{mz}^2 - i\eta} \frac{e^2}{\varepsilon_0 \sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \\ & \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{p_x U}\} \right) \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{y\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{p_y U}\} \right) \\ & \exp\{[i Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \exp\{[i (\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\ & 4 \pi \sum_{l_1, m_1} i^{l_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) \\ & (-1)^{m_0} i^{(l_0 + l_1 - l')} \sqrt{\frac{(2 l_0 + 1)(2 l_1 + 1)(2 l' + 1)}{4 \pi}} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ & dk_x dk_y dk_z \quad . \end{aligned} \quad (3.15)$$

Wie die eingefügte Parameterliste im Index von ψ anzeigt, ist dies die Primärelektronen-Wellenfunktion für einen ganz bestimmten Kristallendzustand Φ_m , der durch die Größen K_x , K_y , p_z , κ , l' und m' charakterisiert wird. Zu deren Erläuterung siehe Anhang C.

Auch für die Erläuterung der anderen Größen und Indizes muss auf die Anhänge B und C verwiesen werden. „Erste Hilfe“ leistet die Variablenliste am Anfang dieser Arbeit.

Der weitere Weg der elastischen und unelastischen Elektronenwelle durch das Mikroskop wird im nächsten Abschnitt besprochen.

3.3 Abbildung im Mikroskop

Die Beschreibung des Abbildungsprozesses im Mikroskop gliedert sich in zwei Teile. Zuerst müssen die Auswirkungen der im Strahlengang sitzenden elektronenoptischen Bauteile auf die Wellenfunktion, die sich von der Kristallunterseite bis in die Bildebene fortpflanzt, beschrieben werden. Um aus der so erhaltenen Wellenfunktion in der Bildebene die dortige Intensitätsverteilung zu berechnen, muss als Zweites das Betragsquadrat gebildet werden. Im unelastischen Fall sind abschließend zusätzlich alle Intensitätsverteilungen aufzuaddieren und aufzuintegrieren, die sich für die verschiedenen, orthogonalen Endzustände von Kristall und Primärelektron ergeben und die zu einem Gesamtbild verschmelzen, weil sie mit demselben Energieverlust verbunden sind.

Die Vorgehensweise für den ersten Teil wird in Anhang D für eine allgemeine Wellenfunktion $\psi_X(x_X, y_X)$ in der Objektaustrittsebene $z = z_X = d$ kurz dargestellt. Die Anwendung der dort angegebenen Formel (D.8) auf unsere konkrete elastische und unelastische Wellenfunktion, wie wir sie in Gl. (3.14) bzw. in Gl. (3.15) stehen haben, bereitet keine größeren Schwierigkeiten. Auch die Betragsquadrierung ist im elastischen Fall problemlos möglich; es ergibt sich für die elastische Wellenfunktion in der Bildebene

$$\begin{aligned}
\psi_{0B}(x_B, y_B) &= \frac{-\exp\{i k_0 (b + g)\}}{(2\pi)^2 k_0^{-2} f (b - f)} \exp\left\{i \frac{k_0}{2(b - f)} (x_B^2 + y_B^2)\right\} \\
&\quad \int_{x_A, y_A, x_X, y_X} \psi_0(x_X, y_X, d) \exp\left\{-i \frac{k_0}{(b - f)} [x_A (x_B + M x_X) + y_A (y_B + M y_X)]\right\} \\
&\quad T_A(x_A, y_A; k_0) dx_A dy_A dx_X dy_X = \\
&= \frac{-\exp\{i k_0 (b + g)\}}{(2\pi)^2 k_0^{-2} f (b - f)} \exp\left\{i \frac{k_0}{2(b - f)} (x_B^2 + y_B^2)\right\} \exp\{i k_{0z} d\} \\
&\quad \sum_j \sum_{\mathbf{g}} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] d\} \exp\{i g_z d\} \\
&\quad \int_{x_A, y_A} \exp\left\{-i \frac{k_0}{(b - f)} [x_A x_B + y_A y_B]\right\} T_A(x_A, y_A; k_0) \\
&\quad \left(\int_{x_X, y_X = -\infty}^{+\infty} \exp\left\{i \left(k_{0x} + g_x - \frac{k_0}{(b - f)} x_A M\right) x_X\right\} \right.
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \exp\{i(k_{0y} + g_y - \frac{k_0}{(b-f)} y_A M) y_X\} dx_X dy_X \Big) dx_A dy_A = \\
& = \frac{-\exp\{i k_0 (b+g)\}}{(2\pi)^2 k_0^{-2} f (b-f)} \exp\{i \frac{k_0}{2(b-f)} (x_B^2 + y_B^2)\} \exp\{i k_{0z} d\} \\
& \sum_j \sum_{\mathbf{g}} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] d\} \exp\{i g_z d\} \\
& \int_{x_A, y_A} \exp\{-i \frac{k_0}{(b-f)} [x_A x_B + y_A y_B]\} T_A(x_A, y_A; k_0) \\
& 2\pi \delta(k_{0x} + g_x - \frac{k_0}{(b-f)} x_A M) 2\pi \delta(k_{0y} + g_y - \frac{k_0}{(b-f)} y_A M) dx_A dy_A = \\
& = -\frac{1}{M} \exp\{i k_0 (b+g)\} \exp\{i \frac{k_0}{2Mf} (x_B^2 + y_B^2)\} \exp\{-i \frac{1}{M} [k_{0x} x_B + k_{0y} y_B]\} \\
& \exp\{i k_{0z} d\} \sum_j \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] d\} \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{i g_z d\} \\
& \exp\{-i \frac{1}{M} [g_x x_B + g_y y_B]\} T_A\left(\frac{(k_{0x} + g_x) f}{k_0}, \frac{(k_{0y} + g_y) f}{k_0}; k_0\right) , \tag{3.16}
\end{aligned}$$

und daraus für die elastische Intensität

$$\begin{aligned}
I_{0B}(x_B, y_B) &= |\psi_{0B}(x_B, y_B)|^2 = \\
&= \frac{1}{M^2} \left| \sum_j \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] d\} \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{i g_z d\} \right. \\
& \quad \left. \exp\{-i \frac{1}{M} [g_x x_B + g_y y_B]\} T_A\left(\frac{(k_{0x} + g_x) f}{k_0}, \frac{(k_{0y} + g_y) f}{k_0}; k_0\right) \right|^2 . \tag{3.17}
\end{aligned}$$

In gleicher Weise führt das Einsetzen von Gl. (3.15) in Gl. (D.8) zur unelastischen Wellenfunktion in der Bildebene:

$$\begin{aligned}
\psi_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)B}(x_B, y_B) &= \frac{-\exp\{i k_m (b+g)\}}{(2\pi)^2 k_m^{-2} f (b-f)} \exp\{i \frac{k_m}{2(b-f)} (x_B^2 + y_B^2)\} \\
& \int_{x_A, y_A, x_X, y_X} \left(-\frac{2m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2}\right) \sum_{j', j} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{k_z} \int_{k_y} \int_{k_x} \sum_{\mathbf{g}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\mathbf{k}) \\
& \exp\{i (\mathbf{k} + \boldsymbol{\gamma}^{(j')}(\mathbf{k}) + i \boldsymbol{\mu}^{(j')}(\mathbf{k}) + \mathbf{g}'') \cdot \mathbf{r}_X\} \frac{1}{k_z^2 - k_{mz}^2 - i\eta} \frac{e^2}{\varepsilon_0 \sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \\
& \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{p_x U}\} \right) \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{y\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{p_y U}\} \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \exp\{[i Q_{zg'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \\
& \exp\{[i (\mathbf{Q}_{g'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\
& 4 \pi \sum_{l_1, m_1} i^{l_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1} (Q_{g'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^* (\hat{\mathbf{Q}}_{g'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) (-1)^{m_0} i^{(l_0 + l_1 - l')} \\
& \sqrt{\frac{(2l_0 + 1)(2l_1 + 1)(2l' + 1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} dk_x dk_y dk_z \\
& \exp\{-i \frac{k_m}{(b-f)} [x_A (x_B + M x_X) + y_A (y_B + M y_X)]\} \\
& T_A(x_A, y_A; k_m) dx_A dy_A dx_X dy_X = \\
= & \frac{2m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2 M} \exp\{i k_m (b+g)\} \exp\{i \frac{k_m}{2Mf} (x_B^2 + y_B^2)\} \\
& \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{k_z} \int_{k_y} \int_{k_x} \exp\{-i \frac{1}{M} [k_x x_B + k_y y_B]\} \\
& \exp\{i k_z d\} \sum_{j', j} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j')}(\mathbf{k}) - \mu^{(j')}(\mathbf{k})] d\} \sum_{g''} c_{g''}^{(j')}(\mathbf{k}) \exp\{i g'' d\} \\
& \frac{1}{k_z^2 - k_{mz}^2 - i\eta} \frac{e^2}{\varepsilon_0 \sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \\
& \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{xg'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{p_x U}\} \right) \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{yg'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{p_y U}\} \right) \\
& \exp\{[i Q_{zg'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \\
& \exp\{[i (\mathbf{Q}_{g'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\
& 4 \pi \sum_{l_1, m_1} i^{l_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1} (Q_{g'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^* (\hat{\mathbf{Q}}_{g'g}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) (-1)^{m_0} i^{(l_0 + l_1 - l')} \\
& \sqrt{\frac{(2l_0 + 1)(2l_1 + 1)(2l' + 1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
& \exp\{-i \frac{1}{M} [g''_x x_B + g''_y y_B]\} \\
& T_A \left(\frac{(k_x + g''_x) f}{k_m}, \frac{(k_y + g''_y) f}{k_m}; k_m \right) dk_x dk_y dk_z . \tag{3.18}
\end{aligned}$$

Die erfolgten Integrationen verliefen völlig analog zur vorangegangenen elastischen Rechnung erst über $dx_X dy_X$ und dann über $dx_A dy_A$.

Bevor wir zur Betragsquadratbildung kommen, die sich im unelastischen Fall etwas schwieriger gestaltet, führen wir die Integration über dk_z durch, einschließlich des Grenzübergangs $\eta \rightarrow 0$, der von der Darstellung der greenschen Funktion in Gl. (B.2) herrührt. Zur Verdeutlichung der prinzipiellen Struktur von Gl. (3.18) bedienen wir uns dabei einer Abkürzung F_m . Unsere Integrationsmethode entspricht dem Vorgehen bei der Untersu-

chung des Einzelatom-Streuprozesses, wie es beispielsweise in [3] durchgeführt ist: Der Integrationsweg von $-\infty$ bis $+\infty$ wird in der oberen Hälfte der komplexen Ebene mittels Halbkreis im Unendlichen geschlossen, wo das Integral verschwindet. Nach dem Residuensatz hat das Integral $2\pi i$ -mal den Wert des Residuums an der Polstelle $\sqrt{k_{mz}^2 + i\eta}$, die innerhalb dieses Integrationswegs liegt:

$$\begin{aligned}
\psi_{mB}(x_B, y_B) &= \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{k_z} \frac{F_m(x_B, y_B, k_z)}{k_z^2 - k_{mz}^2 - i\eta} dk_z = \\
&= \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{k_z} \frac{F_m(x_B, y_B, k_z)}{(k_z + \sqrt{k_{mz}^2 + i\eta})(k_z - \sqrt{k_{mz}^2 + i\eta})} dk_z = \\
&= \lim_{\eta \rightarrow 0} 2\pi i \operatorname{Res} \left(\frac{F_m(x_B, y_B, k_z)}{(k_z + \sqrt{k_{mz}^2 + i\eta})(k_z - \sqrt{k_{mz}^2 + i\eta})}, \sqrt{k_{mz}^2 + i\eta} \right) = \\
&= 2\pi i \lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{F_m(x_B, y_B, \sqrt{k_{mz}^2 + i\eta})}{2\sqrt{k_{mz}^2 + i\eta}} = 2\pi i \frac{F_m(x_B, y_B, k_{mz})}{2k_{mz}}. \tag{3.19}
\end{aligned}$$

Das Betragsquadrat lautet dann in einer vorläufigen Form

$$\begin{aligned}
\left| \psi_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)B}(x_B, y_B) \right|^2 &= \frac{\pi^2}{k_{mz}^2} |F_m(x_B, y_B, k_{mz})|^2 = \\
&= \frac{m_e^2 e^4}{16 \pi^4 \hbar^4 M^2 \varepsilon_0^2 \tilde{N}_x \tilde{N}_y k_{mz}^2} \\
&\quad \int_{k_y} \int_{k_y} \int_{k_x} \int_{k_x} \exp\left\{-i \frac{1}{M} [k_x x_B + k_y y_B]\right\} \exp\left\{i \frac{1}{M} [\tilde{k}_x x_B + \tilde{k}_y y_B]\right\} \\
&\quad \sum_{j', j} \sum_{\tilde{j}', \tilde{j}} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \varepsilon^{(\tilde{j})*}(\mathbf{k}_0) \\
&\quad \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{k}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{k}})] d\} \exp\{[-i \gamma^{(\tilde{j}')}(\check{\mathbf{k}}) - \mu^{(\tilde{j}')}(\check{\mathbf{k}})] d\} \sum_{\mathbf{g}''} \sum_{\tilde{\mathbf{g}}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\check{\mathbf{k}}) c_{\tilde{\mathbf{g}}''}^{(\tilde{j})*}(\check{\mathbf{k}}) \\
&\quad \exp\{i g_z'' d\} \exp\{-i \tilde{g}_z'' d\} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} \sum_{\tilde{\mathbf{g}}', \tilde{\mathbf{g}}} c_{\mathbf{g}'}^{(j)*}(\check{\mathbf{k}}) c_{\tilde{\mathbf{g}}'}^{(\tilde{j})}(\check{\mathbf{k}}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\tilde{\mathbf{g}}}^{(\tilde{j})*}(\mathbf{k}_0) \\
&\quad \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{p_x U}\} \right) \left(\sum_{\tilde{p}_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{-i [Q_{x\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{\tilde{p}_x U}\} \right) \\
&\quad \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{y\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{p_y U}\} \right) \left(\sum_{\tilde{p}_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{-i [Q_{y\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{\tilde{p}_y U}\} \right) \\
&\quad \exp\{[i Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \exp\{[-i Q_{z\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - \mu^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \exp\{[i(\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \exp\{[-i(\mathbf{Q}_{\check{\mathbf{g}}'\check{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\
& 16 \pi^2 \sum_{l_1, m_1} \sum_{\tilde{l}_1, \tilde{m}_1} (-1)^{l_1 - \tilde{l}_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)) W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{\tilde{l}_1*}(Q_{\check{\mathbf{g}}'\check{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)) \\
& Y_{l_1 m_1}^*(\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)) Y_{\tilde{l}_1 \tilde{m}_1}(\hat{\mathbf{Q}}_{\check{\mathbf{g}}'\check{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)) \\
& \sqrt{\frac{(2l_0 + 1)(2l_1 + 1)(2l' + 1)}{4\pi}} \sqrt{\frac{(2\tilde{l}_0 + 1)(2\tilde{l}_1 + 1)(2\tilde{l}' + 1)}{4\pi}} \\
& \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & \tilde{l}_1 \\ -m' & m_0 & \tilde{m}_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & \tilde{l}_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
& \exp\{-i \frac{1}{M} [g_x'' x_B + g_y'' y_B]\} \exp\{i \frac{1}{M} [\tilde{g}_x'' x_B + \tilde{g}_y'' y_B]\} \\
& T_A\left(\frac{(k_x + g_x'')f}{k_m}, \frac{(k_y + g_y'')f}{k_m}; k_m\right) T_A^*\left(\frac{(\tilde{k}_x + \tilde{g}_x'')f}{k_m}, \frac{(\tilde{k}_y + \tilde{g}_y'')f}{k_m}; k_m\right) \\
& d\tilde{k}_x dk_x d\tilde{k}_y dk_y, \tag{3.20}
\end{aligned}$$

wobei

$$\check{\mathbf{k}} := \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \\ k_{mz} \end{pmatrix} \tag{3.21}$$

und

$$\tilde{\mathbf{k}} := \begin{pmatrix} \tilde{k}_x \\ \tilde{k}_y \\ k_{mz} \end{pmatrix}. \tag{3.22}$$

Um der Geometrie unseres Kristallmodells (in x - und y -Richtung unendlich ausgedehnt) gerecht zu werden und letztendlich die Früchte unserer exzitonenartigen Darstellung des angeregten Kristalls ernten zu können, müssen wir die Anzahl \tilde{N}_x und die Anzahl \tilde{N}_y der Atomlagen in x - bzw. y -Richtung gegen unendlich gehen lassen². Zur Vorbereitung und Durchführung dieses Grenzübergangs betrachten wir die Terme, die von \tilde{N}_x abhängen, separat. In ihnen können wir $Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0)$ durch $k_{0x} - k_x$ ersetzen, weil nach Gl. (B.5)

$$Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{k}}, \mathbf{k}_0) = k_{0x} - k_x + g_x - g_x' \tag{3.23}$$

²Dieser Grenzübergang darf erst nach der Betragsquadratbildung erfolgen, weil erst das Betragsquadrat eine Messgröße, nämlich die Intensität, beschreibt.

ist und weil $x_{p_x U}$ ganzzahliges Vielfaches von a_1 ist und deshalb sein Produkt mit g_x bzw. g'_x nach Gl. (A.6) und (A.4) jeweils den Wert 2π liefert, der wegen $\exp\{i 2\pi\} = 1$ weggelassen werden kann. Da der Ursprung des Koordinatensystems in der Mitte der Kristalloberfläche liegt (Abb. 3.2), müssen wir symmetrisch aufsummieren:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{\tilde{N}_x} \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [k_{0x} - k_x - K_x] x_{p_x U}\} \right) \left(\sum_{\tilde{p}_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{-i [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] x_{\tilde{p}_x U}\} \right) = \\
& = \frac{1}{\tilde{N}_x} \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [k_{0x} - k_x - K_x] \left(-\frac{\tilde{N}_x + 1}{2} + p_x \right) a_1 \} \right) \\
& \quad \left(\sum_{\tilde{p}_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{-i [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \left(-\frac{\tilde{N}_x + 1}{2} + \tilde{p}_x \right) a_1 \} \right) = \\
& = \frac{1}{\tilde{N}_x} \left(\exp\left\{-\frac{1}{2} i [k_{0x} - k_x - K_x] (\tilde{N}_x - 1) a_1\right\} \sum_{p'_x=0}^{\tilde{N}_x-1} (\exp\{i [k_{0x} - k_x - K_x] a_1\})^{p'_x} \right) \\
& \quad \left(\exp\left\{\frac{1}{2} i [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] (\tilde{N}_x - 1) a_1\right\} \sum_{\tilde{p}'_x=0}^{\tilde{N}_x-1} (\exp\{-i [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] a_1\})^{\tilde{p}'_x} \right) =
\end{aligned}$$

Die beiden entstandenen geometrischen Reihen werden durch ihre Summenformel ersetzt, deren Einsen und Exponentialausdrücke im Zähler und im Nenner so aufgespalten werden, dass sich Sinusausdrücke ergeben.

$$\begin{aligned}
& = \frac{1}{\tilde{N}_x} \exp\left\{-\frac{1}{2} i [k_{0x} - k_x - K_x] (\tilde{N}_x - 1) a_1\right\} \\
& \quad \exp\left\{\frac{1}{2} i (\tilde{N}_x - 1) [k_{0x} - k_x - K_x] a_1\right\} \frac{\sin\{\frac{1}{2} \tilde{N}_x [k_{0x} - k_x - K_x] a_1\}}{\sin\{\frac{1}{2} [k_{0x} - k_x - K_x] a_1\}} \\
& \quad \exp\left\{\frac{1}{2} i [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] (\tilde{N}_x - 1) a_1\right\} \\
& \quad \exp\left\{-\frac{1}{2} i (\tilde{N}_x - 1) [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] a_1\right\} \frac{\sin\{\frac{1}{2} \tilde{N}_x [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] a_1\}}{\sin\{\frac{1}{2} [k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] a_1\}} = \\
& = \frac{1}{\tilde{N}_x} \frac{\sin\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\sin\{\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\}} \frac{\sin\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\sin\{\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \bmod b_1)\}} =
\end{aligned}$$

Die Exponentialausdrücke haben sich weggekürzt. Für einigermaßen große \tilde{N}_x liefert dieser Ausdruck beim Drüberintegrieren nur dann einen signifikanten Beitrag, wenn beide Nenner klein sind (wenn also $[k_{0x} - k_x - K_x]$ und $[k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x]$ nur wenig von der x -Komponente eines reziproken Gittervektors abweichen), weshalb man den Sinus im Nenner durch sein Argument ersetzen kann.

$$= \frac{1}{\tilde{N}_x} \frac{\sin\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)} \frac{\sin\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \bmod b_1)} =$$

Im gleich erfolgenden Grenzübergang $\tilde{N}_x \rightarrow \infty$ müssen für einen signifikanten Beitrag beide Nenner exakt null werden, weshalb $\tilde{k}_x = k_x + G_x$ sein muss ($G_x = x$ -Komponente eines beliebigen reziproken Gittervektors).

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{\tilde{N}_x} \frac{\sin\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)} \frac{\sin\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - \tilde{k}_x - K_x] \bmod b_1)} \\ &\quad \delta([k_x - \tilde{k}_x] \bmod b_1) = \\ &= \frac{1}{\tilde{N}_x} \frac{\sin^2\{\tilde{N}_x \frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\}}{\left(\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\right)^2} \delta([k_x - \tilde{k}_x] \bmod b_1) \xrightarrow{\tilde{N}_x \rightarrow \infty} \\ &\xrightarrow{\tilde{N}_x \rightarrow \infty} \frac{1}{\tilde{N}_x} \pi \tilde{N}_x \delta\left(\frac{a_1}{2} ([k_{0x} - k_x - K_x] \bmod b_1)\right) \delta([k_x - \tilde{k}_x] \bmod b_1) = \\ &= b_1 \delta([k_x - (k_{0x} - K_x)] \bmod b_1) \delta([k_x - \tilde{k}_x] \bmod b_1) . \end{aligned} \quad (3.24)$$

Setzen wir diese δ -Distributionen wie auch die, die sich ganz entsprechend für die y -Richtung ergeben, in Gl. (3.20) ein, können die Integrationen über $d\tilde{k}_x dk_x d\tilde{k}_y dk_y$ leicht ausgeführt werden. Es ergibt sich

$$\begin{aligned} \left| \psi_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)B}(x_B, y_B) \right|^2 &= \frac{m_e^2 e^4 b_1 b_2}{16 \pi^4 \hbar^4 M^2 \varepsilon_0^2 k_{mz}^2} \sum_{j', j} \sum_{\tilde{j}', \tilde{j}} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \varepsilon^{(\tilde{j})^*}(\mathbf{k}_0) \\ &\quad \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] d\} \exp\{[-i \gamma^{(\tilde{j}')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(\tilde{j}')}(\check{\mathbf{K}})] d\} \\ &\quad \sum_{\mathbf{g}''} \sum_{\tilde{\mathbf{g}}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) c_{\tilde{\mathbf{g}}''}^{(\tilde{j}')^*}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{i g_z'' d\} \exp\{-i \tilde{g}_z'' d\} \\ &\quad \sum_{\mathbf{g}', \tilde{\mathbf{g}}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')^*}(\check{\mathbf{K}}) c_{\tilde{\mathbf{g}}}^{(\tilde{j}')^*}(\check{\mathbf{K}}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\tilde{\mathbf{g}}}^{(\tilde{j})^*}(\mathbf{k}_0) \\ &\quad \exp\{[i Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \\ &\quad \exp\{[-i Q_{z\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0) - \mu^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \\ &\quad \exp\{[i (\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\ &\quad \exp\{[-i (\mathbf{Q}_{\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\ &\quad 16 \pi^2 \sum_{l_1, m_1} \sum_{\tilde{l}_1, \tilde{m}_1} (-1)^{l_1 - \tilde{l}_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1} (Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) W_{n_0 \tilde{l}_0, \kappa \tilde{l}'}^{\tilde{l}_1^*} (Q_{\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) \\ &\quad Y_{l_1 m_1}^* (\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) Y_{\tilde{l}_1 \tilde{m}_1} (\hat{\mathbf{Q}}_{\tilde{\mathbf{g}}'\tilde{\mathbf{g}}}^{\tilde{j}'\tilde{j}}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \sqrt{\frac{(2l_0+1)(2l_1+1)(2l'+1)}{4\pi}} \sqrt{\frac{(2\tilde{l}_0+1)(2\tilde{l}_1+1)(2l'+1)}{4\pi}} \\
& \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & \tilde{l}_1 \\ -m' & m_0 & \tilde{m}_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & \tilde{l}_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
& \exp\left\{-i \frac{1}{M} [g''_x x_B + g''_y y_B]\right\} \exp\left\{i \frac{1}{M} [\tilde{g}''_x x_B + \tilde{g}''_y y_B]\right\} \\
& T_A \left(\frac{(\check{K}_x + g''_x) f}{k_m}, \frac{(\check{K}_y + g''_y) f}{k_m}; k_m \right) T_A^* \left(\frac{(\check{K}_x + \tilde{g}''_x) f}{k_m}, \frac{(\check{K}_y + \tilde{g}''_y) f}{k_m}; k_m \right), \quad (3.25)
\end{aligned}$$

wobei

$$\check{\mathbf{K}} \equiv \begin{pmatrix} \check{K}_x \\ \check{K}_y \\ \check{K}_z \end{pmatrix} := \begin{pmatrix} k_{0x} - K_x \\ k_{0y} - K_y \\ k_{0z} \end{pmatrix}. \quad (3.26)$$

Wie bereits angedeutet, müssen jetzt noch die Teilintensitäten, die von den Übergängen in die verschiedenen, energetisch entarteten Kristallendzustände $\Phi_{m(\kappa l' m'; K_x K_y p_z)}$ herrühren, zur Gesamtintensität aufaddiert und -integriert werden. Die Größe κ ist als Wellenzahl des herausgeschlagenen Atomelektrons ein Maß für die Energie des Kristallendzustands und deshalb ein Maß für den Energieverlust des Primärelektrons. Und weil wir zur Simulation eines Elementverteilungsbildes einen bestimmten Energieverlust ausgewählt haben, erübrigt sich die Integration über κ , es sei denn, wir wollen die Auswirkungen einer endlichen Energiefensterbreite untersuchen.

Zu den Summationen über l' , m' , p_z und den Integrationen über K_x , K_y kommt die Summation über die Magnetquantenzahl m_0 des atomaren Anfangszustands hinzu, da innerhalb des von uns verwendeten Zentralfeldmodells alle $2l_0 + 1$ Besetzungsmöglichkeiten dieselbe Energie haben und deshalb m_0 wie die vorgenannten Größen ebenfalls keine Messgröße ist. Schließlich ist noch über die verschiedenen Atompositionen \mathbf{r}_{UK} des betrachteten Elements innerhalb der Einheitszelle zu summieren, sofern es sich nicht um „äquivalente Positionen“ handelt, die ohnehin dieselbe Intensitätsverteilung in der Bildebene erzeugen würden. In einem solchen Fall muss eine berechnete Teilintensität nur mit der Anzahl der äquivalenten Positionen multipliziert werden.

Nach Verwendung der Orthogonalitätsrelation (B.12) lautet der Ausdruck für die Gesamtintensität dann

$$\begin{aligned}
I_{m(\kappa)B}(x_B, y_B) &= \\
&= \sum_{\mathbf{r}_{UK}} \int_{K_x=-b_1/2}^{+b_1/2} \int_{K_y=-b_2/2}^{+b_2/2} \sum_{p_z=1}^{\tilde{N}_z} \sum_{l'} \sum_{m'} \sum_{m_0} \frac{N_{l_0 m_0}}{2 l_0 + 1} \left| \psi_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)B}(x_B, y_B) \right|^2 dK_x dK_y = \\
&= \frac{m_e^2 e^4 b_1 b_2 N_{l_0 m_0}}{4 \pi^3 \hbar^4 M^2 \varepsilon_0^2 k_{mz}^2} \sum_{\mathbf{r}_{UK}} \int_{K_x=-b_1/2}^{+b_1/2} \int_{K_y=-b_2/2}^{+b_2/2} \sum_{l'} \sum_{l_1, m_1} (2 l' + 1) \left(\begin{matrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{matrix} \right)^2 \sum_{p'_z=0}^{d/a_3-1} \\
&\quad \left| \sum_{j, \mathbf{g}} \sum_{j', \mathbf{g}'} c_0^{(j)*}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{[i(\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \mu^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] p'_z a_3\} \right. \\
&\quad \exp\{[i(\mathbf{g} - \mathbf{g}' + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\
&\quad W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1} (Q_{\mathbf{g}' \mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^* (\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}' \mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] d\} \\
&\quad \sum_{\mathbf{g}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{i g_z'' d\} \exp\{-i \frac{1}{M} [g_x'' x_B + g_y'' y_B]\} \\
&\quad \left. T_A \left(\frac{(\check{K}_x + g_x'') f}{k_m}, \frac{(\check{K}_y + g_y'') f}{k_m}; k_m \right) \right|^2 dK_x dK_y, \tag{3.27}
\end{aligned}$$

wobei die Terme, so weit möglich, unter das Betragsquadrat gezogen wurden, sonstige kleinere Umstellungen erfolgten und die Abkürzung (B.5) zum Teil wieder ausführlich hingeschrieben wurde, wonach sich einige Variablen wegekürzten. $N_{l_0 m_0}$ ist die Besetzungszahl des atomaren Anfangszustands.

Während Gl. (3.17) die „elastische Intensität“ in der Bildebene für die rein elastisch gestreuten Elektronen angibt, ist Gl. (3.27) nun die Endformel, die entsprechend die „unelastische Intensität“ für diejenigen Elektronen angibt, die sowohl elastisch als auch unelastisch gestreut wurden.

Kapitel 4

Modellrechnungen

Um die Anwendbarkeit unserer Rechenmethode zu überprüfen und später auch realistische Simulationen zur begleitenden Absicherung experimenteller Untersuchungen durchführen zu können, haben wir für die Formel (3.17) ein Fortran77-Programm namens ELAELA (Akronym für elastische Elektronenabbildung) und für die Formel (3.27) ein Fortran77-Programm namens ELSA (elementsspezifische Abbildung) erstellt. Beide Programme nutzen Teile eines Programmpakets, das A. Weickenmeier zur Berechnung energiegefilterter Beugungsdiagramme geschrieben hatte [26, 27].

4.1 Modellsubstanz GaAs

Abb. 4.1 zeigt den Galliumarsenid-Einkristall, den wir für unsere Testrechnungen ausgewählt haben. Er weist eine einfache Zinkblende-Struktur auf und bietet sich als Modellobjekt deshalb an, weil Gallium (Ordnungszahl $Z = 31$) und Arsen ($Z = 33$) vergleichbare elastische Streuamplituden haben, d. h. in ihrem Beugungsverhalten und somit auf einem elastischen Hochauflösungsbild nicht unterscheidbar sind. Der Kristall wird in $[\bar{1}01]$ -Richtung durchstrahlt, was der Blickrichtung des Betrachters von Abb. 4.1 in die Papierebene hinein entspricht, ist dabei aber minimal um die $[111]$ -Achse verdreht.

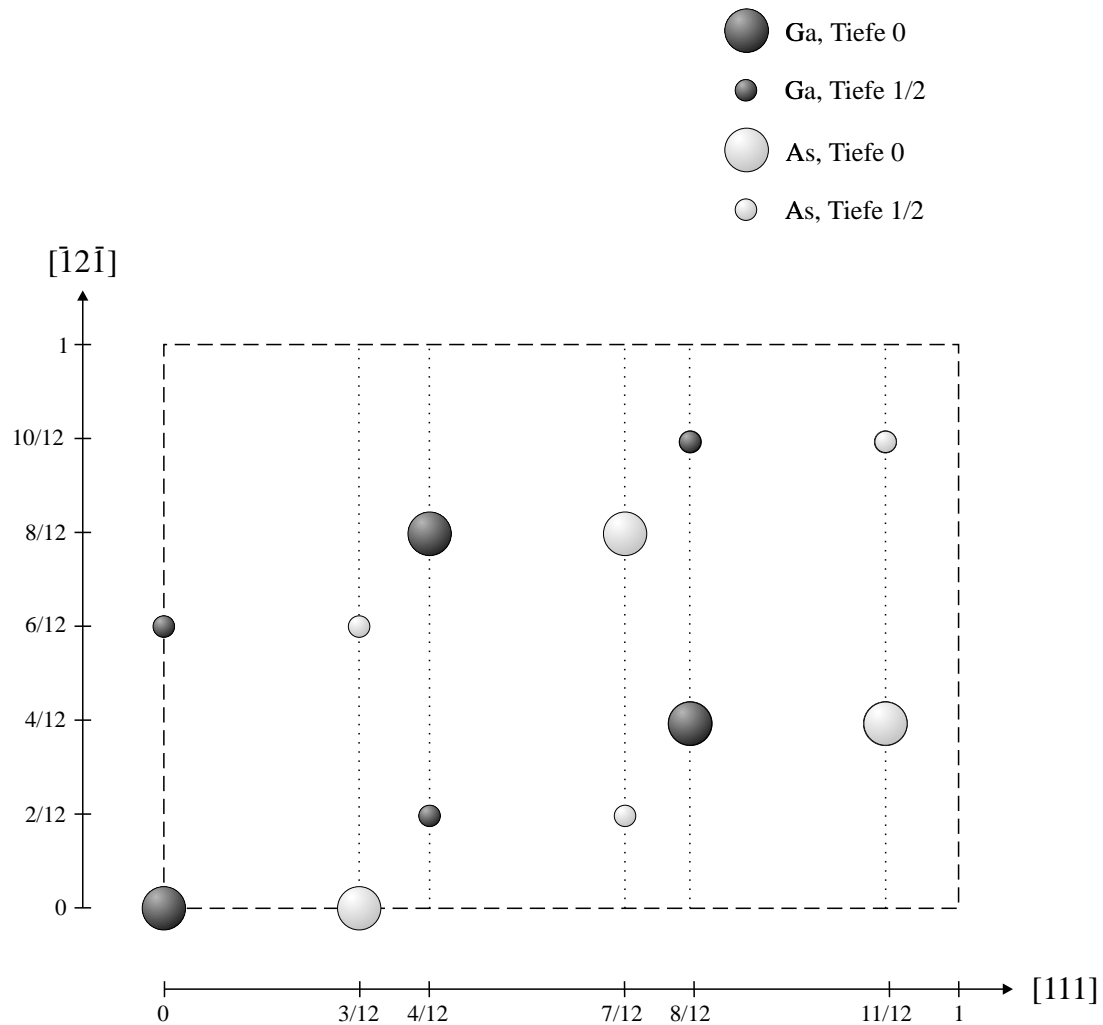


Abbildung 4.1: Projektion der für die Testrechnungen verwendeten GaAs-Struktur in $[\bar{1} 0 1]$ -Richtung. Die Ausdehnung der hier gezeichneten Einheitszelle beträgt in $[1 1 1]$ -, $[\bar{1} 2 \bar{1}]$ - und $[\bar{1} 0 1]$ -Richtung 9.791 \AA , 6.923 \AA und 3.997 \AA .

4.2 Simulationsparameter

Bei den ersten Testrechnungen geht es uns um das Studium der grundsätzlichen Effekte, die bei der Kontrastentstehung zu Tage treten können, und um das Niedrighalten der Rechenzeiten, weswegen wir uns hier auf die Simulation der Abbildung von Kristallnetzebenen beschränken. In diesem Fall besteht das Energieverlustbild aus einem Streifenmuster, so dass es ausreicht, ein Linienprofil (Linescan) durch das Bild zu berechnen. Die vertikalen gepunkteten Linien in Abb. 4.1 deuten diese (111) -Netzebenen an, die von den in $[\bar{1} 0 1]$ -Richtung propagierenden Elektronen seitlich bestrahlt werden und die

abwechselnd mit Ga- und As-Atomen besetzt sind. Denken wir uns den Kristall um die $[111]$ -Achse leicht aus der perfekten Ausrichtung herausgedreht, wird durch die elastische Streuung an den Atomen der Netzebenen nur die systematische Reihe der (111) -Reflexe angeregt. Genau diese systematische Reihe müssen wir bei der Blochwellenberechnung berücksichtigen. Hierbei reichen für unsere Zwecke 11 Reflexe aus, die, bezogen auf die von uns gewählte Einheitszelle, mit den millerschen Indizes $\overline{15}00, \overline{12}00, \overline{9}00, \dots, 1500$ bezeichnet sind. Die Einbeziehung weiterer Reflexe ändert das Ergebnis der Rechnungen nicht wesentlich. Die Rechenzeit für ein Linienprofil, das aus 201 berechneten Bildpunktwerten besteht, beläuft sich dann typischerweise auf 5 bis 10 Minuten auf einer DEC alpha Workstation mit RISC-Prozessor. Diese Zeitangabe ist für den Fall, dass man die Integration nach Gl. (3.27) über $dK_x dK_y$ über die 1. Brillouinzone numerisch tatsächlich durchführen muss, mit der Anzahl der dazu notwendigen verschiedenen Exzitonenwellenvektoren \mathbf{K} , d. h. der Anzahl der verschiedenen Ausfallsrichtungen \mathbf{k}_m zu multiplizieren. Aus Rechenzeitgründen nehmen wir bei unseren Rechnungen mit GaAs deshalb eine in x -Richtung verlaufende Schlitzblende an, so dass wir uns die Integration über dK_y sparen können. Bei Testrechnungen mit 15 Ausfallsrichtungen hat sich herausgestellt, dass sich im vorliegenden Fall auch die Integration über dK_x erübrigt, wir also eine „Ein-Exziton-Näherung“ (mit $\mathbf{K} = 0$) verwenden dürfen.

Sowohl bei Ga als auch bei As betrachten wir den $L_{2,3}$ -Übergang und setzen deshalb den Energieverlust jeweils auf einen Wert, der knapp oberhalb der entsprechenden EELS-Verlustkante liegt, nämlich auf 1150 eV für Ga und auf 1400 eV für As. Für die Beschleunigungsspannung nehmen wir 100 kV. Die Extinktionslänge in der gewählten Einstrahlrichtung beträgt dann 296 Å.

Unsere Rechnungen mit GaAs haben das Ziel, die Kontrastmechanismen in der Kristallprobe zu untersuchen. Um die störenden Einflüsse des Abbildungsprozesses im Mikroskop zu unterdrücken, nehmen wir für die Abbildung eine ideale Linse an. Die Berücksichtigung einer Aperturblende, eines Defokus und von Linsenfehlern wie der sphärischen und chromatischen Aberration wäre aber ohne großen Aufwand möglich.

4.3 Ergebnisse mit Diskussion

Alle im Folgenden gezeigten berechneten Linienprofile sind auf dieselbe Stromdichte normiert, weshalb die nach oben aufgetragene Intensität in willkürlichen Einheiten angegeben ist. Die nach rechts aufgetragene relative Bildkoordinate bezieht sich auf die zugehörige relative Position innerhalb der Einheitszelle in $[111]$ -Richtung.

Beginnen wir bei der Diskussion der Linienprofile mit der sehr kleinen Kristalldicke von 10 Å. Sicher ist es kaum möglich, den Kristall so dünn zu präparieren und dennoch ein Energieverlustbild ausreichender Intensität zu erhalten. Dieses experimentelle Problem

spielt für unsere prinzipielle Betrachtung aber keine Rolle. Entscheidend ist, dass man an den beiden für diese Dicke berechneten Ga- und As-Linienprofilen in Abb. 4.2 erkennen kann, dass es eine klare, eindeutige Korrelation zwischen den Intensitätsspitzen und den Positionen der Atomebenen innerhalb der Einheitszelle (vgl. Abb. 4.1) gibt.

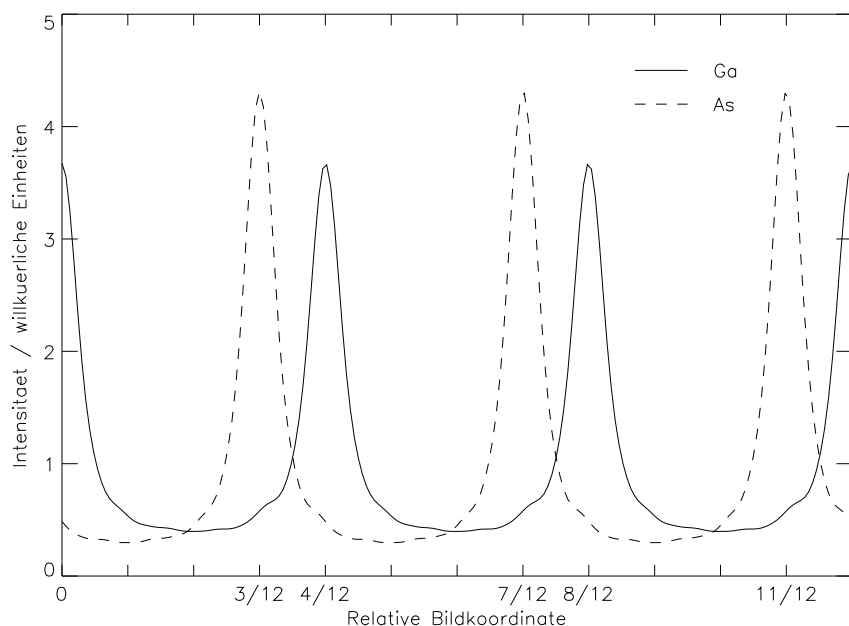


Abbildung 4.2: Berechnete Linienprofile über das unelastische, elementspezifische Ga- bzw. As-Bild bei einer Kristalldicke von 10 Å. Für alle hier präsentierten Linienprofilsimulationen wurde Durchstrahlung des Kristalls in $[\bar{1}01]$ -Richtung sowie eine Beschleunigungsspannung von 100 kV angenommen. Als Energieverlust wurde stets 1150 eV für Ga und 1400 eV für As gewählt, Werte, die jeweils knapp oberhalb der $L_{2,3}$ -Verlustkante liegen. Die Berechnung der Blochwellen für die elastische Streuung erfolgte mit einer systematischen Reihe von 11 Reflexen, die Abbildung mittels idealer Linse.

Die Interpretation des Kontrasts in einem experimentell erzeugten Bild, die ja das hinter allen unseren Simulationsbemühungen stehende Anliegen darstellt, wäre in diesem Fall also kein Problem. Die Information über die Kristallstruktur (genauer: über den Ort eines Elements) liegt im Bild unverschlüsselt und unverfälscht vor und kann direkt abgelesen werden.

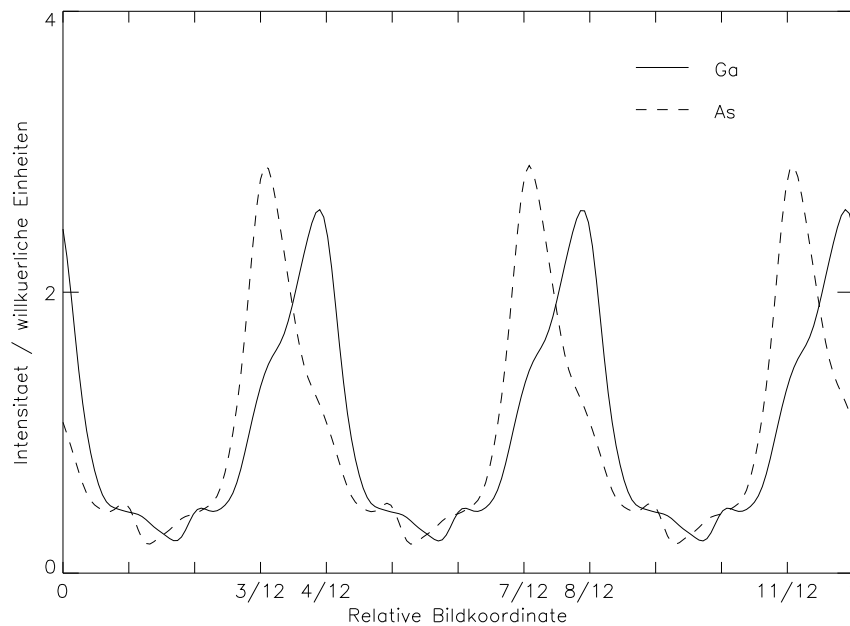


Abbildung 4.3: Berechnete Linienprofile über das unelastische, elementspezifische Ga- bzw. As-Bild bei einer Kristalldicke von 90 Å.

Diese eindeutige Zuordenbarkeit geht mit zunehmender Kristalldicke verloren, wie Abb. 4.3 anhand der entsprechenden Linienprofile für eine Dicke von 90 Å demonstriert. Sowohl die Ga- als auch die As-Peaks sind jeweils ein wenig zu ihren Nachbaratomebenen hin verschoben, an deren Positionen sich zudem Ausbeulungen gebildet haben.

Diese Ausbeulungen wachsen mit weiter zunehmender Dicke in die Höhe, so dass sich bei 222 Å für die Linienprofile das in Abb. 4.4 wiedergegebene Aussehen ergibt. Im Ga-Linienprofil sind nun an den As-Positionen zusätzliche Peaks zu sehen, ebenso im As-Linienprofil zusätzliche Peaks an den Ga-Positionen. Besonders interessant (und schrecklich für den, der aus einem experimentellen Bild die Atompositionen ablesen will) ist hier die Feststellung, dass die Intensität der unerwünschten As-Peaks im Ga-Linienprofil über die der Ga-Peaks hinausgewachsen ist.

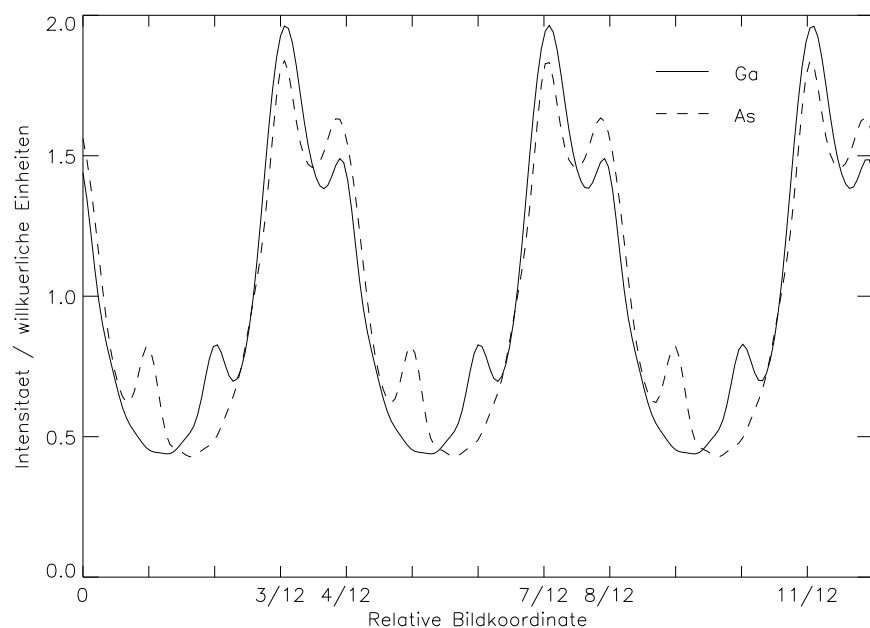


Abbildung 4.4: Berechnete Linienprofile über das unelastische, elementspezifische Ga- bzw. As-Bild bei einer Kristalldicke von 222 Å.

Bei dieser Dicke ist also eine direkte Interpretation des Kontrasts, ein direktes Erkennen der Elementverteilung offensichtlich unmöglich geworden. Dass in beiden Linienprofilen weitere kleine Peaks aufgetaucht sind, die mit überhaupt keiner Atomposition in direkte Verbindung gebracht werden können, ist dann fast schon egal.

Die hier anhand der Linienprofile gezeigte Dickenentwicklung des Kontrasts demonstriert deutlich, dass ab einer gewissen Kristalldicke die anfangs klare Korrelation zwischen Intensitätspeaks und Atompositionen in einer Weise zerstört wird, die die einfache Deutung der Peaks in einem Energieverlustbild als Atompositionen des zugehörigen Elements nicht mehr zulässt. Anders gesagt: Das Energieverlustbild ist kein Elementverteilungsbild mehr.

Zum Vergleich mit den unelastischen Linienprofilen aus Abbn. 4.2 – 4.4 sind in Abb. 4.5 für die gleichen Kristalldicken die entsprechenden elastischen Linienprofile dargestellt, d. h. Linienprofile durch ein Bild, für das nur die elastische Streuung und keine unelastischen Übergänge berechnet werden müssen. Hierzu wurde die gleiche systematische Reihe von 11 Reflexen verwendet.

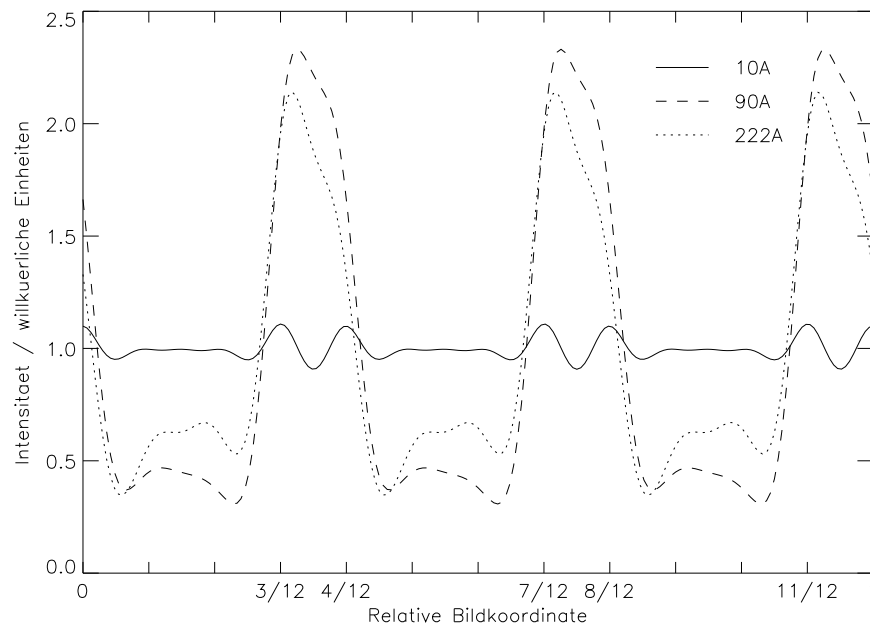


Abbildung 4.5: Berechnete Linienprofile über das elastische (zero-loss-gefilterte) GaAs-Bild für die 3 Kristalldicken aus Abb. 4.2 – 4.4.

Der Vergleich zwischen elastischem und unelastischem Ergebnis legt die Vermutung nahe, dass es die Erhaltung des elastischen Kontrasts ist, die zu den beobachteten Effekten führt. Am besten lässt sich dies am elastischen Linienprofil für 222 \AA erläutern, dessen Kurvengestalt die schwere Deformierung des unelastischen Ga-Linienprofils für 222 \AA von Abb. 4.4 plausibel machen kann. Man kann sich vorstellen, dass ohne seinen „elastischen Hintergrund“ dieses Ga-Linienprofil die Elementverteilung des Ga tatsächlich in akzeptabler Weise widerspiegeln würde und somit ein berechnetes zweidimensionales Energieverlustbild ein leidlich brauchbares Elementverteilungsbild für Ga abgäbe. Wir müssen an dieser Stelle allerdings nachdrücklich darauf hinweisen, dass dieser einfache Versuch einer anschaulichen Erklärung höchstens dazu geeignet ist, plausibel zu machen, dass die Kurvengestalt eines unelastischen Linienprofils bei hinreichend dickem Kristall von der elastischen Streuung wesentlich beeinflusst sein wird. Jedoch kann er in keiner Weise eine Vorhersage darüber liefern, wie dieser Einfluss quantitativ genau aussehen wird, und ist deshalb sehr mit Vorsicht zu genießen. Das Phänomen der Kontrasterhaltung wird hervorgerufen von einem komplexen, nicht aufschlüsselbaren Zusammenwirken der beiden in Kap. 2 besprochenen Mechanismen der Kontrastentstehung, das sicher nicht zu einem bloßen Offset oder Faktor für das elementspezifische Signal führt.

Die Einschätzung, dass die Erhaltung des elastischen Kontrasts für die beobachteten Effekte verantwortlich ist, wird von den Abb. 4.6, 4.7 und 4.8 untermauert, die einen

Gesamtüberblick über die berechneten Dickenserien von Linienprofilen durch das elastische, das unelastische Ga- und das unelastische As-Bild geben. An diesen Pseudo-3D-Darstellungen kann man sehr schön erkennen, dass die charakteristische Periodizität in der Dickenabhängigkeit der elastischen Kurven (Abb. 4.6), die auf die „Pendellösung“ der dynamischen Theorie zurückgeht, sich in der Dickenabhängigkeit der unelastischen Kurven wiederfindet. Man könnte auch sagen: Die elastischen „Hügelketten“, an deren Entstehung beide Atomsorten beteiligt sind, schlagen in den unelastischen Landschaften, an deren Entstehung man gerne nur eine Atomsorte beteiligt sähe, gewissermaßen durch.

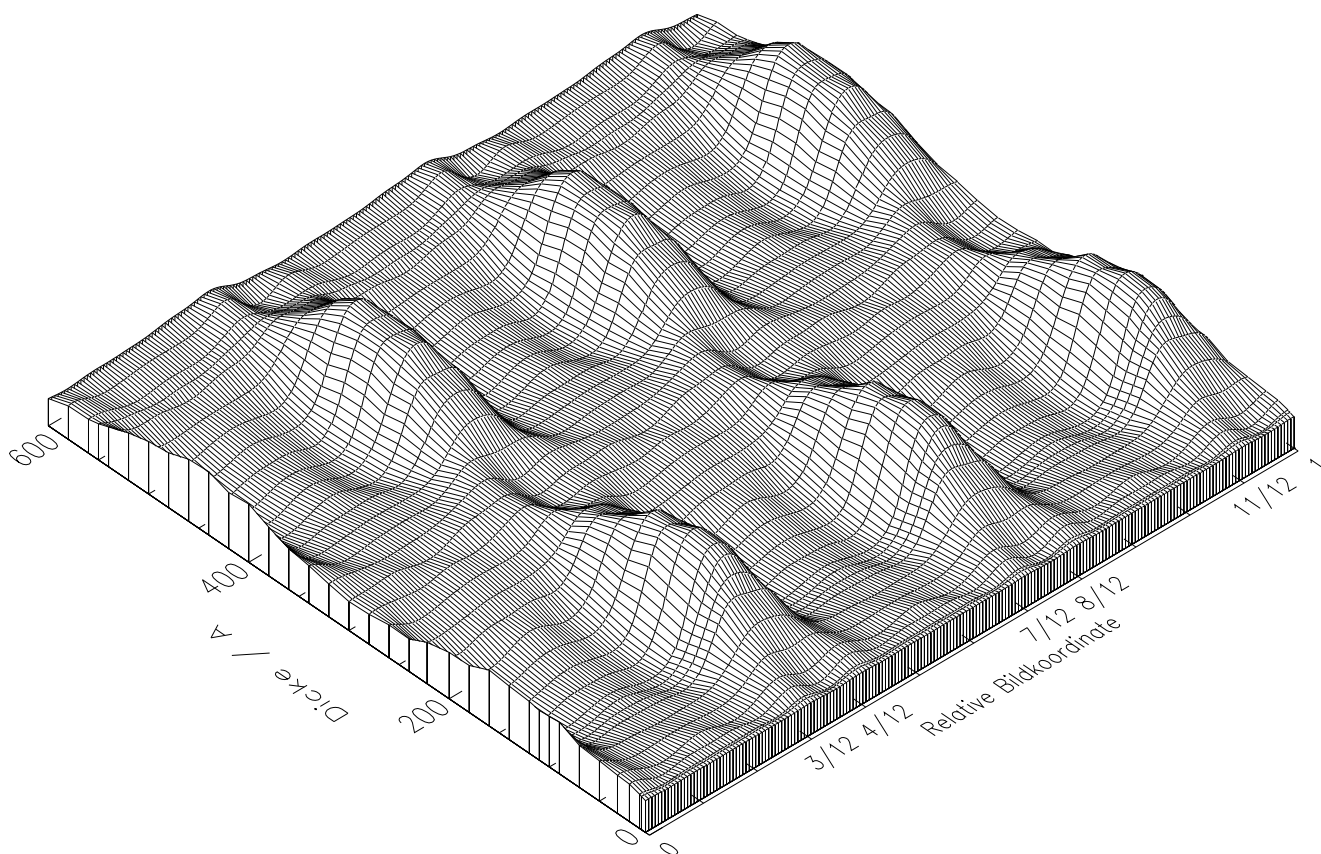


Abbildung 4.6: Gesamtüberblick über die berechneten Dickenserien von Linienprofilen durch das elastische (zero-loss-gefilterte) GaAs-Bild. Die Dickenabhängigkeit der Kontrastentwicklung weist die charakteristische Periodizität der „Pendellösung“ auf, mit einer Extinktionslänge von etwa 300 Å.

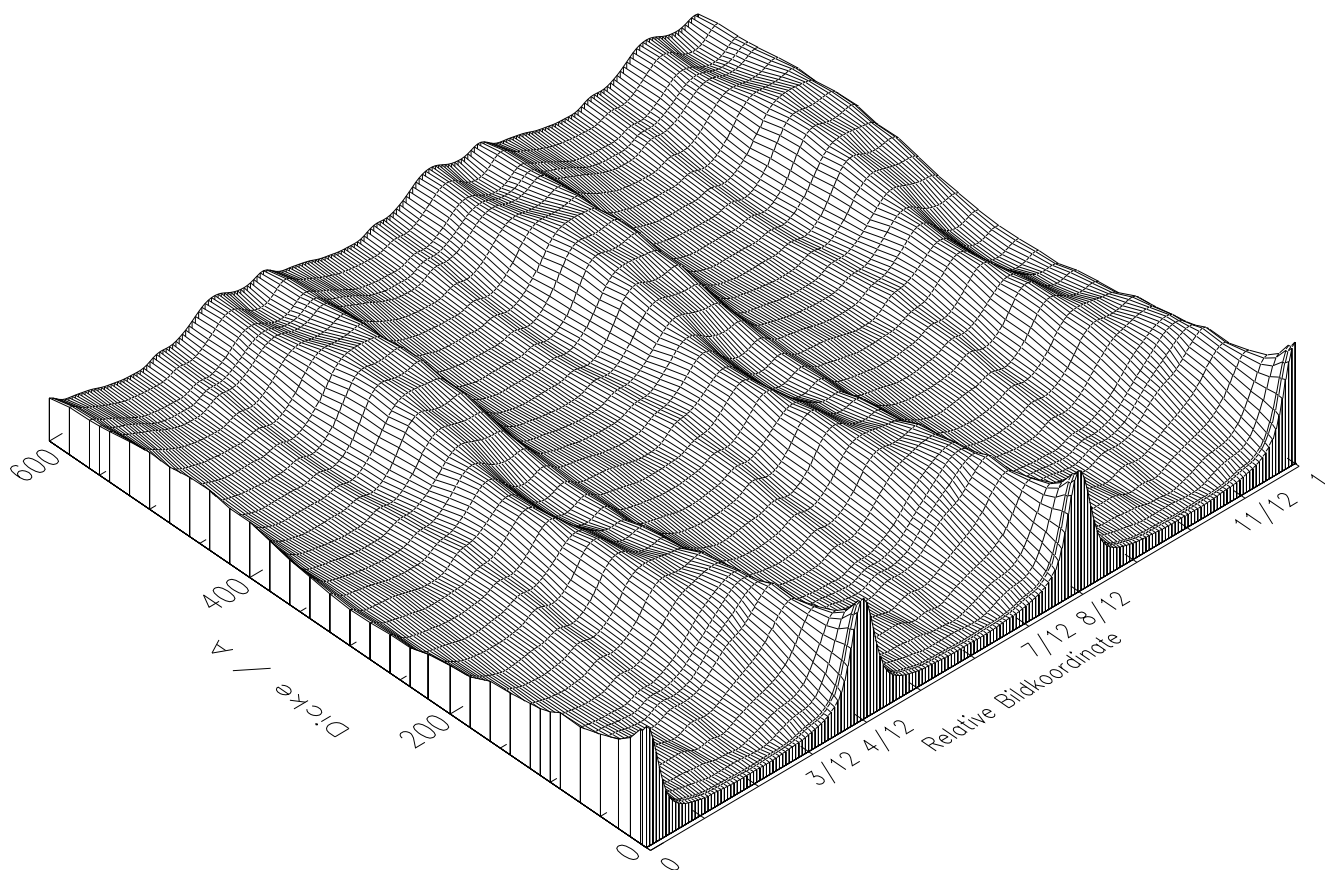


Abbildung 4.7: Gesamtüberblick über die berechneten Dickenserien von Linienprofilen durch das (unelastische) Ga-Energieverlustbild. Die Dickenabhängigkeit spiegelt erkennbar die charakteristische Periodizität von Abb. 4.6 wider.

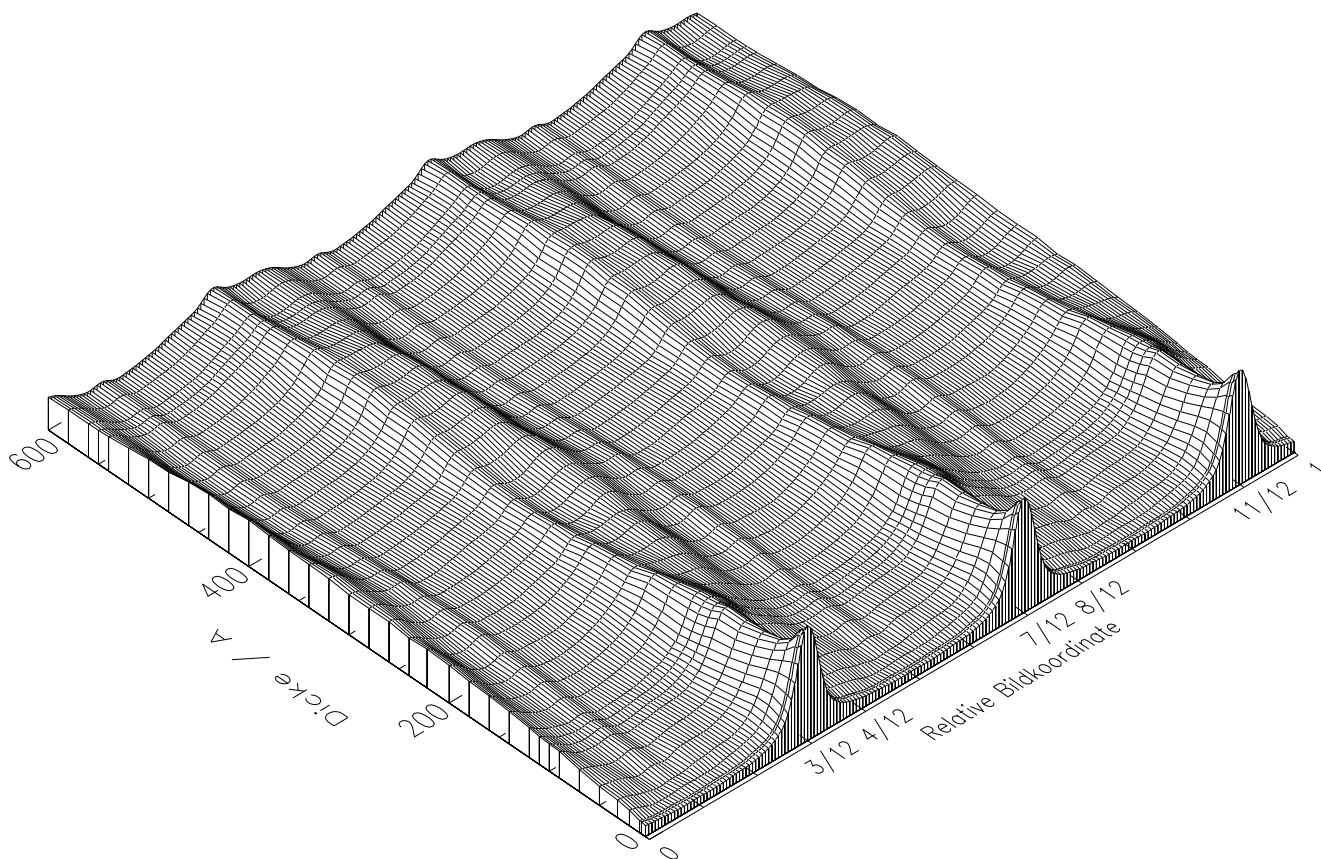


Abbildung 4.8: Gesamtüberblick über die berechneten Dickenserien von Linienprofilen durch das (unelastische) As-Energieverlustbild. Auch hier reproduziert sich wie in Abb. 4.7 die aus Abb. 4.6 bekannte charakteristische Periodizität der Kontrastentwicklung.

Aus diesen Ergebnissen lässt sich die vorsichtige Schätzung ableiten, dass bei transmissionselektronenmikroskopischen Energieverlustbildern kristalliner Materialien eine direkte Kontrastinterpretation im Sinne einer Zuordnung Intensitätspeak gleich Atomort nur bis zu Probendicken statthaft ist, die etwa ein Drittel der Extinktionslänge betragen.

Kapitel 5

Grenzfallbetrachtungen

In Kapitel 2.3 wurde versucht, ohne Formeln auf anschauliche Weise plausibel zu machen, dass bei einer unelastischen Abbildung unter bestimmten Bedingungen der elastische Kontrast teilweise erhalten bleiben kann. Das vorliegende Kapitel bringt das formale Pendant: Die Ergebnisse der mathematischen Beschreibung aus Kap. 3 werden daraufhin abgeklopft, ob sich durch Grenzfallbetrachtungen die Grundstruktur der unelastischen Endformel anschaulich offen legen lässt, so dass die in ihr verborgene Beschreibung der elastischen Streuung augenfälliger wird oder andere Aussagen abgeleitet werden können.

Ein Vergleich der Formelstruktur legt nahe, zu diesem Zweck die Endformel für die „unelastische Intensität“ in der Bildebene (Gl. (3.27)) in Anlehnung an die Endformel für die „elastische Intensität“ (Gl. (3.17)) wie folgt umzuschreiben:

$$\begin{aligned}
 I_{m(\kappa)B}(x_B, y_B) &= \\
 &= \frac{m_e^2 e^4 b_1 b_2 N_{l_0 m_0}}{4 \pi^3 \hbar^4 M^2 \varepsilon_0^2 k_{mz}^2} \sum_{\mathbf{r}_{UK}} \int_{K_x=-b_1/2}^{+b_1/2} \int_{K_y=-b_2/2}^{+b_2/2} \sum_{l'} \sum_{l_1, m_1} (2l' + 1) \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^2 \\
 &\quad \sum_{p'_z=0}^{d/a_3-1} \left| \sum_{j'} \varepsilon^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] d\} \right. \\
 &\quad \sum_{\mathbf{g}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{i g_z'' d\} \exp\left\{-i \frac{1}{M} [g_x'' x_B + g_y'' y_B]\right\} \\
 &\quad \left. T_A \left(\frac{(\check{K}_x + g_x'') f}{k_m}, \frac{(\check{K}_y + g_y'') f}{k_m}; k_m \right) \right|^2 dK_x dK_y, \tag{5.1}
 \end{aligned}$$

wobei die Abkürzung

$$\begin{aligned}
\varepsilon^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) &:= \sum_j \sum_{\mathbf{g}} \sum_{\mathbf{g}'} c_0^{(j)*}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\check{\mathbf{K}}) \\
&\exp\{[i(\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \mu^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] p'_z a_3\} \\
&\exp\{[i(\mathbf{g} - \mathbf{g}' + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\
&W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0))
\end{aligned} \tag{5.2}$$

als Anregungskoeffizient der Blochwelle Nr. j' eines dem Wellenvektor $\check{\mathbf{K}}$ zugeordneten Blochwellenfeldes angesehen werden kann. Streng genommen müsste dieser Anregungskoeffizient um eine Parameterliste ergänzt werden, um anzuzeigen, dass er nicht nur von $\check{\mathbf{K}}$, sondern auch von \mathbf{k}_0 , p'_z , \mathbf{r}_{UK} , l' , l_1 und m_1 abhängt. Wenn diese zusätzlichen Abhängigkeiten nicht beständen, hätte Gl. (5.1) die gleiche Form wie Gl. (3.17) und würde nur die elastische Potentialstreuung nach der unelastischen Innerschalen-Streuung und nicht den unelastischen Prozess selber beschreiben. In diesem Fall läge also eine hundertprozentige Erhaltung des elastischen Kontrasts vor. Physikalisch realisieren lässt sich dieses Verhalten im Grenzfall des niedrigen Energieverlusts.

5.1 Grenzfall niedrigen Energieverlusts

Der charakteristische Streuwinkel

$$\Theta_E := \frac{\Delta E}{2E} \frac{2E + 2m_r c^2}{E + 2m_r c^2}, \tag{5.3}$$

in den der Energieverlust ΔE , die kinetische Energie E des einfallenden Primärelektrons und die Ruhenergie $m_r c^2$ des Elektrons eingehen, ist in diesem Fall sehr klein, so dass die Differenzen zwischen ein- und ausfallendem Wellenvektor in x - und y -Richtung vernachlässigt und die z -Komponenten der beiden Vektoren mit ihrem Betrag gleichgesetzt werden können. Die z -Komponente des in Gl. (B.5) definierten Streuvektors $\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)$ kann in der bei elektronenmikroskopischer Abbildung zulässigen Kleinwinkelnäherung als

$$Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0) \approx k_0 \Theta_E + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \tag{5.4}$$

geschrieben werden. Die reziproken Gittervektoren \mathbf{g} und \mathbf{g}' liegen in der nullten Lauezone, haben also keine z -Komponente und tauchen daher in diesem Ausdruck nicht auf.

Für den Vorfaktor der in Gl. (B.11) vereinbarten Abkürzung ergibt sich dadurch

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\left(Q_{\mathbf{g}'/\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)\right)^2} &\approx \frac{1}{\left(\mathbf{g} - \mathbf{g}' + \left[k_0 \Theta_E + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})\right] \mathbf{e}_z\right)^2} \approx \\
&\approx \frac{1}{\left(k_0 \Theta_E + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})\right)^2} \delta_{\mathbf{g}\mathbf{g}'} \quad . \quad (5.5)
\end{aligned}$$

Die Darstellung mittels Kronecker-Symbol ist möglich, da die Differenz der γ -Werte erfahrungsgemäß klein ist gegen die Differenz der reziproken Gittervektoren und Θ_E im betrachteten Grenzfall wie gesagt ebenfalls sehr klein ist. Für $\mathbf{g} = \mathbf{g}'$ wird der Vorfaktor dann so groß, dass die Terme mit $\mathbf{g} \neq \mathbf{g}'$ in der Summation nach Gl. (5.2) vernachlässigt werden können. Bei dieser Argumentation muss noch sichergestellt werden, dass der Wert des Integrals mit wachsendem Q in der Nähe des Nullpunkts schwächer ansteigt als der Nenner des Vorfaktors. Das ist tatsächlich der Fall, da in diesem Bereich die Dipolstrahlung dominiert, die mit Q linear wächst.

Für Gl. (5.2) erhalten wir somit

$$\begin{aligned}
\varepsilon^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) &\approx \sum_j \sum_{\mathbf{g}} c_0^{(j)*}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j')*}(\check{\mathbf{K}}) \\
&\exp\{[i(\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \mu^{jj'}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] p'_z a_3\} \\
&\exp\{[i(\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \mu^{jj'}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)] z_{UK}\} \\
&W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(k_0 \Theta_E + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) Y_{l_1 m_1}^*(\mathbf{e}_z) \quad . \quad (5.6)
\end{aligned}$$

Als Argument der Kugelfunktion $Y_{l_1 m_1}$ steht \mathbf{e}_z , weil im vorliegenden Grenzfall der Streuvektor \mathbf{Q} in z -Richtung zeigt. Daher tragen nur Terme mit $m_1 = 0$ bei. Wegen $\check{\mathbf{K}} \approx \mathbf{k}_0$ können im vorliegenden Grenzfall des Weiteren die zugehörigen Blochwellenfelder vor und nach der unelastischen Streuung als fast identisch angenommen werden. Die Orthogonalitätsrelation (A.10) der Blochwellenkoeffizienten ermöglicht dann mit

$$\sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) c_{\mathbf{g}}^{(j')*}(\check{\mathbf{K}}) \approx \delta_{jj'} \quad (5.7)$$

die Durchführung der Summe über \mathbf{g} . Wegen der ungefähren Gleichheit der Blochwellen-Eigenwerte ist $\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \approx 0$ und das in Gl. (B.6) vereinbarte $\mu^{jj'}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0) \approx 2 \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)$. Von den Exponentialfunktionen in Gl. (5.6) bleibt dann nur der Dämpfungsterm $\exp\{-2 \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0) (p'_z a_3 + z_{UK})\}$ übrig.

Der sich somit ergebende Ausdruck für $\varepsilon^{(j')}(\check{\mathbf{K}})$

$$\varepsilon^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \approx \sum_j c_0^{(j)*}(\mathbf{k}_0) \exp\{-2 \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0) (p'_z a_3 + z_{UK})\} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(k_0 \Theta_E) Y_{l_1 m_1}^*(\mathbf{e}_z) \quad (5.8)$$

weist keinerlei Abhängigkeit von der lateralen Atomposition x_{UK}, y_{UK} innerhalb der Einheitszelle mehr auf, so dass *man im vorliegenden Grenzfall des niedrigen Energieverlusts in einem Energieverlustbild keinerlei Ortsinformation finden wird, die nicht aus der Erhaltung des elastischen Kontrasts stammt.* Die in der Formel verbliebene Abhängigkeit von z_{UK} wirkt sich nur auf die Dämpfung des Elektronenwellenfeldes aus und ist insbesondere bei dickeren Kristallen gegen die z -Koordinate $p'_z a_3$ der zu summierenden Kristallschichten vernachlässigbar.

Die Summation über m_1 , die nach Gl. (5.1) auszuführen ist, entfällt, weil $m_1 = 0$ ist, wie oben bereits angedeutet. Auch die restlichen Summationen und Integrationen ändern an der festgestellten Erhaltung des elastischen Kontrasts nichts mehr, sondern führen nur zu einer nachträglichen Verwaschung des Kontrasts, weil sie die additive Überlagerung leicht unterschiedlicher Teilbilder beschreiben.

5.2 Grenzfall hohen Energieverlusts

Im Grenzfall des hohen Energieverlusts ergibt sich ein anderes Verhalten. Nach Gl. (5.3) ist der charakteristische Streuwinkel sehr viel größer als bei niedrigem Energieverlust. Die z -Komponente des Streuvektors $\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\check{\mathbf{K}}, \mathbf{k}_0)$ kann wieder wie in Gl. (5.4) geschrieben werden, wobei $k_0 \Theta_E \mathbf{e}_z$ jetzt den Hauptbeitrag zum Streuvektor liefert, so dass $W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}$ und $Y_{l_1 m_1}$ annähernd nur von dieser Größe abhängen. Sie können also aus den Blochwellensummen über $j, \mathbf{g}, \mathbf{g}'$ herausgezogen werden, wodurch die beiden Blochwellenfelder entkoppelt werden. Der in Gl. (5.2) in formaler Analogie zum elastischen Fall definierte Anregungskoeffizient lässt sich dann in der Form

$$\begin{aligned} \varepsilon^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) &\approx W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(k_0 \Theta_E) Y_{l_1 m_1}^*(\mathbf{e}_z) \\ &\left(\sum_j c_0^{(j)*}(\mathbf{k}_0) \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] p'_z a_3\} \right. \\ &\quad \left. \exp\{[i (\mathbf{g} + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0)) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \right) \\ &\left(\sum_{\mathbf{g}'} c_{\mathbf{g}'}^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] p'_z a_3\} \right. \\ &\quad \left. \exp\{[i (\mathbf{g}' + \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] \mathbf{r}_{UK}\} \right)^* \end{aligned} \quad (5.9)$$

schreiben. Hieran sieht man, dass im vorliegenden Grenzfall die Abhängigkeit von der Atomposition \mathbf{r}_{UK} innerhalb der Einheitszelle nicht verschwindet und dass es sich für die weitere Betrachtung anbietet, ähnlich wie in [26, 27] die Betragsquadratbildung nach Gl. (5.1) für die entkoppelten Terme separat durchzuführen:

$$\begin{aligned}
\left| \dots \right|^2 &= \left| W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(k_0 \Theta_E) \right|^2 \left| Y_{l_1 m_1}(\mathbf{e}_z) \right|^2 \\
&\left| \sum_j c_0^{(j)*}(\mathbf{k}_0) \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{[i \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] p'_z a_3\} \right. \\
&\quad \left. \exp\{[i (\mathbf{g} + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_0)) - \mu^{(j)}(\mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \right|^2 \\
&\left| \sum_{j'} \left(\sum_{\mathbf{g}'} c_{\mathbf{g}'}^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] p'_z a_3\} \right. \right. \\
&\quad \left. \left. \exp\{[i (\mathbf{g}' + \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}})) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] \mathbf{r}_{UK}\} \right)^* \exp\{[i \gamma^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) - \mu^{(j')}(\check{\mathbf{K}})] d\} \right. \\
&\quad \left. \sum_{\mathbf{g}''} c_{\mathbf{g}''}^{(j')}(\check{\mathbf{K}}) \exp\{i g''_z d\} \exp\{-i \frac{1}{M} [g''_x x_B + g''_y y_B]\} \right. \\
&\quad \left. T_A \left(\frac{(\check{K}_x + g''_x) f}{k_m}, \frac{(\check{K}_y + g''_y) f}{k_m}; k_m \right) \right|^2. \tag{5.10}
\end{aligned}$$

Diese Darstellung des Betragsquadrats zeigt, dass Gl. (5.1) jetzt eine extrem lokale Wechselwirkung beschreibt.

Denn erstens können wir den dritten der vier entkoppelten Quadratерme vor alle Summen und Integrale ziehen, außer vor die beiden Summen über die Kristallschichten (p'_z) und über die Orte \mathbf{r}_{UK} innerhalb der Einheitszelle. Das heißt: Die Intensität aller Teilbilder, die aufgrund einer unelastischen Wechselwirkung mit den Atomen entstehen, die in der Kristallschicht Nr. $p'_z + 1$ innerhalb ihrer jeweiligen Einheitszellen an der Position \mathbf{r}_{UK} sitzen, ist direkt proportional zur Stromdichte der in den Kristall eingedrungenen Primärelektronen am Ort der entsprechenden Atomkerne. Das ist insbesondere dann plausibel, wenn man sich vor Augen hält, dass eine Streuung mit hohem Energieverlust an einem eng an den Kern gebundenen Innerschalen-Elektron erfolgt.

Zweitens lässt sich ganz analog das Auftreten und die Form des vierten Quadratterms veranschaulichen. Nach dem Reziprozitätstheorem muss die Formel auch für hypothetisch in umgekehrter Richtung von der Bildebene zur Elektronenquelle fliegende Elektronen gelten. Die Stromdichte der auslaufenden Primärelektronen (nach dem unelastischen Stoßprozess) muss also in gleicher Weise in die Formel eingehen wie die eben besprochene einfallsseitige Stromdichte. Dies geschieht durch den vierten Quadratterm, denn inklusive der Integration über K_x, K_y kann er gelesen werden als die Stromdichte von Elektronen, die vom Bildpunkt x_B, y_B der Bildebene ausgehend die Aperturblende und die fehlerbehaftete Linse durchflogen haben und an den Ort eines der Atome gelangt sind, die in der Kristallschicht Nr. $p'_z + 1$ an der Position \mathbf{r}_{UK} innerhalb ihrer Einheitszelle sitzen.

Drittens geben der erste und zweite Quadratterm nach den Summationen über l', l_1 und

m_1 zusammen den Wirkungsquerschnitt für die Streuung einer ebenen Welle an einem freien Atom unter dem Winkel $k_0 \Theta_E$ an.

Man kann somit festhalten, dass *im Grenzfall des hohen Energieverlusts die unelastische Wechselwirkung stark lokalisiert stattfindet und zugleich eine verlässliche Aussage über das Ausmaß einer Erhaltung des elastischen Kontrasts in einem Energieverlustbild ohne Simulationsrechnungen nicht möglich ist.*

Kapitel 6

Zusammenfassung

Atomar aufgelöste elektronenmikroskopische Energieverlustbilder orientierter Kristalle lassen sich nur dann verlässlich interpretieren, wenn man Simulationsrechnungen zum Vergleich heranziehen kann. Im Anschluss an eine veranschaulichende Behandlung der Mechanismen der Kontrastentstehung ist in dieser Arbeit eine Rechenmethode vorgestellt worden, die solche Simulationsrechnungen ermöglicht. Wir sind dabei von wohlbekannten Ansätzen ausgegangen und haben durch die Wahl einer exzitonenartigen Darstellung der angeregten Kristallzustände dafür gesorgt, dass eine Integration über die Ausfallsrichtungen analytisch leicht durchgeführt werden konnte, so dass das Endergebnis in einer Form vorliegt, die numerisch gut auswertbar ist.

Modellrechnungen an einem einfachen GaAs-System haben die Anwendbarkeit unseres Verfahrens demonstriert und erste allgemeine Aussagen über die Abhängigkeit des Kontrastverhaltens von der Kristalldicke geliefert. Die Vermutung, dass durch eine „Erhaltung des elastischen Kontrasts“ ab einer gewissen Kristalldicke die Deutung eines Energieverlustbildes als Elementverteilungsbild nicht mehr möglich ist, wurde durch den Vergleich der unelastischen mit elastischen Linienprofilen bestätigt. Aus den Modellrechnungen, die aus methodischen Gründen noch ohne mikroskopspezifische Linsenfehler erfolgten, ergab sich hier für das untersuchte GaAs-System eine kritische Dicke von einem Drittel der Extinktionslänge. Bei größeren Kristalldicken geht die eindeutige Korrelation zwischen den Intensitätsspitzen in den Linienprofilen und den Atompositionen des betrachteten Elements innerhalb der Einheitszelle verloren, so dass man nicht mehr erwarten darf, aus einem entsprechenden experimentellen Energieverlustbild die Elementverteilung direkt ersehen zu können. Begleitende Simulationsrechnungen sind dann unabdingbar.

Die beiden Grenzfälle des niedrigen und des hohen Energieverlusts wurden betrachtet, um eine Aussage über die Abhängigkeit des Kontrastverhaltens vom Energieverlust zu gewinnen. Im ersten Fall bleibt der elastische Kontrast vollständig erhalten, d. h., allein die elastische Streuung im Kristall bestimmt den Kontrast in der Bildebene. Im zweiten

Fall erfolgt die unelastische Wechselwirkung extrem lokalisiert am Ort der interessierenden Atome, woraus sich aber ohne Simulationsrechnung keine gleichermaßen klare Aussage über Erhaltung oder Verlust des elastischen Kontrasts ableiten lässt.

Über die geschilderten Modellrechnungen hinausgehende systematische Untersuchungen realistischer, materialwissenschaftlich interessanter Kristallstrukturen unter Einbeziehung von Linsenfehlern und Aperturblende sind in Arbeit. Im Rahmen einer Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Mader an der Universität Bonn simulieren wir beispielsweise die energiegefilterten Abbildungen einer SrCuO_2 -Struktur mit planarem O-Defekt [20, 4] und einer TiB_2 -Struktur mit planarem WB-Defekt, die dort mit einem Philips CM 30 ST aufgenommen werden.

Neuere theoretische Arbeiten [11, 12] haben gezeigt, dass sich bei der Berechnung relativistischer Wirkungsquerschnitte für sehr hohe Beschleunigungsspannungen (beispielsweise 400 kV, 1200 kV) die magnetische Wechselwirkung und Retardierungseffekte deutlich bemerkbar machen. Interessant wäre eine systematische Untersuchung, ob und inwieweit sich dies letztlich auf den Kontrast in der Bildebene auswirkt, wenn man eine komplette Abbildungssimulation für derart hohe Beschleunigungsspannungen durchführt. Denn insbesondere bei nichtidealer Linse und bei Vorhandensein einer Aperturblende lässt sich das Ausmaß im Vorhinein nicht abschätzen.

Anhang A

Zur elastischen Streuung: dynamische Theorie

Dieser Anhang bringt einen Abriss des aus der dynamischen Theorie resultierenden Blochwellenformalismus und beschränkt sich dabei auf die Sachverhalte, die zum Verständnis unserer Vorgehensweise unmittelbar nötig sind. Eine ausführliche Darstellung dieses Formalismus, der auf Bethe [1] zurückgeht, findet sich beispielsweise in [18] oder in [10].

Die dynamische Theorie brauchen wir, um die homogenen („elastischen“) Anteile von Gl. (3.13) aus Kapitel 3.2 zu lösen. Zur Beschreibung der elastischen Streuung genügt es, als Modell eines Kristalls eine regelmäßige, starre Gitterstruktur von einzelnen Atomen ohne innere Freiheitsgrade zu Grunde zu legen.

Da die dynamische Theorie von der Schrödingergleichung ausgeht, sind die auf sie aufbauenden Rechnungen zunächst nichtrelativistisch, was die hohen Elektronengeschwindigkeiten bei Beschleunigungsspannungen von 100 keV oder mehr eigentlich nicht mehr zulassen. Die Elektronengeschwindigkeit beträgt bei 100 keV immerhin schon 55 % der Lichtgeschwindigkeit. Glücklicherweise ist es möglich, nachträglich eine relativistische Korrektur anzubringen, wie Fujiwara [5, 6] gezeigt hat. Da die Auswirkungen des Elektronenspins vernachlässigbar sind, kann man die Relativistik angemessen berücksichtigen, indem man in die Schrödingergleichung die relativistische Elektronenmasse und die relativistische Wellenlänge einsetzt.

Die homogene Schrödingergleichung für die Wellenfunktion $\psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r})$ der Primärelektronen im elastischen Kristallpotential $H_{mm}(\mathbf{r})$, wie sie in Gl. (3.13) auftritt, lautet

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta - \frac{\hbar^2 k_m^2}{2m_e} + H_{mm}(\mathbf{r}) \right) \psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) = 0 \quad (\text{A.1})$$

und bekommt mit der Abkürzung

$$U(\mathbf{r}) := -\frac{2m_e}{\hbar^2} H_{mm}(\mathbf{r}) \quad (\text{A.2})$$

die übersichtlichere Form

$$(\Delta + k_m^2 + U(\mathbf{r})) \psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) = 0 \quad . \quad (\text{A.3})$$

Im Folgenden nennen wir U auch einfach „Potential“. Um die Lösung dieser Gleichung bequem skizzieren zu können, greifen wir auf den Begriff des reziproken Gitters zurück, der deshalb kurz eingeführt werden soll. Das reziproke Gitter wird von den reziproken Basisvektoren $\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3$ aufgespannt, die über die Bedingung

$$\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{b}_j = 2\pi \delta_{ij} \quad , \quad i, j = 1, 2, 3 \quad , \quad (\text{A.4})$$

mit den Basisvektoren $\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2, \mathbf{a}_3$ des realen Gitters verknüpft sind. Mit dieser Bedingung gleichbedeutend sind die Definitionen

$$\begin{aligned} \mathbf{b}_1 &:= \frac{2\pi}{V_{EZ}} \mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3 \quad , \\ \mathbf{b}_2 &:= \frac{2\pi}{V_{EZ}} \mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1 \quad , \\ \mathbf{b}_3 &:= \frac{2\pi}{V_{EZ}} \mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2 \quad , \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

wobei $V_{EZ} = \mathbf{a}_1 \cdot (\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3)$ das Volumen der Einheitszelle ist. Eine Ebenenschar des realen Gitters, bezeichnet durch die millerschen Indizes (h, k, l) , wird durch den reziproken Gittervektor

$$\mathbf{g} = h \mathbf{b}_1 + k \mathbf{b}_2 + l \mathbf{b}_3 \quad (\text{A.6})$$

repräsentiert. Der Vektor \mathbf{g} benennt auch den von dieser Ebenenschar erzeugten Braggreflex in einem Beugungsdiagramm, das man sich in einem abstrakten Sinne als Abbildung eines näherungsweise ebenen Schnitts durch das reziproke Gitter vorstellen kann.

Das Potential $U(\mathbf{r})$ des Kristalls lässt sich, weil es periodisch ist, als Fourierreihe

$$U(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} U_{\mathbf{g}} \exp\{i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}\} \quad (\text{A.7})$$

schreiben, worin die eben eingeführten Vektoren \mathbf{g} Verwendung finden. Gl. (A.3) kann deshalb nur von einer Wellenfunktion gelöst werden, die einen Faktor mit der Periodizität des Kristallpotentials besitzt und folglich die Form

$$\psi^{(j)}(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_m) \exp\{i (\mathbf{k}_m^{(j)} + \mathbf{g}) \mathbf{r}\} \quad (\text{A.8})$$

haben muss¹. Diese Aussage ist als das Blochsche Theorem bekannt, das hier schon in Fourierreihenentwicklung dargestellt ist. Die Wellenfunktion wird Blochwelle genannt (Abb. A.1).

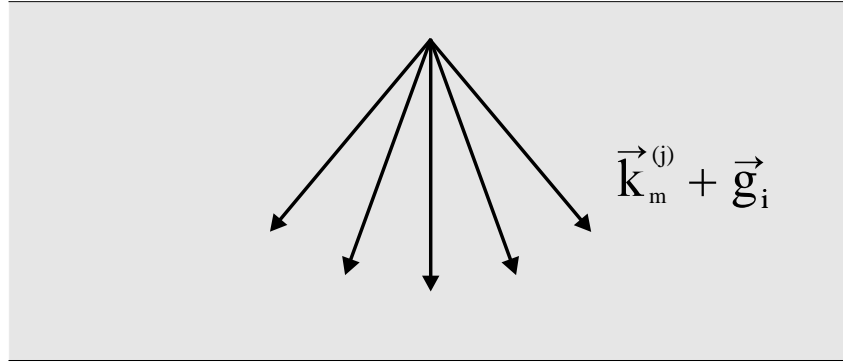


Abbildung A.1: Blochwelle Nr. j im Kristall (schematisch). Von den prinzipiell unendlich vielen Partialwellen $\mathbf{k}_m^{(j)} + \mathbf{g}_i$ sind hier nur fünf dargestellt. Die Größe der Winkel ist stark übertrieben.

Der Index j nummeriert die einzelnen Blochwellenlösungen durch, deren Linearkombination

$$\psi_{hom}(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) = \sum_j \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_m) \psi^{(j)}(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) \quad (\text{A.9})$$

die allgemeine Lösung liefert. Der Index *hom* macht kenntlich, dass es sich hierbei um die Lösung der homogenen Anteile von Gl. (3.13) handelt. Die Anregungskoeffizienten $\varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0)$ ergeben sich aus der Randbedingung, dass $\psi_{hom}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$ an der Kristalloberfläche stetig ist, zu $\varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) = c_{\mathbf{g}=0}^{(j)*}(\mathbf{k}_0)$. Die Anregungskoeffizienten $\varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_m)$, $m \neq 0$, hingegen sind nicht so einfach zu berechnen. Sie stellen vielmehr das unscheinbare Kürzel für nichts Geringeres als das Ergebnis der aufwendigen unelastischen Rechnung dar, die im Wesentlichen im Kapitel 3.2 und in den Anhängen B und C abgehandelt wird.

Die Linearkombination (A.9) mit ihrer unendlichen Summe ist die exakte Lösung des Problems. Für die praktische numerische Berechnung muss man sich jedoch auf die endliche

¹Das kann man sich leicht klarmachen, wenn man in Gl. (A.3) der Einfachheit halber den Differentialoperator unter den Tisch fallen lässt und die Formel nach $U \psi = \text{const } \psi$ umstellt.

Anzahl derjenigen Blochwellen beschränken, die die Intensität im Endbild im Wesentlichen bestimmen. Die numerische Berechnung der Blochwellen kann erfolgen, nachdem man Gl. (A.3) unter Ausnutzung der Periodizitäten aus Gl. (A.7) und (A.8) in die „Dispersionsgleichung der dynamischen Theorie“ (vgl. [18, 10]) und diese durch Linearisierung unter Vernachlässigung von Rückstreuung in eine Eigenwertgleichung übergeführt hat.

Die Komponenten der von der numerischen Eigenwertrechnung gelieferten Eigenvektoren sind die Blochwellenkoeffizienten $c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_m)$. Sie gehorchen den Orthogonalitätsrelationen

$$\sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_m) c_{\mathbf{g}}^{(j')*}(\mathbf{k}_m) = \delta_{jj'} \quad , \quad (\text{A.10})$$

$$\sum_j c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_m) c_{\mathbf{g}'}^{(j)*}(\mathbf{k}_m) = \delta_{\mathbf{g}\mathbf{g}'} \quad . \quad (\text{A.11})$$

Ihre Eigenwerte, mit $\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_m)$ bezeichnet, sind die Differenzen in z -Richtung zwischen den Wellenvektoren $\mathbf{k}_m^{(j)}$ im Innern des Kristalls und dem zugehörigen Vakuumwellenvektor \mathbf{k}_m .

Im Rahmen der Blochwellenrechnung kann man die inkohärenten unelastischen Streuprozesse, durch die ein Teil der Elektronen in einen tieferen Energiebereich transportiert wird und somit dem Blochwellenfeld „verloren geht“, als bloßen Dämpfungs- oder Absorptionseffekt betrachten. Hierzu macht man aus dem realen Kristallpotential $U(\mathbf{r})$ ein komplexes Potential, wie es von Molière phänomenologisch eingeführt [19] und von Yoshioka aus einer Störungstheorie quantenmechanisch gerechtfertigt wurde [28]. Der Imaginärteil dieses Potentials sorgt dafür, dass auch die Eigenwerte und dementsprechend die Wellenvektoren komplex werden und somit insgesamt in der Form

$$\mathbf{k}_m^{(j)} = \mathbf{k}_m + (\gamma^{(j)}(\mathbf{k}_m) + i \mu^{(j)}(\mathbf{k}_m)) \mathbf{e}_z = \mathbf{k}_m + \gamma^{(j)}(\mathbf{k}_m) + i \boldsymbol{\mu}^{(j)}(\mathbf{k}_m) \quad (\text{A.12})$$

geschrieben werden können. Die Werte für die Absorptionskoeffizienten $\mu^{(j)}$ ergeben sich aus der Störungsrechnung, wie sie z. B. in [27] durchgeführt ist.

Für die Auswahl der Partialwellen („Reflexe“) $\mathbf{k}_m^{(j)} + \mathbf{g}$, die aufgrund der Größe ihres Blochwellenkoeffizienten $c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_m)$ zum Kontrast in der Abbildung maßgeblich beitragen und deshalb in der Eigenwertrechnung berücksichtigt werden müssen, gibt es kein Apriori-Kriterium. Um sicherzustellen, dass in der unelastischen Gesamtrechnung das Wellenfeld der Primärelektronen hinreichend genau modelliert ist, muss man daher Testrechnungen vorschalten. In ihnen untersucht man, abhängig von der Anzahl der berücksichtigten Reflexe, die Intensitätsentwicklung der Wellenfunktion in einer bestimmten Ausbreitungsrichtung innerhalb des Kristalls mit zunehmender Eindringtiefe. Man erhöht die Anzahl

der Reflexe, bis diese „Tiefenscans“ konvergieren; alle weiteren Reflexe können dann vernachlässigt werden. Eingehender behandelt wird dieses Auswahlverfahren in [24].

Anhang B

Zur unelastischen Streuung: Greenfunktionen und Auswertung des Übergangsmatrixelements

In Anhang A wurde die Lösung von Gl. (3.13) aus Kapitel 3.2 unter Vernachlässigung der Inhomogenität $-H_{m0}(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$ behandelt, d. h. unter Vernachlässigung der unelastischen Streuung. Aufbauend auf diese „elastische“ Lösung, die die Beschaffenheit der Elektronenwelle im Kristall bei rein elastischer Streuung beschreibt, kann man sich nun die „unelastische“ Wellenfunktion verschaffen, die die komplette, inhomogene Gleichung löst. Dies geschieht mit der Methode der Greenfunktionen

$$\psi_m(\mathbf{r}) := \psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r}) = \int G_m(\mathbf{r}, \mathbf{r}') (-H_{m0}(\mathbf{r}') \psi_{hom}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}')) d^3\mathbf{r}' , \quad m \neq 0 , \quad (\text{B.1})$$

wobei G_m die aus den Blochwellen der elastischen Lösung gebildete greensche Funktion ist [21, 14]:

$$G_m(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{2 m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2} \int \sum_{j'} \frac{\psi^{(j')*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') \psi^{(j')}(\mathbf{k}, \mathbf{r})}{k^2 - k_m^2 - i\eta} d^3\mathbf{k} . \quad (\text{B.2})$$

Wir sind hier von der Schreibweise $\psi(\mathbf{k}_m, \mathbf{r})$ zu $\psi_m(\mathbf{r})$ übergegangen, weil, wie man an Gl. (B.2) sieht, die unelastische Wellenfunktion nur vom Betrag von \mathbf{k}_m abhängt. Die Integration über die Wechselwirkungszone in Gl. (B.1) braucht nur über das Kristallvolumen zu erfolgen, da die Raumbereiche ober- und unterhalb des Kristalls nach [27] vernachlässigt werden können. Nach unseren Modellannahmen bedeutet das konkret Integration über $-\infty < x', y' < +\infty$ und $0 \leq z' \leq d$.

Durch Einsetzen von Gl. (A.9) und Gl. (B.2) in Gl. (B.1) erhalten wir den Ausdruck

$$\begin{aligned}
\psi_m(\mathbf{r}) &= -\frac{2m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2} \int_{\text{Kristall}} \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{\mathbf{k}} \sum_{j'} \frac{\psi^{(j')*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') \psi^{(j')}(\mathbf{k}, \mathbf{r})}{k^2 - k_m^2 - i\eta} d^3\mathbf{k} \\
&\quad \left(H_{m0}(\mathbf{r}') \sum_j \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \psi^{(j)}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}') \right) d^3\mathbf{r}' = \\
&= -\frac{2m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2} \int_{\text{Kristall}} \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{\mathbf{k}} \sum_{j',j} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \psi^{(j')}(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \\
&\quad \frac{\psi^{(j')*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') H_{m0}(\mathbf{r}') \psi^{(j)}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}')}{k^2 - k_m^2 - i\eta} d^3\mathbf{k} d^3\mathbf{r}' = \\
&= -\frac{2m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2} \sum_{j',j} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{\mathbf{k}} \psi^{(j')}(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \frac{H_{m0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)}{k^2 - k_m^2 - i\eta} d^3\mathbf{k} \approx \\
&\approx -\frac{2m_e}{(2\pi)^3 \hbar^2} \sum_{j',j} \varepsilon^{(j)}(\mathbf{k}_0) \lim_{\eta \rightarrow 0} \int_{k_z} \int_{k_y} \int_{k_x} \psi^{(j')}(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \frac{H_{m0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)}{k_z^2 - k_{mz}^2 - i\eta} dk_x dk_y dk_z,
\end{aligned} \tag{B.3}$$

wobei wir uns im vorletzten Umformungsschritt der Abkürzung

$$H_{m0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) := \int_{\text{Kristall}} \psi^{(j')*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') H_{m0}(\mathbf{r}') \psi^{(j)}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}') d^3\mathbf{r}' \tag{B.4}$$

bedient und im letzten Schritt die Näherungen $k \approx k_z$ und $k_m \approx k_{mz}$ gemacht haben, die wegen der sehr kleinen Streuwinkel bei der elektronenmikroskopischen Abbildung zulässig sind.

Die Abkürzung (B.4), die die Definition (3.11) einschließt, kann als Übergangsmatrixelement angesehen werden. Es gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass durch den unelastischen Streuprozess der Kristall vom Anfangszustand Φ_0 in den Zustand Φ_m übergeht und gleichzeitig die sich im Blochwellenzustand $\psi^{(j)}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}')$ befindende Teilwelle des eingestrahlten Primärelektrons in den Blochwellenzustand $\psi^{(j')}(\mathbf{k}, \mathbf{r}')$ überwechselt. Der Auswertung dieses Übergangsmatrixelements wenden wir uns nun zu.

Angelehnt an [26, 27] definieren wir für die folgenden Rechnungen als weitere Abkürzungen

$$\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) := \mathbf{k}_0 - \mathbf{k} + \mathbf{g} - \mathbf{g}' + \boldsymbol{\gamma}^{(j)}(\mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\gamma}^{(j')}(\mathbf{k}), \tag{B.5}$$

$$\boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) := \boldsymbol{\mu}^{(j)}(\mathbf{k}_0) + \boldsymbol{\mu}^{(j')}(\mathbf{k}). \tag{B.6}$$

Mit Gl. (3.11), (A.8), (A.12), (B.5), (B.6) und (3.12) lässt sich (B.4) in folgende Form bringen:

$$\begin{aligned}
H_{m0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) &= \int_{\mathbf{r}'} \int_{\mathbf{R}} \psi^{(j')*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}') \Phi_m^*(\mathbf{R}) V(\mathbf{r}', \mathbf{R}) \Phi_0(\mathbf{R}) \psi^{(j)}(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}') d^{3(N_E+N_K)} \mathbf{R} d^3 \mathbf{r}' = \\
&= \int_{\mathbf{r}'} \int_{\mathbf{R}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \exp\{i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) \mathbf{r}'\} \exp\{-\boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) \mathbf{r}'\} \Phi_m^*(\mathbf{R}) \\
&\quad \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\sum_{\nu=1}^{N_E} \frac{1}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}_\nu|} - \sum_{\nu'=1}^{N_K} \frac{Z_{\nu'}}{|\mathbf{r}' - \mathbf{R}_{\nu'}|} \right) \Phi_0(\mathbf{R}) d^{3(N_E+N_K)} \mathbf{R} d^3 \mathbf{r}' . \tag{B.7}
\end{aligned}$$

Um am Ende für die Simulation der unelastischen Abbildung eine Formel zu erhalten, die mit vertretbarem numerischen Aufwand ausgerechnet werden kann, wählen wir für den angeregten Kristallzustand Φ_m eine spezielle, exzitonenartige Darstellungsart, die nebst zugehöriger Umformungen in Anhang C vorgestellt und diskutiert wird.

Im sich daraus ergebenden Ausdruck für das Übergangsmatrixelement (vgl. Gl. (C.7))

$$\begin{aligned}
H_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) &= \\
&= \frac{e^2}{\epsilon_0 \sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{p_x U}\} \right) \\
&\quad \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{y\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{p_y U}\} \right) \exp\{[i Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \\
&\quad \exp\{[i (\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \int_{\mathbf{r}_{KE}} \varphi_{\kappa l' m'}^*(\mathbf{r}_{KE}) \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{KE}) \\
&\quad \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{KE}\}}{(\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3 \mathbf{r}_{KE} \tag{B.8}
\end{aligned}$$

muss jetzt noch die Integration über $d^3 \mathbf{r}_{KE}$, den Raum eines einzelnen Atomelektrons, durchgeführt werden. Hierzu betrachten wir dieses Integral gesondert und behandeln dabei den atomaren Übergang in gleicher Weise wie [26, 27]. Vom Integrationsgebiet, das eigentlich den ganzen Kristall umfasst, ist nur der Bereich relevant, wo die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des betrachteten Atomelektrons von null verschieden ist. Da typische Atomradien von der Größenordnung Ångström sind und somit klein gegen $1/|\boldsymbol{\mu}^{j'j}|$, darf deshalb $\boldsymbol{\mu}^{j'j}$ innerhalb des Integrals vernachlässigt werden.

$$\begin{aligned}
& \int_{\mathbf{r}_{KE}} \varphi_{\kappa l' m'}^*(\mathbf{r}_{KE}) \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{KE}) \frac{\exp\{i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}_{KE}\}}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3 \mathbf{r}_{KE} = \\
& = \int_{\mathbf{r}_{KE}} \xi_{\kappa l'}^*(r_{KE}) Y_{l' m'}^*(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) \xi_{n_0 l_0}(r_{KE}) Y_{l_0 m_0}(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) \\
& \quad \frac{4 \pi \sum_{l_1, m_1} i^{l_1} j_{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) r_{KE}) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}(\boldsymbol{\Omega}_{KE})}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} r_{KE}^2 d^2 \boldsymbol{\Omega}_{KE} dr_{KE} = \\
& = 4 \pi \sum_{l_1, m_1} i^{l_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) \\
& \quad \int_{\boldsymbol{\Omega}_{KE}} Y_{l' m'}^*(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) Y_{l_0 m_0}(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) Y_{l_1 m_1}(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) d^2 \boldsymbol{\Omega}_{KE} = \\
& = 4 \pi \sum_{l_1, m_1} i^{l_1} W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) Y_{l_1 m_1}^*(\hat{\mathbf{Q}}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) (-1)^{m_0} i^{(l_0 + l_1 - l')} \\
& \quad \sqrt{\frac{(2l_0 + 1)(2l_1 + 1)(2l' + 1)}{4\pi}} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} . \tag{B.9}
\end{aligned}$$

In diesem Rechengang haben folgende Beziehungen Verwendung gefunden. Zunächst wurde die atomare Wellenfunktion φ als Produkt von Radialanteil ξ und Kugelfunktion Y geschrieben:

$$\begin{aligned}
\varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{KE}) &= \xi_{n_0 l_0}(r_{KE}) Y_{l_0 m_0}(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) , \\
\varphi_{\kappa l' m'}(\mathbf{r}_{KE}) &= \xi_{\kappa l'}(r_{KE}) Y_{l' m'}(\boldsymbol{\Omega}_{KE}) , \tag{B.10}
\end{aligned}$$

wobei $\boldsymbol{\Omega}_{KE} \equiv \mathbf{r}_{KE}/r_{KE}$ der Einheitsvektor in Richtung von \mathbf{r}_{KE} ist. Gleichzeitig wurde die Exponentialfunktion im Zähler in der angegebenen Weise nach Kugelfunktionen entwickelt [16], um weiter unten die Winkelintegration analytisch durchführen zu können. In dieser Reihenentwicklung bezeichnet j_{l_1} die sphärische Besselfunktion der Ordnung l_1 und $\hat{\mathbf{Q}} \equiv \mathbf{Q}/Q$ den Einheitsvektor in Richtung von \mathbf{Q} .

Des Weiteren wurde die Abkürzung

$$W_{n_0 l_0, \kappa l'}^{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)) := \frac{1}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} \int_{\mathbf{r}_{KE}} j_{l_1}(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) r_{KE}) \xi_{\kappa l'}^*(r_{KE}) \xi_{n_0 l_0}(r_{KE}) r_{KE}^2 dr_{KE} \tag{B.11}$$

verwendet, die die Integration über die Radialanteile der atomaren Wellenfunktionen enthält. Dieses Integral muss numerisch gelöst werden.

Die Winkelintegration über $d^2\boldsymbol{\Omega}_{KE}$, die nach den vorbereitenden Umformungen analytisch durchgeführt werden konnte [16], lieferte den im letzten Umformungsschritt von Gl. (B.9) angegebenen Ausdruck, worin $\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix}$ für ein 3-j-Symbol steht, dessen Orthogonalitätsrelation durch

$$\sum_{m_0, m'} \begin{pmatrix} l' & l_0 & l_1 \\ -m' & m_0 & m_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} l' & l_0 & \tilde{l}_1 \\ -m' & m_0 & \tilde{m}_1 \end{pmatrix} = \frac{\delta_{l_1 \tilde{l}_1} \delta_{m_1 \tilde{m}_1}}{2l_1 + 1} \quad (\text{B.12})$$

gegeben ist.

Mit Gl. (B.8), in die das Integrationsergebnis (B.9) einzusetzen ist, haben wir unser Übergangsmatrixelement in eine Form gebracht, die, ihrerseits eingesetzt in Gl. (B.3), für die weitere Berechnung der Propagation der Elektronenwelle durch das Mikroskop und die abschließende Betragsquadratbildung in der Bildebene Erfolg verspricht.

Anhang C

Exzitonendarstellung

Um zu einer geeigneten formalen Beschreibung des Kristallendzustands im Ortsraum zu gelangen, zerlegen wir zunächst den Ortsvektor \mathbf{r}_p , der zum Kristallatomelektron Nr. p weist, in folgende Teilvektoren:

$$\mathbf{r}_p = \mathbf{r}_{pK} + \mathbf{r}_{pKE} = \mathbf{r}_{pU} + \mathbf{r}_{pUK} + \mathbf{r}_{pKE} \quad . \quad (\text{C.1})$$

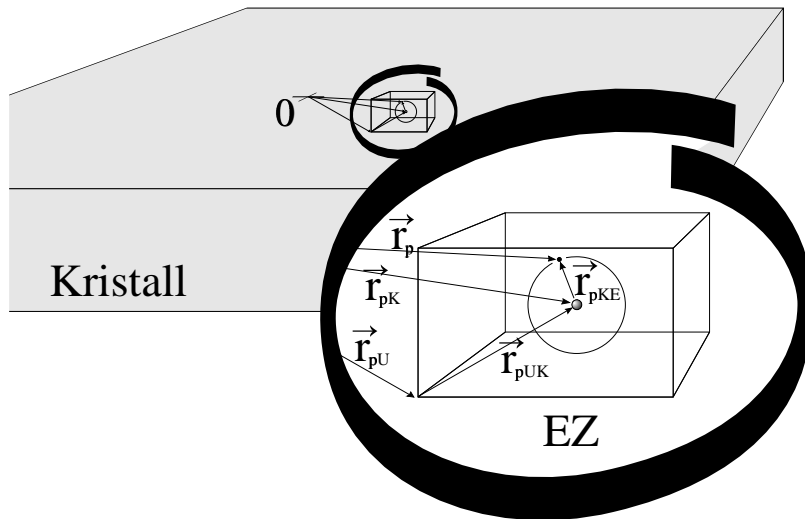


Abbildung C.1: Zur Aufspaltung des Ortsvektors \mathbf{r}_p von Kristallatomelektron Nr. p .

Wie man aus Abb. C.1 ersehen kann, bedeuten die Indizes K „vom Ursprung des Koordinatensystems zum Kern“, KE „vom Kern zum Elektron“, U „vom Ursprung des Koordinatensystems zum Ursprung der Einheitszelle“ und UK „vom Ursprung der Einheitszelle zum Kern“. Der Teilvektor \mathbf{r}_{pUK} kann dabei ohne die Nummer p stehen

$$\mathbf{r}_{pUK} \Longrightarrow \mathbf{r}_{UK} \quad , \quad (\text{C.2})$$

weil er für alle hier betrachteten Atome der gleiche ist. Denn erstens wird im Folgenden nur eine bestimmte Atomsorte und nur ein bestimmter Innerschalen-Übergang betrachtet, da unser Ziel ja die Berechnung einer elementspezifischen Abbildung ist. Zweitens wird nur eine einzige Position dieser Atomsorte innerhalb der Einheitszelle betrachtet, da in der hier angestrebten Exzitonendarstellung nur gitterperiodische Einzelatompositionen zusammengefasst werden können. Tritt eine Atomsorte innerhalb der Einheitszelle mehrfach auf, muss für jede Position ein separates Teilbild berechnet werden. Die Teilbilder sind anschließend zum Gesamtbild aufzuaddieren.

Wenn wir die Koordinate des Atomelektrons vom Kern aus zählen, dann kommen auch die atomaren Wellenfunktionen der betrachteten Atomzustände ohne die p -Nummerierung aus:

$$\begin{aligned} \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(p)}(\mathbf{r}_p) &= \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_{pK}) = \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{pKE}) \quad , \\ \varphi_{\kappa l' m'}^{(p)}(\mathbf{r}_p) &= \varphi_{\kappa l' m'}(\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_{pK}) = \varphi_{\kappa l' m'}(\mathbf{r}_{pKE}) \quad , \end{aligned} \quad (\text{C.3})$$

wobei n_0, l_0, m_0 Hauptquantenzahl und Drehimpulsquantenzahlen des Anfangszustands sind. Der angeregte Endzustand nach einem unelastischem Streuprozess wird durch die Wellenzahl κ des herausgeschlagenen Elektrons und die zugehörigen Drehimpulsquantenzahlen l', m' beschrieben.

Da der atomare unelastische Streuprozess eine Wechselwirkung mit der Elektronenhülle ist und das Kernpotential dabei keine Rolle spielt, braucht in den weiteren Rechnungen der zweite Term des Wechselwirkungspotentials von Gl. (3.12) nicht berücksichtigt zu werden. Er würde für das Übergangsmatrixelement den Beitrag null liefern. Die Integration nach Gl. (3.11) werden wir also nicht über die $N_E + N_K$ Koordinaten aller Hüllenelektronen und Kerne durchführen, sondern nur über die \tilde{N} Koordinaten der Hüllenelektronen einer Atomsorte, die auf der jeweils gerade betrachteten inneren Schale sitzen. Diese Koordinaten seien mit dem Kürzel $\tilde{\mathbf{R}} \equiv (\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{\tilde{N}})$ benannt. $\tilde{\mathbf{R}}$ ist eine Untermenge von \mathbf{R} , zu der streng genommen noch anzumerken ist, dass ihre Elemente neu durchnummeriert zu denken sind. Aus Gründen der formalen Korrektheit erhält auch das Symbol für den Kristallzustand eine Tilde, um anzuzeigen, dass mit der Beschränkung des Variablenraums ihres Arguments auch die Funktion selbst modifiziert werden muss: $\Phi_0(\mathbf{R}), \Phi_m(\mathbf{R}) \Longrightarrow \tilde{\Phi}_0(\tilde{\mathbf{R}}), \tilde{\Phi}_m(\tilde{\mathbf{R}})$.

Mit dieser Beschränkung des Integrationsraumes und kleinen Umstellungen wird Gl. (B.7) zu

$$\begin{aligned}
H_{m0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) &= \\
&= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \int_{\tilde{\mathbf{R}}} \tilde{\Phi}_m^*(\tilde{\mathbf{R}}) \tilde{\Phi}_0(\tilde{\mathbf{R}}) \\
&\quad \sum_{\nu=1}^{\tilde{N}} \int_{\mathbf{r}'} \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}'\}}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}_\nu|} d^3\mathbf{r}' d^3\tilde{\mathbf{R}} = \\
&= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \int_{\tilde{\mathbf{R}}} \tilde{\Phi}_m^*(\tilde{\mathbf{R}}) \tilde{\Phi}_0(\tilde{\mathbf{R}}) \\
&\quad \sum_{\nu=1}^{\tilde{N}} 4\pi \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_\nu\}}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3\tilde{\mathbf{R}} . \tag{C.4}
\end{aligned}$$

Die Integration über $d^3\mathbf{r}'$, die die Fourierdarstellung des Coulombpotentials liefert, führt man in Kugelkoordinaten durch und verwendet dabei den „Trick des Konvergenz erzeugenden Faktors“.

Kommen wir nun zum Kernstück dieses Anhangs, das gleichzeitig in unserer ganzen Behandlung des Themas Simulation von Elementverteilungsbildern kristalliner Strukturen eine maßgebliche Rolle spielt. Unser Ziel ist nicht, wie in [8], die unelastische Abbildung eines Einzelatoms, das in einer Kristallumgebung sitzt, sondern die unelastische Abbildung des Gesamtkristalls. Der entscheidende Punkt dabei ist, dass wir den mathematischen Ausdruck, der den Kontrast bzw. die Intensitätsverteilung in einer solchen Abbildung beschreibt, am Ende in einer Form vorliegen haben wollen, welche die numerische Berechnung mit heutiger Rechnertechnologie in akzeptabler Zeit gestattet. Deshalb sollen die Elektronen, die zur Kontrastentstehung beitragen, in der Endformel nicht nach der Nummer des Atoms, an dem sie unelastisch gestreut wurden, geordnet sein, sondern nach ihrer Ausfallsrichtung¹. Um dies zu erreichen, müssen wir für die Endzustände des Kristalls eine Darstellung finden, in der sie nicht durch die Nummer des angeregten Atoms charakterisiert werden, sondern durch den Impulsübertrag während des unelastischen Streuprozesses. Diese Forderung wird von einer exzitonartigen Darstellung erfüllt. Unter einem Exziton verstehen wir hier eine lineare Superposition lokalisierter atomarer Anregungszustände, die als Quasiteilchen angesehen werden kann [13].

Unserem Kristallmodell (siehe Anfang von Kap. 3.2) angemessen, fassen wir nicht alle betrachteten Atompositionen des angeregten Gesamtkristalls in einem einzigen, „dreidimensionalen“ Exziton zusammen, sondern tun dies für jede Atomlage gesondert, d. h., wir ordnen jeder Kristallschicht, die in x - und y -Richtung unendlich ausgedehnt ist, ein eigenes, „zweidimensionales“ Exziton zu. In z -Richtung verbleiben wir zur Beschreibung des

¹In einer solchen Darstellung ist es auch möglich, die Beiträge unterschiedlicher Ausfallsrichtungen unabhängig voneinander zu untersuchen.

Kristalls in der Ortsdarstellung, weil in z -Richtung wegen der endlichen Dicke d im weiteren Rechnungsverlauf durch die Exzitonendarstellung keine Integrationsvereinfachung erzwungen werden kann. Neben der Endlichkeit der Dicke verhindert auch die Dämpfung der Primärelektronenwelle mit zunehmender Eindringtiefe, die von den Absorptionskoeffizienten $\mu^{(j)}$ aus Gl. (A.12) beschrieben wird, dass man aus einer Exzitonendarstellung auch in z -Richtung einen Nutzen ziehen kann.

Wir wählen also zur Beschreibung des Endzustands der Kristallschicht Nr. p_z ein zweidimensionales Exziton, das infolge des Impulsübertrags beim Streuprozess den Wellenvektor $\mathbf{K} \equiv (K_x, K_y, 0)$ erhalten hat:

$$\begin{aligned} \tilde{\Phi}_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)}(\tilde{\mathbf{R}}) &= \frac{1}{\sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i K_x x_{p_x K}\} \exp\{i K_y y_{p_y K}\} \\ &\quad \mathcal{A} \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(1)}(\mathbf{r}_1) \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(2)}(\mathbf{r}_2) \cdots \varphi_{\kappa l' m'}^{(p)}(\mathbf{r}_p) \cdots \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(\tilde{N})}(\mathbf{r}_{\tilde{N}}) \quad . \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

Hierbei steht \mathcal{A} für den Antisymmetrisierungsoperator. Für die Nummerierung der Atome vereinbaren wir, dass der Index $p \equiv (p_x, p_y, p_z)$ als Superindex fungiert, der alle $\tilde{N} \equiv \tilde{N}_x \times \tilde{N}_y \times \tilde{N}_z$ interessierenden Atome durchnummeriert. Anders gesagt: p ist das Kürzel für die Nummern p_x, p_y und p_z der \tilde{N}_x, \tilde{N}_y bzw. \tilde{N}_z Atomlagen in x -, y - bzw. z -Richtung. Der Ortsvektor \mathbf{r}_p ist also jetzt als $\mathbf{r}_p \equiv (x_{p_x}, y_{p_y}, z_{p_z})$ zu verstehen.

Der Index m der Endzustandsfunktion $\tilde{\Phi}$ wird hier durch eine Parameterliste näher spezifiziert, um zu verdeutlichen, dass mit dieser Exzitonformel zunächst nur ein ganz spezieller Endzustand erfasst ist – nämlich der Endzustand, der vom Kristall eingenommen wird, wenn innerhalb der Atomlage Nr. p_z das Hüllenelektron irgendeines Atoms durch unelastische Wechselwirkung aus dem Zustand $n_0 l_0 m_0$ heraus in den Zustand $\kappa l' m'$ übergegangen ist und dabei der Impuls $\hbar \mathbf{K}$ vom eingestrahnten Primärelektron auf die Atomlage übertragen wurde, so dass es den Kristall mit einer entsprechenden Richtungsänderung wieder verlässt. Für die Simulation eines Bildes werden wir am Ende (in Gl. (3.27)) über alle Kristallendzustände summieren bzw. integrieren müssen, die zur Entstehung des Bildes beitragen.

Der zugehörige Anfangszustand des Kristalls lautet

$$\tilde{\Phi}_0(\tilde{\mathbf{R}}) = \mathcal{A} \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(1)}(\mathbf{r}_1) \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(2)}(\mathbf{r}_2) \cdots \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(p)}(\mathbf{r}_p) \cdots \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(\tilde{N})}(\mathbf{r}_{\tilde{N}}) \quad . \quad (\text{C.6})$$

Setzen wir Gl. (C.5), deren Parameterliste für die genauere Kennzeichnung des Übergangsmatrixelements übernommen wird, und Gl. (C.6) in Gl. (C.4) ein, können weitere Umformungen vorgenommen werden:

$$\begin{aligned}
H_{m(\kappa l' m'; K_x K_y; p_z)0}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) &= \\
&= \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \int_{\tilde{\mathbf{R}}} \frac{1}{\sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{-i(K_x x_{p_x K} + K_y y_{p_y K})\} \\
&\quad \mathcal{A} \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(1)*}(\mathbf{r}_1) \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(2)*}(\mathbf{r}_2) \cdots \varphi_{\kappa l' m'}^{(p)*}(\mathbf{r}_p) \cdots \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(\tilde{N})*}(\mathbf{r}_{\tilde{N}}) \mathcal{A} \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(1)}(\mathbf{r}_1) \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(2)}(\mathbf{r}_2) \cdots \\
&\quad \cdots \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(p)}(\mathbf{r}_p) \cdots \varphi_{n_0 l_0 m_0}^{(\tilde{N})}(\mathbf{r}_{\tilde{N}}) \sum_{\nu=1}^{\tilde{N}} 4\pi \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{\nu}\}}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3 \tilde{\mathbf{R}} = \\
&= \frac{e^2}{\epsilon_0} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \frac{1}{\sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \int_{\mathbf{r}_p} \exp\{-i(K_x x_{p_x K} + K_y y_{p_y K})\} \\
&\quad \varphi_{\kappa l' m'}^*(\mathbf{r}_{pKE}) \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{pKE}) \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] (\mathbf{r}_{pK} + \mathbf{r}_{pKE})\}}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3 \mathbf{r}_p = \\
&= \frac{e^2}{\epsilon_0 \sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_x] (x_{p_x U} + x_{UK})\} \right) \\
&\quad \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{y\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_y] (y_{p_y U} + y_{UK})\} \right) \\
&\quad \exp\{[i Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] ((p_z - 1) a_3 + z_{UK})\} \\
&\quad \int_{\mathbf{r}_{KE}} \varphi_{\kappa l' m'}^*(\mathbf{r}_{KE}) \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{KE}) \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{KE}\}}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3 \mathbf{r}_{KE} = \\
&= \frac{e^2}{\epsilon_0 \sqrt{\tilde{N}_x \tilde{N}_y}} \sum_{\mathbf{g}', \mathbf{g}} c_{\mathbf{g}'}^{(j')*}(\mathbf{k}) c_{\mathbf{g}}^{(j)}(\mathbf{k}_0) \left(\sum_{p_x=1}^{\tilde{N}_x} \exp\{i [Q_{x\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_x] x_{p_x U}\} \right) \\
&\quad \left(\sum_{p_y=1}^{\tilde{N}_y} \exp\{i [Q_{y\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - K_y] y_{p_y U}\} \right) \exp\{[i Q_{z\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mu^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] (p_z - 1) a_3\} \\
&\quad \exp\{[i (\mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \mathbf{K}) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{UK}\} \\
&\quad \int_{\mathbf{r}_{KE}} \varphi_{\kappa l' m'}^*(\mathbf{r}_{KE}) \varphi_{n_0 l_0 m_0}(\mathbf{r}_{KE}) \frac{\exp\{[i \mathbf{Q}_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0) - \boldsymbol{\mu}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0)] \mathbf{r}_{KE}\}}{(Q_{\mathbf{g}'\mathbf{g}}^{j'j}(\mathbf{k}, \mathbf{k}_0))^2} d^3 \mathbf{r}_{KE} \quad . \quad (\text{C.7})
\end{aligned}$$

Bei diesen Umformungen haben wir von Gl. (C.3) und mehrfach von Gl. (C.1) (mit Ersetzung (C.2)) Gebrauch gemacht. Das Integral über $d^3 \tilde{\mathbf{R}}$ und die Summe über ν schnurren auf ein einfaches Integral über $d^3 \mathbf{r}_p$ zusammen, weil aufgrund der Orthonormiertheit der atomaren Wellenfunktion φ die Integration für $\nu \neq p$ keinen Beitrag liefert und sich für $\nu = p$ aus der Integration über die im Anfangszustand verbleibenden Atome nur der Faktor eins ergibt.

Die beiden Summenterme über p_x und p_y , die sich durch die Exzitonendarstellung ergeben haben, werden uns am Ende in Kap. 3.3 bei der Betragsquadratbildung der Wellenfunktion in der Bildebene gute Dienste leisten, da sich durch den Grenzübergang $\tilde{N}_x, \tilde{N}_y \rightarrow \infty$ aus ihnen δ -Distributionen erzeugen lassen. Dies wird die Integration sehr erleichtern und zu einem numerisch relativ bequem auswertbaren Ausdruck führen.

Anhang D

Wellenoptische Beschreibung des Abbildungsprozesses

Die Simulation der Wechselwirkung von einfallendem Elektronenstrahl \mathbf{k}_0 und Untersuchungsobjekt sei abgeschlossen; die Wellenfunktion $\psi_X(x_X, y_X)$ in der Austrittsebene $z = z_X$ des Objekts sei mithin berechnet und bekannt. Da die Abbildung im Elektronenmikroskop mehr ist als eine bloße vergrößerte Projektion der Objektaustrittsebene in die Bildebene, muss auch der Abbildungsvorgang eingehend betrachtet werden. Dazu bedient man sich des in Abb. D.1 gezeigten Schemas, in dem sich alle Ebenen aus dem unteren Bereich der Mikroskopsäule wiederfinden, die bei der Entstehung des Kontrasts in der elektronenmikroskopischen Aufnahme relevant sind. Die Berechnung der propagierenden Elektronenwelle erfolgt schrittweise von Ebene zu Ebene unter Verwendung der Fresnelpropagation und von Transmissionsfunktionen. Im Ebenenschema ist das irgendwo oberhalb der Bildebene sitzende Energiefilter (vgl. Abb. 1.1) unterdrückt, da in der Rechnung von vornherein nur die Wellenfunktion derjenigen Elektronen, die den interessierenden Energieverlust erlitten haben, betrachtet wird. Die Wellenzahl k in den Formeln nimmt dabei den diesen Elektronen eigenen Wert k_m an.

Hinter dem Begriff der Fresnelpropagation steckt die fresnelsche Näherung des kirchhoffschen Beugungsintegrals [7], welches weitgehend das mathematisch-formale Äquivalent des aus der Lichtoptik bekannten huygensschen Prinzips ist, nach dem in jedem Punkt einer Wellenfront ein fiktives Streuzentrum sitzt, von dem eine kugelförmige Elementarwelle ausgeht. In der Fresnelpropagation wird die einzelne Kugelwelle für kleine Streuwinkel $((z - z')^2 \gg (x - x')^2 + (y - y')^2)$ näherungsweise als Rotationsparaboloid beschrieben. Für die Amplitude am Ort \mathbf{r} einer von Punkt \mathbf{r}' ausgehenden Elementarwelle steht also

$$\frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \exp\{i k |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\} \approx \frac{1}{z - z'} \exp\{i k (z - z')\} \exp\left\{i \frac{k}{2(z - z')} [(x - x')^2 + (y - y')^2]\right\} \quad . \quad (\text{D.1})$$

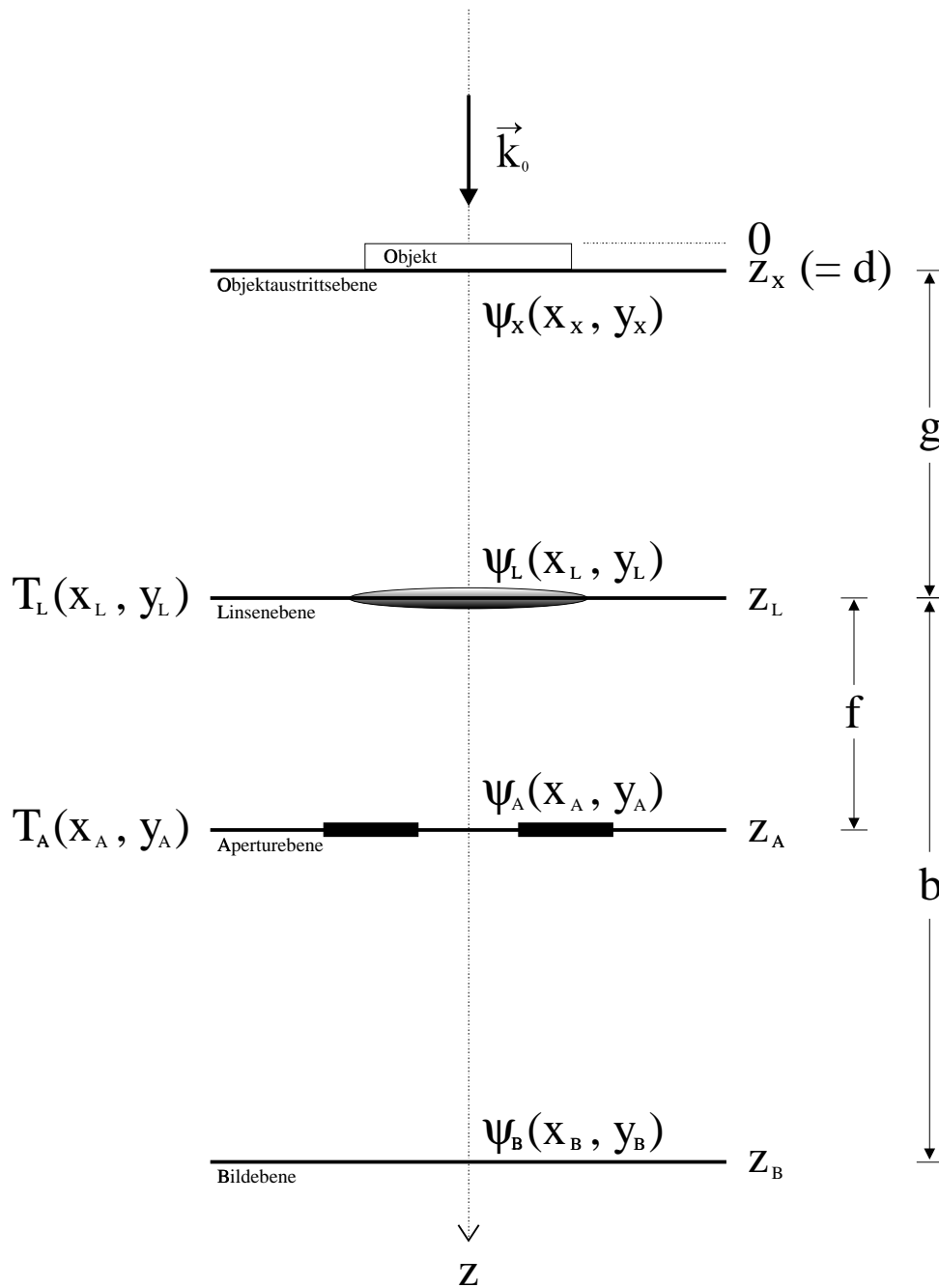


Abbildung D.1: Ebenenschema zur Beschreibung des Abbildungsprozesses im Mikroskop.

Um im ersten Schritt mittels Fresnelpropagation die Ausbreitung der Elektronenwelle bis unmittelbar vor die Objektivlinsenebene zu beschreiben, ist $\mathbf{r}' = \mathbf{r}_X$ und $\mathbf{r} = \mathbf{r}_L$ zu setzen, die „Startwellenfunktion“ $\psi_X(x_X, y_X)$ punktweise mit der angegebenen Elementarwelle zu multiplizieren und über die „Startebene“ $z = z_X$ zu integrieren:

$$\psi_L(x_L, y_L) = \frac{\exp\{i k (z_L - z_X)\}}{i 2\pi k^{-1}(z_L - z_X)} \int_{z=z_X} \psi_X(x_X, y_X) \exp\left\{i \frac{k}{2(z_L - z_X)} [(x_L - x_X)^2 + (y_L - y_X)^2]\right\} dx_X dy_X \quad . \quad (\text{D.2})$$

Der in Gl. (D.2) zusätzlich zu der in Worte gefassten Vorgehensweise auftauchende Nenner $i 2\pi k^{-1}$ entzieht sich einer einfachen anschaulichen Deutung.

Die Wirkung der Objektivlinse auf die transmittierende Elektronenwelle lässt sich durch eine Transmissionsfunktion der Form

$$T_L(x_L, y_L) = \exp\left\{-i \frac{k}{2f} [x_L^2 + y_L^2]\right\} \quad (\text{D.3})$$

beschreiben. Unmittelbar hinter der Linse lautet die Wellenfunktion dann

$$\psi_L(x_L, y_L) T_L(x_L, y_L) \quad . \quad (\text{D.4})$$

$T_L(x_L, y_L)$ beschreibt allerdings nur eine ideale Linse ohne Fehler. Die jeder realen Elektronenlinse anhaftenden Linsenfehler bewirken jedoch eine Verzerrung des Wellenfeldes, die nicht einfach vernachlässigt werden kann. Für die Berechnung schiebt man die „Schuld“ an dieser Verzerrung der Aperturebene zu, d. h., man baut einen geeigneten Phasenschiebungsterm in die Transmissionsfunktion $T_A(x_A, y_A)$ der Aperturebene ein. Praktisch wichtig sind hier die sphärische und die chromatische Aberration (Öffnungsfehler und axialer Farbfehler). Daneben werden in $T_A(x_A, y_A)$ auch der Defokus, der für das gewählte Abbildungsverfahren eine Rolle spielt, und natürlich die in dieser Ebene befindliche Aperturblende erfasst. Für die Bedeutung der Linsenfehler und des Defokus siehe z. B. [22].

Insgesamt sieht die Transmissionsfunktion der Aperturebene so aus:

$$T_A(x_A, y_A) = A(x_A, y_A) \exp\{-i \gamma(x_A, y_A)\} \quad , \quad (\text{D.5})$$

mit der Amplitude

$$A(x_A, y_A) = \begin{cases} 1 & \text{für } x_A^2 + y_A^2 \leq \varrho_0^2 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (\text{D.6})$$

(für eine Kreisblende mit Radius ϱ_0) und der Phase

$$\gamma(x_A, y_A) = k \left[\frac{C_s}{4} \frac{(x_A^2 + y_A^2)^2}{f^4} - \left(\frac{\Delta f}{2} + C_c \frac{\delta E}{2 \bar{E}} \right) \frac{x_A^2 + y_A^2}{f^2} \right] \quad . \quad (\text{D.7})$$

Hierbei darf die Phase γ nicht mit den Eigenwerten $\gamma^{(j)}$ der Blochwellen aus Anhang A verwechselt werden. C_s ist die Öffnungsfehlerkonstante, Δf der Defokus, f die Brennweite. C_c ist die Farbfehlerkonstante, die ein Maß dafür ist, wie empfindlich bei einem nichtmonoenergetischen Elektronenstrahl die Fokussierung der Linse von der Abweichung δE von der optimalen mittleren Elektronenenergie \bar{E} abhängt.

Die Distanz zwischen Linsenebene und Aperturebene sowie zwischen Aperturebene und Bildebene wird jeweils völlig analog zu oben (Gl. (D.2)) mittels Fresnelpropagation bewältigt.

Die sukzessive Durchführung des geschilderten Rechnungsgangs führt am Ende zu einer Gesamtformel, die sich in folgende Form bringen lässt:

$$\begin{aligned} \psi_B(x_B, y_B) = & \frac{-\exp\{i k (b + g)\}}{(2\pi)^2 k^{-2} f (b - f)} \exp\left\{i \frac{k}{2(b - f)} (x_B^2 + y_B^2)\right\} \\ & \int_{z=z_X} \int_{z=z_A} \psi_X(x_X, y_X) \exp\left\{-i \frac{k}{(b - f)} [x_A (x_B + M x_X) + y_A (y_B + M y_X)]\right\} \\ & T_A(x_A, y_A) dx_A dy_A dx_X dy_X \quad . \end{aligned} \quad (\text{D.8})$$

Die Bedeutung von f , g und b wird aus Abb. D.1 klar (Brennweite, Gegenstandsweite und Bildweite). $M := b/g$ steht für die Vergrößerung.

Die Bildung des Betragsquadrats der Wellenfunktion in der Bildebene liefert die Intensitätsverteilung in der Bildebene

$$I_B(x_B, y_B) = |\psi_B(x_B, y_B)|^2 \quad , \quad (\text{D.9})$$

womit die wellenoptische Beschreibung des Abbildungsprozesses abgeschlossen ist.

Um statt der Formel für die Abbildung die entsprechende Formel für das Beugungsdiagramm herzuleiten, muss man die Rechnung unmittelbar nach der Aperturebene abbrechen, also die letzte Fresnelpropagation weglassen; das Betragsquadrat des Produkts $\psi_A(x_A, y_A) T_A(x_A, y_A)$ beschreibt dann das Beugungsdiagramm, das in [26, 27] auf eine andere Art über den doppelt differenziellen Wirkungsquerschnitt ohne Berücksichtigung von Linsenfehlern berechnet wurde.

Anhang E

Literaturverzeichnis

- [1] H. Bethe, Ann. Phys. **87** (1928) 55.
- [2] H. Endoh, H. Hashimoto and Y. Makita, Ultramicroscopy **56** (1994) 108.
- [3] E. Fick, Einführung in die Grundlagen der Quantentheorie (Akad. Verlagsgesellschaft, Frankfurt am Main, 1968).
- [4] B. Freitag and W. Mader, Verhandlungen der DPG **5** (1997) 826.
- [5] K. Fujiwara, J. Phys. Soc. Japan **16** (1961) 2226.
- [6] K. Fujiwara, J. Phys. Soc. Japan **17** Suppl. BII (1962) 118.
- [7] J.W. Goodman, Introduction to Fourier Optics (McGraw-Hill Book Company, New York, 1988).
- [8] O.F. Holbrook and D.M. Bird, Proc. EMAG 95 (1995) 175.
- [9] A. Howie, Proc. Roy. Soc. A **271** (1963) 268.
- [10] C.J. Humphreys, Rep. Prog. Phys. **42** (1979) 1825.
- [11] R. Knippelmeyer, Diplomarbeit, Physikalisches Institut, Universität Münster (1996).
- [12] R. Knippelmeyer and H. Kohl, Proc. XIth European Congress on Microscopy, Dublin 1996 (im Druck).
- [13] R.S. Knox, Theory of Excitons (Academic Press, New York and London, 1963).
- [14] H.-J. Kohl, Dissertation D83, TU Berlin (1987).
- [15] O.L. Krivanek, A.J. Gubbens, N. Dellby and C.E. Meyer, Microsc. Microanal. Microstruct. **3** (1992) 187.

- [16] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, Quantum Mechanics (Pergamon, Oxford, 1958).
- [17] V.W. Maslen and C.J. Rossouw, Phil. Mag. A **49** (1984) 735.
- [18] A.J.F. Metherell, in: Electron Microscopy in Materials Science, Eds. U. Valdrè and E. Ruedl (Luxembourg: Commission of the European Communities) Part II (1975) p. 397.
- [19] K. Molière, Ann. Phys. **34** (1939) 461.
- [20] T. Navidi-Kasmai, P. Stallknecht und H. Kohl, Verhandlungen der DPG **5** (1997) 826.
- [21] G. Radi, Z. Phys. **212** (1968) 146.
- [22] L. Reimer, Transmission Electron Microscopy (Springer, Berlin, 1984).
- [23] D.K. Saldin and P. Rez, Phil. Mag. B **55** (1987) 481.
- [24] P. Stallknecht, Diplomarbeit, Inst. f. Angew. Physik, TH Darmstadt (1993).
- [25] P. Stallknecht and H. Kohl, Ultramicroscopy **66** (1996) 261.
- [26] A. Weickenmeier and H. Kohl, Phil. Mag. B **60** (1989) 467.
- [27] A. Weickenmeier, Dissertation D17, Inst. f. Angew. Physik, TH Darmstadt (1991).
- [28] H. Yoshioka, J. Phys. Soc. Japan **12** (1957) 618.

Danksagung

Diese Arbeit wurde im Physikalischen Institut der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster angefertigt, in der Abteilung Elektronenmikroskopie von Prof. Dr. Helmut Kohl. Ihm gilt mein besonderer Dank für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die Betreuung während der Bearbeitung des von ihm angeregten Themas.

Weiter gilt mein Dank Herrn Dr. Andreas Weickenmeier, MPI Stuttgart, für wertvolle Hinweise und insbesondere für die freundliche Überlassung der Quellcodes seines Programmpakets zur Berechnung energiegefilterter Beugungsdiagramme.

Den Mitgliedern der Arbeitsgruppe (den EMIs) danke ich für das unüberbietbare Arbeitsklima und alle Unterstützung. Stellvertretend sei Herr Dipl.-Phys. Norbert Overbeck für seine Hilfe bei schwierigen \TeX -Fragen genannt.

Nicht zuletzt meinen Eltern schulde ich Dank für ihr begleitendes Interesse und vielfältige Unterstützung während meines ganzen Studiums.

