

Ein vergrößerndes
Transfersystem für ein C_s -korrigiertes
Phasenkontrast-Transmissions-Elektronenmikroskop

DISSERTATION

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Eberhard-Karls-Universität Tübingen

vorgelegt von
Marko Matijević
aus Nürtingen

2011

Tag der mündlichen Prüfung:

Dekan:

1. Berichterstatter:

2. Berichterstatter:

10.03.2011

Prof. Dr. Wolfgang Rosenstiel

Prof. Dr. Erich Plies

Prof. Dr. Oliver Eibl

It would be very easy to make an analysis of any complicated chemical substance; all one would have to do would be to look at it and see where the atoms are. The only trouble is that the electron microscope is one hundred times too poor.

The reason the electron microscope is so poor is that the f-value of the lenses is only 1 part to 1,000; you don't have a big enough numerical aperture. And I know that there are theorems which prove that it is impossible, with axially symmetrical stationary field lenses, to produce an f-value any bigger than so and so; and therefore the resolving power at the present time is at its theoretical maximum. But in every theorem there are assumptions. Why must the field be symmetrical? I put this out as a challenge: Is there no way to make the electron microscope more powerful?

Richard P. Feynman, 1959,
„There's Plenty of Room at the Bottom“

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Motivation	5
2.1	Entwicklung der Phasenkontrastmikroskopie	8
2.2	Phasenkontrast im TEM	10
3	Grundlagen	13
3.1	Aufbau und Strahlengang im TEM	13
3.2	Linsenfehler	15
3.2.1	Sphärische Aberration und Defokus	15
3.2.2	Chromatische Aberration	17
3.3	Kontrastmechanismen	18
3.3.1	Definition Kontrast	18
3.3.2	Limitierung durch Schrotrauschen	19
3.3.3	Streukontrast	19
3.3.4	Phasenkontrast	22
3.4	Defokus-Phasenkontrast	24
4	Bildentstehung im HRTEM	27
4.1	Lineare Übertragungstheorie	28
4.1.1	Abbildung ohne Linsenfehler	28
4.1.2	Berücksichtigung von Linsenaberrationen	31
4.2	Abbildung mit partieller Kohärenz	32
4.2.1	Contrast Transfer Function (CTF)	32
4.2.2	Zeitliche Kohärenz und chromatische Enveloppe	33
4.2.3	Räumliche Kohärenz und Enveloppe der Quelle	34
4.2.4	Enveloppe der Probedrift	35
4.2.5	Enveloppe der Probenvibration	35
4.2.6	Enveloppe des Detektors	36
4.3	Auflösung	36
4.3.1	Linienauflösung	37
4.3.2	Punktauflösung	38
4.3.3	Informationslimit	39

5	Wellenaberrationen im HRTEM	43
5.1	Beschreibung von Wellenaberrationen	43
5.2	Messung von Aberrationen	46
5.2.1	Kippung der Beleuchtung	49
5.2.2	Auflösung in Abhängigkeit der Einzelfehler	51
6	Phasenkontrast-TEM	53
6.1	Zernike-Phasenplatte	55
6.2	Hilbert-Phasenplatte	60
6.3	Boersch-Phasenplatte	62
6.3.1	Boersch-Phasenplatte mit Zentralsymmetrie	62
6.3.2	Boersch-Phasenplatte ohne Zentralsymmetrie	64
6.3.3	Elektrostatische Driftröhre	68
6.3.4	Ringlektrode mit Hohlkegelbeleuchtung	68
6.3.5	Anamorphotische Phasenplatte	70
6.4	Zusammenfassung	72
7	PACEM	75
7.1	Beschreibung	75
7.2	Übersicht	76
7.3	Komponenten	76
7.3.1	FEG mit Monochromator	76
7.3.2	Objektiv und Antikontaminator	81
7.3.3	Cs-Korrektor	82
7.3.4	Diffraction Magnification Unit (DMU)	83
8	Simulation geeigneter Geometrien	89
8.1	Elektronenoptisches Design	89
8.2	Software	89
8.2.1	SPOC	90
8.2.2	ELSA	91
8.3	Simulation des Objektivs	92
8.3.1	Polschuhgeometrie	92
8.3.2	Abbildungseigenschaften	92
8.4	Simulation des Gesamtsystems	94
8.4.1	Vorgaben	94
8.4.2	Vergleich der Simulationsergebnisse für das Objektiv	95
8.5	Variante 1	96
8.6	Variante 2	100
8.7	Variante 3	101
8.8	Variante 4	105
8.9	Variante 5	108
8.10	Festlegung des endgültigen Designs	111

9 Realisierung des Systems	113
9.1 DMU	113
9.2 Piezomanipulator	114
9.3 Bestimmung der effektiven Brennweite	115
9.4 Bestimmung des Informationslimits	116
9.4.1 Youngsche Interferenzstreifen	117
9.4.2 Messung am Gerät	118
9.5 Messung der Eiskontaminationsrate	120
9.6 Applikative Resultate	123
9.6.1 Zernike-Phasenplatte	123
9.6.2 Boersch-Phasenplatte	123
10 Zusammenfassung und Ausblick	127
A Berechnung des chromatischen Infolimits	129
B Die relativistische Elektronenwellenlänge	135
Abkürzungs- und Symbolverzeichnis	140
Literaturverzeichnis	149
Index	151

Abbildungsverzeichnis

2.1	<i>Phasenkontrast in der Lichtmikroskopie</i>	7
2.2	<i>Strahlengang beim Differential-Interferenzkontrast</i>	9
3.1	<i>Schematischer Strahlengang im TEM</i>	14
3.2	<i>Strahlengang einer Linse mit positiver sphärischer Aberration</i>	16
3.3	<i>Strahlengang einer Linse mit chromatischer Aberration</i>	18
3.4	<i>Grundlegende Wechselwirkungen zwischen Elektronen und Probe</i>	20
3.5	<i>Phasenkontrast im Zeigerdiagramm</i>	23
3.6	<i>Verlauf der PCTF für unterschiedliche Defokuswerte</i>	25
4.1	<i>Anwendung der linearen Übertragungstheorie auf das TEM</i>	30
4.2	<i>Beziehung zwischen der PSF und der CTF</i>	31
4.3	<i>Veranschaulichung des Rayleigh-Kriteriums</i>	37
4.4	<i>Illustration der Entstehung des Bildspektrums aus dem Objektspektrum</i>	38
4.5	<i>Die PCTF im Scherzerfokus für das One-Ångstrom Microscope</i>	41
5.1	<i>Darstellung der Wellenfrontaberration</i>	44
5.2	<i>Beispiel für ein Zemlin-Tableau</i>	50
6.1	<i>Originalskizze aus der Veröffentlichung von Boersch</i>	54
6.2	<i>Die vier Grundprinzipien zur Erzeugung von Phasenkontrast im TEM</i>	56
6.3	<i>Zernike-Phasenplatte nach Danev und Nagayama</i>	58
6.4	<i>Aufnahme eines vitrifizierten Influenza-Virus bei 300 kV</i>	59
6.5	<i>Prinzip des Hilbert-Phasenkontrasts nach Danev et al.</i>	61
6.6	<i>Aufnahmen einer Epithelzelle aus einer Rattenniere</i>	62
6.7	<i>Aufbau der Boersch-Phasenplatte nach Matsumoto und Tonomura</i>	63
6.8	<i>Boersch-Phasenplatte nach Majorovits et al.</i>	65
6.9	<i>Prototyp der elektrostatischen Driftröhre nach Cambie et al.</i>	67
6.10	<i>Phasenplattenkonzepte nach Benner</i>	69
6.11	<i>Auswirkung der Hohlkegelbeleuchtung</i>	70
6.12	<i>Schematische Darstellung der anamorphotischen Phasenplatte</i>	71
6.13	<i>Aufbau der anamorphotischen Phasenplatte</i>	72
7.1	<i>Foto des PACEMs</i>	77
7.2	<i>Der von CEOS entwickelte Monochromator</i>	80
7.3	<i>CAD-Modell des neuen Antikontaminators</i>	81
7.4	<i>Verlauf der Fundamentalbahnen im Cs-Korrektor</i>	84

7.5	<i>Strahlengang in der DMU</i>	86
8.1	<i>Nomenklatur der Fundamentalbahnen</i>	92
8.2	<i>Querschnittsmodell des PACEM-Objektivs</i>	93
8.3	<i>Verlauf der Fundamentalbahnen für Variante 1</i>	98
8.4	Verlauf der PCTF für Variante 1	99
8.5	<i>Verlauf der Fundamentalbahnen für Variante 2</i>	101
8.6	Verlauf der PCTF für Variante 2	102
8.7	<i>Verlauf der Fundamentalbahnen für Variante 3</i>	103
8.8	Verlauf der PCTF für Variante 3	104
8.9	<i>Verlauf der Fundamentalbahnen für Variante 4</i>	106
8.10	Verlauf der PCTF für Variante 4	107
8.11	<i>Verlauf der Fundamentalbahnen für Variante 5</i>	109
8.12	Verlauf der PCTF für Variante 5	110
9.1	<i>Querschnittsmodell der DMU</i>	114
9.2	<i>Piezomanipulator zur Positionierung der Phasenplatte</i>	115
9.3	<i>Beugungsbild von Pt auf Kohlefilm</i>	116
9.4	<i>Aufnahmen von Young fringes</i>	119
9.5	<i>Veranschaulichung der Eiskontamination</i>	121
9.6	<i>Gemessene Zunahme der Eisdicke</i>	122
9.7	<i>Schematisches Modell von TMV</i>	124
9.8	<i>Abbildung von Fettsäure-Synthetase</i>	124
9.9	<i>Aufnahme von PC12-Zellen und Katalase-Kristallen</i>	125
9.10	<i>Abbildung von TMV</i>	126

Tabellenverzeichnis

5.1	<i>Axiale Bildfehlerfiguren und deren simulierte Phasenplatten</i>	47
5.2	<i>Wellenaberrationskoeffizienten</i>	51
6.1	<i>Inneres Potential verschiedener Elemente</i>	57
7.1	<i>Kenngrößen von Elektronenquellen</i>	80
7.2	<i>Integration der DMU</i>	88
8.1	<i>Simulationsergebnis für das Objektiv</i>	94
8.2	<i>Vergleich der Simulationsergebnisse aus SPOC und ELSA</i>	95
8.3	<i>Simulationsergebnis für Variante 1</i>	96
8.4	<i>Simulationsergebnis für Variante 2</i>	100
8.5	<i>Simulationsergebnis für Variante 3</i>	103
8.6	<i>Simulationsergebnis für Variante 4</i>	105
8.7	<i>Simulationsergebnis für Variante 5</i>	108
8.8	<i>Vergleich der Simulationsergebnisse</i>	112
9.1	<i>Werte von der Kontaminationsmessung</i>	121
9.2	<i>Bestimmung der Koeffizienten der Regressionsgeraden</i>	122
B.1	<i>Relativistisches Beschleunigungspotential</i>	136

Kapitel 1

Einleitung

Seit der Vorstellung des ersten Elektronenmikroskops durch Knoll und Ruska 1931 an der Technischen Hochschule Berlin wurden die einzelnen Komponenten wesentlich verbessert und die Einsatzgebiete dieser Gerätegattung stark erweitert. Nicht nur die Untersuchung von Werkstoffen auf atomarer Ebene stellt hochauflösende Transmissionselektronenmikroskope (TEMs) vor ständig wachsende Herausforderungen, sondern auch die Untersuchung von Strukturen biologisch relevanter Makromoleküle. Diese als schwache Phasenobjekte (*weak-phase objects*, WPO) bezeichneten Proben bestehen hauptsächlich aus Elementen mit niedriger Ordnungszahl (C, O, N, H, P, S). Sie interagieren mit der Elektronenwelle nicht durch eine Änderung der Amplitude, sondern durch Einbringen von Phasenvariationen, welche in der konventionellen Hellfeldabbildung (*bright field*) nur einen geringen Kontrast hervorrufen. Um ausreichend Kontrast zu erhalten, werden die Proben häufig mit Schwermetallsalzen kontrastiert (*staining*). Diese dringen in Hohlräume des Objektes ein und ersetzen das Wasser. Trotz der damit möglichen starken Streuabsorptionskontraste wird so nicht die ursprüngliche organische Struktur sichtbar gemacht, sondern lediglich die umgebende Matrix aus Schwermetallatomen. Die Kontrastierung führt zu Artefakten und Einschränkungen in der Auflösung. Um diese zu vermeiden, wird seit über 40 Jahren angestrebt, die in der Lichtmikroskopie wohlbekannteste Technik der Phasenkontrastabbildung nach Zernike [Zer35] in die Elektronenmikroskopie zu übertragen. Der vielversprechendste Ansatz stellt dabei die 1947 von Boersch vorgestellte elektrostatische Phasenplatte dar [Boe47]. Hier wird in der hinteren Brennebene der Objektivlinse der ungebeugte Zentralstrahl relativ zu den gebeugten Elektronen über das Feld einer elektrostatischen (Einzel-)Linse geschoben. Die Fortschritte in der Beherrschung von Mikrostrukturierungsprozessen haben die Realisierung einer solchen *Boersch-Phasenplatte* zunehmend in den Fokus der aktuellen Forschung gerückt. Ein Problem bleibt die Befestigung der zentralen Elektrode über Haltestege, die zu Abschattungen führen und damit zu einem ungewollten Informationsverlust im Beugungsbild. Die 1996 von Matsumoto und Tonomura [Mat96] vorgestellte Variante benutzt zwei gegenüberliegende Träger. Eine Weiterentwicklung stellt das Konzept nach Majorovits und Schröder [Maj07] dar, das mit drei um 120° versetzten Haltestegen arbeitet. Die erfolgreiche Umsetzung dieses Konzeptes durch Schultheiß [Sch06] hat gezeigt, dass das Prinzip der schwachen Einzellinse funktioniert und

eine Phasenschiebung der nullten Beugungsordnung relativ zu den gebeugten Elektronen um 90° möglich ist. Dabei erlaubt die besondere Anordnung der Haltestege zwar durch Ausnutzung der Friedelsymmetrie eine Rekonstruktion der verloren gegangenen Information im Bereich der Stege. Der Beschnitt durch die Ausdehnung der zentralen Ringelektrode ist aber weiterhin vorhanden und stellt ein grundsätzliches Problem aller Ausführungsformen dar. Der Verlust niedriger Raumfrequenzen unterhalb von ca. $1/(5,2 \text{ nm})$ ist für bestimmte Anwendungen, wie der Elektronenkristallographie tolerabel, stellt aber bei biologischen Fragestellungen und aktuellen Techniken wie der Elektronentomographie bzw. Kryo-Elektronentomographie (*cryo electron tomography*, CET) ein ernsthaftes Problem dar.

Ein zweites Problem, welches in Verbindung mit der Abbildung von Phasenobjekten auftritt, ist die Verzerrung der Wellenfront durch die unvermeidlichen Aberrationen der im TEM verwendeten magnetischen Rundlinsen. Insbesondere die *sphärische Aberration* stellt einen limitierenden Faktor dar, da sie eine zusätzliche Phasenschiebung bewirkt, die vom Streuwinkel und der Raumfrequenz abhängig ist. Die Kontrastübertragung wird beschrieben durch eine sinusförmige Übertragungsfunktion (*phase contrast transfer function*, PCTF), die bei hohen Raumfrequenzen stark oszilliert und so zu Übertragungslücken und Kontrastumkehr führt. Es sind daher im TEM mehrere Aufnahmen mit unterschiedlichen Defokuswerten erforderlich, um sämtliche Objektinformation zu erhalten. Dies erhöht die erforderliche Elektronendosis bzw. führt bei empfindlichen biologischen Proben zu einem schlechten Signal zu Rauschverhältnis (*signal-to-noise ratio*, SNR) im Einzelbild, was die Rekonstruktion erschwert. Durch die mittlerweile kommerziell verfügbaren C_s -Korrektoren, wie sie von Haider [Hai98] entwickelt wurden, kann das oszillatorische Verhalten vermieden werden, d. h. die Übertragung aller Raumfrequenzen mit maximalem Kontrast bis zur Auflösungsgrenze wird ermöglicht.

Die Vorteile der Kombination eines C_s -korrigierten TEMs mit einer elektrostatischen Phasenplatte sind sofort ersichtlich: Die hochauflösende, aberrationsfreie Abbildung von biologischen Proben mit optimalem Kontrast *für alle Raumfrequenzen ohne Defokussierung* wird erst damit möglich. Der Kontrast ist durch den Einsatz der Phasenplatte und der daraus resultierenden kosinusförmigen PCTF auch bei niedrigen Raumfrequenzen sehr hoch. Zu hohen Raumfrequenzen hin wird durch den C_s -Korrektor die starke Oszillation und die damit verbundene Kontrastumkehr vermieden und damit die Punktauflösungsgrenze bis an das Informationslimit herangebracht. Die Notwendigkeit der Aufnahme von Defokusserien entfällt. Es genügt eine einzige Aufnahme, um sämtliche Information über das Objekt zu erhalten.

Da der Miniaturisierung der Phasenplatten aus Stabilitätsgründen Grenzen gesetzt sind, kann die Abschattung nur durch eine Vergrößerung der hinteren Brennebene minimiert werden. Diese führt bei Vergrößerung des Beugungsbildes um den Faktor fünf und einem Elektrodendurchmesser von $2,6 \mu\text{m}$ zu einer Erweiterung der übertragenen Strukturgrößen von $5,2 \text{ nm}$ auf 26 nm ¹. Um dem Problem der Abschattung durch die Haltestege und der zentralen Elektrode zu begegnen, wird in der vorliegenden Dissertation das Konzept für ein Transfersystem vorgestellt. Es ermöglicht zum einen die vollständige Trennung zwischen Objektebene und Phasen-

¹Für ein 200 kV-TEM mit einer Objektivbrennweite von $f = 3 \text{ mm}$

plattenebene und zum anderen kann die hintere Brennebene ohne großen Einfluss auf C_s vergrößert werden. Der so gewonnene Bauraum im Objektiv kann für die Optimierung der für den Kryo-Betrieb notwendigen Objektraumkühlung genutzt werden. Die Realisierung eines mit Phasenplatte und Vergrößerungseinheit ausgestatteten C_s -korrigierten TEMs wurde im Rahmen des Projektes PACEM (*phase contrast aberration corrected electron microscope*) in Angriff genommen und bildete die Grundlage für diese Dissertation. Das Projekt wurde im Rahmen der von der DFG geförderten Exzellenzinitiative unter Kooperation zwischen der Firma Carl Zeiss NTS (Oberkochen), der Firma CEOS (Heidelberg) und dem MPI für Biophysik (Frankfurt a. M.) durchgeführt. Das Ziel war es, möglichst ideale Arbeitsbedingungen für die bereits entwickelte und erprobte elektrostatische Boersch-Phasenplatte [Maj07] hinsichtlich Kontaminationsfreiheit und Minimierung der Einflüsse von Aberrationen zu schaffen. Die Dissertation ist in die folgenden Kapitel gegliedert:

Kapitel 2 enthält einen Überblick über die historische Entwicklung der Phasenkontrastmikroskopie.

In Kapitel 3 wird zunächst auf die Bildentstehung im TEM sowie die unterschiedlichen Kontrastmechanismen eingegangen.

Kapitel 4 beschreibt eingehend die Bildentstehung im HRTEM bei der Abbildung schwacher Phasenobjekte sowie die theoretische Behandlung der fehlerbehafteten Abbildung.

Das Kapitel 5 befasst sich mit der Darstellung der axialen Linsenfehler im Fourierraum über die Wellenaberrationsfunktion und die zulässigen Fehlergrenzen zum Erreichen einer bestimmten Auflösung.

In Kapitel 6 werden die unterschiedlichen Konzepte für elektronenoptische Phasenplatten mit ihren spezifischen Vor- und Nachteilen vorgestellt.

Das Kapitel 7 gibt eine Übersicht über die Komponenten, die für die Realisierung des korrigierten Phasenkontrast-TEMs verwendet werden und befasst sich mit der technischen Umsetzung der Vergrößerungseinheit sowie ihrer Integration im Gerät.

Kapitel 8 behandelt die verwendete Simulationssoftware und die hiermit durchgeführten Berechnungen und Optimierungen für das Gesamtsystem bestehend aus Objektiv, C_s -Korrektor und Vergrößerungseinheit.

In Kapitel 9 werden die experimentellen Ergebnisse präsentiert, die einerseits die prinzipielle Funktionstüchtigkeit der neuen Vergrößerungseinheit zeigen, andererseits auch erste applikative Resultate mit der Phasenplatte.

Kapitel 2

Motivation

Ausgehend von Diffraktionsexperimenten entwickelte Ernst Abbe 1873 [Abb73] eine grundlegende Theorie zum Verständnis der Bildentstehung im Lichtmikroskop und begründete den wissenschaftlichen Mikroskopbau. Er zeigte auf der Grundlage der Wellenoptik, dass im idealen aberrationsfreien Mikroskop bei inkohärenter Beleuchtung die laterale Auflösung durch die Beugung begrenzt wird und gegeben ist durch:

$$d \approx 0,6 \frac{\lambda}{n \sin \theta} \quad (2.1)$$

Dabei ist d der kleinste Abstand zweier Punkte, der notwendig ist, damit diese als separate Einheiten erkannt werden können, λ die Wellenlänge des verwendeten Lichts, n der Brechungsindex des Mediums zwischen Objekt und Objektiv und θ der halbe Aperturwinkel des Objektivs. Je größer also die *numerische Apertur* $n \sin \theta$ ist, desto besser wird die Auflösung $1/d$.

Bereits in frühen Arbeiten kam Abbe zu der Erkenntnis, dass Mikroskopobjektive nur mithilfe neuer Glassorten zur vollen Leistungsfähigkeit gebracht werden können. Daher holte er 1882 den Glaschemiker Otto Schott nach Jena. Mit seiner Unterstützung gelang 1886 die Einführung der apochromatischen Linsen [Abb86], mit denen neben der Korrektur des Öffnungsfehlers auch der Farbfehler über den gesamten Bereich des sichtbaren Lichts sehr gut kompensiert werden konnte. Durch Verwendung von Öl-Immersion war es möglich, die theoretische Auflösungsgrenze, die etwas unter der Lichtwellenlänge liegt, zu erreichen. Eine weitere Steigerung durch Verwendung noch kürzerer Wellenlängen im UV-Bereich ließ sich mangels geeigneter Materialien, die einen ausreichend hohen Brechungsindex bieten, nicht bewerkstelligen. Erst als Louis de Broglie 1924 in seiner Dissertation *Recherches sur la théorie des Quanta* [Bro25] zeigen konnte, dass der Welle-Teilchen-Dualismus, der zu dieser Zeit nur für Photonen bekannt war, auch auf geladenen Teilchen wie das Elektron anwendbar ist und diese wie Materiewellen behandelt werden können, ergaben sich neue Ansätze. Bei einer Beschleunigungsspannung von 100 kV liegt die Wellenlänge der Elektronen bereits im Bereich von Picometern. Drei Jahre später beschrieb Busch [Bus27], dass das Magnetfeld einer Spule auf ein Elektronenbündel wie eine Linse mit einer definierten Brennweite wirkt. Die Brennweite dieser magnetischen Elektronenlinse lässt sich dabei mittels des Spulenstroms kontinuierlich verändern. Aus der von Busch gefundenen Formel für die Brennweite des Magnetfeldes war ersichtlich,

dass man eine gewünschte Brennweite mit um so weniger Ampère-Windungen erreichen kann, je mehr das Spulenfeld auf einen kurzen Bereich der Achse beschränkt wird, da sich dann das Feldmaximum erhöht. Darauf aufbauend realisierte Ruska [Rus34] zusammen mit dem Doktoranden v. Borries eine optimierte Lösung, die heute in allen magnetischen Elektronenmikroskopen verwendete Polschuhlinse. Ihre Qualifizierung war Thema von Ruskas Promotion, die 1933 abgeschlossen wurde. Mit dem vorgestellten Konzept konnten Brennweiten von 3 mm bei einer Beschleunigungsspannung von 75 kV erreicht werden. Die Auflösung betrug 50 nm und übertraf damit die besten lichtoptischen Mikroskope dieser Zeit.

In der 1936 veröffentlichten Zusammenfassung über die Korrektur von Aberrationen von magnetischen Linsen stellte Scherzer [Sch36] fest, dass die Koeffizienten für Öffnungsfehler und Farbfehler in beliebigen Anordnungen elektro- bzw. magnetostatischer, raumladungsfreier, rotationssymmetrischer Linsen stets positiv definit sind (*Scherzertheorem*). Die Auflösungsgrenze ist daher im TEM durch Farb- und Öffnungsfehler limitiert und nicht, wie in der Lichtoptik, nur durch die Beugung. Dadurch ist die Punktauflösungsgrenze in konventionellen Elektronenmikroskopen auf $d = 100\lambda$ begrenzt, d. h. zwei Größenordnungen kleiner als die reziproke Elektronenwellenlänge. Die einzige Möglichkeit, um dennoch zu einer besseren Auflösung zu gelangen, bestand zunächst in der Erhöhung der Beschleunigungsspannung und damit in der Verkleinerung der Wellenlänge. Dies führte zur Entwicklung von Hochspannungs-TEMs (*high-voltage* TEMs, HVTEMs) mit Beschleunigungsspannungen oberhalb 100 kV. Die ersten Aufnahmen bei 1,2 MeV wurden 1960 von Dupouy veröffentlicht. Weitere Projekte in Cambridge und Japan folgten nur wenige Jahre später. 1989 wurde auf der Dreiländertagung in Salzburg das ARM (*atomic-resolution microscope*) vorgestellt, dass mit einer Beschleunigungsspannung von 1,25 MeV eine Punktauflösung von 1 Å erreicht. Da die Schwelle für Strahlenschädigung (*knock-on threshold*) bei vielen Materialien im Bereich von 200 bis 400 kV liegt, lassen sich Höchstspannungsmikroskope mit Energien bis zu 1 MeV nur bei sehr widerstandsfähigen, anorganischen Proben einsetzen. Bei biologischen Proben ist unabhängig von der Beschleunigungsspannung nur eine niedrige Elektronendosis zulässig, da es durch Elektronenanregung zu Zerstörung der atomaren Bindungen kommt.

Da die Erhöhung der Beschleunigungsspannung zur Verbesserung der Auflösung also nur für einen kleinen Teil der Proben von Nutzen ist, musste ein Weg gefunden werden, sphärische und chromatische Aberration zu reduzieren. Bereits 1947 schlug Scherzer [Sch47] vor, mittels einer Kombination aus elektromagnetischen Quadrupolen und Oktupolen negative Farb- und Öffnungsfehler zu erzeugen. Dieser Ansatz konnte zwar in Versuchen experimentell bestätigt werden. Eine nachweisbare Verbesserung der Auflösung scheiterte jedoch lange Zeit an den Anforderungen hinsichtlich der Stabilität der elektrischen Versorgungen, der Präzision des Aufbaus und nicht zuletzt an der aufwendigen manuellen Justage des Gerätes und Korrektors [Hel82]. Im Jahre 1990 beschrieb Rose einen Hexapol-Korrektor [Ros90], der aus einem symmetrisch aufgebauten System aus zwei Rundlinsen-Dubletts und zwei elektromagnetischen Hexapolen besteht. Die praktische Umsetzung des Konzeptes gelang 1998 der Gruppe um Haider [Hai98] am Europäischen Mikrobiologischen Insti-



Abbildung 2.1: Links: die mitotische Zellteilung (K. Michel, Carl Zeiss, 1943). Mitte: Anordnung der Ringblende unterhalb des Objektivs und des Phasenrings im Objektiv (Werkfoto: Carl Zeiss). Rechts: Der Strahlengang im Phasenkontrastmikroskop. 1=Ringblende, 2=Kondensator, 3=Präparat, 4=Objektiv, 5=Phasenplatte, 6=Brennebene des Objektivs. Der Wellencharakter des Lichts ist durch die Abfolge heller und dunkler Bereiche angedeutet (Werkfoto: Carl Zeiss).

tut in Heidelberg¹. Mit diesem Korrektor konnte erstmalig die Punktauflösung eines kommerziellen TEMs von $2,6 \text{ \AA}$ auf $1,2 \text{ \AA}$ verbessert werden. Etwa zeitgleich wurden Ergebnisse mit zwei weiteren Verfahren zur Korrektur von Aberration in Linsen des Beleuchtungssystems [Kri97] und dem Einsatz von Spiegeln [Rem97] publiziert.

Der Korrektor von Haider et al. nutzt die computergestützte Auswertung von Kippserien und den daraus erhaltenen Diffraktogramm-Tableaus, wie sie von Zemlin [Zem78] eingeführt wurde. Damit lässt sich eine präzise Messung und Korrektur der Aberrationen bis zur dritten Ordnung realisieren. Nach Scherzer ist die erreichbare Punktauflösung beim Phasenkontrast durch den Öffnungsfehler der Objektivlinse bestimmt. Bei Verwendung eines C_s -Korrektors lässt sich dieser variieren. Es limitiert daher nur noch die Dämpfung des Kontrastes bei hohen Raumfrequenzen, welche durch die endliche zeitliche Kohärenz der Elektronenquelle (Energiebreite) und andere inkohärente Instabilitäten verursacht wird.

Die Korrektur der chromatischen Aberration ist bei niedrigen Beschleunigungsspannungen unerlässlich, da sie mit abnehmender Energie stark zunimmt, während die sphärische Aberration konstant bleibt. Der Einfluss der chromatischen Aberration auf die Dämpfung bei hohen Raumfrequenzen erfordert entweder den Einsatz eines geeigneten Korrektors für C_s und C_c (Kombination aus elektrischen und magnetischen Quadrupolen) [Hai08a] oder eines Monochromators [Kah99]. Letzterer reduziert die intrinsische Energiebreite eines typischen Schottky-Emitters mit ZrO/W(100)-Quelle auf Werte von etwa $0,15 \text{ eV}$. Weiterhin müssen die inelastisch gestreuten Elektronen in der Probe berücksichtigt werden. Die Verwendung eines abbildenden Energiefilters erlaubt es, diese auszublenden, ohne Einfluss auf die Abbildung der Elektronen ohne Energieverlust zu haben (zero-loss Filterung). Der Kontrast der Abbildung lässt sich damit deutlich verbessern. Außerdem erlaubt es ein

¹Aus der Arbeitsgruppe entstand 1996 die Firma CEOS (Corrected Electron Optical Systems) mit Sitz in Heidelberg, die neben Abbildungs- und Beleuchtungskorrektoren auch Monochromatoren und Feldemissionsquellen für TEMs kommerziell vertreibt.

solches Filter, Energieverlustspektren zu bestimmen und eine elementspezifische Abbildung des Objektes durchzuführen. Derart ausgestattete Transmissionselektronenmikroskope (*energy-filtered* TEM, EFTEM) sind damit in der Lage, neben der reinen Objektstruktur auch Information über die chemische Beschaffenheit der Probe und Bindungszustände zu liefern.

2.1 Entwicklung der Phasenkontrastmikroskopie

Während Abbe sich bei seinen Untersuchungen auf absorbierende Objekte beschränkte, untersuchte der holländische Physiker Frits Zernike die Bildentstehung bei nahezu transparenten Objekten, die die ebene Lichtwelle nicht in der Amplitude, sondern in erster Linie in der der Phasenlage beeinflussen: den Phasenobjekten. Die Verwendung der Phasenkontrast-Mikroskopie in der Lichtoptik zur Abbildung biologischer Präparate, die keinen oder nur geringen Amplitudenkontrast erzeugen, ist weit verbreitet. Zernike konnte zeigen, dass bei kleiner Phasenvariation der Gangunterschied zwischen gebeugtem und ungebeugtem Licht $\lambda/4$ beträgt [Zer35]. Dieser bleibt bei der konventionellen Hellfeldabbildung verborgen, da das menschliche Auge nur auf Intensitätsmodulationen reagiert. Dem Vorschlag von Zernike folgend wird in der Pupillenebene des Kondensors eine Ringblende angeordnet und in der austrittseitigen Brennebene des Objektivs eine Phasenplatte angebracht (s. Abb. 2.1). Letztere prägt dem Nullstrahl, d. h. dem ungebeugten Licht, eine Phasenschiebung auf, die sich um $\pi/2$ ($\equiv \lambda/4$) von den höheren Beugungsordnungen unterscheidet. Die Gesamtverschiebung beträgt damit insgesamt $\lambda/2$, sodass es zwischen gebeugtem und nicht gebeugtem Strahl zu einer destruktiven Interferenz kommt und der Kontrast im entstehenden Bild maximal wird. Man spricht von *positivem* Phasenkontrast, da das Objekt dunkel gegenüber einem hellen Untergrund erscheint. Befinden sich gebeugter und ungebeugter Strahl nach der Phasenplatte in Phase zueinander, spricht man von *negativem* Phasenkontrast. Man erhält dann helle Objektstrukturen auf einem dunklen Hintergrund. Mit diesem Verfahren konnte Zernike 1935 erstmals Phasenmodulationen in Amplitudenänderungen umwandeln. Mit den Erkenntnissen wurde 1936 zusammen mit Carl Zeiss Jena der erste Prototyp eines Phasenkontrast-Mikroskops entwickelt. Damit war es möglich, Prozesse lebender Zellstrukturen zu untersuchen. Die ersten anwendungsbezogenen Arbeiten entstanden Ende der dreißiger und Anfang der vierziger Jahre in Jena durch Köhler, Loos und Michel. Michel setzte das Verfahren zuerst für die Beobachtung von Chromosomen lebender Zellen ein. 1941 gelang es ihm, Kernteilungsvorgänge bei der Zellteilung in einem Zeitrafferfilm festzuhalten. Der Film mit dem Titel „Die Reifeteilung (Meiose) bei der Spermatogenese der Schnarrheuschrecke (*Psophus stridulus* L.)“ wurde 1958 im Institut für den Wissenschaftlichen Film in Göttingen veröffentlicht. In der medizinischen Forschung gewann das Phasenkontrastverfahren zunehmend an Bedeutung. Gerade im Bereich der Zytologie und Hämatologie, der Bakteriologie und der Parasitologie profitierte man von der Möglichkeit, ungefärbte, lebende Objekte untersuchen zu können. Die mit dem Phasenkontrast erzielten Fortschritte in Biologie und Medizin waren von so großer Bedeutung, dass Zernike 1953 der Nobelpreis für Physik verliehen wurde.

Der Differential-Interferenzkontrast (*differential interference contrast*, DIC), der Ende der 60er Jahre durch Nomarski eingeführt wurde, ergänzte das Phasenkontrastverfahren bei dickeren Proben ($>5\ \mu\text{m}$). Es handelt sich um ein interferometrisches Verfahren, bei dem die optische Dichte der Probe durch Interferenz zweier polarisierter Wellen, die unterschiedliche optische Weglängen (Produkt aus Brechungsindex und geometrischer Weglänge) zurückgelegt haben, sichtbar gemacht wird. Zwei Wollaston-Prismen, die sich auf gegenüberliegenden Seiten der Probe befinden, bilden die zentralen Elemente (vgl. Abbildung 2.2). Jedes dieser Prismen besteht aus zwei verkitteten Kalkspatteilen. Das einfallende, unpolarisierte Licht wird zunächst durch den eingangsseitigen Polarisator linear im 45° -Winkel polarisiert. An der Kittfläche des ersten Prismas wird es dann in zwei lateral versetzte, senkrecht zueinander polarisierte Teilwellen aufgespalten (ordentlicher und außerordentlicher Strahl). Das erste Wollaston-Prisma sitzt in die vordere Brennebene des Kondensators, das zweite in der hinteren Brennebene des Objektivs. Das Objekt wird somit von zwei senkrecht aufeinander stehenden Wellenzügen durchstrahlt. Diese werden in Abhängigkeit der Dicke und den Brechungseigenschaften des Präparates in ihrer Phase verschoben. Nach dem Durchgang durch die Probe werden die beiden Teilwellen über das zweite Prisma wieder zusammengeführt. Um die beiden Teilstrahlen interferieren zu lassen, durchlaufen sie noch den Analysator. Dichteunterschiede im Objekt, die zu Phasenunterschieden führen, werden hier reliefartig dargestellt. Das Bild ist dabei nicht isotrop, d. h. die Phasenschiebung innerhalb der Probe wird nur in einer Richtung detektiert, welche durch die Orientierung der Wollaston-Prismen festgelegt wird. Obwohl der Differential-Interferenzkontrast als Phasenkontrast-Verfahren bekannt ist, hat er doch in seiner ursprünglichen Form mehrere Nachteile: 1) Die Ergebnisse sind qualitativer Natur, d. h. es besteht ein nichtlinearer Zusammenhang zur optischen Weglänge, 2) die sich ergebende Intensitätsverteilung ist eine Mischung aus Amplituden- und Phasengradientenkontrast, 3) für viele Anwendung ist eine Abhängigkeit von der Phase und nicht vom Gradienten der Phase wünschenswert.

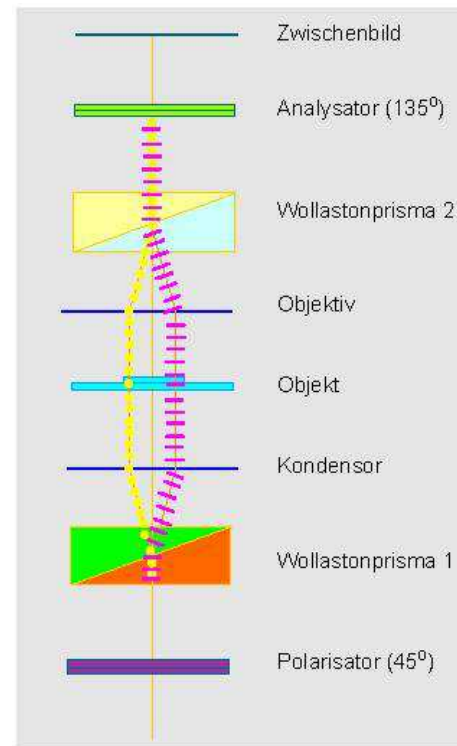


Abbildung 2.2: Strahlengang beim Differential-Interferenzkontrast (DIC) nach Nomarski. Punkte und Striche symbolisieren die Polarisationsrichtung für den ordentlichen und außerordentlichen Teilstrahl (Werkfoto: Carl Zeiss).

2.2 Phasenkontrast im TEM

Wie in der Lichtmikroskopie gibt es auch in der Elektronenmikroskopie Proben, die nur schwachen Amplitudenkontrast erzeugen. Insbesondere biologische Proben beeinflussen die Elektronenwelle primär in der Phase. Der Kontrastanteil, der sich aus einer Änderung der Wellenamplitude ergibt, liegt nur bei ca. 7% [Toy88]. Eine Möglichkeit, um besseren Kontrast bei solchen Objekten zu erhalten, besteht in der Ausnutzung der Phasenschiebung, die durch Defokus und sphärische Aberration der Objektivlinse hervorgerufen wird. Sie führt zu einer kontrastreichen Abbildung im Hellfeld, die jedoch raumfrequenzabhängig ist. Das Verfahren wurde 1949 von Scherzer beschrieben [Sch49]. Er leitete einen optimalen Wert für den Defokus ab, den Scherzerfokus, um zusammen mit der fest vorgegebenen und großen sphärischen Aberration des Mikroskops die Wirkung eines $\lambda/4$ -Plättchens zu erzielen. Die Übertragungseigenschaften des Mikroskops lassen sich im Rahmen der Näherung für schwache Objekte durch eine einzige Funktion charakterisieren: die *Kontrastübertragungsfunktion* (*contrast transfer function*, CTF). Die kohärente Kontrastübertragungsfunktion, welche den Kontrast bei der Hellfeldabbildung beschreibt, ist gegeben durch:

$$\text{CTF}(k) = 2(\sin \chi(k) - A \cos \chi(k)) \quad (2.2)$$

Dabei ist

$$\chi(k) = \frac{2\pi}{\lambda} W(\lambda, k) = \frac{\pi}{2} (C_s \lambda^3 k^4 + 2\Delta f \lambda k^2) \quad (2.3)$$

die Phasenschiebung durch die Linse, W die *Wellenaberrationsfunktion*, Δf der Defokus, k der Absolutbetrag des Wellenvektors (Raumfrequenz) und C_s der sphärische Aberrationskoeffizient. Der Parameter A gibt das Verhältnis von phasenschiebendem und absorbierendem Potential wieder. Da für schwache Phasenobjekte $A \ll 1$ ist, wird die fehlerbehaftete Abbildung im TEM durch eine sinusförmige, ortsfrequenzabhängige Kontrastübertragung beschrieben. Dadurch gehen bei dem Scherzerschen Verfahren niedrige Ortsfrequenzen ($< 1/5 \text{ nm}^{-1}$), die Information über den Umriss des Objekts beinhalten, grundsätzlich verloren. Zwar lassen sich durch Defokuserien, bei denen eine Probenstelle mit unterschiedlichen Defokuseinstellungen abgebildet wird, die Nachteile der oszillierenden Kontrastübertragung umgehen [Pen97]. Aber gerade bei biologischen Proben ist die durch die Strahlschädigung gegebene Obergrenze der Elektronendosis sehr niedrig, sodass das Signal zu Rauschverhältnis im Einzelbild sehr klein ist und damit die Rekonstruktion erschwert wird. Die Möglichkeit, auf die sphärische Aberration der Objektivlinse mittels eines C_s -Korrektors Einfluss nehmen zu können, ist in erster Linie für die Hochauflösungsmikroskopie relevant [Len04], bei der es um Raumfrequenzen oberhalb 1 nm^{-1} geht. Erst durch den Einsatz einer Phasenplatte, die in der hinteren Brennebene der Objektivlinse platziert wird, können die gestreuten und ungestreuten Elektronen um einen konstanten Wert von $\varphi_{\text{PP}} = \pi/2$ relativ zueinander in der Phase geschoben werden. Die daraus resultierende kosinusförmige Übertragungsfunktion führt dazu, dass sich auch niedrige Ortsfrequenzen übertragen lassen und der maximale Phasenkontrast in einer einzigen Aufnahme ermöglicht wird. Die Kontrastübertragungsfunktion lautet

dann:

$$\text{CTF}(k) = 2[-\cos \chi(k) - A \sin \chi(k)] \quad (2.4)$$

Der Übergang zur Kosinusfunktion ermöglicht wegen $\cos(0) = 1$ maximalen Kontrast auch bei niedrigsten Raumfrequenzen und, im Gegensatz zum Verfahren nach Scherzer, eine gleichbleibend hohe Kontrastübertragung auch bei hohen Raumfrequenzen ohne Einbrüche oder Kontrastumkehr.

Eine der ersten Publikationen, in denen elektronenoptische Phasenplatten beschrieben werden, stammt von Boersch aus dem Jahr 1947 [Boe47]. Es werden zwei grundlegende Verfahren genannt, mit denen sich eine Phasenschiebung zwischen gestreuten und ungestreuten Elektronen erreichen lässt. Die erste Methode besteht darin, eine dünne, amorphe Folie mit gleichmäßiger Dicke und zentrischer Bohrung in die hintere Brennebene der Objektivlinse einzubringen. Aufgrund ihrer Analogie zur Lichtmikroskopie wird diese Variante als *Zernike-Phasenplatte* bezeichnet. Durch das positive innere Coulomb-Potential des verwendeten Materials, welches in der Größenordnung von 10 bis 20 Volt liegt, kommt es zu einer dickeabhängigen Phasenschiebung des gestreuten Wellenanteils relativ zum ungestreuten Anteil, der das Loch passiert. Der zweite Ansatz zur Generierung einer Phasenschiebung basiert auf einer schwachen elektrostatischen (Einzel-)Linse, die im Zentrum einer Blende angebracht ist. Hier wird der ungebeugte Zentralstrahl relativ zu den gebeugten Elektronen über ein elektrostatisches Feld geschoben. Diese Variante wird als *Boersch-Phasenplatte* bezeichnet.

Seit 1960 gab es mehrere Versuche, durch elektronenoptische Phasenplatten Einfluss auf die Wellenaberration zu nehmen. Hoppe und Langer [Hop61, Lan66] entwickelten Zonenplatten, mit denen für einen bestimmten Defokuswert nur Wellenanteile zugelassen werden, die zur konstruktiven Interferenz führen. Experimentelle Schwierigkeiten ergaben sich durch Bildung von Kontaminationsschichten und der Notwendigkeit, den Defokus exakt an die Zonenplatte anzupassen. Von Unwin und Krakow wurde 1971 vorgeschlagen, die elektrostatische Phasenschiebung unter Anwendung eines dünnen, goldbeschichteten Drahtes vorzunehmen, der über eine Blende gespannt wird [Unw71, Kra75]. Durch das Feld wird die Wellenaberration bei kleinen Winkeln modifiziert und so die Kontrasttransferfunktion bei niedrigen Raumfrequenzen optimiert. Der Umgang damit gestaltete sich jedoch so schwierig, dass an eine praktische Nutzung nicht zu denken war. Dünnschichtphasenplatten vom Zernike-Typ wurden ebenfalls eingesetzt. Durch die Bildung von Kontaminationsschichten, die zu Aufladungen und anisotroper Phasenschiebung führen, eignet sich die Zernike-Phasenplatte nicht für einen dauerhaften Einsatz.

Im Gegensatz dazu haben sich die Boersch-Phasenplatten als weniger anfällig gegenüber der Belegung mit Kontamination erwiesen. Ein genereller Vorteil besteht auch darin, dass die Phasenschiebung durch ein elektrisches Feld generiert wird. Eine unerwünschte Streuung der Elektronen in der Phasenplatte findet nicht statt. Dadurch eignet sich die elektrostatische Phasenplatte auch für die Hochofflösung und es kann durch Änderung der angelegten Spannung die relative Phasenschiebung verändert werden. Es ist insbesondere auch möglich, im Betrieb zwischen der Hellfeldabbildung und dem Phasenkontrastmodus zu wechseln. Trotz der prinzipiellen Vorteile der Boersch-Phasenplatte wurden lange Zeit keine Experimente damit

unternommen, da es unmöglich war, Strukturen in der Größenordnung des Beugungsbildes herzustellen. Da eine Vergrößerung der zentralen Elektrode zu einer Abschattung der niedrigen und mittleren Raumfrequenzen führt, wurde vorgeschlagen, mit einer schwachen Objektivlinse zu arbeiten, deren größeres Beugungsbild mit den realisierbaren Elektrodenabmessungen korrespondiert [Mat96]. Die hierfür notwendige Vergrößerung des Polschuhabstands und damit der Brennweite der Linse zieht aber unweigerlich eine Erhöhung des Öffnungsfehlerkoeffizienten C_s nach sich, was die erzielbare Geräteauflösung reduziert. Die Fortschritte in der Beherrschung von Mikrostrukturierungsprozessen haben die Realisierung der Boersch-Phasenplatte zunehmend in den Fokus der aktuellen Forschung gerückt. Zusammen mit den kommerziell verfügbaren C_s -Korrektoren eröffnet sich die Möglichkeit für eine neue Geräteklasse: korrigierte TEMs mit einer Phasenplatte nach Boersch, die die hochauflösende, aberrationsfreie Abbildung von biologischen Proben mit optimalem Kontrast für alle Raumfrequenzen ohne Defokussierung ermöglichen. Die von Majorovits und Schröder [Maj07] vorgeschlagene und von Schultheiß [Sch06] gefertigte Boersch-Phasenplatte hat gezeigt, dass das Konzept der schwachen Einzellinse funktioniert und eine Phasenschiebung der nullten Beugungsordnung relativ zu den gebeugten Elektronen um 90° möglich ist. Durch den Einsatz der Phasenplatte ändert die Kontrastübertragungsfunktion ihre Charakteristik von sinus- in kosinusförmig, was die Übertragung niedriger Raumfrequenzen ermöglicht. Zu hohen Raumfrequenzen hin wird durch den C_s -Korrektor die starke Oszillation und die damit verbundene Kontrastumkehr vermieden und damit die Punktauflösungsgrenze bis an das Informationslimit herangebracht.

Kapitel 3

Grundlagen

3.1 Aufbau und Strahlengang im TEM

Der Aufbau und Abbildungsstrahlengang beim TEM ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt. Er entspricht im Wesentlichen dem des Lichtmikroskops. Die Elektronenquelle bildet den Ausgangspunkt und stellt die für die Beleuchtung der Probe benötigten Elektronen zur Verfügung. Als Quellen wurden ursprünglich thermische Emittoren, wie Wolfram-Haarnadel und Lanthanhexaborid-(LaB₆)Kathode verwendet. Heutzutage werden überwiegend Feldemissionsquellen (*field emission gun*, FEG) wegen ihres höheren Richtstrahlwertes eingesetzt, der die Kohärenzeigenschaften des Elektronenstrahls deutlich verbessert. Die aus der Quelle freigesetzten Elektronen werden durch eine Hochspannung beschleunigt. Die Wahl des Hochspannungswertes richtet sich dabei nach der jeweiligen Anwendung. Für biologische Proben liegt der Wert im Bereich von 80 bis 120 kV, für materialwissenschaftliche Untersuchungen bei 200 bis 300 kV. Die Linsengruppe oberhalb der Probe besteht aus zwei oder drei magnetischen Rundlinsen und wird als *Kondensator* bezeichnet. Er bildet zusammen mit der Elektronenquelle das *Beleuchtungssystem*. Die erste Linse (C1) erzeugt ein verkleinertes Abbild des gun Cross-over und bestimmt die minimale Spotgröße. Die zweite, schwächer erregte Linse (C2) projiziert den Cross-over in die Objektebene und beeinflusst zusammen mit der Kondensatorblende (CA) den ausgeleuchteten Bereich auf der Probe. Es wird zwischen zwei Beleuchtungsmodi unterschieden: 1) paralleler Beleuchtungsstrahlengang für die Erzeugung eines Schattenbildes (TEM) 2) fokussierter Strahl zur punktuellen Abbildung der Probe (STEM).

Der Nachteil der in Abb. 3.1 dargestellten konventionellen Beleuchtung ist einerseits die Abhängigkeit zwischen Beleuchtungswinkel und Beleuchtungsfeld und andererseits die mangelnde Homogenität der Beleuchtung. Dies lässt sich durch die aus der Lichtoptik bekannte *Köhler-Beleuchtung* verbessern. Hierbei wird das Kathodenbild in die vordere Brennebene der letzten Kondensatorlinse (*objective prefield lens*) abgebildet und die Kondensatorblende in die Präparatebene. Dadurch lassen sich Inhomogenitäten der Beleuchtung, die durch lokale Schwankungen des Emissionsprozesses auf der Emitteroberfläche entstehen, wirkungsvoll unterdrücken.

Beim Durchlaufen der Probe (S) erfahren die Elektronen elastische und inelastische Wechselwirkungen und werden in Abhängigkeit der Ordnungszahl und Dicke

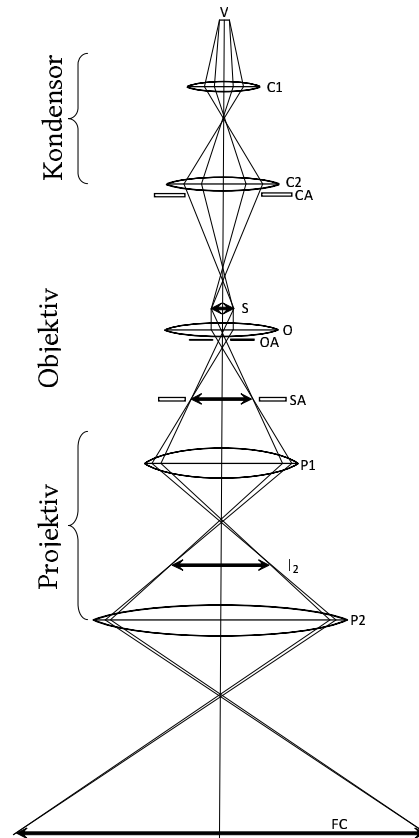


Abbildung 3.1: Schematischer Strahlengang im TEM. Dargestellt sind die drei für die Abbildung wesentlichen Komponenten: Beleuchtung, Objektiv und Projektiv.

des Materials abgelenkt. In der hinteren Brennebene des Objektivs befindet die *Kontrastblende* (OA), mit der je nach Positionierung der für Hellfeld- oder Dunkelfeldabbildung genutzte Teil der Beugungswelle des Objekts ausgewählt werden kann.

In der Bildebene (SA) des Objektivs entsteht ein reelles, ca. 50fach vergrößertes Zwischenbild. Die Objektivlinse wird heute als Einfeld-Kondensator-Objektivlinse ausgeführt, bei der der Linsenpolschuh symmetrisch aufgebaut ist. In der Mitte befindet sich die Probe. Das Feld oberhalb der Probe wirkt dabei als Kondensator (*prefield*), das unterhalb befindliche Feld als Objektiv¹. Auf diese Weise lassen sich Brennweiten und Öffnungsfehlerkoeffizienten von <1 mm realisieren. Die Dicke des Präparates ist dabei so gering, dass Absorption nur eine untergeordnete Rolle spielt.

Das durch das Objektiv vergrößerte, reelle Zwischenbild wird über ein Projektivsystem weiter vergrößert in die Endbildebene übertragen. Dort kann es mittels CCD-Kamera detektiert oder direkt auf einem Leuchtschirm (FC) betrachtet werden. Durch Änderung der Erregung der Zwischenlinse (P1) kann gewählt werden, ob die Zwischenbildebene (SA) oder die hintere Brennebene des Objektivs abgebildet

¹Dies erfordert unmagnetische Probenhalter und Proben, damit es nicht zu einer Feldverzerrung kommt. Für die Abbildung von magnetischen Proben besteht die Möglichkeit mit sog. Lorentzlinen zu arbeiten, bei denen sich das Objekt im feldfreien Raum befindet.

wird, in der das Beugungsbild des Präparates vorliegt (Beugungsmodus). Mittels einer in der Zwischenbildebene befindlichen Gesichtsfeldblende (*selected area aperture*) können im Zwischenbild Objektbereiche ausgewählt werden, um sie im Beugungsstrahlengang zu untersuchen (*Feinbereichsbeugung*).

3.2 Linsenfehler

Die im TEM verwendeten elektromagnetischen Linsen weisen wie ihr Pendant aus der Lichtoptik Fehler auf, die bei der Abbildung zu einer Verfälschung der Phasen der gestreuten Wellen führen. Die daraus resultierende Änderung der Wellenfunktion durch eine Phasenmodulation wird im Rahmen der Wellenoptik durch die *Aberrationen* beschrieben. Diese lassen sich in zwei Kategorien einteilen: axiale und außeraxiale Aberrationen. Axiale Aberrationen hängen nur vom Aperturwinkel ab und betreffen gleichermaßen axiale und außeraxiale Bildpunkte. Außeraxiale Aberrationen wirken sich hingegen nur auf außeraxiale Bildpunkte aus. Für die hochauflösende Abbildung sind primär die axialen Aberrationen relevant. In der Bildebene lassen sich die Aberrationen durch die *Aberrationskoeffizienten* beschreiben. Sie geben Aufschluss über die Phasenschiebung und werden in Kapitel 5 eingeführt. Hinsichtlich der Abbildung im TEM ist die Objektivlinse der limitierende Faktor in Bezug auf das erreichbare Auflösungsvermögen. Da im Objektiv die auftretenden Aperturwinkel am größten sind, ist sie die wichtigste Linse. Ihre Aberrationen bestimmen maßgeblich die Auflösung des Mikroskops. In den nachfolgenden Projektivlinsen wird die Apertur immer kleiner, jedoch nimmt der Abstand von der Achse zu, sodass hier die Verzeichnung dominiert.

Bei einer rotationssymmetrischen Objektivlinse sind die *sphärische Aberration* C_s bzw. C_3 (Öffnungsfehler dritter Ordnung) und *chromatische Aberration* C_c (Farbfehler erster Ordnung und ersten Grades) die dominierenden Bildfehler. Obwohl sich diese beiden fundamentalen Aberrationen im Rahmen des wellenoptischen Formalismus im Fourierraum behandeln lassen, wird wegen der besseren Anschaulichkeit in den folgenden Abschnitten die Beschreibung durch die geometrische Optik gewählt.

3.2.1 Sphärische Aberration und Defokus

Die sphärische Aberration beschreibt den Effekt, dass die Brennweite einer Linse für außeraxiale Strahlen unterschiedlich zu der für paraxiale Strahlen ist. Alle magnetischen Linsen besitzen einen positiven Aberrationskoeffizienten C_s , d. h. je größer der Startwinkel θ der Elektronen am Objektpunkt O gewählt wird (s. Abb. 3.2), desto näher liegt der Brennpunkt bei der Linse. Dadurch schneiden diese Elektronenbahnen die Gaußsche Bildebene B , welche als Ebene für paraxiale Abbildungsbedingungen definiert ist, mit einem lateralen Versatz Δr_s :

$$\Delta r_s = C_s \theta^3 M \quad (3.1)$$

Dabei ist C_s der Koeffizient der sphärischen Aberration, $M=b/g$ die Vergrößerung, b die Bildweite und g die Gegenstandsweite. Der Objektpunkt O wird demzufolge

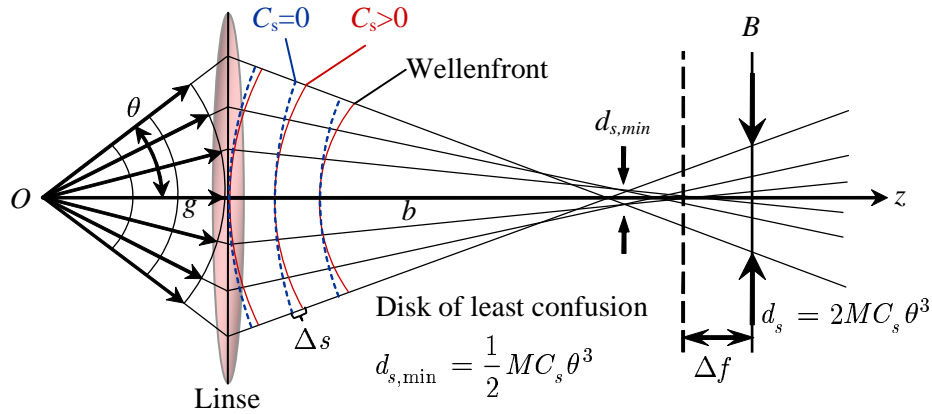


Abbildung 3.2: Strahlengang einer Linse mit positiver sphärischer Aberration, die zu einer stärkeren Fokussierung der außeraxialen Strahlen führt. In der Ebene der kleinsten Verwirrung (disk of least confusion) ist der Durchmesser des Fehlerscheibchens minimal. Die Gaußsche Bildebene B ist gegeben durch den Schnittpunkt der paraxialen Strahlen.

in der Gaußschen Bildebene bei einem Öffnungswinkel θ als Scheibchen mit dem Durchmesser

$$d_s = 2MC_s\theta^3 \quad (3.2)$$

abgebildet. Das Bündel aller durch die Linse laufenden Strahlen nimmt dabei in der Ebene kleinster Verwirrung (disk of least confusion) einen minimalen Durchmesser von

$$d_{s,min} = \frac{1}{2}MC_s\theta^3 \quad (3.3)$$

an. Der Koeffizient der sphärischen Aberration liegt für magnetische Objektivlinsen üblicherweise in der Größenordnung von 0,5-4 mm. Bezogen auf die Objektebene ergibt sich für das Fehlerscheibchen ein Durchmesser von

$$d = \frac{1}{2}C_s\theta^3 \quad (3.4)$$

Zwischen den Wellenfronten der realen Linse und der idealen, aberrationsfreien Linse besteht ein Gangunterschied Δs . Die daraus resultierende Phasenverschiebung ist im Falle der sphärischen Aberration gegeben durch:

$$\chi_1(\theta) = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta s(\theta) = \frac{2\pi}{\lambda}C_s\frac{\theta^4}{4} \quad (3.5)$$

Durch Änderung des Linsenstroms kann die Lage der Gaußschen Bildebene der magnetischen Linse verändert werden. Die Defokussierung führt in der Beobachtungsebene zu einer Verschmierung des Bildpunktes und wird analog zur sphärischen Aberration über ein Fehlerscheibchen beschrieben. Die aus der Defokussierung Δf resultierende Phasenschiebung ist gegeben durch:

$$\chi_2(\theta, \Delta f) = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta f\frac{\theta^2}{2} \quad (3.6)$$

Die Kombination aus 3.5 und 3.6 führt zur gesamten Phasenschiebung, die sich durch Defokus und sphärische Aberration ergibt:

$$\chi(\theta, \Delta f) = \frac{2\pi}{\lambda} \left(C_s \frac{\theta^4}{4} + \Delta f \frac{\theta^2}{2} \right) \quad (3.7)$$

Das Vorzeichen für den Defokus in Gleichung 3.7 kann sowohl positiv als auch negativ definiert werden. Beide Vorzeichenkonventionen sind in der Literatur zu finden. Bei der hier verwendeten Definition ist $\Delta f > 0$ gleichbedeutend mit einem *Überfokus*, $\Delta f < 0$ entspricht einem *Unterfokus*. Der Halbwinkel θ in der Objektivlinse ist über die Elektronenwellenlänge λ mit der Raumfrequenz k in der Bildebene verknüpft:

$$\theta = \lambda \cdot k \quad (3.8)$$

Die Definition von k ist dabei so gewählt, dass der Kehrwert $1/k$ direkt dem Abstand d zweier Probedetails entspricht. Die Phasenschiebung χ aus Gl. 3.7 lässt sich damit umformen als Funktion der Raumfrequenz k :

$$\chi(k) = \frac{2\pi}{\lambda} \left(\frac{1}{4} C_s \lambda^4 k^4 + \frac{1}{2} \Delta f \lambda^2 k^2 \right) \quad (3.9)$$

$$\chi(k) = \frac{\pi}{2} (C_s \lambda^3 k^4 + 2\Delta f \lambda k^2) \quad (3.10)$$

3.2.2 Chromatische Aberration

Die Brennweite einer Elektronenlinse hängt von der Elektronenenergie E_0 ab. Die Lage der Gaußschen Bildebene variiert mit der relativen Energieabweichung $\kappa = \Delta E/E_0$ (s. Abb. 3.3). Analog zu der gewollten Defokussierung Δf kommt es durch die axiale chromatische Aberration zu einer zusätzlichen, unerwünschten Defokussierung Δf_c , welche sich schreiben lässt als:

$$\Delta f_c = C_c \kappa = C_c \frac{\delta E}{E_0} \quad (3.11)$$

Der Vorfaktor C_c ist der Koeffizient der chromatischen Aberration. Da die Energieabweichung δE der Strahlelektronen durch den Emissionsprozess in der Elektronenquelle bestimmt wird, ist sie unabhängig von der kinetischen Energie E_0 . Damit nimmt der chromatische Fehler mit abnehmender Strahlenergie zu. Für den Durchmesser des Fehlerscheibchens in der Ebene der kleinsten Verwirrung erhält man mit der vollen Halbwertsbreite ΔE der Energieverteilung:

$$d_{c,min} = C_c \frac{\Delta E}{E_0} \theta \quad (3.12)$$

Die chromatische Aberration führt der Öffnungsfehler zu einer Phasenschiebung in der hinteren Brennebene, die gegeben ist durch:

$$\chi_c = -\pi \Delta f_c \lambda k^2 \quad (3.13)$$

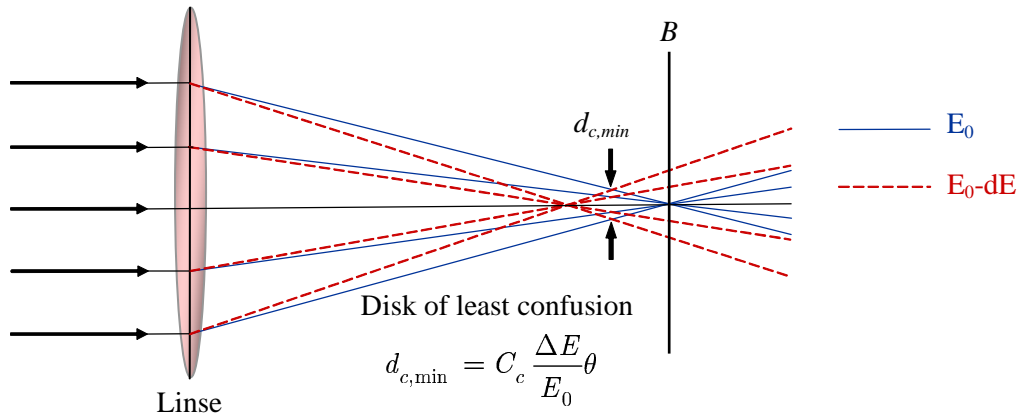


Abbildung 3.3: Durch die Abhängigkeit der Brennweite der magnetischen Linse von der mittleren Energie E_0 der Elektronen, kommt es zu einer energieabhängigen Defokussierung. Der Durchmesser des Fehlerscheibchens in der Ebene der kleinsten Verwirrung ist gegeben durch $d_{c,min}$.

Die axiale chromatische Aberration gehört zur Kategorie der inkohärenten Bildfehler und reduziert, wie in Abschnitt 4.3.3 gezeigt wird, das Informationslimit des Gerätes.

3.3 Kontrastmechanismen

3.3.1 Definition Kontrast

Die Untersuchung einer Probe im TEM setzt das Vorhandensein wahrnehmbarer Intensitätsdifferenzen voraus. Die zwischen zwei benachbarten Bereichen mit der Intensität I_1 und I_2 bestehende relative Intensitätsvariation ΔI wird als Kontrast bezeichnet und ist definiert durch [Wil96]:

$$C = \frac{I_1 - I_2}{I_1} = \frac{\Delta I}{I_1} \quad (3.14)$$

Kontrastwerte $<5\%$ sind mit dem Auge nicht zu unterscheiden. Es wird grundsätzlich zwischen Amplituden- und Phasenkontrast unterschieden. Ein reines Amplitudenobjekt ändert ausschließlich den Amplitudenfaktor durch Streuung oder Absorption und beeinflusst damit direkt die Intensität. Dadurch sind Amplitudenobjekte in der mikroskopischen Abbildung mit einfachen Hilfsmaßnahmen (Kontrastblende) beobachtbar. Zu dieser Kontrastart zählen der *Massendickenkontrast* und der *Beugungskontrast*. Diese beiden Kontrastarten werden unter der dem Begriff der konventionellen Transmissionselektronenmikroskopie (*conventional TEM*, CTEM) zusammengefasst, während der Phasenkontrast ein Interferenzphänomen zwischen ungestreuten und gestreuten Elektronen darstellt und der hochauflösenden Mikroskopie (*high-resolution TEM*, HRTEM) zugeordnet wird.

3.3.2 Limitierung durch Schrotrauschen

Da bei biologischen Proben durch die Strahlenschädigung² die maximale Elektronendosis bei etwa $1e^-/\text{\AA}^2$ liegt, ist das Signal zu Rauschverhältnis (*signal-to-noise ratio*, SNR) in einer Aufnahme gering und erschwert bei einer Defokuserie die notwendige Bildbearbeitung nachhaltig. Gerade bei der hochauflösenden Abbildung von Probedetails kommt es zu starken statistischen Schwankungen der Zahl der pro Pixel registrierten Elektronen. Das Problem der visuellen Erkennung einfacher Strukturen bei schlechter Statistik wurde von Rose [Ros48] in Verbindung mit der Entwicklung von Fernsehröhren untersucht. Er entwickelte ein nach ihm benanntes psychophysisches Gesetz, welches besagt, dass der Kontrast eines Objektes mindestens fünf Mal größer sein muss als die durch das Schrotrauschen verursachte Fluktuation der Intensität, um das Objekt als solches erkennen zu können.

Wenn \bar{n}_e die mittlere Zahl der Elektronen ist, die auf eine Fläche a treffen, so lässt sich unter der Voraussetzung, dass die statistische Schwankung der Elektronenzahl der Poisson-Statistik gehorcht, das SNR definieren als:

$$\text{SNR} := \frac{a\Delta n_e}{\sqrt{a\text{var}n_e}} = \frac{a\Delta n_e}{\sqrt{a\bar{n}_e}} \quad (3.15)$$

und der Kontrast C als

$$C := \frac{\Delta n_e}{\bar{n}_e} \quad (3.16)$$

was zu der folgenden Abhängigkeit zwischen der minimalen Dosis q und der Auflösung d führt (*Rose-Beziehung*):

$$\text{SNR}^2 = aC^2\bar{n}_e = (Cd)^2\bar{n}_e \Rightarrow \text{SNR}(C, q) = Cd\sqrt{\frac{q}{e}} \quad (3.17)$$

Ein größerer Kontrast C verbessert also das SNR stärker, als eine Erhöhung der Dosis es zu leisten vermag. Mit der *Rose-Bedingung* [Ros48], die für ein signifikantes Signal ein $\text{SNR} > 3-5$ voraussetzt, ergibt sich folgende Relation:

$$(Cd)^2\bar{n}_e \geq 25 \quad (3.18)$$

Dies verdeutlicht, dass der Kontrast der entscheidende Parameter für die Leistungsfähigkeit eines TEMs in der Strukturbiologie ist.

3.3.3 Streukontrast

Treffen Primärelektronen mit der Energie E_0 auf eine dünne Probe, kann es zu unterschiedlichen Wechselwirkungen kommen. Die wichtigsten Wechselwirkungspro-

²Strahlenschädigung wird primär durch inelastische Wechselwirkung der Elektronen mit der Probe hervorgerufen. Sie führt zur Anregung einzelner Moleküle und Kollektivanregung sowie zur Ionisation und damit zur Bildung von freien Radikalen und Ionen. Die Probe verliert ca. 10-30% ihrer Masse während einer Bestrahlung mit $10-100 e^-/\text{\AA}^2$. Proteinkristalle werden durch eine Bestrahlung im Bereich von $0,5-5 e^-/\text{\AA}^2$ bei 0°C zerstört, weshalb die Dosis von $5 e^-/\text{\AA}^2$ auch als zulässiger Höchstwert für biologische Präparate anzusehen ist.

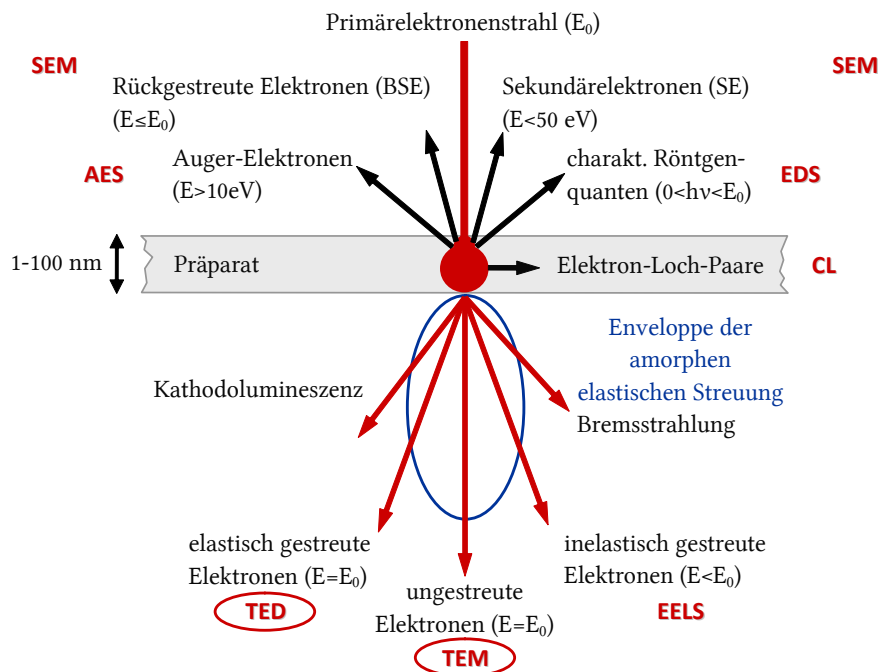


Abbildung 3.4: Grundlegende Wechselwirkungen zwischen Elektronen und Probe. Während die rückgestreuten Elektronen (BSE) und Sekundärelektronen (SE) in erster Linie bei der Bildentstehung im Rasterelektronenmikroskop (SEM) genutzt werden, sind bei der Kontrastentstehung im TEM die elastische und inelastische Streuung die wichtigsten Prozesse.

zesse, die zur Kontrastentstehung beitragen, sind in Abbildung 3.4 dargestellt. Beim Durchgang durch die Probe interagieren die beschleunigten Elektronen mit den Atomen durch die Coulomb-Wechselwirkung, welche zu ein- oder mehrfacher elastischer und inelastischer Streuung führt.

Bei der *elastischen Streuung* kommt es zu einer Ablenkung der Strahlelektronen durch das elektrische Feld des Kerns. Es handelt sich um eine Großwinkelstreuung, bei der auch Rückstreuung stattfindet (*backscattered electrons*, BSE). Die Streuprozesse können mit Hilfe des *differentiellen Wirkungsquerschnitts* $d\sigma_{el}/d\Omega$ quantitativ beschrieben werden. Er gibt die Wahrscheinlichkeit an, mit der ein Elektron aus einem Bündel vom Querschnitt $d\sigma$ unter einem Winkel θ in ein Raumwinkelelement $d\Omega = 2\pi \sin(\theta) d\theta$ gestreut wird. Für die Beschreibung der elastischen Streuung ist die der *Rutherford-Streuquerschnitt* eine gute Näherung. Er ist gegeben durch:

$$\frac{d\sigma_{el}}{d\Omega} = \frac{Z^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m^2 v^4 \sin^4(\theta/2)} \quad (3.19)$$

Hierbei ist e die Elementarladung, Z die Ordnungszahl, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums, m die Elektronenmasse und v die Elektronengeschwindigkeit. Durch die quadratische Z -Abhängigkeit nimmt der Streuwinkel mit der Ordnungszahl zu. Über die Kontrastblende in der hinteren Brennebene der Objektivlinse können die gestreuten Primärelektronen ausgeblendet werden und man erhält den Beugungs- kontrast. Über die Auswertung von Beugungsbildern können Informationen über die

kristallographische Struktur des untersuchten Materials gewonnen werden (*transmission electron diffraction*, TED). Der Energieübertrag vom Elektron auf das Atom liegt bei der elastischen Streuung aufgrund des niedrigen Elektronen/Kern Masseverhältnisses unterhalb von 1 eV. Eine Ausnahme stellt die Streuung bei sehr kleinem Stoßparameter dar. Bei diesem annähernd zentralen Stoß kann das Atom bei hohen Beschleunigungsspannungen aus seiner Bindung geschlagen werden (*knock-on effect* [Sch70]). Meist jedoch laufen die Elektronen in größerer Entfernung am Kern vorbei und unterliegen dann nur einem durch die Elektronen partiell abgeschirmten Feld des Kerns. Die quadratische Abhängigkeit von der Kernladungszahl besteht dann nicht mehr. Solche Elektronen werden vorwärtsgestreut. Die auftretenden Streuwinkel sind klein (typischerweise 10-100 mrad bei $E_0 = 100$ keV).

Inelastische Streuung liegt vor, wenn es zu einer Wechselwirkung mit den Hüllelektronen der Probe kommt. Im Gegensatz zur elastischen Streuung erfahren die Strahlelektronen hier einen elementspezifischen Energieverlust, der der Bindungsenergie des freigesetzten Probenelektrons entspricht. Es kann sich sowohl um die Anregung einzelner Elektronen handeln, als auch um eine Kollektivanregung (*Plasmonenanregung*). Der unbesetzte Zustand im Probenatom wird durch ein anderes Elektron aus einem höheren Energieniveau aufgefüllt. Die überschüssige Energie kann in Form eines Röntgenquants freigesetzt oder an ein anderes gebundenes Elektron transferiert werden, welches in manchen Fällen genügend kinetische Energie erhält, um die Probe zu verlassen (*Auger-Elektron*). Da die entstehende Röntgenstrahlung charakteristisch für das jeweilige Element ist, können über die *energiedispersive Röntgenspektroskopie* (*energy dispersive X-ray spectroscopy*, EDX oder EDS) Aussagen über die Zusammensetzung der Probe gemacht werden. Der Nachweis der freigesetzten Elektronen über die *Augerelektronen-Spektroskopie* (*Auger electron spectroscopy*, AES) liefert Informationen über die elementare Zusammensetzung von Festkörperoberflächen mit einer Informationstiefe von bis zu 10 nm.

Die bei der inelastischen Streuung auftretenden Ablenkwinkel liegen in der Größenordnung von ≤ 10 mrad und damit deutlich niedriger als bei der elastischen Streuung. Dadurch werden inelastisch gestreute Elektronen nicht durch die Kontrastblende ausgeblendet und tragen nur geringfügig zum Streukontrast bei. Sie führen zu einem niederfrequenten Rauschen und verschlechtern so das Signal zu Rauschverhältnis im Bild. Bei TEMs mit einem Energiefilter können über einen Selektionsschlitz in der energiedispersiven Ebene die inelastisch gestreuten Elektronen entfernt werden, was zu einer deutlichen Verbesserung des SNR führt. Alternativ kann man Elektronen mit Energieverlust und einer definierten energetischen Bandbreite zulassen (*electron energy-loss spectroscopy*, EELS). Hiermit erhält man einen elementspezifischen Kontrast und kann so Elementverteilungsbilder erstellen.

Die Wechselwirkung mit einzelnen Elektronen der äußeren Schalen (Valenzelektronen oder Elektronen im Leitungsband) führen zu Intra- oder Interbandübergängen. Bei einer solchen Anregung kommt es zu Energieverlusten von wenigen eV und kleinen Streuwinkeln. Als Folge der auf den Festkörper übertragenen Energie kann es zur Emission von elektromagnetischer Strahlung kommen, was als *Kathodolumineszenz* (*Cathodoluminescence*, CL) bezeichnet wird. Übersteigt die von den Primärelektronen übertragene Energie die Austrittsarbeit, so können Sekundärelektronen

(*secondary electrons*, SE) aus der Probe emittiert werden. Die Kollektivanregung der äußeren Elektronen mehrerer Atome der Probe führt zu einem Energieverlust von 5-30 eV [Rae80]. Dieser Prozess ist für die sehr kleine mittlere freie Weglänge der Strahlelektronen in den meisten Materialien verantwortlich. Daher muss die Proben- dicke im TEM auch sehr klein gewählt werden.

Der Energieeintrag des Primärelektronenstrahls in die Probe wird nur zu einem kleinen Teil in die Emission von Röntgenquanten und Auger-Elektronen umgesetzt. Der weitaus größere Teil führt zu einer Erwärmung und ist gerade bei organischen Materialien die Ursache für die strahlinduzierte Schädigung der Probe durch permanente Zerstörung von chemischen Bindungen.

3.3.4 Phasenkontrast

Bei der Betrachtung der Streuung wurde bisher nur die Änderung der Energie und des Streuwinkels der Elektronen berücksichtigt, nicht aber eine auftretende Phasenschiebung. Gerade für dünne organische Proben, die vorwiegend aus leichten Elementen bestehen, ist dies der dominierende Effekt. Sie stellen praktisch reine schwache Phasenobjekte dar, die durch die Verteilung der abgeschirmten elektrostatischen Felder der Atomkerne einen örtlich variierenden Brechungsindex erzeugen. Der Amplitudenkontrast beträgt dagegen weniger als 10% [Ang97]. Für die folgenden Betrachtungen sei vorausgesetzt, dass das Objekt von einer punktförmigen und monochromatischen Quelle beleuchtet wird. Mit dem Wellenvektor $\vec{k} = (k_x, k_y, k_z)$ lässt sich die in z-Richtung einfallende ebene Elektronenwelle schreiben als:

$$\psi_0(\vec{r}) = \exp[2\pi i k_z z] \quad (3.20)$$

Beim Durchgang durch die Probe wird diese Welle in Amplitude und Phase moduliert. Die an der Austrittsebene der Probe erhaltene Objektwelle (*exit wave function*, EWF) lässt sich schreiben als Kugelwelle:

$$\psi_e(\vec{r}) = \psi_0 \cdot a(\vec{r}) \exp[i\varphi(\vec{r})] \quad (3.21)$$

wobei der Amplitudenfaktor $a(\vec{r})$ die Absorption innerhalb der Probe beschreibt und der Phasenfaktor $\exp[i\varphi(\vec{r})]$ die durch das innere Potential des Präparates hervorgerufene Phasenschiebung enthält. Setzt man reine Phasenobjekte voraus (*phase object approximation*, POA), die keinerlei Absorption bewirken, kann der Amplitudenfaktor vernachlässigt werden und es ergibt sich:

$$\psi_e(\vec{r}) = \psi_0 \exp[i\varphi(\vec{r})] \quad (3.22)$$

Unter der Voraussetzung eines schwachen Phasenobjektes (*weak-phase object approximation*, WPOA) ist die Phasenschiebung $\varphi \ll 1$ und die Exponentialfunktion kann in einer Taylor-Reihe entwickelt werden:

$$\psi_e(\vec{r}) \approx \psi_0 \left(1 + i\varphi(\vec{r}) - \frac{\varphi^2}{2} + \dots \right) = \psi_0 + i\psi_s \quad (3.23)$$

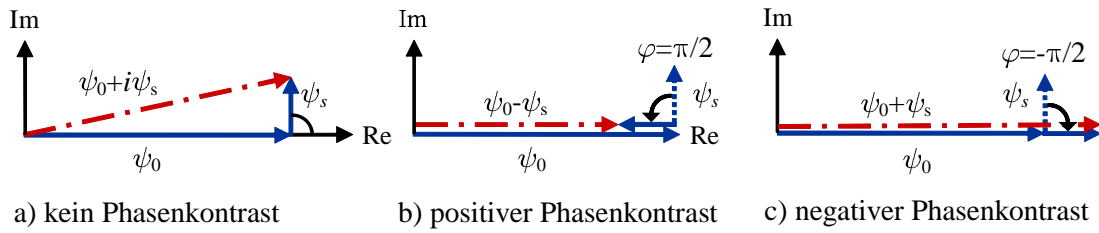


Abbildung 3.5: Beim Durchgang der Elektronenwelle durch ein schwaches Phasenobjekt ist die gestreute Welle ψ_s in erster Bornscher Näherung um $\pi/2$ in der Phase geschoben. (a) Da sich die transmittierte Welle $\psi_0 + \psi_s$ und die ursprüngliche Welle ψ_0 betragsmäßig kaum unterscheiden, ist der Kontrast sehr gering. (b,c) Durch Einführen einer zusätzlichen Phasenschiebung von $+\pi/2$ oder $-\pi/2$ durch die abbildende Optik unterscheidet sich der resultierende Vektor (strichpunktiert) deutlich von der einfallenden Welle. Die Phasenschiebung kann teilweise durch Defokussierung erzeugt werden oder durch Verwendung einer Phasenplatte.

Die Wellenfunktion nach dem Durchgang durch das schwache Phasenobjekt lässt sich somit als Summe von ungestreuter ψ_0 und gestreuter Welle ψ_s schreiben. Der gestreute Anteil ist dabei in erster Näherung um $\pi/2$ in der Phase geschoben, was durch den Faktor i zum Ausdruck kommt. Da sich die einfallende Welle und die austretende Objektwelle betragsmäßig nur wenig voneinander unterscheiden, führt die Abbildung eines solchen Objektes im Gaußfokus zu keiner verwertbaren Intensitätsmodulation (s. Abb. 3.5):

$$I(\vec{r}) = |\psi_0(\vec{r}) + i\psi_s(\vec{r})|^2 \approx |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad (3.24)$$

Die registrierte Intensität ist somit an jedem Punkt in der Bildebene gleich, da durch die Bildung des Betragsquadrats die lokal variierende Phasenschiebung, die die Probe hervorruft, unberücksichtigt bleibt. Bei der hochauflösenden Abbildung von Phasenobjekten wird daher durch Ausnutzung der phasenschiebenden Wirkung der sphärischen Aberration und des Defokuswertes eine zusätzliche Phasenschiebung von $\pi/2$ generiert, die zu einer im Bild sichtbaren Intensitätsmodulationen führt:

$$I(\vec{r}) = |\psi_0(\vec{r}) - \psi_s(\vec{r})|^2 < |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad (3.25)$$

Dies wird als *positiver Phasenkontrast* bezeichnet. Beträgt die Phasenschiebung $3\pi/2$ oder $-\pi/2$, so ergibt sich für die Intensität:

$$I(\vec{r}) = |\psi_0(\vec{r}) + \psi_s(\vec{r})|^2 > |\psi_0(\vec{r})|^2 \quad (3.26)$$

was als *negativer Phasenkontrast* bezeichnet wird. Der Einfluss der sphärischen Aberration und des Defokus auf die Phasenschiebung bei der Abbildung wird wellenoptisch durch die Aberrationsfunktion χ beschrieben. Ihre Analyse für unterschiedliche Defokuswerte im nächsten Abschnitt zeigt, dass eine konstante Phasenschiebung von $\pi/2$ nicht gleichzeitig für alle Raumfrequenzen erreicht werden kann.

3.4 Defokus-Phasenkontrast

In seiner Veröffentlichung von 1949 beschrieb Scherzer die Anwendung des Phasenkontrastverfahrens, das Zernike zuvor in der Lichtoptik eingeführt hatte, zur Abbildung von dünnen Proben in der Elektronenmikroskopie [Sch49]. Er leitete einen optimalen Wert für den Defokus ab, den *Scherzerfokus*, um zusammen mit der fest vorgegebenen und großen sphärischen Aberration des Mikroskops die Wirkung eines $\lambda/4$ -Plättchens zu erzielen. Unter diesen Abbildungsbedingungen ergibt der Defokus zusammen mit der sphärischen Aberration der Objektivlinse eine raumfrequenzabhängige Phasenschiebung zwischen dem gestreuten und ungestreuten Anteil der Objektwellenfunktion, der zu einer kontrastreichen Abbildung im Hellfeld führt. Der so erzeugte Phasenkontrast hängt bei gegebenem Defokus- und Öffnungsfehlerkoeffizienten jedoch von der Strukturgröße bzw. der zugehörigen Raumfrequenz ab und wird durch die *Phasenkontrasttransferfunktion* (*phase contrast transfer function*, PCTF) beschrieben:

$$\text{PCTF}(k) = 2 \sin \chi(k) = 2 \sin \left[\frac{\pi}{2} (C_s \lambda^3 k^4 + 2\Delta f \lambda k^2) \right] \quad (3.27)$$

Sie gibt den Kontrastwert der Phaseninformation in Abhängigkeit der Raumfrequenz an. Da es sich bei der PCTF um eine Sinusfunktion handelt, gehen Komponenten mit niedrigen Raumfrequenzen, die gerade bei biologischen Strukturen von großem Interesse sind, prinzipiell verloren bzw. werden stark gedämpft (s. Abbildung 3.6). Zwischen den Übertragungslücken in der Umgebung der Nullstellen werden die Objektdetails abwechselnd mit positivem und negativem Kontrast übertragen (Kontrastumkehr), was zu Artefakten führt. Der größtmögliche Bereich der Informationsübertragung ist der Bereich vor der ersten Nullstelle, welcher als *Scherzerband* bezeichnet wird. Da der Verlauf der PCTF durch Änderung der Defokussierung beeinflusst werden kann, wird der Defokuswert in Abhängigkeit des abzubildenden Objektes und der Zielsetzung der Beobachtung gewählt. Besitzt die Probe charakteristische Strukturen oder Periodizitäten wird der Defokus so gewählt, dass die zugehörigen Raumfrequenzen im Zentrum des ersten Übertragungsbandes liegen. Im HRTEM wählt man den *Scherzerfokus*, um ein möglichst breites Übertragungsband zu erhalten, dessen obere Grenzfrequenz möglichst hoch liegt. Dieser lässt sich aus Gleichung 3.27 herleiten. Das Minimum der Funktion $\chi(k)$ liegt dort, wo die erste Ableitung als Funktion von k verschwindet:

$$\Delta f + C_s \lambda^2 k_0^2 = 0 \Rightarrow k_0 = \sqrt{\frac{-\Delta f}{C_s \lambda^2}} \quad (3.28)$$

Die Phasenschiebung im Minimum beträgt:

$$\chi(k_0) = \frac{\pi}{2} \left(\frac{\Delta f^2}{C_s \lambda} - \frac{2\Delta f^2}{C_s \lambda} \right) = -\frac{\pi}{2} \frac{\Delta f^2}{C_s \lambda} \quad (3.29)$$

Die gewünschte Phasenschiebung von $-\pi/2$, bei der die PCTF bei -2 ($\sin \chi = -1$)

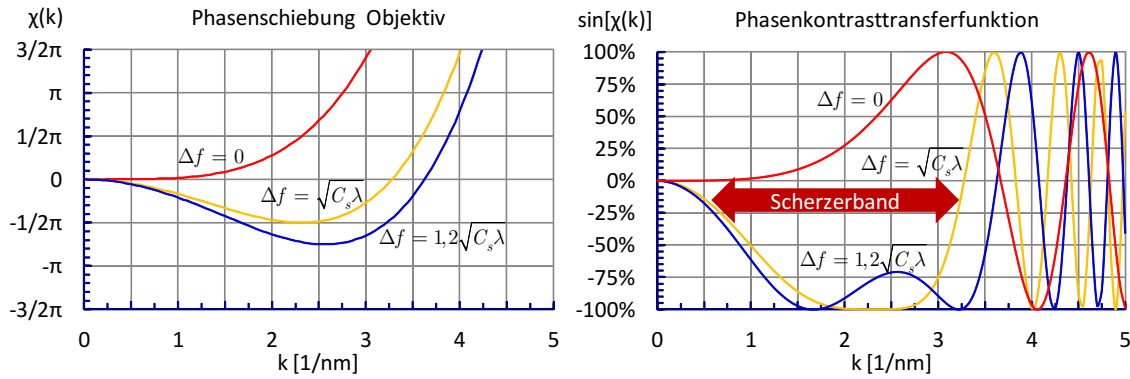


Abbildung 3.6: Phasenschiebung $\chi(k)$ (links) und Phasenkontrasttransferfunktion $\sin(\chi(k))$ (rechts) berechnet nach Gleichung 3.27 für $C_s=2,2\text{mm}$, $E=200\text{kV}$ und unterschiedliche Defokuswerte Δf . Für den wichtigen Fall des Scherzerfokuss verläuft die Übertragungsfunktion der Phase in einem breiten Raumfrequenzbereich, dem Scherzerband, optimal (rechtes Bild, Pfeil). Die Anwesenheit von Nullstellen in der PCTF führt zu Lücken im übertragenen Spektrum. Raumfrequenzen, die sich außerhalb des ersten Scherzerbandes befinden, werden zum Teil mit umgekehrtem Vorzeichen übertragen (Kontrastumkehr).

verläuft, ergibt sich also für folgenden Defokuswert, dem *Scherzerfokus*³:

$$\Delta f_{\text{Scherzer}} = \sqrt{C_s \lambda} \quad (3.30)$$

Dieser Wert wird als „1 Scherzer“ bezeichnet. Aus Abbildung 3.6 ist ersichtlich, dass im Gaußfokus ($\Delta f = 0$) bei niedrigen und hohen Raumfrequenzen nur wenig Phasenkontrast übertragen wird. Der Gaußfokus lässt sich daher durch Minimierung des sichtbaren Kontrastes einer dünnen amorphen Folie finden.

Durch einen noch größeren Unterfokus (*extended Scherzer defocus*) lässt sich das Übertragungsband erweitern. Bereits 1949 wurde von Scherzer [Sch49] und später auch von Cowley [Cow75] unter Annahme eines idealen Punktstreuers bei axialer Beleuchtung der folgende Wert vorgeschlagen:

$$\Delta f_{\text{Sch}} = \sqrt{\frac{4}{3} C_s \lambda} \approx 1,2 \sqrt{C_s \lambda} \quad (3.31)$$

Bei diesem Wert kommt es allerdings innerhalb des Scherzerbandes zu einem lokalen Minimum, das bei der Definition nach 3.30 nicht auftritt. Die im Bereich des Minimums liegenden Frequenzen werden noch mit 70% übertragen. Das breite Übertragungsband weist bis zu einer Raumfrequenz von

$$k_p = 1,51 C_s^{-1/4} \lambda^{-3/4} \quad (3.32)$$

keine Nullstellen auf. Dieser Wert wurde allgemein als Optimum anerkannt [Spe88]. Der Reziprokwert der ersten Nullstelle k_p der PCTF definiert die *Punktauflösung*

³Es wurde vorgeschlagen, die Definition nach 3.30 und 3.33 als generalisierte Koordinaten mit den Einheiten Scherzer (Sch) und Glaser (Gl) zu verwenden [Haw80]. Dabei ist $1 \text{ Sch} = \sqrt{C_s \lambda}$ und $1 \text{ Gl} = \sqrt[4]{C_s \lambda^3}$

$$d_p = 0,66 (C_s \lambda^3)^{1/4} \quad (3.33)$$

und wird im Abschnitt 4.3.2 besprochen. Die Punktauflösung entspricht dem maximal interpretierbaren Bereich der übertragenen Raumfrequenzen. Für Raumfrequenzen größer als k_p oszilliert die PCTF stark, was zu einer partiellen Kontrastumkehr führt.

Als Folge der sphärischen Aberration ist die Bildintensität, die von einem Objektpunkt ausgeht, über einen Bereich verteilt, dessen Radius abhängig ist vom Gradienten der Aberrationsfunktion χ im Bereich der Raumfrequenzen bis zum Informationslimit k_{info} (*Kontrastdelokalisierung*) :

$$r = \max \left\{ \left| \frac{\partial \chi}{\partial k} \right| \right\}, [0, k_{\text{info}}] \quad (3.34)$$

Die Delokalisierung im Bild kann minimiert werden, wenn statt des Scherzerfokus der *Lichte-Fokus* Δf_L gewählt wird [Lic91]:

$$\Delta f_L = \frac{3}{4} C_s \lambda^2 k_{\text{info}}^2 \quad (3.35)$$

Im Gegensatz zum Scherzerfokus, der optimale Kontrastübertragung bis zur Punktauflösung k_p ermöglicht, erlaubt der Lichte-Defokus eine minimale Delokalisierung bis zum Informationslimit k_{info} . In der Nähe der Nullstellen befindliche Raumfrequenzen werden nicht übertragen. Für die höheren Raumfrequenzen lassen sich Defokusserien anfertigen, gefolgt von einer numerischen Rekonstruktion der Objektphase [Coe92, Kir84]. Hierzu wird eine Serie von Bildern von derselben Probenstelle bei unterschiedlichen Defokuswerten aufgenommen. Dadurch liegen die übertragenen Frequenzbänder bei jeder Aufnahme in einem anderen Bereich. Die Strahlenbelastung der Probe und die Anforderungen an die Langzeitstabilität des Mikroskops hinsichtlich Probenposition und Abbildungsbedingungen sind dadurch höher als bei der normalen Hellfeldabbildung.

Der Scherzerfokus ist für die Abbildung biologischer Objekte keine ideale Lösung, da durch die sinusförmige Kontrastübertragung niedrige Raumfrequenzen nicht oder nur in geringem Maße zum Bild beitragen. Eine noch stärkere Defokussierung führt zwar zu einer Verschiebung des übertragenen Bandes zu niedrigeren Raumfrequenzen, bedingt jedoch auch eine Verringerung der Bandbreite und eine Verschiebung der ersten Nullstelle der PCTF. Ein weiterer gravierender Nachteil dieses Konzeptes, der sich insbesondere für die Hochoauflösungsmikroskopie heute als relevant erweist, ist die schlechte Punktauflösung im Vergleich zum erzielbaren Informationslimit. Dieser Umstand kann durch Korrektur des Öffnungsfehlers der Objektivlinse verbessert werden, da hiermit die Punktauflösungsgrenze an das Informationslimit herangebracht wird. Dem Informationsverlust bei niedrigen Raumfrequenzen kann damit jedoch nicht entgegenwirkt werden. Erst durch den zusätzlichen Einsatz einer Phasenplatte, die zu einer kosinusförmigen PCTF führt, lässt sich eine optimale Kontrastübertragung sowohl von niedrigen als auch hohen Raumfrequenzen ermöglichen.

Kapitel 4

Bildentstehung im HRTEM

Zum weiteren Verständnis der Problematik bei der Abbildung schwacher Phasenobjekte ist eine detaillierte Beschreibung des Abbildungsprozesses im HRTEM erforderlich. Die Bildentstehung im TEM kann nur durch die Berücksichtigung der Wellennatur des Elektrons hinreichend beschrieben werden. Elektronen interagieren mit dem Objekt durch elektrostatische Potentiale, was zur Konsequenz hat, dass die Wechselwirkung von der Primärenergie der einfallenden Elektronen, der chemischen Zusammensetzung der Probe, ihrer Dicke und der Orientierung zum Strahl abhängt. Die Elektronenwelle wird dabei in Amplitude und Phase moduliert. Die Wechselwirkung der bildgebenden Elektronen muss mit Hilfe quantenmechanischer Formalismen beschrieben werden. Die durch die Linsen erzeugten makroskopischen Felder variieren nur unmerklich im Bereich der durch die Beschleunigungsspannung gegebenen Elektronenwellenlänge. Die Beschreibung der Elektronenbewegung durch die Säule kann daher im Rahmen der geometrischen Optik erfolgen.

Im Gegensatz dazu ist die Beschreibung der Änderung der Felder beim Durchlaufen der Probe deutlich komplexer. Die Berücksichtigung von Beugungsphänomenen und damit der Wellennatur geschieht im Rahmen der semiklassischen Wentzel-Kramers-Brioullin-Näherung (WKB-Näherung). Dabei gilt es, zwischen elastischer und inelastischer Streuung zu unterscheiden. Bei der elastischen Streuung bleibt der quantenmechanische Zustand des Objekts unverändert. Die Beschreibung der Probe kann folglich durch ein statisches Streupotential erfolgen, ohne Berücksichtigung von inneren Freiheitsgraden. Im Gegensatz dazu ändert sich bei der inelastischen Wechselwirkung der Zustand des Objekts, was verbunden ist mit einem Energie-transfer zwischen gestreuten Elektronen und der Probe. Die Interaktion zwischen den Strahlelektronen und der Materie ist in der Regel stark, hervorgerufen durch die Coulomb-Wechselwirkung. Dies führt dazu, dass die etablierten Näherungen, wie erste Bornsche Näherung oder POA (*phase object approximation*), in den meisten Fällen der elektronenoptischen Abbildung nicht mehr zutreffend sind. Die Abbildung im TEM wird dann dominiert durch Elektronen, die der Mehrfachstreuung unterliegen. Die Ausnahme hiervon sind dünne amorphe Folien, bestehend aus leichten Elementen, wie sie die Mehrzahl biologischer Proben darstellt. Sie verändern lediglich die Phase der Elektronenwelle, nicht jedoch deren Amplitude. Daher kann im Rahmen der Näherung für schwache Phasenobjekte (WPOA) die Wirkung der

Probe als Modulation der Wellenfunktion mit dem zweidimensionalen Potential der Probe beschrieben werden.

4.1 Lineare Übertragungstheorie

Die Abbildung im TEM lässt sich unter gewissen Voraussetzungen im Rahmen der Übertragungstheorie linearer Systeme beschreiben. Diese erfüllen das *Superpositionsprinzip*, d. h. die Reaktion des Systems auf eine Linearkombination von Eingangssignalen entspricht stets der entsprechenden Linearkombination der einzelnen Ausgangssignale. Weiterhin sind diese Systeme *translationsinvariant*. Die Veränderung des Eingangssignals um einen Wert Δ führt zu einer Änderung des Ausgangssignals um denselben Wert. Die Anwendung der linearen Übertragungstheorie auf elektro-optische Systeme geht auf Hawkes [Haw73] und Hanszen [Han73] zurück. Das Mikroskop wird in dieser Betrachtung als Übertragungssystem für die zwei Informationsträger (Kanäle) *Objektamplitude* a und *Objektphase* φ der Objektaustrittswelle beschrieben. Idealerweise wird bei der Abbildung die Objektamplitude in die Bildamplitude und die Objektphase in die Bildphase übertragen, sodass durch Auswertung der Bildwelle die Objektwelle bestimmt werden kann. Durch den Einfluss der Abbildungsfehler kommt es jedoch zu einem Übersprechen zwischen diesen Kanälen, sodass Amplituden- und Phaseninformation nicht getrennt übertragen werden, sondern vermischt sind, was die Interpretation der Bildinformation erschwert. Da die Objektivlinse mit ihren Aberrationen das Übertragungsverhalten wesentlich bestimmt, werden die nachfolgenden Zwischen- und Projektivlinsen vernachlässigt und das Mikroskop auf eine Linse reduziert.

4.1.1 Abbildung ohne Linsenfehler

Für die folgende Betrachtung sei angenommen, dass die Probe mittels einer punktförmigen und monochromatischen Elektronenquelle beleuchtet wird, welche sich quantenmechanisch durch eine zeitunabhängige ebene Welle beschreiben lässt:

$$\psi_0(\vec{r}) = e^{i\vec{k}\vec{r}} \quad (4.1)$$

Dabei ist \vec{r} der Ortsraumvektor mit den Komponenten (x, y) und \vec{k} der Vektor des reziproken Raumes mit den Komponenten (k_x, k_y) . Die Annahme einer ebenen Welle gestattet die Reduzierung auf zwei Dimensionen. Die Beschreibung der Abbildung durch das Linsensystem des TEMs folgt dann der Abbeschen Theorie des Lichtmikroskops und gliedert sich in vier Schritte [Ber04]:

1. Beugung der Elektronen am Objekt: Beim Durchgang durch die Probe wird Elektronenwelle in Amplitude und Phase moduliert. Für die Objektwellenfunktion $\psi_o(\vec{r})$ unmittelbar an der Austrittsfläche der Probe (*exit wave function*, EWF) lässt sich schreiben:

$$\psi_o(\vec{r}) = a(\vec{r}) e^{i\varphi(\vec{r})} \quad (4.2)$$

wobei $a(\vec{r})$ die Amplitude und $\varphi(\vec{r})$ die Phasenschiebung ist. Die Objektwellenfunktion beinhaltet somit alle Information über die Probe.

2. Propagation der Welle durch die Objektivlinse und Fokussierung in der hinteren Brennebene: Für eine ideale dünne Linse erscheint in der hinteren Brennebene das Fraunhofersche Beugungsbild (Objektspektrum) $S_o(\vec{k})$, das sich aus der Fourier-Transformation \mathcal{F} der Objektwellenfunktion ergibt.

$$S_o(\vec{k}) := \mathcal{F}[\psi_o(\vec{r})] = \int_{-\infty}^{\infty} \psi_o(\vec{r}) \cdot e^{2\pi i \vec{k} \vec{r}} d\vec{r} \quad (4.3)$$

Die Komponenten des zweidimensionalen Vektors \vec{k} im reziproken Raum k_x und k_y lassen sich über die halben Streuwinkel u und v in x - und y -Richtung sowie die Wellenlänge ausdrücken:

$$k_x = (2 \sin u) / \lambda, \quad k_y = (2 \sin v) / \lambda \quad (4.4)$$

Für die im TEM verwendeten hochenergetischen Elektronen ist es ausreichend, sich auf Kleinwinkelstreuung zu beschränken, also nur paraxiale Strahlen zu betrachten, deren Streuwinkel selten 10^{-1} rad übersteigt. Über die Koordinaten in der hinteren Brennebene erhält man eine Relation für die Raumfrequenz:

$$k_x = \frac{x}{\lambda f_{\text{Obj}}}, \quad k_y = \frac{y}{\lambda f_{\text{Obj}}} \quad (4.5)$$

Mit der Brennweite der Objektivlinse f_{Obj} .

3. Modulation des Fourier-Spektrums: Die Berücksichtigung der Einflüsse von Aberrationen auf die Bildübertragung kann durch Aufmultiplizieren einer entsprechenden Funktion, der Kontrasttransferfunktion (vgl. Abschnitt 4.1.2), berücksichtigt werden. Voraussetzung hierfür ist die *Isoplanasie* der Abbildung, d. h. die Übertragungseigenschaften des Systems sind unabhängig von der lateralen Position. Die Wirkung einer Objektivblende oder einer Phasenplatte zur Kontraststeigerung geschieht auf ähnliche Weise.
4. Interferenz der modifizierten Beugungswellen: Durch inverse Fourier-Transformation erhält man die Bildwelle:

$$\psi_b(\vec{r}) = \mathcal{F}^{-1} \left[S(\vec{k}) \right] = \mathcal{F}^{-1} [\mathcal{F}[\psi_o(\vec{r})]] = \psi_o(-\vec{r}/M) \quad (4.6)$$

Es werden in der Regel stets die objektbezogenen Koordinaten angegeben, d. h. der in 4.6 enthaltene Ortsvektor bezieht sich auf ein gegenüber der Objektebene verdrehtes Koordinatensystem, dessen Längenmaßstab um den Vergrößerungsfaktor M der Abbildung größer ist. Die registrierte Intensität ist gegeben durch das Betragsquadrat der Wellenfunktion:

$$I(\vec{r}) = |\psi_b(\vec{r})|^2 = |a(\vec{r})|^2 \quad (4.7)$$

Bei der Abbildung durch eine ideale Linse haben Änderungen der Phase im Objekt keine Auswirkungen auf die Intensitätsverteilung. Die in der Objektwelle enthaltene Phaseninformation geht vollständig verloren.

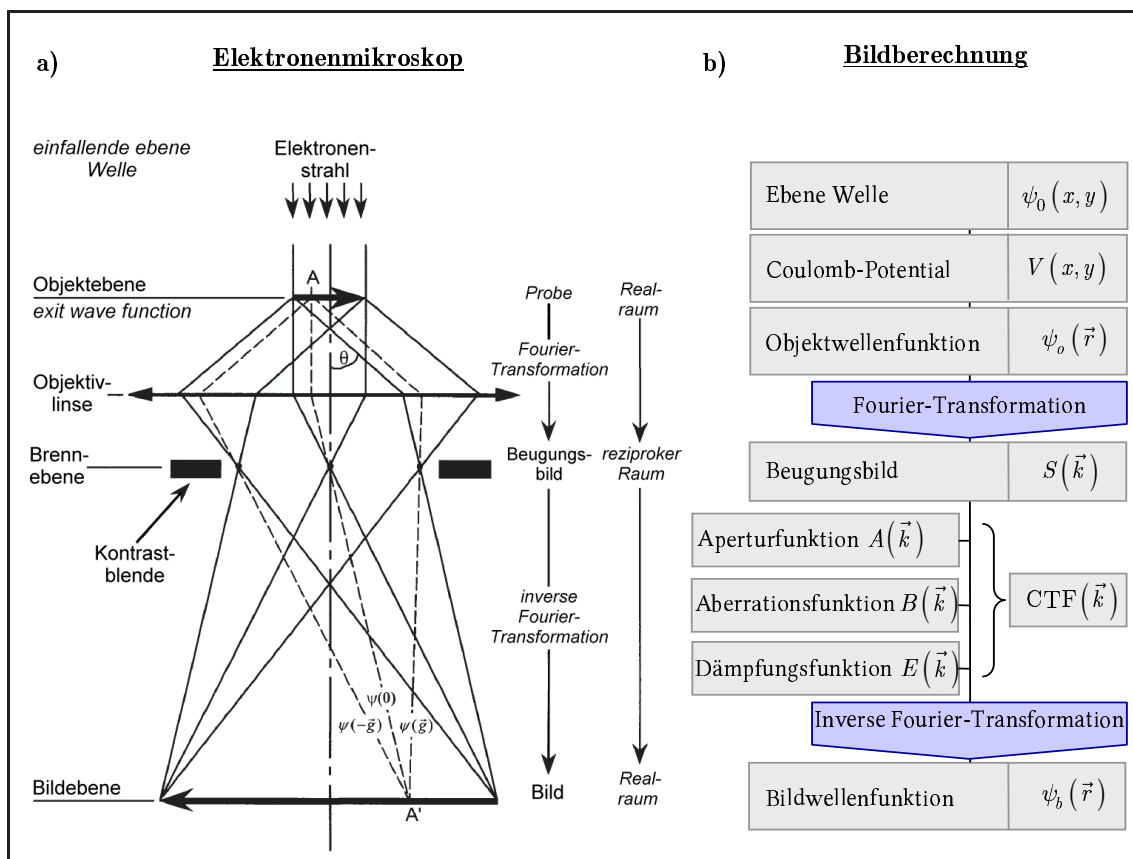


Abbildung 4.1: Bildentstehung im HRTEM in der Betrachtungsweise der linearen Übertragungstheorie. (a) Der einfallende parallele und kohärente Elektronenstrahl wird durch die Netzebene der kristallinen Probe in der Objektebene der Objektivlinse gebeugt (Beugungswinkel θ). In der hinteren Brennebene werden die einzelnen Beugungsordnungen überlagert und führen zu einem Beugungsbild. (b) Die Beschreibung der bei der Abbildung auftretenden Fehler erfolgt im reziproken Raum durch die Kontrasttransferfunktion CTF, die sich aus dem Produkt der Aperturfunktion $A(k)$, der Aberrationsfunktion $B(k)$ und der Dämpfungsfunktion $E(k)$ ergibt. Der Übergang von der hinteren Brennebene in die Bildebene wird beschrieben durch die inverse Fourier-Transformation. Da die Beleuchtung als kohärent angenommen wurde, ist der Bildpunkt A' das Ergebnis der Interferenz der vom Objekt A ausgehenden Kugelwellen.

4.2 Abbildung mit partieller Kohärenz

4.2.1 Contrast Transfer Function (CTF)

In den bisherigen Betrachtungen wurde ein perfekt monochromatischer Strahl (zeitliche Kohärenz) vorausgesetzt, und eine Beleuchtung mit ebenen Wellen angenommen (punktförmige Quelle, räumliche Kohärenz). Die Abbildung der Objektwelle unter diesen Bedingungen wird als kohärente Abbildung bezeichnet, die wirksamen Abbildungsfehler des Objektivs als kohärente Aberrationen. Die punktförmige, monochromatische Quelle stellt eine Idealisierung dar, denen selbst Feldemissionsquellen nicht entsprechen. Die Emission erfolgt stets aus einem räumlich ausgedehnten Bereich. Um ausreichend Intensität für kurze Belichtungszeiten zu erhalten (Probendrift) wird außerdem eine ausreichend große Beleuchtungsapertur benötigt. Beides führt zu einer limitierten räumlichen Kohärenz.

Der Elektronenstrahl besitzt aufgrund des thermischen oder thermisch unterstützten Emissionsprozesses eine endliche Energiebreite, die durch die elektrostatische Wechselwirkung der Elektronen untereinander (*Boersch-Effekt*) zusätzlich vergrößert werden kann. Zusammen mit den Instabilitäten der Beschleunigungsspannung und des Objektivlinsenstroms führt dies zu einer Fokusänderung und einer begrenzten zeitlichen Kohärenz.

Die Kontrasttransferfunktion unter Berücksichtigung dieser Effekte gliedert sich in drei Terme:

$$\text{CTF}(\vec{k}) = A(\vec{k}) B(\vec{k}) E(\vec{k}) \quad (4.11)$$

Der Einfluss der Kontrastblende in der hinteren Brennebene der Objektivlinse beschreibt die *Aperturfunktion*:

$$A(\vec{k}) = \begin{cases} 1 & \text{für } |\vec{k}| \leq r/\lambda f_{\text{Obj}} \\ 0 & \text{für } |\vec{k}| > r/\lambda f_{\text{Obj}} \end{cases} \quad (4.12)$$

Dabei ist r der Radius der Blende und f_{Obj} die Brennweite der Objektivlinse. Die Aperturfunktion ist übertragungstechnisch gesehen ein Tiefpass und führt im Gegensatz zur Aberrationsfunktion zu einem echten Informationsverlust. Aufgrund der Aperturfunktion geht ein Teil der Objektinformation bei der Abbildung unwiederbringlich verloren.

Der Einfluss von statischen Linsenfehlern (sphärische Aberration, Defokus, Astigmatismus und axiale Koma) führt zu den *kohärenten Aberrationen*. Die Berücksichtigung der kohärenten Bildfehler in der CTF erfolgt durch das Aufmultiplizieren einer zusätzlichen Phasenschiebung in der Beugungsebene, der *Aberrationsfunktion* (*aberration function*):

$$B(\vec{k}) = \exp[i\chi(\vec{k})] = \cos \chi(\vec{k}) + i \sin \chi(\vec{k}) \quad (4.13)$$

Der Realteil der Aberrationsfunktion wird als *Amplitudenkontrasttransferfunktion* (*amplitude contrast transfer function*, ACTF) bezeichnet, der Imaginärteil als *Pha-*

senkontrasttransferfunktion (phase contrast transfer function, PCTF). Der Phasenfaktor

$$\chi(\vec{k}) = \frac{2\pi}{\lambda} W(u\lambda, v\lambda) \quad (4.14)$$

beinhaltet die *Wellenaberrationsfunktion* W (wave aberration function). Die in der Aberrationsfunktion W zusammengefassten Linsenfehler verzerren die Wellenfront im Fourierraum und limitieren so die Auflösung im Ortsraum, ohne dabei Objektinformation zu zerstören. Die Wellenaberration wirkt dabei wie eine komplizierte Phasenplatte. Näheres hierzu findet sich in Kapitel 5.

Inkohärente Abbildungsfehler, die durch *zeitabhängige Störungen* verursacht werden (Instabilität der Hochspannung und Objektivstromquelle sowie Probedrift) dämpfen den Transfer hoher Raumfrequenzen und können nach Frank [Fra73] im Fourierraum durch Multiplikation mit einer Einhüllenden beschrieben werden. Dabei lässt sich jeder Störgröße eine eigene Dämpfungsfunktion zuordnen. Die resultierende Dämpfungsfunktion setzt sich aus folgenden Beiträgen zusammen:

$$E(\vec{k}) = E_{\Delta}(k) E_s(k) E_d(\vec{k}) E_v(\vec{k}) E_D(\vec{k}) \quad (4.15)$$

Diese werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt.

4.2.2 Zeitliche Kohärenz und chromatische Enveloppe

Die Brennweite magnetischer Rundlinsen hängt neben der Erregung auch von der Energie der Elektronen ab. Die Energiebreite der Elektronen ist durch das Zusammenwirken mehrere Faktoren begründet: die intrinsische Energiebreite der Elektronenquelle, Schwankungen in der Beschleunigungsspannung und des Linsenstromes sowie dem Energieverlust, der sich aus der Wechselwirkung der Elektronen mit der Probe ergibt. Die registrierte Intensität erhält man durch die gewichtete Integration über alle möglichen Defokuswerte [Rei89]:

$$\overline{I(\vec{r})} = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\vec{r}, D_z + \Delta f) j_c(\Delta f) d(\Delta f) \quad (4.16)$$

Die Größe D_z entspricht dem Mittelwert der Defokussierung, Δf der Variation der Defokuswerte um D_z und $j_c(\Delta f)$ der Gewichtung der Variation von Δf . Dabei ist die Defokusvariation Δf eine Gaußfunktion

$$j_c(\Delta f) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta} \exp\left[-\ln 2 \left(\frac{2\Delta f}{\Delta}\right)^2\right] \quad (4.17)$$

die mit der Halbwertsbreite Δ (*defocus spread*)

$$\Delta = C_c \cdot f_r \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta U_0}{U_0}\right)^2 + 4 \left(\frac{\Delta I_{\text{Obj}}}{I_{\text{Obj}}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{U_0 e}\right)^2} \quad (4.18)$$

gewichtet wird [Kee08]. C_c ist der Koeffizient der chromatischen Aberration der Objektivlinse, ΔU_0 ist die Instabilität der Hochspannung U_0 und ΔI_{Obj} ist die Instabilität des des Objektivlinsenstromes I_{Obj} . Die Größen $\Delta U_0/U_0$ und $\Delta I/I$ werden als Effektivwerte (*root mean square*, rms) angegeben¹. f_r der relativistische Korrekturfaktor:

$$f_r = \frac{1 + eU_0/E_0}{1 + eU_0/2E_0}, \text{ mit } E_0 = 511 \text{ keV} \quad (4.19)$$

Der Korrekturfaktor beträgt 1,16 für 200 kV und 1,23 für 300 kV. Die chromatische Aberration C_c skaliert direkt mit der Brennweite der Objektivlinse und ist etwas größer als C_s . Die Größe ΔE ist die intrinsische Energiebreite der Elektronenquelle, angegeben als Effektivwert, welcher sich wie folgt aus der gemessenen Halbwertsbreite (*full width at half maximum*, FWHM) ergibt [Völ99]:

$$\Delta E = \Delta E_{\text{FWHM}}/\sqrt{8 \ln 2} \approx \Delta E_{\text{FWHM}}/2,35 \quad (4.20)$$

Wie man aus 4.18 ersehen kann, ist der Einfluss der Schwankungen der Objektivquelle viermal so groß wie der der Hochspannung. Ausgehend davon lässt sich für ein FEG-TEM folgende Abschätzung vornehmen: Bei einer Hochspannungs- und Stromstabilität von $1 \cdot 10^{-6}$ (rms) und einer Energiebreite von $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,5 \text{ eV}$ bei 200 kV, welche einem Effektivwert von $1,06 \cdot 10^{-6}$ entspricht, ergibt sich $\Delta = C_c 2,87 \cdot 10^{-6}$. Die Verbesserung der Stabilität der Hochspannung auf $0,5 \cdot 10^{-6}$ führt zu einem Wert von $\Delta = C_c 2,69 \cdot 10^{-6}$, was einer Änderung von lediglich 6,3% entspricht. Wird stattdessen die Stabilität der Objektivquelle auf $0,5 \cdot 10^{-6}$ (rms) verbessert, während die Stabilität der Hochspannung bei $1 \cdot 10^{-6}$ (rms) bleibt, ergibt sich $\Delta = C_c 2,05 \cdot 10^{-6}$, was einer deutlichen Verbesserung von 28,6% entspricht. Damit kann festgehalten werden, dass die Verwendung einer hochstabilen Objektivquelle bei einem FEG-TEM einen weitaus größeren Gewinn bei der Auflösung bringt als eine weitere Verbesserung der Stabilität der Hochspannung.

Nach Fejes [Fej77] lässt sich bei einer gaußförmigen Verteilung der Fokusvariation die chromatische Enveloppe der zeitlichen Kohärenz schreiben als [Jon93, Kee92]:

$$E_{\Delta}(k) = \exp \left[-\frac{1}{2} (\pi \lambda \Delta)^2 k^4 \right] \quad (4.21)$$

4.2.3 Räumliche Kohärenz und Enveloppe der Quelle

Quellen mit endlicher Ausdehnung lassen sich als Anordnung mehrerer unabhängiger Punktquellen auffassen. Aufgrund der endlichen Ausdehnung der Elektronenquelle wird das Objekt somit durch ebene Wellen beleuchtet (Wellenvektor \vec{k}), die einen Winkel θ_c mit der optischen Achse einschließen. Für die Gesamtheit aller Einstrahl-

¹Die Angabe des Objektivlinsenstroms ist zulässig, solange die Linse außerhalb der Sättigung betrieben wird, d. h. die erzeugte magnetische Induktion B_{Obj} proportional ist zum erzeugenden Strom I_{Obj} . Bei Betrieb nahe der Sättigung muss daher strenggenommen das Verhältnis $2\Delta B/B$ eingesetzt werden.

richtungen wird nach [Rei89] eine Gaußverteilung angesetzt:

$$j_s(\vec{k}) = \frac{\lambda^2 \ln 2}{\pi \theta_c^2} \exp \left[-\ln 2 \left(\frac{\vec{k} \lambda}{\theta_c} \right)^2 \right] \quad (4.22)$$

Typische Werte von θ_c sind 0,7 mrad für LaB₆-Emitter und 0,1 mrad für eine FEG [Jon93]. Analog zu den Betrachtungen bei der zeitlichen Kohärenz lässt sich der Einfluss der endlichen Beleuchtungsapertur durch eine Enveloppe darstellen [Jon93]:

$$E_\alpha(k) = \exp \left[-\left(\frac{\pi \alpha}{\lambda} \right)^2 \left(\frac{\partial \chi(k)}{\partial k} \right)^2 \right] = \exp \left[-\left(\frac{\pi \alpha}{\lambda} \right)^2 (C_s \lambda^3 k^3 + \lambda \Delta f k)^2 \right] \quad (4.23)$$

Im Gegensatz zur chromatischen Dämpfung E_Δ ist die Enveloppe der Quelle E_α abhängig vom Defokus. Für negative Fokuswerte (Unterfokus) wird der erste Term mit C_s teilweise durch den zweiten Term, der vom Fokus abhängt, kompensiert. Der Fokus kann so gewählt werden, dass der zweite Klammerausdruck verschwindet, um so das größtmögliche übertragbare Band zu erreichen. Die Enveloppe E_α stellt damit kein absolutes Limit für die Informationsübertragung dar. Die Kombination aus E_Δ und E_α kann wie die Wirkung zweier virtueller Blenden verstanden werden, wovon eine konstant ist, die andere sich mit dem Defokuswert ändert.

4.2.4 Enveloppe der Probendrift

Das in der Endbildebene registrierte Bild ist in seiner Intensität abhängig von der Beobachtungszeit t_{exp} . Während dieser Integrationszeit bewegt sich die Probe bei einer als linear angenommenen Drift v um die Strecke $\Delta \vec{s} = \vec{v} t_{\text{exp}}$. Es gilt dann für die Enveloppe der Probendrift [Jon93]:

$$E_d(\vec{k}) = \text{sinc}(\pi \vec{k} \Delta \vec{s}) \approx \exp \left[-\frac{1}{6} (\pi \vec{k} \Delta \vec{s})^2 \right] \quad (4.24)$$

Für kleine Werte der Probendrift kann die sinc-Funktion durch eine Gaußfunktion angenähert werden.

4.2.5 Enveloppe der Probenvibration

Neben einer lateralen Probendrift ist noch eine vertikale Probenvibration zu berücksichtigen, deren Frequenz groß gegenüber der inversen Belichtungszeit angenommen wird (typischerweise >1 Hz). Mit der Amplitude η lässt sich die Enveloppe der Probenvibration schreiben als:

$$E_v(\vec{k}) = J_0(2\pi \vec{k} \vec{\eta}) \approx \exp \left[-(\pi \vec{k} \vec{\eta})^2 \right] \quad (4.25)$$

Hierbei ist $J_0(x)$ die Besselfunktion der nullten Ordnung, die bei kleinen Vibrationsamplituden durch eine Gaußfunktion angenähert werden kann.

4.2.6 Enveloppe des Detektors

Die Bildaufnahme im TEM erfolgt mittels Film oder heute vorwiegend über einen CCD-Detektor, dessen Übertragungseigenschaften durch eine eigene PSF charakterisiert ist. Da dem Sensor ein Szintillator (YAG oder Phosphor) vorgeschaltet ist, der die Umwandlung von Elektron in Photonen übernimmt, wird die Verwaschungsfunktion wesentlich durch die Streuung im Szintillator beeinflusst. Die Detektorenluppe $E_d(k)$ spielt insbesondere bei den heute zur Speicherung von Bildern verwendeten CCD-Sensoren, die typischerweise mit Pixelarrays von $1k \times 1k$ bis $4k \times 4k$ arbeiten, eine nicht zu vernachlässigende Rolle. Die sich ergebende Enveloppe wird bestimmt durch die Delokalisation der Information beim Abbildungsprozess und die endliche Pixelgröße.

Der durch den Sensor erfasste Bildbereich sei definiert durch folgendes zirkuläre Fenster mit Radius R_w :

$$\varpi(\vec{R}) = \begin{cases} 1 & \text{für } |\vec{R}| \leq R_w \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (4.26)$$

Das übertragene Raumfrequenzband ist dann durch die Forderung gegeben:

$$\left| \frac{\partial \chi(\vec{k})}{\partial \vec{k}} \right| = |C_s \lambda^3 \vec{k}^3 + \Delta f \lambda \vec{k}| \geq R_w = a C_s \lambda^3 k_{max}^3 \quad (4.27)$$

Dabei variiert die Größe a von 0,25 beim optimalen Fokus bis zum Wert 1 im Gaußfokus. Die Größe des Detektors ist durch die Zahl N und die Größe der Pixel D bestimmt: $R_w = 1/2ND$. Unter der Annahme, dass der verwendete Szintillator zu einer gaußförmigen Aufweitung des Elektronenstrahls führt, lässt sich das Sampling in der hinteren Brennebene durch folgende Enveloppe beschreiben [Jon93]:

$$E_D(\vec{k}) = \exp \left[-\frac{1}{2} \pi^2 k^2 D^2 \right] = \exp \left[-2\pi^2 \frac{(a C_s \lambda^3 k^4)^2}{N^2} \right] \quad (4.28)$$

4.3 Auflösung

Das gebräuchlichste Auflösungskriterium in der Optik geht auf Rayleigh [Ray96] zurück und wurde erstmals von Scherzer auf elektronenoptische Systeme angewendet. Es spezifiziert den minimalen Abstand d , den zwei selbstleuchtende Punktquellen von gleicher Helligkeit haben können, um bei der Abbildung durch ein beugungsbegrenztes optisches System noch als getrennt wahrgenommen zu werden (*Punktauflösung*). Die Beugung führt dazu, dass ein Punktobjekt als Scheibchen abgebildet wird. Die Intensitätsverteilung lässt sich durch die *Airy-Funktion* beschreiben:

$$w(r_i) = \left(\frac{2J_1(x)}{x} \right)^2, \text{ mit } x = 2\pi r_i \left(\frac{\alpha_i}{\lambda} \right) \quad (4.29)$$

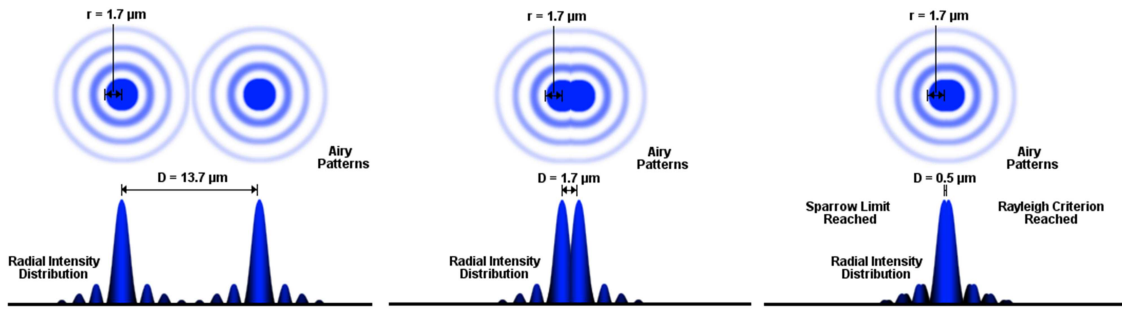


Abbildung 4.3: Anschauliche Darstellung der Abbildung von zwei Lichtpunkten durch ein fehlerfreies Linsensystem für $\lambda = 440 \text{ nm}$ und $NA = 0,15$ [Oly10]. Links: Der Abstand ist groß. Die zwei Punkte werden gut aufgelöst. Das Rayleigh-Kriterium ist erfüllt. Mitte: Grenzwert nach Rayleigh-Kriterium ist erreicht. Beide Maxima sind noch durch eine Einsattelung, in der die Intensität auf 73,5 Prozent zurückgeht, getrennt. Rechts: Rayleigh-Kriterium ist nicht mehr erfüllt. Beide Punkte sind miteinander verschmolzen.

mit der Besselfunktion erster Ordnung $J_1(x)$ und dem Beleuchtungshalbwinkel α_i . Das *Rayleigh-Kriterium* [Ray96] besagt, dass die zwei Punkte sich noch voneinander unterscheiden lassen, wenn das Maximum der Helligkeitsverteilung des ersten Punktes mit dem ersten Minimum der Helligkeitsverteilung des zweiten Punktes zusammenfällt. In diesem Fall beträgt die Einsattelung zwischen den beiden Intensitätsverteilungen 73,5% der maximalen Intensität und der Abstand entspricht dem Radius des Beugungsscheibchens (s. Abbildung 4.3):

$$d = 0,61 \frac{\lambda}{n \sin \theta} \quad (4.30)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge des verwendeten Lichts, n der Brechungsindex des Mediums zwischen Objekt und Objektiv und θ der halbe Aperturwinkel des Objektivs. Je größer also die *numerische Apertur* $NA = n \sin \theta$ ist, desto besser wird das Auflösungsvermögen $1/d$. Trotz der beim TEM verwendeten hohen Beschleunigungsspannungen von 100 – 400 kV liegt die Auflösung solcher Geräte etwa zwei Größenordnungen über der zugeordneten relativistischen Wellenlängen von 3,7 – 1,6 pm. Die Ursache sind die im vorangegangenen Abschnitt vorgestellten Linsenfehler, die sich im Rahmen der linearen Übertragungstheorie als Dämpfung der Übertragungsfunktion beschreiben lassen. Für die Betrachtung der Abbildung schwacher Phasenobjekte lassen sich insgesamt drei Auflösungskriterien angeben [Kee92], welche in den folgenden Abschnitten behandelt werden.

4.3.1 Linienauflösung

Die *Linienauflösung* (*fringe resolution*, *lattice-plane resolution*) ergibt sich aus der höchsten erkennbaren Raumfrequenz, die in den Beugungsreflexen im Diffraktogramm nachweisbar sind. Bei Anwesenheit dicker Kristalle ist diese Angabe im Vergleich zu den beiden anderen Definitionen zu optimistisch, da die im Diffraktogramm sichtbaren Reflexe nichtlinearen Ursprungs sein können, die bei der doppelten Raumfrequenz des ursprünglichen Reflexes liegen. Abbildung 4.4 zeigt die

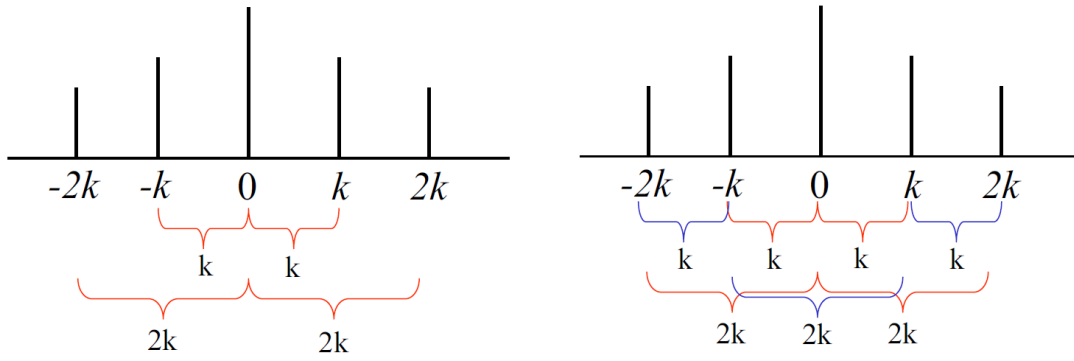


Abbildung 4.4: Illustration der Entstehung des Bildspektrums aus dem Objektspektrum. Während durch die Interferenz der Beugungsordnungen ± 1 und ± 2 mit dem Nullstrahl (linke Seite) Reflexe entstehen, die real vorhandenen Gitterabstände entsprechen (lineare Terme), ergeben sich durch die Interferenzen der Beugungsordnungen ungleich Null untereinander (rechte Seite) zusätzliche Reflexe, die u. U. auf die doppelte Raumfrequenz schließen lassen. Im vorliegenden Beispiel durch Interferenz der Ordnung $+2$ mit -2 .

Entstehung des Bildspektrums aus dem Objektspektrum durch Interferenz der Terme bis zur Ordnung ± 2 . Die im Bildspektrum auftretenden Interferenzterme lassen sich nach der Art ihrer Entstehung in zwei Klassen unterteilen. Die linearen Terme entstehen durch Interferenzen der Beugungsordnungen ± 1 und ± 2 mit dem Nullstrahl, während die nichtlinearen Terme durch Interferenzen zustande kommen, bei denen *keiner* der interferierenden Strahlen der Nullstrahl ist. In der Fourier-Ebene lässt sich dies wie folgt ausdrücken:

$$I(\vec{k}) \approx \sum_{k_1, k_2} \psi(\vec{k}_1) \cdot \psi^*(\vec{k}_2) \quad (4.31)$$

$$I(\vec{k}) \approx \psi(0) \psi^*(-\vec{k}) + \psi(\vec{k}) \psi^*(0) \text{ lineare Terme} \\ + \sum_{k_1 \neq 0, k_2 \neq 0} \psi(\vec{k}_1) \cdot \psi^*(\vec{k}_2) \text{ nichtlineare Terme} \quad (4.32)$$

Die nichtlinearen Terme führen zu Reflexen im Bildspektrum, deren Raumfrequenz doppelt so groß ist, wie die höchste im Objektspektrum auftretende Frequenz, d. h. zusätzliche Reflexe, die auf die halben Gitterabstände schließen lassen (*half-spacings*).

4.3.2 Punktauflösung

Die interpretierbare Bildauflösung, die als *Strukturauflösung*, *Punktauflösung* oder *Scherzerauflösung* d_p (*point resolution*, *structure image resolution*) bezeichnet wird, ist nur im Scherzerfokus

$$\Delta f_{\text{Sch}} = \sqrt{\frac{4}{3} C_s \lambda} \quad (4.33)$$

definiert, wenn die PCTF das größtmögliche Raumfrequenzband ohne Kontrastumkehr umschließt. Sie entspricht der inversen Raumfrequenz, bis zu der Details ohne Kontrastumkehr linear übertragen werden und ist gegeben über die erste Nullstelle der PCTF:

$$k_p = \sqrt{\frac{2\Delta f}{C_s \lambda^2}} = \sqrt{\frac{2\sqrt{4/3}C_s \lambda}{C_s \lambda^2}} = \sqrt{\frac{2\sqrt{4/3}}{C_s^{-1/2} \lambda^{-3/2}}} \quad (4.34)$$

Der Kehrwert von k_p ergibt die Punktauflösung:

$$d_p = 0,66 C_s^{1/4} \lambda^{3/4} \quad (4.35)$$

Alle im Objekt auftretenden Raumfrequenzen bis zu diesem Wert werden ohne Kontrastumkehr durch das Mikroskop in das Bild übertragen.

4.3.3 Informationslimit

Analog zur Lichtoptik und dem Konzept der Modulationstransferfunktion (MTF) kann die Auflösung in einem elektronenoptischen System über die höchste übertragbare Raumfrequenz definiert werden. Die eingeschränkte Kohärenz bei der Abbildung, hervorgerufen durch Instabilitäten (limitieren die zeitliche Kohärenz) und Strahlkonvergenz (limitiert die räumliche Kohärenz), führt zu einer Dämpfung des Kontrasttransfers, die beschrieben wird durch die Dämpfungsenveloppen der PCTF. Durch die Dämpfung geht der im Bild enthaltene Kontrast bei hohen Raumfrequenzen ins Rauschen über. Daher lässt sich zwar durch Bildverarbeitung Information jenseits der Punktauflösung extrahieren, aber nicht über das Limit hinaus, dass durch die Dämpfungsenveloppen definiert wird. Die lineare Bildauflösung oder das *Informationslimit* (*information resolution limit*) gibt die höchste Raumfrequenz an, die linear vom Amplitudenspektrum in das Intensitätsspektrum übertragen wird. Das Informationslimit d_{info} für eine einzelne Aufnahme ist definiert durch die Raumfrequenz k_{info} , bei der die dominante Dämpfungsenveloppe im Scherzerfokus zu einem Kontrast von $1/e^2$ führt [Hum81, Jon93, Kee92] und das Signal somit nicht mehr vom Rauschgrund unterschieden werden kann:

$$E_{\Delta, \alpha, d, v, D}(k_{\text{info}}) = \frac{1}{e^2} \approx 13,5\% \quad (4.36)$$

Setzt man diesen Wert in Gl. 4.21 und Gl. 4.23 ein, so ergibt sich als Informationslimit aufgrund der chromatischen Enveloppe folgender Ausdruck [Jon93]:

$$d_{\Delta} = \frac{1}{|k|_{\Delta}} = \sqrt{\frac{\pi \lambda \Delta}{2}} \quad (4.37)$$

und als Informationslimit der Enveloppe der Quelle [Jon93]:

$$d_{\alpha} = \left(\frac{6\pi a \alpha}{\lambda \sqrt{\ln s}} d_p^4 \right)^{1/3} \quad (4.38)$$

Dabei ist $\ln s = 2$, wenn als Rauschgrenze $1/e^2$ angesetzt wird, und der Parameter a variiert von 0,25 für den Scherzerfokus bis zum Wert 1 für den Gaußfokus. Für das

durch den Detektor verursachte Infolimit erhält man [Jon93]:

$$d_D = \left(\frac{12\sqrt{2}\pi a}{N\sqrt{\ln s}} d_p^4 \right)^{1/4} \quad (4.39)$$

Somit limitiert der Detektor die Auflösung durch seine begrenzte Zahl von Bildpunkten. Das Informationslimit ist wie bei der Quelle mit der Punktauflösung d_p verknüpft. Beim Vergleich der Einflüsse der Dämpfungsfunktionen auf das Informationslimit (vgl. Abbildung 4.5) zeigt sich, dass bei Geräten mit FEG ($\alpha = 0,1$ mrad) der chromatische Anteil dominiert, also keine Raumfrequenz jenseits des in 4.37 angegebenen Limits übertragen wird. Die lineare Informationsübertragung wird ausschließlich durch die chromatische Enveloppe limitiert und deshalb bei der Angabe des Infolimits als alleiniges Kriterium verwendet. Als Beispiel für die eingeführten Auflösungs begriffe wurde das *One-Ångstrom Microscope* (OÅM) des National Center for Electron Microscopy (NECEM, Berkeley) gewählt. Mit den Mikroskopparametern [Kee04, Zie02]:

$$\begin{array}{ll} U_0 = 300 \text{ kV} & \Delta E = 0,85 \text{ eV(rms)} \\ C_s = 0,60 \text{ mm} & \theta_c = 0,1 \text{ mrad} \\ C_c = 1,45 \text{ mm} & \Delta U/U = 0,25 \text{ ppm} \\ \lambda = 1,97 \cdot 10^{-12} \text{ m} & \Delta I/I = 0,3 \text{ ppm(rms)} \end{array}$$

kann mithilfe des Programms `ctfExplorer` [Sid02] die Übertragungsfunktion erstellt werden. Dieses Programm enthält für die geläufigsten TEMs alle relevanten Werte wie Hochspannungsstabilität, Energiebreite und Stabilität des Objektivlin senstroms und lässt zusätzlich die manuelle Eingabe der einzelnen Parameter zu. Setzt man die Werte für das OÅM ein, so erhält man für die erreichbare Punktauflö sung (extended Scherzer) einen Wert von $1,7 \text{ \AA}$, für das Informationslimit (unter der Voraussetzung der dominierenden chromatischen Enveloppe) einen Wert von $0,78 \text{ \AA}$.

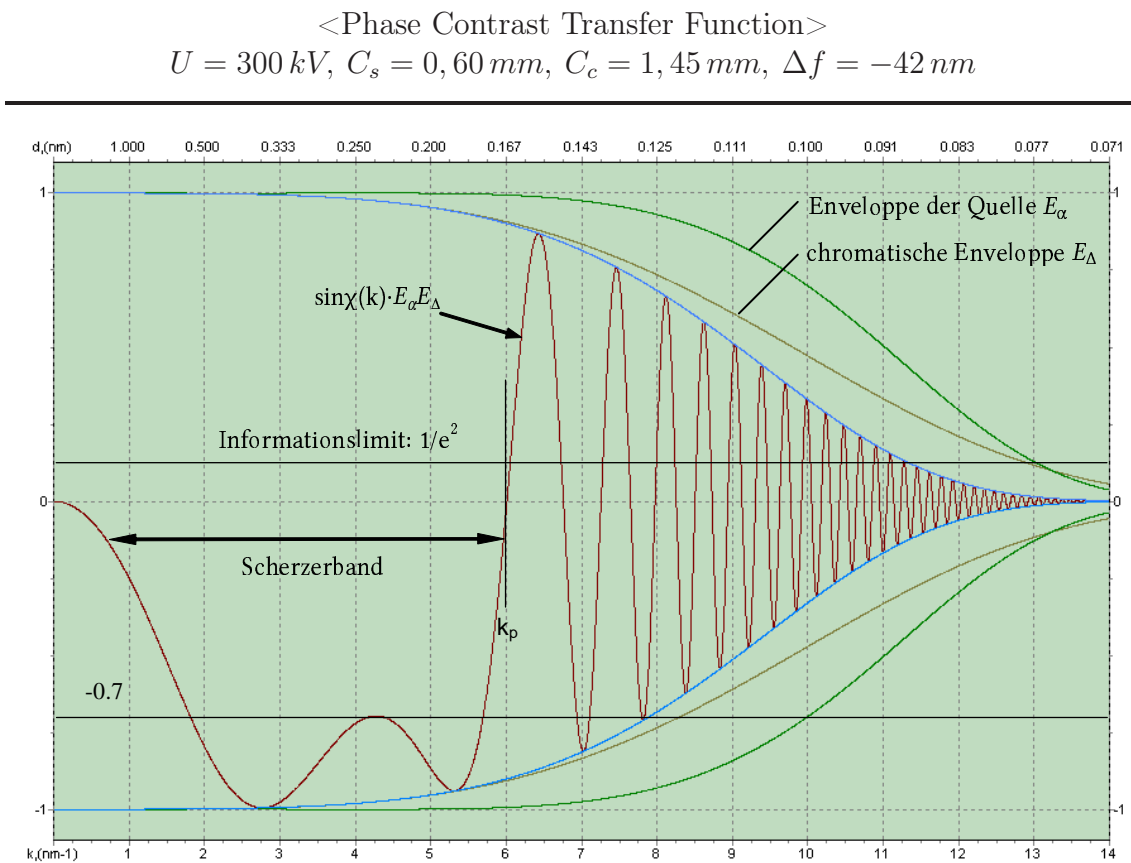


Abbildung 4.5: Die PCTF für den Scherzerfokus bei $\Delta f = -42 \text{ nm}$. Die oben angegebenen Daten beziehen sich auf das One-Ångström Microscope (OÅM) am National Center for Electron Microscopy (NCEM, Berkeley), einem Philips CM300/FEG/UT mit Feldemitter (FEG) und ultra-twin (UT) Objektivlinse. Die horizontale Achse gibt die Raumfrequenz k in nm^{-1} (untere Achse) und die Strukturgröße d in nm an. Die mit k_p bezeichnete erste Nullstelle liegt bei $1,7 \text{ \AA}$. Der Schnittpunkt der Enveloppe mit den horizontalen Linien bei $\pm 1/e^2$ definiert das Informationslimit und liegt bei $0,78 \text{ \AA}$.

Kapitel 5

Wellenaberrationen im HRTEM

Mit den heute erreichbaren Auflösungen im Subangström-Bereich ist die Beschreibung der Objektivlinse über die sphärische und chromatische Aberration nicht mehr ausreichend. Ihr Einfluss auf die Abbildung kann durch die Verfügbarkeit von C_s -Korrektoren und Monochromatoren minimiert werden und es dominieren dann Fehler höherer Ordnung. Um die Abbildung vollständig zu charakterisieren und Kriterien für das Auflösungsvermögen abzuleiten, muss eine Reihe von zusätzlichen Aberrationen berücksichtigt werden. Der Kontrasttransfer wird dabei über einen wellenoptischen Formalismus beschrieben, die aberrationsbehaftete Abbildung durch eine verallgemeinerte Wellenübertragungsfunktion.

5.1 Beschreibung von Wellenaberrationen

Bei der Abbildung eines Punktobjektes an der Stelle (x, y) in der Objektebene durch eine ideale Linse entsteht in der Beugungsebene eine sphärische Wellenfront, die sich in der konjugierten Bildebene zu einem Bildpunkt zusammenzieht. Damit wird jeder Punkt in der Objektebene in einen Punkt in der Bildebene übertragen. Die Aberrationen von realen Linsen deformieren jedoch die Wellenfront, sodass es zu einer Verwaschung des Bildes des Punktobjektes kommt. Diese ist deutlich ausgeprägter, als die durch Beugung hervorgerufenen Einflüsse. Die *Wellenaberrationsfunktion* (*wave aberration function*) $W(x, y, u, v,)$ gibt dabei die Abweichung (axialen Abstand) der realen Wellenfront vom idealen sphärischen Verlauf in der Beugungsebene an (s. Abb. 5.1) und kann in Exponenten von der Position (x, y) des Objektes und den Beugungswinkeln (u, v) , d. h. der Position in der Beugungsebene (x_d, y_d) , ausgedrückt werden. Die Beugungswinkel sind gegeben durch $u = x_d/f$ und $v = y_d/f$. Bei hohen Vergrößerungen ist der untersuchte Probenbereich so klein, dass jede Änderung von W als Funktion von Termen mit (x, y) vernachlässigt werden kann (*isoplanatische Näherung*). Dadurch verbleiben nur noch die axialen Aberrationen und es ergibt sich für die Taylor-Entwicklung der Funktion W bis zur vierten Ordnung in der Notation nach Typke und Dierksen [Typ95] der folgende Ausdruck:

$$W(x, y) = c_1x + c_2y$$

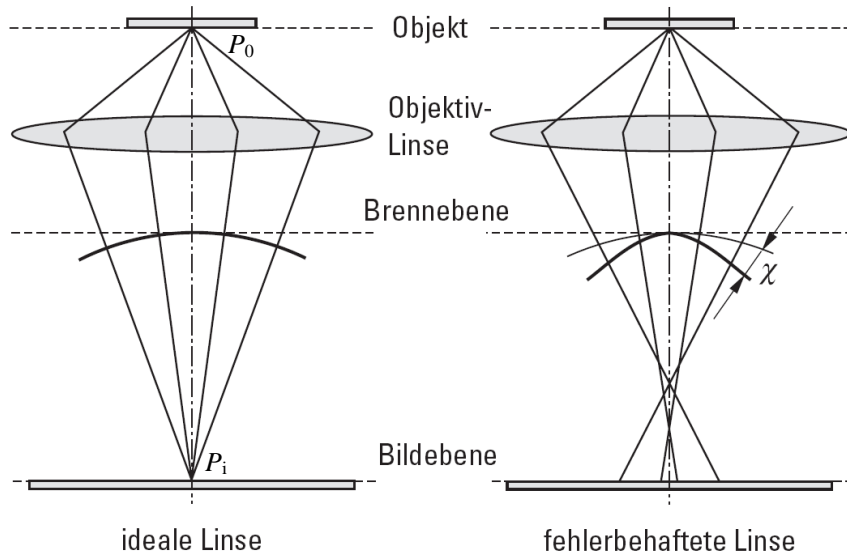


Abbildung 5.1: Darstellung der Wellenfrontaberration (aus [Ber04]). Bei einem idealen elektronenoptischen System wird die vom Objektpunkt P_0 ausgehende Kugelwelle zu einer im Bildpunkt P_i zusammenlaufenden Kugelwelle verändert (links). Das Vorliegen von Linsenfehlern führt dazu, dass diese auslaufende Wellenfront asphärisch ist. Die Wellenaberrationsfunktion misst die axiale Abweichung vom idealen Verlauf der Kugelwelle in Abhängigkeit der Koordinaten (x, y) des Punktes P_0 in der Objektebene.

$$\begin{aligned}
 &+c_3x^2 + c_4xy + c_5y^2 \\
 &+c_6x^3 + c_7x^2y + c_8xy^2 + c_9y^3 \\
 &+c_{10}x^4 + c_{11}x^3y + c_{12}x^2y^2 + c_{13}xy^3 + c_{14}y^4
 \end{aligned} \quad (5.1)$$

Für die weitere Betrachtung ist die Einführung eines komplexen Beugungswinkels $\omega = u + iv$, komplexer Koeffizienten $A_0, A_1, A_2, A_3, B_2, B_3$ und reeller Koeffizienten C_1 und C_3 sinnvoll, da sich die Terme so besser zusammenfassen lassen. Es ergibt sich:

$$\begin{aligned}
 W(\omega) = \operatorname{Re} \{ &A_0\omega^* + \frac{1}{2}A_1\omega^{*2} + \frac{1}{2}C_1\omega^*\omega + \frac{1}{3}A_2\omega^{*3} + \frac{1}{3}B_2\omega^{*2}\omega \\
 &+ \frac{1}{4}A_3\omega^{*4} + \frac{1}{4}B_3\omega^{*3}\omega + \frac{1}{4}C_3\omega^{*2}\omega^2
 \end{aligned} \quad (5.2)$$

Terme mit geradzahigen Potenzen in ω werden als *symmetrische* Aberrationen bezeichnet, solche mit ungeradzahigen Potenzen als *antisymmetrische* Aberrationen.

Der Ausdruck für W lässt sich in kartesischen Koordinaten ausdrücken, wobei $A_0 = A_{0r} + iA_{0i}$ usw. ist:

$$\begin{aligned}
 W(x, y) = &A_{0r}u + A_{0i}v \\
 &+ \frac{1}{2}A_{1r}(u^2 - v^2) + \frac{1}{2}A_{1i}2uv + \frac{1}{2}C_1(u^2 + v^2) \\
 &+ \frac{1}{3}A_{2r}(u^3 - 3uv^2) + \frac{1}{3}A_{2i}(3u^2v - v^3) \\
 &+ \frac{1}{3}B_{2r}(u^3 + uv^2) + \frac{1}{3}B_{2i}(u^2v + v^3)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{1}{4} A_{3r} (u^4 - v^4 - 6u^2v^2) + \frac{1}{4} A_{3i} 4 (u^3v - uv^3) \\
& + \frac{1}{4} B_{3r} (u^4 - v^4) + \frac{1}{4} B_{3i} 2 (u^3v + uv^3) + \frac{1}{4} C_3 (u^2 + v^2)^2 \quad (5.3)
\end{aligned}$$

Durch Einführung von Polarkoordinaten wird die azimutale Symmetrie der einzelnen Terme ersichtlich. Es gilt: $\omega = r e^{i\phi}$, $A_0 = |A_0| e^{i\phi_{11}}$, $A_1 = |A_1| e^{2i\phi_{22}}$, $A_2 = |A_2| e^{3i\phi_{33}}$, $B_2 = |B_2| e^{i\phi_{31}}$, $A_3 = |A_3| e^{4i\phi_{44}}$, $B_3 = |B_3| e^{2i\phi_{42}}$.
Damit ergibt sich:

$$\begin{aligned}
W(r, \phi) = & |A_0| r \cos(\phi - \phi_{11}) \\
& + \frac{1}{2} |A_1| r^2 \cos 2(\phi - \phi_{22}) + \frac{1}{2} C_1 r^2 \\
& + \frac{1}{3} |A_2| r^3 \cos 3(\phi - \phi_{33}) + \frac{1}{3} |B_2| r^3 \cos(\phi - \phi_{31}) \\
& + \frac{1}{4} |A_3| r^4 \cos 4(\phi - \phi_{44}) + \frac{1}{4} |B_3| r^4 \cos 2(\phi - \phi_{42}) + \frac{1}{4} C_3 r^4 \quad (5.4)
\end{aligned}$$

Der erste Term mit A_0 beschreibt eine lineare Phasenschiebung in der Fourier-Ebene und bestimmt somit der Bildposition. Bei C_1 handelt es sich um den *Defokus* (Überfokus positiv). Die Multiplikation mit $2\pi/\lambda$ führt von der Abstandsfunktion W zur bekannten Phasenschiebung $\pi (C_1/\lambda) \theta^2$. C_3 ist die *sphärische Aberration dritter Ordnung*, welche üblicherweise auch mit C_s bezeichnet wird. Der mit A_1 verknüpfte Term ist der *axiale* oder *zweizählige Astigmatismus*, A_2 der *dreizählige Astigmatismus*. Der Term mit B_2 beschreibt die *axiale Koma*, A_3 den *vierzähligen Astigmatismus* und B_3 den *axialen Sternfehler*. Da der Term mit B_2 lediglich ein vom Azimut abhängiges Maximum besitzt, ist es möglich, durch geeignete Wahl der optischen Achse (d. h. Ursprung von u und v) diesen zum Verschwinden zu bringen (vgl. Kapitel 5.2.1).

In Tabelle 5.1 sind die dreidimensionalen Plots von W als Funktion von u und v für jede Aberration wiedergegeben. Zusätzlich sind die Wellenaberrationen in der rechten Spalte als Phasenplatte dargestellt. Die Phasenplatte visualisiert die Phasenschiebung χ der Wellenfunktion als Funktion der Raumfrequenz. Als Beschleunigungsspannung wurde 200 kV angenommen und ein C_s von 1,2 mm. Damit ergibt sich ein Scherzerfokus von 54,9 nm und für die Achsenskalierung $G/\text{Sch}=6,76$ mrad.

Ideale Linsen weisen lediglich Terme mit C_1 und C_3 auf. Die anderen Terme treten erst bei Abweichungen von der Rotationssymmetrie oder schlechter Justierung des Mikroskops auf. Die Bedeutung der Aberrationen nimmt mit zunehmender Ordnung ab. Erst für die Hochauflösungsmikroskopie müssen auch höhere Ordnungen korrigiert werden. Bis in die späten 70er Jahre hinein wurden lediglich der Defokus (C_1), der zweizählige Astigmatismus (A_1) und die sphärische Aberration (C_3) als relevant für die Bildentstehung im Elektronenmikroskop erachtet. Erst 1978 konnte Zemlin zeigen, dass vorwiegend die axiale Koma (B_2) für Anomalien in den Diffraktogrammen von stigmatisierten und fokussierten TEMs verantwortlich ist.

5.2 Messung von Aberrationen

Die Analyse der Diffraktogramme von dünnen, amorphen Proben bildet die Grundlage verschiedener Verfahren zur Bestimmung der Aberrationen eines TEMs. Eine frühe Variante geht auf Thon [Tho66] zurück und beschreibt die Messung des Defokuswertes aus der Lage der Ringe im Diffraktogramm. Dieses Verfahren wurde später von Krivanek [Kri76] um die Möglichkeit der Bestimmung von C_s erweitert. Durch Aufnahme einer Fokusserie und Auswertung der berechneten Diffraktogramme bei axialer Beleuchtung konnte die Genauigkeit der C_s -Bestimmung verbessert werden [Coe91]. Erst die Aufnahme von Diffraktogrammen bei unterschiedlichen Kippwinkeln nach Zemlin [Zem78] erlaubt die Messung der Aberrationen höherer Ordnung und bietet Zugriff auf die antisymmetrischen Aberrationen B_2 und A_2 . Die automatisierte Aufnahme und Auswertung dieser Diffraktogramm-Tableaus stellt bei den kommerziell verfügbaren C_s -Korrektoren den technischen Stand dar und erlaubt die Messung und Korrektur der Aberrationen.

Die im vorangegangenen Kapitel vorgestellten Aberrationen lassen sich in zwei Kategorien einteilen. Zum einen die Aberrationen, die gerade Potenzen von den Koordinaten u und v enthalten (Defokus, zweizähliger Astigmatismus, sphärische Aberration), und solche mit ungeraden Potenzen (dreizähliger Astigmatismus, axiale Koma). Die Phasenschiebung, die durch gerade Aberrationen hervorgerufen wird, ist invariant bezüglich einer Vorzeichenänderung des Wellenvektors k . Es gilt also für den symmetrischen Anteil der Aberrationsfunktion:

$$\chi_S(\vec{k}) = \frac{1}{2} [\chi(k) + \chi(-\vec{k})] = \chi_S(-\vec{k}) \quad (5.5)$$

Alle Aberration mit ungeraden Potenzen von u und v führen zu einer antisymmetrischen Phasenschiebung, die beschrieben wird durch den ungeraden Anteil der Aberrationsfunktion:

$$\chi_A(\vec{k}) = \frac{1}{2} [\chi(\vec{k}) - \chi(-\vec{k})] = -\chi_A(-\vec{k}) \quad (5.6)$$

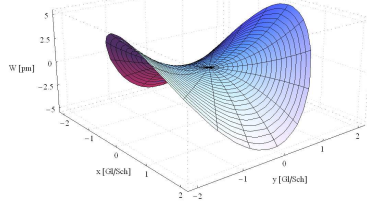
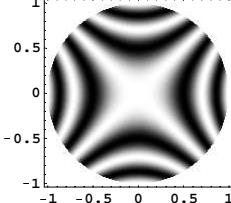
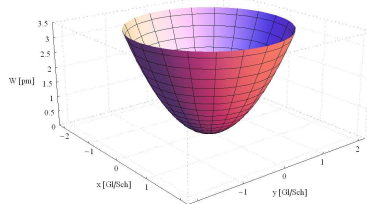
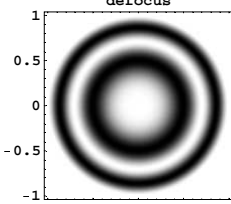
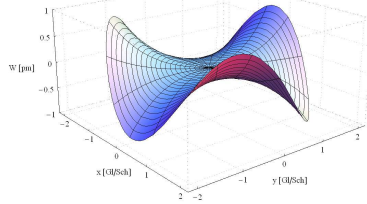
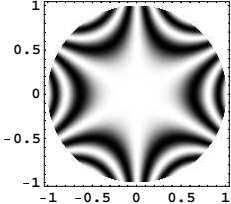
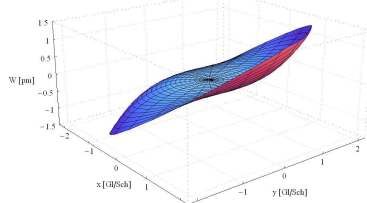
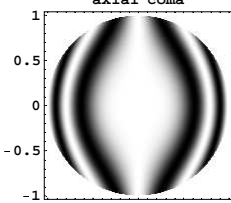
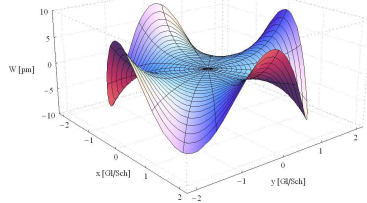
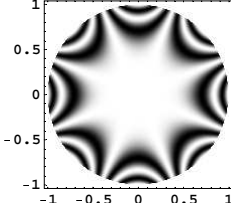
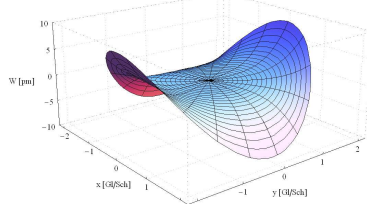
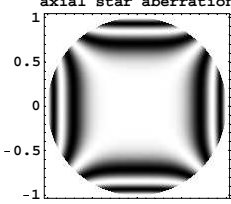
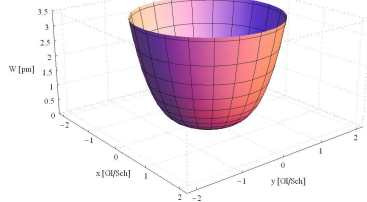
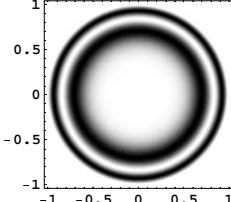
Die Darstellung der Aberrationen als Phasenplatte (s. Tabelle 5.1) verdeutlicht die Symmetrieeigenschaften. Um den Einfluss der Aberrationen auf die Thonschen Ringe im Diffraktogramm einer amorphen Folie nachvollziehen zu können, muss man sich den Abbildungsprozess nochmals verdeutlichen. Die Intensität ist bei der Abbildung schwacher Phasenobjekte gegeben durch:

$$I(\vec{r}) = |1 + \psi_s(\vec{r})|^2 = 1 + \psi_s(\vec{r}) + \psi_s^*(\vec{r}) + |\psi_s(\vec{r})|^2 \quad (5.7)$$

Dabei ist $\psi_s(\vec{r})$ die gestreute Welle in der Bildebene. Der quadratische Term kann bei der Fourier-Transformation vernachlässigt werden, wenn es sich um einen schwachen Streuer handelt. Ebenso lässt sich die Konstante vernachlässigen, da sie nur zu einem hellen Punkt (Delta-Funktion) im Zentrum führt. Als Fourier-Transformierte erhält man dann:

$$\begin{aligned} \mathcal{F}[I(\vec{r})] &= \hat{I}(\vec{k}) = \Psi_S(\vec{k}) + \Psi_S^*(-\vec{k}) \\ &= \Psi_0(\vec{k}) \exp[-i\chi(\vec{k})] + \Psi_0^*(-\vec{k}) \exp[i\chi(-\vec{k})] \end{aligned} \quad (5.8)$$

Tabelle 5.1: Axiale Bildfehlerfiguren und deren simulierte Phasenplatten.

Name	Symbol	azimutale Symmetrie	$W(x, y)$ [pm]	Phasenplatte
Zweizähliger Astigmatismus	A_1 (1 Sch)	2		
Defokus, Überfokus positiv	$C_1, -\Delta f$ (1 Sch)	∞		
Dreizähliger Astigmatismus	A_2 (1 μm)	3		
Axiale Koma	B_2 (2 μm)	1		
Vierzähliger Astigmatismus	A_3 (1 mm)	4		
Axialer Sternfehler	B_3 (1 mm)	2		
Sphärische Aberration	C_3, C_s (1,2 mm)	∞		

Separiert man die Wellenaberration χ in ihren symmetrischen Anteil χ_S und antisymmetrischen Anteil χ_A , so erhält man bei der Abbildung eines schwachen Phasenobjektes, d. h. unter der Voraussetzung der *Friedelsymmetrie*

$$\Psi_0^* \left(-\vec{k} \right) = -\Psi_0 \left(\vec{k} \right)$$

den folgenden Ausdruck:

$$\hat{I} \left(\vec{k} \right) = \Psi_0 \left(\vec{k} \right) \exp \left[-i\chi_A \left(\vec{k} \right) \right] \left\{ -2i \sin \chi_S \left(\vec{k} \right) \right\} \quad (5.9)$$

Das Betragsquadrat der Fourier-Transformierten der Bildintensität wird als *Diffraktogramm*¹ bezeichnet:

$$I_d \left(\vec{k} \right) \equiv \left| \hat{I} \left(\vec{k} \right) \right|^2 = \left| \Psi_0 \left(\vec{k} \right) \right|^2 4 \sin^2 \chi_S \left(\vec{k} \right) \quad (5.10)$$

Die sichtbaren Thonschen Ringe im Diffraktogramm werden moduliert durch den ersten Term (Objektstrukturfaktor) und hängen ausschließlich vom *geraden* Anteil χ_S der Wellenaberrationsfunktion ab. Der antisymmetrische Anteil χ_A , der die Koeffizienten A_0 , A_2 und B_2 enthält, ist in einem einzelnen Diffraktogramm nicht sichtbar, führt aber zu Bildverschiebungen und Änderung der Verzeichnungen, wenn der Beleuchtungswinkel τ variiert. Es ergeben sich hieraus zwei Ansätze zur Messung der Aberrationen. Der erste besteht in der Messung der Bildverschiebung A_0 [Ber80, Kos87, Ros73] und damit des linearen Anteils von χ_A . Der zweite Ansatz nutzt die Formänderungen der Ringe im Diffraktogramm aus und misst damit χ_S . Beide Methoden erfordern die Aufnahme mehrerer Bilder bei unterschiedlichen azimutalen Kippwinkeln der Beleuchtung. Während die erste Methode die entstehende Bildverschiebung für einen bestimmten Kippwinkel über Kreuzkorrelationsprozesse bestimmt und damit empfindlich auf Probendrift reagiert, erfolgt bei der zweiten, von Zemlin vorgeschlagenen Variante die Auswertung der Änderung der Ringstruktur. Durch Messung der Änderung des Defokus C_1 und des Astigmatismus A_1 im Diffraktogramm einer dünnen, amorphen Probe können aller Koeffizienten höherer Ordnung bestimmt werden. Die Vorteile des Verfahrens nach Zemlin liegen in der Unempfindlichkeit gegenüber Probendrift und der Umwandlung der höheren Aberrationen in Aberrationen erster Ordnung. Es werden die relativen Änderungen des zweizähligen Astigmatismus und Defokus in Abhängigkeit der Strahlkippung registriert und die Diffraktogramme der aufgenommenen Bilder entsprechend dem Azimutalwinkel und der Strahlkippung in einem Tableau angeordnet. Die Diffraktogramme bei gekippter Beleuchtung zeigen einen Astigmatismus und Defokus, der sich vom zentralen Diffraktogramm aufgrund der Kippung unterscheidet. Das Tableau als Ganzes sollte idealerweise zentralsymmetrisch sein. Tatsächlich zeigt es aber eine einzählige Symmetrie, welche ein Indiz für das Vorhandensein nicht rotationssymmetrischer (ungerader) Aberrationen ist. Es liegt dann eine axiale Koma und/oder ein dreizähliger Astigmatismus vor. Da das von Zemlin vorgestellte Verfahren der Auswertung von Kipptableaus als Grundlage für die automatisierte Bestimmung der Aberrationskoeffizienten des C_s -Korrektors dient, soll im folgenden Kapitel noch etwas ausführlicher auf die Grundlagen dieser Messmethode eingegangen werden.

¹Statt Diffraktogramm wird häufig auch der Begriff Thonsches Diagramm verwendet, nach F. Thon

5.2.1 Kippung der Beleuchtung

Die Wellenaberrationsfunktion in der in 5.2 angegebenen Form beschreibt die Abweichung von der idealen Wellenfront beim Durchgang des Primärstrahls durch den Ursprung der Beugungsebene. Alle Aberrationskoeffizienten hängen jedoch von der Richtung des Primärstrahls ab. Für die Bestimmung der Aberrationskoeffizienten ist es hilfreich, die Änderung in Abhängigkeit des gewählten Ursprungs zu untersuchen, d. h. festzustellen, wie sich die Wellenaberration ändert, wenn der Strahl die Beugungsebene unter einem Winkel $\tau = t_x + it_y$ passiert.

$$\begin{aligned}
W(\tau + \omega) = \operatorname{Re} \{ & [A_0 + A_1\tau^* + C_1\tau + A_2\tau^{*2} + \frac{1}{3}B_2^*\tau^2 + \frac{2}{3}B_2\tau^*\tau \\ & + A_3\tau^{*3} + \frac{3}{4}B_3\tau^{*2}\tau + \frac{1}{4}B_3^*\tau^3 + C_3\tau^{*2}\tau] \omega^* \\ & + \frac{1}{2} [A_1 + 2A_2\tau^* + \frac{2}{3}B_2\tau + 3A_3\tau^{*2} + \frac{3}{2}B_3\tau^*\tau + C_3\tau^2] \omega^{*2} \\ & + \frac{1}{2} [C_1 + \frac{4}{3}B_2\tau^* + \frac{3}{2}B_3\tau^{*2} + 2C_3\tau^*\tau] \omega^*\omega \\ & + \frac{1}{3} [A_2 + 3A_3\tau^* + \frac{3}{4}B_3\tau] \omega^{*3} \\ & + \frac{1}{3} [B_2 + \frac{9}{4}B_3\tau^* + 3C_3\tau] \omega^{*2}\omega \\ & + \frac{1}{4}A_3\omega^{*4} + \frac{1}{4}B_3\omega^{*3}\omega + \frac{1}{4}C_3\omega^{*2}\omega^2 \} \quad (5.11)
\end{aligned}$$

Durch einen Vergleich mit Gleichung 5.2 lässt sich der neue Ursprung als Funktion neuer Koeffizienten beschreiben:

$$\begin{aligned}
A'_0 &= A_0 + A_1\tau^* + C_1\tau + A_2\tau^{*2} + \frac{1}{3}B_2^*\tau^2 + \frac{2}{3}B_2\tau^*\tau \\ &\quad + A_3\tau^{*3} + \frac{3}{4}B_3\tau^{*2}\tau + \frac{1}{4}B_3^*\tau^3 + C_3\tau^*\tau^2 \\
A'_1 &= A_1 + 2A_2\tau^* + \frac{2}{3}B_2\tau + 3A_3\tau^{*2} + \frac{3}{2}B_3\tau^*\tau + C_3\tau^2 \\
C'_1 &= C_1 + \operatorname{Re} \left\{ \frac{4}{3}B_2\tau^* + \frac{3}{2}B_3\tau^{*2} \right\} + 2C_3\tau^*\tau \\
A'_2 &= A_2 + 3A_3\tau^* + \frac{3}{4}B_3\tau \\
B'_2 &= B_2 + \frac{9}{4}B_3\tau^* + 3C_3\tau \\
A'_3 &= A_3 \\
B'_3 &= B_3 \\
C'_3 &= C_3 \quad (5.12)
\end{aligned}$$

Unter Vernachlässigung von A_3 und B_3 lässt sich der Ausdruck weiter vereinfachen:

$$\begin{aligned}
A'_0 &= A_0 + A_1\tau^* + C_1\tau + A_2\tau^{*2} + \frac{1}{3}B_2^*\tau^2 + \frac{2}{3}B_2\tau^*\tau + C_3\tau^*\tau^2 \\
A'_1 &= A_1 + 2A_2\tau^* + \frac{2}{3}B_2\tau + C_3\tau^2 \\
C'_1 &= C_1 + \operatorname{Re} \left\{ \frac{4}{3}B_2\tau^* \right\} + 2C_3\tau^*\tau \\
A'_2 &= A_2 \\
B'_2 &= B_2 + 3C_3\tau \\
C'_3 &= C_3 \quad (5.13)
\end{aligned}$$

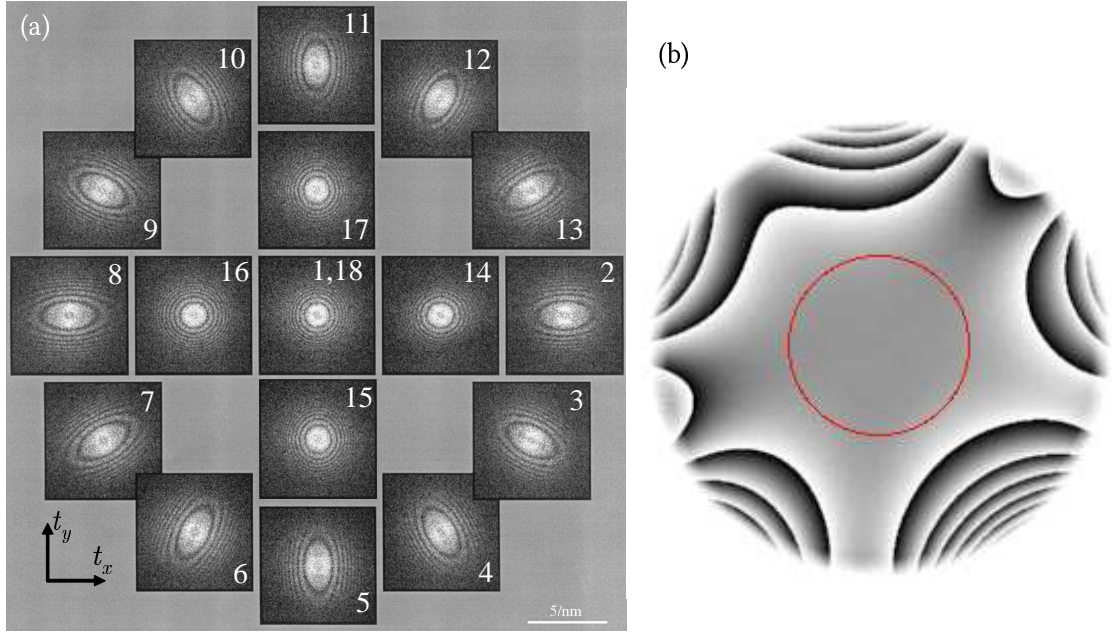


Abbildung 5.2: (a) Beispiel für ein Zemlin-Tableau. Die Anordnung der Diffraktogramme im Tableau entspricht der Größe des Kipp- und Azimutalwinkels. Die Reihenfolge, in der die Bilder aufgenommen wurden, ist durch die Nummern gekennzeichnet. Der maximale Kippwinkel tritt bei den Diffraktogrammen 2-13 auf. Die weiter innen liegenden Diffraktogramme (14-17) entsprechen dem halben maximalen Winkel. Die erste bzw. letzte Aufnahme bildet das zentrale Diffraktogramm und wird bei ungekippter Beleuchtung aufgenommen. (b) Die aus dem Tableau berechnete Phasenplatte. Der Kreis in der Phasenplatte gibt den aberrationsfreien Bereich wieder (aus [Uhl98]).

Aus der ersten Zeile ist ersichtlich, dass die Verschiebung $A'_0 - A_0$ zwischen zwei Bildern, die unter unterschiedlichen Winkeln τ aufgenommen wurden, von allen anderen Aberrationskoeffizienten abhängt. Folglich ist es möglich, diese Koeffizienten durch eine geeignete Anzahl von Kippwinkeln zu messen. Weiterhin lässt sich aus 5.13 ableiten, dass eine Änderung von τ sowohl den Wert von C_1 als auch A_1 beeinflusst, und zwar in Abhängigkeit von der Größe von A_2 , B_2 und C_3 . Damit können über die Auswertung der in den Diffraktogrammen enthaltenen Fehler 1. Ordnung (Defokus und zweizähliger Astigmatismus) die Fehler höherer Ordnung bestimmt werden. Dies entspricht der Methode von Zemlin. In Abbildung 5.2 ist das Zemlin-Tableau, wie man es bei einer amorphen Kohlefolie erhält, dargestellt. Das Ergebnis der Aberrationsbestimmung wird über eine Phasenplatte dargestellt. Sie zeigt die Werte der Aberrationsfunktion für einen kreisförmigen Bereich im Fourierraum um den Ursprung $k = 0$. Eine Änderung im Grauwert bedeutet eine Änderung des Wertes der Aberrationsfunktion um ein ganzzahliges Vielfaches von $\pm\pi/2$. In Abhängigkeit vom Korrekturzustand (d.h. welche Aberrationen dominieren) beträgt der äußere Kippwinkel zwischen 6 und 30 mrad. Aus 5.13 kann gefolgert werden, dass der Kippwinkel

$$\tau_c = -B_2/3C_3 \quad (5.14)$$

die axiale Koma zum Verschwinden bringt. Die so definierte Achse wird daher auch als *komafreie Achse* bezeichnet.

Tabelle 5.2: Wellenaberrationskoeffizienten und die für 200 kV berechnete Obergrenze für ein Infolimit von 0,25 nm und 0,14 nm nach [Uhl98] und zusätzlich für 0,20 nm. Die besonders kritischen Werte zum Erreichen der jeweiligen Auflösung sind fett hervorgehoben.

Koeffizient (Symbol)	$\pi/4$ limit	$\pi/4$ limit für 200 kV bei einem Infolimit von		
		$k_{\text{info}} = 4/\text{nm}$	$k_{\text{info}} = 5/\text{nm}$	$k_{\text{info}} = 7/\text{nm}$
Defokus ($C_1, -\Delta f$)	$\frac{1}{4} (\lambda k_{\text{info}}^2)^{-1}$	6,2 nm	4,0 nm	-2,0 nm
Zweizähliger Astigmatismus (A_1)	$\frac{1}{4} (\lambda k_{\text{info}}^2)^{-1}$	6,2 nm	4,0 nm	2,0 nm
Dreizähliger Astigmatismus (A_2)	$\frac{3}{8} (\lambda^2 k_{\text{info}}^3)^{-1}$	0,93 μm	0,48 μm	0,17 μm
Axiale Koma (B_2)	$\frac{1}{8} (\lambda^2 k_{\text{info}}^3)^{-1}$	0,31 μm	0,16 μm	58 nm
Sphärische Aberration (C_3, C_s)	$\frac{1}{2} (\lambda^3 k_{\text{info}}^4)^{-1}$	0,12 mm	51 μm	13 μm
Vierzähliger Astigmatismus (A_3)	$\frac{1}{2} (\lambda^3 k_{\text{info}}^4)^{-1}$	0,12 mm	51 μm	13 μm
Sternfehler (S_3)	$\frac{1}{8} (\lambda^3 k_{\text{info}}^4)^{-1}$	31 μm	13 μm	3,3 μm
Fünzfähliger Astigmatismus (A_4)	$\frac{5}{8} (\lambda^4 k_{\text{info}}^5)^{-1}$	15 mm	5 mm	0,94 mm
Axiale Koma (B_4)	$\frac{1}{8} (\lambda^4 k_{\text{info}}^5)^{-1}$	3,1 mm	1 mm	0,19 mm
Axialer Dreilappfehler (D_4)	$\frac{1}{8} (\lambda^4 k_{\text{info}}^5)^{-1}$	3,1 mm	1 mm	0,19 mm
Sphärische Aberration (C_5)	$\frac{3}{4} (\lambda^5 k_{\text{info}}^6)^{-1}$	1,8 m	0,48 m	64 mm
Sechszähliger Astigmatismus (A_5)	$\frac{3}{4} (\lambda^5 k_{\text{info}}^6)^{-1}$	1,8 m	0,48 m	64 mm

5.2.2 Auflösung in Abhängigkeit der Einzelfehler

Die in Abschnitt 3.2.1 eingeführte Phasenschiebung χ berücksichtigt in der angegebenen Form lediglich Defokus und sphärische Aberration als phasenschiebende Abbildungsfehler. Der Einsatz von Abbildungskorrektoren macht den Einfluss von C_s jedoch vernachlässigbar und erfordert bei der Abschätzung der erreichbaren Auflösung die Berücksichtigung aller relevanten Abbildungsfehler. In der Lichoptik wurde von Rayleigh [Ray79] gezeigt, dass bei der Abbildung durch eine Linse mit sphärischer Aberration im Gaußschen Fokus der Intensitätsverlust kleiner als 20% ist, wenn die Wellenfront in der Austrittspupille vom idealen sphärischen Verlauf um weniger als $\lambda/4$ abweicht. Ein Intensitätsverlust, der in den meisten Fällen tolerierbar ist. Andere Autoren zeigten, dass sich dieses Kriterium auch auf die restlichen Aberrationen anwenden lässt. Ausgehend vom lichteoptischen Rayleigh-Kriterium, welches einer Phasenschiebung von $\pi/2$ entspricht, erlaubt das am häufigsten angewandte Kriterium für die Auflösung im HRTEM eine Phasenschiebung von $\pi/4$ für jede einzelne Aberration beim Informationslimit k_{info} [Thu96, Uhl98]. In Tabelle 5.2 sind die nach diesem Kriterium abgeleiteten zulässigen Obergrenzen für Aberrationen bis zur fünften Ordnung wiedergegeben.

Kapitel 6

Phasenkontrast-TEM

Bereits seit über 40 Jahren wird angestrebt, die in der Lichtmikroskopie etablierten Techniken des Phasenkontrastverfahrens nach Zernike und des Differential-Interferenzkontrasts (*Differential Interference Contrast*, DIC) nach Nomarski in die Elektronenmikroskopie einzuführen. Das größte Hindernis speziell bei der Betrachtung von biologischen Materialien ist dabei einerseits die geringe Probendicke, die zur Verringerung des inelastisch gestreuten Anteils notwendig ist, zum anderen die niedrige Kernladungszahl der auftretenden Atome (C, H, N, P, S). Sie stellen damit schwache Phasenobjekte (*weak-phase object*, WPO) dar, die im Wesentlichen die Phase der Elektronenwelle, nicht aber deren Amplitude verändern. Durchläuft die Elektronenwelle eine solche Probe, so wird ihre Phase nach dem Durchlaufen des Objektpotentials räumliche Variationen aufweisen. In der konventionellen Elektronenmikroskopie werden diese Strukturen durch chemische Kontrastfärbung (*staining*) sichtbar gemacht. Dabei kommen Salze von Schwermetallen (Urannitrat, Bleicitrat, Kadmiumjodid) zum Einsatz. Diese führen zu einem starken Streuabsorptionskontrast und verringern gleichzeitig die Empfindlichkeit gegenüber Strahlenschädigung. Man spricht von *Positivkontrastierung* (*positive staining*), wenn eine Struktur das Kontrastierungsmittel absorbiert hat oder wenn es von ihm eingelagert wird. Dem steht die *Negativkontrastierung* (*negative staining*) gegenüber, bei dem sich die Metallionen (Phosphorwolframsäure, Uranylacetat, Uranylformiat u. a.) um die eigentlichen Strukturen herum anlagern. Im Elektronenmikroskop ist demnach nicht die Struktur selbst, sondern die Umgebung durch hohen Kontrast gekennzeichnet. Negative staining wird in der Regel zur Sichtbarmachung von Makromolekülen und Molekülkomplexen (Ribosomen, Viren u. a.) eingesetzt. Das Verhältnis von Amplituden zu Phasenkontrast ist dabei kleiner als 20% [Ang00]. Beim Einsatz von Kontrastierungsmitteln kommt es jedoch zu Artefakten durch selektive Anlagerung und die Auflösung wird letztlich durch die Korngröße des Kontrastmittels begrenzt. Großes Interesse besteht daher in der Kontrastverbesserung durch den Einsatz einer Phasenplatte, die analog zur Lichtmikroskopie in der hinteren Brennebene der Objektivlinse platziert wird. Im Gegensatz zum Defokus-Kontrast nach Scherzer führt sie zu einer konstanten, d. h. raumfrequenzunabhängigen Phasenschiebung $\Delta\varphi_{PP}$:

$$\chi(k) = \frac{\pi}{2} (C_s \lambda^3 k^4 + 2\Delta f \lambda k^2) + \Delta\varphi_{PP} \quad (6.1)$$

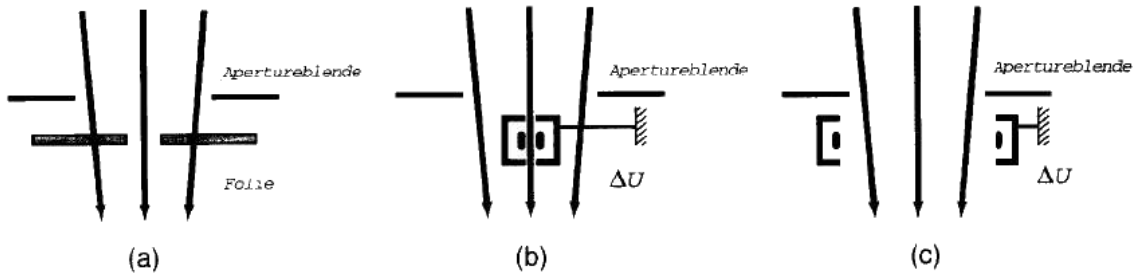


Abbildung 6.1: Die Originalskizze aus der Veröffentlichung von Boersch [Boe47]. Neben der Möglichkeit, eine dünne Folie als Phasenplatte zu benutzen (a), was experimentelle Probleme aufgrund von Kontamination und damit verbundener Aufladung mit sich bringt, wurde auch die Phasenschiebung durch elektrostatische Felder erwogen. Dabei kann entweder der ungebeugte Zentralstrahl (b) oder aber der Randstrahl (c) durch Anlegen einer Spannung in seiner Phasenlage beeinflusst werden.

Für $\Delta\varphi_{PP} = \pi/2$ geht die PCTF in eine Kosinusfunktion über, sodass niedrige Raumfrequenzen mit höchstmöglichem Kontrast übertragen werden. Bereits 1947 schrieb Boersch [Boe47] in einem Artikel über Möglichkeiten, das von Zernike [Zer35] in der Lichtmikroskopie eingeführte Phasenkontrastverfahren in die Elektronenmikroskopie zu übertragen. In Abbildung 6.1 sind die in dem Artikel vorgestellten Varianten dargestellt. Die erste Methode besteht in der Verwendung einer dünnen, amorphen Folie gleichmäßiger Dicke mit einem zentralen Loch, die in der hinteren Brennebene der Objektivlinse eingebracht wird. Die gebeugten Elektronen unterliegen beim Durchlaufen der Folie einer Phasenschiebung. Die Größe dieser Phasenschiebung wird durch das positive innere Potential des Folienmaterials bestimmt, welches in der Größenordnung von 10 bis 20 Volt liegt (vgl. Abb. 6.1a). Dieser Phasenplattentyp wird in Anlehnung an das lichteoptische Analogon als *Zernike-Phasenplatte* bezeichnet. Die ersten Versuche zur Realisierung einer solchen Phasenplatte im TEM wurden 1958 von Kanaya, Faget und Tochigi unternommen [Kan58, Bad70, Joh73, Dan01, Kan70]. Die zweite Methode besteht in der Phasenschiebung der Elektronen durch das Anlegen von elektrischen Feldern. Dabei kann entweder der ungebeugte Zentralstrahl (Abb. 6.1b) oder der Randstrahl beeinflusst werden (Abb. 6.1c). Diese als *Boersch-Phasenplatte* bezeichnete Variante bietet entscheidende Vorteile, da die Elektronenwelle ohne Wechselwirkung mit Materie in der Phase geschoben wird. Dadurch kommt es nicht zu inelastischer Streuung der Elektronen innerhalb der Phasenplatte und die Bildung von Aufladungen wird vermieden. Zusätzlich ist die Phasenschiebung variabel, sodass sowohl Phasenkontrast- als auch Hellfeldbilder aufgenommen werden können, ohne die Phasenplatte aus dem Strahlengang entfernen zu müssen. Eine dritte Variante, die in dem Artikel von Boersch unerwähnt bleibt und sich an das lichteoptische Verfahren von Nomarski anlehnt, ist die *Hilbert-Phasenplatte* für den differentiellen Interferenzkontrast (*differential phase contrast*, DPC). Sie besteht ebenfalls aus einem Kohlenstofffilm, der jedoch eine halbkreisförmige Form aufweist und eine Phasenschiebung von π in einer Halbebene der hinteren Brennebene zur Folge hat. Nach einer theoretischen Studie von Lentzen [Len04] ist es möglich, mit einem C_s -Korrektor die Wirkung einer Zernike-Phasenplatte näherungsweise nach-

zubilden, sodass eine konstante Phasenschiebung für ein breites Raumfrequenzband erzeugt werden kann. Dies gelingt jedoch nur für kleine Phasenschiebungen bei kleinen Werten von C_s und hohen Raumfrequenzen. Der Phasenkontrast für große und mittlere Objektstrukturen ist dagegen gering. Derzeit konzentrieren sich die Untersuchungen auf das Phasenplattenprinzip nach Zernike und die elektrostatische Minilinsen nach Boersch.

In den folgenden Abschnitten werden nun insgesamt sieben Konzepte zur Realisierung von elektronenoptischen Phasenplatten anhand konkreter Patentschriften vorgestellt, sowie deren spezifische Vor- und Nachteile diskutiert. Die Patentnummer und der Anmelder sind dabei jeweils am Anfang des Textes vermerkt. Am Ende des Kapitels sind die Konzepte nochmals in einer Tabelle gegenübergestellt.

6.1 Zernike-Phasenplatte

Die Beobachtung von Phasenobjekten im Lichtmikroskop wurde 1935 durch die Einführung der Zernike-Phasenplatte ermöglicht [Zer35]. Obwohl es in den Jahren um 1970 verschiedene Ansätze zu Übertragung dieses Konzepts in die Elektronenmikroskopie gegeben hat, ist ihnen ein routinemäßiger Einsatz aufgrund der auftretenden technischen Probleme bisher verwehrt geblieben. In Abbildung 6.3a ist der Strahlengang beim Zernike-Phasenkontrast-TEM (*Zernike Phase Contrast TEM*, ZPC-TEM) dargestellt. Der Unterschied zur konventionellen Abbildung besteht in der Phasenplatte, die in der hinteren Brennebene der Objektivlinse platziert wird. Die Zernike-Phasenplatte besteht aus einer dünnen, amorphen Folie (z. B. aus Kohlenstoff) mit gleichmäßiger Dicke und einer zentrischen Bohrung von ca. 1 μm Durchmesser. Sie wird in der hinteren Brennebene der Objektivlinse positioniert und ist relativ zur optischen Achse zentriert. Der zentrale, ungebeugte Strahl kann die Folie ungehindert passieren. Die gestreuten Elektronen durchlaufen dagegen die Folie und erfahren durch das innere Potential (Coulomb-Potential) eine dickeabhängige Phasenschiebung.

Die Bedingung für maximalen positiven Phasenkontrast einer Objektivlinse, die mit einer Phasenplatte ausgestattet ist, lautet [Wil75]:

$$\Delta\varphi_{\text{Obj}} + \Delta\varphi_{\text{PP}} = (4m - 1) \frac{\pi}{2}, \quad m \in \mathbb{Z} \quad (6.2)$$

Hierbei ist $\Delta\varphi_{\text{Obj}}$ die fokusabhängige Phasenschiebung des Objektivs und $\Delta\varphi_{\text{PP}}$ die durch die Phasenplatte verursachte Phasenschiebung. Aus Gleichung 3.7 lässt sich damit die gesamte Phasenänderung für einen bestimmten Defokuswert berechnen:

$$\Delta\varphi_{\text{PP}}(\theta) = -\frac{\pi}{2\lambda} (C_s\theta^4 + 2\Delta f\theta^2) + (4m - 1) \frac{\pi}{2} \quad (6.3)$$

Die Phasenschiebung $\Delta\varphi_{\text{PP}}$ des Elektronenstrahls beim Durchgang durch Materie hängt von der Dicke D der Phasenplatte ab und berechnet sich nach der folgenden relativistischen Formel:

$$\Delta\varphi_{\text{PP}} = -\frac{\pi}{\lambda} \frac{V_i}{U_a} \frac{(1 + 2\alpha U_0)}{(1 + \alpha U_0)} D(r), \quad \text{mit } \alpha = 0,9788 \cdot 10^{-6} \text{ V}^{-1} \quad (6.4)$$

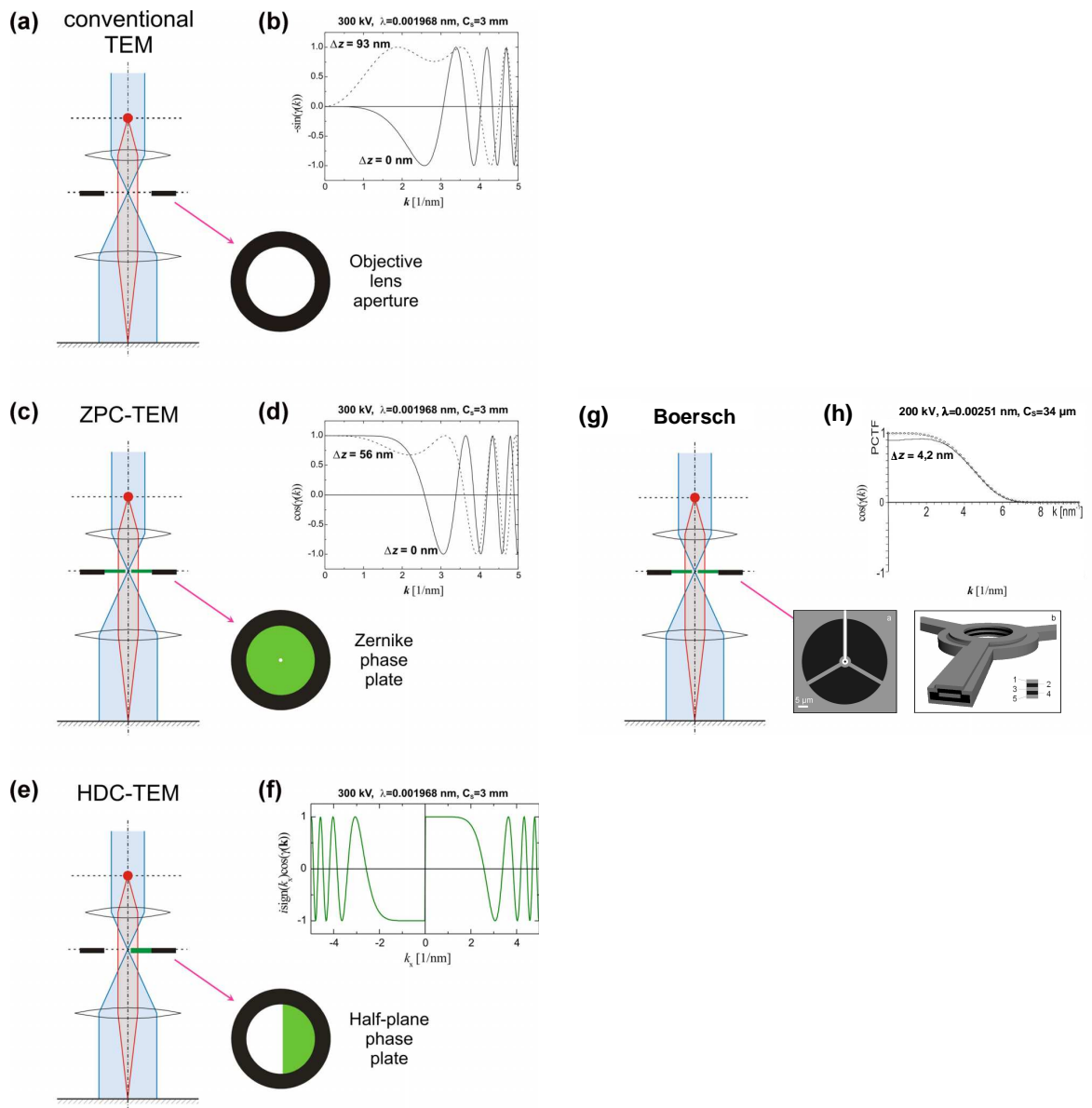


Abbildung 6.2: Die vier Grundprinzipien zur Erzeugung von Phasenkontrast im TEM (aus [Dan06]): (a) Defokus-Phasenkontrast nach Scherzer. (c) Zernike-Phasenplatte. Die gestreuten Elektronen werden um $\pi/2$ in der Phase gegenüber dem Nullstrahl geschoben. (e) Differenzieller Phasenkontrast mit einer halbkreisförmigen Phasenplatte, die in einer Halbebene zu einer Phasenschiebung von $-\pi$ führt. Der Nullstrahl bleibt unverändert. (g) Boersch-Phasenplatte. Der Nullstrahl wird über eine Ringelektrode in der Phase geschoben. (b,d,f) zeigen den Verlauf der zugeordneten PCTF bei 300 kV, $C_s=3$ mm, (h) den Verlauf für 200 kV bei Einsatz eines C_s -Korrektors ($C_s=34 \mu\text{m}$).

Tabelle 6.1: Inneres Potential V_i einiger ausgesuchter Elemente [Rei89] und berechnete Dicke D für eine Phasenschiebung von $-\pi/2$ bei Beschleunigungsspannungen von 100 und 300 kV [Dan01].

Element	V_i [V]	$-\pi/2$ Dicke [nm]	
		100 kV	300 kV
${}_4\text{Be}$	$7,8 \pm 0,4$	21,79	30,86
${}_6\text{C}$	$7,8 \pm 0,6$	21,79	30,86
${}_{13}\text{Al}$	$11,9 \pm 0,7$	14,04	19,89
${}_{14}\text{Si}$	11,5	14,78	20,93
${}_{29}\text{Cu}$	$20,1 \pm 1,0$	8,45	11,97
${}_{32}\text{Ge}$	$15,6 \pm 0,8$	10,89	15,43
${}_{47}\text{Ag}$	$20,7 \pm 2,0$	8,21	11,63
${}_{74}\text{W}$	23,4	7,26	10,29
${}_{79}\text{Au}$	$21,1 \pm 2,0$	8,05	11,41

wobei λ die Wellenlänge der Elektronen ist, U_0 die Beschleunigungsspannung und V_i das innere Potential des Materials der Phasenplatte. Die Phasenschiebung ist bei gegebener Beschleunigungsspannung und damit fester Wellenlänge direkt proportional zur Foliendicke. Geht man von einer homogenen Dicke der Folie aus, die so gewählt ist, dass $\Delta\varphi_{\text{PP}} = -\pi/2$ gilt, lässt sich die CTF durch folgenden Ausdruck beschreiben:

$$\text{CTF}_{\text{ZPC}}(k) = \begin{cases} \sin \chi(k) & \text{für } k < k_h \\ -\cos \chi(k) & \text{für } k \geq k_h \end{cases} \quad (6.5)$$

Dabei ist k der Betrag des Raumfrequenzvektors, k_h entspricht dem Abstand der Lochkante in der Phasenplatte vom Zentrum der hinteren Brennebene. Das mit einer Zernike-Phasenplatte im Gaußfokus gewonnene Bild zeigt durch den kosinusförmigen Verlauf maximalen Phasenkontrast bei allen relevanten Raumfrequenzen (s. Abb. 6.2d).

Das innere Potential der Folie ist eine spezifische Größe des verwendeten Materials, solange dieses elektrisch neutral ist.

In Tabelle 6.1 sind einige chemische Elemente samt dem zugehörigen inneren Potential aufgeführt und die notwendige Dicke für eine Phasenverzögerung von $-\pi/2$ nach 6.4 berechnet. Für die leichteren Elemente ($Z < 20$) überwiegt die elastische Streuung gegenüber der inelastischen. Der Übergang zur höheren Beschleunigungsspannung führt zu einer Abnahme der Gesamtzahl der gestreuten Elektronen. Die leichten Elemente (Be, Al und Si) zeigen die geringste totale Streuung, sodass sie für den Einsatz als Phasenplatten besonders geeignet sind. Die Verwendung von Beryllium ist aufgrund der hohen Stabilität zwar erwogen worden [Bad70], empfiehlt sich aber wegen der Toxizität und Kanzerogenität dieses Metalls nicht¹. Kohlenstoff hat trotz der gegenüber Al und Si um 10% größeren Streuquerschnitts den Vorteil der einfachen Herstellung und Handhabung.

¹Kategorie 1 der krebserzeugenden Stoffe

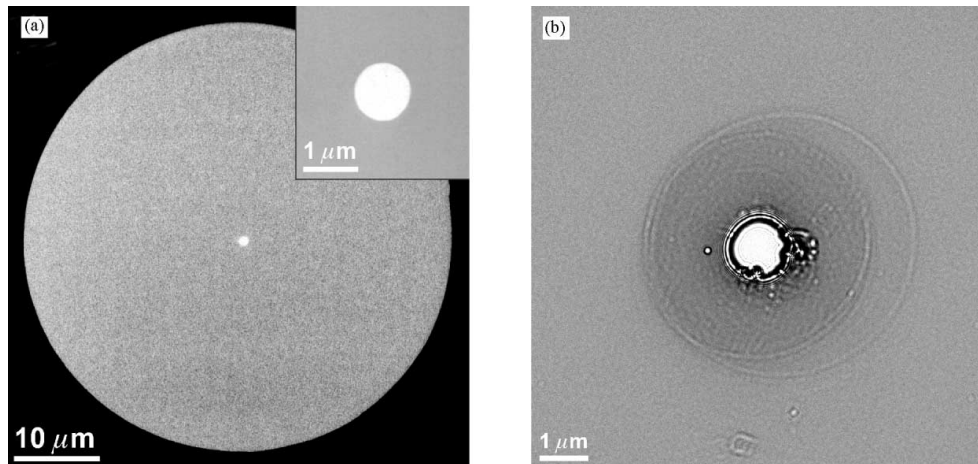


Abbildung 6.3: Zernike-Phasenplatte aus amorpher Kohlefolie nach Danev und Nagayama (2001). (a) Die zentrale Bohrung hat einen Durchmesser von $1\ \mu\text{m}$. (b) TEM-Aufnahme der Phasenplatte, nachdem sie in mehreren Experimenten eingesetzt wurde. Neben den punktförmigen Kontaminationsflecken, die vom fokussierten Elektronenstrahl bei der Justage verursacht wurden, ist noch eine gleichmäßige, kreisförmige Belegung zu erkennen. Diese wurde durch den defokussierten Stahl verursacht (aus [Dan01]).

Zernike-Phasenplatten haben einige prinzipbedingte Nachteile. Die präzise Kontrolle der Phasenschiebung bei den Folien wird durch die Variation der Foliendicke, Aufladungen und unerwünschter Streuung durch die Folie selbst, erschwert. Der Anteil der Elektronen, die vom Objekt kohärent elastisch gestreut werden und somit zum Phasenkontrast beitragen können, ist gering [Bad70]. Zusätzlich führt die inelastische Streuung in der Phasenplatte zu einem Kohärenzverlust bei den gestreuten Elektronen, der den erzielbaren Kontrast deutlich reduziert [Par72]. Die Verwendung eines Energiefilters erlaubt es jedoch, diesen Anteil auszublenden, ohne Einfluss auf die Abbildung der Elektronen ohne Energieverlust zu haben (zero-loss Filterung). Der Kontrast der ZPC-Abbildung lässt sich damit deutlich verbessern.

Da der Lochdurchmesser in der Größenordnung von $1\ \mu\text{m}$ liegt, sind die Präzision bei der Herstellung und die genaue Positionierung im Elektronenstrahl von entscheidender Bedeutung. Die Phasenplatte muss mit einer Genauigkeit von $100\ \text{nm}$ auf die optische Achse justiert werden, um zu verhindern, dass der Nullstrahl auf die Folie trifft und somit beschnitten wird. Die Größe des zentralen Beugungspunktes ist abhängig von den Beleuchtungsbedingungen im Mikroskop. Geht man von typischen Semiaperturwinkeln von $2\text{-}5 \cdot 10^{-4}$ rad aus, so ergibt sich bei einer Objektiv-Brennweite von $3\ \text{mm}$ ein Durchmesser von $1,2\text{-}3\ \mu\text{m}$.

Während des Betriebs im TEM kommt es zur Bildung von Kontaminationsschichten auf der Folie. Die Belegung mit Kohlenwasserstoffen, die selbst bei amorphen Gold- und Berylliumfilmen beobachtet wurde, führt im Betrieb zu lokalen Aufladungen und zu einer zusätzlichen anisotropen Phasenschiebung [Dan02a]. Da bei hohen Elektronenenergien vorwiegend kleine Streuwinkel auftreten, konzentriert sich die Kontamination auf den Bereich um das zentrale Loch (s. Abbildung 6.3b). Damit wird die Abbildung niedriger Raumfrequenzen, die für die Sichtbarkeit biologischer Strukturen von großer Bedeutung ist, verschlechtert. Die Kontamination führt zu

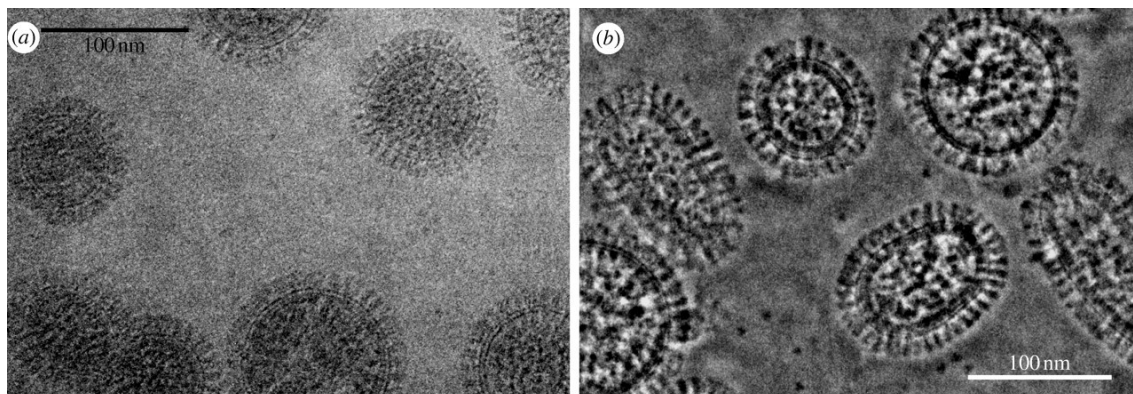


Abbildung 6.4: Aufnahme eines vitrifizierten Influenza-Virus bei 300 kV (aus [Nag08]). (a) konventionelle Abbildung, (b) mit Zernike-Phasenplatte.

einer eingeschränkten Nutzungsdauer der Dünnschichtphasenplatte [Wil73], die sich nur durch weitere Maßnahmen, wie z. B. einem beheizbaren Blendenhalter, verbessern lassen [Dan04]. In Verbindung mit der Kühlung der Probe mittels Stickstoff oder Helium ergeben sich aber daraus sofort weitere Probleme: Während die Probe bei Temperaturen von etwa -200°C untersucht werden soll, muss die Phasenplatte über einen beheizbaren Blendenhalter auf ca. 300°C gehalten werden, um die strahlinduzierte Kontamination zu minimieren. Damit thermisch bedingte Driften klein gehalten werden können, ist eine räumliche Trennung von Phasenplatte und Probe unumgänglich. Dies lässt sich durch Verwendung eines zusätzlichen Transferdubletts realisieren [Hos05]², welches das Bild von der hinteren Brennebene in eine weiter entfernte Phasenplattenebene abbildet, in der sich der spezielle Phasenplattenhalter befindet. Diese Trennung wird auch mit dem in Abschnitt 7.3.4 beschriebenen Transfersystem erreicht, dass zusätzlich die hintere Brennebene vergrößert.

Angewendet wird dieses Phasenplattenprinzip u. a. von der Firma JEOL, die basierend auf den Ergebnissen von Nagayama und Danev ein Patent angemeldet hat [Nag01]. Das JEM-2200FS ist das erste kommerziell verfügbare TEM, das mit Zernike-Phasenplatte angeboten wird. In Abbildung 6.4 ist die Kontrastverbesserung durch den Einsatz der Phasenplatte am Beispiel eines Influenza-Virus dargestellt.

Für den Einsatz in der Hochauflösungsmikroskopie sind von Thon, Willasch und Müller auch Versuche mit Phasenplatten unternommen worden, die spezielle Dickenprofile zur Korrektur des Öffnungsfehlers aufwiesen [Mül76, Tho70, Wil75]. Diese haben neben den hohen Anforderungen an die Positionierung relativ zum Strahl noch das Problem des Kohärenzverlustes der gestreuten Elektronen. Dies tritt gerade bei den profilierten Phasenplatten verstärkt auf, da der Verlust der Kohärenz nicht nur frequenzabhängig ist, sondern auch mit der Dicke zunimmt. Weiterhin stellte die Herstellung der Phasenplatte ein Problem dar, da die mittels Ätzverfahren hergestellten Profile eine Genauigkeit von wenigen Nanometern aufweisen müssen.

²Von der Firma JEOL zum Patent angemeldet

6.2 Hilbert-Phasenplatte

Eine weitere Möglichkeit zur Ausnutzung der aus dem inneren Potential einer Folie resultierenden Phasenschiebung ist die von Danev [Dan02a, Dan02b] vorgestellte Hilbert-Phasenplatte. Sie erzeugt einen topographischen Kontrast und ist damit das Analogon zum lichtoptischen differentiellen Interferenzkontrast (DIC) nach Nomarski [Nom55]. Das Verfahren ist über ein Patent der Firma JEOL geschützt [Nag03] und wird als Hilbert Phasenkontrast (*Hilbert Phase Contrast*, HPC) bezeichnet, da es sich um eine optische Hilbert-Transformation handelt. In Abbildung 6.5 ist die Phasenplatte und ihre Lage in der Diffraktionsebene zu sehen. Der Brennpunkt (Beugungspunkt nullter Ordnung) der einfallenden Welle bildet den Ursprung dieses Koordinatensystems. Die Lage der Phasenplatte ist dabei so gewählt, dass dieser Punkt gerade nicht durch die halbkreisförmige Phasenplatte verdeckt wird und nur die Halbebene auf der Seite $k_x < 0$ beeinflusst. k_x und k_y sind dabei die Komponenten des zweidimensionalen Frequenzvektors \vec{k} . Die Phase der transmittierten Elektronen wird in der Halbebene mit $k_x > 0$ um $-\pi$ geändert, d. h. die Wellenfunktion wird mit der Signum-Funktion

$$\text{sgn}(k) = \begin{cases} -1 & \text{für } k_x < 0 \\ 1 & \text{für } k_x \geq 0 \end{cases} \quad (6.6)$$

moduliert. Die Wirkungsweise der Phasenplatte lässt sich damit wie folgt beschreiben:

$$\varphi_{\text{HPC}}(k) = \begin{cases} \exp(i\varphi) & \text{für } k_x < 0 \\ 1 & \text{für } k_x \geq 0 \end{cases} \quad (6.7)$$

wobei φ die Phasenschiebung in Abhängigkeit der Phasenplattendicke beschreibt (vgl. Kapitel 6.1). Hiermit ergibt sich als Modifikation für die bereits eingeführte Amplituden- und Phasenkontrasttransferfunktion:

Amplituden-CTF:

$$\text{CTF}_{\text{HPC}}^{\text{Am}} = 2 \cos [\chi(k) + \varphi/2] \exp(-i \text{sgn}(k_x) \varphi/2) \quad (6.8)$$

Phasen-CTF:

$$\text{CTF}_{\text{HPC}}^{\text{Ph}} = -2 \sin [\chi(k) + \varphi/2] \exp(-i \text{sgn}(k_x) \varphi/2) \quad (6.9)$$

Für den hier betrachteten Spezialfall $\varphi = -\pi$ ergibt sich:

$$\exp(i \text{sgn}(k_x) \pi/2) = i \text{sgn}(k_x) \quad (6.10)$$

Hiermit vereinfachen sich 6.8 und 6.9 wie folgt:

$$\text{CTF}_{\text{HPC}}^{\text{Am}} = 2 i \text{sgn}(k_x) \sin \chi(k) \quad (6.11)$$

$$\text{CTF}_{\text{HPC}}^{\text{Ph}} = 2 i \text{sgn}(k_x) \cos \chi(k) \quad (6.12)$$

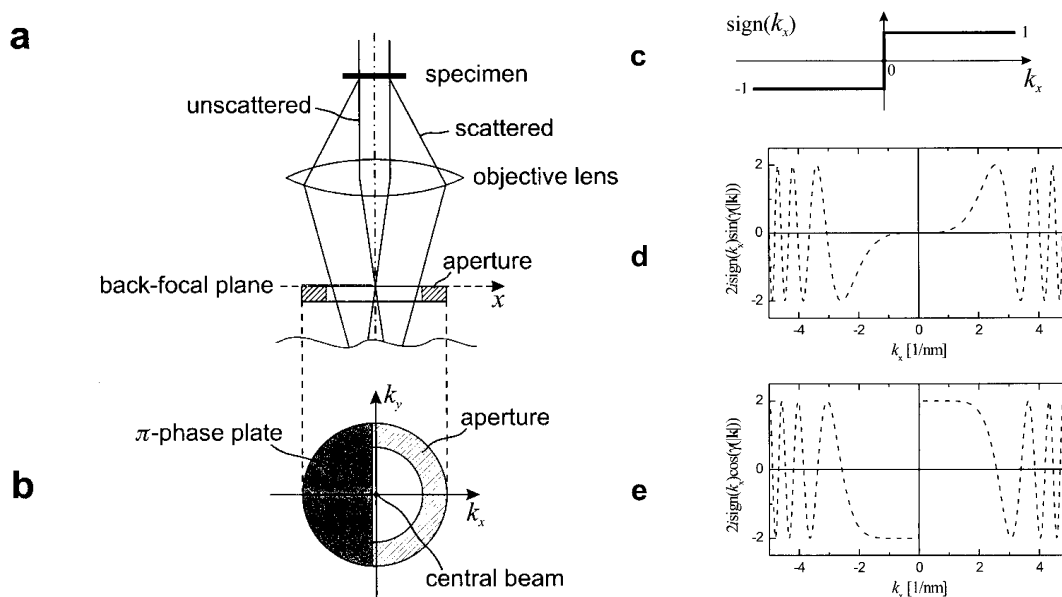


Abbildung 6.5: Prinzip des Hilbert-Phasenkontrasts nach Danev et al. (2002). a) Schematischer Strahlengang mit halbkreisförmiger π -Phasenplatte in der hinteren Brennebene des Objektivs. b) Lage der Phasenplatte in der Diffraktionsebene. Der Nullstrahl bildet das Zentrum des Koordinatensystems und wird durch die Phasenplatte nicht verdeckt. c) Die π -Phasenplatte bewirkt eine Modulation der Wellenfunktion mit der Signum-Funktion, die im Bereich der Phasenplattenebene den Wert -1 und in der offenen Halbebene den Wert $+1$ annimmt. d) Verlauf der Amplituden-CTF für 300 kV ohne Defokussierung. e) Verlauf der Phasen-CTF für 300 kV ohne Defokussierung (aus [Dan02b]).

Bis auf die Signum-Funktion, die zu einem Sprung der Kontrastübertragung am Ursprung führt (s. 6.5d und e), ist der Verlauf der ACTF und der PCTF identisch zu dem der Zernike-Phasenplatte, d. h. niedrige Raumfrequenzen können kontrastreich übertragen werden. Die zusätzliche Modulation mit der Signum-Funktion ergibt eine antisymmetrische CTF, welche zu einem pseudotopographischen Kontrast führt. Wie bei dem aus der Lichtoptik bekannten Verfahren nach Nomarski erscheinen dünne Phasenobjekte in einer 3-dimensionalen Struktur, vergleichbar einer seitlichen Beleuchtung mit Licht (s. Abb. 6.6). Ein so modifiziertes Mikroskop wird von den Autoren als *Difference-Contrast Electron Microscope* (DTEM) bezeichnet. Die wahrgenommene Höhe entspricht dabei jedoch nicht der Variation der Probendicke, sondern der Phasenverzögerung der Elektronenwelle. Dadurch erscheinen Gebiete mit größerer Dichte (schwere Elemente) höher zu liegen als die Umgebung. Da dieser Effekt nicht direkt mit dem projizierten Potential der Probe korrespondiert, ist eine quantitative Auswertung der Bilder nicht ohne Weiteres möglich.

Da auch bei der Hilbert-Phasenplatte der Elektronenstrahl eine dünne Folie durchläuft, bringt sie bezüglich Dickevariation, Kontamination und Kohärenzverlust durch inelastische Streuung ähnliche Probleme mit sich wie die Zernike-Phasenplatte. Für eine Phasenschiebung von π muss die Foliendicke bei 300 kV 60 nm betragen. Sie ist damit doppelt so dick, wie eine Zernike-Phasenplatte bei gleicher Beschleunigungsspannung. Die Transmissivität sinkt dadurch deutlich ab. Für eine Kohlefolie

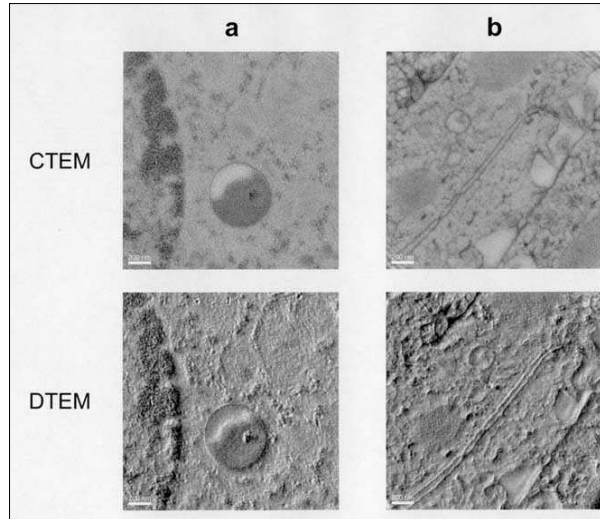


Abbildung 6.6: Vergleich zweier Aufnahmen einer Epithelzelle aus einer Rattenniere bei konventioneller Abbildung und im Hilbert-Modus. Auch ohne Kontrastfärbung mittels U oder Pb sind mit Phasenplatte die feinen Strukturen der Zellorganellen sichtbar. Der in den Bildern angegebene Kalibrierungsbalken entspricht $0,2\mu\text{m}$ (aus [Dan02b]).

mit 64 nm Dicke wurde ein Wert von 52% ermittelt [Set06].

6.3 Boersch-Phasenplatte

6.3.1 Boersch-Phasenplatte mit Zentralsymmetrie

Im Unterschied zur Zernike- und Hilbert-Phasenplatte, bei der die Phasenschiebung beim Durchlaufen einer Folie zustande kommt, erzeugt man bei einer elektrostatischen Phasenplatte nach Boersch die Phasenschiebung durch eine Mikrolinse und vermeidet damit unerwünschte Streuung. Das schwache elektrostatische Feld der Linse wirkt dabei auf den Nullstrahl. Die Realisierung dieses Konzeptes scheiterte lange Zeit an den für die Herstellung erforderlichen Mikrostrukturierungsprozessen. Die erste Umsetzung des Konzeptes stammt von Matsumoto und Tonomura [Mat96] und wurde 1997 von der Firma Hitachi zum Patent angemeldet [Mat97]. Die Ringelektrode, deren Innendurchmesser ca. $1\mu\text{m}$ beträgt, wird über zwei Haltestege in zentraler Lage positioniert (s. Abbildung 6.7). Durch zusätzliche geerdete Außenelektroden, an denen die Feldlinien enden, wird ein Übersprechen des Feldes auf Bereiche außerhalb des Rings vermieden.

Den Effekt der Phasenschiebung kann man folgendermaßen herleiten: Bei der gewählten axialen Symmetrie erfüllt das skalare elektrische Potential innerhalb des Rings die Laplace-Gleichung:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \phi(r, z)}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \phi(r, z) = 0 \quad (6.13)$$

Entwickelt man das Potential der Ringelektrode entlang der z -Achse um den Mittelpunkt des Rings, so erhält man:

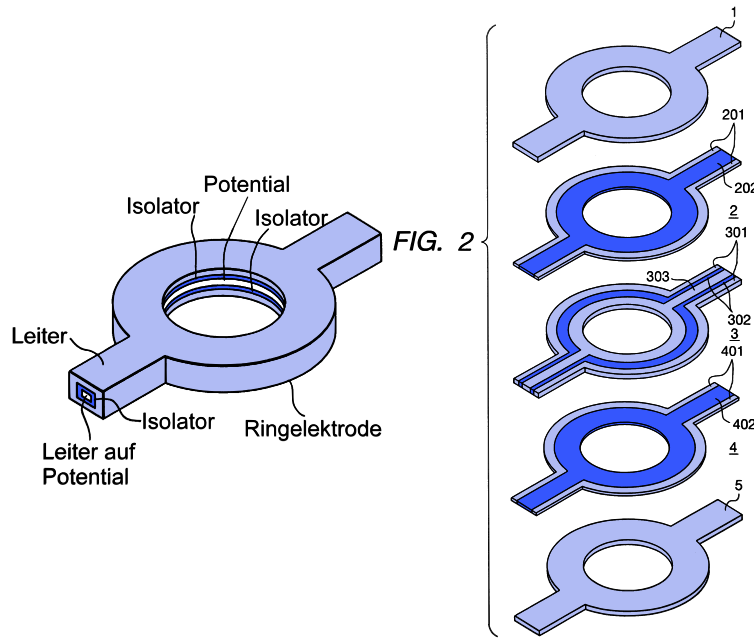


Abbildung 6.7: Aufbau der elektrostatistischen Phasenplatte nach Matsumoto und Tononura (1996). Die Struktur besteht insgesamt aus fünf übereinander liegenden Schichten. Kernstück ist eine ringförmige Elektrode (303), die umgeben ist von Isolatoren (202,402). Zur Abschirmung des erzeugten Feldes nach außen hin sind zusätzliche geerdete Leiterschichten (1,5) notwendig (aus [Mat96]).

$$\phi(r, z) = \phi_0(z) - \frac{r^2}{4} \phi_0''(z) + O(r^4) \quad (6.14)$$

Die Phasenschiebung der Elektronen innerhalb der Zentralelektrode ergibt sich bei vernachlässigbarer Linsenwirkung (*weak lens approximation*):

$$\Delta\varphi(r) = \frac{\pi e}{\lambda E} \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(r, z) dz \quad (6.15)$$

mit der Elektronenladung e , der Wellenlänge λ und der Elektronenenergie E . Aus 6.14 ergibt sich damit:

$$\begin{aligned} \Delta\varphi(r) &= \frac{\pi e}{\lambda E} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \phi_0(z) dz - \frac{r^2}{4} \int_{-\infty}^{+\infty} \phi_0''(z) dz + \dots \right] \\ &= \Delta\varphi(0) - \frac{\pi e}{\lambda E} \frac{r^2}{4} \phi_0'(z) \Big|_{-\infty}^{+\infty} \\ &= \Delta\varphi(0) - \frac{\pi e}{\lambda E} \frac{r^2}{4} \{E_0(+\infty) - E_0(-\infty)\} + \dots \\ &= \Delta\varphi(0) \end{aligned} \quad (6.16)$$

Unter den gemachten Voraussetzungen (kleiner Radius des Rings, niedrige angelegte Spannung und damit vernachlässigbare Linsenwirkung) ist die Phasenschiebung der Elektronen innerhalb des Rings somit konstant, d. h. der Nullstrahl erfährt eine konstante Phasenschiebung. Die sich aus dieser Bauweise ergebenden Vorteile sind:

- Die Elektronen unterliegen bei der Phasenschiebung nicht der Wechselwirkung mit Materie. Es ergeben sich daher keine daraus resultierenden Signal- oder Auflösungsverluste.
- Die Phasenschiebung innerhalb der Ringelektrode ist konstant.
- Die Phasenschiebung ist direkt proportional zur Größe des durchlaufenen Potentials und kann durch Veränderung der angelegten Spannung verändert werden. Dadurch ist es möglich, zwischen konventioneller Hellfeldabbildung und Phasenkontrastmodus zu wechseln, ohne die Phasenplatte aus dem Strahlengang entfernen zu müssen.

Die zentralsymmetrischen Haltestrukturen führen zu einer Ausblendung von Beugungsinformation. Aus Stabilitätsgründen müssen die Träger eine Breite im Bereich von μm besitzen, was zu einem Informationsverlust führt, da die von den Trägern abgeschatteten Teilstrahlen nicht mehr zur Interferenz mit dem Nullstrahl beitragen können. Im Bild fehlen die Strukturen senkrecht zur Stegachse. Neben den Schwierigkeiten in der Herstellung (fünflagiger Aufbau) und Handhabung, die sich aus der freitragenden Konstruktion ergeben, bereitet die notwendige Isolation der Mittelelektrode, die sich in unmittelbarer Nähe zum Strahl befindet, Probleme.

Die Boersch-Phasenplatte bietet weniger Angriffsfläche für die Bildung von Kontamination. Wie bei den Lochfolien kann es aber auch hier zu einer Belegung mit Kohlenwasserstoffen im Bereich der Elektrode kommen, die zu Aufladungen führen. Da dieses Konzept in der Praxis noch nicht getestet wurde, lassen sich bezüglich Handhabung und Nutzungsdauer keine Aussagen machen.

6.3.2 Boersch-Phasenplatte ohne Zentralsymmetrie

Eine Weiterentwicklung der von Matsumoto entwickelten Variante stellt das von Schröder und Majorovits patentierte Prinzip der Boersch-Phasenplatte dar [Maj02, Sch03]. Hier wird die Ringelektrode über drei Haltestege in der hinteren Brennebene fixiert (s. Abb. 6.8a), die in einem Winkel von jeweils 120° zueinander orientiert sind. Da Elektronen bei der Streuung an der Objektstruktur mit gleicher Wahrscheinlichkeit um den Winkel θ und $-\theta$ ausgelenkt werden, ist der Informationsgehalt des Beugungsbildes in der hinteren Brennebene bei der Raumfrequenz $+k$ und $-k$ identisch (Friedelsymmetrie). Wird demnach eine ungerade Anzahl von Haltestegen (hier: dreizählig) verwendet, sodass sich kein Pendant auf der gegenüberliegenden Seite befindet, können die Informationsverluste aufgrund der Abschattung über Rekonstruktion minimiert werden.

Durch die einseitige Abschattung durch einen Haltesteg bei der Raumfrequenz k trägt nur noch der Anteil bei $-k$ zur Interferenz mit den ungestreuten Elektronen bei (*single sideband Abbildung*). Der Kontrast für die betroffene Ortsfrequenz

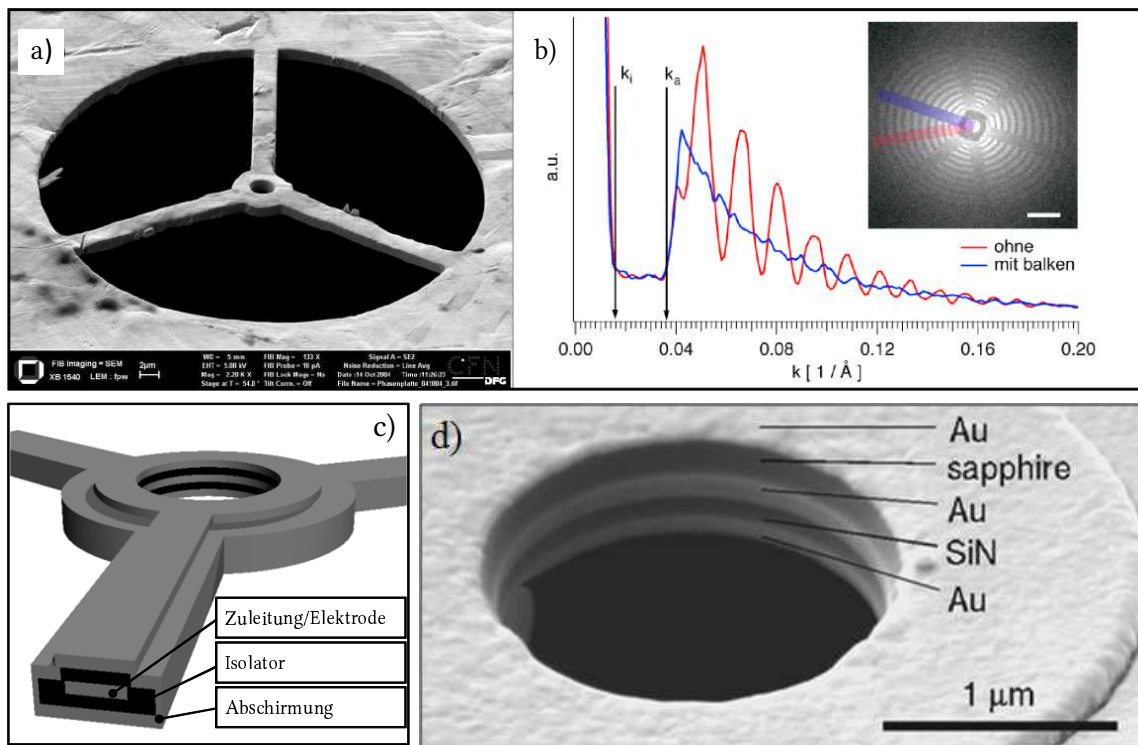


Abbildung 6.8: Boersch-Phasenplatte mit dreizähliger Symmetrie nach Majorovits et al. (2002). (a) Übersichtsaufnahme im SEM bei 2.200facher Vergrößerung. (b) Die in der hinteren Brennebene gemessene radiale Intensitätsverteilung bei 200 kV zeigt den Mittelwert der Intensität $I(\theta)$ gemessen auf einem Haltesteg und einem Streifen gleicher Breite zwischen zwei Haltestegen, d. h. $I(\theta + 30^\circ)$. In dem Bereich zwischen k_i und k_a kommt es aufgrund der Abschattung durch die zentrale Elektrode zu einem Informationsverlust. Die Modulation der CTF sinkt auf Rauschniveau ab (aus [Bar05]). (c,d) Der Querschnitt zeigt den Aufbau der Phasenplatte aus fünf Schichten. Die zentrale Schicht bildet die spannungsführende Elektrode und ist über eine Isolatorschicht vom Außenleiter getrennt. Die äußere Leiterschicht sorgt für die Abschirmung des Potentials und verhindert gleichzeitig Aufladungen (aus [Sch10, Maj07]).

ist also im Bild um den Faktor zwei reduziert. In Abbildung 6.8b) ist die in der hinteren Brennebene gemessene radiale Intensitätsverteilung bei 200 kV dargestellt. Sie zeigt den Mittelwert der Intensität $I(\theta)$ gemessen auf einem Haltesteg und einem Streifen gleicher Breite zwischen zwei Haltestegen, d. h. $I(\theta + 30^\circ)$. Als Probe wurde Wolfram auf Kohlefolie verwendet. Die Friedelsymmetrie führt dazu, dass im Spektrum sechs Stege, statt der drei tatsächlich vorhandenen, zu sehen sind. Für die Korrektur der mit dieser Phasenplattenvariante erhaltenen Bilder müssen folgende Schritte durchgeführt werden [Bar05]:

- Ermittlung der von den Stegen verdeckten Ortsfrequenzen
- Berechnung der Fourier-Transformierten des Bildes. Alle von der Abschattung durch die Stege betroffenen Grauwerte $I(k)$ werden mit zwei multipliziert.
- Bildung der Rücktransformation.

Hierbei sind Einflüsse, wie Signalrauschen, Detektorrauschen und Elektronentransmission durch die Stege zu berücksichtigen. Die CTF weist einen raumfrequenzabhängigen Untergrund auf. Um die CTF zu rekonstruieren, muss das Signal im Bildspektrum mit dem Faktor vier multipliziert werden. Die Anwendung der Friedelkorrektur führt für niedrige Raumfrequenzen zu einer Wiederherstellung der Information, während bei hohen Raumfrequenzen $k > 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ nach der Korrektur kaum Signal zu erkennen ist. Als Ursache für das schlechte Signal zu Rauschverhältnis wurden in [Bar05] folgende Gründe diskutiert:

- Ein signalabhängiger Beitrag zum Rauschen der verwendeten CCD-Kamera bei hohen Raumfrequenzen.
- Die endliche Energiebreite der vom Energie-Filter durchgelassenen Elektronen (10 eV), die zu einem inelastischen Anteil führen. Von der Probe inelastisch gestreute Elektronen werden hauptsächlich unter kleinen Winkeln gestreut und tragen so vor allem bei niedrigen Raumfrequenzen zum Rauschen bei.
- Elektronen, die durch die Goldfolie transmittieren. Da es sich zum Großteil um elastische, inkohärente Mehrfachstreuung handelt, ist der Beitrag für kleine Streuwinkel (kleines k) besonders groß.

Aufgrund der Ausdehnung der Zentralelektrode kommt es zu Abschattungen und damit zu einem unvermeidbaren Informationsverlust bei niedrigen Raumfrequenzen im Bereich zwischen k_i und k_a . Zu hohen Frequenzen hin setzt der Außendurchmesser der Blende ein Limit. Eine kreisförmige Blende mit einem äußeren Radius r_a in der Beugungsebene der Objektivlinse mit der Brennweite f_{Obj} filtert alle Raumfrequenzen, die kleiner sind als:

$$k_{\text{cut-on}} = \frac{r_a}{\lambda f_{\text{Obj}}} \quad (6.17)$$

Bei einem Außendurchmesser der Innenelektrode von $6,5 \mu\text{m}$, einer Elektronenenergie von 200 keV ($\lambda = 2,508 \text{ pm}$) und der Brennweite des Objektivs von $f_{\text{Obj}} =$

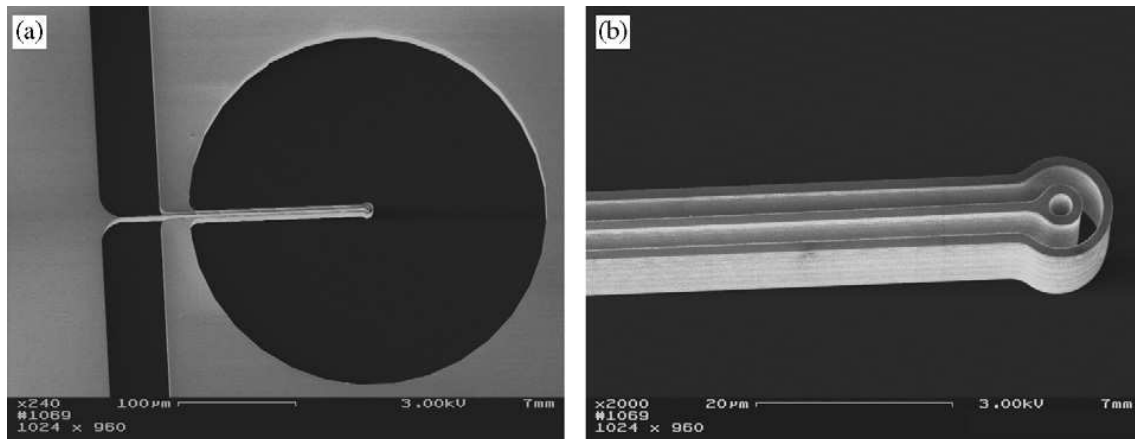


Abbildung 6.9: Prototyp der elektrostatischen Driftröhre nach Jin und Glaeser (2007). (a) Die Übersichtsaufnahme zeigt die Objektivblende (Durchmesser $300\mu\text{m}$) mit der Elektrodenanordnung. (b) Detailaufnahme des zentralen Bereichs. Für den Betrieb bei 100kV wurde ein Außendurchmesser von $8\mu\text{m}$ gewählt, der zusammen mit der Brennweite des Objektivs von 5mm zu einer Übertragung bis zur Raumfrequenz $k_0 = 1/4,6\text{nm}$ führt. Die Öffnung der inneren Elektrode liegt bei $2\mu\text{m}$, um den fokussierten Strahl der ungestreuten Elektronen (Durchmesser ca. $1\mu\text{m}$) ohne Beschneidung passieren zu lassen (aus [Cam07]).

$2,7\text{mm}$ (Zeiss EM 922 Ω) führt dies zu einem Verlust der Raumfrequenzen kleiner als $k_{cut-on} = 1/2,1\text{nm}$. Die ersten experimentellen Ergebnisse mit dieser Phasenplatte zeigen, dass sich Strukturen im Bereich $0,4\text{--}2\text{nm}$ übertragen lassen. Die Anordnung kann mit Spannungen bis zu 3V überschlagsfrei betrieben werden, wobei eine Spannung von ca. 400mV für eine Phasenschiebung von $\pi/2$ bei 200kV notwendig ist [Bar08]. Die bei den Experimenten verwendeten Phasenplatten zeigten während des Betriebs praktisch keine Kontamination und daraus resultierende Aufladungen. Es wird vermutet, dass dies einerseits darauf zurückzuführen ist, dass vom Herstellungsprozess keine Verunreinigung vorhanden war. Andererseits wird die Phasenplatte durch den ständigen Elektronenbeschuss auf erhöhter Temperatur gehalten, was eine Belegung mit Kohlenwasserstoffen dauerhaft verhindert [Maj07].

Bei neueren Prototypen wurde der Innendurchmesser der Ringelektrode auf $0,5\mu\text{m}$ verkleinert, der Außendurchmesser beträgt noch $1,5\mu\text{m}$ [Sch10]. Dies bedingt einen Verlust von Strukturabständen größer als $4,5\text{nm}$. Im Hinblick auf die Abbildung von Makromolekülen und Proteinkomplexen mit einer Größe von ca. 10nm führt dies zu Informationsverlusten und Einschränkungen in der Sichtbarkeit. Da der Außendurchmesser von $1,5\mu\text{m}$ bei dem verwendeten Herstellungsprozess das technisch Machbare darstellt, bleibt nur die Vergrößerung des Beugungsbildes, um die Verluste durch Abschattung weiter zu minimieren. Bei der Konzeption des PACEMs wurde daher ein Transfersystem entwickelt, das für eine Vergrößerung der hinteren Brennebene sorgt. Gleichzeitig erlaubt es die vollständige Trennung zwischen Objektraum sowie Phasenplattenebene.

6.3.3 Elektrostatische Driftröhre

Die von Jin und Glaeser entwickelte und zum Patent [Jin10] angemeldete Driftröhre nutzt wie die Phasenplatte nach 6.3.2 eine miniaturisierte Einzellinse, die die nullte Beugungsordnung in der hinteren Brennebene der Objektivlinse selektiv um 90° in der Phase schiebt. Die zentrale Elektrode ist dabei jedoch als Zylinder ausgeführt, welche durch eine zweite, konzentrisch platzierte Elektrode abgeschirmt wird (s. Abb. 6.9). Im Unterschied zu der von Boersch vorgeschlagenen planaren Variante sind keine zusätzlichen Isolatoren nötig, um die auf Potential liegende innere Elektrode von der geerdeten äußeren Elektrode zu separieren. Dadurch lassen sich Aufladungen im Strahl vermeiden und der Aufwand bei der Herstellung wird deutlich reduziert.

Elektrostatische Simulationen haben gezeigt, dass die durch Randfelder hervorgerufene Phasenschiebung der gestreuten Elektronen vernachlässigbar ist, wenn das Aspektverhältnis der Elektroden (Verhältnis von Länge der Zylinderelektrode zu deren Breite) größer als 5:1 ist [Cam07]. Durch die Länge der Elektrode wächst die Phasenschiebung $\Delta\varphi$, die sich als Integral über das elektrostatische Potential ergibt, im Vergleich zu einer planaren Elektrode deutlich an. Bei 100 kV Beschleunigungsspannung muss für eine $10\ \mu\text{m}$ dicke Innenelektrode eine Spannung von lediglich 11 mV angelegt werden, um eine Phasenschiebung von $\pi/2$ zu erzielen. Dieser Wert steht in guter Übereinstimmung mit den numerischen Berechnungen, die zu 13,7 mV führen. Dadurch kann mit deutlich geringeren Betriebsspannungen gearbeitet werden als bei der planaren Ausführung, was die Gefahr eines Defektes durch einen Überschlag herabsetzt.

Für den Prototyp wurde für die äußere Elektrode ein Außenradius von $r_a=4\ \mu\text{m}$ gewählt. Zusammen mit der Brennweite der Objektivlinse von ca. 5 mm und einer Beschleunigungsspannung von 100 kV ($\lambda = 0,0037\ \text{nm}$) ergibt sich damit eine Abschneidefrequenz von $k_{cut-on}=1/(4,62\ \text{nm})$. Die Größe des fokussierten Nullstrahls liegt bei ca. $1\ \mu\text{m}$. Um die Phasenplatte ungehindert passieren zu können, wurde daher die Öffnung der Innenelektrode auf $2\ \mu\text{m}$ festgelegt.

6.3.4 Ringelektrode mit Hohlkegelbeleuchtung

Fasst man die Ergebnisse der bisherigen Phasenplattenkonzepte zusammen, so können folgende Ergebnisse festgehalten werden: Zernike-Phasenplatten sind durch Kontamination und Aufladung problematisch im Betrieb und erlauben keinen dauerhaften Einsatz im Mikroskop. Zur Vermeidung von anisotroper Phasenschiebung durch Kontamination sollten die gebeugten Elektronen unbeeinflusst bleiben und stattdessen der Nullstrahl in der Phase geschoben werden. Dieses wird zwar mit Boersch-Phasenplatten erreicht, jedoch verursachen ihre Haltestrukturen und die zentrale Elektrode Abschattungen, die zum Teil zu einem irreversiblen Informationsverlust führen. Um beiden Problemen zu begegnen, wurde von Benner [Ben03a] ein Prinzip vorgestellt, bei dem der Nullstrahl über eine ringförmige Folie oder eine Ringelektrode in der Phase geschoben wird (s. Abb. 6.10). Dazu ist eine gekippte Beleuchtung nötig, die in der hinteren Brennebene zu einer Verschiebung des Nullstrahls relativ zum Blendenrand führt. Der Nullstrahl unterliegt dann dem inneren Potential der Folie oder dem elektrischen Feld der Ringelektrode und erfährt dadurch eine kon-

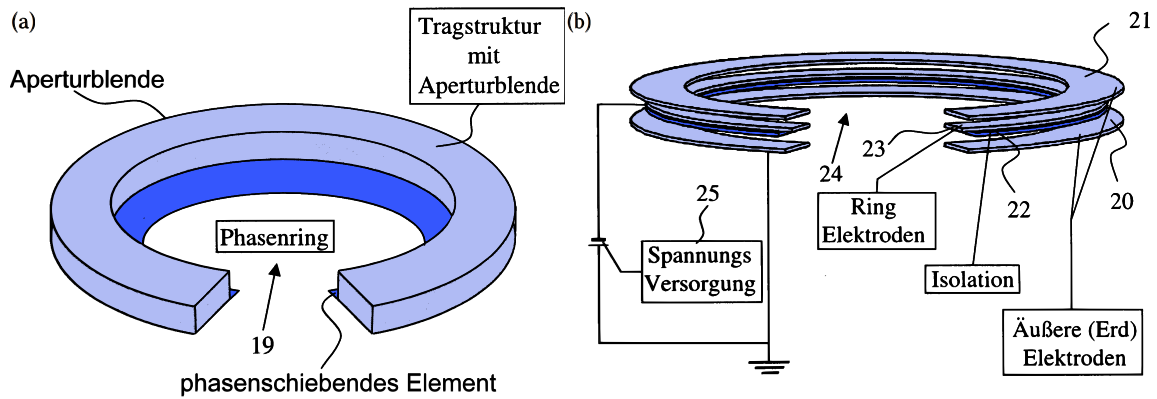


Abbildung 6.10: Phasenplattenkonzepte nach Benner (2003). (a) Zernike-Phasenplatte. Die phasenschiebende Folie ist an einer ringförmigen Halterung befestigt, die sowohl zur mechanischen Stabilisierung als auch zur Ableitung von Aufladungen beiträgt. (b) Boersch-Phasenplatte. Die zwischen der Mittelelektrode (23) und den beiden äußeren Elektroden (20, 21) angelegte Spannung bestimmt die gewünschte Phasenschiebung. Die zentrale Öffnung (24) hat einen Innendurchmesser von ca. $50\ \mu\text{m}$ (aus [Ben03a]).

stante Phasenverschiebung. Wie in Abbildung 6.11 zu sehen ist, kommt es jedoch durch diese einseitige Auslenkung zu einem Beschnitt in der Übertragung senkrecht zur Verschieberichtung. Um diesen zu vermeiden, müssen mehrere Aufnahmen bei unterschiedlichen Azimutalwinkeln $\varphi \in [0; 2\pi]$ aufgenommen werden. Dies lässt sich am einfachsten über eine Hohlkegelbeleuchtung bewerkstelligen. Daher erzeugt das Beleuchtungssystem bei diesem Konzept eine ringförmige Beleuchtung, sodass das Objekt analog zur lichtmikroskopischen Variante nach Zernike mit einem hohlkegelförmigen Strahl (*hollow-cone illumination*) beleuchtet wird. Durch die Überlagerung der Bilder bei unterschiedlichen Azimutalwinkeln wird die Übertragung wieder isotrop.

Alternativ kann die Phasenschiebung statt über ein elektrisches Feld auch über eine ringförmige Folie erfolgen. Beim Durchgang durch die Folie wird nicht nur die Phase des Nullstrahls geändert, sondern es kann gleichzeitig auch über Absorption die Intensität verringert werden. Durch die Angleichung der Intensität zwischen dem Nullstrahl und den höheren Beugungsordnungen lässt sich eine weitere Kontrastverbesserung erzielen. Da im Gegensatz zur Zernike-Phasenplatte immer nur die nullte Beugungsordnung die Folie durchläuft, welche keinerlei Information über das Objekt trägt, mitteln sich Variationen der Phasenschiebung aufgrund lokaler Dichtefluktuationen statistisch aus. Inwieweit diese Variante resistent gegenüber der Belegung mit Kontaminationsschichten ist, muss noch experimentell überprüft werden.

Ein Vorteil, der sich bei beiden Ausführungsformen dieses Phasenplattenprinzips ergibt, ist die mit der Kippung der Beleuchtung einhergehende Verbesserung der Auflösung. Die höchste übertragene Ortsfrequenz ist doppelt so hoch, wie bei kohärenter axialer Beleuchtung mit der gleichen Objektivapertur. Dies lässt sich wie folgt erklären (s. Abb. 6.11): Durch Kippung der Beleuchtung wird der Nullstrahl zum Blendenrand verschoben. Dadurch wird in der Verschieberichtung ein Seitenband des Beugungsbildes ausgeblendet (Einseitenbandübertragung). Bei dem

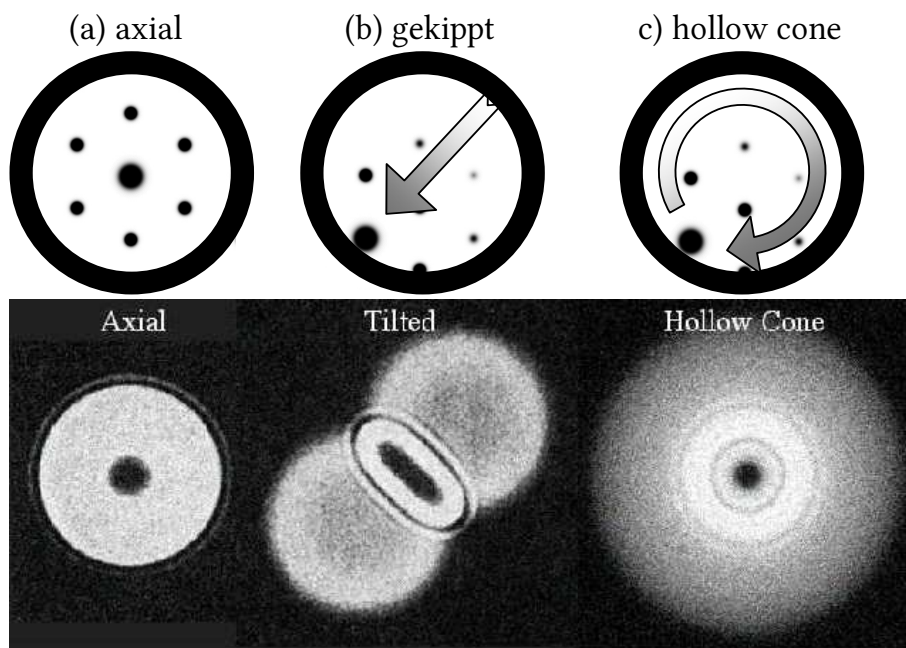


Abbildung 6.11: Verbesserung der Übertragung durch Verwendung einer Hohlkegelbeleuchtung. Die obere Reihe zeigt die Situation in der hinteren Brennebene, die untere Reihe die Auswirkung auf das Diffraktogramm. (a) Für die axiale Beleuchtung liegt der Nullstrahl im Zentrum der Blende. Die Übertragung ist isotrop und wird durch die Größe der Kontrastblende oder die Punktauflösung limitiert. (b) Durch Verkippung der Beleuchtung wird der Nullstrahl in Richtung Blendenrand verschoben. Dadurch können einseitig Beugungsreflexe mit doppelter Raumfrequenz die Blende passieren. Senkrecht zur Verschiebungsrichtung kommt es jedoch zu einem Beschnitt. (c) Durch Rotation des gekippten Strahls kann der Beschnitt beseitigt werden. Die Übertragung ist isotrop.

verbliebenen Band können dafür gegenüber der ungekippten Beleuchtung Beugungsreflexe die Blende passieren, deren zugeordnete Raumfrequenzen doppelt so hoch sind. Die zusätzliche Rotation des gekippten Strahls führt dazu, dass der erweiterte Übertragungsbereich für alle Richtungen erreicht werden kann. Mit dieser Beleuchtung können somit Übertragungsfunktionen ohne Frequenzlücken erzielt werden.

6.3.5 Anamorphotische Phasenplatte

Ein Problem der in 6.3.1 und 6.3.2 vorgestellten Phasenplatten besteht im Informationsverlust in der Beugungsebene aufgrund von Abschattungen, welche eine Folge der Träger sind und der Ringelektrode, die für die Ausbildung des räumlich begrenzten elektrischen Feldes benötigt wird. Um diese Abschattungen zu vermeiden, wurde eine neuartige Phasenplatte von Schröder et al. vorgeschlagen und patentiert [Sch07, Sch08]. Sie arbeitet mit einer stark anisotropen Feldverteilung und setzt ein anamorphotisch verzerrtes Beugungsbild voraus, welches unterschiedliche Vergrößerung in x - und y -Richtung aufweist.

Die grundlegende Funktion lässt sich anhand Abbildung 6.12 verstehen. Es handelt sich bei dieser Variante um drei unabhängige Elektroden, die in der Ebene

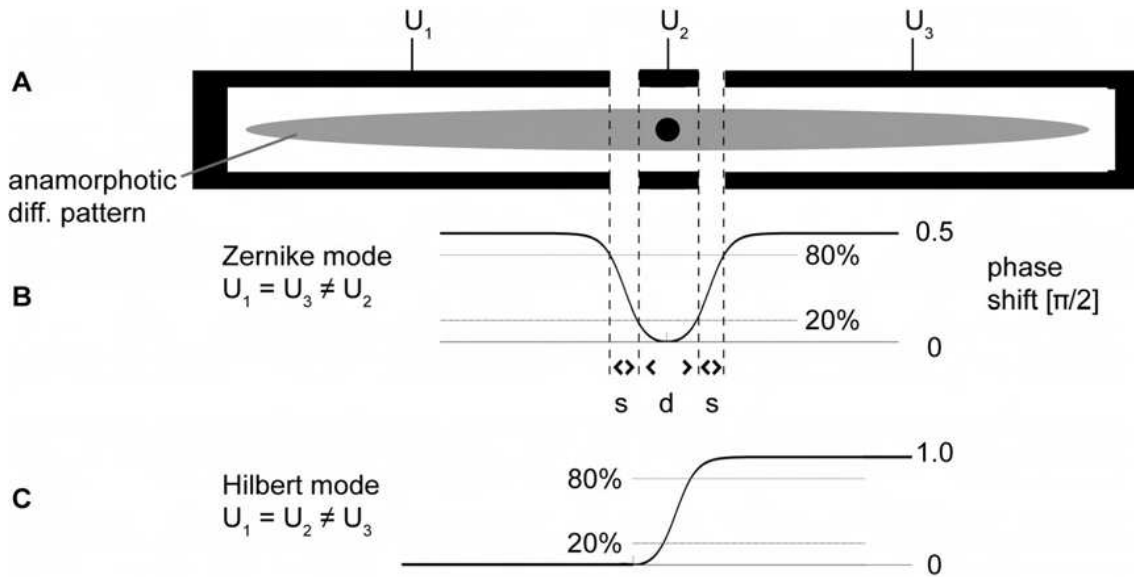


Abbildung 6.12: Schematische Darstellung der anamorphotischen Phasenplatte nach Schröder et al. (2007). (A) Elektrodenanordnung und Lage des Beugungsbildes. Das verzerrte Beugungsbild wird durch drei unabhängige Elektroden eingeschlossen, die mit drei separaten Spannungen U_1 , U_2 und U_3 versorgt werden. (B) Potentialverteilung entlang der Achse bei Betrieb im Zernike-Mode mit einer Phasenschiebung von $\lambda/4$ in jedem Abschnitt. (C) Für den Hilbert-Mode werden nur zwei Elektroden mit unterschiedlichem Potential benötigt, um die Phase in einer Halbebene um π zu schieben (aus [Sch10]).

des anamorphotischen Bildes der Beugungsebene positioniert werden und auf unterschiedlichen Potentialen U_1 , U_2 und U_3 liegen. Wie in Abschnitt 6.3.1 gezeigt, ist die Phasenschiebung der Elektronenwelle innerhalb jeder geschlossenen Elektrode konstant, sodass eine konstante Phasendifferenz zwischen den gebeugten und nicht gebeugten Elektronen erzeugt werden kann. Je nach angelegten Spannungen kann zwischen Zernike-Mode ($U_1 = U_3 \neq U_2$) und Hilbert-Mode ($U_1 = U_2 \neq U_3$) gewählt werden. Wie aus Abbildung 6.12 ersichtlich ist, bleiben Raumfrequenzen im Bereich der Schlitze bei $k_x < u \approx (d/2 + s) / (\lambda f)$ aufgrund der endlichen Flankensteilheit des Potentialverlaufs weitgehend unbeeinflusst. Durch ein hohes Aspektverhältnis des Schlitzes (1:30) kann die unerwünschte Phasenschiebung in Richtung k_y klein gehalten werden. Idealerweise sollte jedoch die Ausdehnung des Beugungsbildes in dieser Richtung gegen Null gehen, während sie in k_x -Richtung die volle Ausdehnung besitzt. Der Aufbau des Prototyps einer solchen Phasenplatte ist in Abbildung 6.13 dargestellt und entspricht dem der Boersch Einzellinse aus Abschnitt 6.3.1. Auch hier wurde zur Minimierung von Randfeldern ein mehrschichtiger Aufbau gewählt. Um Abschattungen zu vermeiden, sind die Elektroden zum Zentrum hin geöffnet. Aus Stabilitätsgründen ist die Ausrichtung der Phasenplatte auf den Betrieb im Hilbert-Mode von Vorteil. Hier werden nur zwei voneinander unabhängige Elektroden benötigt, d. h. die zentrale Elektrode (Potential U_2) mit einem Durchmesser von lediglich $1 \mu\text{m}$ kann entfallen. Die Voraussetzung für den Einsatz einer solchen Phasenplatte ist das Vorliegen eines anamorphotisch verzerrten Beugungsbildes, welches

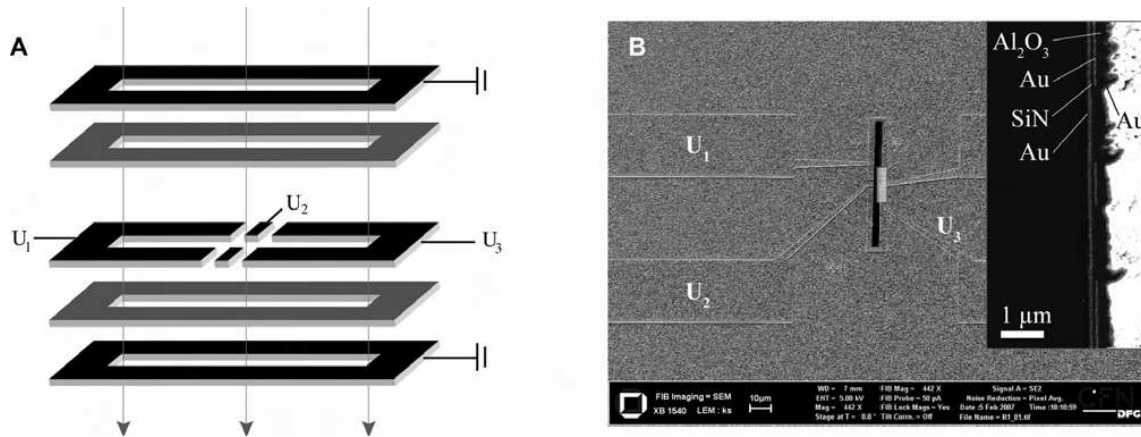


Abbildung 6.13: (A) Schematische Darstellung des Aufbaus der anamorphotischen Phasenplatte aus fünf Schichten. Die mittlere Schicht besteht aus einem leitenden Material und ist lateral in drei Bereiche unterteilt, die auf unterschiedlichen Potentialen U_1 , U_2 und U_3 liegen. Die resultierende inhomogene Feldverteilung führt zu einer relativen Phasenschiebung der Elektronen im linken Bereich, der mit U_1 beaufschlagt wird, relativ zu den Elektronen, die die mit U_3 beaufschlagte rechte Elektrode durchlaufen. (B) SEM-Aufnahme des in Karlsruhe hergestellten Prototypen. Die drei benötigten Versorgungsspannungen $U_{1,2,3}$ werden über Leiterbahnen zugeführt (aus [Bar08]).

in einer Richtung die volle Ausdehnung besitzt, in der dazu senkrechten Richtung stark gestaucht wird. Um die Phasenschiebung in zwei Raumrichtungen zu ermöglichen, werden zwei senkrecht zueinander orientierte Phasenplatten und anamorphotische Beugungsbilder benötigt. Die hierzu notwendige Optik mit 16 magnetischen Quadrupolen ähnelt der im von Rose und Haider vorgeschlagenen C_s/C_c -Korrektor [Hai08a]. Dieser wird derzeit im Rahmen des TEAM-Projektes (*Transmission Electron Aberration-corrected Microscope*) getestet. Die Zielsetzung des Projektes ist die Entwicklung eines TEMs, welches bei Beschleunigungsspannungen zwischen 100 kV und 300 kV eine Ortsauflösung von $0,5 \text{ \AA}$ erreicht. Erst mit der Verfügbarkeit dieses kombinierten Korrektors kann eine anamorphotische Phasenplatte eingesetzt werden und ihre Vorteile gegenüber den anderen Phasenplattenkonzepten ausspielen.

6.4 Zusammenfassung

Gegenüber der Abbildung im CTEM bietet der Einsatz einer Phasenplatte eine deutliche Verbesserung der Kontrastübertragung gerade bei niedrigen Raumfrequenzen. Da die gesamte benötigte Information in einem Bild enthalten ist, kann auf Defokussereien verzichtet werden, was die Elektronendosis in der Probe reduziert. Auch die bei der Kontrastfärbung auftretenden Artefakte werden vermieden. Bedingt durch das Zusammenspiel von Lochgröße und Nullstrahldurchmesser ist die Zernike-Phasenplatte für die Abbildung von Strukturen bis etwa 100 nm geeignet. Für große Objekte wie Zellen und Organellen ist die Hilbert-Phasenplatte die bessere Wahl, da der Nullstrahl (einseitig) sehr nah an die Phasenplattenkante herangebracht werden kann und so der Bereich der beeinflussbaren Raumfrequenzen bis annähernd

null reicht. Dadurch können auch Objektstrukturen größer als 100 nm über ihren Phasenkontrast erfasst werden. Insgesamt lässt sich festhalten, dass Dünnschicht-Phasenplatten nach Zernike durch Bildung von Kontaminationsschichten und Aufladungen problematisch im Umgang sind und keinen dauerhaften Einsatz im Mikroskop zulassen. Da sie in der hinteren Brennebene des Objektivs positioniert werden müssen, bedingt der Wechsel jeweils eine Belüftung des Objektivraums. Eine mögliche Verbesserung besteht im Einsatz eines Heizhalters, der aufgrund der engen Platzverhältnisse und der zwingend notwendigen Kühlung der Probe jedoch zu Driften führen würde. Abhilfe lässt sich durch eine Separierung zwischen Objektraum und Phasenplattenebene mittels einer zusätzlichen Transferoptik schaffen. Um Aufladungen und Kontrastverluste durch Streuung in der Phasenplatte zu vermeiden, sollte möglichst kein Körper den Strahlengang direkt beeinflussen, sondern die phasenschiebende Wirkung über elektrostatische Potentiale bewirkt werden. Dies ermöglichen die Phasenplatten nach Boersch. Sie erlauben durch Änderung der angelegten Spannung eine gezielte Phasenschiebung, welche an unterschiedliche Beschleunigungsspannungen angepasst werden kann. Dabei hat die von Benner vorgeschlagene Lösung, die nicht den Nullstrahl schiebt, sondern die höheren Beugungsordnungen, den prinzipiellen Vorteil, dass keine Haltestrukturen notwendig sind. Dadurch kommt es nicht zu Abschattungen und somit zu keinem Verlust von Beugungsinformation. Da dieses Konzept bisher noch nicht auf seine Funktionstüchtigkeit hin überprüft werden konnte, stellt die Boersch-Phasenplatte nach Majorovits den bislang günstigsten Kompromiss hinsichtlich der Übertragungseigenschaften und Lebensdauer dar. Ein Konzept für zukünftige Bio-TEMs stellt die anamorphotische Phasenplatte dar, die ebenfalls auf Haltestrukturen verzichten kann, jedoch wegen der speziellen Abbildungsbedingungen ihre Vorteile erst in Zusammenhang mit einem C_s/C_c -Korrektor ausspielen kann.

Anmelder							
Patent-Nr.	DE 101 14 949 A1	DE 102 40 859 A1	EP 0 782 170 A2	DE 102 06 703 A1	US 7737412 B2	DE 102 00 645 A1	DE102007007923A1
Funktions-Prinzip	Zernike-Phasenplatte	Hilbert-Phasenplatte	Boersch-Phasenplatte	Boersch-Phasenplatte	Boersch-Phasenplatte	Boersch-/Zernike-Phasenplatte	Anamorphotische Phasenplatte
Ausführung	Dünnschichtphasenplatte aus amorphem Kohlenstoff. Phasenschiebung von $\pi/2$.	Halbkreisförmige Dünnschichtphasenplatte aus amorphem Kohlenstoff. Phasenschiebung von π .	Ringelektrode mit zwei gegenüberliegenden Trägern. Mehrschichtiger Aufbau.	Ringelektrode, die über 3 Träger mit dem äußeren Rand verbunden ist.	Elektrostatische Driftröhre, deren Potential über eine Außenelektrode abgeschirmt wird.	Ringelektrode/-Folie, die den Nullstrahl beeinflusst. Erfordert hohlkegelförmige Beleuchtung.	Phasenplatte mit schlitzförmiger Öffnung, die im Zernike- oder Hilbertmode betrieben wird.
Aufbau							
Vorteile							
Nachteile							
	<ul style="list-style-type: none"> + einfache Herstellung + keine Träger - Kohärenzverlust - Granularität - Kontamination 	<ul style="list-style-type: none"> + einfache Herstellung + keine Träger + topographischer Kontrast + hoher Kontrast bei kleinen Raumfrequenzen - fragile Konstruktion - Granularität - Kontamination 	<ul style="list-style-type: none"> + keine Wechselwirkung mit Materie + variable Phasenschiebung - technologisch aufwendig - Abschattung durch Haltestege - Isolator in Strahlhöhe 	<ul style="list-style-type: none"> + keine Wechselwirkung mit Materie + variable Phasenschiebung + Signal im Bereich der Stege - fragile Struktur - Verlust niedriger Raumfrequenzen 	<ul style="list-style-type: none"> + variable Phasenschiebung + einfache Herstellung + kein Isolator im Strahl + niedrige Spannung + hohes Aspektverhältnis + robuster Aufbau 	<ul style="list-style-type: none"> + variable Phasenschiebung + keine Träger + wenig Kontamination + Steigerung der Auflösung - spezielle Beleuchtung - Funktionalität bisher nicht gezeigt 	<ul style="list-style-type: none"> + keine Träger + zwei Betriebsmodi - erfordert zwei Phasenplatten - erfordert anamorphotische Beugungsbilder

Kapitel 7

PACEM

7.1 Beschreibung

Wie in Kapitel 6 beschrieben stellt die Boersch-Phasenplatte in der von Schröder et. al. vorgestellten Form einen vielversprechenden Ansatz bei der Abbildung von schwachen Phasenobjekten dar. Trotz der Detailverbesserungen und der weiter vorangetriebenen Miniaturisierung sind Abschattungen durch die zentrale Ringelektrode und die Haltestege weiterhin unvermeidlich. Für den Einsatz dieser Phasenplatte bei strukturb biologischen Untersuchungen ist die Übertragung von niedrigen Raumfrequenzen von entscheidender Bedeutung, da die Abmessungen von Makromolekülen und Proteinkomplexen im Bereich von 10 nm liegen. Ein Abschneiden bei Raumfrequenzen kleiner als $0,53 \text{ nm}^{-1}$, der einen Verlust der Information bei Abständen größer als 2 nm zur Folge hat¹, führt somit zu einer deutlich eingeschränkten Sichtbarkeit der Strukturen. Durch Einführung einer zusätzlichen elektronenoptischen Komponente zur Nachvergrößerung der hinteren Brennebene der Objektivlinse kann dieses Problem deutlich abgeschwächt werden. Allerdings bedingt dies eine Erhöhung der Abbildungsfehler. Der aus der höheren effektiven Brennweite resultierende größere Öffnungsfehler lässt sich durch den Einsatz eines C_s -Korrektors kompensieren. Dem Anwachsen der chromatischen Aberration kann durch Verbesserung der elektrischen Stabilitäten der Hochspannung, der Linsenversorgung und der Reduzierung der Energiebreite durch Einsatz eines Monochromators entgegenwirkt werden. In Zusammenarbeit zwischen der Carl Zeiss NTS GmbH (Oberkochen), dem Max-Planck-Institut für Biophysik (Frankfurt a. Main) und der Firma CEOS (Heidelberg) wurde das Projekt PACEM (*Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope*) realisiert. Ziel des Projektes ist es, durch den Einsatz einer elektrostatischen Phasenplatte in einem C_s -korrigierten TEM biologische Objekte ohne Defokussierung sichtbar zu machen. Das PACEM-Projekt ist in insgesamt drei Projektabschnitte unterteilt, die folgende Schritte beinhalten:

1. Optimierung der Polschuhgeometrie des Objektivs, der Objektraumkühlung und des Vakuumsystems für Kryo- und Tomographieanwendungen. Design, Konstruktion und Bau einer Vergrößerungseinheit für die Beugungsebene. Die-

¹Durchmesser der Ringelektrode 7,2 μm , Objektivbrennweite 2,7 mm, Wellenlänge 2,5 pm

se muss ausreichend Platz bieten, um die Boersch-Phasenplatte und einen Piezomanipulator aufnehmen zu können. Anpassung des Korrektors hinsichtlich Software und Hardware an die neuen Bedingungen und Erprobung mit der Vergrößerungseinheit im PACEM.

2. Entwicklung eines Piezo-Kryo-Goniometers und einer Probentransfereinheit.
3. Integration eines C_s/C_c -Korrektors, um auch im Niederspannungsbereich hohe Auflösungen realisieren zu können.

Durch Einsatz eines Monochromators und C_s -Korrektors soll das Gerät in der Lage sein, ein Informationslimit von 0,2 nm bei 200 kV ohne Kontrastdelokalisierung zu erreichen. Die hierfür notwendigen Modifikationen an einem bestehenden Prototyp, der bereits mit einer Monochromator-FEG und einem Korrektor der Firma CEOS ausgerüstet ist, wird in diesem Kapitel eingehend beschrieben und im darauffolgenden Kapitel 8 das elektronenoptische Design vorgestellt.

7.2 Übersicht

Als Ausgangsbasis für das Projekt wurde ein bestehender Prototyp eines abbildungskorrigierten TEMs (*Sub Ångstrom* TEM, SATEM) [Ben03b] ausgewählt, welcher mit seiner FEG und dem bereits integrierten C_s -Korrektor der Firma CEOS die idealen Voraussetzungen für die weiteren Modifikationen bot. Die wesentlichen Merkmale des Gerätes sind neben der FEG mit Schottky-Emitter und integriertem Monochromator (MC) ein im Strahlengang integriertes Energiefilter und ein neuartiges Untergestell [Ess02] mit hängender 300 mm-Säule, welche direkt unterhalb des Objektivs aufgehängt ist. In Abbildung 7.1 ist der umgebaute Prototyp zu sehen, der mit der zusätzlichen Vergrößerungseinheit (*diffraction magnification unit*, DMU) zur Nachvergrößerung der Beugungsebene ausgestattet wurde.

7.3 Komponenten

7.3.1 FEG mit Monochromator

Die Ansprüche an das Auflösungsvermögen von TEMs sind bei Untersuchungen von materialwissenschaftlichen Proben und Fragestellungen der Strukturbiologie sehr hoch und alleine durch Linsentoptimierungen nicht mehr zu erreichen. Die Verwendung eines leistungsfähigen Elektronenstrahlerzeugers ist daher unabdingbar. Die wichtigsten Kenngrößen zur Beurteilung sind:

1. Der Richtstrahlwert: Der *axiale Richtstrahlwert* (*brightness*) β einer Elektronenquelle ist definiert als [Haw96, Tug85]:

$$\beta = \frac{dI}{dAd\Omega} \quad (7.1)$$

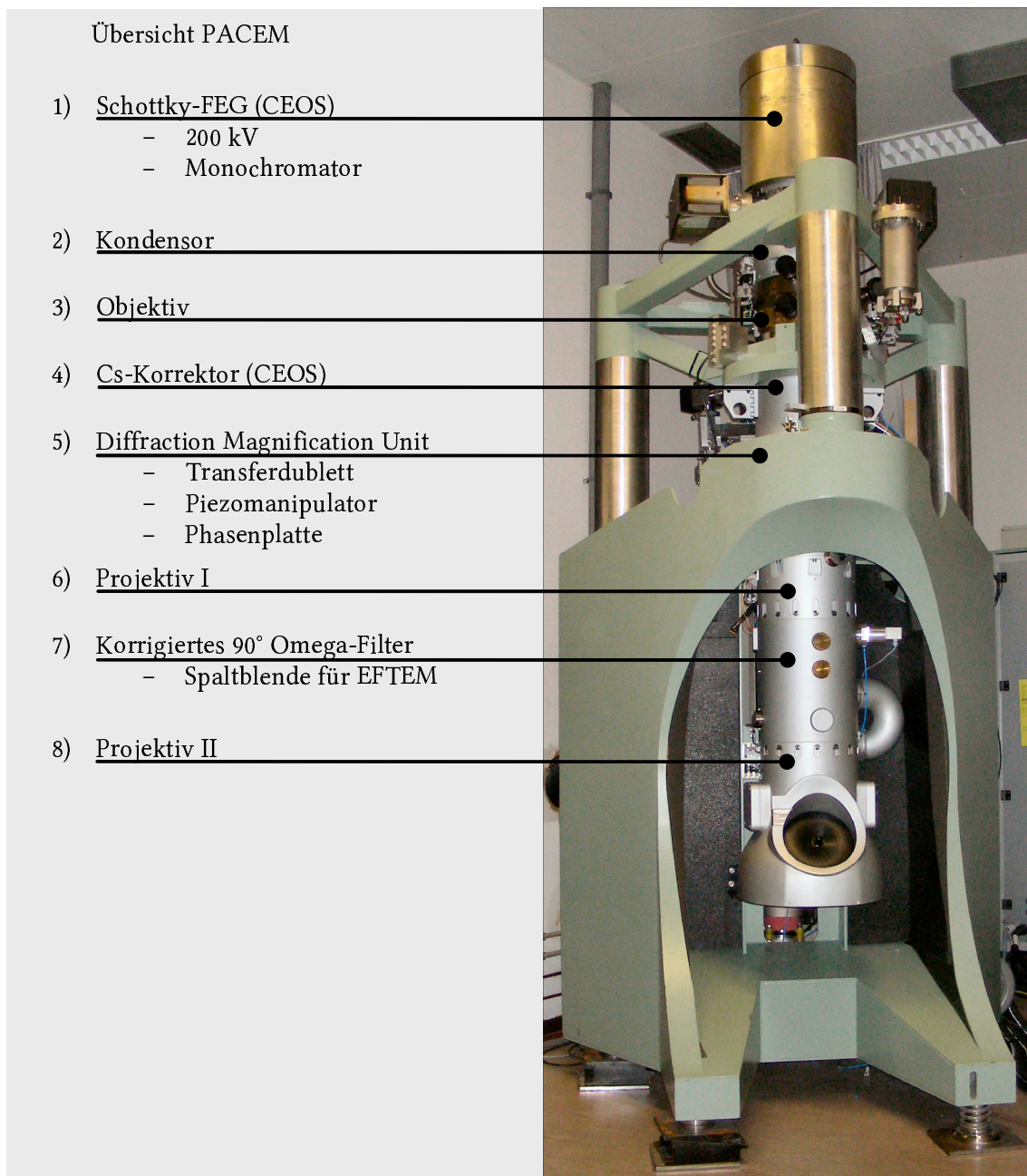


Abbildung 7.1: Das von der Carl Zeiss NTS entwickelte C_s -korrigierte Phasenkontrast-TEM weist folgende Komponenten auf: 1) Schottky-FEG mit Monochromator, 2) dreilinsiger Kondensor, 3) Objektiv mit 15 mm Polschuhspalt, 4) C_s -Korrektor, 5) Diffraction Magnification Unit (DMU) zur Nachvergrößerung der Beugungsebene und Aufnahme der Phasenplatte, 6,8) zweistufiges Projektivsystem, 7) korrigiertes in-column Ω -Filter mit Filterspaltblende für EFTEM-Anwendungen.

Er gibt an, wieviel Strom dI von einem Flächenelement dA in das Raumwinkelelement $d\Omega$ emittiert wird. Der Richtstrahlwert ist im Gegensatz zum Strahlstrom, der beim Durchlaufen der zahlreichen Blenden entlang der Säule abnimmt, eine Erhaltungsgröße. Unter Vernachlässigung von Linsenaberrationen und sofern keine Beschleunigung der Elektronen entlang der Achse erfolgt, ist diese Größe bei Messungen in konjugierten Bildebenen somit stets gleich groß. Da es in der Praxis häufig schwierig ist, den in 7.1 angegeben (absoluten) Richtstrahlwert zu messen, wird stattdessen der *effektive Richtstrahlwert* β_{eff} angegeben, der nur von direkt messbaren Größen abhängt. Dieser ist gegeben durch [Völ99]:

$$\beta_{\text{eff}} = \frac{4I_p}{(\pi d_p \alpha_p)^2} \quad (7.2)$$

Dabei ist I_p der Sondenstrom auf der Probe, d_p der Durchmesser der fokussierten Sonde (typischerweise als volle Halbwertsbreite FWHM angegeben) und α_p der halbe Konvergenzwinkel der Sonde, der durch den Durchmesser der Kondensorblende definiert wird. Der effektive Richtstrahlwert β_{eff} ist stets kleiner als β .

2. Der Kohärenzgrad: Dieser setzt sich aus zwei Komponenten zusammen. Die erste ist die *Längenkohärenz*, welche gegeben ist durch die Energieunschärfe $\kappa = \Delta E/E$. Die zweite ist die *Winkelkohärenz*, die sich aus dem maximalen bildrelevanten Winkel und der Quellgröße ergibt.

In Tabelle 7.1 sind die Eigenschaften der verschiedenen Elektronenemitter zusammengefasst. Wolfram-Haarnadelkathoden waren vor der Einführung der LaB₆-Quellen die am häufigsten eingesetzten Emittoren. Letztere haben sich aufgrund der niedrigeren Arbeitstemperatur und der damit verbundenen geringeren Energiebreite durchgesetzt. Der Richtstrahlwert liegt um den Faktor 10 höher als bei Wolfram-Spitzen. Eine Alternative zur Freisetzung von Elektronen mittels thermischer Emission stellt die Feldemission dar. Durch das Anlegen von hohen Feldstärken (10^7 - 10^8 V/cm) an einer kleinen Spitze mit 10-50 nm Radius können Elektronen aus dem Fermi-Niveau E_F die Potentialbarriere über den Tunneleffekt durchdringen. Im Unterschied zum thermischen Strahlerzeuger entsteht kein reeller Cross-over, sondern eine kleine virtuelle Quelle, die vom Beschleunigungssystem abgebildet wird. Der Vorteil der kalten Feldemissionsquelle (*cold field emission gun*, CFEG) ist die geringe virtuelle Quellgröße in der Größenordnung von nm, die zu einem Richtstrahlwert führt, der drei Größenordnungen über der eines thermischen Emitters liegt. Die Energie-Halbwertsbreite beträgt dabei lediglich 0,2-0,5 eV. Die Anforderungen an die Betriebsbedingungen eines kalten Feldemitters sind hoch. Der Betrieb erfordert Ultrahochvakuum (UHV), das es sonst zu einer Zerstörung der Spitze durch Ionenbombardement aus dem Restgas kommt. Um die Oberflächen des Emitters sauber zu halten, muss regelmäßig ein *flashing* erfolgen, d. h. ein kurzzeitiges Aufheizen, damit durch Adsorption angelagerte Restgasmoleküle entfernt werden und das Spitzenprofil geglättet wird (Vermeidung von Überschlägen). Hohe Anforderungen werden auch an die Stabilität der Hochspannungsversorgung gestellt. Der größte Nachteil, der eine weite Verbreitung des

Feldemitters verhindert hat, ist die mangelnde Emissionsstabilität. Es kommt einerseits zu relativ großen Kurzzeitschwankungen von bis zu 5%, andererseits zu einer Langzeitdrift. Einige Nachteile der kalten Feldemission lassen sich durch moderates Heizen umgehen. Die thermisch unterstützte Feldemission (*heated field emission gun*, HFEG) arbeitet mit Temperaturen von 1000-1500 K, wodurch sich die Energiebreite der emittierten Elektronen auf 0,3-0,5 eV erhöht. Durch das ständige Heizen kommt es zu einer geringeren Adsorption von Restgasmolekülen, was die Strahlstromfluktuationen im Vergleich zu kalten Feldemittern deutlich reduziert. Ein flashing ist daher nicht notwendig.

Die Nachteile der reinen Feldemission lassen sich bei der Schottky-Emission umgehen. Der Schottky-Emitter vom ZrO/W(100)-Typ besteht aus einer einkristallinen Wolframspitze, welche in (100)-Orientierung auf einem Wolfram-Draht aufgepunktet wird. Durch Ätzen erhält man typische Spitzenradien von 0,5-1 μm . Das Aufdampfen von ZrO auf die Spitze führt zu einer Absenkung der Austrittsarbeit von 4,6 eV auf 2,8 eV. Dies erlaubt es den Elektronen, die Potentialbarriere bei einer Temperatur von 1800 K zu überwinden. Die an der Spitze entstehenden Feldstärken reichen nicht für einen merklichen Beitrag durch den Tunneleffekt aus. Dennoch wird in der Literatur der Schottky-Emitter den Feldemissionsquellen zugeordnet. Das Heizen führt zu einer Verdopplung der Energiebreite und einer Verschlechterung der zeitlichen Kohärenz verglichen mit kalten Feldemittern. Der Schottky-Emitter hat sich dennoch aufgrund der einfacheren Handhabung und des stabileren Emissionsverhaltens gegenüber der kalten Emission durchgesetzt. Er besitzt gegenüber den thermischen Emittlern eine deutlich kleinere natürliche Energiebreite. Geht man von einer gaußförmigen Energieverteilung aus, dann fällt der Stromverlust bei der Reduktion der Energiebreite in einem Monochromator bei thermischen Quellen deutlich höher aus als beim Schottky-Emitter. Zusammen mit der seiner sehr kleinen virtuellen Quelle ist der Schottky-Emitter daher für den Einsatz in einem Monochromator prädestiniert, da er eine geringe Energiebreite bei gleichzeitig hohen Strahlströmen ermöglicht.

Um die durch die chromatische Aberration bedingte Dämpfung der PCTF weiter zu verringern, ist in der FEG ein Monochromator verbaut. Dieser elektrostatische Ω -Monochromator wurde von Kahl und Rose [Kah00] vorgeschlagen und in Zusammenarbeit zwischen der Firma CEOS und der Carl Zeiss NTS GmbH entwickelt und zur Serienreife geführt [Mat07]. Er besteht aus vier elektrostatischen Sektorelementen und einem Schlitz in der energiedispersiven Ebene (s. Abb. 7.2b). Er ist in der UHV-Kammer der FEG unterhalb des Emitters und oberhalb des Beschleunigers angebracht und liegt auf Extraktor-Potential. In diesem Bereich ist die Elektronenenergie noch gering und die Dispersion in der Schlitzebene erfordert nur schwache Felder. Mittels Variation der Gunlensspannung kann der Strahl in der energiedispersiven Ebene fokussiert werden und über ein piezobetriebenes Blendenarray die Selektion der Energiebreite erfolgen. Durch Anwahl einer der 10 unterschiedlichen Schlitze von 0,5 μm bis 5 μm kann die Energiebreite der Quelle von typischerweise 0,7 eV auf Werte unter 0,2 eV reduziert werden. Die Dispersion des Monochromators hängt dabei linear vom Extraktorpotential ab und beträgt 12 $\mu\text{m}/\text{eV}$ bei 4 kV Extraktorspannung. Da das Auflösungsvermögen eines C_s -korrigierten TEMs durch

Tabelle 7.1: Vergleich der wichtigen Kenngrößen unterschiedlicher Elektronenquellen [Gra03, Rei93]. Die Abkürzungen CFEG und HFEG stehen für Cold FEG und Heated FEG. Die Angabe der Energiebreite erfolgt als volle Halbwertsbreite (FWHM). (*=virtuelle Quellgröße)

Quelle	Thermische Emission		Feldemission		
Typ	Wolfram	LaB ₆	Schottky	CFEG	HFEG
Kathodenmaterial	W	LaB ₆	ZrO/W(100)	W(310)	W
Betriebstemperatur [K]	2700	1900	1800	300	1000
Spitzenradius [nm]	50.000	10.000	≤1000	≤100	≤100
Eff. Quellgröße [nm]	20-50·10 ³	5·10 ³	10-15 *	3-5 *	100 *
Stromdichte [A/cm ²]	3	20-50	500	2·10 ⁵	5·10 ⁶
Emissionsstrom [μA]	200	80	200	5	5
Austrittsarbeit [eV]	4,5	2,7	2,8	4,6	4,6
Energiebreite [eV]	1-3	0,5-2	0,3-1,0	0,2-0,4	0,5-0,7
Richtstrahlwert [A/m ² sr]	0,3-2·10 ⁹	5·10 ¹⁰	5·10 ¹²	10 ¹³	10 ¹¹
Strahlstromstabilität	<1 %	<1%	<1%	>5%	-
Langzeitstabilität	hoch	hoch	<1%/h	>10%/h	-
Vakuum [Pa]	10 ⁻² -10 ⁻³	10 ⁻³ -10 ⁻⁵	10 ⁻⁷ -10 ⁻⁸	10 ⁻⁸ -10 ⁻⁹	10 ⁻⁸ -10 ⁻⁹
Lebensdauer [h]	25-100	500-1000	>1000	>1000	>1000

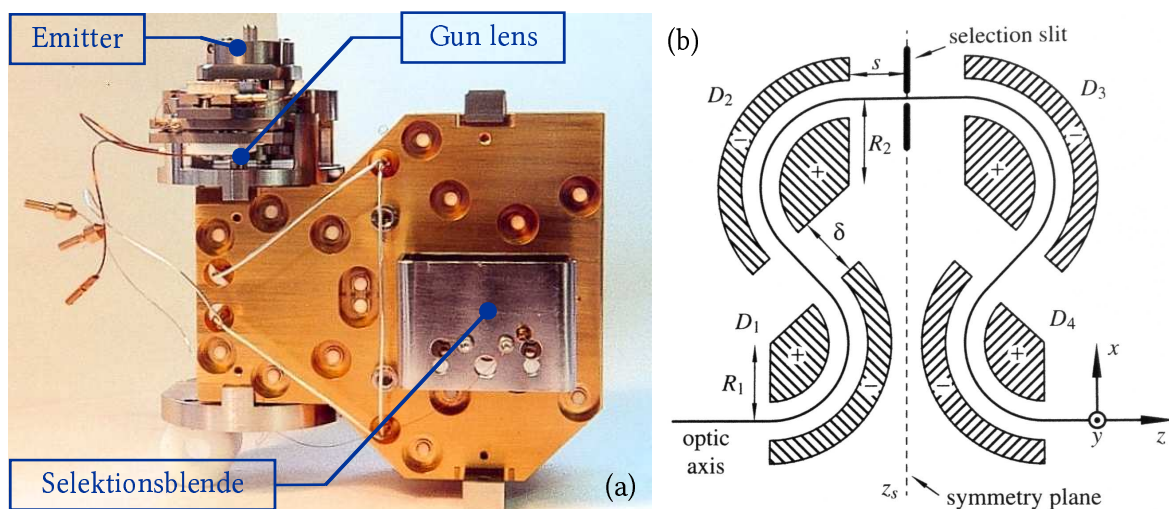


Abbildung 7.2: (a) Der in der FEG verwendete Monochromator. (b) Der schematische Strahlengang. Die zwei Sektorelemente D_1 und D_2 erzeugen die Energiedispersion in der Symmetrieebene z_s , wo über ein Blendenarray die gewünschte Energiebreite selektiert werden kann. Mit den Elementen D_3 und D_4 wird die Aufspaltung nach unterschiedlichen Energien rückgängig gemacht. Die Anordnung wirkt so als abbildendes Energiefilter (aus [Kah00]).

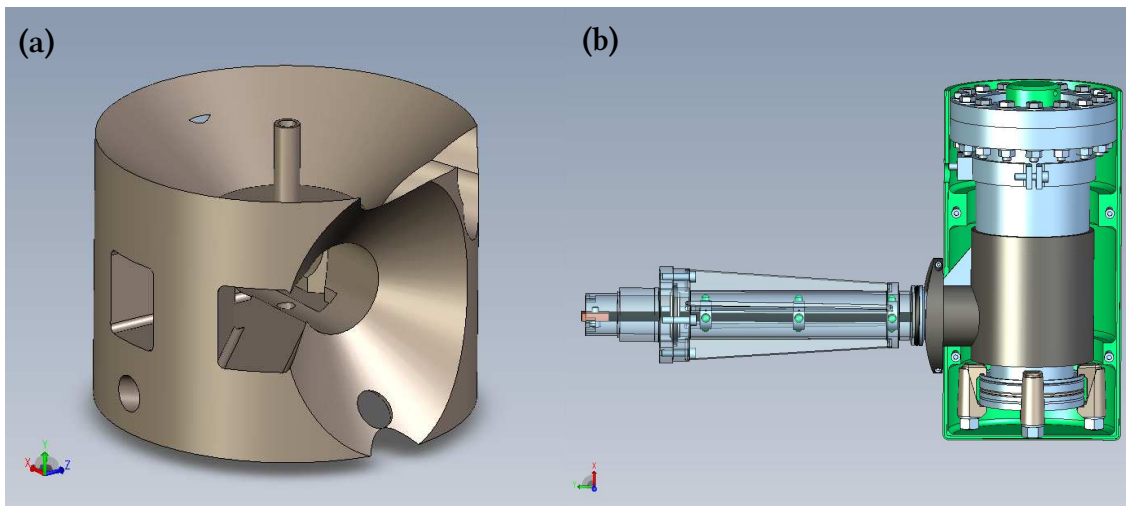


Abbildung 7.3: (a) CAD-Modell des neuen Antikontaminators für das PACEM. (b) Dewar-Gefäß für den flüssigen Stickstoff. Die thermische Kopplung zwischen Dewar und Antikontaminator erfolgt über Kupferlitzen.

die temporale Kohärenz limitiert ist, welche sich aus dem Produkt $C_c \Delta E / E$ ergibt, kann durch Reduzierung der relativen Energiebreite $\Delta E / E$ die chromatische Enveloppe zu höheren Raumfrequenzen verschoben werden. Mit dem bisher verwendeten HR-Objektiv mit 5 mm Polschuhspalt wurde zusammen mit dem MC und dem C_s -Korrektor ein Informationslimit von besser $0,8 \text{ \AA}$ bei 200 kV [Ben04] demonstriert.

Das symmetrische Design des Monochromators führt dazu, dass nach der Selektionsblende auf die Elektronen die gleichen Kräfte wie vor der Blende wirken, nur entgegengesetzt gerichtet. Damit wird die zuvor eingeführte Dispersion des Strahls wieder aufgehoben und der Strahl am Ausgang des Monochromators fokussiert. Ferner bietet der Strahlengang in Ω -Form den Vorteil, dass Eingangs- und Ausgangsablelemente mit einer Bohrung versehen werden können. Es ist so möglich, den Strahl bei ausgeschalteter Spannungsversorgung geradlinig durch den Monochromator zu führen. Dies ist gerade bei Hochstromanwendungen wie EDX wünschenswert, bei denen die Energiebreite des Elektronenstrahls keine Rolle spielt. Im Gegensatz hierzu besitzen die kommerziell verfügbaren Monochromatoren auf Basis eines einzelnen Wien-Filters [Bat00, Moo99, Tie99], wie sie z. B. in Geräten der TITAN-Serie von FEI eingesetzt werden, weder Symmetrien zur Vermeidung des Öffnungsfehlers zweiter Ordnung, noch sind diese in Bildpunkten dispersionsfrei. Um eine Beeinträchtigung der Auflösung durch einen zu schlechten Richtstrahlwert oder eine Regenbogenbeleuchtung zu vermeiden, wird nur mit geringer Erregung gearbeitet. Die daraus resultierende sehr kleine Dispersion erfordert die Verwendung extrem kleiner Spalte (*Nanoslits*) mit Spaltbreiten im Bereich von wenigen nm.

7.3.2 Objektiv und Antikontaminator

Neben der reinen Abbildungsfunktion muss das Objektiv im Zusammenhang mit der Untersuchung biologischer Proben noch weitere Anforderungen erfüllen. Dazu zäh-

len insbesondere ein ausreichend großer Polschuhabstand, um die für die Elektronen-Tomographie notwendigen Probenkippwinkel von mehr als 70° zu ermöglichen, und eine wirksame Objektraumkühlung (*Antikontaminator*). Letztere ist erforderlich, um biologische Proben in ihrem nativen, voll hydrierten Zustand untersuchen zu können. Hierzu werden diese zunächst in flüssigem Ethan bei 80 K schockgefroren (*vittrifiziert*) und im Mikroskop durch flüssigen Stickstoff auf einer Temperatur von ca. -175°C gehalten. Das schnelle Einfrieren verhindert die Entstehung von kristallinem Eis, welches die Zellstrukturen zerstören würde. Das Wasser nimmt einen amorphen, hochviskosen Zustand an, der die Fixierung der Probe ermöglicht, ohne die Zellstrukturen zu verändern.

Im Objektiv verhindert der Antikontaminator eine Erwärmung der Probe durch Wärmeeinstrahlung und bindet gleichzeitig die Restfeuchte, die sich andernfalls auf der Probe als Eisschicht niederschlagen würde. Er wirkt dabei als Kryopumpe, die durch Adsorption, Kryotrapping und Kryosorption Gase an den gekühlten Flächen bindet. Für die Realisierung einer vollflächigen Kühlung wurde ein neuer Antikontaminator konstruiert, der in Abbildung 7.3a) dargestellt ist. Dieser weist an der Ober- und Unterseite Strahlröhrchen auf, die in die Polschuhe des Objektivs hineinragen, um Wassermoleküle, die von der Kondensorseite bzw. aus Richtung des Korrektors kommen, abzufangen. Er wurde mit einer Höhe von 13 mm so dimensioniert, dass er mit einem noch zu entwickelnden Kryo-Piezogoniometer Kippwinkel bis zu $\pm 90^\circ$ zulässt. Die Ankopplung an das Dewar-Gefäß erfolgt über eine Kombination aus massiven Kupferrohren und Kupferlitzen. Letztere vermeiden weitgehend die Übertragung von Vibrationen, wie sie durch das Sieden des flüssigen Stickstoffs beim Befüllen entstehen.

Die Höhe des Antikontaminators macht eine Erweiterung des Polschuhabstands des ursprünglichen HR-Objektivs von 5 mm auf 15 mm erforderlich. Die Auswirkungen dieser Veränderung auf die Abbildungsfehler werden im Rahmen der elektronenoptischen Simulation des Objektivs in Kapitel 8.3 besprochen.

7.3.3 Cs-Korrektor

Der 1990 von Rose [Ros90] vorgeschlagene Korrektor besteht aus einem symmetrisch aufgebauten System aus zwei Rundlinsen-Dubletts und zwei elektromagnetischen Hexapolen. Die praktische Umsetzung des Konzeptes gelang 1998 der Gruppe um Haider [Hai98] im Rahmen des SÄTEM-Projektes (Sub-Ångstrom-TEM) am Europäischen Mikrobiologischen Institut in Heidelberg. Damit konnte erstmalig durch Korrektur der sphärischen Aberration in Verbindung mit einem 200 kV TEM eine Verbesserung der Punktauflösung von $2,6 \text{ \AA}$ auf $1,2 \text{ \AA}$ gezeigt werden. Nach Scherzer ist die erreichbare Punktauflösung beim Phasenkontrast durch den Öffnungsfehler der Objektivlinse bestimmt. Bei Verwendung eines C_s -Korrektors lässt sich dieser variieren. Es limitiert daher nur noch die Dämpfung des Kontrastes bei hohen Raumfrequenzen, welche durch die endliche zeitliche Kohärenz der Elektronenquelle (Energiebreite) und Instabilitäten der Objektivquelle und Hochspannung verursacht wird.

Der Korrektor von Haider et al. nutzt die computergestützte Auswertung von Diffraktogramm-Tableaus, wie sie von Zemlin eingeführt wurde [Zem78]. Damit lässt

sich eine präzise Messung und Korrektur der Aberrationen bis zur dritten Ordnung realisieren.

Die durch die Kippung der Beleuchtung induzierten Fehler erster Ordnung (Defokus und zweizähliger Astigmatismus) werden gemessen und die daraus abgeleiteten Korrekturen über eine Effekt-Tabelle in entsprechende Stromänderungen übersetzt, die auf die Ablenker und Hexapole geleitet werden. Die Steuerung erfolgt dabei über ein graphisches Interface (GUI), das auf einem separaten PC läuft, der über Netzwerk Zugriff auf die Kamera und das Beleuchtungssystem des TEMs hat.

Der TEM-Korrektor von CEOS (CETCOR) zeigt die folgenden Charakteristika² (s. Abb. 7.4):

- Das erste Transferlinsen-Dublett (TL11, TL12) bildet die komafreie Ebene des Objektivs (OL) in den ersten Hexapol (HP1) ab. Diese befindet sich in der Nähe der hinteren Brennebene des Objektivs.
- Ein zweites Transferdublett (TL21, TL22) bildet den ersten Hexapol HP1 seitenverkehrt (Vergrößerung $M=-1$) in das Zentrum des zweiten Hexapols HP2 ab. Dadurch kann der vom ersten Hexapol eingeführte dreizählige Astigmatismus durch den zweiten Hexapol kompensiert werden (s. Abb. 7.4 unten). Die verbleibende sphärische Aberration ist rotationssymmetrisch [Bec79]. Da sie das entgegengesetzte Vorzeichen der sphärischen Aberration des Objektivs besitzt und vom Quadrat der Hexapolerregung abhängt, kann die sphärische Aberration des Gesamtsystems durch entsprechende Erregung der Hexapole korrigiert werden [Hai95].
- Eine zusätzliche Adaptionlinse (ADL) fokussiert den teleskopischen Strahlverlauf in die Zwischenbildebene (SA-Ebene).

Durch zusätzliche Ablenkelemente im Korrektor können die optischen Achsen der einzelnen Elemente zu Deckung gebracht werden können. Die Transferlinsen des Korrektors vergrößern den Farbfehler der Objektivlinse um 15-25% [Hai08b]. Durch die Korrektur des Öffnungsfehlers wird der Einfluss der lateralen Kohärenz, der von der effektiven Größe der Elektronenquelle abhängt, auf das erreichbare Informationslimit minimiert. Es dominiert die temporale Kohärenz.

7.3.4 Diffraction Magnification Unit (DMU)

Wie in der Zusammenfassung in Kapitel 6 festgehalten wurde, ist der vielversprechende Ansatz der Phasenschiebung durch Einsatz einer Boersch-Phasenplatte im Wesentlichen durch den Verlust niedriger Raumfrequenzen limitiert, der aus der Abschattung durch die zentrale Elektrode resultiert. Trotz der Verbesserung der Mikrostrukturierungsprozesse gibt es aus Stabilitätsgründen bei Reduzierung der Abmessungen der zentralen Elektrode und der notwendigen Haltestrukturen eine

²Im Gegensatz zu der von Rose vorgeschlagenen symmetrischen Korrektorkonfiguration (Patent EP 0 451 370) sind bei CEOS die Brennweiten der beiden Linsen des ersten Dubletts nicht identisch ($f_{11} \neq f_{12}$) und unterscheiden sich zusätzlich von der Brennweite des zweiten Transferdubletts ($f_{11} \neq f_{21}$, $f_{12} \neq f_{21}$). Damit kann eine flexible Anpassung an verschiedene Objektivlinsen erfolgen.

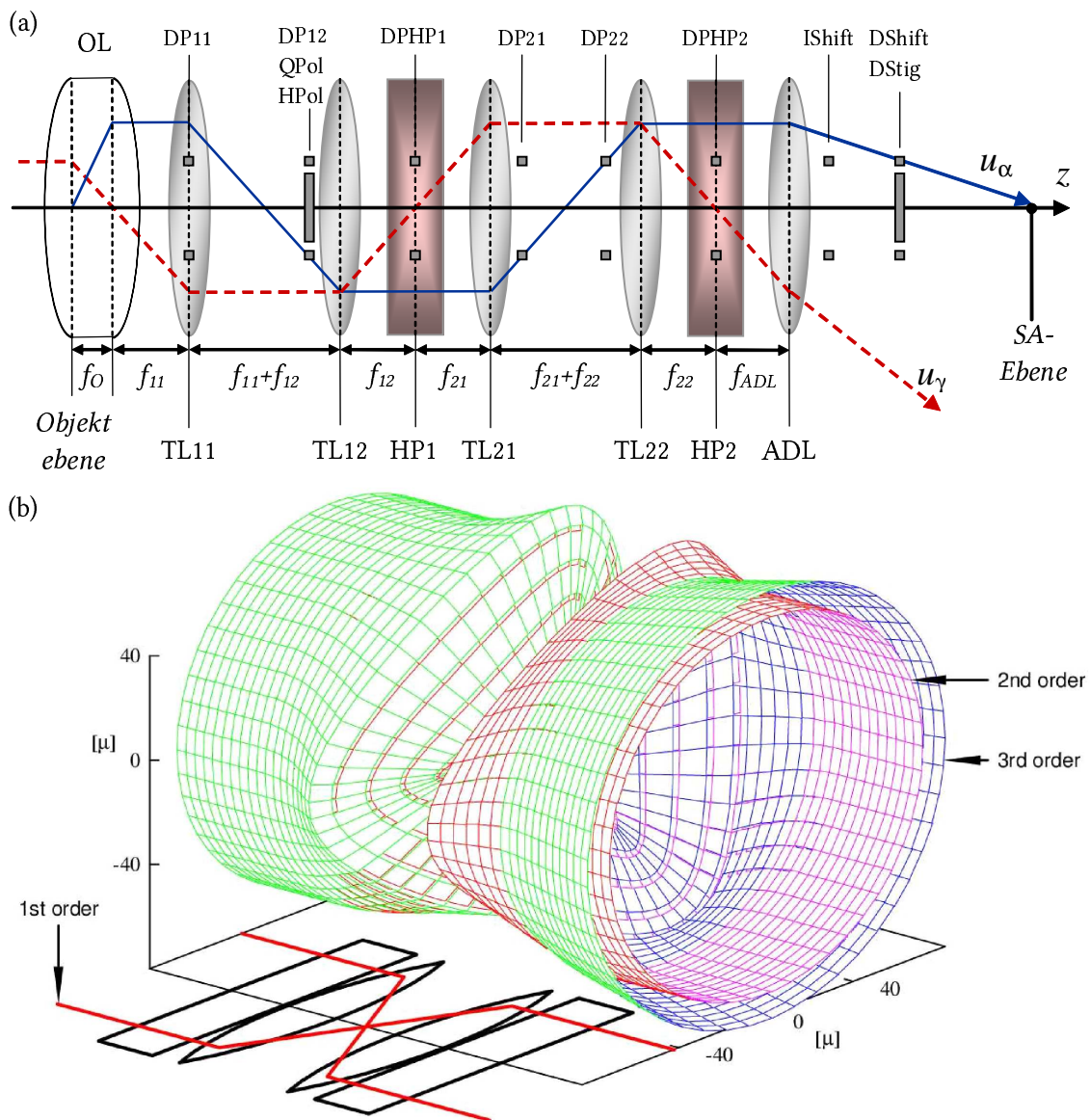


Abbildung 7.4: (a) Anordnung der optischen Elemente und Verlauf der paraxialen Fundamentalbahnen im CEOS TEM Cs-Korrektor (CETCOR). Dieser besteht aus zwei Rundlinsen-Doublets (TL11/TL12 und TL21/TL22) und zwei elektromagnetischen Hexapolen (HP1 und HP2). Die Nullstellen der axialen Bahn u_α geben die Position der Zwischenbilder wieder, während die Feldbahn u_γ die Position der Beugungsbilder beschreibt. (b) Das zweite Transferdoublet bildet in paraxialer Näherung den ersten Hexapol HP1 seitenverkehrt in Hexapol HP2 ab. Dadurch wird der durch den ersten Hexapol eingeführte dreizählige Astigmatismus aufgehoben. Es verbleibt ein runder, divergenter Strahlkegel (aus [Har06]).

untere Grenze. Es muss daher zu anderen Maßnahmen gegriffen werden, um den Informationsverlust so klein wie möglich zu halten. Die naheliegende Lösung besteht in der Erhöhung des Polschuhabstands und damit der Brennweite der Objektivlinse, die eine Vergrößerung des Beugungsbildes in der hinteren Brennebene zur Folge hat. Dadurch werden bei gleicher Strukturgröße der Phasenplatte weniger Raumfrequenzen ausgeblendet. Die Platzierung der Phasenplatte in einem gewöhnlichen Blendenhalter für die Kontrastblende in der hinteren Brennebene der Objektivlinse hat aber einige praxisrelevante Nachteile. Die Übertragungseigenschaften der Phasenplatte reagieren sehr empfindlich auf die laterale Positionierung und Veränderungen der Kippung. Der ungebeugte Zentralstrahl besitzt einen Durchmesser, der vergleichbar mit dem Lochdurchmesser der Ringelektrode ist. Ein Beschnitt des Nullstrahls und damit zusätzlicher Auflösungsverlust kann nur vermieden werden, wenn die Phasenplatte präzise zum Strahl ausgerichtet werden kann. Die Positioniergenauigkeit über einen normalen Blendentrieb ist hierfür nicht ausreichend und bietet keine Möglichkeit zur Kippung. Der Einsatz eines Piezomanipulators mit drei Translationsachsen und einer Rotationsachse ist unumgänglich. Dieser würde aber im Objektiv keinen Platz mehr finden, da der zur Verfügung stehende Raum zwischen den Polschuhen gerade ausreicht, um die Probenraumkühlung (Antikontaminator) unterzubringen. Außerdem wird die Wirkung des Antikontaminators durch das Einbringen eines Blendenhalters vermindert, da sich direkt unterhalb der Probe eine ungekühlte Fläche befindet. Außerdem bedingt jeder Wechsel der Phasenplatte eine Belüftung des Objektivraums. Wurde mit einem gekühlten Antikontaminator gearbeitet, muss dieser zunächst aufgetaut werden, was zusätzlich Zeit beansprucht.

Zur Lösung dieser Probleme wurde für das PACEM ein Transfersystem konzipiert (s. Abb. 7.5), das die hintere Brennebene des Objektivs vergrößert und eine vollständige Trennung von Objektraum und Phasenplattenebene ermöglicht. Das Präparat befindet sich weiterhin im Objektiv, während die Phasenplatte im Vergrößerungssystem Platz findet. Durch die Trennung kann eine ausreichend dimensionierte Probenraumkühlung realisiert werden und der zusätzliche Raum in der Vergrößerungseinheit erlaubt den Einsatz eines Piezomanipulators zur präzisen Ausrichtung der Phasenplatte. Zusätzlich kann durch eine zusätzliche Heiz- oder Kühlvorrichtung die Nutzungsdauer der Phasenplatte erhöht werden.

An die sog. *Diffraction Magnification Unit* (DMU)³ wurden folgende Anforderungen gestellt:

1. Vergrößerung des Beugungsbildes um den Faktor $M_{\text{Diff}} > 5$.
2. Keine signifikante Erhöhung von C_s und C_c .
3. Anordnung der Phasenplatte in der Hauptebene der zweiten Beugungslinse.
4. Ausreichender Polschuhabstand zur Unterbringung eines Piezomanipulators.

Der Strahlengang in Abbildung 7.5 zeigt die prinzipielle Wirkungsweise der Vergrößerungseinheit. Dabei stellen die durchgezogenen Linien die Strahlverläufe für Elektronen dar, die parallel zur optischen Achse aus der Objektebene austreten

³Zum Patent angemeldet, Veröffentlichungsnummer DE 10 2006 011 615 A1

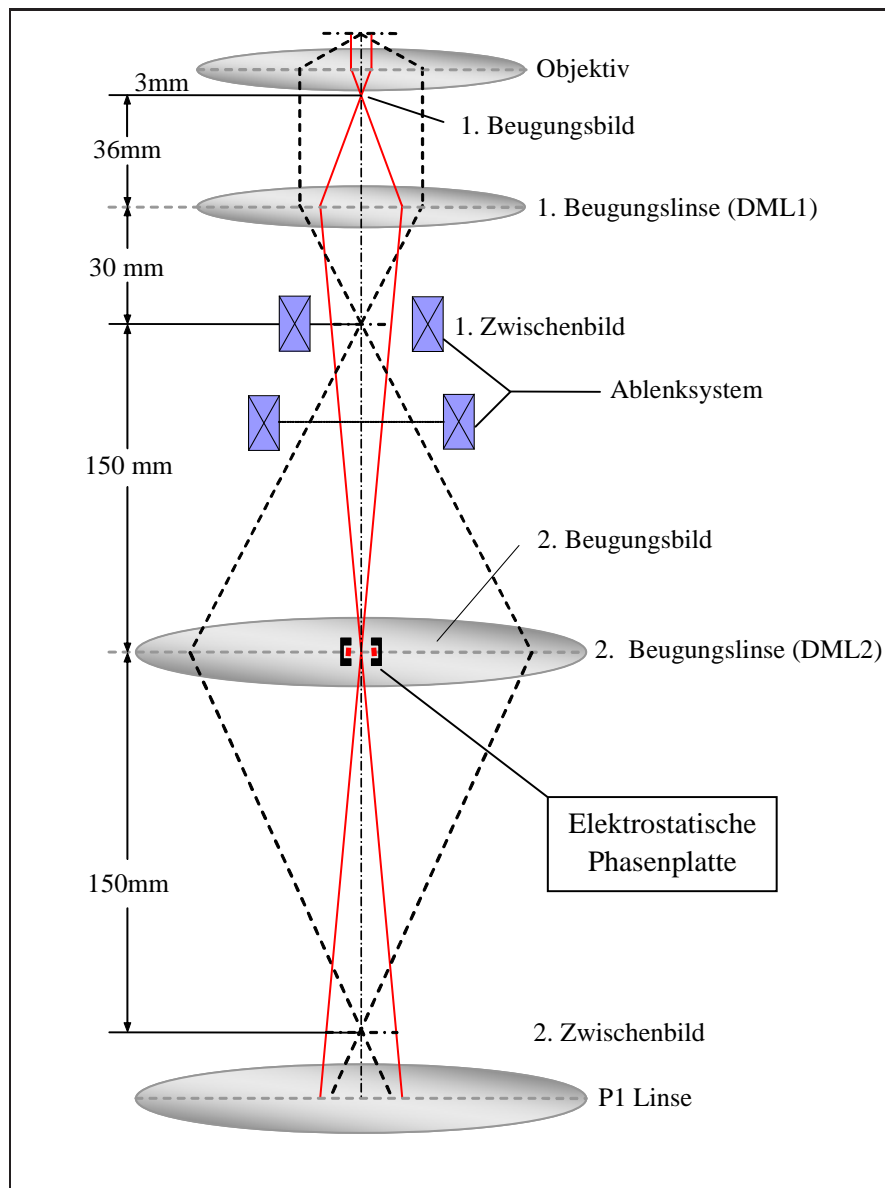


Abbildung 7.5: Strahlengang in der DMU mit realistischen Abstandswerten für die beiden Beugungslinsen. Die Objektivlinse erzeugt zusammen mit der ersten Beugungslinse DML1 ein ca. 10fach vergrößertes Bild der Probe (1. Zwischenbild). Gleichzeitig wird die hintere Brennebene des Objektivs (Beugungsebene) ca. fünfmal vergrößert in die Hauptebene der zweiten Beugungslinse DML2 abgebildet. Dort befinden sich die Phasenplatte und der Piezomanipulator. Durch das Ablenksystem zwischen erster und zweiter Beugungslinse kann die laterale Lage des Beugungsbildes relativ zur Phasenplatte verändert werden.

(Beleuchtungs- oder Pupillenstrahlengang). Die gestrichelten Strahlverläufe stehen für Elektronen, die unter einem Winkel zur optischen Achse aus der Objektebene austreten (axialer Strahl, Abbildungsstrahlengang). Unmittelbar unterhalb des Objektivs mit der Brennweite f_{Obj} sitzt eine erste Beugungslinse DML1⁴ mit der Brennweite f_{DML1} . Die Abbildung der Objektebene auf die erste Zwischenbildebene erfolgt telezentrisch, d. h. die axiale Bahn zwischen Objektiv und DML1 verläuft achsenparallel. Bei diesem Strahlengang kann man die Vergrößerung der Anordnung wie folgt angeben:

$$M_B = \frac{f_{\text{DML1}}}{f_{\text{Obj}}} \quad (7.3)$$

Mit den Werten aus Abb. 7.5 ergibt sich also ein ca. 10fach vergrößertes Bild des Präparates. Gleichzeitig wird die hintere Brennebene (Beugungsebene) des Objektivs ca. 5fach vergrößert in die Hauptebene der zweiten Beugungslinse DML2 abgebildet. In dieser befindet sich die Phasenplatte. Durch die Vergrößerung, die die DML1 bewirkt, kann der Durchmesser der Phasenplatte gegenüber einer Anordnung direkt im Objektiv vergrößert werden. Da insbesondere die Breite der Ringelektrode unverändert bleibt, kann dadurch der Beschnitt bei niedrigen Raumfrequenzen reduziert werden. Durch das Ablenssystem, das sich zwischen erster und zweiter Beugungslinse befindet, lässt sich das Beugungsbild des Objektivs relativ zu Phasenplatte verschieben. Da die zweite Beugungslinse so angeordnet ist, dass ihre Hauptebene mit der Beugungs-Zwischenbildebene zusammenfällt oder zumindest in der Nähe liegt, hat sie keinen wesentlichen Einfluss auf die weitere Abbildung des Beugungsbildes. Sie führt in erster Linie zu einer Abbildung des Zwischenbildes der Objektebene in die Eingangsbildebene des Projektivsystems. Eine Änderung der Erregung führt lediglich zu einer Drehung des Beugungsbildes. Die zweite Beugungslinse bildet das erste Zwischenbild der Objektebene im Verhältnis 1:1 in die Eingangsbildebene des Projektivs (SA-Ebene) ab. Alle anderen Linsen behalten ihre Funktion bei und wirken in den unterschiedlichen Abbildungsmodi wie in einem konventionellen TEM.

Soll die Vergrößerungseinheit wie im vorliegenden Fall in ein Gerät mit C_s -Korrektor eingebaut werden, bestehen für die Integration in der elektronenoptischen Säule zwei Möglichkeiten. Zum einen kann die DMU zwischen Objektiv und Korrektor angebracht werden, oder man behält die Paarung von Objektiv und Korrektor bei und fügt die DMU unterhalb des Korrektors an. Die Anordnung der DMU oberhalb des Korrektors erfordert einen hohen konstruktiven Aufwand, da die DML1 in den unteren Linsentopf der Objektivlinse eingepasst werden muss. Im Linsentopf ist nur wenig Platz vorhanden und es besteht die Gefahr, über die Linsen Kühlung Vibrationen einzukoppeln, die das Auflösungsvermögen verschlechtern. Ferner sollte die Störkontur der Unterseite der DMU identisch zu der vom Objektiv sein, um Änderungen am Korrektor zu vermeiden. Dies lässt sich dadurch realisieren, dass die DMU in einem modifizierten (zweiten) Objektiv untergebracht wird. Durch einen der acht seitlichen Ports kann eine zusätzliche Kühlfalle in der Phasenplattenebene eingebracht werden.

Die Anordnung der DMU nach dem Korrektor reduziert die notwendigen Modifikationen auf ein Minimum, da die Kopplung zwischen Objektiv und Korrektor

⁴DML steht für Diffraction Magnification Lens

unangetastet bleibt. Die Adaptionlinse ADL des Korrektors kann als erste Linse der Transfereinheit genutzt werden. Es ist nur noch eine weitere Linse samt Stromquelle erforderlich, um die DMU zu realisieren. Eine zeitaufwendige Änderung am Korrektor entfällt. Damit ist diese Konfiguration sowohl vom konstruktiven Aufwand als auch vom Umfang der Modifikationen der ersten Variante vorzuziehen. Eine Gegenüberstellung der Vor- und Nachteile dieser zwei Konfigurationen ist in Tabelle 7.2 zusammengefasst.

Tabelle 7.2: Gegenüberstellung der zwei Möglichkeiten zur Integration der DMU bei einem C_s -korrigierten TEM.

Integration	DMU oberhalb CETCOR	DMU unterhalb CETCOR
Strahlen- gang		
Aufbau	DML1 muss für den Einbau in den Objektivkanal adaptiert werden. DML2 muss an Korrektor adaptiert werden. Die Linsen werden in einem Objektivgehäuse untergebracht.	Adaptionlinse ADL des Korrektors kann als erste Beugungslinse DML1 verwendet werden. Einfaches Design für DML2.
Kryo	Optimierung für Objektivraum und Phasenplatte möglich. Durch die Verwendung zweier Objektive stehen ausreichend Ports zur Verfügung.	Maßnahmen für den Objektivbereich sind leicht umsetzbar. Für die Phasenplatte muss ein ausreichender Polschuhspalt der DML2 gewählt werden. Es sind zusätzliche Ports vorzusehen.
Alignment	Anpassung erforderlich	Anpassung erforderlich
Aufwand	Hoch, da eine Adaption an Korrektor- und Objektivschnittstelle erforderlich ist.	Niedrig, da die Kopplung zwischen Objektiv und Korrektor bestehen bleibt. Es ist nur eine neue Linse erforderlich.
Vorteile/ Nachteile	Hoher konstruktiver Aufwand Einfache Realisierung von Kryo-Maßnahmen	Geringer konstruktiver Aufwand Schnellste Lösung

Kapitel 8

Simulation geeigneter Geometrien

8.1 Elektronenoptisches Design

Das Design magnetischer Linsen umfasst das elektronenoptische Design und das Design des Eisenkreises und der darin enthaltenen Spulen. Die heute geläufige Berechnung der elektronenoptischen Eigenschaften von Magnetlinsen geht auf Munro zurück, der 1973 numerische Verfahren einführte. Vor dieser Zeit wurden Berechnungen primär analytisch anhand von Modellen der axialen Feldverteilung vorgenommen. Die einzelnen Schritte bei der numerischen Berechnung sind:

- FEM Berechnung der magnetischen Flussdichte.
- Berechnung der axialen magnetischen Feldverteilung aus der magnetischen Flussdichterverteilung.
- Berechnung der paraxialen Strahlen durch Anwendung des Runge-Kutta-Verfahrens aus der axialen magnetischen Feldverteilung.
- Berechnung der Fehlerintegrale aus der axialen magnetischen Feldverteilung und den paraxialen Strahlen.

8.2 Software

Die bei der Berechnung elektronenoptischer Systeme verwendeten Programme lassen sich zunächst hinsichtlich der Berechnungsmethode (analytisch oder numerisch) unterscheiden. Da sich nur bei einfachen Geometrien analytische Lösungen finden lassen, ist die Verwendung von numerischen Verfahren unumgänglich. Sie dienen zur räumlichen Diskretisierung der partiellen Differentialgleichungen.

Die numerischen Verfahren lassen sich in drei Klassen einteilen. Zum einen die Methode der Finiten Differenzen (*finite difference method*, FDM), mit der sich Differentialgleichungen mit Rand- und Anfangswerten numerisch berechnen lassen. Grundlage ist die Diskretisierung des Modells durch ein üblicherweise, aber nicht notwendigerweise rechteckiges Gitter mit einer endlichen Anzahl von Gitterpunkten. Die Ableitungen an den Gitterpunkten werden durch Differenzen approximiert. Die

partiellen Differentialgleichungen (z. B. Laplace-Gleichung) wird in ein System von Differenzgleichungen überführt und mittels expliziter oder impliziter Verfahren gelöst. Die *Finite-Elemente-Methode* (*finite element method*, FEM) ist eine Alternative zum Finiten Differenzverfahren und bietet durch die flexible Diskretisierung eine größere Flexibilität insbesondere bei mehrdimensionalen Problemen.

Eine dritte Möglichkeit stellt die Integralgleichungsmethode dar, zu der z. B. die *Randelementmethode* (*boundary element method*, BEM) gehört. Die BEM hat sich bei der Lösung elektrostatischer Probleme mit metallischen Elektroden und dielektrischen Materialien als nützlich erwiesen. Magnetostatische Systeme mit Linsenspulen und Eisenkreis lassen sich ebenfalls behandeln, sofern es nicht zur Sättigung im Material kommt und somit keine Nichtlinearitäten auftreten. Bei der Berechnung von gesättigten magnetischen Materialien wird auf die vordiskreten Methoden FDM und FEM zurückgegriffen.

8.2.1 SPOC

Um die Eigenschaften von Magnetfeldlinsen hinsichtlich der Bildfehler und der auftretenden Sättigungseffekte beim Design erkennen zu können, ist es notwendig, das Magnetfeld im gesamten Eisenkreis und den Erzeugerspulen zu kennen. Dies ist besonders bei der Objektivlinse von Bedeutung, die häufig nahe der Sättigung betrieben wird. Das Programmpaket SPOC¹ [Len86] besteht aus mehreren Anwendungen, mit denen ein Großteil der Probleme, die bei der Entwicklung von elektronenoptischen Systemen auftreten, gelöst werden können. Allen Programmen gemeinsam ist, dass sie sich bei der Berechnung der zweidimensionalen Feldverteilung auf die Finite-Elemente-Methode erster Ordnung (*first-order finite element method*, FO-FEM) [Len99] zurückgreifen.

Bei der Simulation von Magnetlinsen im Programm `magnetic lens properties` wird der meridionale Schnitt der Linse in Vierecke unterteilt, deren Lage mit der des Eisenkreises und der Spulenwicklungen übereinstimmen (*coarse mesh*). Es können maximal 40×40 Gitterlinien zur Festlegung der Linsengeometrie verwendet werden. Dieses Gitter wird durch ein weiteres feines Gitter aus Vierecken unterteilt (*fine mesh*), dessen Eckpunkte für die Evaluierung des Potentials dienen. Jedes der Quadrate wird in zwei Dreiecke unterteilt, die finiten Elemente. Nach erfolgter Eingabe der Geometriedaten und der Erregungen für die Spulen im Programm `magnetic lens design` kann anschließend die Potentialverteilung an allen Gitterpunkten bestimmt werden. Da der zu untersuchende Bereich Spulenwicklungen enthält, muss vom magnetischen Vektorpotential A ausgegangen werden. Den Verlauf der paraxialen Strahlen erhält man aus der paraxialen Bewegungsgleichung [Orl97]:

$$u''(z) + \frac{e}{8mU} B^2(z) u(z) = 0 \quad (8.1)$$

Diese Gleichung kann numerisch mittels des Runge-Kutta Verfahrens gelöst werden. Nach Berechnung von $B(z)$ und der axialen Ableitung $B'(z)$ erhält man die Aber-

¹Software for Particle Optics Computations

rationskoeffizienten C_s und C_c bezogen auf die Bildebene an der Stelle z_i [Orl97]:

$$C_s = \frac{e}{128mU} \frac{1}{u'^4(z_i)} \int_{z_0}^{z_i} \left[\frac{3e}{mU} B^2 u^2 + 8B'^2 u^2 - 8B^2 u'^2 \right] u^2 dz \quad (8.2)$$

$$C_c = \frac{e}{8mU} \frac{1}{u'^4(z_i)} \int_{z_0}^{z_i} B^2 u^2 dz \quad (8.3)$$

Dabei ist $u(z)$ die paraxiale Bahn, die von der optischen Achse in der Objektebene bei z_0 startet und die Achse ein zweites Mal in der Bildebene an der Stelle z_i schneidet. Ähnliche Ausdrücke lassen sich auch für die anderen Aberrationen angeben.

8.2.2 ELSA

Die wichtigsten Eigenschaften elektronenoptischer Systeme sind die Abbildungseigenschaften, wie Vergrößerung, Bildlage und Aberrationen. Diese ergeben sich aus dem Verlauf der *Fundamentalbahnen*, welche linear unabhängige Lösungen der paraxialen Bewegungsgleichung 8.1 sind. Jede Lösung dieser homogenen Differentialgleichung zweiter Ordnung lässt sich als Linearkombination aus den Fundamentalbahnen ausdrücken:

$$u = \alpha u_\alpha + \gamma u_\gamma \quad (8.4)$$

Die Fundamentalbahnen werden in der Objektebene bei z_0 durch folgende Anfangsbedingungen definiert (s. Abb. 8.1):

$$\begin{aligned} u_\alpha(z_0) &= 0, & u'_\alpha(z_0) &= 1 \\ u_\gamma(z_0) &= 1, & u'_\gamma(z_0) &= 0 \end{aligned} \quad (8.5)$$

Die *axiale Bahn* u_α startet in der Objektebene an der Stelle z_0 . Die Nullstellen dieser Bahn geben die Positionen der Zwischenbilder wieder. Die *Feldbahn* u_γ durchläuft das Zentrum der komafreien Ebene an der Stelle $z = z_c$. Diese Ebene liegt im Feld der Objektivlinse vor der hinteren Brennebene. Die Nullstellen dieser Bahn geben die Position der Beugungsbilder wieder. Die zwei Lösungen in der Bildebene bestimmen die grundlegenden optischen Parameter: die bildseitige Brennweite f_i , die laterale Vergrößerung M und die Angularvergrößerung M_A [Orl97]:

$$f_i = -\frac{1}{u'_\gamma(z_i)}, \quad M = u_\gamma(z_i), \quad M_A = u'_\alpha(z_i) \quad (8.6)$$

Zur Berechnung der Bildfehler des gesamten elektronenoptischen Systems bestehend aus Objektiv, C_s -Korrektor und DMU wurde das Programm ELSA verwendet. Hiermit lassen sich zylindersymmetrische elektrostatische und magnetische Anordnungen mit gerader Achse berechnen, die Fundamentalbahnen darstellen und die Bildfehler bis zur fünften Ordnung ausgeben. Es wurde ursprünglich für die Simulationen im Spektromikroskop SMART² entwickelt [Pre00] und nutzt die Methode der

²SMART steht für Spectro-Microscope with Aberration correction for many Relevant Techniques

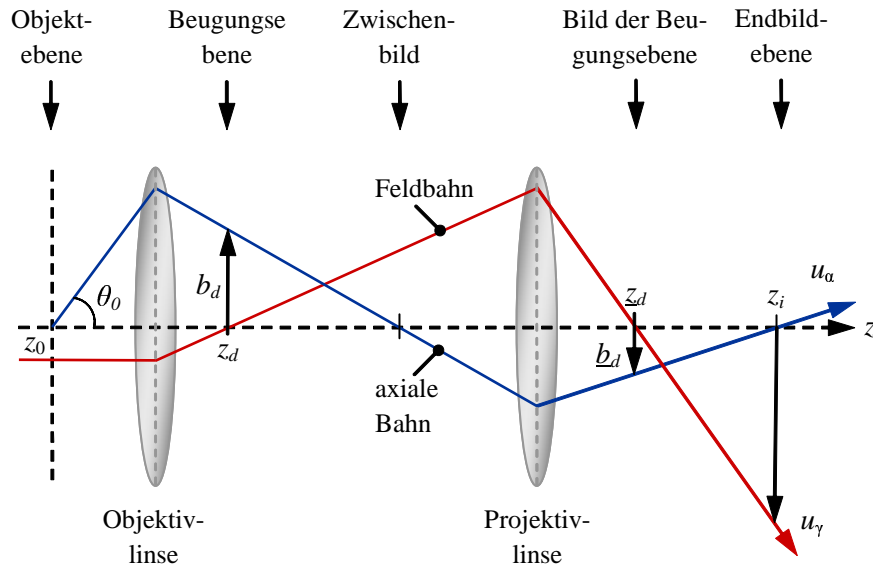


Abbildung 8.1: Illustration zur Nomenklatur der Fundamentalbahnen und ihrer Bedeutung für die Lage der Beugungs- und Bildebenen. Die Nullstellen der axialen Bahn u_α geben die Position der Zwischenbilder wieder, während die Feldbahn u_γ die Position der Beugungsbilder beschreibt. Jede mögliche Bahn ist eine Linearkombination dieser beiden Fundamentalbahnen.

Randelemente zur Berechnung der elektromagnetischen Felder. Die Berandung wird durch diskrete Ringladungen/-ströme modelliert, welche so entlang der Elektroden platziert werden, dass das Feld im interessierenden Raumgebiet durch Superposition über die einzelnen Felder nachgebildet wird. Es berücksichtigt im Gegensatz zu SPOC keinerlei Sättigungseffekte im Eisenkreis.

8.3 Simulation des Objektivs

8.3.1 Polschuhgeometrie

Die neue Polschuhgeometrie wurde ausgehend von dem Design für ein Seriengerät vom Typ Zeiss LIBRA 200³ so geändert, dass sich ein Polschuhabstand d_{gap} von 15 mm bei einem Bohrungsradius r_{bore} von 3,75 mm ergibt. Die übrigen Abmessungen der Linsentöpfe und des Objektiv-Achtkants wurden von der Serie übernommen. In Abbildung 8.2 ist das mit dem Programm `magnetic lens design` aus dem Programmpaket SPOC erstellte Geometrie-File zu sehen, welches neben dem kompletten Eisenkreis auch die Erregerspulen beinhaltet.

8.3.2 Abbildungseigenschaften

Mit dem erstellten Geometrie-File und der Randbedingung einer teleskopischen Abbildung wurde mit `magnetic lens properties` die sphärische und chromatische

³<http://www.zeiss.com/nts>

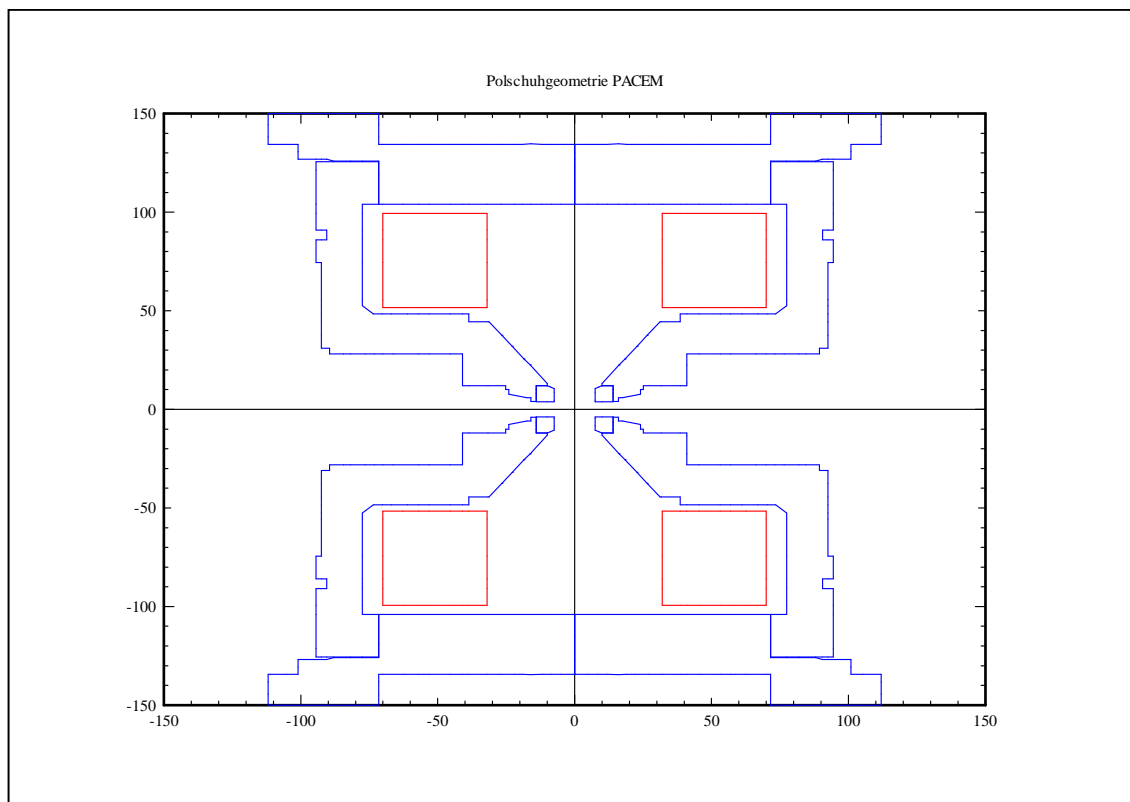


Abbildung 8.2: Querschnittsmodell des PACEM-Objektivs. Die optische Achse verläuft horizontal bei $y=0$. Dieses mit dem Programm *magnetic lens design* erstellte Modell dient als Vorgabe für die FOFEM-Simulation und die Bestimmung der Abbildungseigenschaften. Die Polschuheinsätze wurden gegenüber dem Serienobjektiv so modifiziert, dass sich ein Abstand von 15 mm bei einem Bohrungsdurchmesser von 7,5 mm ergibt. Die Linsenspulen sind als Quadrate eingezeichnet.

Aberration bestimmt. Die Ergebnisse der Berechnung sind in Tabelle 8.1 wiedergegeben. Die Brennweite der Objektivlinse ändert sich durch die Vergrößerung des Polschuhabstands auf 15 mm von 3 mm auf 4,7 mm. Da der Koeffizient der sphärischen und chromatischen Aberration mit der Brennweite skaliert, kommt es auch hier zu Veränderungen: C_s vergrößert sich von 1,2 mm auf 3,7 mm, C_c von 1,2 mm auf 3,5 mm. Für die weiteren Betrachtungen ist zu beachten, dass SPOC den nicht-relativistischen Farbfehler ausgibt, d. h. es gilt bei 200 kV:

$$C_c^* = 1,16 \cdot C_c = 4,06 \text{ mm} \quad (8.7)$$

Da jede Spule aus zwei separaten Wickeln mit je 1228 Windungen besteht, ergibt sich für die gesamte Spule ein Nennstrom von $9920 \text{ At}/2456 \text{ t}=4032 \text{ mA}$.

Tabelle 8.1: Ergebnis der Simulation mit SPOC für das neue Objektiv. In der ersten Zeile sind die vorgegebenen Parameter Polschuhbohrung r_{bore} , Polschuhabstand d_{gap} , Windungszahl N und die relativistisch korrigierte Beschleunigungsspannung U_0 angegeben. Die zweite Zeile enthält die berechneten Fehlerkoeffizienten, die Objektivbrennweite f_{Obj} sowie die Erregung NI .

r_{bore}	d_{gap}	N	U_0
3,75 mm	15 mm	2456	239,13 kV
C_s^{Obj}	C_c^{Obj}	f_{Obj}	NI
3.66 mm	3.50 mm	4.69mm	9764,75 At

8.4 Simulation des Gesamtsystems

8.4.1 Vorgaben

Ausgehend von dem im vorangegangenen Kapitel festgelegten Design des Objektivs wurde zusammen mit den Konstruktionsdaten des im Gerät integrierten C_s -Korrektors ein elektronenoptisches Modell der PACEM-Linsenkonfiguration in ELSA erstellt. Dieses diente zur Berechnung von C_s und C_c bei unterschiedlichen DMU-Konfigurationen. Da es sich hierbei um ein vereinfachtes Modell des Korrektors handelt, welches lediglich die Linsen der beiden Transferlinsen-Dubletts sowie der Adaptionlinse ADL berücksichtigt, nicht jedoch Einflüsse der Ablenker, können keine Aussagen über Fehler höherer Ordnung getroffen werden. Ebenso bleibt die korrigierende Wirkung der beiden Hexapole unberücksichtigt. Bei den durchgerechneten Designvarianten mussten folgende Punkte berücksichtigt werden:

- Der Polschuhabstand d_{gap} der DML2 muss ausreichend Platz für den Piezomanipulator und das Blendengehäuse bieten. Ausgehend von den CAD-Daten wurde als untere Grenze ein Wert von 25 mm ermittelt.
- Die Vergrößerung der hinteren Brennebene des Objektivs soll $M_{\text{Diff}} > 5$ betragen. Die Angabe der Größe des Beugungsbildes in der zweiten Beugungslinse DML2 lässt sich durch die effektive Brennweite $f_{\text{eff}} = f_{\text{BPP}}$ in der Phasenplattenebene bei $z = z_{\text{BPP}}$ charakterisieren⁴. Der Durchmesser einer Blende mit dem Halbwinkel α bezogen auf die Objektebene ist $d = 2\alpha f_{\text{BPP}}$ in der Phasenplattenebene. Bezogen auf das bisher zum Test der Boersch-Phasenplatte verwendete Mikroskop vom Typ LEO EM 922 Ω mit einer Objektivbrennweite von $f_{922} = 2,7$ mm bedeutet dies, dass man eine effektive Brennweite von $f_{\text{eff}} = 15$ mm benötigt. Die erforderliche Verlängerung der Säule ergibt sich aus der gewünschten Vergrößerung des Beugungsbildes in der Phasenplattenebene und der Zwischenbildvergrößerung in der SA-Ebene.
- Die Vergrößerung von C_c , die aus der Erweiterung des Polschuhabstands des Objektivs und den Beiträgen von Korrektor und DMU resultieren, darf zusammen mit den elektrischen Stabilitäten der Linsenversorgung, der Hoch-

⁴BPP steht dabei für Boersch Phase Plate

spannung sowie der Energiebreite der Elektronen das Informationslimit nicht schlechter als 0,2 nm werden lassen.

8.4.2 Vergleich der Simulationsergebnisse für das Objektiv

Im ersten Schritt soll zunächst ein Vergleich zwischen den Simulationsergebnissen des detaillierten FOFEM Objektiv-Modells aus dem Programm SPOC und dem vereinfachten Modell aus der Berechnung mit ELSA gezogen werden. Dies ist erforderlich, da das Objektiv im Vergleich zur DMU eine kompliziertere Geometrie besitzt und mit einer höheren Erregung betrieben wird. Letzteres kann zu Sättigungserscheinungen im Polschuh führen, die von ELSA nicht berücksichtigt werden. Im zweiten Schritt werden insgesamt fünf verschiedene Varianten vorgestellt, die die in Abschnitt 8.4.1 aufgeführten Kriterien erfüllen. Die Letzte wurde von CEOS vorgeschlagen und dient als Referenz, um die Berechnungen des in ELSA entwickelten Modells zu überprüfen.

Bei den in Tabelle 8.2 angegebenen Werten ist zu beachten, dass SPOC den nicht-relativistischen Farbfehler ausgibt, d. h. es gilt bei 200 kV:

$$C_c^* = 1,16C_c = 4,06 \text{ mm}$$

Weiterhin ist für den Vergleich zu berücksichtigen, dass die Bewegungsgleichungen in ELSA sich auf die relative Energieabweichung $\kappa = \Delta E/E_0^* = \Delta E/e\phi^*$ beziehen [Pre95]. Damit muss für den chromatischen Fehlerkoeffizienten aus der SPOC-Simulation zusätzlich der Faktor $\phi^*/\phi = 1,19$ berücksichtigt werden. Insgesamt führt dies zu einem C_c von 4,83 mm, was sehr gut mit dem Ergebnis der ELSA-Simulation von 4,78 mm übereinstimmt.

Die Berechnung von C_s in ELSA liefert einen Wert von 3,52 mm, was gut mit dem von SPOC ermittelten Wert von 3,66 mm übereinstimmt. Es treten also insgesamt bei den Fehlern keine relevanten Abweichungen auf, sodass das einfachere ELSA-Modell für die Simulation des Gesamtsystems herangezogen werden kann.

Tabelle 8.2: Vergleich der Simulationsergebnisse des vereinfachten Objektiv-Modells aus ELSA und dem detaillierten FOFEM-Modell aus SPOC. Der jeweils linke Wert ergibt sich aus der Simulation mit ELSA, der rechte Wert aus der Berechnung mit SPOC. Bei der Angabe von C_c ist zu beachten, dass SPOC den nichtrelativistischen Fehler ausgibt, der Wert bei 200 kV also noch mit dem Faktor 1,16 multipliziert werden muss. Ferner ergibt sich aus der Normierung der Bewegungsgleichungen in ELSA ein zusätzlicher Faktor von 1,19. Beide Faktoren führen zu dem in der Klammer angegebenen Wert.

Simulationsparameter	OBJ $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$		
Wert	3,75 mm/15 mm		
Ergebnisse d. Simulation	f_{Obj} [mm]	C_s^{Obj} [mm]	C_c^* [mm]
	4,62/4,69	3,52/3,66	4,78/3,50 (4,83)
Erregung [At]	OBJ 9873		

8.5 Variante 1

Die erste Konfiguration wurde unter der Prämisse erstellt, die Abstände der Elemente möglichst klein zu halten. Für den Polschuhspalt d_{gap} der zweiten Beugungslinse DML2 wurde daher ein Wert von 25 mm angesetzt, der zwar die Unterbringung des Piezomanipulators erlaubt, aber für eine zusätzliche Kühlvorrichtung in der Phasenplattenebene zu knapp bemessen ist. Da die DMU im vorliegenden Fall nur aus einer zusätzlichen Linse besteht, wird die DML2 im Folgenden nur noch als DML bezeichnet. Ausgehend von geometrisch-optischen Betrachtungen wurde ein Abstand von 425 mm zwischen der Oberseite der DML (Beginn des Eisenkreises) und Objektebene (OBE) gewählt. Der Abstand zur Phasenplattenebene (PPE) ergibt sich, indem man den halben Polschuhspalt der DML $d_{\text{gap}}/2$ und die Dicke des Eisenkreises (5 mm) hinzuaddiert. Für die vorliegende Konfiguration ergibt sich somit ein Wert von 442,5 mm. Für den Abstand zwischen SA-Ebene (SAE) und Objektebene (OBE) wurde ein Wert von 500 mm gewählt. In Tabelle 8.3 sind die Abbildungseigenschaften dieser Konfiguration und die hierzu erforderlichen Linsenerregungen, wie sie sich aus der Simulation mit ELSA ergeben, zusammengefasst. Das Vorzeichen der einzelnen Linsenerregung ist dabei so gewählt, dass die Larmordrehung des Linsensystems minimiert wird. Sowohl Farb- als auch Öffnungsfehler der Gesamtanordnung fallen mit 18,5 mm und 9,4 mm sehr hoch aus. Als problematisch erweist sich die mit der Anordnung realisierbare Zwischenbildvergrößerung M_{SA} . Sie liegt mit einem Faktor von 4 zu niedrig für den Einsatz eines C_s -Korrektors. Geht man von einer maximalen Nachvergrößerung durch das Projektiv I von ca. $M_{\text{PI}} = 125\times$ aus und beim Projektiv II von $M_{\text{PII}} = 100 \times -220\times$, so würde dies selbst im günstigsten Fall zu einer Gesamtvergrößerung von $M_{\text{ges}} = 111.000\times$ führen. Dies ist im Hinblick auf die Auswertung der Zemlin-Tableaus bei der Korrektorjustage unzureichend. Auch für die beim PACEM angestrebte Auflösung von 0,2 nm ergeben sich Probleme. Da die Vergrößerung so gewählt werden muss, dass die Auflösungsgrenze auf mindestens zwei Pixel der Kamera verteilt werden kann (Nyquist-Grenze), ergibt sich bei der verwendeten GATAN UltraScan 1000 mit 14 μm Pixelgröße eine Limitierung der Auflösung auf $2d_{\text{pixel}}/M_{\text{ges}} = 0,25$ nm.

Tabelle 8.3: Ergebnis der elektronenoptischen Simulation mit ELSA für Variante 1. In dem oberen Zeilenblock sind die Simulationsparameter eingetragen. In dem mittleren Block sind die Simulationsergebnisse wiedergegeben. Der untere Zeilenblock enthält die Werte für die Linsenerregungen.

Simulationsparameter	OBJ $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	DML $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	Abstand DML PPE/OBE	Abstand SAE/OBE
Wert	3,75 mm/15 mm	12,5 mm/25 mm	425 442,5 mm	500 mm
Ergebnisse d. Simulation	M_{SA}	C_s [mm]	C_c^* [mm]	Larmordrehung
	4,36	9,39	18,56	0,29 rad
Erregung [At]	OBJ 9781.3	TL11 -1499.3	TL21 -1757	ADL -2693.1
		TL12 1644.6	TL22 1628	DML -2980.0

In Abbildung 8.3 ist die Anordnung der insgesamt sieben Linsen des Abbildungssystems dargestellt, die aus Objektivlinse (OBJ), den Linsen des ersten Transferdubletts (TL11, TL12), des zweiten Transferdubletts (TL21, TL22) sowie der DMU (ADL, DML) besteht. Zur besseren Veranschaulichung sind die Linsen als Ellipsen eingezeichnet, die Hexapole des Korrektors als Rechtecke. Der mit ELSA simulierte Verlauf der beiden Fundamentalbahnen u_α und u_γ und des axialen B-Feldes sind ebenfalls zu sehen.

Wie aus dem Verlauf der Feldbahn u_γ ersichtlich ist, liegen die Beugungsbilder jeweils im Zentrum der beiden Hexapole und in der Hauptebene der zweiten DMU-Linse (DML), die gleichzeitig die Phasenplattenebene ist. Die Lage der Zwischenbilder ergeben sich durch die Nullstellen der axialen Bahn u_α . Das erste Zwischenbild befindet sich zwischen der ersten und zweiten Transferlinse des Korrektors (TL11, TL12), das zweite Zwischenbild zwischen den Linsen des zweiten Transferdubletts (TL21, TL22) und das dritte Zwischenbild unmittelbar hinter der Adaptionslinse (ADL). Es ist ersichtlich, dass die Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} innerhalb der DML bei 15,6 mm liegt. Gegenüber dem Objektiv des LEO EM 922 Ω , das für die ersten Tests der Phasenplatte verwendet wurde, ergibt sich damit als Vergrößerungszunahme durch die DMU:

$$M_{\text{Diff}} = f_{\text{BPP}}/f_{922} = 15,6 \text{ mm}/2,7 \text{ mm} = 5,8 \quad (8.8)$$

Die Variante 1 erfüllt damit die spezifizierte Nachvergrößerung der hinteren Brennebene.

Um die vorgestellte Konfiguration hinsichtlich des erreichbaren Infolimits zu untersuchen, wurde der Verlauf der PCTF mit dem Programm `ctfExplorer` in Abhängigkeit der elektrischen Stabilitäten und der Energiebreite der Quelle bestimmt. Da die FEG mit einem Monochromator ausgestattet ist, wurde für die Berechnung neben der nativen Energiebreite von 0,7 eV des Schottky-Emitters auch der Fall mit 0,3 eV untersucht, der einen guten Kompromiss zwischen Strahlstrom und Filterung darstellt. Für alle Konfigurationen, die in den folgenden Abschnitten vorgestellt werden, ist daher immer ein Plot der PCTF für $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ (oben) und $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$ (unten) wiedergegeben und in der darunter befindlichen Tabelle das zu diesen Energiebereiten gehörende Informationslimit.

Für die Linsenversorgungen des PACEM stand einerseits die vom Prototyp SA-TEM verwendete Elektronik („alte Elektronik“) zur Verfügung als auch eine verbesserte Variante („neue Elektronik“), die durch veränderte Bauteileauswahl und Beschaltung deutlich höhere Stabilitäten ermöglicht. Im Anhang A sind die elektrischen Stabilitäten der Hochspannungsanlage, der Objektiv- und DMU-Versorgung angegeben sowie die Berechnung des chromatischen Informationslimits. Da das angestrebte Informationslimit von 0,2 nm nur mit der stabileren Elektronik zu erreichen ist, wurde auf Diagramme mit der älteren Prototyp-Elektronik verzichtet. Für die Berechnung der PTCF wurde als sphärische Aberration des Gesamtsystems ein Wert von $C_s = 10 \mu\text{m}$ angesetzt. Dies entspricht dem kleinsten gemessenen Wert, der mit der endgültigen Konfiguration nach Durchlaufen der Korrektur erreicht werden konnte.

Aus den Graphen in Abb. 8.4 ist ersichtlich, dass durch die Korrektur des Öffnungsfehlers die Enveloppe der Quelle E_α im betrachteten Raumfrequenzbereich bis

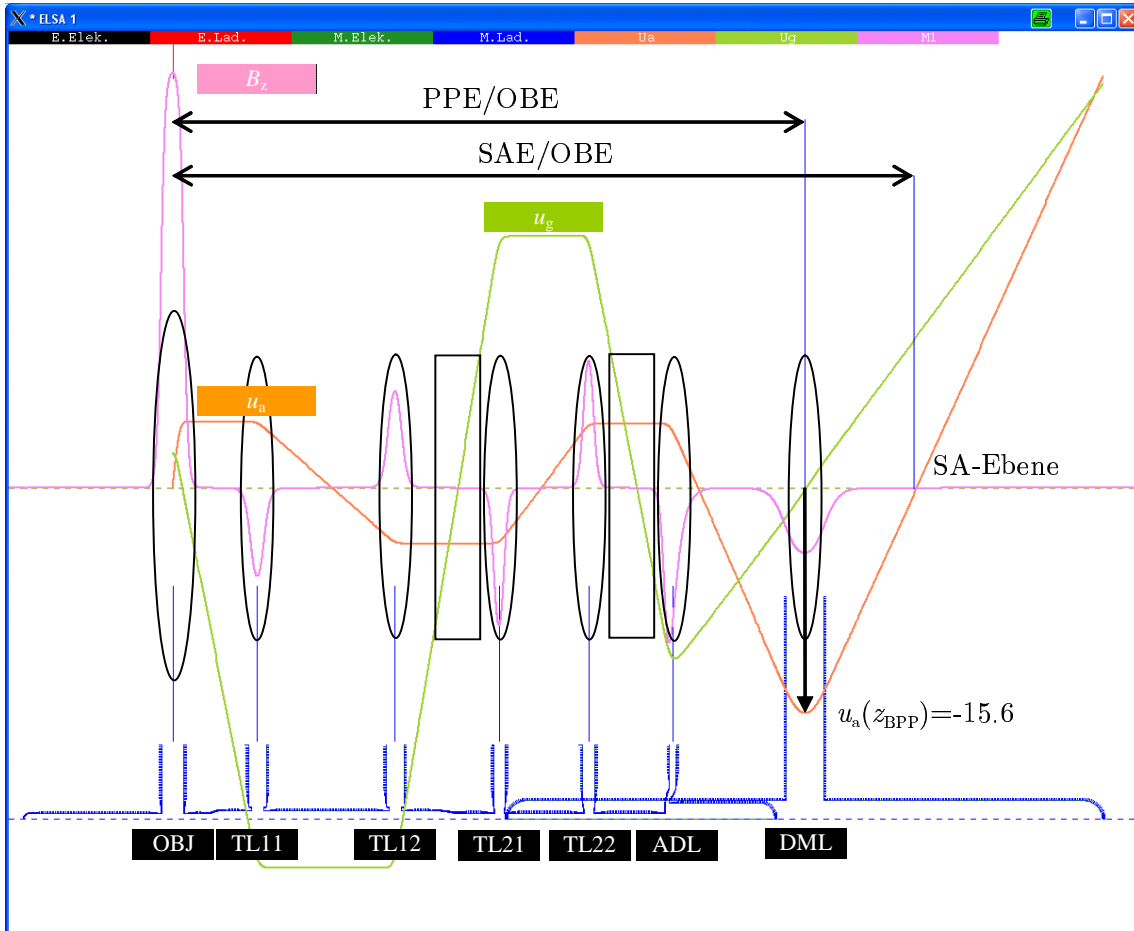
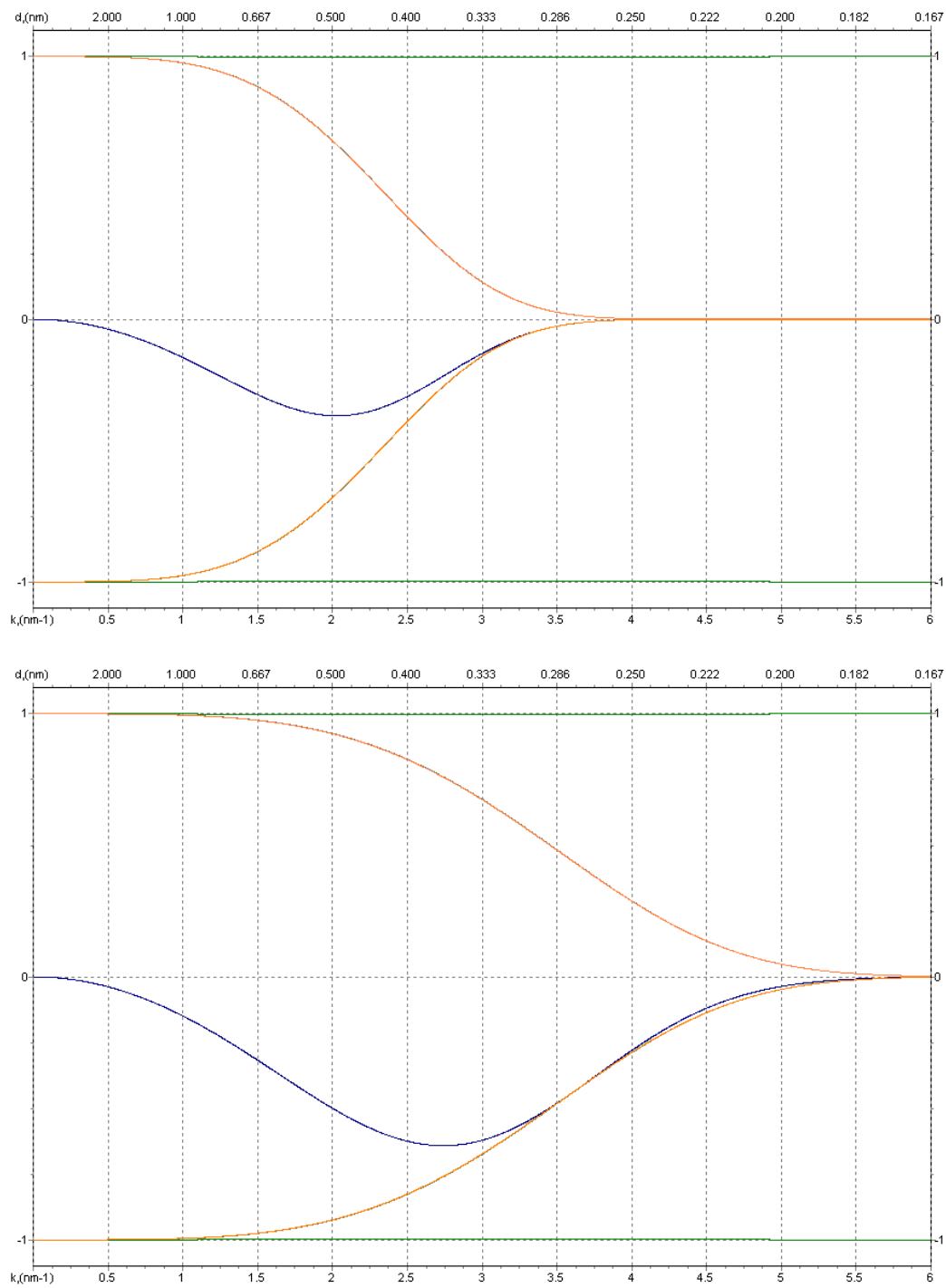


Abbildung 8.3: Der mit ELSA simulierte Verlauf der Fundamentalbahnen u_α und u_γ sowie der axialen Induktion B_z von der Objektebene bis zur SA-Ebene für Variante 1. Der Abstand von der Phasenplattenebene (Hauptebene der DML) zur Objektebene beträgt 425 mm, der Abstand zwischen SA-Ebene und Objektebene 500 mm. Der Polschuhspalt der DML beträgt 25 mm. Zur besseren Veranschaulichung wurden die Linsen und Hexapole zusätzlich eingezeichnet. Die Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} beträgt 15,6 mm.

6 nm^{-1} ($1,67 \text{ nm}$) keinerlei Einfluss auf das erreichbare Informationslimit hat. Sie wird erst bei Raumfrequenzen größer 10 nm^{-1} wieder relevant, also bei Auflösungen im Bereich von 1 \AA . Nur die chromatische Enveloppe begrenzt das Auflösungsvermögen. Durch den großen chromatischen Fehler von 18,6 mm wirkt sich die Energiefilterung im Monochromator entscheidend auf das Übertragungsverhalten aus. Erst durch Reduzierung der Energiebreite auf 0,3 eV lässt sich ein Infolimit von 0,22 nm erreichen. Dies liegt noch etwas über dem spezifizierten Wert, kann aber durch weitere Reduzierung der Energiebreite auf Werte $< 2 \text{ eV}$ erreicht werden.

Insgesamt erfüllt die Variante 1 die Anforderungen bezüglich der Vergrößerung der Beugungsebene und bei entsprechender Filterung im MC auch des Informationslimits, muss aber hinsichtlich der Bildvergrößerung verbessert werden. Dies geschieht durch Erhöhung des Abstands zwischen SA-Ebene und Objektebene und wird im folgenden Abschnitt vorgestellt.

Abbildung 8.4: PCTF für Variante 1. $C_s = 0,01$ mm, $C_c^* = 18,6$ mm, $\Delta f = -19,4$ mm

Voltage: 200 kV	Wavelength: 0,00251 nm	C_s : 0,01 mm (korrigiert)	C_c : 18,6 mm (relativ.) C_c : 16,0 mm (nichtrel.)
Energy spread: 0,7 eV Energy spread: 0,3 eV	HT ripple: $0,17 \cdot 10^{-6}$ rms	Obj instabilities: $0,07 \cdot 10^{-6}$ rms	Info limit: 0,33 nm Info limit: 0,22 nm

8.6 Variante 2

Für die zweite Konfiguration wurde gegenüber der ersten Variante der Abstand zwischen SA-Ebene und Objektebene von 500 mm auf 600 mm erhöht, um eine höhere Zwischenbildvergrößerung zu erreichen. Diese beträgt nun $M_{SA} = 10$, was zu einer Gesamtvergrößerung von $M_{ges} = 275.000$ führt. Alle anderen Abstände und Linsenparameter wurden beibehalten. Eine Limitierung der Auflösung in Verbindung mit der CCD-Kamera ist nicht zu befürchten, da die Nyquist-Grenze jetzt bei $2d_{\text{pixel}}/M_{ges} = 0,10$ nm liegt.

Wie den Werten für die Linsenerregungen in Tabelle 8.4 entnommen werden kann, ist für diese Variante lediglich eine Anpassung der Erregung der DML vorzunehmen. Der berechnete Farb- und Öffnungsfehler fällt mit 16 mm und 8 mm etwas geringer aus, als in der Variante 1.

In Abbildung 8.5 ist der Verlauf der beiden Fundamentalbahnen u_α und u_γ sowie das axiale B-Feld für die zweite Konfiguration dargestellt. Durch Erhöhung des Abstands zwischen der SA-Ebene und der Objektebene kann die DML mit geringerer Erregung betrieben werden. Dadurch ist die Bahnhöhe der u_α -Bahn in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} noch höher und die Brennweite liegt jetzt bei 16,1 mm. Damit ergibt sich für die Vergrößerung der hinteren Brennebene gegenüber dem bisherigen Objektiv des LEO EM 922 Ω folgender Wert:

$$M_{\text{Diff}} = f_{BPP}/f_{922} = 16,1 \text{ mm}/2,7 \text{ mm} = 6,0 \quad (8.9)$$

Der in Abb. 8.6 wiedergegebene Verlauf der PCTF zeigt, dass durch den kleineren Farbfehler das angestrebte Informationslimit von 0,2 nm bei einer Energiebreite von $\Delta E = 0,3$ eV exakt erreicht werden kann. Somit sind alle Anforderungen hinsichtlich der Abbildungsbedingungen erfüllt.

Tabelle 8.4: Ergebnis der elektronenoptischen Simulation mit ELSA für Variante 2. Durch Vergrößerung des Abstands zwischen SA-Ebene und Objektebene beträgt die Zwischenbildvergrößerung $M_{SA} = 10$, was einer erzielbaren Gesamtvergrößerung von $M_{ges} = 275.000\times$ entspricht.

Simulationsparameter	OBJ $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	DML $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	Abstand DML PPE/OBE	Abstand SAE/OBE
Wert	3,75 mm/15 mm	12,5 mm/25 mm	425 442,5 mm	600 mm
Ergebnisse d. Simulation	M_{SA} 10,11	C_s [mm] 8,07	C_c^* [mm] 16,13	Larmordrehung -1,79 rad
Erregung [At]	OBJ 9781	TL11 -1499	TL21 -1757	ADL -2693
		TL12 1644	TL22 1628	DML -2479

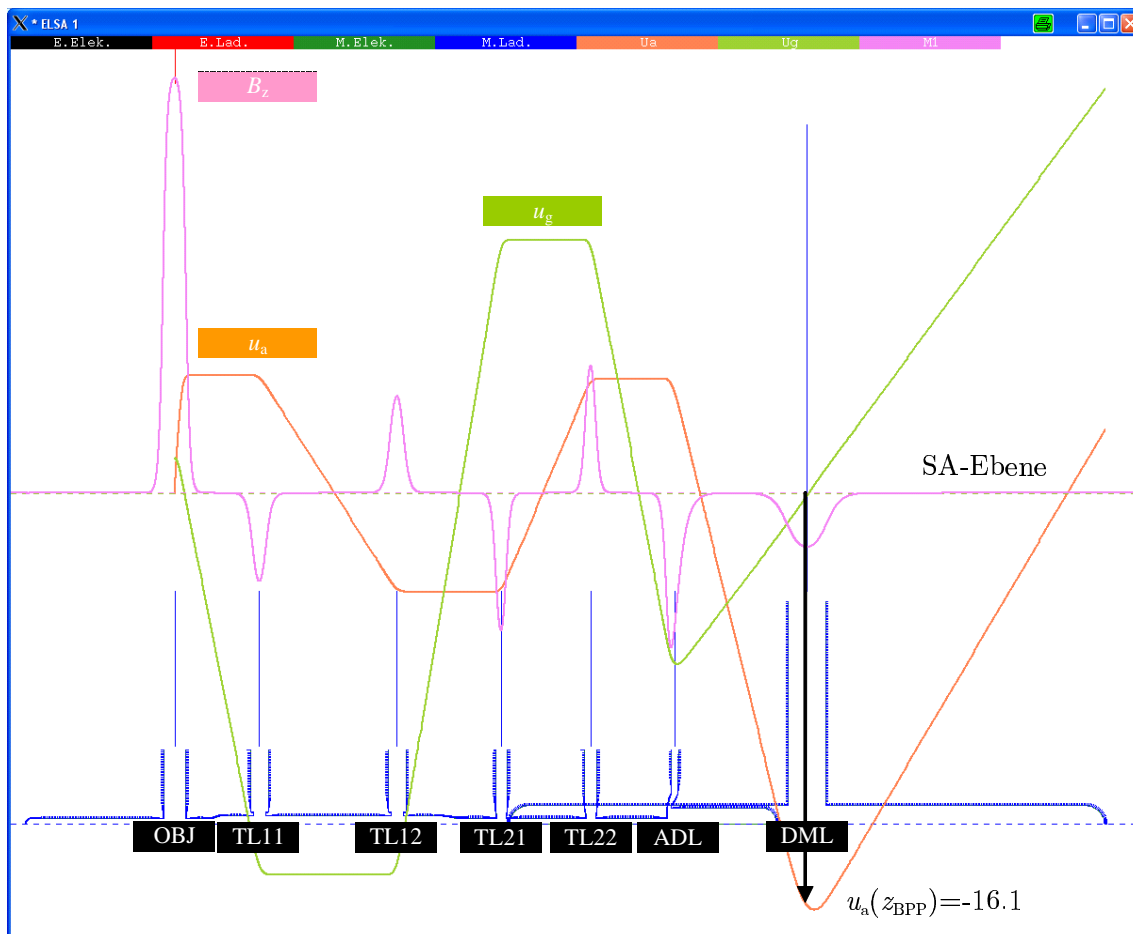


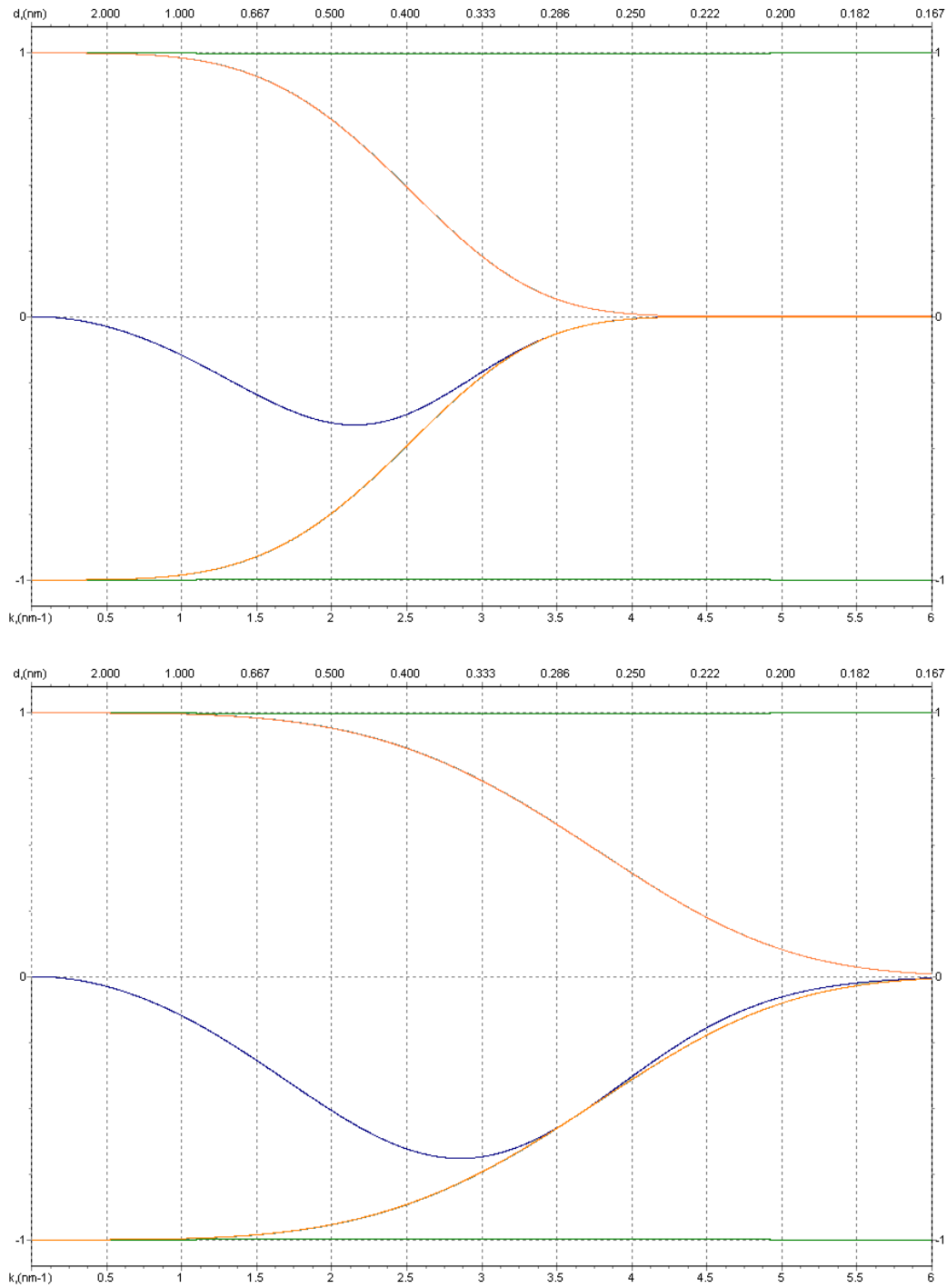
Abbildung 8.5: Der mit ELSA simulierte Verlauf der Fundamentalbahnen u_α und u_γ und der axialen Induktion B_z für Variante 2. Der Abstand der Phasenplattenebene (Hauptebene der DML) zur Objektebene beträgt 425 mm und der Abstand der SA-Ebene zur Objektebene 600 mm. Der Polschuhspalt der DML liegt bei 25 mm. Die effektive Brennweite des Systems gemessen in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} beträgt 16,1 mm.

8.7 Variante 3

Für die dritte Variante wurden die Abstände zwischen Phasenplattenebene und Objektebene sowie SA-Ebene und Objektebene von Variante 2 übernommen. Der Polschuhspalt der DML wurde dagegen verdoppelt, da die bisher angesetzten 25 mm gerade ausreichend für den Piezomanipulator sind, jedoch keinerlei Raum für weitere Optimierungen (z. B. Phasenplattenkühlung) bieten. Wie der Tabelle 8.5 entnommen werden kann, beträgt die erreichbare Gesamtvergrößerung weiterhin $M_{\text{ges}} = 275.000\times$, die sphärische und chromatische Aberration ist im Vergleich zu Variante 2 noch etwas niedriger.

Aus Abbildung 8.7 ist zu sehen, dass die Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} bei 15,1 mm liegt. Die Vergrößerung der Beugungsebene gegenüber dem bisherigen Objektiv des LEO EM 922 Ω beträgt somit:

$$M_{\text{Diff}} = f_{BPP}/f_{922} = 15,1 \text{ mm}/2,7 \text{ mm} = 5,6 \quad (8.10)$$

Abbildung 8.6: PCTF für Variante 2. $C_s = 0,01$ mm, $C_c^* = 16,1$ mm, $\Delta f = -19,4$ mm

Voltage: 200 kV	Wavelength: 0,00251 nm	C_s : 0,01 mm (korrigiert)	C_c : 16,1 mm (relativ.) C_c : 13,9 mm (nichtrel.)
Energy spread: 0,7 eV Energy spread: 0,3 eV	HT ripple: $0,17 \cdot 10^{-6}$ rms	Obj instabilities: $0,07 \cdot 10^{-6}$ rms	Info limit: 0,31 nm Info limit: 0,20 nm

Tabelle 8.5: Ergebnis der elektronenoptischen Simulation mit ELSA für Variante 3.

Simulationsparameter	OBJ $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	DML $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	Abstand DML PPE/OBE	Abstand SAE/OBE
Wert	3,75 mm/15 mm	25 mm/50 mm	425 455 mm	600 mm
Ergebnisse d. Simulation	M_{SA}	C_s [mm]	C_c^* [mm]	Larmordrehung
	10,05	5,55	15,39	0,55 rad
Erregung [At]	OBJ 9781	TL11 -1500 TL12 1645	TL21 -1757 TL22 1628	ADL -2670 DML -3676

Der in Abb. 8.8 wiedergegebene Verlauf der PCTF zeigt, dass durch den kleineren Farbfehler im Vergleich zur ersten Variante das angestrebte Infolimit von 0,2 nm bei einer Energiebreite von 0,3 eV exakt erreicht werden kann. Damit erfüllt auch diese Variante die zu Anfang festgelegten Anforderungen.

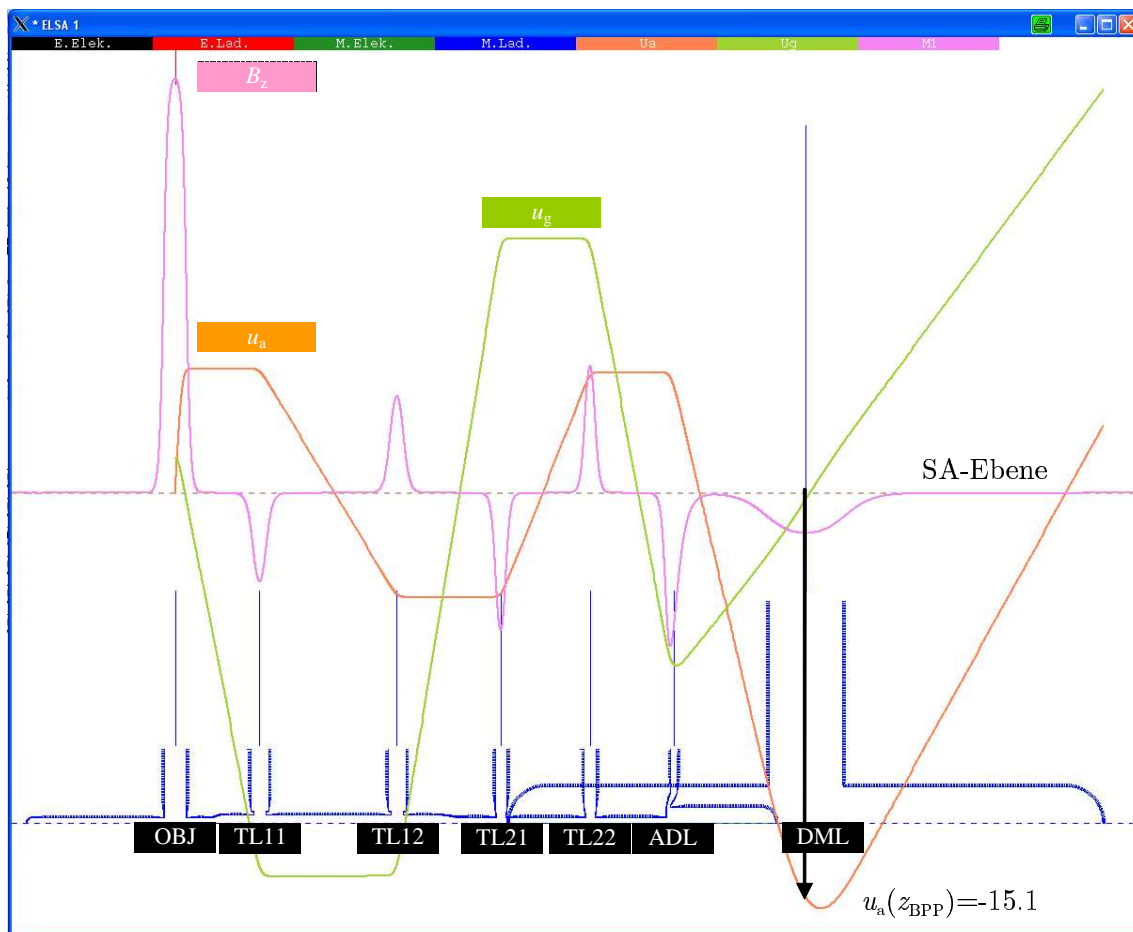
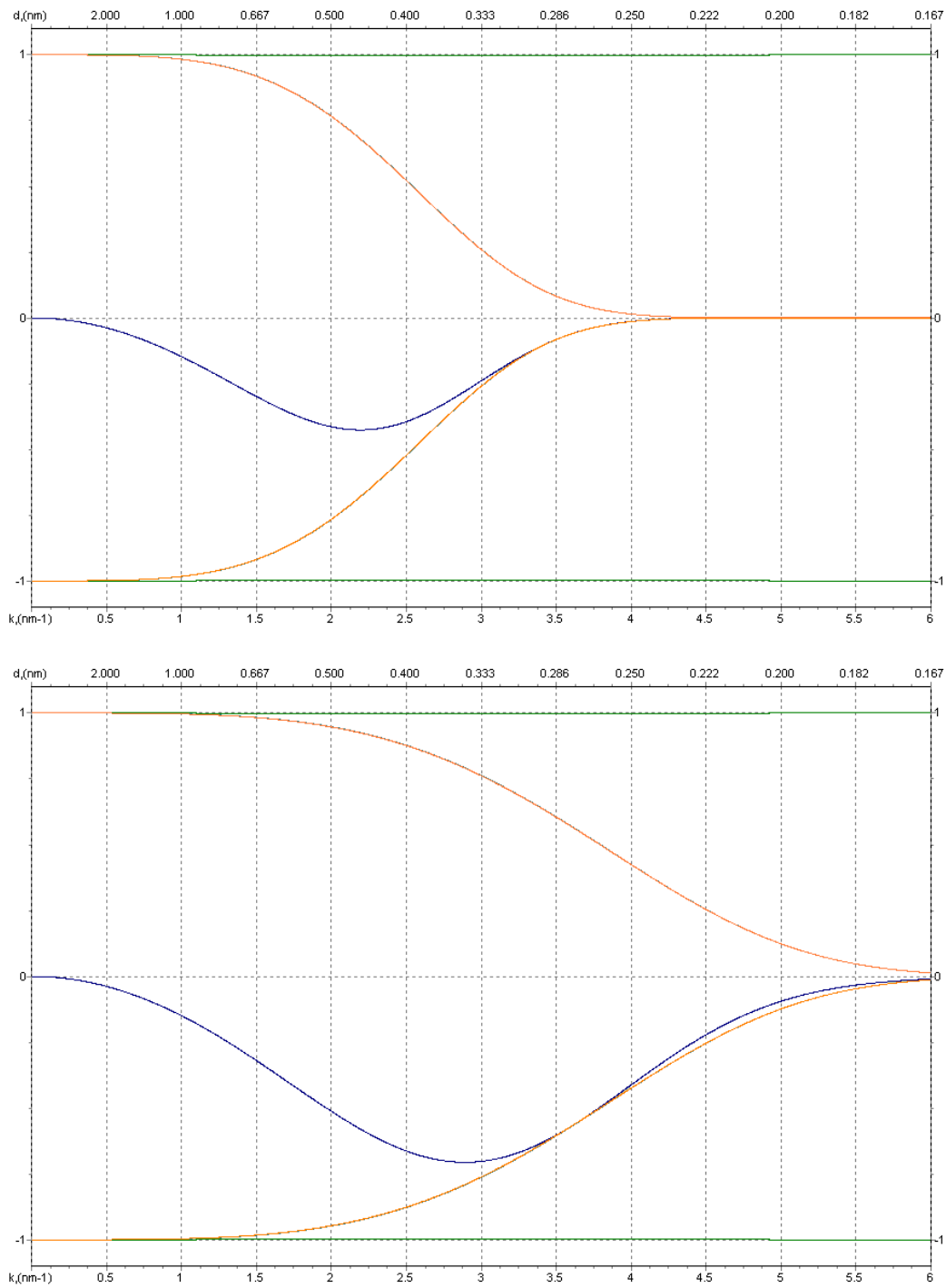


Abbildung 8.7: Der mit ELSA simulierte Verlauf der Fundamentalbahnen u_α und u_γ sowie der axialen Induktion B_z für Variante 3. Der Abstand der Phasenplattenebene zum Objektiv beträgt 425 mm und der Abstand von der SA-Ebene zum Objektiv 600 mm. Der Polschuhspalt der DML wurde auf 50 mm erweitert. Die Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} beträgt 15,1 mm.

Abbildung 8.8: PCTF für Variante 3. $C_s = 0,01$ mm, $C_c^* = 15,4$ mm, $\Delta f = -19,4$ mm

Voltage: 200 kV	Wavelength: 0,00251 nm	C_s : 0,01 mm (korrigiert)	C_c : 15,4 mm (relativ.) C_c : 13,3 mm (nichtrel.)
Energy spread: 0,7 eV Energy spread: 0,3 eV	HT ripple: $0,17 \cdot 10^{-6}$ rms	Obj instabilities: $0,07 \cdot 10^{-6}$ rms	Info limit: 0,30 nm Info limit: 0,20 nm

8.8 Variante 4

Mit dieser Variante sollte abgeklärt werden, wie hoch die effektive Brennweite des Systems und damit die Vergrößerung des Beugungsbildes sein kann, bevor es aufgrund der chromatischen Aberration zu einer Auflösungsbeschränkung kommt. Es wurde wiederum eine DML mit einem Spalt von 50 mm angesetzt. Der Abstand von DML-Hauptebene zur Objektebene ist auf 450 mm erweitert worden, der von SA-Ebene zur Objektebene auf 700 mm. Wie der Tabelle 8.6 entnommen werden kann, steigt der Wert für die Zwischenbildvergrößerung auf 11 an, die daraus resultierende Gesamtvergrößerung beträgt $M_{\text{ges}} = 310.000$.

Wie in Abbildung 8.9 zu sehen ist, beträgt die Brennweite in der Phasenplatenebene bei $z_{\text{BPP}} 20,0$ mm. Die Vergrößerung der hinteren Brennebene gegenüber dem bisherigen Objektiv des LEO EM 922 Ω beträgt:

$$M_{\text{Diff}} = f_{\text{BPP}}/f_{922} = 20,0 \text{ mm}/2,7 \text{ mm} = 7,4 \quad (8.11)$$

Damit erfüllt auch diese Variante die zu Anfang festgelegten Anforderungen.

Der in Abb. 8.10 wiedergegebene Verlauf der PCTF zeigt, dass durch die Vergrößerung der Brennweite und dem damit verbundenen Anstieg des Farbfehlers das Informationslimit bei einer Energiebreite von 0,3 eV bei 0,21 nm liegt. Eine weitere Vergrößerung der effektiven Brennweite über einen Wert von 20 mm hinaus wäre im Hinblick auf die geringere Abschattung durch die Ringelektrode der Phasenplatte zwar wünschenswert. Es ist aber zu beachten, dass der Beitrag der DML zu C_c mit f_{BPP}^2 ansteigt, der Beitrag zu C_s mit f_{BPP}^4 [Ceo07]. Damit sind der Vergrößerung der hinteren Brennebene durch die DMU insbesondere durch den Anstieg von C_s enge Grenzen gesetzt. Außerdem muss die Blendenöffnung der Phasenplatte mit zunehmender Brennweite vergrößert werden, um Verluste bei hohen Raumfrequenzen zu vermeiden. Die daraus resultierende Verlängerung der Haltestege führt aber zu mechanischen Instabilitäten, der man durch breitere Strukturen entgegenwirken muss. Dadurch nehmen aber die Abschattungen durch die Haltestege zu. Eine Erhöhung der Brennweite auf Werte über 20 mm führt somit eher zu einer Verschlechterung der Abbildungseigenschaften und Einschränkungen bei der Auflösung.

Tabelle 8.6: Ergebnis der elektronenoptischen Simulation mit ELSA für Variante 4.

Simulationsparameter	OBJ $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	DML $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	Abstand DML PPE/OBE	Abstand SAE/OBE
Wert	3,75 mm/15 mm	25 mm/50 mm	450 480 mm	700 mm
Ergebnisse d. Simulation	M_{SA}	C_s [mm]	C_c^* [mm]	Larmordrehung
	11,26	6,36	17,14	0,30 rad
Erregung [At]	OBJ 9781	TL11 -1499	TL21 -1757	ADL -2618
		TL12 1644	TL22 1628	DML -3066

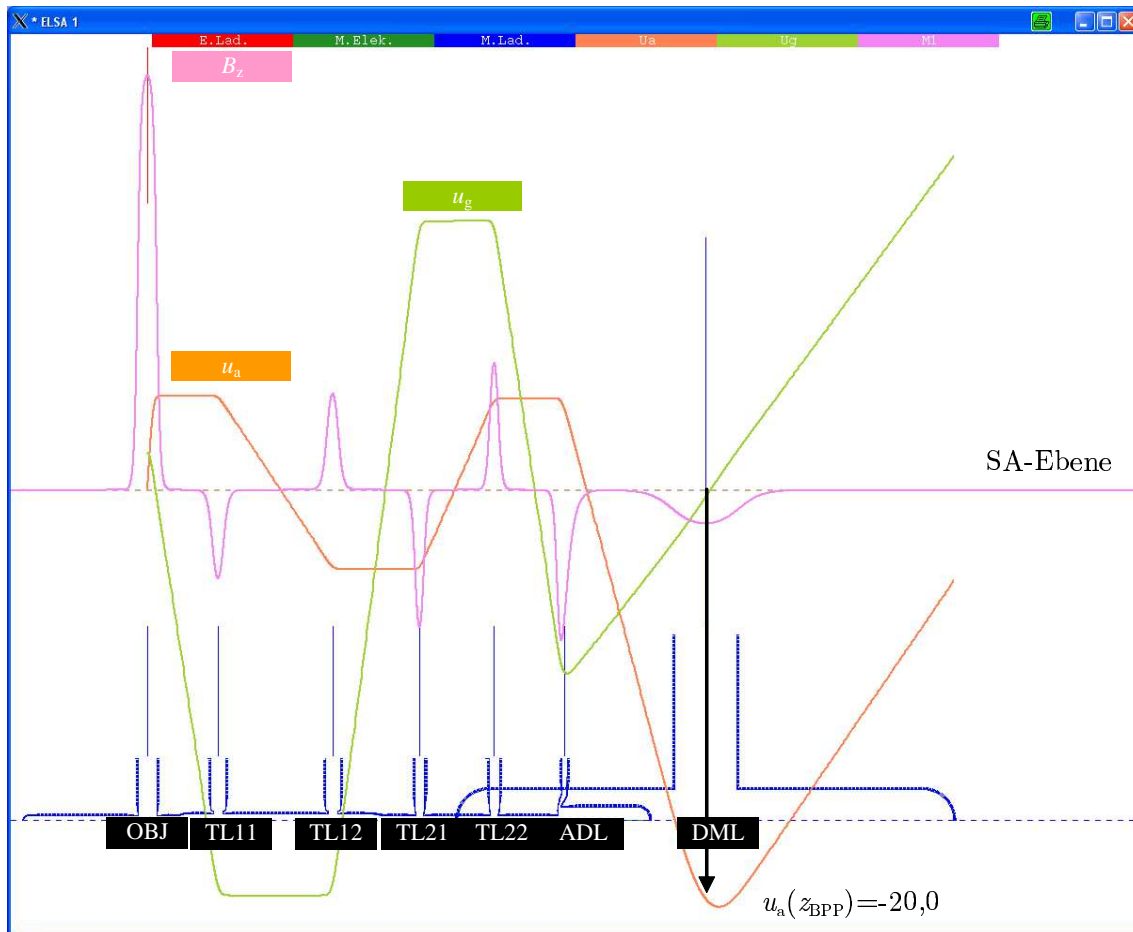
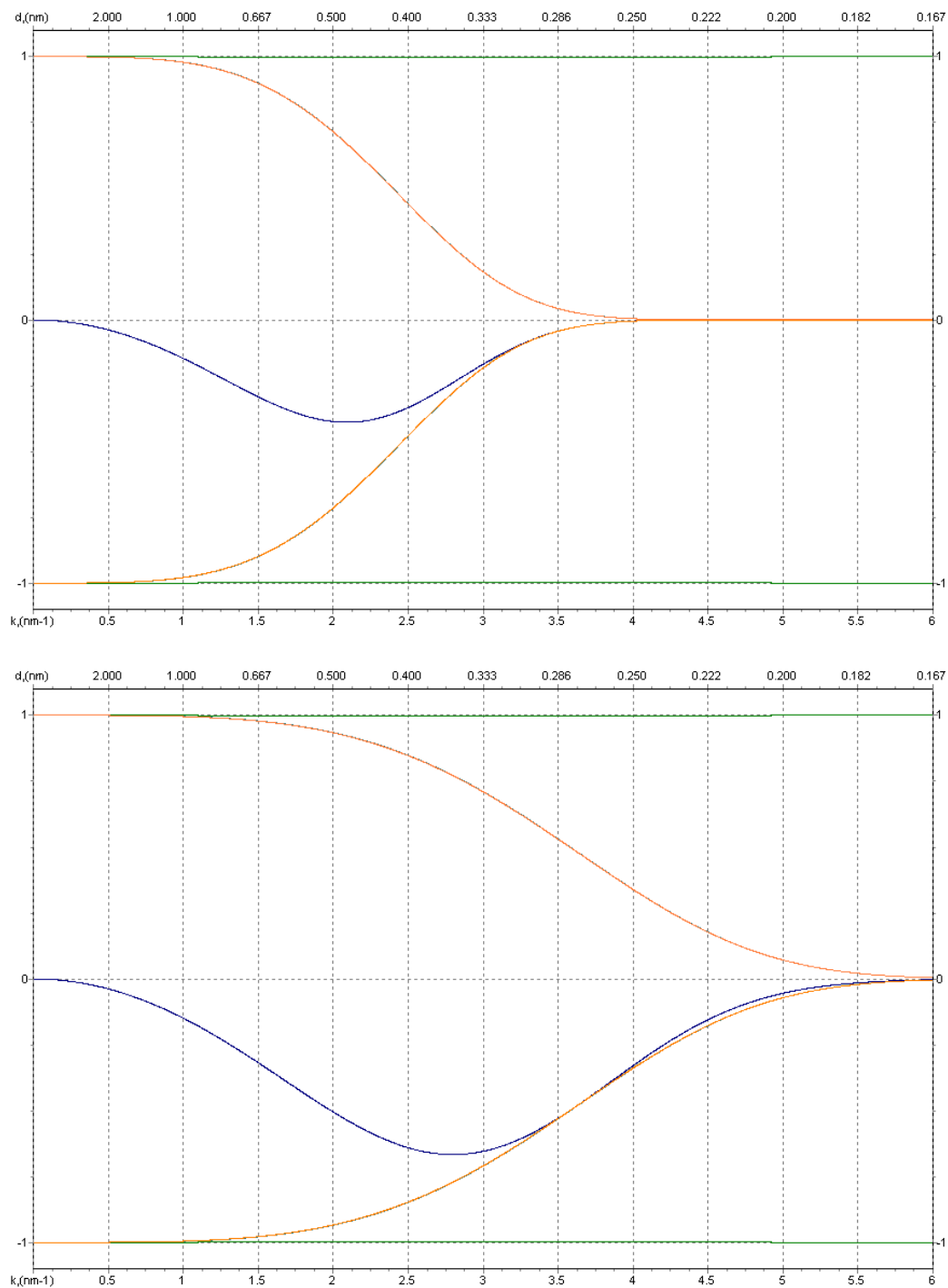


Abbildung 8.9: Der mit ELSA simulierte Verlauf der Fundamentalbahnen u_α und u_γ sowie der axialen Induktion B_z für Variante 4. Der Abstand der Phasenplattenebene zur Objektebene beträgt 425 mm. Der Abstand von der SA-Ebene zur Objektebene wurde auf 700 mm erweitert, um die Zwischenbildvergrößerung zu steigern. Der Polschuhspalt der DML beträgt 50 mm. Die Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BFP} beträgt 20 mm.

Abbildung 8.10: PCTF für Variante 4. $C_s = 0,01$ mm, $C_c^* = 17,1$ mm, $\Delta f = -19,4$ mm

Voltage: 200 kV	Wavelength: 0,00251 nm	C_s : 0,01 mm (korrigiert)	C_c : 17,1 mm (relativ.) C_c : 14,8 mm (nichtrel.)
Energy spread: 0,7 eV Energy spread: 0,3 eV	HT ripple: $0,17 \cdot 10^{-6}$ rms	Obj instabilities: $0,07 \cdot 10^{-6}$ rms	Info limit: 0,32 nm Info limit: 0,21 nm

8.9 Variante 5

Alle bisherigen Varianten setzen eine sehr kurze Brennweite der ADL von etwa 20 mm voraus. Da die Linse für den Betrieb ohne DMU bereits einen Strom von 1,8 A benötigt und die zur Verfügung stehende Stromquelle der Korrektorelektronik maximal 2 A liefern kann, würde die Umsetzung der Varianten 2-4 einen neuen Einschub erfordern. Daher wurde als letzte Variante in Zusammenarbeit mit CEOS die Frage angegangen, wie eine Konfiguration beschaffen sein muss, um möglichst wenige Modifikationen am Korrektor durchführen zu müssen. Das Ergebnis ist eine Konfiguration, die im Vergleich zu den bisherigen Varianten nochmals erhöhte Abstände zwischen DML und Objektebene bzw. SA-Ebene und Objektebene aufweist. Dadurch kann die Adaptionlinse ADL des Korrektors mit höherer Brennweite (niedriger Erregung) betrieben werden. Die hardwareseitigen Modifikationen beschränken sich auf eine Anpassung der Wicklungszahl. Andererseits stellt diese Lösung den schlechtesten Kompromiss in Bezug auf die Säulenlänge dar. Die Säulenverlängerung durch den Korrektor und die DMU liegt bei insgesamt 620 mm.

In Tabelle 8.7 sind die Ergebnisse der CEOS-Studie zusammengefasst. Um eine Aussage über die Genauigkeit des in ELSA entwickelten Modells zu erhalten, wurde mit den aufgeführten Simulationsparametern zusätzlich eine Rechnung mit ELSA durchgeführt. Vergleicht man die Werte, so ergibt sich bei der Zwischenbildvergrößerung M_{SA} und dem Öffnungsfehler eine gute Übereinstimmung zur CEOS-Studie. Die Abweichung bei der chromatischen Aberration lässt sich auf die in ELSA verwendete Normierung der Bewegungsgleichung zurückführen, die die Multiplikation mit dem Faktor $\phi^*/\phi = 1,19$ erforderlich macht. Damit erhält man ausgehend von dem von CEOS ermittelten Wert von 8 mm ein C_c von 9,52 mm, was exakt dem Ergebnis der ELSA-Simulation entspricht. Das ELSA-Modell liefert also bei allen untersuchten Parametern verlässliche Aussagen bezüglich der Abbildungseigenschaften.

Die aus den Simulationsparametern resultierenden Fundamentalbahnen sind in Abbildung 8.11 dargestellt. Die effektive Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} beträgt 15,0 mm. Dies entspricht exakt dem Ergebnis der CEOS-Studie. Die

Tabelle 8.7: Vergleich der Ergebnisse der elektronenoptischen Simulation mit ELSA und den CEOS-Daten für Variante 5. Der jeweils linke Eintrag entspricht den Werten aus ELSA, der rechte Eintrag stammt aus der CEOS-Studie. Wegen der besonderen Normierung der Bewegungsgleichungen in ELSA muss beim Vergleich der chromatischen Aberration beim Wert von CEOS ein zusätzlicher Faktor von 1,19 berücksichtigt werden.

Simulationsparameter	OBJ $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	DML $r_{\text{bore}}/d_{\text{gap}}$	Abstand DML PPE/OBE	Abstand SAE/OBE
Wert	3,75 mm/15 mm	15 mm/30 mm	485,2 505,2 mm	744,1 mm
Simulationserg.	M_{SA}	C_s [mm]	C_c^* [mm]	Larmordrehung
ELSA/CEOS	15,6/15,0	4,5/4,4	9,5/8,0 (9,5)	0.61 rad
Erregung [At]	OBJ 9858	TL11 -1236	TL21 -1681	ADL -1979
		TL12 1851	TL22 1705	DML -1981

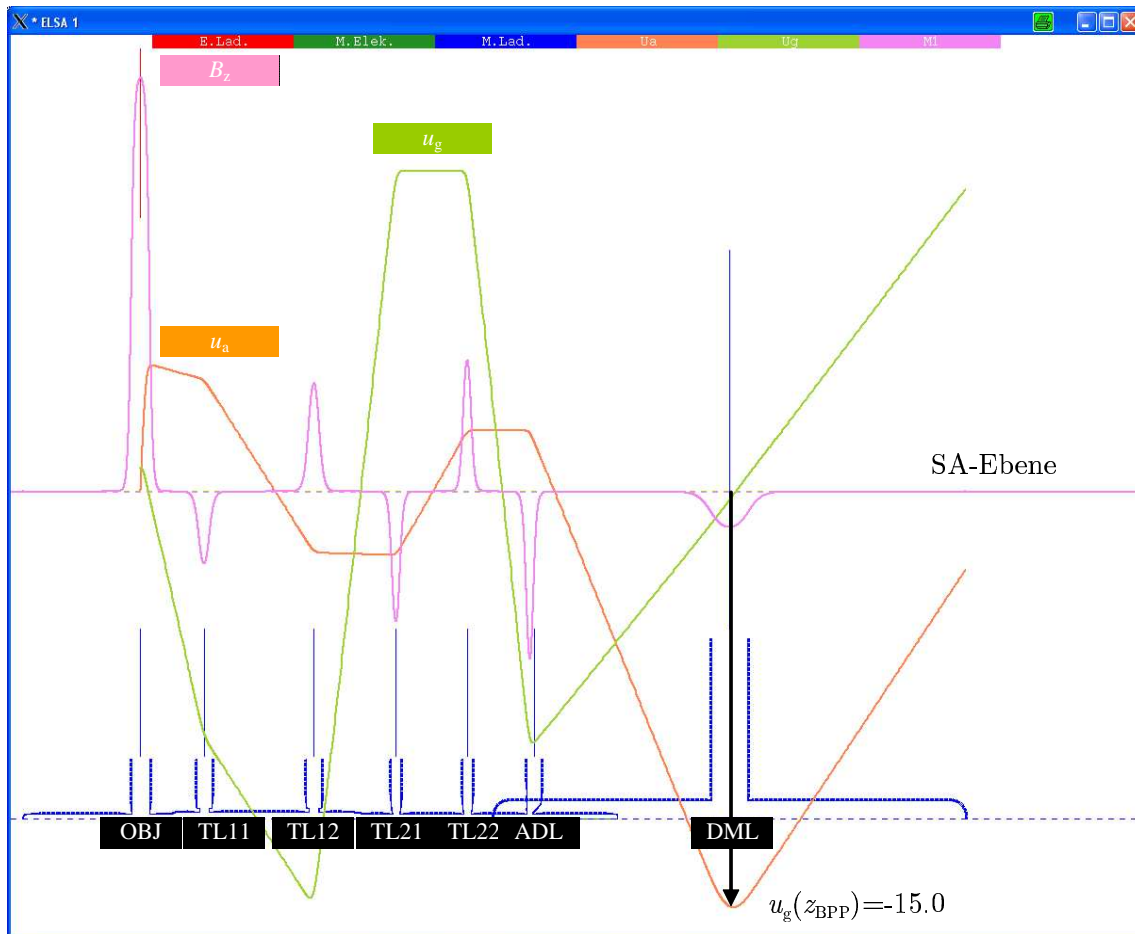
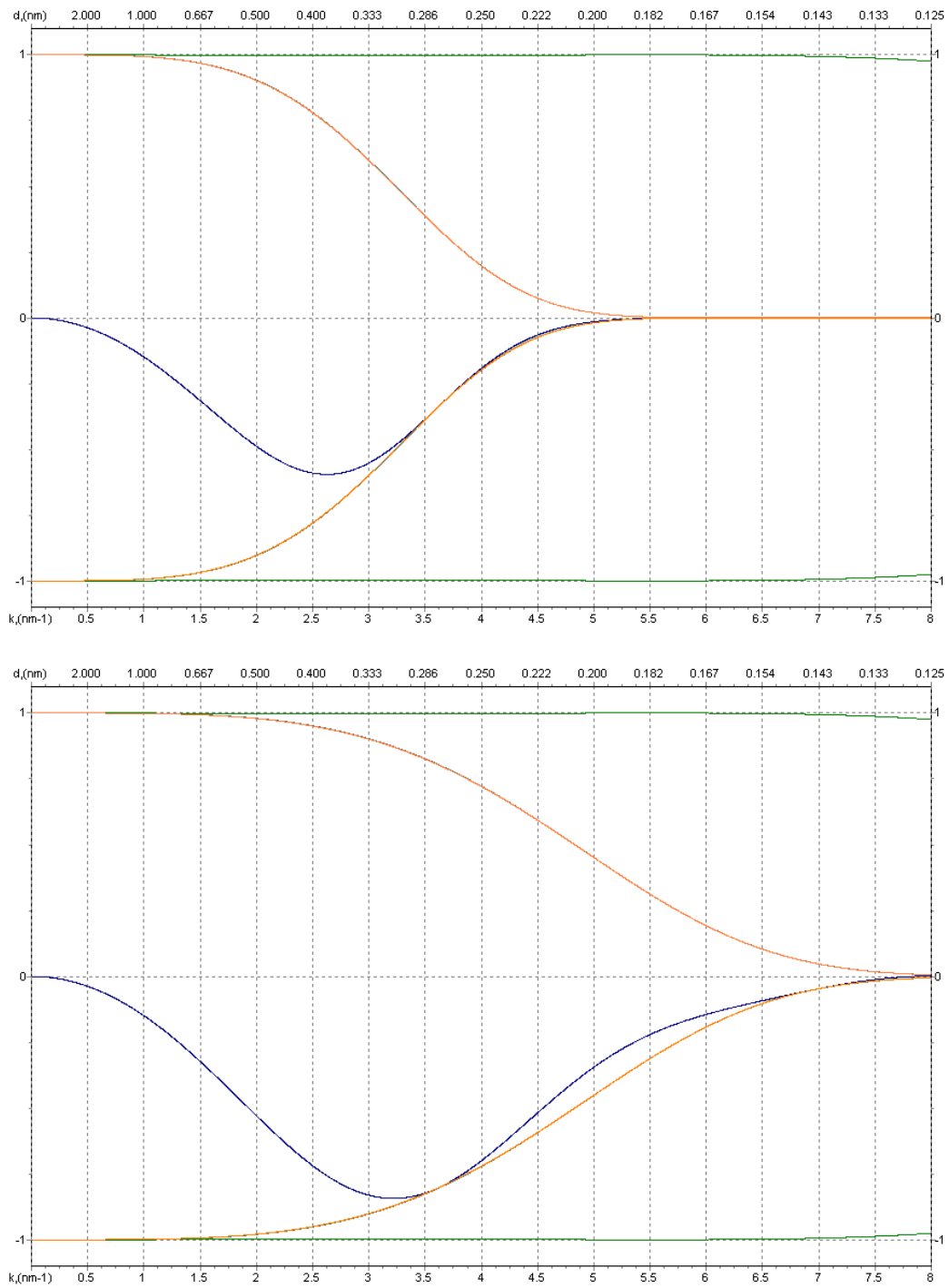


Abbildung 8.11: Der mit ELSA simulierte Verlauf der Fundamentalbahnen u_α und u_γ sowie der axialen Induktion B_z für Variante 5. Der Abstand der Phasenplattenebene zur Objektebene beträgt 485 mm und der Abstand der SA-Ebene zur Objektebene 744 mm. Der Polschuhspalt der DML liegt bei 30 mm. Die Brennweite in der Phasenplattenebene bei z_{BPP} beträgt 15 mm.

Vergrößerung der hinteren Brennebene gegenüber dem bisherigen Objektiv des LEO EM 922 Ω ist damit:

$$M_{\text{Diff}} = f_{\text{BPP}}/f_{922} = 15,0 \text{ mm}/2,7 \text{ mm} = 5,6 \quad (8.12)$$

Der in Abb. 8.12 wiedergegebene Verlauf der PCTF zeigt, dass durch den kleineren Farbfehler im Vergleich zur ersten Variante das angestrebte Infolimit von 0,2 nm bei einer Energiebreite von 0,3 eV exakt erreicht werden kann.

Abbildung 8.12: PCTF für Variante 5. $C_s = 0,01$ mm, $C_c^* = 9,5$ mm, $\Delta f = -19,4$ mm

Voltage: 200 kV	Wavelength: 0,00251 nm	C_s : 0,01 mm (korrigiert)	C_c : 9,5 mm (relativ.) C_c : 8,2 mm (nichtrel.)
Energy spread: 0,7 eV Energy spread: 0,3 eV	HT ripple: $0,17 \cdot 10^{-6}$ rms	Obj instabilities: $0,07 \cdot 10^{-6}$ rms	Info limit: 0,23 nm Info limit: 0,16 nm

8.10 Festlegung des endgültigen Designs

In Tabelle 8.8 sind die Ergebnisse der elektronenoptischen Simulationen mit ELSA und deren Auswertung für den Verlauf der PCTF nochmals zusammengefasst. Sie zeigen, dass durch Einsatz eines Monochromators und der Reduzierung der Energiebreite auf 0,3 eV mit allen vorgestellten Konfigurationen das angestrebte Informationslimit von 0,2 nm erreicht werden kann. Dies ergibt sich auch aus der ausführlichen Betrachtung des chromatischen Informationslimits in Anhang A. Voraussetzung ist eine stabile Elektronik. Erst mit der neuen Elektronik, die Stabilitäten von $I_{\text{Obj}}^{\text{PP}} = 0,22$ ppm bei der Objektivversorgung und $I_{\text{DMU}}^{\text{PP}} = 42$ ppm bei der DMU aufweist, kann für alle vorgestellten Konfigurationen ein Informationslimit von 0,2 nm erreicht werden. Die Einhaltung der Vorgabe der Vergrößerung der Beugungsebene $M_{\text{Diff}} > 5$ fach ist jeweils gegeben. Dabei zeigen die ersten vier Varianten bedingt durch die höhere chromatische Aberration einen stärkeren Abfall der zugeordneten Enveloppe. Sie ermöglichen aber eine kompakte Säule durch geringere Abstände der Elemente, was jedoch auch eine geringere Zwischenbildvergrößerung in der SA-Ebene mit sich bringt. Diese fällt insbesondere bei der vorgestellten Variante 1 mit einem Wert von 4fach sehr niedrig aus (siehe Tabelleneintrag M_{SA}). In Bezug auf die mit den beiden Projektivsystemen erzielbare Nachvergrößerung führt das zu Einschränkungen, da die erzielbare Gesamtvergrößerung von $M_{\text{ges}} = 111.000\times$ unzureichend im Hinblick auf die Genauigkeit bei der Korrektorjustage ist. Diese Variante scheidet daher aus. Die Variante 2 und 3 ermöglichen durch einen größeren Abstand zwischen Objektebene und SA-Ebene eine Gesamtvergrößerung von $M_{\text{ges}} = 275.000\times$. Die Variante 4 stellt mit einer effektiven Brennweite von 20 mm das Maximum hinsichtlich der erreichbaren Beugungsbildvergrößerung dar. Da der Beitrag der DML zu C_c und C_s proportional zu f_{BPP}^2 bzw. f_{BPP}^4 ansteigt, ist eine noch höhere Brennweite nicht erstrebenswert. Außerdem muss beachtet werden, dass mit jeder Vergrößerung des Beugungsbilds auch die Blende, in der die Phasenplatte sitzt, vergrößert werden muss, um einen Beschnitt bei hohen Raumfrequenzen zu vermeiden. Die daraus resultierende Verlängerung der drei Haltestege führt aber letztlich zu einer verminderten Stabilität, die durch Verbreiterung der Strukturen ausgeglichen werden müsste. Dadurch nehmen die Abschattungen durch die Haltestege zu. Insgesamt stellt daher eine effektive Brennweite im Bereich von 15-20 mm den besten Kompromiss zwischen erreichbarer Auflösung und Minimierung der Abschattung durch Haltestege und Ringelektrode dar.

Bei der letzten, von CEOS vorgeschlagenen Variante ist das Erreichen der Auflösungsspezifikation durch einen sehr niedrigen Fehler von $C_c < 10$ mm gewährleistet, die Säulenlänge jedoch beträchtlich größer. Der Vorteil dieser Konfiguration liegt zum einen in der hohen Vergrößerung in der SA-Ebene von $M_{\text{SA}} = 15$ (entspricht einer erreichbaren Gesamtvergrößerung von $M_{\text{ges}} = 412.000\times$), zum anderen in der niedrigen Erregung der ADL. Letzteres macht eine Anpassung der Linsenversorgung in der Korrektorelektronik, wie sie die Varianten 2-4 aufgrund der sehr kurzen Brennweite erfordern würden, überflüssig. Lediglich eine Anpassung der Wicklungszahl ist vonnöten. Im Bezug auf die erforderliche Verlängerung der Säule ist diese Variante am ungünstigsten. Sie stellt jedoch mit ihrem geringen Aufwand an Hardwaremo-

Tabelle 8.8: Zusammenfassung der Ergebnisse der elektronenoptischen Simulation. In den ersten drei Zeilen sind die Simulationsparameter festgehalten. Bei der Angabe der sphärischen Aberration des Gesamtsystems C_s^{ges} ist zusätzlich der Zuwachs gegenüber dem Öffnungsfehler der Objektivlinse C_s^{Obj} vermerkt.

Variante	1	2	3	4	5
DML r_{bore}/d_{gap}	12,5/25	12,5/25	25/50	25/50	15/30
DML/OBE [mm]	425	425	425	450	485
SAE/OBE [mm]	500	600	600	700	744
M_{SA}	4,3	10,1	10,0	11,3	15,6
$M_{ges} = M_{SA}M_{PI}M_{PII}$	118kx	277kx	275kx	309kx	429kx
$f_{eff} = f_{BPP}$ [mm]	15,6	16,1	15,1	20	15,0
$M_{Diff} = f_{eff}/f_{922}$	5,8	6,0	5,6	7,4	5,6
C_s^{Obj} [mm]	3,7	3,7	3,7	3,7	3,7
C_s^{ges} [mm]	9,4 (154%)	8,1 (119%)	5,5 (49%)	6,3 (70%)	4,5 (22%)
C_c^* [mm]	18,6	16,1	15,4	17,1	9,5
Infolimit (0,7 eV)	0,33	0,31	0,30	0,32	0,23
Infolimit (0,3 eV)	0,22	0,20	0,20	0,21	0,16

difikationen das Optimum dar und wurde daher bei der praktischen Umsetzung herangezogen.

Kapitel 9

Realisierung des Systems

9.1 DMU

Um eine möglichst gute Anpassung an die bereits vorhandenen optischen Komponenten zu ermöglichen, wurde beim Design der DMU ein zweischaliger Aufbau gewählt (s. Abb. 9.1). Dabei dient das Außenrohr lediglich der mechanischen Ankopplung an den C_s -Korrektor und das Projektivsystem, während an einem zusätzlichen verschiebbaren Innenrohr die zweite Beugungslinse (DML) befestigt ist. Da Linsentopf und Linsendeckel über einen von außen zugänglichen Justagemechanismus gegeneinander verschoben werden können, lässt sich die Linse relativ zum Strahl sowohl verschieben als auch verkippen. Um das Blendengehäuse, welches den Piezomanipulator mit der Phasenplatte aufnimmt, möglichst effektiv pumpen zu können, wurde am DMU-Flansch eine Ionengetterpumpe (IGP) vorgesehen, die zusätzlich über eine Bypass-Leitung mit dem Blendengehäuse verbunden ist. Sie ermöglicht Drücke von ca. $2 \cdot 10^{-7}$ mbar. Im oberen Teil des Flansches ist ein einfaches Ablenssystem untergebracht, dass zusammen mit dem bereits vorhandenen Ablenker direkt unterhalb der ADL ein Doppelablenksystem bildet und von der Korrektorelektronik versorgt wird. Ein zweites Doppelablenksystem, das am unteren Ende der DMU sitzt und von der TEM-Elektronik angesteuert wird, ermöglicht die Korrektur der Einstrahlrichtung ins Projektivsystem. Die zweifache Schirmung mit μ -Metall zwischen Außenrohr und Innenrohr sowie um das Strahlrohr verhindert die Einkopplung von externen magnetischen Streufeldern. Eine Bleiabschirmung im Bereich des Außenrohrs sorgt für den Röntgenschutz.

Die im Eisenkreis befindliche Linsenspule verfügt über zwei getrennte Wicklungen. Bei der Versorgung über zwei separate Stromquellen kann damit gegenüber einer einzelnen Linsenversorgung ein Faktor $0,5\sqrt{2}$ beim Rauschen gewonnen werden. Da der Beitrag der DMU zum gesamten chromatischen Fehler etwa 3 mm beträgt und somit nicht unerheblich ist, wurde die Option einer doppelten Linsenquelle in Betracht gezogen. Wie die ausführliche Darstellung im Anhang A zeigt, ist auch bei der Versorgung der beiden Linsenwicklungen mit nur einer Quelle das angestrebte Informationslimit erreichbar.

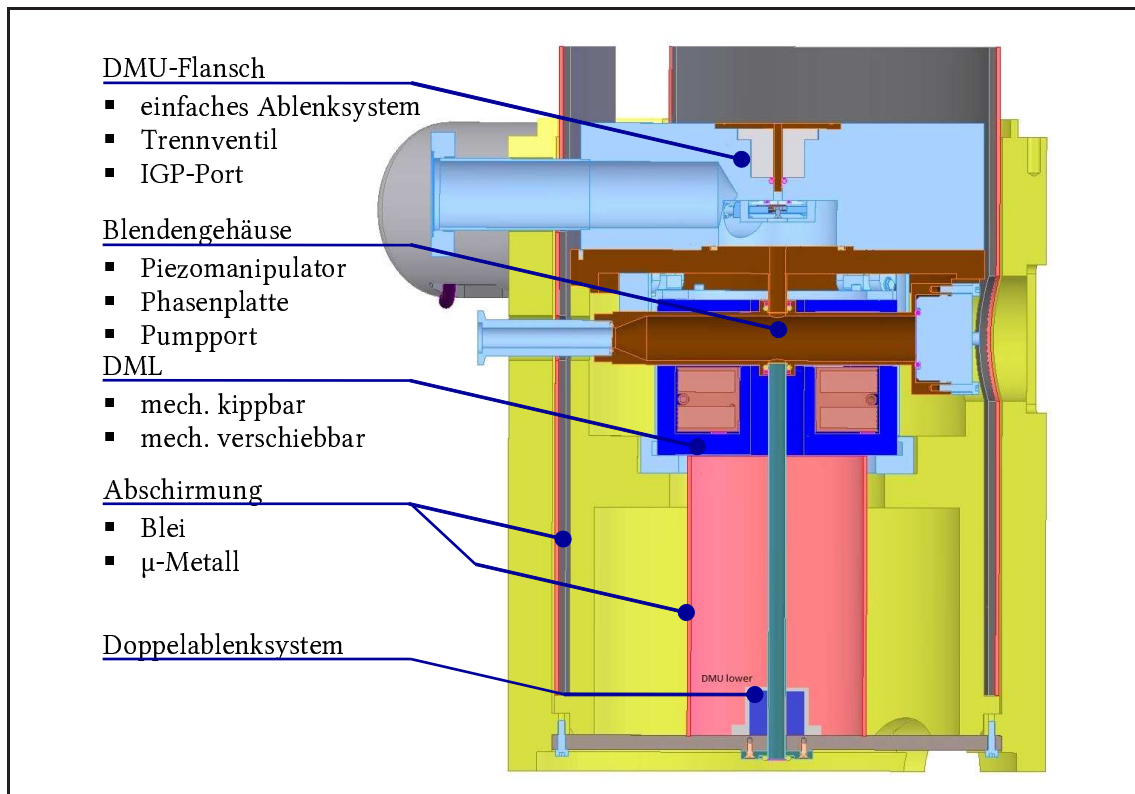


Abbildung 9.1: Querschnittsmodell der DMU. Durch Trennung in Innen- und Außenrohr kann die DML gegenüber dem Blendengehäuse verschoben werden. Da Linsentopf und -deckel gegeneinander verschiebbar sind, kann außerdem eine Kippung realisiert werden. Zusätzlich zu den mechanischen Verschiebemöglichkeiten steht oberhalb und unterhalb der DMU jeweils ein Doppelablenksystem zur Verfügung. Durch die Abkopplung der übrigen Säule über ein Trennventil im DMU-Flansch, kann die Phasenplatte ohne Belüftung des Objektivbereichs bzw. C_s -Korrektors entnommen werden.

9.2 Piezomanipulator

Wie in Abschnitt 7.1 festgehalten wurde, erfordert die Positionierung der Boersch-Phasenplatte in der DMU eine präzise Verschiebemimik. Die Ringelektrode mit einem typischen Durchmesser von $1\ \mu\text{m}$ muss relativ zur optischen Achse mit einer Genauigkeit von wenigen $10\ \text{nm}$ ausgerichtet werden können [Bar08]. Eine Drift der Phasenplatte während der Bildaufnahme gilt es zu vermeiden. In Abbildung 9.2 ist der Prototyp des vom Max-Planck-Institut gebauten Piezomanipulators dargestellt, der über einen modifizierten Flansch am Blendengehäuse der DMU angebracht werden kann. Die Translationsbewegung in alle drei Raumrichtungen erfolgt über die Ansteuerung dreier Piezos, die nach dem stick-slip Prinzip arbeiten und somit nach erfolgter Positionierung spannungsfrei sind. Der Verschieberegion in y- und z-Richtung beträgt ca. $5\ \text{mm}$, in x-Richtung ca. $20\ \text{mm}$. Dies erlaubt es, die Phasenplatte vollständig aus dem Strahl zu nehmen. Es können zwei Phasenplatten in der Halterung aufgenommen werden.

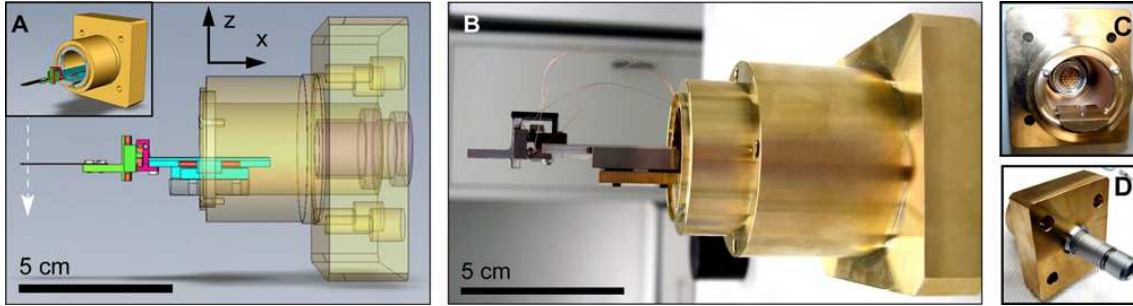


Abbildung 9.2: Piezomanipulator mit drei Translationsachsen (x,y,z) zur Positionierung der Phasenplatte in der DMU (aus [Bar08]). (A) Seitenansicht des CAD-Modells. Es können zwei Boersch-Phasenplatten in der Halterung aufgenommen und zum Strahl (senkrechter Pfeil) ausgerichtet werden. (B) Der für PACEM realisierte Prototyp. Die erforderlichen Spannungen zum Betrieb der nach dem stick-slip Prinzip arbeitenden Piezos werden über dünne Kupferlitzen zugeführt. (C) Vakuumsflansch in der Frontansicht ohne Piezos. Die Vakuumdurchführung für die Piezoansteuerung ist zu erkennen. (D) Rückansicht des Flansches.

9.3 Bestimmung der effektiven Brennweite

Die Bestimmung der effektiven Brennweite $f_{\text{eff}} = f_{\text{BPP}}$ in der Phasenplattenebene (Hauptebene der zweiten DMU-Linse) wurde wie folgt durchgeführt: Als Objekt wurde eine mit Platin bedampfte Kohlefolie verwendet. Nach Einrichtung und Abgleich des C_s -Korrektors konnte das Beugungsbild in der Ebene der Phasenplatte aufgenommen werden. In Abbildung 9.3 ist diese Aufnahme dargestellt. Der innere Ring entsteht durch Beugung der Elektronen an den Netzebenen des Platins. Zusätzlich wurde über einen Blendentrieb in der DMU eine 400 μm -Blende eingefahren und relativ zum Nullstrahl zentriert. Zwischen dem Radius r der Blende und der zugehörigen Raumfrequenz k besteht folgende Beziehung:

$$r = \lambda f_{\text{eff}} k \quad (9.1)$$

Mit der verwendeten Kamera (Gatan UltraScan 1000, 2048 \times 2048 Pixel, 14 μm Pixelgröße) ließ sich der Durchmesser der Blende und des Reflexrings bestimmen. Der des Pt-Rings lag bei 692 Pixeln, der Blendendurchmesser bei 832 Pixeln. Der Reflexring liegt bei 1/2,27 \AA . Damit ergibt sich:

$$k_{\text{Bl}} = k_{\text{Pt}} D_{\text{Bl}} / D_{\text{Pt}} = 1/1,9 \text{\AA} \quad (9.2)$$

Mit der relativistischen Wellenlänge von $\lambda = 0,00251 \text{ nm}$ bei 200 kV lässt sich hieraus die effektive Brennweite in der DMU berechnen:

$$f_{\text{eff}} = f_{\text{BPP}} = 15,1 \text{ mm} \quad (9.3)$$

Die daraus resultierende Abschneidefrequenz beträgt $k_{\text{cut-on}} = 1/23,7 \text{ nm}^{-1}$.

Die Vergrößerung der hinteren Brennebene im PACEM gemessen an der Brennweite des Objektivs eines LEO EM 922 Ω gegeben durch:

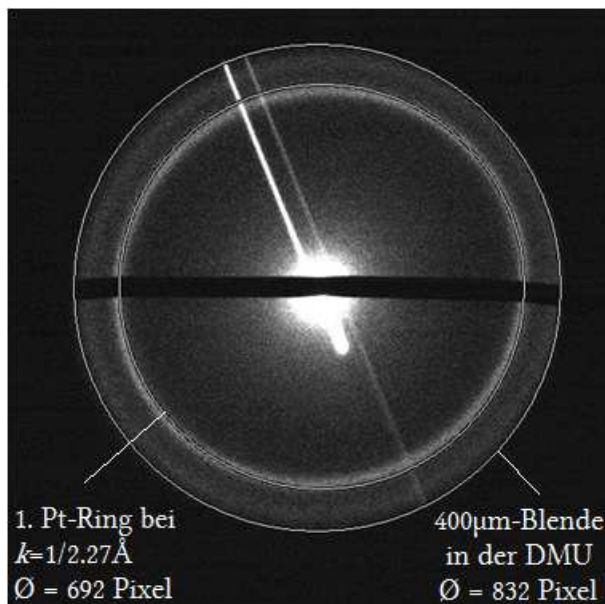


Abbildung 9.3: Beugungsbild von Pt auf Kohlefilm mit eingefahrener und zentrierter 400 µm Blende in der DMU. Der Durchmesser des Rings der Beugungsreflexe auf der Kamera beträgt 692 Pixel, der Blendendurchmesser 832 Pixel.

$$M_{\text{Diff}} = f_{\text{eff}}/f_{922} = 5,6 \quad (9.4)$$

und entspricht der Spezifikation.

9.4 Bestimmung des Informationslimits

Die Verwendung von Feldemissionsquellen führt gegenüber Geräten mit LaB₆-Emittern zu einer höheren räumlichen Kohärenz und damit zu einer deutlich verbesserten Informationsübertragung über die Punktauflösung hinaus. Während die Punktauflösung nur von der sphärischen Aberration der Objektivlinse, dem Defokus und der Wellenlänge bzw. der Hochspannung bestimmt wird und durch die erste Nullstelle der PCTF eindeutig definiert ist, bereitet die Definition des Informationslimits Probleme und das Messverfahren ist häufig Gegenstand kontroverser Diskussionen.

Geht man von einer linearen Informationsübertragung im TEM aus, so gestaltet sich die Bestimmung des Informationslimits sehr einfach: Von einer amorphen Folie (C, W, Ta) wird ein Bild im Scherzerfokus aufgenommen und die Fourier-Transformierte gebildet. Anschließend wird die Raumfrequenz bestimmt, bis zu der ein Signal zu erkennen ist. Der Kehrwert ergibt das gesuchte Informationslimit. Mit einer infinitesimalen dünnen Probe, die absolut gleichmäßig streut, bereitet die Bestimmung des Informationslimits keine Probleme. Es existiert jedoch kein Material, welches als idealer Streuer wirkt. Stattdessen besitzt jede amorphe Folie eine endliche Dicke und streut bei bestimmten Raumfrequenzen stärker, wobei die Intensitäten zu hohen Streuwinkeln stark abnehmen. Die Folge der endlichen Dicke der Probe ist eine Verschmierung der Thonschen Ringe. Selbst bei sehr dünnen Folien ergibt sich,

bedingt durch Kontamination, nach kurzer Zeit ein Kohlenstofffilm, der durch seine Dicke das Ergebnis mehr beeinflusst, als die Übertragungseigenschaften des Mikroskops. Angesichts dieser Probleme musste ein anderes Verfahren gefunden werden, das probenunabhängige Ergebnisse liefert und im folgenden Abschnitt beschrieben wird.

9.4.1 Youngsche Interferenzstreifen

Da nur eine sehr dünne Probe wirklich gleichförmig streut, ist bei realen Probedicken der Abfall des Kontrastes kein Maß für das Informationslimit. Daher hat sich bei der Bestimmung des Infolimits das Verfahren der Youngschen Interferenzstreifen (*Young's fringes method*) durchgesetzt, welches von Frank [Fra75, Fra76] eingeführt wurde. Bei diesem Verfahren werden zwei Bilder unter gleichen Abbildungsbedingungen direkt nacheinander aufgenommen, wobei beim zweiten Bild das Objekt im Ortsraum lateral um Δr verschoben wurde. Die Addition der beiden Bilder und anschließende Fourier-Transformation ergibt ein Diffraktogramm, das zusätzlich ein Streifenmuster enthält. Die Richtung und der Abstand der Streifen sind abhängig von der Richtung und Größe der lateralen Verschiebung. Verwendet man eine mit Gold oder Platin bedampfte Kohlefolie, so liefert der amorphe Kohlenstoff die Information für die Interferenzstreifen, während die Netzebenen der Kristalle zu Beugungsreflexen führen, mit denen eine Kalibrierung vorgenommen werden kann. Die Fourier-Transformierte der Bildwellenfunktion ist gegeben durch:

$$\mathcal{F}[\psi_b(\vec{r})] = \hat{\psi}_b(\vec{k}) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \psi_b(\vec{r}) e^{2\pi i \vec{k} \vec{r}} d\vec{r} \quad (9.5)$$

Aus dem Verschiebungssatz ergibt sich:

$$\mathcal{F}[\psi_b(\vec{r} - \vec{r}_0)] = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \psi_b(\vec{r}) e^{2\pi i \vec{k}(\vec{r} - \vec{r}_0)} d\vec{r} = \hat{\psi}_b(\vec{k}) e^{2\pi i \vec{k} \vec{r}_0} \quad (9.6)$$

Für die Fourier-Transformierte zweier Bilder, die in x-Richtung gegeneinander verschoben wurden, erhält man hieraus:

$$\begin{aligned} \mathcal{F}[\psi_b(\vec{r}) + \psi_b(\vec{r} - \vec{r}_x)] &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} (\psi_b(\vec{r}) e^{2\pi i \vec{k} \vec{r}} + \psi_b(\vec{r}) e^{2\pi i \vec{k}(\vec{r} - \vec{r}_x)}) d\vec{r} \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \psi_b(\vec{r}) e^{2\pi i \vec{k} \vec{r}} (1 + e^{-2\pi i \vec{k} \vec{r}_x}) d\vec{r} \\ &= \hat{\psi}_b(\vec{k}) (1 + e^{-2\pi i \vec{k} \vec{r}_x}) \end{aligned} \quad (9.7)$$

Die Intensitätsverteilung im Diffraktogramm ist gegeben durch:

$$I(\vec{k}) = |\mathcal{F}[\psi_b(\vec{r}) + \psi_b(\vec{r} - \vec{r}_x)]|^2$$

$$\begin{aligned}
&= \left| \hat{\psi}_b(\vec{k}) \left(1 + e^{-2\pi i \vec{k} \vec{r}_x} \right) \right|^2 \\
&= \left| \hat{\psi}_b(\vec{k}) \right|^2 \left| \left(1 + e^{-2\pi i \vec{k} \vec{r}_x} \right) \right|^2 \\
&= \left| \hat{\psi}_b(\vec{k}) \right|^2 2 \left[1 + \cos \left(2\pi i \vec{k} \vec{r}_x \right) \right] \tag{9.8}
\end{aligned}$$

Aus Gleichung 9.8 ist ersichtlich, dass die Intensität proportional zum Quadrat der Fourier-Transformierten des Einzelbildes ist. Diese ist zusätzlich mit einem Streifenmuster, den Youngschen Interferenzstreifen, moduliert. Mit zunehmendem lateralen Versatz \vec{r}_x im Ortsraum werden die Abstände der Interferenzstreifen im Diffraktogramm kleiner, da mit größerem Argument der Kosinus schneller oszilliert. Durch einen Linescan senkrecht zu den Streifen wird der Abfall des Kontrastes bestimmt. Die maximale Raumfrequenz k_{\max} , bis zu der eine Modulation feststellbar ist, bestimmt das Informationslimit k_{info} .

9.4.2 Messung am Gerät

Für die Messung des Informationslimits am PACEM mittels der Methode der Young fringes wurde eine mit Platin bedampfte Kohlefolie verwendet. Die Beschleunigungsspannung betrug 200 kV, die Energiebreite wurde durch Einsatz des Monochromators auf $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,2 \text{ eV}$ begrenzt. Der aus der Auswertung der Zemlin-Tableaus errechnete Öffnungsfehler lag bei $10 \mu\text{m}$. Die Reflexringe des Platins sind in Abbildung 9.4b) zu sehen und liegen bei einer Raumfrequenz von $4,41/\text{nm}$ ($0,23 \text{ nm}$) und $5,10/\text{nm}$ ($0,20 \text{ nm}$). Sie dienen zur Kalibrierung der Young fringe Bilder, die bei einer nominellen Vergrößerung von $315.000\times$ (9.4c) bzw. $480.000\times$ (9.4e) aufgenommen wurden. Für die Aufnahme bei $480.000\times$ wurde durch Verringerung der Verschiebung der Einzelbilder gegeneinander der Streifenabstand im zugeordneten Diffraktogramm vergrößert. Dadurch kann bei höheren Raumfrequenzen besser zwischen den Maxima und dem Rauschuntergrund unterschieden werden. Zur Auswertung der beiden Diffraktogramme wurde ein Linescan senkrecht zu den Interferenzstreifen gelegt. Die Mittelung (Breite des Linescans) erfolgte jeweils über 300 Pixel. Der Linescan ist symmetrisch zum Ursprung ausgerichtet, die Länge beträgt insgesamt $10/\text{nm}$. Wie man aus dem Histogramm der Young fringe Aufnahme bei $315.000\times$ entnehmen kann, reicht die Modulation der Intensität nicht bis an die Grenze von $5/\text{nm}$ heran (9.4d). Erst in der Aufnahme bei $480.000\times$ sind auch an den Enden der eingezeichneten Box noch Peaks vorhanden, was einer Auflösung von $0,2 \text{ nm}$ entspricht (9.4f). Damit wurde zwar der Vorgabewert erreicht, liegt aber gegenüber der in Abschnitt 8.9 ermittelten Auflösung von $0,16 \text{ nm}$ bei $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$ zu niedrig. Eine mögliche Ursache könnte die chromatische Aberration sein, die beim fertigen Gerät höher ausfällt, als in der Simulation bestimmt und damit zu einem früheren Abfall der chromatischen Enveloppe führt. Weiterhin hat sich bei der Installation des Gerätes gezeigt, dass die Übertragung hoher Raumfrequenzen empfindlich auf Erdschleifen reagiert. Durch eine konsequente sternförmige Erdung aller externen Komponenten (Korrektorelektronik, Kamera-Controller, PCs) sollte sich das Übertragungsverhalten also weiter verbessern lassen.

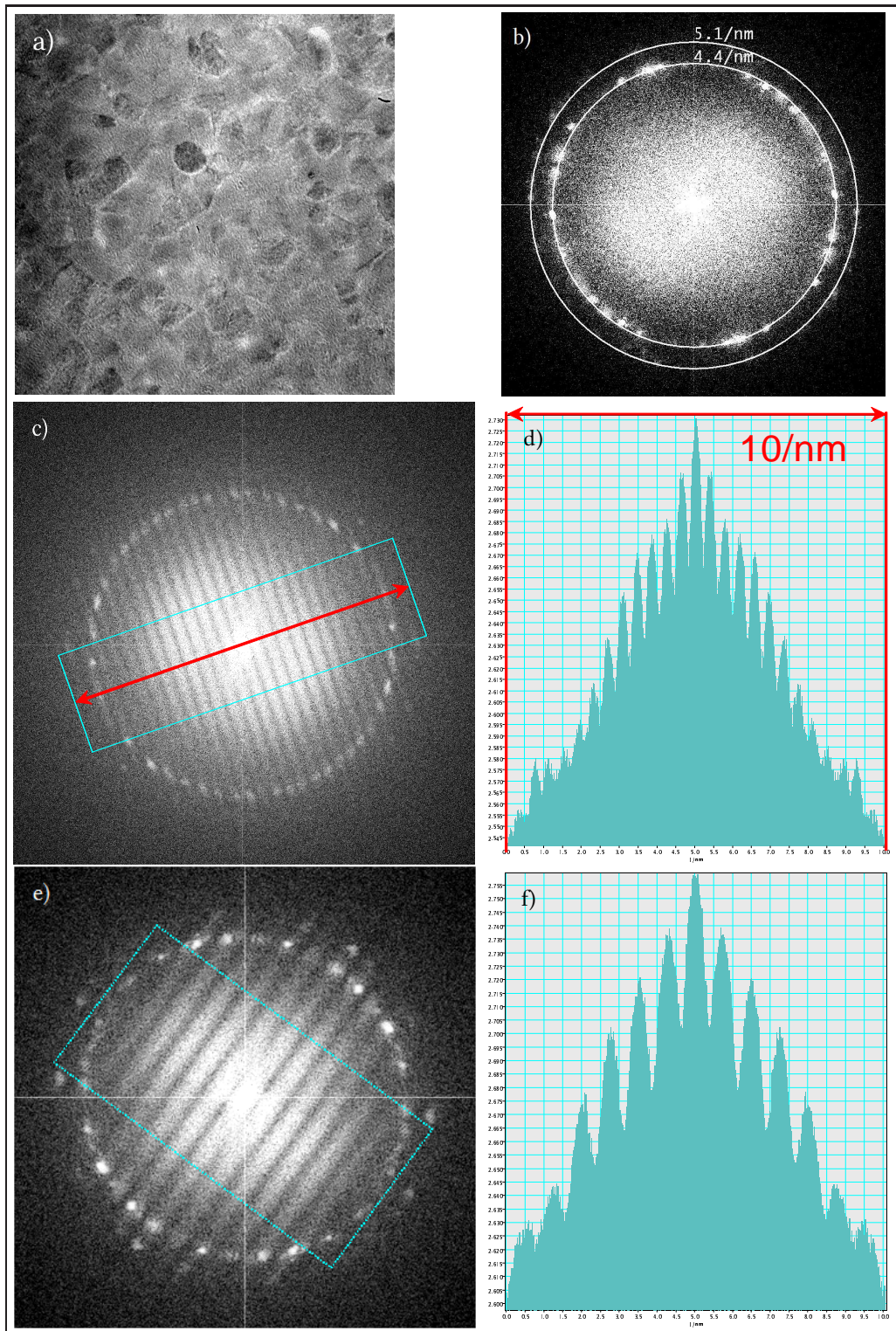


Abbildung 9.4: (a) Aufnahme einer Pt-Folie bei einer Vergrößerung von $480.000\times$ und die daraus berechnete FFT, die zur Kalibrierung herangezogen wurde. (b) Die Ringe markieren den Reflexring bei $4,4\text{ nm}^{-1}$ und $5,1\text{ nm}^{-1}$. (c,e) Die mit dieser Probe aufgenommenen Young fringes bei einer Vergrößerung von $315.000\times$ bzw. $480.000\times$, $\Delta E=0,2\text{ eV}$. (d,f) Das aus dem Linescan gewonnene Histogramm. In (f) reicht die Intensitätsmodulation in beide Richtungen bis an die Kanten der eingezeichneten Box ($L=10/\text{nm}$, $B=300\text{ Pixel}$) heran.

9.5 Messung der Eiskontaminationsrate

Durch die Entstehung kristalliner Eisschichten auf der Probe kommt es zu einer Zunahme der Präparatdicke. Wird die inelastische freie Weglänge überschritten, sinkt das Signal zu Rauschverhältnis ab, da die inelastisch gestreuten Elektronen einen hohen Rauschbeitrag liefern. Für das PACEM als kryotaugliches Gerät wurde diesem Punkt durch Verbesserung der Objektraumkühlung (s. Abschnitt 7.3.2) besondere Aufmerksamkeit geschenkt. Die Aufwachsrate sollte im Bereich von 0,2-0,6 nm/h liegen.

Die Verwendung eines Energiefilters erlaubt eine einfache Bestimmung der Eisdicke. Geht man davon aus, dass die inelastische Streuung exponentiell mit der Probendicke zunimmt, so ergibt sich [Ege95]:

$$d/\Lambda_{\text{inel}} = \ln \left(\frac{I_{\text{zl}}}{I_0} \right) \Rightarrow I_{\text{zl}} = I_0 (-d/\Lambda_{\text{inel}}) \quad (9.9)$$

Dabei ist d die Präparatdicke, Λ_{inel} die inelastische mittlere freie Weglänge der Elektronen im betrachteten Medium, I_0 die (ungefilterte) Gesamtintensität und I_{zl} die Intensität im zero-loss peak. Für die Bestimmung der Eisdicke auf einer Kohlefolie muss diese Formel angepasst werden. Unter der vereinfachten Annahme, dass die Eisschicht sich nicht auf der Ober- und Unterseite der Folie bildet, sondern nur einseitig auf dem Substrat aufwächst (s. Abb. 9.5), kann für die Schwächung der Intensität folgender Ansatz gemacht werden:

$$I_{\text{zl}}(t) = I_0(t) \exp(-d_{\text{ice}}(t)/\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}}) \exp(-d_C(t)/\Lambda_{\text{inel}}^C) \quad (9.10)$$

$$\ln(I_{\text{zl}}(t)/I_0(t)) = -d_{\text{ice}}(t)/\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}} - d_C(t)/\Lambda_{\text{inel}}^C \quad (9.11)$$

$$d_{\text{ice}}(t)/\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}} = -[\ln(I_{\text{zl}}^{\text{ice}}(t)/I_0^{\text{ice}}(t)) + d_C(t)/\Lambda_{\text{inel}}^C] \quad (9.12)$$

Da die Dicke der Kohlefolie während der Messung konstant bleibt, gilt: $d_C(t) = \text{const.} = d_C(0)$ und somit lässt sich Gl. 9.12 weiter umformen:

$$d_{\text{ice}}(t)/\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}} = -[\ln(I_{\text{zl}}^{\text{ice}}(t)/I_0^{\text{ice}}(t)) - \ln(I_{\text{zl}}^C(0)/I_0^C(0))] \quad (9.13)$$

Eine wesentliche Fehlerquelle bei der Bestimmung der Eisdicke stellt der Wert für die mittlere freie Weglänge dar. Je nach Messmethode ergeben sich für $\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}}$ bei einer Beschleunigungsspannung von 120 kV Werte von 84,8 nm [Ang96] und 106 nm [Din95] aber auch deutlich höhere Werte von 203 nm [Gri96] und mehr. Für die Auswertung wurden die Werte von Angert et. al und Dinges et. al auf 200 kV extrapoliert, was zu 119,2 nm und 148,9 nm führt und der Mittelwert gebildet. Hiermit ergibt sich für die mittlere inelastische freie Weglänge der Wert $\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}} = 134$ nm.

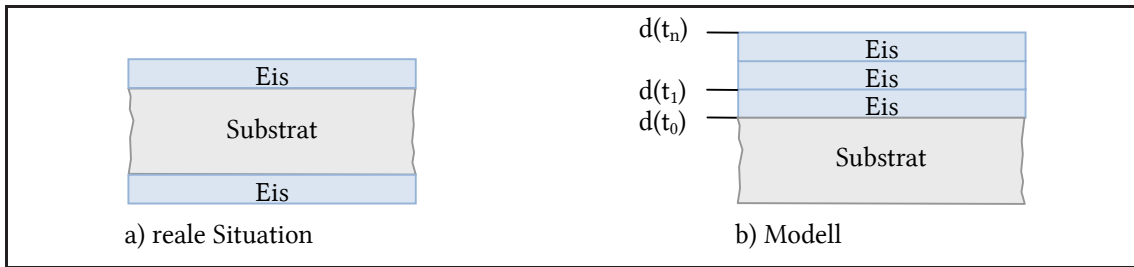


Abbildung 9.5: Veranschaulichung der Eiskontamination. Bei der Berechnung der Eiskontamination wurde als Vereinfachung angenommen, dass die Eisschicht nicht an der Ober- und Unterseite entsteht (a), sondern nur einseitig aufwächst (b).

Tabelle 9.1: Daten aus der Kontaminationsmessung und die daraus berechnete Eisdicke.

n	t [min]	I_0^{ice}	$I_{\text{zl}}^{\text{ice}}$	$\ln(I_{\text{zl}}^{\text{ice}}/I_0^{\text{ice}})$	$d_{\text{ice}}/\Lambda_{\text{inel}}^{\text{ice}}$	d_{ice} [nm]
1	0	152.039	139.058	-0,089	0,0	0,0
2	60	151.255	138.041	-0,091	0,00217	0,29
3	120	150.679	137.511	-0,091	0,00220	0,30
4	180	150.383	136.707	-0,095	0,00609	0,82
5	240	149.813	135.975	-0,097	0,00767	1,03
6	300	149.555	135.473	-0,099	0,009645	1,29
7	360	149.003	134.882	-0,100	0,010320	1,38
8	420	148.627	134.228	-0,102	0,012654	1,70
9	480	151.610	138.292	-0,092	0,002698	0,36

Messmethode

Als Ausgangspunkt dient die ungefilterte und zero-loss gefilterte Abbildung der Kohlefolie, die die Größen $I_0^C(0)$ und $I_{\text{zl}}^C(0)$ liefert. Da zum Zeitpunkt $t = 0$ keine Eisschicht vorhanden ist, gilt für die Bildintensität $I_{0,\text{zl}}^{\text{ice}}(0) = I_{0,\text{zl}}^C(0)$. In Abständen von jeweils 60 min werden zwei Bilder aufgenommen, ein ungefiltertes Bild zur Bestimmung von $I_0^{\text{ice}}(t)$ und ein zero-loss gefiltertes Bild für $I_{\text{zl}}^{\text{ice}}(t)$. Am Ende der Messung ($t = 500$ min) wurde die entstandene Eisschicht durch intensive Bestrahlung partiell weggebrannt und erneut die Intensität bestimmt. Diese betrug $I_{\text{zl}}(500) = 134,67$, was in guter Übereinstimmung zu dem Anfangswert von $I_{\text{zl}}(0) = 139,85$ steht.

Die Messung wurde mit einem Gatan-Kryohalter durchgeführt, der eine Stunde zuvor auf -175°C heruntergekühlt wurde. Zur Aufzeichnung der Bilder diente eine Gatan UltraScan 1000 mit 2048×2048 Pixeln, die ohne Binning betrieben wurde. Die Belichtungszeit je Aufnahme betrug 1 s, die Kondensorbrennweite hatte eine Größe von $200 \mu\text{m}$, die Objektivblende $100 \mu\text{m}$. Die Breite des Filterschlitzes bei der Aufnahme der zero-loss Bilder entsprach 5 eV. Die Gesamtdosis lag bei $5\text{-}6$ Elektronen/ \AA^2 während einer Messzeit von 6 h.

In Tabelle 9.1 sind die aus den neun Messungen errechneten Werte für die Dicke der Eisschicht d_{ice} aufgeführt. Sieht man von der letzten Messung ab, ist die zu erwartende kontinuierliche Zunahme der Eisdicke als Funktion der Zeit zu erkennen.

Die ersten acht Werte sind zusammen mit der in Tabelle 9.2 bestimmten Regressionsgeraden in Abbildung 9.6 dargestellt. Aus der Steigung der Regressionsgeraden b_{yx} ergibt sich die gesuchte Kontaminationsrate. Diese liegt bei 0,24 nm/h und damit nur etwas über dem als untere Grenze spezifizierten Wert von 0,2 nm/h.

Tabelle 9.2: Bestimmung der Koeffizienten b_{yx} und a_{yx} der Regressionsgeraden nach der Methode der kleinsten Quadrate.

n	$x = t$	$y = d_{ice}$	$x_i - \bar{x}$	$y_i - \bar{y}$	$(x_i - \bar{x}) \cdot (y_i - \bar{y})$	$(x_i - \bar{x})^2$	$(y_i - \bar{y})^2$
1	0	0,00	-3,50	-0,85	2,98	12,25	0,72
2	1	0,29	-2,50	-0,56	1,40	6,25	0,31
3	2	0,30	-1,50	-0,56	0,83	2,25	0,31
4	3	0,82	-0,50	-0,03	0,02	0,25	0,00
5	4	1,03	0,50	0,18	0,09	0,25	0,03
6	5	1,29	1,50	0,44	0,66	2,25	0,20
7	6	1,38	2,50	0,53	1,33	6,25	0,28
8	7	1,70	3,50	0,85	2,96	12,25	0,71
Σ	28	6,8	0,0	0,0	10,27	42,0	2,57

$$\bar{x} = \frac{28}{8} = 3,5, \quad \bar{y} = \frac{6,8}{8} = 0,85, \quad s_{xy} = \frac{10,27}{8} = 1,28, \quad s_x^2 = \frac{42}{8} = 5,25, \quad s_y^2 = \frac{2,57}{8} = 0,32, \quad r_{xy} = \frac{s_{xy}}{s_x s_y} = 0,99, \quad b_{yx} = r_{xy} \frac{s_y}{s_x} = 0,24, \quad a_{yx} = \bar{y} - b_{yx} \cdot \bar{x} = 0,85 - 0,24 \cdot 3,5 = -0,005, \quad \hat{y} = 0,244x - 0,005$$

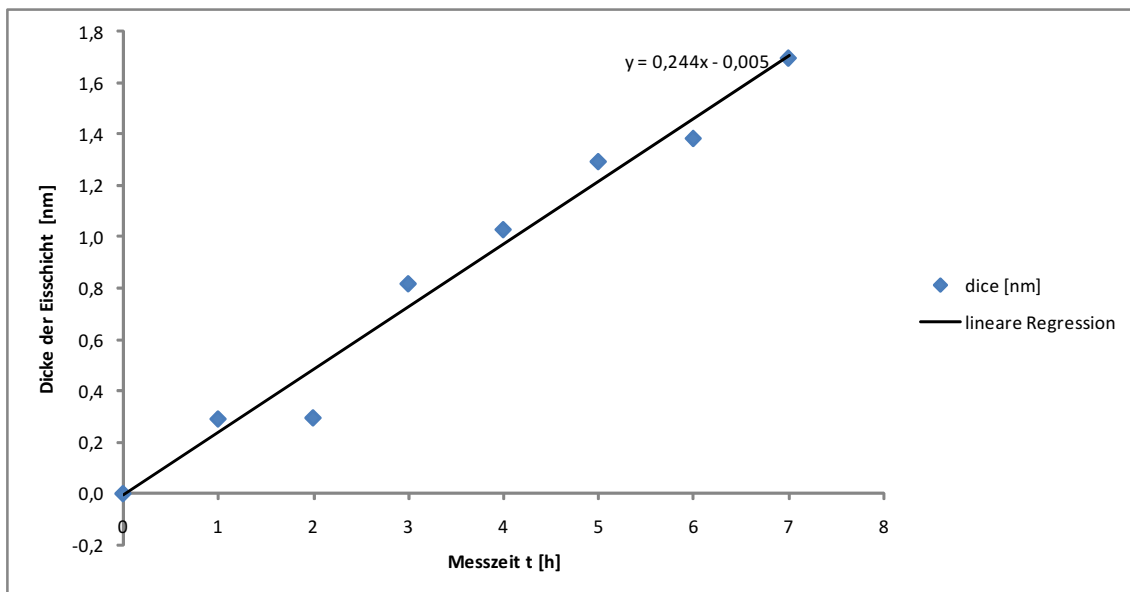


Abbildung 9.6: Gemessene Zunahme der Eisdicke d_{ice} . Die Steigung der Regressionsgeraden entspricht der Kontaminationsrate und beträgt 0,24 nm/h.

9.6 Applikative Resultate

9.6.1 Zernike-Phasenplatte

Da für die ersten Tests kein Exemplar einer Boersch-Phasenplatte zur Verfügung stand, wurde stattdessen eine Kohlefolie als Zernike-Phasenplatte verwendet. Die Foliendicke betrug 23 nm, der Lochdurchmesser 3 μm . In Abbildung 9.9 ist die Kontrastverbesserung bei einer 200 nm dicken Probe mit in Plastik eingebetteten Zellen zu sehen, die sich durch zero-loss Filterung und Wechsel zur Phasenkontrastabbildung ergeben. Es handelt sich bei der Probe um sogenannte PC12-Zellen, welche als Modellsystem zur Untersuchung neuronaler Differenzierung und Entwicklung dienen. Der Übergang von der Hellfeldaufnahme a) zum Hellfeld mit zero-loss-Filterung b) zeigt eine Verbesserung des Kontrasts, jedoch wegen der weiterhin bestehenden Defokussierung keinen Schärfegewinn. Erst durch die Phasenplatte und das Arbeiten ohne Defokussierung c) ergibt sich eine Verbesserung. Die Membrane treten als scharfe Linien deutlich hervor. Das in dem vergrößerten Ausschnittsfenster sichtbare endoplasmatische Retikulum zeigt mehr Granularität.

In Abbildung 9.9 sind außerdem Katalasekristalle¹ bei normaler Hellfeldabbildung d) und mit Zernike-Phasenplatte e) zu sehen. Die zugehörigen Diffraktogramme zeigen, dass die inneren Reflexe bei der Phasenkontrastaufnahme g) durch die kosinusförmige CTF deutlicher hervortreten, als bei der konventionellen Hellfeldabbildung f). Der eingezeichnete Kreis in der FFT der Phasenkontrastaufnahme entspricht der Phasenplattenöffnung von 3 μm .

9.6.2 Boersch-Phasenplatte

Für die Experimente mit der Boersch-Phasenplatte wurden als Testobjekte Tabakmosaikviren (TMV) verwendet. In Abbildung 9.7 ist der Aufbau dieses Virus dargestellt. TMV ist ein ca. 300 nm langes und 18 nm dickes röhrenförmiges Virus, das aus einsträngiger RNA von ca. 6.400 Basen und aus ca. 2.100 identischen Hüllproteinen besteht. Die Periodizität der Helix liegt bei 2,3 nm. Es infiziert ausschließlich Pflanzen, unter anderem Tabak, aber nicht Tiere oder Mikroorganismen.

Abbildung 9.10 zeigt Aufnahmen der Viren bei einer Vergrößerung von 52.000 \times und die zugehörige Fourier-Transformierte bei geringer Defokussierung ($|\Delta f| < 100 \text{ nm}$). Bei der normalen Hellfeldabbildung a) ist lediglich die Außenkontur zu sehen. Das zugeordnete Diffraktogramm b) zeigt keine Reflexe. Wird die Phasenplatte eingefahren und relativ zum Nullstrahl zentriert c) ergibt sich selbst mit geerdeter Elektrode eine Kontrastverbesserung. Dies lässt sich auf die Bildung von Kontaminationsschichten im Bereich der Ringelektrode zurückführen, die sich im Strahl aufladen und dann zu unerwünschter Phasenschiebung führen. Im dazugehörigen Diffraktogramm d) sind die Abschattungen durch die Haltestege zu sehen. Durch die Friedelsymmetrie erhält man sechs statt drei Schattenbilder. Erst bei Anlegen einer

¹Das Enzym Katalase kommt in fast allen tierischen und pflanzlichen Zellen vor. Es katalysiert den Zerfall von Wasserstoffperoxid H_2O_2 in die Komponenten Wasserstoff und Sauerstoff. Zusammen mit dem Enzym Superoxiddismutase, welches freie Sauerstoffradikale zum weniger reaktiven Wasserstoffperoxid reduziert, wirkt die Katalase als Zellschutz.

Spannung von 500 mV an die Ringelektrode e), die zu einer Phasenschiebung von $\pi/2$ führt, wird in der Fourier-Transformierten f) das Reflexpaar bei 1/2,3 nm sichtbar.

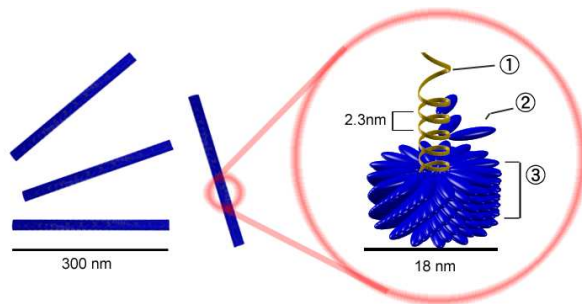


Abbildung 9.7: Schematisches Modell von TMV (aus [Wik05]). In der Ausschnittsvergrößerung ist der innere Aufbau des Virus aus RNA (1), Protomer (2) und Proteinhülle (3) zu sehen. Die Periodizität der Helix beträgt 2,3 nm.

Als zweites Testobjekt wurde Fettsäure-Synthetase verwendet. Es handelt sich um einen Multienzym-Komplex, der den Aufbau von Fettsäuren im Cytoplasma der Zellen von Säugetieren katalisiert. In Abbildung 9.8 ist sowohl die Hellfeldabbildung a) mit Defokussierung als auch die Phasenkontrastabbildung b) dargestellt. Die Außenkontur der Fettsäure-Synthetase, die in der Größenordnung von 10 nm liegt, kann auch bei eingefahrener Phasenplatte erkannt werden. Durch die fünffache Vergrößerung des Beugungsbildes und die daraus resultierende Verkleinerung der Abschneidefrequenz ergeben sich kaum noch Ein-

schränkungen in der Sichtbarkeit.

Bei den Experimenten mit den Boersch-Phasenplatten ist mit zunehmender Betriebsdauer ein Anstieg des Leckstroms zwischen den Elektroden festzustellen. Durch diesen Effekt wird die Phasenplatte nach mehreren Tagen unbrauchbar. Die Versuche mit einer Heizung haben zu einer Reduzierung der Kontamination geführt und zeigen, dass nicht nur Zernike-Phasenplatten von dieser Maßnahme profitieren. Für zukünftige Geräte sollte daher generell eine Heizvorrichtung vorgesehen werden, um die Nutzungsdauer der Phasenplatte zu verlängern.

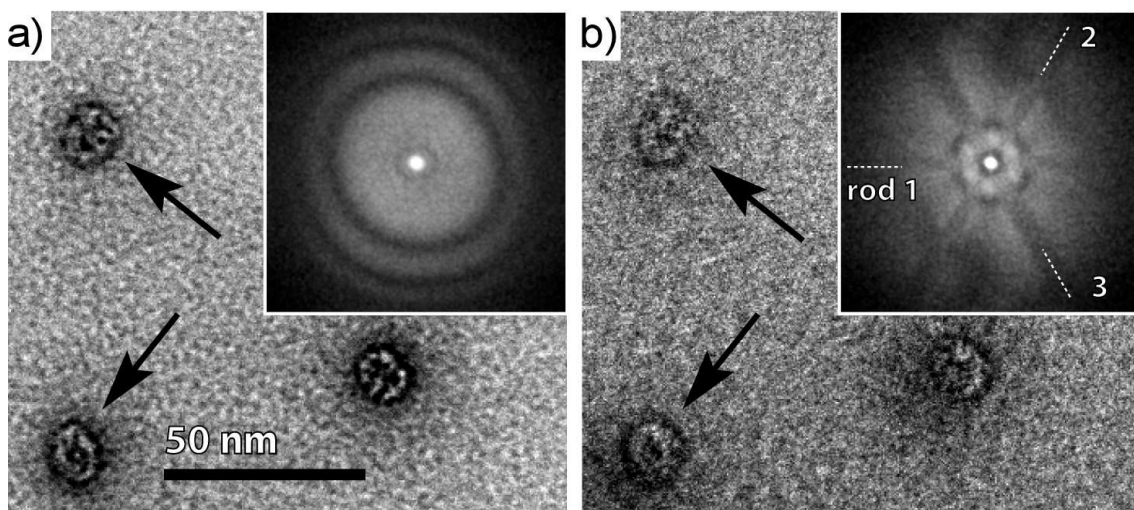


Abbildung 9.8: Abbildung von Fettsäure-Synthetase im PACEM (aus [Bar10]). a) Aufnahme im Unterfokus ohne Phasenplatte. b) Aufnahme mit zentrierter Phasenplatte nahe dem Gaußfokus.

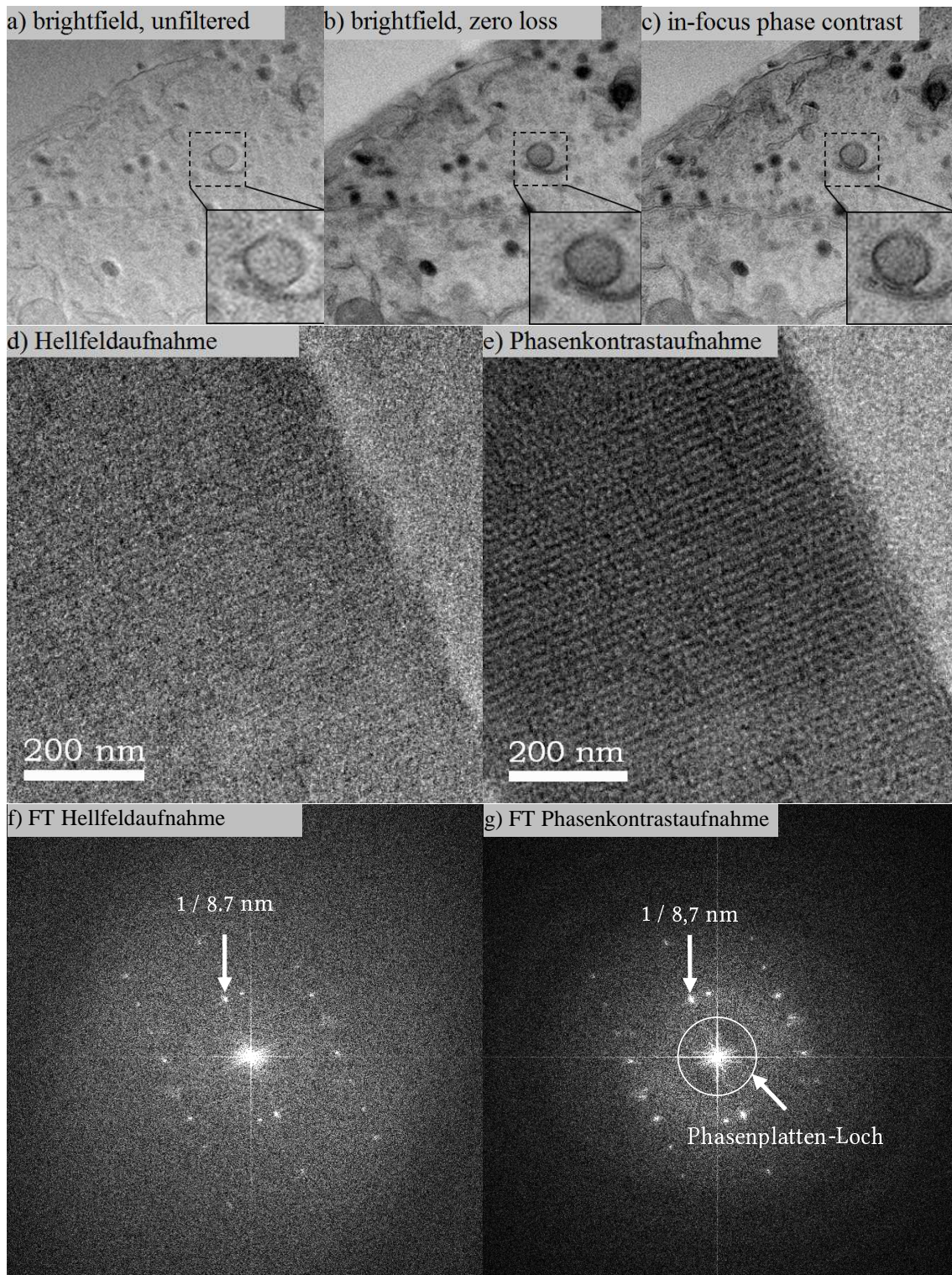


Abbildung 9.9: Die Abbildungen zeigen die Kontrastverbesserung bei der Verwendung einer Zernike-Phasenplatte (Foliendicke 23 nm, Lochdurchmesser 3 μm). (a,b,c) 200 nm dicke Schnitte von in Plastik eingebetteten PC12-Zellen (Vergrößerung 16.000 \times). (d,e) Hellfeldaufnahmen von Katalase-Kristallen (Vergrößerung 125.000 \times) und die zugeordneten Diffraktogramme (f,g). Durch die Verwendung der Phasenplatte ergibt sich eine Intensitätszunahme der inneren Reflexe g) gegenüber der Situation ohne Phasenplatte f).

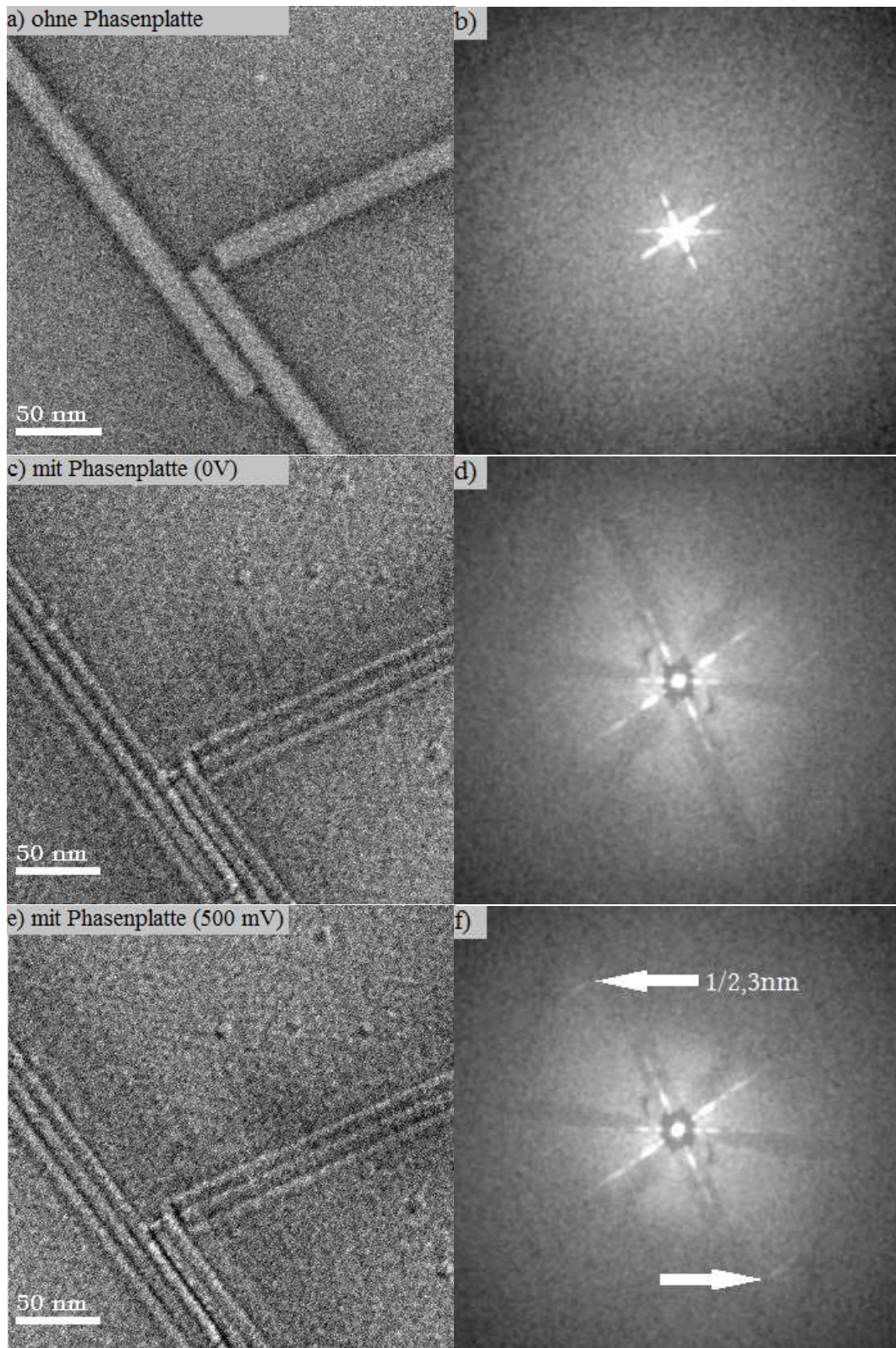


Abbildung 9.10: Abbildung von TMV bei einer Vergrößerung von $52.000\times$ mit der zugeordneten Fourier-Transformierten. (a,b) Ohne Phasenplatte ist keinerlei Struktur sichtbar. c) Wird die Boersch-Phasenplatte eingefahren und relativ zum Nullstrahl zentriert, ergibt sich trotz geerdeter Elektrode eine Kontrastverbesserung. d) Im Diffraktogramm sind wegen der Friedelsymmetrie insgesamt sechs statt drei Haltestege zu sehen. (e,f) Durch Anlegen einer Spannung von $+500\text{ mV}$ werden Reflexe bei $1/2, 3\text{ nm}$ sichtbar.

Kapitel 10

Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Dissertation war die Konzeption eines neuartigen korrigierten TEMs, das durch eine Vergrößerung der hinteren Brennebene und der Verwendung eines C_s -Korrektors die hochauflösende, möglichst verlustfreie Abbildung von Phasenobjekten mittels elektrostatischer Boersch-Phasenplatte ermöglichen soll. Der Einsatz einer solchen Phasenplatte führt wegen der unvermeidlichen Haltestege und der zentralen Ringelektrode zu Abschattungen im Beugungsbild. Bei der von Schröder et al. vorgestellten Variante mit einer ungeradzahligen Zahl von Trägern lässt sich zwar durch Ausnutzung der Friedelsymmetrie die Information im Bereich der Stege rekonstruieren. Der Informationsverlust durch die Ringelektrode ist aber weiterhin vorhanden. Als Lösung für dieses Problem wurde ein Transfersystem präsentiert, das eine Nachvergrößerung des Beugungsbildes ermöglicht und durch entsprechende Auslegung die angestrebte Auflösung von 0,2 nm bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV nicht limitiert. Unter Ausnutzung der Komponenten eines bestehenden Prototypen und der Anordnung der Vergrößerungseinheit unterhalb des Korrektors konnte das System mit einem Minimum an hardwaretechnischen Modifikationen realisiert werden. Zudem erlaubt die Vergrößerungseinheit eine vollständige Trennung zwischen Objektraum und Phasenplattenebene, sodass eine Optimierung sowohl der Probenraumkühlung als auch der Positionierung der Phasenplatte mittels Piezoantrieb ermöglicht wird. Die Phasenplatte kann durch ein Trennventil in der DMU ohne Belüften des Objektivbereiches ausgetauscht werden.

Im ersten Teil der Arbeit wurden Simulationen durchgeführt, die die Optimierung des Gesamtsystems bestehend aus Objektiv, Korrektor und DMU umfassen. Es konnten mehrere Konfigurationen erarbeitet werden, die ausreichend Raum für den Piezomanipulator der Phasenplatte bieten. Sie sind hinsichtlich der sphärischen und chromatischen Aberrationen so ausgelegt, dass zusammen mit den elektrischen Stabilitäten der Linsenversorgung und Hochspannung die angestrebte Auflösung von 0,2 nm im Rahmen der Übertragungstheorie realisierbar ist. Von den insgesamt fünf vorgestellten Varianten haben sich zwei als akzeptabler Kompromiss zwischen Bildvergrößerung, Nachvergrößerung der Beugungsebene und erforderlicher Säulenlänge herausgestellt. Eine dritte, in Zusammenarbeit mit CEOS entwickelte Variante, erfordert nur minimale Modifikationen am Korrektor und wurde daher als finale Lösung umgesetzt. Durch das Konzept der hängenden Säule stellt die bei dieser Kon-

figuration erforderliche Erweiterung von insgesamt 620 mm kein Problem dar. Für zukünftige Geräte, die mit einem konventionellen Untergestell und stehender Säule ausgestattet sind, ist aber die Umsetzung einer Variante mit kleineren Abständen von Vorteil.

Der Vergleich der Ergebnisse des mit ELSA erarbeiteten Simulationsmodells mit den Daten der von CEOS vorgeschlagenen Anordnung zeigt eine gute Übereinstimmung, sodass dieses für zukünftige Berechnungen herangezogen werden kann.

Im zweiten Teil der Arbeit, der im Rahmen der Kundenabnahme durchgeführt wurde, ging es um die experimentelle Überprüfung der aus der Simulation gewonnenen Daten. Die geforderte Nachvergrößerung der hinteren Brennebene von $M_{\text{diff}} > 5$ konnte gezeigt werden. Ebenso ließ sich das spezifizierte Informationslimit von 0,2 nm mit der Methode der Young fringes nachweisen. Die Linse in der DMU kann durch die mechanische Justagevorrichtung ausreichend präzise verschoben werden. Damit ist die Funktionstüchtigkeit des Konzeptes der Vergrößerungseinheit gezeigt. Der neu entwickelte Antikontaminator im Objektiv sorgt für eine Verringerung der Eiskontamination und lieferte bei der durchgeführten Messung eine Kontaminationsrate von 0,24 nm/h.

Die Versuche mit den Phasenplatten zeigen, dass auch bei der elektrostatischen Variante die Belegung mit Kontaminationsschichten von Bedeutung ist. Eine zusätzliche Heizvorrichtung oder Kühlfalle in der DMU kann daher die Nutzungsdauer verlängern und ist für die Umsetzung bei weiteren Geräten des PACEM-Typs vorgesehen.

Eine Verbesserung der Übertragungseigenschaften bei niedrigen Raufrequenzen ohne zusätzliche Vergrößerungseinheit bietet das Konzept der anamorphotischen Phasenplatte. Durch die besonderen geometrischen Verhältnisse werden Verluste durch Abschattungen prinzipiell vermieden. Das hierfür erforderliche verzerrte Beugungsbild steht in einem C_s/C_c -Korrektor zur Verfügung. Die Kombination einer anamorphotischen Phasenplatte mit diesem Korrektor ist im Hinblick auf den Trend zu immer kleineren Beschleunigungsspannungen bei weiterhin hoher Auflösung von Vorteil, da die chromatische Aberration gerade hier dominiert.

Anhang A

Berechnung des chromatischen Infolimits

Wie in Kapitel 4.3.3 beschrieben, dominiert bei TEMs mit FEG die chromatische Enveloppe E_Δ den Verlauf der Dämpfung der PCTF. Durch die Vergrößerung des Polschuhspalts der Objektivlinse auf 15 mm verschärft sich dieses Problem im vorliegenden Fall noch erheblich. Das aus der chromatischen Enveloppe resultierende Infolimit berechnet sich wie folgt [Kee08]:

$$\begin{aligned} E_\Delta(u) &= \exp\left[-\frac{1}{2}\pi^2\lambda^2\Delta^2u^4\right] = \exp[-2] \\ -\frac{1}{2}\pi^2\lambda^2\Delta^2u^4 &= -2 \\ d_\Delta &= \frac{1}{|u_\Delta|} = \sqrt{\frac{\pi\lambda\Delta}{2}}, \text{ mit } \Delta = C_c^* \sqrt{\left(\frac{\Delta U_0}{U_0}\right)^2 + 4\left(\frac{\Delta I_{\text{Obj}}}{I_{\text{Obj}}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{U_0 e}\right)^2} \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

Stabilitäten

Wie bei allen Versorgungen tritt auch bei der Hochspannung eines TEMs und den Linsenquellen Rauschen auf, welches annähernd eine Gaußverteilung des Messwerts um den nominellen Wert zeigt. Die Addition solcher Rauschquellen ist abhängig davon, ob die einzelnen Beiträge zueinander korreliert sind oder nicht. Bei unkorrelierten Teilsignalen ergibt sich der Effektivwert der Rauschgangsspannung durch die geometrische Addition der Effektivwerte der Einzelspannungen. Bei korrelierten Beiträgen, wie sie im vorliegenden Fall bei der Objektivversorgung auftreten, kommt es zu einer teilweisen Kompensation der Rauschbeiträge. Es lässt sich allgemein schreiben:

$$U_{ges} = \sqrt{U_1^2 + U_2^2 + 2KU_1U_2}, \text{ mit } \begin{cases} K = -1 & \text{vollständig antikorreliert} \\ K = 0 & \text{unkorreliert} \\ K = 1 & \text{vollständig korreliert} \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

In die Berechnung der chromatischen Enveloppe nach Gl. 4.21 fließen die Effektivwerte der Hochspannungs- und Stromschwankungen ein. Die Umrechnung von

gemessenen Effektivwerten in Spitzenwerte ist abhängig davon, wie häufig pro Zeiteinheit der peak-to-peak-Wert (pp) über dem Effektivwert (rms) liegen darf. Der in der Praxis am häufigsten angewendete Umrechnungsfaktor liegt bei $U_{pp} = 6,6 \cdot U_{eff}$ [Jun04, Wup94]. In diesem Fall überschreitet der Spitzenwert des Rauschens in 0,1% der Zeit den nominellen Wert. Da im vorliegenden Fall der peak-Wert gemessen und daraus der Effektivwert bestimmt wurde, ist für die Umrechnung eine konservativere Abschätzung gewählt worden. Bei den Stromquellen wurde mit einem Faktor von 1/6 gerechnet:

$$\Delta I_{Obj} = \frac{1}{6} \Delta I_{Obj}^{PP} \quad (A.3)$$

Bei der Umrechnung des gemessenen Spitzenwertes des Rauschens der Hochspannung hat sich ein Faktor von 1/3 als sinnvoll erwiesen:

$$\Delta U_0 = \frac{1}{3} \Delta U_0^{PP} \quad (A.4)$$

Stabilität Hochspannung: $\Delta U_0^{PP}[0, 16 \text{ Hz} - 1 \text{ MHz}] = 100 \text{ meV}$

$$\frac{\Delta U_0^{PP}}{U_0} = \frac{100 \text{ meV}}{200 \text{ kV}} = 0,5 \text{ ppm} \Rightarrow \frac{\Delta U_0^{rms}}{U_0} = \frac{1}{3} \cdot 0,5 \text{ ppm} = 0,17 \text{ ppm (rms)} \quad (A.5)$$

Stabilität Objektivquelle: Hier werden zwei Linsen von zwei unabhängigen Stromquellen gespeist, die gemeinsam zur Ablenkung beitragen. Die magnetische Kopplung über den Eisenkreis des Achtkants wird dabei vernachlässigt ($K=0$), beide Quellen tragen aber je zur Hälfte zum Rauschen/Ablenkung bei, sodass sich insgesamt ergibt:

$$I_{ges} = I_{1,2} \cdot 0,5\sqrt{2} \quad (A.6)$$

Alte Elektronik: $\Delta I_{Obj1,2}^{PP}[0, 1 - 10 \text{ Hz}] = 10 \mu\text{A}$

$$\frac{\Delta I_{Obj1,2}^{PP}}{I_{Obj1,2}} = \frac{10 \mu\text{A}}{4,3 \text{ A}} = 2,3 \text{ ppm} \Rightarrow \frac{\Delta I_{Obj}^{PP}}{I_{Obj}} = 0,5\sqrt{2} \cdot 2,3 \text{ ppm} = 1,64 \text{ ppm} \quad (A.7)$$

$$\frac{\Delta I_{Obj}^{rms}}{I_{Obj}} = \frac{1}{6} \cdot 0,5\sqrt{2} \cdot 2,3 \text{ ppm} = 0,27 \text{ ppm (rms)} \quad (A.8)$$

Neue Elektronik: $\Delta I_{Obj1,2}^{PP}[0, 1 - 10 \text{ Hz}] = 1 \mu\text{A}$

$$\frac{\Delta I_{Obj1,2}^{PP}}{I_{Obj1,2}} = \frac{1 \mu\text{A}}{4,5 \text{ A}} = 0,22 \text{ ppm} \Rightarrow \frac{\Delta I_{Obj}^{PP}}{I} = 0,5\sqrt{2} \cdot 0,22 \text{ ppm} = 0,16 \text{ ppm} \quad (A.9)$$

$$\frac{\Delta I_{Obj}^{rms}}{I_{Obj}} = \frac{1}{6} \cdot 0,5\sqrt{2} \cdot 0,22 \text{ ppm} = 0,03 \text{ ppm (rms)} \quad (A.10)$$

Stabilität Objektivquelle und DMU: Die besondere Konfiguration beim PACEM macht die Berücksichtigung der Stabilität der DMU-Versorgung erforderlich. Da es sich bei

DMU- und Objektivversorgung um zwei unabhängige Quellen ohne Kopplung über einen gemeinsamen magnetischen Eisenkreis handelt, geschieht dies durch die quadratische Addition der einzelnen Rauschbeiträge.

DMU-Quelle: $\Delta I_{\text{DMU}}^{\text{PP}}[0, 1 - 10 \text{ Hz}] = 2, 5 \mu\text{A}$

$$\frac{\Delta I_{\text{DMU}}^{\text{PP}}}{I_{\text{DMU}}} = \frac{2, 5 \mu\text{A}}{6 \text{ A}} = 0, 42 \text{ ppm} \quad (\text{A.11})$$

Alte Elektronik:

$$\frac{\Delta I_{\text{Obj+DMU}}^{\text{PP}}}{I_{\text{Obj+DMU}}} = \sqrt{(1, 64 \text{ ppm})^2 + (0, 42 \text{ ppm})^2} = 1, 69 \text{ ppm} \quad (\text{A.12})$$

$$\frac{\Delta I_{\text{Obj+DMU}}^{\text{rms}}}{I_{\text{Obj+DMU}}} = \frac{1}{6} \cdot 1, 69 \text{ ppm} = 0, 28 \text{ ppm (rms)} \quad (\text{A.13})$$

Neue Elektronik:

$$\frac{\Delta I_{\text{Obj+DMU}}^{\text{PP}}}{I_{\text{Obj+DMU}}} = \sqrt{(0, 16 \text{ ppm})^2 + (0, 42 \text{ ppm})^2} = 0, 45 \text{ ppm} \quad (\text{A.14})$$

$$\frac{\Delta I_{\text{Obj+DMU}}^{\text{rms}}}{I_{\text{Obj+DMU}}} = \frac{1}{6} \cdot 0, 45 \text{ ppm} = 0, 07 \text{ ppm (rms)} \quad (\text{A.15})$$

Energiebreite der Quelle: Die Umrechnung der vollen Halbwertsbreite (FWHM) in den gesuchten rms-Wert ergibt sich nach [Völ99]:

$$\Delta E_{\text{FWHM}} = \sqrt{8 \ln 2} \Delta E \Rightarrow \begin{cases} \Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 7 \text{ eV} \triangleq \frac{\Delta E}{E} = 1, 48 \text{ ppm (rms)} \\ \Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 3 \text{ eV} \triangleq \frac{\Delta E}{E} = 0, 63 \text{ ppm (rms)} \end{cases} \quad (\text{A.16})$$

Informationslimit

Variante 1:

alte Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0, 17 \cdot 10^{-6})^2 + 4 (0, 28 \cdot 10^{-6})^2 + (1, 48 \cdot 10^{-6})^2} = 29, 6 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0, 34 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0, 17 \cdot 10^{-6})^2 + 4 (0, 28 \cdot 10^{-6})^2 + (0, 63 \cdot 10^{-6})^2} = 16, 0 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0, 25 \text{ nm}$$

neue Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0, 17 \cdot 10^{-6})^2 + 4 (0, 07 \cdot 10^{-6})^2 + (1, 48 \cdot 10^{-6})^2} = 27, 8 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0, 33 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0, 17 \cdot 10^{-6})^2 + 4 (0, 07 \cdot 10^{-6})^2 + (0, 63 \cdot 10^{-6})^2} = 12, 4 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0, 22 \text{ nm}$$

Variante 2:

alte Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0, 3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0, 17 \cdot 10^{-6})^2 + 4 (0, 28 \cdot 10^{-6})^2 + (1, 48 \cdot 10^{-6})^2} = 25, 6 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0, 32 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0, 17 \cdot 10^{-6})^2 + 4 (0, 28 \cdot 10^{-6})^2 + (0, 63 \cdot 10^{-6})^2} = 13, 8 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0, 23 \text{ nm}$$

neue Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 24,1 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,31 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 10,7 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,20 \text{ nm}$$

Variante 3:

alte Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,28 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 24,5 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,31 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,28 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 13,2 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,23 \text{ nm}$$

neue Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 23,0 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,30 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 10,3 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,20 \text{ nm}$$

Variante 4:

alte Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,28 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 27,3 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,33 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,28 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 14,7 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,24 \text{ nm}$$

neue Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 25,6 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,32 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 11,4 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,21 \text{ nm}$$

Variante 5 (CEOS):

alte Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,28 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 15,1 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,24 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,28 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 8,2 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,18 \text{ nm}$$

neue Elektronik/ $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,7 \text{ eV}$ bzw. $\Delta E_{\text{FWHM}} = 0,3 \text{ eV}$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (1,48 \cdot 10^{-6})^2} = 14,2 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,23 \text{ nm}$$

$$\Delta = C_c^* \sqrt{(0,17 \cdot 10^{-6})^2 + 4(0,07 \cdot 10^{-6})^2 + (0,63 \cdot 10^{-6})^2} = 6,3 \text{ nm} \Rightarrow d_{\Delta} = 0,16 \text{ nm}$$

Fazit

- Mit allen vorgestellten Konfigurationen lässt sich unter Verwendung des Monochromators der FEG und der neuen Elektronik das angestrebte Informationslimit erreichen.
- Bis auf die letzte Variante ist die stabilere Elektronik für das Erreichen des spezifizierten Infolimits unbedingt erforderlich.

- Durch die große chromatische Aberration ist die Energiebreite der Quelle entscheidend für die erreichbare Auflösung.

Anhang B

Die relativistische Elektronenwellenlänge

TEMs arbeiten bei Beschleunigungsspannungen von etwa 80-1200 kV, was die Berücksichtigung von relativistischen Effekten bei der Berechnung der de Broglie-Wellenlänge erforderlich macht. Die Gesamtenergie des relativistischen Elektrons ist gegeben durch Ruheenergie und kinetische Energie T :

$$E_t = mc^2 = m_0c^2 + T \quad (\text{B.1})$$

wobei m_0 die Ruhemasse des Elektrons und c die Lichtgeschwindigkeit ist. Wird das Elektron durch ein elektrisches Feld E beschleunigt, erhält es die potentielle Energie eU , die vollständig in kinetische Energie umgewandelt wird, wenn es das elektrische Feld verlässt:

$$eU = (m - m_0) c^2 \quad (\text{B.2})$$

Die Massenzunahme mit wachsender Geschwindigkeit ergibt sich wie folgt:

$$m = \gamma m_0 = \frac{m_0}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} \quad (\text{B.3})$$

Zusammen mit B.2 erhält man:

$$\gamma = 1 + \frac{eU}{m_0c^2} = 1 + \omega \quad (\text{B.4})$$

Aus der Definition von γ lässt sich die Geschwindigkeit des Elektrons herleiten:

$$v = c\sqrt{1 - \frac{1}{\gamma^2}} = \frac{c}{1 + \omega} \sqrt{(1 + \omega)^2 - 1} \quad (\text{B.5})$$

Für den Impuls folgt daraus:

$$p = mv = m_0(1 + \omega)v = m_0c\sqrt{2\omega + \omega^2} = \sqrt{2m_0eU \left[1 + \frac{eU}{2m_0c^2} \right]} \quad (\text{B.6})$$

was mit der de Broglie-Beziehung zur Wellenlänge führt:

$$p = \hbar k = \frac{h}{\lambda} \Rightarrow \lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0eU \left[1 + \frac{eU}{2m_0c^2}\right]}} \quad (\text{B.7})$$

Es erweist sich als günstig, ein relativistisches korrigiertes Beschleunigungspotential $\hat{\Phi}$ einzuführen, da sich dadurch bei der Beschreibung der Bewegung der Elektronen die nichtrelativistischen Bewegungsgleichungen verwenden lassen:

$$\hat{\Phi} \equiv U \left(1 + \frac{e}{2m_0c^2}U\right) = U + \varepsilon U^2 \quad (\text{B.8})$$

Dabei ist $\varepsilon = 0,97845 \cdot 10^{-6} \text{ V}^{-1}$. In Tabelle B.1 sind für die wichtigsten Beschleunigungsspannungen, die zugehörigen Wellenlängen, die Wellenzahl und das relativistisch korrigierte Beschleunigungspotential angegeben.

Tabelle B.1: Relativistisches Beschleunigungspotential $\hat{\Phi}$, Wellenlänge λ , Wellenzahl K_0 , Massenverhältnis γ und Wechselwirkungskonstante σ für verschiedene Beschleunigungsspannungen U_0 .

U_0 [kV]	$\hat{\Phi}$ [V]	λ [pm]	K_0 [nm^{-1}]	$\gamma = m/m_0$	$\beta = v/c$	σ [$\text{V}^{-1}\text{nm}^{-1}$]
100	109 784	3,701	270,165	1,196	0,548	0,009 244
120	134 090	3,349	298,577	1,235	0,587	0,008 638
200	239 139	2,508	398,734	1,391	0,695	0,007 288
300	388 062	1,969	507,937	1,587	0,777	0,006 526
400	556 556	1,644	608,293	1,783	0,828	0,006 121

Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

Liste der verwendeten Abkürzungen

ACTF	Amplitude Contrast Transfer Function
ADL	Adaptionslinse
BEM.....	Boundary Element Method
BPP	Boersch Phase Plate
CCD.....	Charge-Coupled Device
CFEG	Cold Field Emission Gun
CTEM.....	Conventional Transmission Electron Microscopy
CTF	Contrast Transfer Function
DIC.....	Differential Interference Contrast
DML.....	Diffraction Magnification Lens
DMU	Diffraction Magnification Unit
DPC	Differential Phase Contrast
DTEM.....	Difference-Contrast Electron Microscope
EFTEM.....	Energy-Filtered Transmission Electron Microscopy
EFW	Exit Wave Function
FDM.....	Finite Difference Method
FEG	Field Emission Gun
FEM.....	Finite Element Method
FOFEM.....	First-Order Finite Element Method
FWHM.....	Full Width at Half Maximum
HFEG	Heated Field Emission Gun
HPC	Hilbert Phase Contrast
HRTEM	High-Resolution Transmission Electron Microscopy
IGP.....	Ionengerpumppe
NA	numerische Apertur
OBE.....	Objektebene
OÅM.....	One-Ångstrom Microscope
PACEM.....	Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope
PCTF.....	Phase Contrast Transfer Function
POA.....	Phase Object Approximation
pp	Peak-to-Peak

PPE	Phasenplattenebene
PSF	Point Spread Function
RMS	Root Mean Square
SNR	Signal-to-Noise Ratio
SAE	Selected Area Ebene
SE	Sekundärelektronen
TEAM	Transmission Electron Aberration-corrected Microscope
TEM	Transmission Electron Microscope
TLmn	Transferlinsen im Korrektor
UHV	Ultrahochvakuum, Drücke von $p < 10^{-7}$ mbar
WPO	Weak-Phase Object
WPOA	Weak-Phase Object Approximation
YAG	Yttrium Aluminium Granat

Liste der verwendeten Symbole

α	Beleuchtungshalbwinkel
β_{eff}	effektiver Richtstrahlwert
β	axialer Richtstrahlwert
ΔE	volle Halbwertsbreite der Startenergieverteilung
δE	Energieabweichung des Elektronenstrahls
Δf_{Sch}	Scherzer-Fokus
Δf_L	Lichte-Fokus
ΔI_{Obj}	Instabilität des Objektivlinsenstroms
ΔU_0	Instabilität der Hochspannung
Δ	defocus spread
$\Delta \varphi_{\text{PP}}$	Phasenschiebung durch eine Phasenplatte
$\hat{\Phi}$	relativistisch korrigiertes Beschleunigungspotential
λ	Wellenlänge
Λ_{inel}	inelastische mittlere freie Weglänge
\mathcal{F}	Fourier-Transformation
$\psi_0(r)$	einfallende Welle/ungestreuter Wellenanteil der Austrittswelle
$\psi_b(r)$	Bildwellenfunktion
$\psi_e(r)$	Austrittswellenfunktion
$\psi_o(r)$	Objektwellenfunktion
$\psi_s(r)$	gestreuter Anteil der Elektronen
θ	Aperturhalbwinkel des Objektivs
Δf	Defokussierung
Δf_c	chromatische Defokussierung
ε_0	Dielektrizitätskonstante des Vakuums
$\varphi(r)$	Phase der Wellenfunktion
\vec{k}	Wellenvektor
\vec{r}	Ortsraumvektor

$A(k)$	Aperturfunktion
$a(r)$	Amplitude der Wellenfunktion
A_0	lineare Phasenschiebung
A_1	zweizähliger Astigmatismus
A_2	dreizähliger Astigmatismus
A_3	vierzähliger Astigmatismus
b	Bildweite
$B(k)$	Aberrationsfunktion
B_2	axiale Koma
B_3	axialer Sternfehler
C	Kontrast
c	Lichtgeschwindigkeit
C_1	Defokus
C_3	Öffnungsfehler dritter Ordnung
C_c	Farbfehler erster Ordnung und ersten Grades
$d\Omega$	Raumwinkelement
d_{gap}	Polschuhspalt
d_{ice}	Dicke der Eisschicht
d_{info}	Informationslimit
d_p	Punktauflösung, Scherzerauflösung
dA	Flächenelement
e	Elementarladung des Elektrons
$E(k)$	Dämpfungsfunktion
E_0	Kinetische Energie der Elektronen
$E_\alpha(k)$	Envelope der Quelle, räumliche Kohärenz
$E_\Delta(k)$	chromatische Envelope, zeitliche Kohärenz
$E_d(k)$	Detektorenvelope
$E_d(k)$	Envelope der Probedrift
$E_v(k)$	Envelope der Probenvibration
f_{DML1}	Brennweite der ersten Beugungslinse
f_{eff}	effektive Brennweite
f_{Obj}	Brennweite des Objektivs
f_r	relativistischer Korrekturfaktor
g	Gegenstandsweite
$I(r)$	Bildintensität
I_0	ungefilterte Gesamtintensität
I_{Obj}	Objektivlinsenstrom
I_{zl}	Intensität im zero-loss peak
$J_0(x)$	Besselfunktion nullter Ordnung
$J_1(x)$	Besselfunktion erster Ordnung
k	Raumfrequenz, Absolutbetrag des Wellenvektors
$k_{\text{cut-on}}$	Abschneidefrequenz
M	Lateralvergrößerung
M_{Diff}	Vergrößerung der hinteren Brennebene
M_{ges}	Gesamtvergrößerung

M_{PII}	Vergrößerung durch das zweite Projektiv
M_{PI}	Vergrößerung durch das erste Projektiv
M_{SA}	Zwischenbildvergrößerung in der SA-Ebene
M_A	Angularvergrößerung
m_0	Ruhemasse des Elektrons
n	Brechungsindex
p	kanonischer Impuls
r_{bore}	Bohrungsradius des Polschuhs
r_i, r_a	innerer/äußerer Radius der Ringelektrode
$S_o(k)$	Objektspektrum, Fourier-Transformierte der Objektwelle
t_{exp}	Belichtungszeit
U_0	Beschleunigungsspannung
u_α	Axiale Fundamentalbahn
u_γ	Feldbahn
V_i	mittleres inneres Potential
W	Wave Aberration Function
Z	Ordnungszahl
z_0	z-Koordinate des Gegenstands
z_{BPP}	Phasenplattenebene
z_i	z-Koordinate des Bildes

Literaturverzeichnis

- [Abb73] E. Abbe: *Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung*. Archiv für Mikroskopische Anatomie 9 (1873), 413-468.
- [Abb86] E. Abbe: *Ueber Verbesserungen des Mikroskops mit Hilfe neuer Arten optischen Glases*. Sitzungsberichte der medicin.-naturw. Gesellschaft zu Jena (1886).
- [Ang96] I. Angert, C. Burmester, C. Dinges, H. Rose, R.R. Schröder: *Elastic and inelastic scattering cross-sections of amorphous layers of carbon and vitrified ice*. Ultramicroscopy 63 (1996), 181-192.
- [Ang97] I. Angert: *Der Bildkontrast biologischer Proben in der Kryo-Elektronenmikroskopie*. Dissertation an der Universität Heidelberg (1997).
- [Ang00] I. Angert, E. Majorovits, R.R. Schröder: *Zero-loss image formation and modified contrast transfer theory in EFTEM*. Ultramicroscopy 81 (2000), 203-222.
- [Bad70] H.G. Badde, L. Reimer: *Der Einfluss einer streuenden Phasenplatte auf das elektronenmikroskopische Bild*. Z. Naturforsch. 25a (1970), 760-765.
- [Bar05] B. Barton: *Elektrostatistische Phasenplatte für die Transmissions-Elektronenmikroskopie*. Diplomarbeit an der Universität Heidelberg (2005).
- [Bar08] B. Barton: *Development and Implementation of In-Focus Phase Contrast TEM for Materials and Life Sciences*. Dissertation an der Universität Heidelberg (2008).
- [Bar10] B. Barton, K. Schultheiß, M. Matijevic, D. Gerthsen, W. Kühlbrandt: *Optimized In-focus Boersch Phase Contrast in a Dedicated TEM*. Microscopy and Microanalysis 16 (Suppl. 2) (2010), 540-541.
- [Bat00] P.E. Batson, H.W. Mook, P. Kruit: *High Brightness Monochromator for STEM*. Inst. Phys. Conf. Ser. No 165: Symposium 6 (2000), 213-214.
- [Bus27] H. Busch: *Über die Wirkungsweise der Konzentrierungsspule bei der Braunschen Röhre*. Arch. Elektrotech. 18 (1927), 583-594.
- [Bec79] V.D. Beck: *A hexapole spherical aberration corrector*. Optik 53 (1979), 241-255.

- [Ben03a] G. Benner: *Elektronenmikroskop mit ringförmiger Beleuchtungsapertur*. Deutsches Patent DE 10200645 A1 vom 24.07.2003.
- [Ben03b] G. Benner, A. Orchowski, M. Haider, P. Hartel: *State of the first aberration-corrected, monochromized 200kV FEG-TEM*. *Microscopy and Microanalysis* 9 (Suppl. 02) (2003), 938-939.
- [Ben04] G. Benner, M. Matijevic, A. Orchowski, P. Schlossmacher, A. Thesen, M. Haider, P. Hartel: *Sub-Ångstrom and sub-eV resolution with the analytical SATEM*. *Microscopy and Microanalysis* 10 (Suppl. 03) (2004), 6-7.
- [Ber04] L. Bergmann, C. Schaefer: *Lehrbuch der Experimentalphysik, Bd. 3: Optik. Wellen- und Teilchenoptik*. Walter de Gruyter (2004).
- [Ber80] W. Bernhard: *Erprobung eines sphärisch und chromatisch korrigierten Elektronenmikroskops*. *Optik* 57 (1980), 73-94.
- [Boe47] H. Boersch: *Über die Kontraste von Atomen im Elektronenmikroskop*. *Zeitschrift f. Naturforschung* 2A (1947), 615-633.
- [Bro25] L. de Broglie: *Recherches sur la théorie des quanta*. *Ann. de Physique* 3 (1925), 22-128.
- [Cam07] R. Cambie, K.H. Downing, D. Typke, R.M. Glaeser, J. Jin: *Design of a microfabricated, two-electrode phase-contrast element suitable for electron microscopy*. *Ultramicroscopy* 107 (2007), 329-339.
- [Ceo07] Studie von CEOS zur Integration des CETCOR im PACEM (2007).
- [Coe91] W.M.J. Coene, T.J.J. Denteneer: *Improved methods for the determination of the spherical aberration coefficient in high-resolution electron microscopy from micrographs of an amorphous object*. *Ultramicroscopy* 38 (1991), 225-233.
- [Coe92] W. Coene, G. Janssen, M. Op De Beeck, D. Van. Dyck: *Phase retrieval through focus variation for ultra-resolution in field-emission transmission electron microscopy*. *Phys. Rev. Lett.* 69 (1992), 3743-3746.
- [Cow75] J.M. Cowley: *Diffraction Physics*. Elsevier, New York, (1975).
- [Cow92] J.M. Cowley: *Twenty forms of electron holography*. *Ultramicroscopy* 41 (1992), 335-348.
- [Dan01] R. Danev, K. Nagayama: *Transmission electron microscopy with Zernike phase plate*. *Ultramicroscopy* 88 (2001), 243-252.
- [Dan02a] K. Danov, R. Danev, K. Nagayama: *Reconstruction of the electric charge density in thin films from the contrast transfer function measurements*. *Ultramicroscopy* 90 (2002), 85-95.

- [Dan02b] R. Danev, H. Okawara, N. Usuda, K. Kametani, K. Nagayama: *A Novel Phase-contrast Transmission Electron Microscopy Producing High-contrast Topographic Images of Weak Objects*. J. Biol. Phys. 28 (2002), 627–635.
- [Dan04] R. Danev, K. Nagayama: *Complex Observation in Electron Microscopy: IV. Reconstruction of Complex Object Wave from Conventional and Half Plane Phase Plate Image Pair*. J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004), 2718–2724.
- [Dan06] R. Danev, K. Nagayama: *Applicability of thin film phase plates in biological electron microscopy*. Biophysics 2 (2006), 35-43.
- [Din95] C. Dinges, A. Berger, H. Rose: *Simulation of TEM images considering phonon and electronic excitations*. Ultramicroscopy 60 (1995), 49-70.
- [Ege95] R.F. Egerton, R.D. Leapman: *Quantitative electron energy-loss spectroscopy*. Springer Series in Optical Sciences, vol. 71 (1995), 269-190.
- [Ess02] E. Essers, G. Benner, A. Orchowski, R. Kappel, M. Trunz: *New Approach for Ultra-Stable TEM-Column Support Frame*. Microscopy and Microanalysis 8 (Suppl. S02) (2002), 484-485.
- [Fej77] P.J. Fejes: *Approximations for the calculation of high-resolution electron-microscope images of thin films*. Acta Cryst. A33 (1977), 109-113.
- [Fra73] J. Frank: *The envelope of electron microscopic transfer functions for partially coherent illumination*. Optik 38 (1973), 519-536.
- [Fra75] J. Frank: *A practical resolution criterion in optics and electron microscopy*. Optik 43 (1975), 25-34.
- [Fra76] J. Frank: *Determination of source size and energy spread from electron micrographs using the method of Young's fringes*. Optik 44 (1976), 379-391.
- [Gra03] M. de Graef: *Introduction to Conventional Transmission Electron Microscopy*. Cambridge University Press (2003).
- [Gri96] R. Grimm, D. Typke, M. Bärmann, W. Baumeister: *Determination of the inelastic mean free path in ice by examination of tilted vesicles and automated most probable loss imaging*. Ultramicroscopy 63 (1996), 169-179.
- [Hai95] M. Haider, G. Braunshausen, E. Schwan: *Correction of the spherical aberration of a 200 kV TEM by means of a hexapole-corrector*. Optik 99 (1995), 167-179.
- [Hai98] M. Haider, S. Uhlemann, E. Schwan, H. Rose, B. Kabius, K. Urban: *Electron microscopy image enhanced*. Nature 392 (1998), 768-769.
- [Hai08a] M. Haider, H. Müller, S. Uhlemann, J. Zach, U. Loebau, R. Hoeschen: *Prerequisites for a Cc/Cs-corrected ultrahigh-resolution TEM*. Ultramicroscopy 108 (2008), 167-178.

- [Hai08b] M. Haider, H. Müller, S. Uhlemann: *Present and Future Hexapole Aberration Correctors for High-Resolution Electron Microscopy*. In: *Advances in Imaging and Electron Physics: Aberration-Corrected Microscopy*. Vol. 153 (2008), 43-116.
- [Han73] K.-J. Hanszen: *Contrast transfer and image processing*. In: *Image Processing and Computer-Aided Design in Electron Optics*. Academic Press London/New York (1973), 16-53.
- [Har06] P. Hartel: *New technologies: Cs and Cc correctors, monochromators, energy filters*. TEM UCA Summer Workshop on Nanoparticle Research 2006.
- [Haw73] P.W. Hawkes: *Introduction to electron optical transfer theory*. In: *Image Processing and Computer-Aided Design in Electron Optics*. Academic Press London/New York (1973), 2-15.
- [Haw96] P.W. Hawkes, E. Kasper: *Principles of Electron Optics, Volume 2: Applied Geometrical Optics*. Academic Press, London, (1996).
- [Hel82] H. Hely: *Technologische Voraussetzungen für die Verbesserung der Korrektur von Elektronenlinsen*. *Optik* 60 (1982), 307-326.
- [Hop61] W. Hoppe: *Ein neuer Weg zur Erhöhung des Auflösungsvermögens des Elektronenmikroskops*. *Naturwissenschaften* 48 (1961), 736-737.
- [Hos05] F. Hosokawa, R. Danev, Y. Arai, K. Nagayama: *Transfer doublet and an elaborated phase plate holder for 120 kV electron-phase microscope*. *Journal of Electron Microscopy* 54(4) (2005), 317-324.
- [Hum81] C.J. Humphreys, J.C.H. Spence: *Resolution and illumination coherence in electron microscopy*. *Optik* 58 (1981), 125-144.
- [Jin10] J. Jin, R.M. Glaeser: *Electron microscope phase enhancement*. US Patent US 7737412 B2 vom 15.06.2010.
- [Joh73] H.M. Johnson, H.A. Hayat: *Principles and Techniques of Electron Microscopy*. Van Nostrand Reinhold Co., New York, 3 (1973), 153-198.
- [Jon93] A.F. de Jong D. van Dyck: *Ultimate resolution and information in electron microscopy II. The information limit of transmission electron microscopes*. *Ultramicroscopy* 49 (1993), 66-80.
- [Jun04] W.G. Jung: *Op Amp Applications Handbook*. Analog Devices Series, Newnes (2004).
- [Kah99] F. Kahl: *Design eines Monochromators für Elektronenquellen*. Dissertation (1999) Inst. für Angewandte Physik, TU Darmstadt.
- [Kah00] F. Kahl, H. Rose: *Design of a monochromator for electron sources*. Proc. EUREM-12, Brno, vol. 3 (2000), 1459-1450.

- [Kan58] K. Kanaya, H. Kawakatsu: *Experiment on the Electron Phase Microscope*. J. Appl. Phys. 29 (1958), 1046–1049.
- [Kan70] H. Tochigi et al.: *The improvement of the image contrast by using the phase plate in the TEM*. Société Française de Microscopie Électronique 1 (1970), 73.
- [Kee92] M.A. O´Keefe: „Resolution“ in high-resolution electron microscopy. Ultramicroscopy 47 (1992), 282-297.
- [Kee04] M.A. O´Keefe, C.J.D. Hetherington, E.C. Nelson: *Sub-Ångstrom Resolution with a Mid-Voltage TEM*. Microscopy Today 12 (2004), 28-29.
- [Kee08] M.A. O´Keefe: *Seeing atoms with aberration-corrected sub-Ångström electron microscopy*. Ultramicroscopy 108 (2008), 196-209.
- [Kir84] E.J. Kirkland: *Improved high resolution image processing of bright field electron micrographs: I. Theory*. Ultramicroscopy 15 (1984), 151-172.
- [Kra75] W. Krakow: *Phase contrast in electron microscope images with an electrostatic phase plate*. Optik 42 (1975), 245-268.
- [Kri76] O.L. Krivanek: *A method for determining the coefficient of spherical aberration from a single electron micrograph*. Optik 45 (1976), 97–101.
- [Kri97] O.L. Krivanek, N. Dellby, A.J.H. Spence, R.A. Camps L.M. Brown, EMAG '97 I.o.P.. Conference series (ed. J.M.Rodenburg) 153 (1997), 35-40.
- [Kos87] A.J. Koster, A. van den Bos, K.D. van der Mast: *An autofocus method for a TEM*. Ultramicroscopy 21 (1987), 209-222.
- [Lan66] R. Langer, W. Hoppe: *Die Erhöhung von Auflösung und Kontrast im Elektronenmikroskop mit Zonenkorrekturplatten*. Optik 24 (1966), 470–489.
- [Len86] B. Lencová, M. Lenc: *A finite element method for the computation of magnetic electron lenses*. Scanning Electron Microscopy 86, Part III (1986), 897-915.
- [Len99] B. Lencová: *Accurate computation of magnetic lenses with FOFEM*. Nucl. Instr. Meth. In Phys. Res. A427 (1999), 329-337.
- [Len04] M. Lentzen: *The tuning of a Zernike phase plate with defocus and variable spherical aberration and its use in HRTEM imaging*. Ultramicroscopy 99 (2004), 211-220.
- [Lic91] H. Lichte: *Optimum focus for taking electron holograms*. Ultramicroscopy 38 (1991), 13-22.
- [Maj02] E. Majorovits: *Assessing phase contrast electron microscopy with electrostatic Boersch- and Zernike-type phase plates*. Dissertation an der Universität Heidelberg (2002).

- [Maj07] E. Majorovits, B. Barton, K. Schultheiß, F. Perez-Willard, D. Gerthsen, R.R. Schröder: *Optimizing phase contrast in transmission electron microscopy with an electrostatic (Boersch) phase plate*. Ultramicroscopy 107 (2007), 213–226.
- [Mat07] M. Matijevic, H. Stegmann, E. Essers, and G. Benner: *Recent Results of an in-column Energy Filter TEM with Monochromator*. Microscopy and Microanalysis 13 (Suppl. 02) (2007), 1160-1161.
- [Mat96] T. Matsumoto, A. Tonomura: *The phase constancy of electron waves traveling through Boersch's electrostatic phase plate*. Ultramicroscopy 63 (1996), 5-10.
- [Mat97] T. Matsumoto, A. Tonomura: *Phasenkontrastelektronenmikroskop und dafür geeignete Phasenplatte*. Europäisches Patent EP 0782170 A2 vom 02.07.1997.
- [Moo99] H.W. Mook, P. Kruit: *Optics and design of the fringe field monochromator for a Schottky field emission gun*. Nucl. Instr. & Meth. in Phys. Res. A 427 (1999), 109-120.
- [Mül76] K.-H. Müller: *Phasenplatten für Elektronenmikroskope*. Optik 45 (1976), 73-85.
- [Nag01] K. Nagayama, R. Danev: *Dünnschichtphasenplatte, Phasenkontrast-Elektronenmikroskop mit solch einer Dünnschichtphasenplatte und Verfahren zur Verhinderung des Ladens der Phasenplatte*. Deutsches Patent DE 10114949 A1 vom 04.10.2001.
- [Nag03] K. Nagayama, R. Danev: *Differentielles Kontrasttransmissionselektronenmikroskop und Verfahren zur Verarbeitung von elektronenmikroskopischen Bilddaten*. Deutsches Patent DE 10240859 A1 vom 28.08.2003.
- [Nag08] K. Nagayama, R. Danev: *Phase contrast electron microscopy: development of thin-film phase plates and biological applications*. Phil. Trans. R. Soc. B 363 (2008), 2153–2162.
- [Nom55] G. Nomarski: *Microinterféromètre différentiel à ondes polarisées*. J. Phys. Radium 16 (1955), 9–13.
- [Oly10] Erstellt mit dem Java-Applet von Mortimer Abramowitz (Olympus America). <http://www.olympusmicro.com/primer/java/microscopy/airydiscs2/>.
- [Orl97] J. Orloff: *Handbook of Charged Particle Optics*. CRC Press, New York (1997), 14-15.
- [Par72] D.F. Parsons, H.M. Johnson: *Possibility of a Phase Contrast Electron Microscope*. Applied Optics 11 (December 1972), 2840-2843.

- [Pen97] P.A. Penczek, J. Zhu, R. Schröder, J. Frank: *Three-dimensional reconstruction with contrast transfer function compensation from defocus series*. Scanning Microscopy Supplement 11 (1997), 1-10.
- [Pre95] D. Preikszas: *Korrektur des Farb- und Öffnungsfehlers eines Niederspannungs-Elektronenmikroskops mit Hilfe eines Elektronenspiegels*. Dissertation an der Universität Darmstadt (1995).
- [Pre00] D. Preikszas, P. Hartel, R. Spehr, H. Rose. *SMART electron optics*. Proceedings of the 12th European Congress on Electron Microscopy, Vol. III, Brno (Czech Republic), 9th to 14th July 2000, I 81-I 84.
- [Rae80] H. Raether: *Excitation of Plasmons and Interband Transitions by Electrons*. Springer Tracts in Modern Physics 88 (1980).
- [Ray79] J.W. Strutt (Lord Rayleigh): *Investigation in Optics, with special reference to the Spectroscope: Influence of Aberration*. Phil. Mag. 8 (1879), 403-411.
- [Ray96] J.W. Strutt (Lord Rayleigh): *On the theory of optical images, with special reference to the microscope*. Phil. Mag. 42 (1896), 167-195.
- [Rei89] L. Reimer: *Transmission Electron Microscopy: Physics of Image Formation and Microanalysis*. Springer Verlag, 2. Edition (1989).
- [Rei93] L. Reimer: *Image Formation in Low-Voltage Scanning Electron Microscopy*. SPIE Society of Photo-Optical Instrumentation (1993).
- [Rem97] G.F. Rempfer, D.M. Desloge, W.P. Skoczylas, O.H. Griffith: *Simultaneous correction of spherical and chromatic aberrations with an electron mirror: An electron optical achromat*. Microscopy and Microanalysis 3 (1997), 14-27.
- [Ros48] A. Rose: *Television pickup tubes and the problem of vision*. Advances in Electronics, vol. 1 (1948), 131-166.
- [Ros73] H. Rose, E. Plies: *Correction of aberrations in electron optical systems with curved axes*. In: *Image Processing and Computer-Aided Design in Electron Optics*. Academic Press London/New York (1973), 344-369.
- [Ros90] H. Rose: *Outline of a spherically corrected semi-aplanatic medium-voltage TEM*. Optik 85 (1990), 19-24.
- [Rus34] E. Ruska: *Über Fortschritte im Bau und in der Leistung des magnetischen Elektronenmikroskops*. Z. Phys. 87 (1934), 580-602.
- [Sch36] O. Scherzer: *Über einige Fehler von Elektronenlinsen*. Zeitschrift für Physik 101 (1936), 593-603.
- [Sch47] O. Scherzer: *Sphärische und chromatische Korrektur von Elektronenlinsen*. Optik 2 (1947), 114-132.

- [Sch49] O. Scherzer: *The theoretical resolution limit of the electron microscope*. J. Appl. Phys. 20 (1949), 20-29.
- [Sch70] O. Scherzer: *Die Strahlenschädigung der Objekte als Grenze für die hochauflösende Elektronenmikroskopie*. Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie 74 (1970), 1154-1167.
- [Sch03] R.R. Schröder, E. Majorovits: *Phasenplatte für die Elektronenmikroskopie und elektronenmikroskopische Bildgebung*. Deutsches Patent DE 10206703 A1 vom 28.08.2003.
- [Sch07] R.R. Schröder, B. Barton, H. Rose, G. Benner: *Contrast Enhancement by Anamorphic Phase Plates in an Aberration Corrected TEM*. Microscopy and Microanalysis 13 (Suppl. 02) (2007), 136-137.
- [Sch08] R.R. Schröder, B. Barton, H. Rose, G. Benner: *Phasenschiebendes Element und Teilchenstrahlgerät mit phasenschiebenden Element*. Deutsches Patent DE 102007007923 A1 vom 21.08.2008.
- [Sch06] K. Schultheiß, F. Pérez-Willard, B. Barton, D. Gerthsen, R.R. Schröder: *Fabrication of a Boersch phase plate for phase contrast imaging in a transmission electron microscope*. Rev. Sci. Instrum. 77 (2006), 33701-33704.
- [Sch10] K. Schultheiß: *Entwicklung und Anwendung elektrostatischer Phasenplatten in der Transmissionselektronenmikroskopie*. Dissertation an der Universität Karlsruhe (2010).
- [Set06] M. Setou, R. Danev, K. Atsuzawa, I. Yao, Y. Fukuda, N. Usuda, K. Nagayama: *Mammalian cell nano structures visualized by cryo Hilbert differential contrast transmission electron microscopy*. Med. Mol. Morph. 39 (2006), 176-180.
- [Sid02] ctfExplorer von M.V. Sidorov: <http://clik.to/ctfexplorer>.
- [Spe88] J.C.H. Spence: *Experimental High-Resolution Electron Microscopy*. 2nd ed. (Oxford University Press, New York, 1988).
- [Tho66] F. Thon: *The defocussing of phase contrast electron microscope images*. Zeitschrift Naturforschung 21a (1966), 476-478.
- [Tho70] F. Thon, D. Willasch: *Hochauflösungs-Elektronenmikroskopie mit Spezialaperturblenden und Phasenplatten*. Microscopie Électronique 1 (Société Française de Microscopie Électronique, Paris 1970), 3.
- [Thu96] A. Thust, M.H.F. Overwijk, W.M.J. Coene, M. Lentzen: *Numerical correction of lens aberrations in phase-retrieval HRTEM*. Ultramicroscopy 64 (1996), 249-264.
- [Tie99] P.C. Tiemeijer: *Measurement of Coulomb interactions in an electron beam monochromator*. Ultramicroscopy 78 (1999), 53-62.

- [Toy88] C. Toyoshima, N. Unwin: *Contrast transfer for frozen-hydrated specimens: determination from pairs of defocused images*. Ultramicroscopy 25 (1988), 279-291.
- [Tug85] D.W. Tuggle, L.W. Swanson: *Emission characteristics of the ZrO/W thermal field electron source*. J. Vac. Sci. Technol. B3 (1) (1985), 220-223.
- [Typ95] D. Typke, K. Dierksen: *Determination of image aberrations in high-resolution electron microscopy using diffractogram and cross-correlation methods*. Optik 99 (1995), 155-166.
- [Uhl98] S. Uhlemann, M. Haider: *Residual wave aberrations in the first spherical aberration corrected transmission electron microscope*. Ultramicroscopy 72 (1998), 109-119.
- [Unw71] P.N.T. Unwin: *Phase Contrast and Interference Microscopy with the Electron Microscope*. Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. B. 261 (1971), 95-104.
- [Völ99] E. Völkl, L.F. Allard, D.C. Joy: *Introduction to Electron Holography*. Springer Verlag (1999), 66.
- [Wik05] Tabakmosaikvirus (TMV): <http://wikipedia.org>.
- [Wil73] D. Willasch: *Versuche zur Kontrastverbesserung in der Elektronenmikroskopie durch Hellfeldabbildung mittels Phasenplatten und Dunkelfeldabbildung bei hohlkegelförmiger Beleuchtung*. Dissertation an der Universität Tübingen (1973).
- [Wil75] D. Willasch: *High Resolution Electron Microscopy With Profiled Phase Plates*. Optik 44 (1975), 17-36.
- [Wil96] D.B. Williams, C.B. Carter: *Transmission Electron Microscopy - A Textbook for Materials Science*. Plenum Press, New York (1996).
- [Wup94] H. Wupper: *Professionelle Schaltungstechnik mit Operationsverstärkern*. Franzis-Verlag (1994).
- [Zem78] F. Zemlin, K. Weiss, P. Schiske, W. Kunath, K.-H. Herrmann: *Coma-free alignment of high-resolution electron microscopes with the aid of optical diffractograms*. Ultramicroscopy 3 (1978), 49-60.
- [Zer35] F. Zernike: *Das Phasenkontrastverfahren bei der mikroskopischen Beobachtung*. Z. techn. Physik 16 (1935), 454-457.
- [Zie02] A. Ziegler, C. Kisielowski, R.O. Ritchie: *Imaging of the crystal structure of silicon nitride at 0.8 Ångstrom resolution*. Acta Materialia 50 (2002), 565-574.

Index

- C_s -Korrektor, 82
- Aberrationen, 15
 - Astigmatismus, dreizähliger, 45
 - Astigmatismus, zweizähliger, 45
 - chromatische Aberration, 17
 - inkohärente, 33
 - kohärente, 32
 - sphärische Aberration, 15
 - Sternfehler, axialer, 45
- Aberrationsfunktion, 32
- Airy-Funktion, 36
- Angularvergrößerung, 91
- Aperturfunktion, 32
- Auflösung
 - Informationslimit, 39
 - Linienauflösung, 37
 - Punktauflösung, 38
 - Rayleigh-Kriterium, 37
- Beleuchtungssystem, 13
- defocus spread, 33
- Defokus, 15
- differentieller Wirkungsquerschnitt, 20
- Diffraction Magnification Unit, 85
- Ebene kleinster Verwirrung, 16
- Envelope
 - chromatische, 33
 - Detektor, 36
 - Probendrift, 35
 - Probenvibration, 35
 - Quelle, 34
- extended Scherzer defocus, 25
- Friedelsymmetrie, 48
- Fundamentalbahnen, 91
- Hilbert Phase Contrast, 60
- Hohlkegelbeleuchtung, 69
- Impulsantwort, 31
- Isoplanasie, 31
- isoplanatische Näherung, 43
- knock-on effect, 21
- komafreie Achse, 50
- Kondensator, 13
- Kontrastblende, 14
- Kontrastdelokalisierung, 26
- Kontrasttransferfunktion, 31
 - Amplituden-, 32
 - Phasen-, 33
- laterale Vergrößerung, 91
- Lichte-Fokus, 26
- Monochromator, 79
- numerische Apertur, 5
- PACEM, 75
- phase object approximation, 22
- Phasenkontrast
 - negativer, 23
 - positiver, 23
- Phasenplatte
 - anamorphotische, 70
 - Boersch, 62
 - Hilbert, 60
 - Zernike, 55
- Punktverwaschungsfunktion, 31
- relativistisches Beschleunigungspotential, 136
- Richtstrahlwert, 76
- Rose-Beziehung, 19
- Rutherford-Streuquerschnitt, 20
- Scherzerband, 24

Scherzerfokus, 25
Scherzertheorem, 6
Schrotrauschen, 19
signal-to-noise ratio, 19
staining, 53
Superpositionsprinzip, 28

Überfokus, 17
Unterfokus, 17

weak lens approximation, 63
Wellenaberrationsfunktion, 43
Wollaston-Prisma, 9

Youngschen Interferenzstreifen, 117

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. Benner bei der Carl Zeiss NTS GmbH für die Überlassung dieses Themas sowie Herrn Prof. Dr. E. Plies für die Begutachtung dieser Arbeit und der Betreuung seitens der Fakultät für Physik und Mathematik der Universität Tübingen.

Für die Bereitstellung des Simulationsprogramms ELSA, die Unterstützung bei der Einarbeitung und die ausführlichen Antworten auf alle Fragen bedanke ich mich bei Dr. Dirk Preikszas.

Für die Konzeption des PACEM-Vakuumsystems und die Hilfe bei der Korrektur dieser Dissertation möchte ich mich bei Dr. Christian Dietl bedanken.

Für die unermüdlichen Anstrengungen bei der Optimierung und Anpassung der Objektraumkühlung, der Erstellung der CAD-Zeichnung und der tatkräftigen Unterstützung bei den erforderlichen Umbauten am Gerät möchte ich mich bei Dr. Stefan „Lengi“ Lengweiler bedanken. Ebenso bei Thilo Mandler, Holger Eckartsberg und Dieter Mittmann, die mit ihren feinmechanischen Kenntnissen beim Umbau des Gerätes und den erforderlichen Modifikationen am Prototyp behilflich waren.

Für die Durchführung der Kryo-Experimente und die Unterstützung bei der Abnahme des Gerätes bedanke ich mich bei Dr. Endre Majorovits.

Weiterhin gilt mein Dank den Mitarbeitern von CEOS, allen voran Dr. Heiko Müller, Dr. Peter Hartel und Thomas Riedel, die mit ihrem Wissen sowohl in der Designphase als auch bei der Inbetriebnahme des Korrektors zu Seite gestanden sind.

Für die Unterstützung bei allen elektronischen Problemen und Modifikationen möchte ich mich bei Dipl.-Ing. (FH) Ernst Draszba, Dipl.-Ing. (FH) Klaus Hegele, Dipl.-Ing. (FH) Jens Eckartsberg sowie Dipl.-Ing. (FH) Rainer Härle und Dipl.-Ing. (FH) Ulli Spittler-Herrmann bedanken. Sie waren stets hilfsbereit, wenn mal wieder etwas nicht lief und sofort zur Stelle, wenn der Geruch von frisch gerösteter Elektronik in der Luft lag. Bedanken möchte ich mich auch bei Dipl.-Ing. (FH) Jörg Fober, dessen hochstabile HV-Anlage einen nicht unerheblichen Beitrag zum Gelingen des Projektes beigetragen hat.

Des Weiteren möchte ich mich bei Dipl.-Ing. (FH) Mike Wetzke und der Konstruktionsabteilung bedanken, die viele Ideen zur Realisierung des Gesamtgerätes, insbesondere auch der DMU, beigetragen haben. Vielen Dank auch an Dipl.-Ing. (FH) Harald Niebel, Dr. Stefan Meyer und Dr. Michael Schnell, die das Gerät während meines krankheitsbedingten Ausfalls betreut haben.

Für die Unterstützung seitens der Produktion möchte ich mich bei den Herren Ralf Baumann, Ralf Schmid und Rolf Weiß bedanken. Durch ihre Unterstützung konnte das Gerät unbeschadet in eine neue Kabine umgezogen werden und ist schließlich zur Auslieferung gekommen.

Last but not least gilt mein Dank Herrn Dr. Rasmus Schröder (jetzt Professor an der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg), der durch seine Vorträge das Thema Phasenkontrast im TEM in den Interessenfokus der Carl Zeiss NTS gebracht hat und der durch die Vergabe des Auftrags das Projekt PACEM erst ermöglicht hat.