INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde der Naturwissenschaftlich–Mathematischen Gesamtfakultät der Ruprecht–Karls–Universität Heidelberg

vorgelegt von

Andreas Eisele

Tag der mündlichen Prüfung: 24.01.2003

Holographische Abbildung von Nanostrukturen durch Projektions– Elektronenmikroskopie

Gutachter:

Prof. Dr. Michael Grunze Prof. Dr. Joachim Spatz

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung			5	
	1.1	Einführende Darstellung des Experiments			
	1.2	Historische Entwicklung des Experiments			
	1.3	nzung von andern Techniken der Elektronenmikroskopie	8		
	1.4	Zielste	ellung des Projektes	8	
2	The	orie		11	
	2.1	Die Pa	urtialwellenmethode	11	
	2.2	2 Das Maskenmodell			
		2.2.1	Die Greensfunktion für die Projektions-Elektronenmikroskopie	14	
		2.2.2	Herleitung der Rekonstruktions-Integralgleichung aus dem Masken- modell	17	
		2.2.3	Der Hologrammterm	19	
		2.2.4	Das Twin-Image	21	
		2.2.5	Der Quellterm	21	
		2.2.6	Die Selbstinterferenz	22	
		2.2.7	Die Anwendung der Rekonstruktionsgleichung auf Detektorbilder	22	
	2.3	Zusam	nmenfassung	22	
3	Sim	ulation	nen von Elektronen-Projektionsbildern	25	
	3.1	Simulationen mit der Partialwellenmethode			
	3.2	Simulationen mit dem Maskenmodell			
	3.3	Die Fokuseigenschaften der Rekonstruktion			
	3.4	Der Hintergrundabzug			
	3.5	Zusam	menfassung	37	

4	Aufl	ösung	sbegrenzende Faktoren	39
	4.1	Die De	tektorgröße und die Emissionscharakteristik der Elektronenquelle	39
	4.2	Auflös	ung entlang der optischen Achse	41
	4.3	Die lat	erale Kohärenzlänge	41
	4.4	Die Au	flösung des Detektorsystems	42
	4.5	Energie	eunschärfe der Elektronenquelle	45
	4.6	Räumli	che Inkohärenz	47
	4.7	Elektro	statische Felder an der Objektoberfläche	47
	4.8	Beiträge des Twin-Images und des Selbstinterferenzterms		48
	4.9	Begren	zung der Auflösung von dreidimensionalen nichttransparenten Objekten	48
	4.10	Magne	tfelder	49
	4.11	Zusam	menfassung	50
5	Der	Einflus	s elektrostatischer Felder an der Objektoberfläche	51
	5.1	Die qu	asiklassische Näherung	51
	5.2	Die Gr	eensfunktion für Objekte mit elektrostatischen Feldern	52
	5.3	Simula	tion von Detektorbildern	53
	5.4	Einflus	s auf die Objektrekonstruktion	55
6	Kon	strukti	on eines Projektions-Elektronenmikroskopes	59
	6.1	Leitpri	nzipien bei der Konstruktion	59
	6.2	Die Konzeption der Vakuumtechnik		59
		6.2.1	Das Trägersystem	61
		6.2.2	Die Schleusenkammer	62
		6.2.3	Die Transferkammer	62
		6.2.4	Das Magazin für Proben und Emissionsspitzen	62
	6.3	Aufbau	ı der Messkammer	62
		6.3.1	Schwingungsdämpfung des Systems	63
		6.3.2	Der Mechanismus der Probenübergabe	65
	6.4	Das Mikropositioniersystem		67
		6.4.1	Aufbau und Funktionsweise	67
		6.4.2	Metallisierte Siliziummembranen als Probensubstrat	68

7	Techniken zur Präparation und Charakterisierung von Feldemitterspit-					
	7.1	Elektrochemisches Ätzen	71			
	7.2	Ausheilen und Sputtern	71			
	7.3	Feldverdampfung und Feldionenmikroskopie	73			
8	Elel	ktronen-Projektionsbilder von DNA-Strängen	75			
	8.1	Die Messung und ihre Rekonstruktion	75			
	8.2	Simulation des gemessenen DNA-Stranges	82			
	8.3	Reproduzierbarkeit des Messprozesses	88			
	8.4	Vergleich von Bildern bei verschiedenen Abständen	91			
	8.5	Rückschlüsse auf das Auflösungsvermögen des Mikroskopes	93			
	8.6	Abhängigkeit der Auflösung von der Objektgröße	94			
	8.7	Zusammenfassung	94			
9	Elel	Elektronen-Projektionsbilder von Fasern aus Kohlenstoff-Nanotubes 99				
	9.1	Die Rekonstruktion	103			
	9.2	Simulation von Nanotube-Objekten mit langreichweitigen Feldern	105			
	9.3	Zusammenfassung	105			
10	Zus	ammenfassung und Ausblick	109			

1 Einleitung

Das Jahr 1931 gilt als das Geburtsjahr des Elektronenmikroskops. Es waren Ernst Ruska und Max Knoll, denen die Konstruktion einer Röhre gelang, die durch zwei magnetische Elektronenlinsen ein Metallgitter vergrößerte. Damit wurde demonstriert, dass man Elektronen zur vergrößernden Abbildung benutzen konnte. Der Vergrößerungsfaktor, den das Gerät erreichte, war mit 17,4 (!) allerdings derart dürftig, dass Ruska und Knoll sich anfangs scheuten, den Terminus "Elektronenmikroskop" in ihren Vorlesungen zu benutzen [1].

Ruska waren die Arbeiten von Louis de Broglie damals noch nicht bekannt. Jener hatte bereits 1923 die Existenz von Materiewellen vorausgesagt und zwei Jahre später die berühmte Formel $\lambda = h/p$ hergeleitet [2]. Erst 1932 berechneten Ruska und Knoll eine Abschätzung des Auflösungsvermögens ihres Mikroskops unter Berücksichtigung der De-Broglie-Wellenlänge und der Beugung an der Linsenapertur. Sie erhielten einen Wert von 2,2 Å. Es sollte allerdings noch 40 weitere Jahre dauern, bis Mikroskope konstruiert wurden, die diese Auflösung erreichten.

Der Weg zur Abbildung einzelner Atome war lange und mühevoll. Nur aufwendige Linsensysteme machten die Auflösung einzelner Atome möglich. Sie erzwingen die Verwendung sehr hoher Elektronenenergien, da die Linsen dann genauer arbeiten und die Begrenzung durch die Apertur geringer wird. Aufnahmen, die Atomabstände auflösen, werden typischerweise mit Energien von mehreren hundert Kilolelektronenvolt gemacht. Dabei hätten schon Elektronen mit einer Energie von 38 Elektronenvolt eine Wellenlänge von 2 Å.

Es ist schon recht früh theoretisch erkannt worden, dass die sphärische Aberrationen der Elektronenlinsen sich nicht genügend eliminieren lassen. Denis Gabor schlug daher 1948 ein zweistufiges Abbildungsverfahren vor, das später unter dem Namen "Holographie" bekannt wurde [3] und das ohne Objektivlinsen arbeitet.

Das Projektions-Elektronenmikroskop, das im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde, nimmt auf dem Detektorschirm In-line-Hologramme eines nanoskopischen Objektes auf und arbeitet nach dem Prinzip Gabors. Durch die Abwesenheit jeglicher Elektronenlinsen kann es mit sehr niedrigen Elektronenenergien von wenigen Elektronenvolt arbeiten. Es ist in seinem Aufbau sehr einfach, da es keine aufwendige Beschleunigungs- und Fokussierungstechnik benötigt und kann daher im Vergleich zu konventionellen Elektronenmikroskopen mit ganz anderen Betriebsparametern arbeiten. In dieser Arbeit soll erforscht werden, inwieweit diese Technik die konventionelle Elektronenmikroskopie ergänzen oder ersetzen kann.

1.1 Einführende Darstellung des Experiments

Eine durch Feldionenmikroskopie und Feldverdampfung präparierte Feldemitterquelle wird als Elektronenquelle benutzt, um einen kohärenten Elektronenstrahl zu erzeugen. Die Elektronen werden an einem strangförmigen Objekt gestreut und bilden auf einem Detektor ein Streubild. In grober Näherung ist die Elektronenquelle eine Punktquelle, die Elektronenwellen mit sphärischen Wellenfronten emittiert. Ein kleiner Abstand zwischen Elektronenquelle und Objekt vergrößert daher das Streubild. Das Detektorbild wird mit einer CCD-Kamera aufgenommen und in einem Computer gespeichert. Mit einer Bildbearbeitungssoftware werden dann die Bilder ausgewertet.



Abbildung 1.1: Schematische Darstellung des Experiments.

Der Abstand zwischen Elektronenquelle und Objekt ist typischerweise zwischen 200 und 500 nm. Der Abstand zum Detektor 10 cm. Das große Verhältnis beider Größen von 200.000 bis 500.000 ermöglicht es, Objekte aufzulösen, die einen Durchmesser von wenigen Nanometern haben.

Diese Technik arbeitet ohne elektronenoptische Linsen. Die Abbildungsenergien liegen unter 50 eV. Die Energie der Elektronen ist nicht willkürlich wählbar. Nach Überschreiten einer sogenannten "Einsatzspannung" steigt der Strom sehr stark an, sodass die Probe bei höheren Emissionsspannungen beschädigt wird. Bleibt man unter der Einsatzspannung, so ist der Elektronenfluss zu schwach, um auf dem Detektor ein Interferenzbild zu erzeugen. Der Bereich, über den die Emissionsspannung sinnvoll variiert werden kann, umfasst ca. 10 V.

Die Darstellung der Theorie in Kapitel 2 wird zeigen, dass das Bild auf dem Detektor ein Inline-Hologramm des Objektes enthält. Dass die Bilder tatsächlich die theoretisch vorhergesagte dreidimensionale Information enthalten, wird im experimentellen Teil der Arbeit (Kapitel 8) demonstriert. Man kann also hier mit Recht von Elektronenholographie sprechen.

1.2 Historische Entwicklung des Experiments

Erste Elektronen-Projektionsbilder wurden bereits 1939 von Morton und Ramberg veröffentlicht [4]. Beobachtet wurden damals aber lediglich geometrische Schattenprojektionen eines Kupfergitters. Die Elektronenquelle konnte damals noch nicht so nahe an ein Objekt angenähert werden, dass man Interferenzstreifen beobachten konnte. Diese Bilder demonstrierten aber den Vergrößerungseffekt, den Elektronenstrahlen haben, die aus einer genügend scharfen Metallspitze emittiert werden.

Das theoretische Prinzip der In-line-Holographie wurde 1948 von D. Gabor in einer Veröffentlichung vorgestellt [3]. Gabor hatte damit die Vision, die durch elektronenoptische Linsen bedingte Auflösungsbegrenzung zu umgehen. Die damals üblichen Elektronenmikroskope konnten trotz der kleinen Wellenlänge keine einzelnen Atome auflösen. Wegen der sphärischen Aberration der Elektronenlinsen musste man mit kleinen Aperturen arbeiten, sodass die Auflösungsbegrenzung durch die Apertur genauso groß war wie der Einfluss der sphärischen Aberration [5]. Die theoretischen Arbeiten von O. Scherzer [6] bewiesen, dass Elektronenobjektive nie so perfektioniert werden können, wie dies bei optischen Objektiven der Fall ist. Der Grund liegt darin, dass - im Gegensatz zur optischen Mikroskopie - axialsymmetrische, divergente Elektronenlinsen nicht konstruiert werden können. Daher ist es nicht möglich durch eine Kombination beider Linsenarten die sphärische Aberration weitgehend zu eliminieren [7].

Mit Erfindung des optischen Lasers konnte Holographie mit Lichtwellen experimentell realisiert werden. In der Elektronenholographie verlief die Entwicklung wesentlich langsamer, da es keine Quellen mit genügender Kohärenz und Intensität gab. Mit einer Linse, die einen Elektronenstrahl kurz vor einem Objekt fokussiert, konnte nur eine unbefriedigende Kohärenz erreicht werden. Viel bessere Ergebnisse ergaben sich dadurch, dass ein Hologramm als defokussiertes Bild in einem Transmissions-Elektronenmikroskop aufgenommen wurde [8]. Mit dieser Methode konnten Experimente mit einer Auflösung von ~ 16 Å bei einer Energie von 1,25 MeV durchgeführt werden [9, 10].

Die Entwicklung der Rastertunnelmikroskopie brachte technische Neuerungen, die auch für das Projektions-Elektronenmikroskop einen gewaltigen Fortschritt bedeutete. Zum einen wurden Lösungen entwickelt, mit denen man eine Metallspitze bis auf Tunneldistanzen an ein Objekt berührungsfrei heranfahren kann. Zum anderen wurden Präparations- und Charakterisierungstechniken von Metallspitzen weiterentwickelt und verfeinert.

H.-W. Fink gelang es schließlich, eine genügend scharfe Metallspitze so nahe an Objekte anzunähern dass Interferenzmuster erkennbar wurden [11] und benutzte diese Anordnung zur Aufnahme von In-line-Hologrammen. Bei dieser geringen Distanz zwischen Elektronenquelle und Objekt von weniger als einem Mikrometer senkt sich die nötige Emissionsspannung auf unter 50 eV. Von H.-J. Kreuzer stammt ein theoretisches Modell, das einen streutheoretischen Ausdruck für die Elektronenwellenfunktion findet und unter idealen Bedingungen eine Auflösung einzelner Atome vorhersagt [12]. In der Folge erschienen zahlreiche Veröffentlichungen, die sich mit dieser Art von Elektronenmikroskopie auseinandersetzten. Als Objekte dienten vor allem Polymere [13], Kohlenstoff-Nanotubes [14] und DNA-Stränge [15]. Bislang konnten jedoch noch keine Bilder veröffentlicht werden, die Objektstrukturen reproduzierbar wiedergeben. Ebenso fehlt eine strikte Diskussion auflösungsbegrenzender Faktoren.

1.3 Abgrenzung von andern Techniken der Elektronenmikroskopie

In der klassischen Elektronenmikroskopie wird die Auflösung meist durch die sphärische Aberration der Elektronenlinsen beschränkt. Um die Aberrationen klein zu halten, wird die Apertur der Linse beschränkt. Nur durch eine Erhöhung der Elektronenenergie kann die Auflösungsbegrenzung durch diese Beugungsöffnung kleiner gemacht werden. Mit höherer Energie steigt aber auch die technische Anforderung an das Beschleunigungs- und Linsensystem sowie an den Detektor. Letzteres aufgrund der geringeren Wechselwirkung der Elektronen mit dem Objekt und dem Detektormaterial.

Ein Projektions-Elektronenmikroskop kommt hingegen mit einem relativ einfachen Aufbau aus. Es ist jedoch im Vergleich zu einem TEM-Mikroskop empfindlicher gegenüber störende Vibrationen. Verändern Elektronenquelle und Objekt ihre Position relativ zueinander, so verwackelt das Interferenzbild. Wegen des hohen Vergrößerungsfaktors sind die Anforderungen an die Isolation des Mikroskopes zur Dämpfung störenden Schwingungen sehr hoch.

Von einem Projektions-Elektronenmikroskop erhofft man sich Abbildungsenergien, die unterhalb des niederenergetischen Bereiches liegen in dem eine starke inelastische Wechselwirkung mit dem Objekt auftritt. Für die meisten Materialien liegt dieser Bereich zwischen 10^1 und 10^2 eV [16]. Unterhalb dieses Bereiches können konventionelle Elektronenmikroskope nicht arbeiten. Wie bereits erwähnt, ist die Abbildungsenergie eines Projektions-Elektronenmikroskops nicht frei wählbar. Sie ergibt sich aus der Geometrie der Spitzenoberfläche sowie dem Abstand zwischen Elektronenquelle und Objektträger. Die Verwendung von Elektronenenergien, die im Objektmaterial eine sehr große inelastische freie Weglänge haben, ist beim Projektions-Elektronenmikroskop um so wichtiger, da wegen des kleinen Abstandes zwischen Objekt und Elektronenquelle die Elektronendosis weitaus größer ist.

Das Projektions-Elektronenmikroskop und das TEM arbeiten beide in einer "Transmissionsgeometrie". Es kann nachgewiesen werden, dass bei schwach wechselwirkenden Objekten das Elektronen-Projektionsbild im Bereich kleiner Streuwinkel näherungsweise einem defokussiertem TEM-Bild entspricht [17]. Dies kann man auch aus den Gleichungen ableiten, die die Propagation der Elektronenwelle beschreiben (Abschnitt 2.2).

1.4 Zielstellung des Projektes

Zunächst soll mit dieser Arbeit untersucht werden, ob sich die Projektions-Elektronen\-mikroskopie als zuverlässige Analysetechnik eignet, und welche Weiterentwicklungen nötig sind, um sie zu einer leistungsfähigen Methode zu machen.

Die Kohärenzeigenschaften von feldemittierten Elektronen sind experimentell bislang nur unzureichend untersucht worden [18][17]. Für einen experimentellen Nachweis fehlte die reproduzierbare Auflösung von Objektstrukturen bei Streuung an genügend kleinen Objekten. Es soll daher untersucht werden, welche Aussagen sich über die Kohärenz des feldemittierten Elektronenstrahles treffen lassen. Kohärente Elektronenquellen sind auch für die klassische Elektronenmikroskopie von Interesse.

Konkret sind folgende Fragen interessant:

- 1. Welche Auflösung kann man mit einem Projektions-Elektronenmikroskop erhalten?
- 2. Welche Faktoren vermindern die Auflösung oder Zuverlässigkeit der Ergebnisse?
- 3. Welche Weiterentwicklungen sind nötig, um die Methode zu verbessern?

Zunächst wurde eine neue Apparatur konstruiert, die die Erfordernisse der Projektions-Elektronenmikroskopie besonders berücksichtigt. Die erhaltenen Streubilder wurden analysiert und auf auflösungsbegrenzende Faktoren untersucht. Schließlich wurden mit einfachen Objektmodellen die Streubilder numerisch modelliert, um daraus Rückschlüsse auf den Abbildungsprozess und Eigenschaften der Elektronenquelle zu erhalten.

2 Theorie

Mit der Quantenmechanik lässt sich der Abbildungsprozess als Streuung eines Elektronenwellenpaketes am Potenzial des Objektstranges beschreiben. Der elastische Streuprozess wird durch die Elektroneneigenzustände im Potenzial des Objektmoleküls ausgedrückt. Elektronen, die inelastisch gestreut werden, gehen in einen neuen Elektroneneigenzustand über, der nicht mehr direkt von den Anfangsbedingungen der Elektronenquelle abhängt und daher seine Kohärenz verliert [19].

Die große Anzahl zu berücksichtigender Streuparameter machen die exakte Simulation eines Interferenzbildes bei großen Objekten sehr aufwendig. Daher wird in dieser Arbeit in der Regel mit Simulationen gearbeitet, die das Streubild unter vereinfachenden Randbedingungen und Annahmen darstellen.

Ziel soll es sein, einen Algorithmus zu finden, der das Streubild in Informationen über das Objektmolekül umsetzt. Ein solcher Algorithmus soll in den folgenden Abschnitten hergeleitet werden. Konkret handelt es sich dabei um eine Integraltransformation, die in ähnlicher Form bereits von D. Gabor für die Elektronenholographie verwendet wurde, um die Transmission eines Objektes mit der Transmission einer entwickelten photographischen Platte in Beziehung zu setzen [20].

Es werden zwei Modelle dargestellt, die beide zu einem äquivalenten Rekonstruktionsalgorithmus führen. Die *Partialwellenmethode* beschreibt den konkreten Elektronenzustand im Potenzial des Objektes und kommt damit zu einer Aussage über die Auflösungsmöglichkeit einzelner Atome. Dieser Zugang hat jedoch den Nachteil, dass vereinfachende Annahmen über den Streuprozess gemacht werden müssen. Das *Maskenmodell* beschreibt lediglich die Ausbreitung der Elektronenwelle im wechselwirkungsfreien Raum zwischen Objekt und Detektor. Sie zeigt daher, dass es sinnvoll ist, auch ohne konkrete Annahmen über den Streuprozess zu rekonstruieren. Außerdem lassen sich mit dieser Methode in einfacher Weise einflussbegrenzende Faktoren simulieren und untersuchen.

2.1 Die Partialwellenmethode

Dies Methode berechnet das Detektorbild in Form einer Bornschen Reihe als Summe von Einfach- und Mehrfachstreuprozessen an den Pseudopotenzialen der einzelnen Atome. Dadurch lässt sich die Elektronenwellenfunktion durch Partialwellen darstellen. Es konnte theoretisch nachgewiesen werden, dass im Rahmen dieses Modells die Streuzentren aus dem Interferenzbild mit Hilfe einer Integraltransformation, angewandt auf das Detektorbild, berechnet werden können [12]. Ausgangspunkt dieses Modells ist die Lippmann-Schwinger Gleichung, die den elastischen Streuzustand des Elektrons aufspaltet in eine einfallende Wellenfunktion, und einen zweiten Anteil, der die Störung an dieser einfallenden Elektronenwelle durch den Streuer beschreibt:

$$|\psi\rangle = |\psi_{in}\rangle + VG_+T|\psi_{in}\rangle$$

Oder in Operatorschreibweise mit der Übergangsmatrix T:

$$T = V + VG_+T.$$

Dabei ist $V(\mathbf{r})$ eine Summe aus innerem Potenzial und der Pseudopotenziale der Atome des Objekts:

$$V(\boldsymbol{r}) = V_0 + \sum_i V_i.$$

Für jedes Atom des Objektes lässt sich eine entsprechende T-Matrix definieren:

$$T_i = V_i + V_i G_+ T_i.$$
 (2.1)

Die Matrix T lässt sich nun mit Hilfe der Matrizen T_i ausdrücken [21]:

$$T = \sum_{i} T_{i}$$

$$+ \sum_{i} T_{i}G_{+} \sum_{i \neq j} T_{j}$$

$$+ \sum_{i} T_{i}G_{+} \sum_{i \neq j} T_{j}G_{+} \sum_{k \neq j} T_{k} + \dots$$
(2.2)

Die Greensfunktion G_+ schließt hier nicht die Streuung am einzelnen Atompotenzial ein, wohl aber das innere Potenzial des Moleküls. Elektronen, die nur in geringem Winkel auf die Oberfläche der Probe auftreffen, erfahren jedoch durch das innere Potenzial im wesentlichen nur eine Reflektion an den Potenzialstufen. Daher wird in der Greensfunktion zunächst das innere Potenzial vernachlässigt, und die Elektronenenergie auf $E - V_0$ angepasst. Man setzt daher für G_+ in Gleichung 2.2 die freie Greensfunktion ein :

$$\mathcal{G}_{0+}(\boldsymbol{r}',\boldsymbol{r},E) = \langle \boldsymbol{r}' | G_{0+} | \boldsymbol{r} \rangle = -\frac{m_e}{2\pi\hbar^2} \frac{e^{ik|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|}}{|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|}.$$
(2.3)

Die Aufspaltung des Streuprozesses in die Anteile der einzelnen Atome und die Benutzung der freien Greensfunktion erlaubt es nun, einen expliziten Ausdruck für den Streuzustand zu finden. Die Wellenfunktion ist nun:

$$\psi(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | \psi \rangle$$

= $\langle \mathbf{r} | \psi_{in} \rangle$
+ $\sum_{i} \langle \mathbf{r} | G_{0+} T_i | \psi_{in} \rangle$
+ $\sum_{i} \langle \mathbf{r} | G_{0+} T_i \sum_{j \neq i} G_{0+} T_j | \psi_{in} \rangle$
+ (2.4)

Die einzelnen Terme können nun mit Hilfe von Partialwellen dargestellt werden. Dabei gehen die Streuphasen und die Positionen der Atome als Parameter ein. Simulationen haben gezeigt, dass das Streubild im Falle molekularer Objektstränge im wesentlichen durch den Term der Einfachstreuung bestimmt ist [22, 23]. Dies erlaubt es dann in einfacher Art und Weise die Wellenfunktion am Ort des Detektors darzustellen und zu berechnen:

$$\psi(\mathbf{r}) = \frac{e^{ikr}}{r} + \sum_{i} \frac{e^{ikr_i}}{kr_i} \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}_i|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}_i|} \sum_{l} (2l+1)\sin(\delta_{li})e^{i\delta_{li}} P_l\left(\frac{(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)\mathbf{r}_i}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}_i|r_i}\right).$$
(2.5)

Dabei bezeichnen die Variablen r_i die Ortsvektoren der einzelnen Atomzentren. Als einfallende Welle wurde eine ideale Kugelwelle angenommen. Im niederenergetischen Energiebereich nehmen die Streuphasen höherer Drehimpulse sehr schnell ab [24]. Es ist daher in der Regel ausreichend, die ersten drei oder vier Streuphasen zu berücksichtigen.

Ausgehend von der Darstellung 2.4 in einer Partialwellenentwicklung wurde analytisch die Gültigkeit folgender Rekonstruktions-Integralgleichung bewiesen [12]:

$$K(\mathbf{r}) = \int_{s} I(\mathbf{r}') e^{ik\frac{\mathbf{r}'\mathbf{r}}{r}} dr'_{1} dr'_{2}.$$
(2.6)

Die Integration erstreckt sich dabei über den Detektorschirm S. Die Funktion $I(\mathbf{r})$ berechnet sich aus dem Streubild wie folgt:

$$I(\boldsymbol{r}) \equiv rac{D}{r}[|\psi(\boldsymbol{r})|^2 - |\psi_{in}(\boldsymbol{r})|^2].$$

Basierend auf dieser Theorie gibt es weitere theoretische Modelle, die eine Verbesserung der Auflösung durch Kombination von Bildern verschiedener Energie und bei verschiedenen Positionen des Detektors vorhersagen [25]. Dadurch lässt sich vor allem die mangelhafte Auflösung entlang der optischen Achse verbessern (Kapitel 4), das im Rekonstruktionsbild zu einem Projektionsbild aller Atome führt.

2.2 Das Maskenmodell

Man kann das Problem, die Schrödingergleichung zu lösen, dadurch umgehen, dass man von der Wellenfront der Elektronenwelle direkt hinter dem Objekt ausgeht, und davon dann die Intensität auf dem Detektorschirm berechnet. Man muss dabei nur einen Formalismus finden, der die Ausbreitung der Elektronenwelle durch das Vakuum beschreibt.

Das Objekt hat auf die einfallende Wellenfunktion die Wirkung einer Maske. Für die gestreute Wellenfunktion direkt hinter dem Objekt kann man schreiben:

$$\psi(\mathbf{r}) = \psi_{in}(\mathbf{r}) + \psi_{sc}(\mathbf{r}) = f(\mathbf{r})\psi_{in}(\mathbf{r})$$

Mit einer komplexwertigen Funktion $f(\mathbf{r})$. Ziel ist es nun, einen Ausdruck für die Ausbreitung der Elektronenwelle zwischen dieser Ebene und der Detektorebene zu finden. Diese

"Objektebene", die nicht genau mit der Position des Objektes übereinstimmt, sondern sich unmittelbar hinter dem Wechselwirkungsbereich befindet, ist in den nachfolgenden mathematischen Formeln mit Ω bezeichnet.

Da die Objektebene, genauso wie die Detektorebene, senkrecht auf der optischen Achse liegt, lässt sich eine Integraltransformation herleiten, die dem Fresnel-Kirchhoffschen Theorem [26] verwandt ist, sich aber durch eine Fouriertransformation annähern lässt. Grundlage dafür ist eine Konstruktion einer speziellen Greensfunktion, die auf Arnold Sommerfeld zurückgeht [27, 28].

2.2.1 Die Greensfunktion für die Projektions-Elektronenmikroskopie

Wir nehmen zwei Wellenfunktionen ψ und ψ_1 , die mit ihren ersten Ableitungen stetig innerhalb eines endlichen Volumens v und auf der stückweise stetigen Oberfläche S sind. Überdies sollen ihre zweiten Ableitungen stetig auf der Oberfläche S sein. Es gilt daher die zweite Greensche Formel:

$$\iiint_{v} (\psi \nabla^{2} \psi_{1} - \psi_{1} \nabla^{2} \psi) dv = \iint_{S} (\psi \nabla \psi_{1} - \psi_{1} \nabla \psi) \boldsymbol{n} dS.$$

Sind darüber hinaus beide Wellenfunktionen Lösung der gleichen freien Schrödingergleichung:

$$\nabla^2 \psi + k^2 \psi = 0$$

$$\nabla^2 \psi_1 + k^2 \psi_1 = 0,$$

So folgt daraus:

$$\iint_{S} (\psi \nabla \psi_1 - \psi_1 \nabla \psi) \boldsymbol{n} dS = 0.$$
(2.7)

Das Ziel ist nun, die Wellenfunktion auf dem Detektorschirm durch die Werte der Wellenfunktion auf der Ebene direkt hinter dem Objektstrang auszudrücken. Wir bezeichnen diese Ebene im folgenden mit Ω . Die Oberfläche S spalten wir auf in drei Teile 2.1: S_1 , S_2 , und S'. S_1 liegt auf der Ebene Ω . S_2 bildet eine eine Kugel um den Beobachtungspunkt P mit genügend großem Radius, S' eine Kugel mit sehr kleinem Radius. Eine geeignete Wahl der Greensfunktion ψ_1 führt nun dazu, dass das Integral über die Fläche S_2 verschwindet, und dass der Ausdruck $\nabla \psi$ auf der Fläche S_1 nicht bekannt sein muss.

Konkret stellt man an die Greensfunktion folgende mathematische Anforderungen:

 Sie muss in den Punkten Q ≠ P des Halbraums (Ω, P) eine Lösung der freien Schrödingergleichung sein, mit der gleichen kinetischen Energie, wie die Funktionen ψ, bzw. ψ₁:

$$\nabla_Q^2 G(P,Q) + k^2 G(P,Q) = 0.$$

2. Für die Punkte Q auf der Ebene Ω soll gelten:

$$G(P,Q) = 0.$$



Abbildung 2.1: Darstellung der Oberflächen S, S_1 und S' zur Konstruktion der Greensfunktion

3. Für $s \to 0$ soll gelten:

$$G(\boldsymbol{s}) \to \frac{1}{s}$$

4. Für $s \to \infty$ soll gelten:

$$|sG(\boldsymbol{s})| < \text{const.}, \quad s[\nabla_Q G(P, Q)\boldsymbol{n} - ikG(P, Q)] \to 0$$

Die Bedingung (1) muss erfüllt sein, damit man die Greensfunktion in das Greensche Theorem einsetzen kann. Wegen Bedingung (2) braucht man den Gradienten der Elektronenwellenfunktion $\nabla \psi$ auf der Fläche Ω nicht zu kennen. Die Singularität in Bedingung (3) führt zu einem Integraltheorem, das $\psi(P)$ in Abhängigkeit von ψ auf der Fläche $S_1 \cup S_2$ darstellt. Die letzte Bedingung schließlich resultiert in einem verschwindenden Oberflächenintegral auf S_2 .

Sommerfeld schließlich fand die Greensfunktion durch eine Spiegelmethode (Abbildung 2.2). Für einen beliebigen Punkt $Q(x_1, y_1, z_1), z_1 \ge 0$, kann man folgenden Ansatz verwenden:

$$G(P,Q) = \frac{\exp(iks)}{s} - \frac{\exp(iks')}{s'},$$
(2.8)

wobei

$$s^{2} = (x_{1} - x)^{2} + (y_{1} - y)^{2} + (z_{1} - z)^{2}$$

$$s^{\prime 2} = (x_{1} - x)^{2} + (y_{1} - y)^{2} + (z_{1} + z)^{2}$$

Dies gilt nur, wenn zwischen der Ebene Ω und dem Detektor kein Wechselwirkungspotenzial mehr vorkommt, da mit dieser Greensfunktion die Ausbreitung einer Wellenfunktion im Vakuum berechnet wird. Für den Fall, dass das Objektpotenzial in diesem Raum hineinreicht, muss man einen anderen Ansatz verwenden (Gleichung 5.7). Es lässt sich direkt nachrechnen, dass G(P, Q) die Bedingungen (1) bis (4) erfüllt [28].



Abbildung 2.2: Die Konstruktion der Greensfunktion für den Halbraum (Ω, P) .

Nun wird das Greensche Theorem auf die Greensfunktion und die Elektronenwellenfunktion angewandt. Wegen Bedingung (3) kann man den Radius von S' gegen den Wert Null gehen lassen. Man erhält damit folgende Integralgleichung:

$$\psi(P) = -\frac{1}{4\pi} \iint_{\Omega} \psi(Q) \boldsymbol{\nabla}_Q G(P, Q) \boldsymbol{n} dS_{\Omega}.$$

Der Gradient lässt sich aus dem Ausdruck für die Greensfunktion berechnen:

$$\nabla_{Q}G(P,Q) = \left[-\frac{1}{s} + ik\right]\frac{s}{s^{2}}\exp(iks)$$
$$- \left[-\frac{1}{s'} + ik\right]\frac{s'}{s'^{2}}\exp(iks').$$

Wenn sich der Punkt Q auf der Ebene Ω befindet, gelten die folgenden Bedingungen:

$$s = s', \quad s'n = -sn.$$

Damit ergibt sich der Ausdruck:

$$\left(\boldsymbol{\nabla}_{Q}G\right)\boldsymbol{n}\Big|_{\Omega} = 2ik(1-\frac{1}{iks})\frac{\boldsymbol{s}}{s^{2}}\boldsymbol{n}\exp(iks).$$

Der Detektor hat einen großen Abstand zur Probe. Es gilt daher $1/(ks) \ll 1$. Der zweite Term in der Klammer verschwindet daher. Eingesetzt in das Integraltheorem ergibt sich damit:

$$\psi(P) = -\frac{ik}{2\pi} \iint_{\Omega} \psi(Q) \exp(iks) \frac{sn}{s^2} dS_{\Omega}.$$
(2.9)

2.2.2 Herleitung der Rekonstruktions-Integralgleichung aus dem Maskenmodell

Näherung der Integralgleichung

Wir berücksichtigen nun die Geometrie des Experiments und verlagern den Koordinatenursprung in die Elektronenpunktquelle. Damit schreibt sich die Gleichung 2.9:

$$\psi(\mathbf{r}) = -\frac{ik}{2\pi} \iint_{\Omega} \psi(\mathbf{r}') \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \frac{(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\mathbf{n}}{|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} dr'_1 dr'_2.$$

Die Ebene Ω hat nur einen geringen Abstand zum Nullpunkt im Vergleich zum Abstand zum Detektor. Das Objekt ist typischerweise zwischen 200 und 500 nm von der Elektronenquelle entfernt, wohingegen der Abstand zum Detektor 10 cm beträgt. Außerdem hat der Elektronenstrahl nur einen geringen Halbwerts-Öffnungswinkel von $\sim 14^{\circ}$ (siehe Abbildung 4.3). Daher gilt für die Werte, bei denen der Integrand nicht verschwindet, r' $\ll r$. Der Ausdruck der Phase lässt sich daher wie folgt nähern:

$$k|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| = k\sqrt{\mathbf{r}^2 - 2\mathbf{r}\mathbf{r}' + \mathbf{r}'^2} \approx kr - k\frac{\mathbf{r}}{r}\mathbf{r}',$$

und man erhält dadurch:

$$\psi(\mathbf{r}) = -\frac{ik}{2\pi} \frac{e^{ikr}}{r} \iint_{\Omega} \psi(\mathbf{r}') e^{-ik\frac{\mathbf{r}}{r}\mathbf{r}'} \frac{(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\mathbf{n}}{|\mathbf{r}'-\mathbf{r}|} dr'_1 dr'_2.$$

Wegen des kleinen Öffnungswinkels ist die Integrationsfläche in der Objektebene sehr klein im Vergleich zur Größe des Detektors. Man kann daher weiter nähern:

$$\frac{(\boldsymbol{r}'-\boldsymbol{r})\boldsymbol{n}}{|\boldsymbol{r}'-\boldsymbol{r}|} = \cos(\boldsymbol{r},-\boldsymbol{n}) \approx \frac{D}{r},$$

wobei D der Abstand zwischen Elektronenquelle und Detektorschirm ist. Damit ergibt sich für das Integral:

$$\psi(\mathbf{r}) = -\frac{ik}{2\pi} \frac{De^{ikr}}{r^2} \iint_{\Omega} \psi(\mathbf{r}') e^{-ik\frac{\mathbf{r}}{r}\mathbf{r}'} dr'_1 dr'_2.$$

Außerdem ist die Ebene Ω eine ebene Fläche bei festem Abstand $r'_3 = d$ (das ist eine Voraussetzung zur Anwendung der Greensfunktion 2.8). Man erhält dann für die Wellenfunktion folgenden Ausdruck:

$$\psi(\mathbf{r}) = -\frac{ik}{2\pi} \frac{De^{ikr}}{r^2} \iint_{\Omega} \psi(\mathbf{r}') e^{-ik\frac{\mathbf{r}}{r}\mathbf{r}'} dr'_1 dr'_2$$
(2.10)

$$= -\frac{ik}{2\pi} \frac{De^{ik(r-\frac{D}{r}d)}}{r^2} \iint_{\Omega} \psi(\mathbf{r}') e^{-ik(\frac{r_1r_1'}{r} + \frac{r_2r_2'}{r})} dr_1 dr_2.$$
(2.11)

Das Integral hat den Charakter einer Fouriertransformation in den Variablen r'_1 und r'_2 . Die Ausbreitung der Elektronenwelle kann daher numerisch besonders effizient mit Hilfe einer Fast Fourier Transformation berechnet werden.

Berechnung der Intensität auf dem Detektorschirm

Das Bild auf dem Detektorschirm berechnet sich aus der quantenmechanischen Wellenfunktion durch die *Wahrscheinlichkeitsstromdichte* [29]:

$$\boldsymbol{j}(\boldsymbol{r},t) = \frac{\hbar}{2mi} [\psi^*(\boldsymbol{\nabla}\psi) - (\boldsymbol{\nabla}\psi^*)\psi].$$

Sie genügt einer der klassischen Kontinuitätsgleichung analogen Beziehung:

$$rac{\partial |\psi|^2}{\partial t} + oldsymbol{
abla} \cdot oldsymbol{j}(oldsymbol{r},t) = 0.$$

Experimentell erfasst wird der Teilchenfluss in die Schirmebene. Ist n ein Normalenvektor parallel zur optischen Achse, der von der Elektronenquelle in Richtung Detektor zeigt, so ergibt sich für das Streubild $I(\mathbf{r})$:

$$I(\mathbf{r}) = \mathbf{j} \cdot \mathbf{n}$$
.

Ist ψ in der Gestalt $|\psi|e^{i\alpha}$ parametrisiert, dann lässt sich die Stromdichte wie folgt darstellen:

$$\boldsymbol{j}(\boldsymbol{r}) = rac{\hbar}{m} |\psi|^2 \boldsymbol{\nabla} lpha.$$

Diese Relation wenden wir nun auf de Gleichung 2.11 an. Bei der Gradientenbildung der Phase ist nur der Term *ikr* wichtig, da die anderen Terme mit r'_1 , r'_2 oder *d* skalieren, also wesentlich kleiner sind. Bekanntlich gilt $\nabla r = r/r$ und damit ergibt sich für I(r):

$$I(\mathbf{r}) = \frac{\hbar k}{m} \mathbf{n} \cdot \frac{\mathbf{r}}{r} |\psi(\mathbf{r})|^2 = \frac{\hbar k}{m} \frac{D}{r} |\psi(\mathbf{r})|^2.$$
(2.12)

Aufgliederung der Schirmintensität

Um nun einen Ausdruck für die Wellenfunktion in der Objektebene zu finden, spalten wir die Wellenfunktion auf in einen Anteil ψ_{in} , der die Wellenfunktion der Elektronenquelle ohne Objekt darstellt, und einen zweiten Anteil, der die Störung beschreibt, die durch die Streuung am Objekt entsteht: ψ_{sc} .

$$\psi(\boldsymbol{r}) = \psi_{in}(\boldsymbol{r}) + \psi_{sc}(\boldsymbol{r}).$$

Die Wellenfunktion der Elektronenquelle sei

$$\psi_{in}(\theta, \phi, r) = A(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r}.$$

Wir erhalten somit für das Detektorbild:

$$I(\mathbf{r}) = \frac{\hbar k}{m} \frac{D}{r} \left[\frac{|A(\theta, \phi)|^2}{r^2} \quad \text{Quellterm} \right]$$

+ $A^*(\theta, \phi) \frac{e^{-ikr}}{r} \psi_{sc}(\mathbf{r}) \quad \text{Hologrammterm}$
+ $A(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r} \psi^*_{sc}(\mathbf{r}) \quad \text{Twin} - \text{Image Term}$
+ $|\psi_{sc}(\mathbf{r})|^2 \qquad \text{Selbstinterferenzterm}$ (2.13)

Der erste Term ist der Beitrag, der von der Elektronenquelle alleine stammt. Er beschreibt das Detektorbild, wenn die Elektronen an keinem Objekt gestreut werden. Die restlichen Terme kommen von der Wechselwirkung mit dem Objekt.

2.2.3 Der Hologrammterm

Rekonstruktionsgleichung für den Hologrammterm

Es soll nun versucht werden, durch Anwendung einer Transformation, Informationen über $\psi_{sc}(\mathbf{r'})$ in der Objektebene herauszufiltern (= "*Rekonstruktion*"). Dazu setzten wir im zweiten Term von 2.13 den Integralausdruck 2.10 ein und erhalten dadurch

$$I_{h}(\boldsymbol{r}) = -\frac{ik^{2}\hbar}{2\pi m} \frac{De^{-ik\frac{D}{r}d}}{r^{3}} A^{*}(\frac{r_{1}}{r}, \frac{r_{2}}{r}) \iint_{\Omega} \psi_{sc}(\boldsymbol{r}') e^{-ik(\frac{r_{1}r_{1}'}{r} + \frac{r_{2}r_{2}'}{r})} dr'_{1} dr'_{2}.$$
 (2.14)

Der Vorfaktor $\frac{ik^2}{2\pi m} \frac{De^{-ik\frac{D}{r}d}}{r^3}$ ist bekannt, wenn man die Rekonstruktion in einem angenommenen Objektabstand d vornehmen will. Unbekannt hingegen ist der genaue Verlauf der komplexwertigen Funktion $A^*(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r})$. Er kann aus der Messung nicht extrahiert werden. Um eine Rekonstruktion vorzunehmen, muss er geschätzt werden.

Man kann aber den Verlauf des Funktions*betrages* $|A(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r})|$ näherungsweise durch Hintergrundberechnungsmethoden oder Messung der Spitzenemission ohne Objekt bestimmen (siehe Abschnitt 3.4). Über die Phase lässt sich keine Aussage treffen. Die Distanz zwischen Elektronenquelle und Objekt (≈ 200 nm) ist im Vergleich zur Ausdehnung der Quelle (\leq 3,5 nm) sehr klein (siehe Auswertung der DNA-Daten in Kapitel 8). Wir nehmen daher als erste Näherung eine sphärisch symmetrische Wellenfront an:

$$\widetilde{A}\left(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\right) \equiv \left|A\left(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\right)\right|$$

Nun kann man den Wert von ψ_{sc} durch eine Fouriertransformation extrahieren:

$$\psi_{sc}(r_1', r_2') = \frac{im}{k^2 D\hbar 2\pi} \iint_{\Omega} I_h\left(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\right) \frac{r^3 e^{ik\frac{D}{r}d}}{\widetilde{A}(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r})} e^{ik(\frac{r_1r_1'}{r} + \frac{r_2r_2'}{r})} d\left(\frac{r_1}{r}\right) d\left(\frac{r_2}{r}\right).$$
(2.15)

Integriert wird dabei über die Fläche des Detektorschirms. Die Funktion $\tilde{A}(r_1/r, r_2/r)$ wird dabei in den Bereichen, in denen sie den Wert Null hat, auf einen vernünftigen, kleinen Wert gesetzt.

Die Gleichung 2.15 würde bedeuten, dass man erst einmal die Emissionsverteilung der Elektronenquelle extrahieren muss um dann das Detektorbild durch diese Funktion zu teilen. Dies würde aber für die Rekonstruktion eines Bildes einen sehr hohen Rechenaufwand bedeuten (siehe Abschnitt 3.4).

Wenn man jedoch näherungsweise ohne diese Operation rekonstruiert, verschlechtert sich die Fokusschärfe nur unsignifikant. Fouriertransformiert man ohne das Teilen durch die Funktion \tilde{A} , so erhält man als Ergebnis der Rekonstruktion $R(\mathbf{r}')$:

$$R(\mathbf{r}') = \mathcal{F}^{-1}\left[\widetilde{A}\left(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\right) \cdot \mathcal{F}\left(\psi_{sc}(\mathbf{r}')\right)\right].$$

Dies ergibt dann nach dem Faltungssatz:

$$R(\mathbf{r}') = \mathcal{F}^{-1}\left[\widetilde{A}\left(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\right)\right] * \psi_{sc}(\mathbf{r}').$$



Abbildung 2.3: Ist die Störung, die das Objekt an der einfallenden Welle verursacht, scharf begrenzt, so muss die Rekonstruktion des Hologrammterms auf der Ebene Ω einen Fokus ergeben.

Nimmt man nun für die Funktion \tilde{A} näherungsweise eine (nicht rotationssymmetrische) Gaußfunktion an, die entlang der x- und y-Achse einem experimentell realistischen Halbwerts-Öffnungswinkel von $\beta = 14^{\circ}$ hat, so kann man die Breite der Funktion abschätzen, mit der die Funktion $\psi_{sc}(\mathbf{r}')$ gefaltet wird. Für die Fouriertransformation einer Gaußfunktion f(t) gilt allgemein:

$$\mathcal{F}[f(t)] = \mathcal{F}[e^{-t^2/2\sigma^2}] = \sigma\sqrt{2\pi}e^{-\sigma^2\omega^2/2}$$

Die Halbwertsbreite der Funktion f(t) ist $\alpha = 2\sqrt{2\ln 2\sigma}$. Ihre Fouriertransformation hat demnach die Halbwertsbreite $\alpha' = 2\sqrt{2\ln 2}/\sigma = 8\ln 2/\alpha$.

Das bedeutet, dass bei einem Halbwerts-Öffnungwinkel von 14° der Funktion A^*A , die Fouriertransformierte eine Halbwertsbreite von $2\sqrt{2}\ln 2/(k\sin(\beta/2)) = 6,8$ Å hat.

Diese Abschätzug stimmt näherungsweise mit den Simulationsrechnungen in Abbildung 4.2, Abschnitt 4.1 überein. Dort wird die Auflösungsbegrenzung eines Punktstreuers aufgrund der Detektorgröße und der Emissionsverteilung untersucht. Man sieht aus der Graphik, dass die Auflösungsbegrenzung, die sich aufgrund der Emissionscharakteristik der Elektronenwelle ergibt, nur geringfügig verschlechtert ist gegenüber der Auflösungsbegrenzung, die sich aus der Detektorgröße von 75 mm ergibt. Daher kann man in der Regel auf die Extraktion der Funktion \tilde{A} verzichten und den Rekonstruktionsalgorithmus direkt anwenden.

Das Objekt verursacht an der einfallenden Welle eine Störung, die durch die Funktion $\psi_{sc}(\mathbf{r})$ beschrieben wird. Genau diese Funktion ist aber auch das Ergebnis der Anwendung des Rekonstruktionsalgorithmus auf den Hologrammterm. Sie ist im Bereich zwischen der Objektebene und dem Detektorschirm eine Lösung der freien Schrödingergleichung, da sie die Differenz von ψ_{in} und ψ ist, die ebenfalls Lösungen der freien Schrödingergleichung (mit gleichem Wert k) sind.

In der Objektebene muss der Wertebereich von ψ_{sc} ungefähr den Wechselwirkungsbereich mit dem Objekt wiedergeben (Abbildung 2.3). Die Ausbreitung der Welle im Vakuum führt

zu einer zunehmenden Defokussierung von ψ_{sc} mit größerer Entfernung von der Detektorebene. Daher muss eine Rekonstruktion des Hologrammterms in diesem Bereich auch ein zunehmend defokussiertes Bild ergeben. Auch eine Rekonstruktion zwischen Objektebene und Nullpunkt führt dazu, dass das Rekonstruktionsbild senkrecht zur Objektachse mit Entfernung zur Objektebene zunehmend defokussiert (Abschnitt 3.2). Man kann also sagen, dass die Objektebene die Fokusebene des Hologrammterms ist.

Das Fokusverhalten der jeweiligen Terme wird in Kapitel 3 durch Simulationen veranschaulicht.

2.2.4 Das Twin-Image

Der Integralausdruck für den zweiten Term lautet:

$$I_t(\boldsymbol{r}) = \frac{ik^2\hbar}{2\pi m} \frac{De^{ik\frac{D}{r}d}}{r^3} A\Big(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\Big) \iint_{\Omega} \psi_{sc}^*(\boldsymbol{r}') e^{ik(\frac{r_1r_1'}{r} + \frac{r_2r_2'}{r})} dr_1' dr_2'$$

Man kann jedoch auch dafür schreiben

$$I_t(\mathbf{r}) = \frac{ik^2\hbar}{2\pi m} \frac{De^{-ik\frac{D}{r}(-d)}}{r^3} A\left(\frac{r_1}{r}, \frac{r_2}{r}\right) \iint_{\Omega} \psi_{sc}^*(\mathbf{r}') e^{-ik(\frac{r_1(-r_1')}{r} + \frac{r_2(-r_2')}{r})} dr_1' dr_2'$$

Da das Integrationsgebiet symmetrisch um die optische Achse $(r'_1 = 0 \text{ und } r'_2 = 0)$ liegt, kann man das Vorzeichen der Integrationsvariablen im Integranden wechseln:

$$I_{t}(\mathbf{r}) = \frac{ik^{2}\hbar}{2\pi m} \frac{De^{-ik\frac{D}{r}(-d)}}{r^{3}} A\left(\frac{r_{1}}{r}, \frac{r_{2}}{r}\right) \\ \times \iint_{\Omega} \psi_{sc}^{*}(-r_{1}', -r_{2}', d) e^{-ik(\frac{r_{1}r_{1}'}{r} + \frac{r_{2}r_{2}'}{r})} dr_{1}' dr_{2}'.$$
(2.16)

Wendet man also auf diesen Term die Fourier-Rücktransformation an, so muss man den Fokus bei *negativem* Objektebenenabstand bekommen. Das Bild ist dann um den Nullpunkt gespiegelt. Bei positivem Objektebenenabstand rekonstruiert, ergibt dieser Term nur einen defokussierten Beitrag.

2.2.5 Der Quellterm

Der Integralausdruck für den Quellterm lautet:

$$I_{s}(\boldsymbol{r}) = -\frac{ik^{2}\hbar}{2\pi m} \frac{De^{-ik\frac{D}{r}d}}{r^{3}} A^{*}\left(\frac{r_{1}}{r}, \frac{r_{2}}{r}\right) \iint_{\Omega} A\left(\frac{r_{1}'}{r'}, \frac{r_{2}'}{r'}\right) \frac{e^{ikr'}}{r'} e^{-ik\left(\frac{r_{1}r_{1}'}{r} + \frac{r_{2}r_{2}'}{r}\right)} dr_{1}' dr_{2}'.$$
(2.17)

Das Ergebnis der Rekonstruktion ist somit die Wellenfunktion der Elektronenquelle. Die Funktion $\psi_{in}(\mathbf{r}') = A(\frac{r'_1}{r'}, \frac{r'_2}{r'})\frac{e^{ikr'}}{r'}$ liefert in der Objektebene nur defokussierte Beiträge. Der Fokus läuft jedoch wegen des winkelabhängigen Faktors $A(\frac{r'_1}{r'}, \frac{r'_2}{r'})$ auf den Nullpunkt zu. Eine Rekonstruktion bei Abstand d = 0 (also am Ort der Elektronenquelle) muss daher einen Fokusbeitrag der Quelle beinhalten, während der Hologrammterm und der Twin-Image-Term dort defokussiert sind.

2.2.6 Die Selbstinterferenz

Um den Fokus der Selbstinterferenz zu finden, untersuchen wir auch ihren Integralterm:

$$I_{si}(\boldsymbol{r}) = \frac{\hbar k}{m} \left(\frac{kD}{2\pi r^2}\right)^2 \iint_{\Omega} \psi_{sc}^*(\boldsymbol{r}'') \psi_{sc}(\boldsymbol{r}') e^{-ik(\frac{r_1(r_1'-r_1'')}{r} + \frac{r_2(r_2'-r_2'')}{r})} dr_1' dr_2' dr_1'' dr_2''.$$

Hier verschwindet der Vorfaktor $e^{-ik\frac{D}{r}d}$, der den Objektabstand enthält. Das Integral beschreibt eine Verteilung von Elektronenquellen um den Nullpunkt mit einer Ausdehnung, die der Objektgröße entspricht. Diese Quellen interferieren kohärent miteinander. Eine Rekonstruktion in der Objektebene muss also defokussierte Beiträge erzeugen. An den Stellen, an denen $r'_1 = r''_1$ und $r'_2 = r''_2$ ist, nimmt der Phasenfaktor im Integral den Wert eins an. Dann interferieren $\psi^*(\mathbf{r''})$ und $\psi(\mathbf{r'})$ konstruktiv, und man kann einen großen, fokusartigen Beitrag erwarten. Dies ist in der Rekonstruktion aber gerade der Nullpunkt (also wiederum der Ort der Elektronenquelle).

2.2.7 Die Anwendung der Rekonstruktionsgleichung auf Detektorbilder

Ein gemessenes Interferenzbild enthält zunächst alle vier der in den vorhergehenden Abschnitten aufgezählten Terme. Um Informationen über das Objekt zu erhalten ist aber lediglich der Hologrammterm notwendig. Bei einer Rekonstruktion im Objektebenenabstand bilden die anderen drei Terme einen defokussierten Untergrund, der die Interpretation des Rekonstruktionsbildes erschweren kann.

Führt man nun Rekonstruktionen des Interferenzbildes bei verschiedenen angenommenen Objektabständen durch, so ist zu erwarten, dass bei Annäherung an den Objektabstand vom Detektorschirm her ein zunehmender Fokus in den Rekonstruktionen erscheint. Wie in den vorhergehenden Abschnitten beschrieben, haben die Terme der Quelle und Selbstinterferenz ihre Fokusse im Bereich um den Nullpunkt. Das Twin-Image erscheint fokussiert bei negativem Objektabstand. Da also auf dem Weg von Objektebene zum Detektor alle Beiträge in der Rekonstruktion zunehmend defokussieren, ist es plausibel anzunehmen, dass es in diesem Raum keinen weiteren Fokus mehr auftritt. Dies kann man auch in Simulationen nachvollziehen (Siehe Abbildung 3.10). Bei der Analyse der Experimentellen Daten *ist also der wahrscheinlichste Objektfokus derjenige, der den geringsten Abstand zum Detektorschirm hat.*

Im Kapitel 8 wird gezeigt, dass dieser Fokusabstand, der dem Detektor am nächsten liegt, auch die beste Reproduzierbarkeit der Rekonstruktionen wiedergibt und auch mit der Abschätzung des Objektabstandes über die Schlitzbreite der Siliziummembran übereinstimmt.

2.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden zwei Zugänge zum theoretischen Verständnis des Experiments aufgezeigt.

Die *Partialwellenmethode* entwickelt den Eigenzustand des Elektrons in einer Bornschen Reihe. Sie sagt voraus, bei idealen experimentellen Verhältnissen einzelne Atome in der Probe auflösen zu können. Ein wesentlicher Grund, der die Auflösung von einzelnen Atomen erschwert, ist der begrenzte Emissionswinkel der heute verfügbaren Elektronenquellen. In Abbildung 3.3 (Kapitel 3) wird demonstriert, dass ein begrenzter Emissionswinkel der Elektronenquelle eine Auflösung von Einzelatomen unmöglich macht.

Das *Maskenmodell* umgeht die konkrete Beschreibung der Wellenfunktion im Potenzial des Objektes, indem als Ausgangspunkt die Wellenfront des Elektrons hinter dem Objekt gewählt wird. Man kann dieses Modell dazu benutzen, die Interferenzbilder von dickeren Probensträngen in erster Näherung dadurch zu simulieren, dass auf einer Breite des Objektduchmessers der Wert der Wellenfunktion auf Null gesetzt wird (Abschnitt 3.2).

Die Beschreibung des Maskenmodells wurde hier auf der Grundlage der Sommerfeldschen Greensfunktion durchgeführt. Dieser neue Zugang erlaubt eine direkte Zurückführung des Rekonstruktionsalgorithmus auf eine Fast-Fourier-Transformation, was im Rahmen dieser Arbeit die Entwicklung einer Softwarebibliothek ermöglichte, die die Rekonstruktions-Integraltransformation innerhalb weniger Sekunden berechnet. Bisher publizierte Darstellungen konnten einen schnellen Algorithmus nur als Näherung für kleine Streuwinkel herleiten [30].

Es lässt sich durch eine Koordinatentransformation nachrechnen, dass die Rekonstruktionsalgorithmen der beiden Modelle in guter Näherung übereinstimmt.

3 Simulationen von Elektronen-Projektionsbildern

Die Entwicklung eines Rekonstruktions-Algorithmus für Elektronen-Projektionsbilder ermöglichte innerhalb dieser Doktorarbeit die Programmierung einer objektorientierten Software-Library, mit der die experimentellen Daten analysiert und simuliert werden können. Durch die Rückführung des Algorithmus auf eine Fast-Fourier-Transformation können Rekonstruktionsbilder innerhalb weniger Sekunden berechnet werden. Genauso schnell lassen sich Detektorbilder aus einem angenommenem Verhalten der Elektronenwellenfunktion auf der Objektebene berechnen. Ein schneller Algorithmus erlaubt auch eine Anpassung von Simulationen an experimentelle Bilder, wenn die Objektmodelle von mehreren Parametern abhängen.

Mit Simulationsrechnungen kann veranschaulicht werden, wie die Streubilder und deren Rekonstruktionen unter spezifischen experimentellen Bedingungen und den Voraussetzungen des jeweiligen Modells aussehen. Damit kann man die Faktoren untersuchen, die das Auflösungsvermögen beeinträchtigen. Diese ergeben sich nämlich nicht immer aus den Rekonstruktionsbildern, sondern zeigen sich in einem Vergleich zwischen Messung und Simulation. Die berechneten Detektorbilder können aber auch dazu dienen, optimale Abbildungsparameter, wie Objektabstand, Detektorgröße, oder Abbildungsenergie herauszufinden.

3.1 Simulationen mit der Partialwellenmethode

Ausgehend von Gleichung 2.5 kann man die Funktionswerte des Elektroneneigenzustandes am Ort des Detektorschirms berechnen. Als Parameter benötigt man dazu die Atompositionen sowie die Streuphasen der jeweiligen Atome bei der gewählten Elektronenenergie. Das Detektorbild ergibt sich schließlich anhand der Gleichung 2.12 aus diesen Funktionswerten. Abbildung 3.1 zeigt ein auf diese Weise simuliertes Interferenzbild eines DNA-Doppelstranges. Hier wurde der Idealfall einer sphärisch symmetrischen Quellen-Elektronenwelle angenommen. Die Abbildungsenergie betrug 40 eV; der Abstand zwischen Quelle und Probe war 1400 Å.

Abbildung 3.2 zeigt das Ergebnis der Rekonstruktion. Die Kante des Bildes entspricht einer Länge von 700 Å. Das gewonnene Bild lässt die helikale Struktur des DNA-Stranges erkennen. Aufgrund der wesentlich schlechteren Auflösung entlang der z-Achse (Abschnitt 4.2) erhält man ein Bild, das der Projektion aller Atome auf eine Ebene entspricht.

Diese Simulation wurde berechnet unter der Annahme einer sphärisch symmetrischen Wellenfunktion. In der Regel haben die präparierten Wolframspitzen jedoch eine stark nach vorne



Abbildung 3.1: Ein simuliertes Interferenzbild von einem DNA-Doppelstrang. Elektronenenergie: 40 eV; Abstand zwischen Spitze und Probe: 1400 Å.



Abbildung 3.2: Das Ergebnis der Rekonstruktion. Die Länge des Bildes entspricht 700 Å

gerichtete Emissionscharakteristik (Abschnitt 4.1). Abbildung 3.3 zeigt daher eine Simulation mit einer Elektronenquelle, die ein gaußförmiges Emissionsprofil hat. Man erkennt, in der Rekonstruktion, dass dadurch die Auflösung verschlechtert wird. Der Strangdurchmesser und grobe Struktureigenschaften sind aber dennoch zu erkennen. Selbst mit stark gerichteten Elektronenquellen können daher Strukturen im Nanometerbereich aufgelöst werden.

Ein großes Problem ist die Vielzahl an Parametern, die für diese Simulationsrechnungen notwendig sind. Neben den Ortskoordinaten eines jeden Atoms werden noch die Streuphasen bis zur Drehimpulsquantenzahl l = 3 benötigt. Streuphasen höherer Drehimpuls-Quantenzahlen können im niederenergetischen Bereich vernachlässigt werden [24]. Daher wird bei dickeren Objektsträngen diese Simulationsmethode sehr umständlich, zumal dann auch Mehrfachstreuprozesse berücksichtigt werden müssen [25].

3.2 Simulationen mit dem Maskenmodell

Die Darstellung der Wellenfunktion auf dem Detektorschirm in Abhängigkeit von den Funktionswerten auf der Ebene Ω direkt hinter dem Objekt (Gleichung 2.11) gibt die Möglichkeit, Interferenzbilder auf der Grundlage einer angenommenen Wellenfront zu berechnen. Um nun den Ausdruck für die Wellenfunktion hinter dem Objekt zu bekommen, müsste man die Schrödingergleichung für das Elektron im Objektbereich lösen und dann die Werte der Wellenfunktion auf der Ebene Ω extrahieren.

Aus der Optik ist bekannt, dass eine elektromagnetische Welle hinter einem (im Vergleich zur Wellenlänge) sehr dünnen, undurchlässigen Kante ungefähr mit der Länge $\sqrt{z\lambda}$ in den geometrischen Schattenraum eindringt [26]. Diese Argumentation lässt sich auch auf den quantenmechanischen Fall übertragen. Man kann daher davon ausgehen, dass bei undurchlässigen Objektsträngen die Elektronenwellenfunktion in einer ersten groben Näherung direkt hinter dem Objekt den Wert Null hat. In diesem Fall ist also $\psi_{sc} = -\psi_{in}$ und ψ_{sc} hat außerhalb des "Schattenbereiches" des Objekts den Wert Null.

Der obere Teil in Abb. 3.4 zeigt den Realteil einer berechneten Wellenfront der Elektronenwelle bei der auf einer Strangbreite von 5 nm der Funktionswert auf Null gesetzt wurde. Das daraus berechnete Detektor-Interferenzbild ist im unteren Teil von Abbildung 3.4 gezeigt. Abbildung 3.5 zeigt die Rekonstruktion des Detektorbildes in der Objektebene. Der Objektfokus ist deutlich zu erkennen. Er zeigt sich als Schatten, der in einem breiten, hellen Untergrund liegt, der aus Beiträgen der anderen Terme gebildet wird.

Aus den durch die Simulation ermittelten Funktionswerten der Elektronenwellenfunktion lassen sich nun entsprechend der Gleichung 2.13 die vier einzelnen Terme berechnen. Jeder dieser Terme lässt sich einzeln rekonstruieren. Damit kann man ihren jeweiligen Beitrag in der Rekonstruktion sichtbar machen.



(a)



(b)

Abbildung 3.3: (a): Simulation eines DNA-Stranges mit einer gaußförmigen Elektronenquelle. (b): die dazugehörige Rekonstruktion



Abbildung 3.4: Der Realteil der Wellenfront in der Objektebene (oben) und die daraus berechnete Schirmintensität (unten). Daneben jeweils ein horizontaler Schnitt.



Abbildung 3.5: Die Rekonstruktion des Schirmbildes aus Abbildung 3.4.

In Abbildung 3.6 sind die Beträge dieser Funktionswerte gezeigt. Der Vergleich zeigt, dass der Hologrammterm im Gegensatz zu den anderen Termen einen Fokus aufweist. Deutlicher sieht man dies, wenn man Schnitte durch die Rekonstruktionsbilder miteinander vergleicht (Abbildung 3.7). Die Rekonstruktion des Hologrammterms hat die steilsten Flanken. Dies entspricht den hergeleiteten Fokuseigenschaften der einzelnen Terme in den Abschnitten 2.2.3 bis 2.2.6.

Die Rekonstruktionen am Nullpunkt (also am Ort der Elektronenquelle) sind in Abbildung 3.8 gezeigt. Man erkennt den sehr kleinen Fokuspunkt des Quellenterms (Bild b), der - wie in Abbildung 3.9 zu erkennen ist - den weitaus größten Beitrag hat. Wegen der Symmetrie von Gleichungen 2.14 und 2.16 müssen die Rekonstruktionen von Hologrammterm und Twin-Image Term am Nullpunkt identisch sein. Das Intensitätsmuster ist in den entsprechenden Bildern entlang der Horizontalen stark ausgeweitet (Bild a und b). In vertikaler Richtung ist das Rekonstruktionsbild jedoch wieder fokussiert, da der Objektstrang sich in der Objektebene über das gesamte Emissionsprofil der Elektronenquelle erstreckt. Das Bild (d) zeigt schließlich wieder den fokussierten Selbstinterferenzanteil.

Abbildung 3.9 vergleicht schließlich die horizontalen Schnitte durch die Einzelbilder in Abbildung 3.8, also senkrecht zur Objektachse. Sie verdeutlicht den Fokuscharakter von Quellterm und Selbstinterferenzterm. Die Breite des Quellterms ist durch die gerichtete Emissionscharakteristik des Elektronenstrahles bedingt.

3.3 Die Fokuseigenschaften der Rekonstruktion

Die Untersuchungen im Rahmen des Maskenmodells haben gezeigt, dass ein Rekonstruktionsbild eine Überlagerung der Rekonstruktionen der einzelnen Terme der Detektorintensität darstellt (Gleichung 2.13). In der Objektebene unterscheidet sich der Hologrammterm von den anderen durch seine Fokuseigenschaft: ist die Wechselwirkungszone zwischen Elektron und Objekt scharf genug begrenzt, so muss auch der Werteverlauf von ψ_{sc} und damit auch die Rekonstruktion steile Flanken aufweisen.



Abbildung 3.6: Die Normen der Funktionswerte der einzelnen Terme in der Objektebene. (a): der Hologrammterm, (b): der Quellenterm, (c): das Twin-Image, (d): der Selbstinterferenzterm.



Abbildung 3.7: Schnitte durch die Rekonstruktionen in der Objektebene.

Abbildung 3.10 zeigt Schnitte durch die Rekonstruktionsbilder, die bei verschiedenen Rekonstruktionsabständen gemacht wurden. Die Schnittkurven liegen senkrecht zur Objektstrangachse. Die Kurve bei einem Abstand von 150 nm zeigt die steilsten Flanken und gibt damit den korrekten Objektabstand wieder. In den Detektorbildern ist also eine dreidimensionale Information enthalten. Man kann durch Analyse von Rekonstruktionen bei verschiedenen Abständen den Objektfokus auf der optischen Achse lokalisieren und dadurch den Objektabstand herausfinden. Dies ermöglicht es, anhand eines experimentellen Bildes den Abstand zwischen Elektronenquelle und Objekt herauszufinden.

Die Ermittlung des korrekten Fokusabstandes ist bei der Auswertung experimenteller Daten wichtig, da eine Rekonstruktion bei einem falschen Abstand eine andere Objektstruktur wiedergibt. Die experimentellen Bilder wurden daher mit Schnitten wie in Abbildung 3.10 auf eine auftretende Fokuseigenschaft überprüft.

Genau genommen gilt das Fokusargument nur für Objekte, deren Ausdehnung entlang der z-Achse klein gegenüber der Wellenlänge des Elektrons ist. Für zylinderförmige Objektstränge mit einem Durchmesser von wenigen Nanometern trifft das nicht mehr strikt zu. Man muss daher in den Rekonstruktionen experimenteller Bilder mit einer Beeinträchtigung der Fokusschärfe rechnen (siehe Abschnitt 4.9).

3.4 Der Hintergrundabzug

Bei der Auswertung der Detektorbilder stellte sich die Frage, inwieweit man den Hologrammanteil von den anderen Beiträgen trennen kann, um deren auflösungsvermindernden Einfluss zu eliminieren oder zu vermindern.



Abbildung 3.8: Die Rekonstruktionen am Nullpunkt. (a): der Hologrammterm, (b): der Quellterm, (c): das Twin-Image, (d): der Selbstinterferenzterm



Abbildung 3.9: Schnitte durch die Rekonstruktionen am Nullpunkt. Die Y-Achse ist auf das Maximum der Quelltermkurve skaliert.



Abbildung 3.10: Schnitte durch das Rekonstruktionsbild bei verschiedenen Objektabständen.
Eine ähnliche Fragestellung ergab sich bei den Simulationen der DNA-Stränge, die in Kapitel 8 gezeigt sind. Dort konnte eine wesentlich bessere Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung erreicht werden, wenn man in der Fokusebene des Objektes die Emissionsverteilung der Elektronenquelle und den Schatten des Objektträgers einrechnete. Dazu musste der Beitrag des Quellterms und seine Begrenzung durch den Objektträger aus den Detektorbildern extrahiert werden.

Der Ansatz zur Lösung dieses Problemes ging von den verschiedenen Fokusebenen der einzelnen Terme aus. Nur der Hologrammterm hat in der Objektebene einen Fokus, die anderen Terme sind defokussiert. Eine Rekonstruktion beim Abstand null (also am Ort der Elektronenquelle) zeigt um den Koordinatenursprung dominante Beiträge von der Elektronenquelle und dem Selbstinterferenzbeitrag, während der Hologrammbeitrag und der Twin-Image Beitrag in der Richtung senkrecht zur Objektachse über einen größeren Bereich defokussiert sind (Abbildung 3.8). Der Anteil der Elektronenquelle ist dabei in einem engeren Bereich begrenzt, als der Anteil des Selbstinterferenz-Temes.

Will man nun z. B. den Beitrag der Elektronenquelle (und den Schatten der Siliziummembran) aus einem Detektorbild extrahieren, so kann man wie folgt vorgehen: zunächst berechnet man die Rekonstruktion am Nullpunkt (also der Fokusebene des Quellterms). Dann schneidet man den kleinen Bereich des Quellenbeitrages in der direkten Umgebung des Nullpunktes aus diesem Bild heraus. Dadurch wird nur ein geringer Anteil der anderen Terme miterfasst, da der Quellterm an dieser Stelle den größten Beitrag hat. Eine inverse Rekonstruktionsoperation auf diesem Bild berechnet dann den Anteil des herausgeschnittenen Teiles am Detektorbild.

Abbildung 3.11 zeigt auf der linken Seite die Rekonstruktion am Nullpunkt eines experimentellen Bildes. Der punktförmige Beitrag der Elektronenquelle ist in der Bildmitte erkennbar. Das vertikale strichförmige Muster kommt von den anderen Beiträgen. Das Bild auf der rechten Seite zeigt den Anteil des Quellenterms, der aus dem Rekonstruktionsbild herausgeschnitten wurde. Die Rücktransformation muss daher näherungsweise das Intensitätsprofil der Elektronenquelle ergeben.

Abbildung 3.12 stellt dem ursprünglichen Detektorbild (links) den berechneten Quellenbeitrag gegenüber (rechts). Man erkennt die gaußförmige Verteilung der Intensität genauso wie den Schatten der Siliziummembran.

Man wird jedoch nie den exakten Quellenanteil extrahieren können, da imer noch kleine Anteile der anderen Beiträge mit enthalten sind. Die Auswirkung dieses Effektes auf das berechnete Detektorbild ist in Abbildung 3.13 zu sehen. Dort sind Schnitte durch das Schirmbild quer zur Objektachse aufgetragen. Je größer der Anteil der anderen Terme am berechneten Untergrund ist, desto genauer werden die durch das Objekt verursachten Änderungen am gaußförmigen Intensitätsbild der Elektronenquelle erfasst. Dies kommt daher, dass ein immer größerer Anteil der anderen Terme im berechneten Untergrund enthalten ist.

Es ist also nicht möglich, den genauen Anteil der Quellenfunktion zu extrahieren, da sich am Koordinatenursprung die Beiträge der Elektronenquelle mit den anderen Beiträgen überlagert. Man kann das auch an Abbildung 3.12 erkennen. Die Intensitätsverteilung der Elektronenquelle scheint dort ein wenig an den unteren Bildrand verschoben, weil die enthaltenen Anteile der anderen Terme die Intensität im oberen Bildteil heruntersetzen. Bei den Simulationsrechnungen in dieser Arbeit genügte es jedoch, einen mit dieser Methode angenäherten



Rekonstruktion am Nullpunkt



extrahierter Quellenanteil desRekonstruktionsbildes

Abbildung 3.11: Die Rekonstruktionen am Nullpunkt. Die Kantenlänge der Bilder entspricht 37.5 nm.



Detektorbild



extrahierter Quellenanteil

Abbildung 3.12: Das Detektorbild eines DNA-Stranges und das Bild des extrahierten Quellenanteiles.



Abbildung 3.13: Vergleich zwischen experimentellem Detektorbild und berechneten Quellenanteilen.

Beitrag der Elektronenquelle zu berechnen.

3.5 Zusammenfassung

Die Simulation von Detektorbildern im Rahmen des Partialwellenmodells oder des Maskenmodells ermöglicht es, die Fokuseigenschaften der Rekonstruktionsbilder besser zu untersuchen, und den Einfluss von Selbstinterferenzterm und Twin-Image-Term auf die Auflösung der Rekonstruktion zu analysieren.

Schnitte, die durch die Rekonstruktionsbilder quer durch die Objektachse genommen wurden haben gezeigt, dass die Rekonstruktionen in Abhängigkeit vom Abstand vom Nullpunkt eine typische Fokusentwicklung zeigen, und dass der Objektabstand durch das Bild mit der größten Rekonstruktionsschärfe aus den Bildern extrahiert werden kann.

Der Anteil der Elektronenquelle kann näherungsweise aus den experimentellen Bildern extrahiert werden, indem man zunächst eine Rekonstruktion am Ort der Elektronenquelle ausführt, aus diesem Bild einen kleinen Bereich um den Nullpunkt herausschneidet und diesen Anteil auf die Detektorebene zurückrechnet.

4 Auflösungsbegrenzende Faktoren

4.1 Die Detektorgröße und die Emissionscharakteristik der Elektronenquelle

Wie in Abschnitt 2.2.3 bereits erwähnt wurde, kann man den Beitrag der Streuwelle in der Objektebene dadurch berechnen, dass man eine zweidimensionalen Fouriertransformation auf dem Hologrammterm des Detektorbildes anwendet. Der Detektor kann jedoch nur einen bestimmten Raumwinkel des Interferenzbildes erfassen und begrenzt daher auch das Gebiet, über das die Fourierintegration durchgeführt wird. Daher hat die Fläche des Elektronende-tektors einen Einfluss auf die erreichbare Auflösung des Mikroskopes. Die begrenzte Detektorfläche hat die Wirkung einer Apertur auf die Auflösung des rekonstruierten Bildes, da die Rekonstruktion nichts anderes macht, als den Eigenzustand der Elektronenwelle vom Detektor auf die Objektebene zurückzuberechnen.

Hinzu kommt noch, dass die Elektronenemission aus den präparierten Elektronenquellen den Detektorschirm nicht ganz ausleuchtet. Sie erzeugen auf dem Detektorschirm ein Intensitätsprofil, das in sehr guter Näherung einer Gaußkurve entspricht. Wie Abbildung 4.3 zeigt, hat der Elektronenstrahl einen Halbwerts-Öffnungswinkel von 14°.

In Abbildung 4.1 wird gezeigt, wie im (theoretischen) Fall einer sphärischen Elektronenemission die Auflösung eines S-Wellen-Streuers durch die Detektorgröße beeinflusst wird. Die Kurven zeigen, dass bei einem Detektordurchmesser von 75 mm die Rekonstruktion eine Halbwertsbreite von 4 Å aufweist.

Den Einfluss des Emissionsprofils auf die Auflösung eines Punktstreuers ist in Abbildung 4.2 gezeigt. Die Halbwertsbreite vergrößert sich hierbei von 4 Å auf 5 Å. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der in Abschnitt 2.2.3 abgeschätzten Halbwertsbreite von 6,8 Å. Man kann also durch Extraktion des Quellterms und Teilung des Detektorbildes durch diese Funktion (wie in Gleichung 2.15) keine signifikante Auslösungsverbesserung erreichen. Daher genügt es in der Regel, den Rekonstruktionsalgorithmus direkt auf das Detektorbild anzuwenden.

Die berechneten Rekonstruktionskurven eines Punktstreuers geben allerdings nur ein Maß für die Auflösung einer komplexen Struktur. Eine kohärent beleuchtete Probe kann durch Interferenzeffekte zwischen den einzelnen Streuzentren eine niedrigere Auflösung als ein Punktstreuer haben [7]. Konkrete Aussagen können nur durch Simulation der Streubilder einer bestimmten Probe gemacht werden.



Abbildung 4.1: Die Auflösung eines Punktstreuers (S-Welle) bei verschiedenen Detektorgrößen. Angenommen wurde eine Elektronenquelle mit sphärisch homogener Emissionscharakteristik.



Abbildung 4.2: Die Auflösung eines S-Streuers bei einem realistischen Halbwerts-Öffnungswinkel von 14°.



Abbildung 4.3: Vergleich zwischen dem Emissionsprofil einer präparierten Wolfram-Feldemitterspitze mit dem Profil einer idealen Punktquelle.

4.2 Auflösung entlang der optischen Achse

Entlang der optischen Achse ist die Auflösung nicht so gut wie in der Objektebene. Abbildung 4.4 zeigt Rekonstruktionswerte eines Punktstreuers entlang der optischen Achse. Man kann aus dieser Kurve ablesen, dass die Halbwertsbreite der Rekonstruktionskurve 4 nm beträgt. Das ist eine Größenordnung mehr als auf der Objektebene. Bildet man daher Objekte mit einem Durchmesser von wenigen Nanometern ab, so erhält man lediglich ein Projektionsbild des Objektes. Selbst bei idealen Abbildungsverhältnissen wird es daher nie zu einer dreidimensionalen Auflösung einzelner Atome kommen. Dies wird auch durch die Simulationen in Abschnitt 3.1 demonstriert: der DNA-Strang erscheint in der Rekonstruktion als eine Projektion aller Streuatome.

4.3 Die laterale Kohärenzlänge

Aus dem Intensitätsprofil (Abbildung 4.3) des Detektorschirms kann man die laterale Ausdehnung der einzelnen Elektronen-Wellenpakete in der Detektorebene nicht bestimmen. Es lässt sich lediglich sagen, dass die Kohärenzlänge nicht größer als die Ausdehnung des Intensitätsprofils sein kann. Die laterale Kohärenzlänge begrenzt die Auflösung der Rekonstruktion, da verschiedene Elektronen nicht miteinander interferieren und daher das Rekonstruktionsbild die Summe der Rekonstruktionen einzelner Elektronenzustände ist.

Abbildung 4.5 zeigt auf der linken Seite der Graphik verschiedene Elektroneneigenzustände mit der gleichen lateralen Kohärenzlänge, wobei eine Halbwertsbreite der Elektronenflussdichte von 12 mm auf dem Detektorschirm angenommen wurde. Dies entspricht einem



Abbildung 4.4: Die Auflösung eines Punktstreuers entlang der optischen Achse.

Halbwerts-Öffnungswinkel der Elektronenwelle von 5°. Das simulierte Objekt dabei war ein nichttransparenter Strang mit einem Durchmesser von 5 nm auf einer Distanz von 200 nm. Die gezeigten Schnitte sind senkrecht zur Objektachse. Die blaue Kurve zeigt eine Wellenfunktion, die gerade noch das Objekt streift. Bei ihr ist im Rekonstruktionsbild die Stranggeometrie gerade noch zu erkennen. Die rote Kurve beschreibt eine Wellenfunktion, zu sehr seitlich emittiert wird, um mit dem Objekt eine Wechselwirkung zu haben. Ihre Funktionswerte auf der Detektorebene enthält kein Interferenzmuter. Folglich zeigt die Rekonstruktion auch keine Objektmerkmale.

Eine kleinere laterale Kohärenzlänge muss sich in einer schnelleren Abnahme der Interferenzstreifen an den Rändern des Streubildes bemerkbar machen, denn nur diejenigen Elektronen können zum Hologrammterm beitragen, deren Wellenpaket das Objekt streift. Daher muss die größte vorkommende Kohärenzlänge der Elektronenwellen mindestens so groß sein, wie die Reichweite des Interferenzmusters auf einem experimentellen Bild.

Abbildung 4.6 zeigt einen Vergleich zwischen einem Detektorbild von Elektronenzuständen mit unendlicher Kohärenzlänge und einem Detektorbild, das durch die Überlagerung von Elektronenzuständen mit der gleichen lateralen Ausdehnung wie in Abbildung 4.5 entsteht. Man erkennt, dass das Interferenzmuster nicht weiter reicht, wie die Kohärenzlänge der einzelnen Elektronenwellen, zudem bleibt das Interferenzmuster in der Mitte des Detektorschirms annähernd gleich.

4.4 Die Auflösung des Detektorsystems

Elektronendetektor und CCD-Kamera sind beide in ihrer Auflösung begrenzt. Die Microchannelplate hat Kanäle mit einem Durchmesser von $10 \,\mu\text{m}$ und einem Abstand zwischen



Abbildung 4.5: Simulation verschiedener Elektronenzustände mit einem Halbwerts-Öffnungswinkel von 5° .



Abbildung 4.6: Vergleich von simulierten Detektorbildern mit beschränkter und unendlicher lateraler Kohärenzlänge.

den Kanälen von 12 μ m. Der Chip der CCD-Kamera hat 1024×1024 Pixel. Ein Pixel entspricht einem Punkt von 73 μ m Größe auf der Detektorplatte. Das optische Linsensystem kann einen Wolframdraht von 100 μ m Dicke, der auf dem Phosphorschirm liegt, genügend scharf abbilden. Es verschlechtert daher die Auflösung des Chips nicht wesentlich. Die Digitalkamera bestimmt also die Auflösungsgrenze des Detektorsystems. Simuliert man also ein Streubild mit 1024×1024 Pixel, so hat man damit bereits die Auflösungsbegrenzung des Detektorsystems mit berücksichtigt.

Die Simulationen in Kapitel 3.1 demonstrieren eine Auflösung von 5 Å durch Bilder mit 1024×1024 Pixel. Dieses Bildformat reicht also im Idealfall aus, um die Struktureigenschaften eines DNA-Stranges sichtbar machen zu lassen.

4.5 Energieunschärfe der Elektronenquelle

Eine theoretische Beschreibung der Energieverteilung feldemittierter Elektronen wurde von R. Young entwickelt [31]. Diese Verteilung konnte auch experimentell nachgewiesen werden [32]. Diese Untersuchungen ergaben, dass feldemittierte Elektronen bei einer Spitzentemperatur von 300 K eine Energieverteilung mit einer Breite von 0.3 eV haben [33]. Diese Verteilung ist von der Struktur der Emitteroberfläche nahezu unabhängig [34]. Da diese Verbreiterung ein Effekt der Fermistatistik ist, kann selbst bei einer Kühlung der Spitze auf eine Temperatur nahe 0 K die Breite der Verteilung nur unsignifikant vermindert werden. Die Frage ist nun, wie sich diese 0.3 eV Energieunschärfe der Elektronenquelle auf die Detektorbilder und deren Rekonstruktionen auswirkt.

Ist n(E)dE die Anzahl der Elektronen mit einer Energie E im Intervall dE, so lässt sich der Hologrammterm des Detektorbildes darstellen als:

$$\langle I_h(\boldsymbol{r}) \rangle = \int I_h(\boldsymbol{r}, E) n(E) dE.$$

Man kann nun die Rekonstruktionen von $\langle I_h(\mathbf{r}) \rangle$ von verschiedenen Energieverteilungen vergleichen, um zu sehen, wie sich die Energieunschärfe der Elektronenquelle auf die Auflösung auswirkt.

In Abbildung 4.7 werden die Rekonstruktionen von Punktstreuern verglichen, die sich in einem Abstand von 200 nm von der Quelle befinden. Dabei wurde der experimentelle Halbwerts-Öffnungswinkel der Elektronenquelle von 14° mit eingerechnet. Die Energieverteilung wurde in einem für das Metall Wolfram sinnvollem Maße angenähert [35]. Man erkennt aus den Schnitten durch die Rekonstruktionsbilder, dass eine Kurve mit einer Halbwertsbreite von 1 eV die Breite der Rekonstruktion, die sich aus der Emissionscharakteristik der Elektronenquelle ergibt (Abschnitt 4.1) nur unwesentlich beeinflusst. Die Halbwertsbreite ändert sich von 5 auf 5,7 Å. Erst eine Energieunschärfe mit einer Halbwertsbreite von 2 eV führt zu einer signifikanten Ausschmierung des Rekonstruktionspunktes und einer Vergrößerung der Halbwertsbreite auf 7 Å.



Abbildung 4.7: Die Auswirkung der Energieunschärfe der Elektronenquelle (oben) auf das Rekonstruktionsbild eines Punktstreuers (unten).

4.6 Räumliche Inkohärenz

Das Interferenzbild auf dem Detektor wird von von einzelnen Elektronen erzeugt, die zu verschiedenen Zeitpunkten mit dem Objekt wechselwirken. Die typische Belichtungszeit im Experiment beträgt 100 ms. Bewegt sich das Objekt in diesem Zeitraum, so ist das Interferenzbild eine Mittelung der Interferenzbilder verschiedener Objekpositionen.

Bleibt das Objekt in Ruheposition und bewegt sich lediglich die Spitze, so wird das Objekt von der Spitze aus gesehen wiederum in verschiedenen Positionen belichtet. Da die örtliche Verschiebung der Elektronenquelle im Vergleich zur Auflösung des Detektorsystems (70 μ m) nur sehr gering ist, zeigt sich dieser Effekt auf dem Detektor genauso wie eine Verschiebung des Objektes. Eine laterale Auslenkung der Elektronenquelle um die Länge Δr_1 hat auf dem Detektor genau den gleichen Effekt, wie eine Auslenkung des Objektes um $-\Delta r_1$.

Ein analoger Effekt kommt davon, dass Elektronen aus unterschiedlichen Bereichen der Spitzenoberfläche emittiert werden. Die im Experiment verwendeten Wolframspitzen haben als oberste Atomlage ein Trimer (Abschnitt 7.3). Vernachlässigt man den Einfluss der beschleunigenden elektrostatischen Felder an der Spitzenoberfläche, so ergäbe sich aus der Emission aus diesem Trimer eine laterale Quellgröße von 4,5 Å Durchmesser.

Diese aufgezählten Effekte werden alle unter dem Begriff "räumliche Inkohärenz" zusammengefasst. Da sie gleiche Auswirkungen auf das Detektorbild haben, können sie durch die Analyse eines einzelnen Bildes nicht differenziert werden. Sie führen alle dazu, dass das Detektorbild ein Hologramm des Objektes in verschiedenen Positionen enthält. Folglich führen sie zu einer entsprechenden Vergrößerung rekonstruierten Objektes.

4.7 Elektrostatische Felder an der Objektoberfläche

Existieren in der Umgebung des Objektes elektrostatische Felder, so kann dies die Auflösungsmöglichkeit des Projektions-Elektronenmikroskopes herabsetzen, weil sich durch ihren Einfluss auf die Elektronenwellenfunktion die Fokuseigenschaften der Rekonstruktionsbilder ändern. Der Objektfokus kann dabei unschärfer und entlang der optischen Achse verschoben werden. Bei starken Feldern kann sogar der Objektfokus ganz verschwinden. Näher wurde hierauf im Abschnitt 3.5 eingegangen.

Die Existenz elektrostatischer Felder kann man an den Rekonstruktionen nicht direkt erkennen. Nur ein Vergleich von Simulationen mit den Experimentellen Detektorbildern ergibt einen Hinweis auf ihren Einfluss. Die Auswirkungen auf das Detektorbild und die Rekonstruktionen ist stark von der Geometrie und Stärke der Felder, sowie der Objektstruktur abhängig. Bei der Auswertung der experimentellen Bilder dieser Arbeit wurde daher versucht, durch Einbeziehung von elektrostatischen Feldern in die Simulationsrechnungen eine bessere Anpassung an die experimentellen Bilder zu erreichen.

4.8 Beiträge des Twin-Images und des Selbstinterferenzterms

Die Beiträge von Selbstinterferenz und Twin-Image können nicht vollständig aus dem Detektorbild extrahiert werden (Abschnitt 3.4). Daher werden sie mitrekonstruiert und können die Auflösung beeinträchtigen.

Die Abschätzung dieses Einflusses ist empfindlich von der Objektgeometrie abhängig. Daher ist zu seiner Untersuchung eine möglichst genaue Simulation des entsprechenden Objektes nötig. In Abschnitt 8.6 wird bei der Analyse der experimentellen Daten anhand der rekonstruierten Geometrie der DNA-Stränge der Einfluss von Twin-Image-Term und Selbstinterferenzterm untersucht.

Das Ergebnis ist, dass sich mit zunehmendem Objektdurchmesser der Einfluss der anderen Terme zunehmend störend auswirkt. Ein Objekt mit einem Durchmesser von 12 nm zeigt in den Rekonstruktionen keinen eindeutigen Fokusabstand mehr.

4.9 Begrenzung der Auflösung von dreidimensionalen nichttransparenten Objekten

Mit dem Maskenmodell wurden Detektorbilder von sehr dünnen, undurchlässigen Objekten berechnet (Abschnitt 3.2). Man kann auch sagen, es wurde ein idealer Fokus simuliert. Bei einem dreidimensionalen Objekt ist jedoch zu erwarten, dass die Wellenfunktion an den Rändern des Objektes ausschmiert. Dadurch ergibt sich eine Auflösungsbegrenzung, die von der Dicke des Objektes abhängt.

Das genaue Verhalten der Elektronenwelle in der Objektebene ergibt sich nur aus der exakten Darstellung des Elektronenzustandes. Man kann aber näherungsweise die Verschmierung der Elektronenwelle hinter einem simulierten Fokus berechnen, und die Ausschmierung als ein Maß für die Unschärfe bei der Auflösung des dreidimensionalen Stranges annehmen. In Bild 4.8 sind Schnitte durch die Wellenfront hinter einem undurchlässigen, zweidimensionalen Objekt gezeigt. Aufgetragen wurde die Betragsnorm der Wellenfunktion.

Man erkennt, dass bei einer Rekonstruktion in der Objektebene die Kanten des Schattenobjektes bis auf ca. 0.5 nm genau wiedergegeben werden. Diese Auflösungsbeschränkung kommt von der Größe des Detektors (siehe Abschnitt 4.1). Mit zunehmendem Abstand von der Objektebene wird der Objektschatten zunehmend unscharf. In einem Abstand von 2, bzw. 4 nm nimmt die Unschärfe der Kanten auf 0,7, bzw. 1 nm zu.

Diese Rechnung gibt einen Eindruck, in welcher Größenordnung die Elektronenwellenfunktion an den Rändern eines nichttransparenten Objektes ausschmiert. Eine genaue Aussage lässt sich jedoch im Rahmen dieser Simulation nicht treffen. Man kann abschätzen, dass ein 5 nm dickes Objekt eine Ausschmierung hat, die etwa einer Rekonstruktion in einem Abstand vom halben Durchmesser entspricht. Das wären dann 0,7 nm.



Abbildung 4.8: Verschmierung der Wellenfunktion hinter dem Objekt. Abstand zwischen Quelle und Objekt: 200 nm; Elektronenenergie: 40 eV; Objektdurchmesser: 5 nm.

4.10 Magnetfelder

Auf der langen Distanz zwischen Quelle un Detektorschirm können die Elektronen durch statische und wechselnde Magnetfelder abgelenkt werden. Für kleine Ablenkungswinkel α gilt [36]:

$$\alpha \approx \frac{LeB}{mv},\tag{4.1}$$

mit L dem Detektorabstand und B einem senkrecht zur Elektronenbahn stehenden Magnetfeld. Die Geschwindigkeit eines Elektronenwellenpaketes mit einer Energie von 40 eV ist $3, 7 \cdot 10^6$ m/s. Ein Elektron braucht daher für die Strecke von der Quelle zum Detektorschirm nur $2, 7 \cdot 10^{-8}$ Sekunden. Für die Flugbahn eines einzelnen Elektrons wirken daher die in einem Laborraum typischerweise auftretenden Wechselfelder wie statische Felder. Die üblichen Magnetfelder im Laborbereich bestehen aus einem statischen Feld von ca. 0,6 G und einem Wechselfeld von ca. 5 mG [37]. Nach obiger Formel ergibt das Erdmagnetfeld eine Ablenkung von ca. 1 cm auf dem Detektorschirm.

Streubilder, die ohne magnetische Abschirmung aufgenommen wurden, zeigen typische Artefakte [38][37]: man erkennt bereits bei einem großen Abstand zwischen Spitze und Objektträger ein verzerrtes Projektionsbild des Objektträgers. Störende Wechselfelder würden die Elektronen in unterschiedliche Richtungen ablenken und daher das Interferenzbild verschmieren. Dies würde zu einer größeren räumlichen Inkohärenz führen.

Das Projektions-Elektronenmikroskop, das im Rahmen dieser Arbeit konstruiert wurde, hat in der Messkammer eine Mumetallabschirmung [39]. Messungen des statischen Magnetfeldes in der Kammer haben gezeigt, dass dieses Feld unter der messbaren Grenze von 1 mG lag. Eine spürbare Beeinflussung der Interferenzbilder durch Magnetfelder kann daher nicht erwartet werden, da sich aus dieser Magnetfeldgröße ein Ablenkungswinkel α von 0,02° ergibt, also eine Strahlablenkung von 20 μ m auf dem Detektorschirm. Die Auflösung aufgrund des Pixelformates der CCD-Kamera beträgt im Vergleich dazu 70 μ m.

4.11 Zusammenfassung

Es gibt aufladungsbegrenzende Faktoren, die durch die Eigenschaften der Elektronenquelle bedingt sind. Der Öffnungswinkel der Elektronenemission und die Energieunschärfe ergeben zusammen eine Aussschmierung der Rekonstruktion eines Punktstreuers auf eine Halbwertsbreite von 5,7 Å. Zudem kann die Auflösung noch durch die laterale Kohärenzlänge beeinflusst sein. Diese Größe kann man aus der Reichweite des Interferenzmusters der experimentellen Bilder abschätzen.

Weitere Faktoren entstehen durch das Objekt selbst, wie elektrostatische Felder an der Oberfläche des Objektes und die Ausschmierung der Elektronenwellenfunktion and den Objekträndern.

Die örtliche Inkohärenz wird von Elektronenquelle und Objekt gemeinsam verursacht. Daher kann anhand eines einzelnen Bildes die physikalische Ursache für diesen Einfluss nicht ermittelt werden.

Schließlich wirkt sich auch der Rekonstruktionsalgorithmus auflösungsbegrenzend aus. Der Hologrammbeitrag kann von einem experimentellen Bild nicht vollständig von den anderen Beiträgen getrennt werden (Abschnitt 3.4). Eine Abschätzung dieses Einflusses muss daher durch eine Simulation der jeweiligen Objektgeometrie abgeschätzt werden.

5 Der Einfluss elektrostatischer Felder an der Objektoberfläche

Das Objekt kann während der Messung von einem elektrostatischen Feld umgeben sein, wenn es keinen ladungsneutralen Zustand hat. Ist der Objekstrang nicht schon von sich aus geladen, können auch Ionisationsprozesse des einfallenden Elektronenstrahls zu einer Aufladung führen. In diesen Fällen bildet sich aufgrund der Objektladung eine Potenzialdifferenz zwischen dem Objekt und dem geerdeten Objektträger aus.

Andere Effekte können bei leitfähigen Proben auftreten. Dort kann es aufgrund unterschiedlicher Austrittsarbeit zwischen Objekt und Probenhalter zu elektrostatischen Feldern kommen. Darüberhinaus können die Feldlinien nahe einer leitfähigen Oberfläche verbogen werden. Beides führt dann zu Feldern, obwohl die Ferminiveaus von Objekt und Probenhalter gleich sind. Näher wird darauf in Kapitel 9 eingegangen.

Diese elektrostatischen Felder bewirken, dass die Elektronenwelle nicht mehr eine scharf begrenzte Wechselwirkungszone hat, die der Objektgeometrie entspricht (Abbildung 2.3). Man erwartet daher eine Beeinträchtigung der Fokuseigenschaften der Rekonstruktionen.

Um die Auswirkungen eines elektrostatischen Feldes auf das Interferenzmuster genau zu simulieren, müsste man die Schrödingergleichung des Elektrons in diesem weitreichenden Potenzial lösen. Näherungsweise kann man jedoch den Potenzialeinfluss auch durch eine quasiklassische Näherung berechnen, die in den folgenden Abschnitten dargelegt wird.

5.1 Die quasiklassische Näherung

Für den Fall, dass sich ein Elektron mit hoher kinetischer Energie in einem Potenzial bewegt das sich im Vergleich zu seiner Wellenlänge nur schwach ändert, kann man den Potenzialeinfluss im Rahmen der *quasiklassischen Näherung* (oder auch WKB-Näherung) darstellen. Es muss dabei folgende Bedingung erfüllt sein [40]:

$$p^{3}(\boldsymbol{r}) \gg \hbar m_{e} |\boldsymbol{\nabla} U(\boldsymbol{r})|$$
(5.1)

Nehmen wir an, dass in der Umgebung eines aufgeladenen Objekts mit einer homogenen Oberflächenladung näherungsweise das Potenzial eines Zylinderkondensators mit einem inneren Radius r_i und einem äußeren Radius r_a herrscht, so ergibt sich für den Potenzialverlauf:

$$V(\boldsymbol{r}) = V_b \frac{\ln(r/r_a)}{\ln(r_i/r_a)} \quad r_i \le r \le r_a$$
(5.2)

$$V(\boldsymbol{r}) = 0 \qquad r_a < r. \tag{5.3}$$

Nun setzt man für die Wellenfunktion an:

$$\psi(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r}) \exp[ikS(\mathbf{r})]. \tag{5.4}$$

Dieser Ansatz wird nun in die zeitunabhängige Schrödingergleichung eingesetzt:

$$\frac{-\hbar^2}{2m_e}\boldsymbol{\nabla}^2\psi = (E - V(\boldsymbol{r}))\psi.$$

Erfüllt das Elektron die Bedingung 5.1, so ergibt die Lösung einen Ausdruck für die Funktion $S(\mathbf{r}, E)$:

$$S(\boldsymbol{r}, E) = l - \frac{1}{2E} \int_{l} V(\boldsymbol{r}) dl.$$
(5.5)

Die Integration wird dabei entlang der klassischen Bahn des Elektrons ausgeführt (dl muss parallel zu Impulsvektor p(r) stehen). Wenn V(r) = 0 ist, nimmt A(r) in Gleichung 5.4 den Betrag der freien Wellenfunktion $|\psi_0(r)|$ an. Daher ergibt sich für Gleichung 5.4 folgender Ausdruck:

$$\psi(\mathbf{r}) = |\psi_0| \exp\left\{ik\left[l - \frac{1}{2E}\int_l V(\mathbf{r})dl\right]\right\}.$$
(5.6)

Durch das Potenzial erfährt also die Wellenfunktion in erster Näherung eine Phasenverschiebung, oder "Verbiegung" der Wellenfront (die Fläche, auf der $\psi(\mathbf{r})$ die gleiche Phase hat) (Abbildung 5.1). Die Form der Verbiegung hängt davon ab, welches Vorzeichen die Felder haben. Die Amplitude, und damit die Dichte der Aufenthaltswahrscheinlichkeit, bleibt im Rahmen dieser Näherung konstant.

5.2 Die Greensfunktion für Objekte mit elektrostatischen Feldern

Man kann die Greensfunktion in Gleichung 2.8 auf den Fall erweitern, dass das Objekt von elektrostatischen Feldern umgeben ist. Dadurch erhält man ein Integraltheorem, das die Detektorintensität aus einem Flächenintegral über die Objektebene berechnet. Verwendet man die Parameter analog zu Abbildung 2.2, so kann man ansetzen [28]:

$$G(P,Q) = \frac{1}{s} \exp\left\{iks\left[1 - \frac{1}{2E}\int_{0}^{1}V_{g}(P + st)dt\right]\right\} - \frac{1}{s'} \exp\left\{iks'\left[1 - \frac{1}{2E}\int_{0}^{1}V_{g}(P' + s't)dt\right]\right\}.$$
(5.7)

Die Funktion V_g ist dabei ein speziell konstruiertes, gespiegeltes Potenzial, für das gilt:

$$V_g(x, y, z) = V(x, y, z) \quad \text{wenn } z \ge 0$$

$$V_g(x, y, z) = V(x, y, -z) \text{ wenn } z < 0,$$

Es lässt sich beweisen, dass diese Funktion die in Abschnitt 2.2.1 aufgeführten Anforderungen für eine Greensfunktion erfüllt [28]. Dadurch kommt man zu folgender Integraldarstellung, die eine Verallgemeinerung der Gleichung 2.9 für den Fall darstellt, dass elektrostatische Felder in den Bereich zwischen Objektebene und Detektor hineinreichen:

$$\psi(P) = -\frac{ik}{2\pi} \iint_{\Omega} \psi(\mathbf{r}) \exp\left\{iks\left[1 - \frac{1}{2E} \int_{0}^{1} V(P + \mathbf{s}t)dt\right]\right\} \frac{\mathbf{s} \cdot \mathbf{n}}{s^{2}} dS_{\Omega}$$

Damit lässt sich nun die Wellenfunktion auf dem Detektorschirm in Abhängigkeit des elektrostatischen Potenziales und der Objektgeometrie berechnen.

5.3 Simulation von Detektorbildern

Klassisch würde man erwarten, dass ein Objekt, das gegenüber dem Objektträger ein positives Potenzial hat, diejenigen Elektronen, die mit dem Objekt wechselwirken, in Richtung Objektachse ablenkt, während Objekte auf negativem Potenzial die Elektronen von der Objektachse ablenken. Im Rahmen der WKB-Näherung ergibt sich eine Änderung der Phase $S(\mathbf{r})$ der Wellenfunktion je nach Vorzeichen des Potenzials. Die Wellenfronten der Wellenfunktion werden daher durch den Potenzialeinfluss verbogen (Abbildung 5.1).



Abbildung 5.1: Die Verzerrung der Wellenfronten der einfallenden Welle bei Wechselwirkung mit elektrostatischen Feldern.

Undurchlässige Objektstränge erzeugen auf dem Detektorschirm ein typisches Interferenzmuster, das in der Mitte eine Abnahme der Intensität aufweist (siehe Abschnitt 3.2). Im Falle eines negativen Objektpotenzials erwartet man eine Ausweitung des Intensitätsminimums, bei einem positiven eine Abnahme des Minimums. Genau das lässt sich auch durch



Abbildung 5.2: Ein Vergleich von Schirmbildern bei verschiedenen Objekten.

Simulationen nachvollziehen. Abbildung 5.2 zeigt einen Vergleich von simulierten Interferenzmustern von Objekten auf verschiedenem Potenzial. Die Schnitte wurden aus den Detektorbildern senkrecht zur Objektachse genommen. Der Objektabstand betrug 200 nm, der Durchmesser 5 nm. Die Kurven zeigen das erwartete Verhalten bei der Ausprägung des Intensitätsminimums in Abhängigkeit vom Objektpotenzial.

5.4 Einfluss auf die Objektrekonstruktion

Will man experimentelle Detektorbilder nun interpretieren, so ist es wichtig zu wissen, welchen Einfluss langreichweitige elektrostatische Felder auf die Rekonstruktion haben. Da in diesem Falle die Elektronen mit einem weit auslaufenden, nicht scharf begrenzten Potenzial wechselwirken, erscheint dieser Wechselwirkungsbereich in der Rekonstruktion nicht als Fokus.

Ein weiterer Effekt beschränkt die Aussagefähigkeit der Rekonstruktion. Der Algorithmus berechnet lediglich die Wellenausbreitung im Vakuum. Elektrostatische Felder beeinflussen jedoch die Elektronenwelle noch in einem Bereich hinter dem Objekt (Abbildung 5.3). Dies





führt dazu, dass die Rekonstruktion nicht mehr diejenigen Werte ergibt, wie sie in den Rekonstruktionsgleichungen in den Abschnitten 2.2.2 bis 2.2.6 hergeleitet wurden. Das elektrostatische Feld verhindert also, dass man mit der Berechnung der Wellenfunktion im Vakuum bis zur Objektebene rekonstruieren kann.

Abbildung 5.4 zeigt den Vergleich zwischen den Rekonstruktionen eines simulierten ungeladenen und eines negativ geladenen Stranges. Man erkennt an den Kurven, dass die Rekonstruktion des geladenen Objektes nicht mehr die ursprüngliche Fokuscharakteristik aufweist.



Abbildung 5.4: Simulierte Veränderung der Auflösung bei einem nichttransparenten Objekt mit 2 nm Durchmesser.

Außerdem ist die Auflösung beträchtlich verschlechtert. Abbildung 5.5 vergleicht das Fokusverhalten der zwei Simulationen. Während der Objektabstand des ungeladenen Objektes sich eindeutig rekonstruieren lässt, ist dies beim geladenen Objekt nicht mehr der Fall. Man würde eher den Fokusabstand bei 130 nm vermuten. Diese Verschiebung der Fokusebene lässt sich damit erklären, dass der Krümmungsradius der Wellenfront der einfallenden Welle verkleinert wird (wie in Abbildung 5.1 unten gezeigt). Dadurch wird die Wellenfront der einfallende Elektronenwelle mehr "ausgebeult". Dies hat auf die Rekonstruktion die Wirkung eines geringeren Objektabstandes.

Es ist daher zur zuverlässigen Interpretation der experimentellen Bilder erforderlich, den Fall einer elektrostatischen Aufladung des Objektes erkennen zu können. Wenn man den Objektabstand und den Objektdurchmesser kennt, oder aus einer ersten Rekonstruktion abschätzen kann, dann ist es möglich, das Detektorbild mit einer Simulation zu vergleichen. Findet man deutliche Abweichungen zwischen den berechneten und den experimentellen Bildern, kann man versuchen, durch die näherungsweise Einbeziehung von elektrostatischer Aufladung mit den in den vorherigen Abschnitten beschriebenen Methoden eine bessere Übereinstimmung zu finden. Dies ist der Weg der bei der Analyse der Daten dieser Arbeit beschritten wurde.



Abbildung 5.5: Simulierter Vergleich des Fokusverhaltens eines ungeladenen (oben) und eines geladenen Stranges (unten).

6 Konstruktion eines Projektions-Elektronenmikroskopes

6.1 Leitprinzipien bei der Konstruktion

Um mit einer Feldemitterspitze als Elektronenquelle ohne störende Entladungen arbeiten zu können, ist es nötig, das Experiment bei niedrigem Umgebungsdruck auszuführen. Dadurch wird auch eine Kontamination der Spitzenoberfläche verhindert, die zu unerwünschten Änderungen der Emissionseigenschaften führen können. Es musste daher eine Apparatur entwickelt werden, die Messungen im Ultrahochvakuumdruck von $\sim 10^{-10}$ mbar ermöglicht.

Die Konstruktion des Mikroskops sollte den Einfluss der auflösungsbegrenzenden Faktoren so weit wie möglich reduzieren. Besondere Vorkehrungen wurden daher für die Abschirmung des Mikroskopes von den Vibrationen der Umgebung getroffen. Die Wolframspitze sollte gekühlt und geheizt werden können, damit eine möglichst genaue Präparation und Charakterisierung der Elektronenquelle durch FIM und Feldverdampfung erreicht werden kann. Der Einbau eines großen Elektronendetektors mit einem Durchmesser von 75 mm (Spezialanfertigung der Firma Burle Electronics) ermöglicht es, das gesamte Streubild selbst bei einem hohen Vergrößerungsfaktor aufzunehmen.

Die entwickelte Apparatur soll es schließlich ermöglichen, systematisch verschiedene Einflussfaktoren auf den Abbildungsprozess zu untersuchen. Es müssen also Messserien in kurzer Zeit mit möglichst geringen Änderungen anderer apparativer Einflussfaktoren abgewickelt werden können. Daher wurde die Apparatur mit einem Transfersystem ausgestattet, das Ein- und Ausschleusprozesse von Emissionsspitzen und Proben ermöglicht, ohne die Vakuumkammer belüften und erneut ausheizen zu müssen. In einer zusätzlichen UHV-Magazinkammer können bis zu fünf Spitzen- oder Probenträger gelagert werden.

6.2 Die Konzeption der Vakuumtechnik

Abb. 6.1 zeigt die Gesamtansicht der Vakuumapparatur. Sie besteht aus zwei Kammerbereichen, die durch ein Drehschieberventil voneinander getrennt sind. Der Bereich aus Schleusenkammer und Transferkammer wird im Einschleusprozess belüftet, um das zu schleusende Modul in den UHV-Bereich einzubringen. Das Hauptkammersystem, bestehend aus Messkammer und Magazinkammer bleiben ständig unter Ultrahochvakuum. Eine kleine Turbomolekularpumpe mit einem Saugvermögen von 20 l/s dient dazu, beim Einschleusen den



Abbildung 6.1: Gesamtansicht der Anlage. Die Betonplatte ist 1,70 m lang, die Kammer ist 1,50 m hoch.

belüfteten Kammerbereich schnell abzupumpen. Nach einer Dauer von $10 \min$ erreicht man dort bereits einen Druck von 10^{-6} mbar. Dann kann das Ventil zwischen Magazinkammer und Schleusenkammer geöffnet werden, um mit der Transfermechanik das zu schleusende Modul von der Schleusenkammer in die Magazinkammer, oder direkt in die Messkammer zu bringen. Es dauert nur etwa 3 min, bis nach dem Schließen des Schleusventiles in der Hauptkammer wieder der normale Basisdruck erreicht ist.

Gepumpt wird die Hauptkammer von einer Ionenzerstäuberpumpe mit einem Saugvermögen von 270 l/sec, sowie einer Turbomolekularpumpe mit einem Saugvermögen von 340 l/sec. Die Turbomolekularpumpe wird benötigt, um die hohen Edelgaspartialdrücke während der Spitzenpräparation halten und abpumpen zu können. Ionenzerstäuberpumpen sind zum Pumpen von Edelgasen nur äußerst beschränkt einsatzfähig.

Die Rotationen des Turbomolekularpumpenrotors erzeugen Vibrationen, die während einer Messung nicht mehr tolerierbar wären. Deshalb wurde über der Pumpe ein Drehschieberventil angebracht, dass während der Messung geschlossen werden kann. Die Pumpe kann dann ausgeschaltet werden. Die Saugleistungen von Ionenzerstäuberpumpe und Titansublimationspumpe reichen aus, um den Hauptkammerdruck im Messprozess bei $2 - 3 \cdot 10^{-10}$ mbar zu halten.

6.2.1 Das Trägersystem

Mikropositioniersysteme (Abschnitt 6.4) wie Probenhalter sind auf gleichartigen Trägern montiert, die dann beide von der Transfermechanik aufgenommen und im Hauptkammerbereich abgelegt werden können. Die Verriegelung in den Garagenplätzen in der Hauptkammer findet dabei durch einen Bajonettmechanismus statt, der durch eine Drehbewegung gesteuert wird. Der Transferarm muss daher bei diesem System nur Linearschub- und Drehbewegungen übertragen können. Abbildung 6.2 zeigt ein Mikropositioniersystem, das auf einem Trägersystem geschraubt und an die Transferstange angedockt ist.



Abbildung 6.2: Ein Mikropositioniersystem, angedockt an die Transferstange.

Die Schleusanlage wurde so konstruiert, dass die gesamten Mikropositioniereinheiten in die Hauptkammer ein-, bzw. ausgeschleust werden können. Ein Messvorgang muss also bei einem Versagen der Annäherungsmechanik nicht durch ein Belüften der gesamten Vakuumanlage unterbrochen werden. Die Proben können im Hochvakuum gehalten werden, bis der Mikropositionierer repariert oder ausgetauscht ist.

6.2.2 Die Schleusenkammer

Die Schleusenkammer hat einen Deckel, der nach Belüften des Schleusenbereiches geöffnet werden kann. An der Innenseite des Deckels ist ein Trägerbügel montiert, der das zu schleusende Modul aufnehmen kann. Nach dem Anpumpen kann es von der Mechanik der Transferkammer aus dieser Position aufgenommen werden. Die Module müssen vor dem Einbringen in die Hauptkammer mindestens für 24 Stunden ausgeheizt werden. Dazu wird um den Deckelflansch ein Heizband gelegt. Die Wärme wird dann über den Trägerbügel direkt auf das einzuschleusende Modul geleitet.

6.2.3 Die Transferkammer

Diese Vakuumkammer beinhaltet die Mechanik, die den Transport zwischen den Kammern ausführt. Die Bajonettmechanik des Trägersystems erfordert für die Transfervorgänge einen Linear- und Rotationsmechanismus. Die Linearbewegung wird von einer Drehdurchführung über Zahnräder auf eine Zahnstange übertragen, die auf die Transferstange angeschraubt ist. Auf der Transferstange ist eine rotierbar gelagerte Vierkantstange montiert, die eine Rotationsbewegung an den Kopf der Transferstange überträgt. Ein Getriebe im Inneren der Transferkammer überträgt die Rotationsbewegung von einer Drehdurchführung über zwei Kegelräder auf die Vierkantstange. Ein Transfervorgang dauert vom Zeitpunkt des Erreichens des Schleusenvakuums ab nur ca. 30 sec.

6.2.4 Das Magazin für Proben und Emissionsspitzen

In der Magazinkammer befinden sich fünf übereinander angeordnete Garagenplätze, in denen die Mikropositioniersysteme und Probenhalter im UHV-Bereich gelagert werden können. Eine Mechanik ermöglicht es, durch eine Drehdurchführung am Deckelflansch alle Garagenplätze gleichzeitig in Vertikaler Richtung verschieben zu können. Jeder Garagenplatz kann dadurch in eine Position geschoben werden, sodass er durch die Transferstange angesteuert werden kann. Muss die Transferstange bis zur Messkammer durchgeschoben werden, so können die Garagenplätze in ihrer Position soweit nach unten gebracht werden, dass die Transferstange ohne Behinderung durch die Magazinkammer durchfahren kann.

6.3 Aufbau der Messkammer

In diesem Kammerbereich findet die Präparation der Emitterspitzen und die Messungen statt. Für Mikropositioniersystem und Probenhalter steht daher jeweils ein Garagenplatz bereit, der von der Transferkammer angesteuert werden kann. Im Kopfteil der Kammer ist die Microchannelplate angebracht (Abbildung 6.3). Sie ist auf eine Trägerplatte geschraubt, die wiederum an Gewindestangen aufgehängt ist, um den Abstand zwischen Probe und Detektorplatte variieren zu können. Das Detektorbild kann dann von einer an der Labordecke montierten Kamera durch einen Fensterflansch aufgenommen werden.



Abbildung 6.3: Querschnitt durch die Messkammer.

6.3.1 Schwingungsdämpfung des Systems

Das UHV-Kammersystem wird von den Vibrationen des umgebenden Laborraums dadurch isoliert, dass die gesamte Apparatur auf eine Betonplatte montiert ist, die wiederum auf pneumatischen Schwingungsdämpfern ruht. Die pneumatischen Dämpfer haben eine Eigenresonanzfrequenz von 1.5 Hz. Eine Betonplatte hat im Vergleich zu einem Stahlgerüst höhere Eigenresonanzen und höhere Dämpfungsfaktoren. Sie verhindert daher, dass das gesamte System wie ein großer Resonanzkörper wirkt, und dämpft die Schwingungen der UHV-Kammer zusätzlich ab. Eine zweite Stufe der Schwingungsdämpfung soll innerhalb der Hauptkammer das Messsystem aus Spitze und Probe vor den Vibrationen der UHV-Metallkammer isolieren. Im Inneren der Hauptkammer wurde daher ein Stapel aus neun Edelstahlplatten eingebaut, die gegenseitig durch Vitonringe isoliert sind (Abbildung 6.4). Es gibt theoretische Berechnungen, die nachweisen, dass ein solcher Stapel Schwingungen ab einem Frequenzbereich von ca. 80 Hz abdämpft [41]. Für die Spitzen- und Probenträgermodule stehen auf der obersten Edelstahlplatte jeweils ein Garagenplatz bereit. Der Plattenstapel ist so konstruiert, dass er von einer Drehdurchführung um seine vertikale Achse rotiert werden kann. Dadurch kann jeder der zwei Garagenplätze in eine Stellung gebracht werden, in der er von der Transferstange angesteuert werden kann.

Locker aufeinanderliegende Platten wären jedoch bei einem Transfervorgang von Proben oder Spitzen sehr hinderlich, da beim Einfahren in die Garagenplätze die darunterliegenden Platten verrutschen könnten. Der Stapel wurde daher in seinem Inneren mit einer Klemmmechanik ausgestattet. In denjenigen Positionen, in denen die Spitzen- oder Probengarage in Transferposition ist, wird der Stapel festgeklemmt. In der sogenannten "Messposition" wird dann der Stapel von der Pressfeder entkoppelt. Durch das Lösen der Klemmung hebt sich der Plattenstapel durch die Relaxation des Vitons um eine Höhe von ca. 2 mm.



Abbildung 6.4: Der Stapel aus Metallplatten im Inneren der Messkammer.

Im Inneren des Stapels befindet sich ein Kühlfinger, der durch den Mikropositionierer hindurch an den Spitzenhalter herangeführt werden kann. Dadurch kann die Spitze gekühlt werden, um während der Präparation und Charakterisierung der Spitze durch Feldionenmikroskopie und Feldverdampfung ein genügend stabiles Detektorbild zu erhalten (Abschnitt 7.3) In Bild 6.4 ist der Kühlfinger versenkt im Zentrum des Stapels zu erkennen.

6.3.2 Der Mechanismus der Probenübergabe

Nachdem die Spitze im Mikrospositionierer durch Feldverdampfung und FIM in eine atomar definierte Struktur gebracht wurde, kann die Probe auf den Mikropositionierer aufgebracht werden. Dies geschieht gekoppelt mit dem Einführen des Probenhalterträgers in seinen Garagenplatz. Die Probe wird dabei vom Probenhalter auf den Mikropositionierer gekippt. Den Vorgang veranschaulicht Abbildung 6.5.



Schritt1









Abbildung 6.5: Mechanismus der Probenübergabe vom Probenhalter auf das Mikropositioniersystem.



Abbildung 6.6: Der Mikropositionierer. Unten mit Titankappe im Messprozess.

6.4 Das Mikropositioniersystem

6.4.1 Aufbau und Funktionsweise

Zur Positionierung der Spitze nahe an die Probe musste ein UHV-kompatibles 3-Achsen-Mikropositioniersystem konstruiert werden (Abbildung 6.6). Ist die Spitze noch weit von der Probe entfernt, muss sie mit Geschwindigkeiten von ca. 1mm/sec bewegt werden können, um eine Annäherung innerhalb kurzer Zeit zu ermöglichen. Ist die Elektronenquelle sehr nahe am Objekt (während einer Messung ca. 200 nm), so ist es nötig, die Spitze mit sehr langsamen Geschwindigkeiten von weniger als einem Nanometer pro Sekunde bis zu einer günstigen Messposition zu bewegen. Um störende Schwingungen zwischen Spitze und Probe zu minimieren, musste ein System entwickelt werden, dessen Eigenschwingungsfrequenzen möglichst hoch liegen. Dies wurde dadurch realisiert, dass die beweglichen Teile möglichst klein und damit leicht konstruiert wurden. Bei harmonischen Federn ist bekanntlich die Resonanzfrequenz umgekehrt proportional zur Wurzel der Masse: $\omega = \sqrt{D/m}$, wobei D die Federkonstante ist. Die Federkonstante lässt sich nicht beliebig leicht einstellen, sie muss so eingeregelt werden, dass das Positionierungssystem im Vakuum nicht steckenbleibt. Daher musste die Eigenfrequenz dadurch erhöht werden, dass die beweglichen Teile möglichst klein und aus Titan konstruiert wurden.

Der Bewegungsmechanismus

Der Positionierer ist nach als Inertial-Slider-System gebaut [42]. Ein ähnlich konstruiertes Vorgängermodell wurde für STM-Messungen an Luft entwickelt [43]. Als Laufflächen der Gleitlager dienen Saphirstäbe, die auf Scherpiezokristalle geklebt wurden. Wird eine Sägezahnspannung an die Scherpiezokristalle angelegt, so bewegen sich die Saphirstäbe während eines Zyklusses zunächst langsam entlang ihrer Achse und sodann ruckartig wieder zurück. Bei dieser schnellen Rückwärtsbewegung ist die Trägheitskraft des auf den Saphirflächen gleitenden Titantstückes größer als die Reibungskraft der Kontaktoberfläche. Die Saphirstäbe rutschen durch. Durch Erhöhung der Frequenz und der angelegten Spannung (maximal +/- 100V) kann die Geschwindigkeit geregelt werden.

Ein bedeutender Vorteil dieser Konstruktion ist, dass sie keinen zusätzlichen Piezokristall benötigt, um eine Feinannäherung im Nanometerbereich durchzuführen. Ist man sehr nahe an der Probe, so kann durch Regelung der Spannung an den Scherpiezokristallen die Spitze über einen Weg von ± 50 nm verfahren werden. Die Siliziummembranen, die als Objektträger dienen haben im Vergleich dazu eine Schlitzbreite von 100 nm (Abschnitt 6.4.2). Man kann also die Elektronenquelle über die gesamte Breite des Trägerschlitzes feinpositionieren. Der Einbau eines zusätzlichen Scanpiezokristalles hätte die Konstruktion größer und schwerer gemacht und damit die Anregungsfrequenzen des Systems gesenkt.

Ein weiterer Vorteil dieser Bauweise liegt darin, dass man den Spitzenhalter von einem im Plattenstapel befindlichen Kühlfinger kontaktieren kann. Dieser Kühlfinger ist in Abbildung 6.4 in der Mitte des Plattenstapels zu sehen. Durch eine vertikale Bewegung des Kühlfingers durch den Mikropositionierer hindurch kann man einen Kühlkontakt zum Spitzenhalter herstellen. Zusätzlich ermöglicht der Kühlfinger durch seitlich angebrachte Kontaktfedern auch einen elektrischen Kontakt. Über ihn kann die Spitze durch den ohmschen Widerstand der Wolframdrahtschlaufe auf Glühtemperaturen geheizt werden.

Aufbau des Spitzenhalters

Der Spitzenhalter (Abbildung 6.7) ist im Inneren des Mikropositionierers eingebaut und wird von ihm vor das Objekt positioniert. Die Wolframspitze ist mit einer Schlaufe aus Wolframdraht durch eine Punktschweißung verbunden. Diese Schlaufe besteht aus 0,1 mm dickem Wolframdraht und dient dazu, den Spitzendraht durch Widerstandsheizen auf Temperaturen von 1500 K bringen zu können. Am Boden ist der Halter kugelförmig ausgefräst, um von der Saphirkugel des Kühlfingers kontaktiert zu werden.



Abbildung 6.7: Eine Querschnittzeichnung durch den Spitzenhalter des Mikropositionierers

6.4.2 Metallisierte Siliziummembranen als Probensubstrat

In der klassischen Elektronenmikroskopie ist die Verwendung von Trägernetzchen aus Kupfer, Nickel oder Gold weit verbreitet. Diese Objektträger sind jedoch für das Projektions-Elektronenmikroskop nicht gut geeignet, da sie meist sehr "große" Lochbreiten von 1-10 μ m aufweisen. Die beim Verdampfen des Lösungsmittels auftretenden Kapillarkräfte würden bei solchen Lochgrößen dazu führen, dass die dünneren Objektstränge alle zerreißen würden, und nur noch sehr dicke Stränge für die Messung zur Verfügung stünden. Überdies ist zu erwarten, dass ein Objekt, das einen großen Spalt gespannt ist, auch eine größere Unschärfe aufgrund von Objektbewegungen erzeugt. Es gibt Kohlenstofffolien, die Lochgrößen im Submikrometerbereich haben [44]. Sie wurden auf ihre experimentelle Eignung getestet. Es hat sich jedoch gezeigt, dass die Interferenzbilder immer noch deutlich von Objektschwingungen beeinflusst sind.

Durch den Einsatz von metallisierten Siliziummembranen konnten viele der aufgezählten Probleme verringert oder beseitigt werden. Diese Membranen werden in einem kombinierten Verfaheren aus reaktivem Ionenätzen und hochauflösender Elektronenstrahllithographie hergestellt [45][46]. Diese Membranen stellen ein relativ steifes Probenhaltermaterial dar, das in seiner Schwingungsstabilität bisher von keinen anderen Probenträgern übertroffen werden konnte. Ein weiterer Vorteil dieses Probenträgermaterials liegt darin, dass die Spaltbreite relativ klein ist (100 nm). Die Dicke beträgt ebenfalls ungefähr 100 nm.



Abbildung 6.8: REM-Aufnahmen von metallisierten Siliziummembranen.

Eine genau definierte Spaltbreite hat den großen Vorteil, dass der Vergrößerungsfaktor und damit der Abstand zwischen Objekt und Elektronenquelle anhand eines gemessenen Detektorbildes abschätzbar ist. Dadurch konnte in den Messungen, die in Kapitel 6.8 beschrieben sind, gezeigt werden, dass der Rekonstruktionsfokus mit großer Genauigkeit den Objektabstand wiedergibt.

Um die Verzerrung der Elektronenwelle durch Aufladungen an den Siliziumgittern zu verhindern, wurde deren Oberfläche mit einer Gold-Palladium-Schicht versehen. Diese Schichten haben den Vorteil, dass die Körnung wesentlich geringer ist, als bei reinen Goldschichten [47].

Die REM-Aufnahmen von den Siliziumgittern in Abbildung 6.8 zeigen, dass die Breite der Schlitze bis auf wenige Nanometer genau definiert ist. Die Membran hat eine große planare und metallisierte Oberfläche mit kleinen Schlitzen, und bildet damit gegenüber der Emitterspitze eine homogene Anode.
7 Techniken zur Präparation und Charakterisierung von Feldemitterspitzen

7.1 Elektrochemisches Ätzen

Die Präparation der Elektronenquellen beginnt damit, dass ein einkristalliner, [111]-orientierter Wolframdraht, der eine Dicke von $100 \,\mu$ m hat, in wässriger NaOH-Lösung elektrochemisch geätzt wird [48, 49]. Das Resultat ist eine konische Spitzenform, die in einem Schaft mit einem Durchmesser von ca. 100 nm ausläuft (Abbildung 7.1).

Nach dem Entfernen der Spitze aus der Ätzlösung wird sie unter fließendem Alkohol gespült, um Reste der Ätzlösung zu entfernen. Schließlich wird sie an die Wolframdrahtschlaufe des Spitzenhalters durch Punktschweißen fixiert, in den Mikropositionierer eingebaut und schließlich in die Vakuumkammer eingeschleust.

7.2 Ausheilen und Sputtern

Im Vakuumbereich wird die Spitze zunächst für 2-3 Sekunden auf Rotglut (ca. 1000-1500 K) geheizt, um Adsorbate zu entfernen. Die hohe Spitzentemperatur bei diesem Prozess führt dazu, dass sich diejenigen Kristallebenen vergrößern, die eine große Packungsdichte und eine niedrige freie Oberflächenenergie haben. Namentlich sind dies die (110), die (101) und die (011)-Ebene [50]. Die (111)-Ebene verkleinert sich dabei bis auf ein Trimer, und die Spitzenoberfläche bildet eine Pyramidenstruktur aus [51]. Durch diese Prozedur erhöht sich wieder die Elektronen-Emissionsspannung, da sich der Oberflächenradius der Spitze vergrößert.

Man kann nun diesen "globalen Radius" verkleinern, indem man durch Sputtern mit einem Edelgas die Spitze weiter anschärft [52]. Der Ionenbeschuss raut jedoch die Spitzenoberfläche an und beschädigt die kristalline Struktur. Daher wird die Spitze nach dem Sputtern noch einmal vorsichtig für 1 bis 2 Sek. auf leichte Rotglut gebracht. Durch die Präparation und Charakterisierung der Spitze mit Feldverdampfung und Feldionenmikroskopie soll schließlich eine auf atomarer Skala präparierte und charakterisierte Spitzenoberfläche erzeugt werden, die einem halbkugelförmigen Spitzenende entspricht, und bei der die Größe der (111)-Ebene auf ein Trimer reduziert ist.



Abbildung 7.1: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen einer elektrochemisch geätzten Spitze.

7.3 Feldverdampfung und Feldionenmikroskopie

Durch Feldionenmikroskopie (FIM) und Felddesorption können die obersten Lagen der Spitzenoberfläche präpariert und gleichzeitig charakterisiert werden [49]. Zur Erreichung einer atomaren Auflösung ist dabei die Kühlung der Spitze notwendig. Mit dem im Mikroskop eingebauten Kühlfinger kann die Wolframspitze auf ca. 140 K gekühlt werden. Diese Temperatur reicht aus, um mit Helium als Bildgas die obersten Atome der Wolframspitze abzubilden.

Erhöht man die Abbildungsspannung noch weiter, dann erreicht man schließlich die Felddesorptions-Feldstärke von Wolfram (10 V/Å bei T=0 K). Durch schrittweise Desorption der obersten Atomlagen kann dann versucht werden, den obersten Atomcluster soweit zu verkleinern, bis schließlich nur noch das Trimer der (111)-Ebene übrig bleibt [50]. An jedem einzelnen Atom dieses Trimers befindet sich wegen der starken lokalen Krümmung ein besonders großes elektrisches Feld. Daher heben sich bei den Feldionenmikroskopischen Aufnahmen eines solchen Trimers diese Atome von den Leuchtreflexen anderer Atome deutlich ab (Abbildung 7.2). Je kleiner eine Ebene ist, desto mehr heben sich die FIM-Reflexe von denen der anderen Substratatome ab [53]. Man erwartet daher, dass auch während der projektionselektronenmikroskopischen Messung ein Großteil der Elektronen aus diesem Trimer emittiert wird.

Aus dem Vergrößerungsfaktor, der sich aus dem Vergleich zwischen FIM-Detektorbild und der theoretischen Trimerausdehnung gibt, kann man grob den globalen Radius der Wolframspitze abschätzen. Für die Vergrößerung M gilt nämlich [49]:

$$M = \frac{R}{\beta r}.$$

Dabei ist R der Abstand zwischen Spitze und Detektorschirm, r der globale Spitzenradius und β ein Korrekturfaktor, der Werte zwischen 1.5 und 1.8 hat [49]. Die Gitterkonstante des Wolframkristalls beträgt 3,16 Å. Daraus ergibt sich eine Kantenlänge des Trimerdreiecks von 4,47 Å. Aus dem Vergleich zwischen diesem theoretischen Wert und der Länge des Trimerdreiecks auf dem Detektorschirm kann man dann einen Vergrößerungsfaktor von $M = 13 \cdot 10^6$ berechnen.

Daraus folgt schließlich ein globaler Spitzenradius der verwendeten Elektronenquellen von $r \approx 43$ Å...50Å. Die Messungen dieser Arbeit wurden mit Elektronenquellen durchgeführt, die derartigen Trimerkonfigurationen und Spitzenradien hatten.





Abbildung 7.2: Die Präparation eines Trimers durch Felddesorption. In den Bildern (c) und (d) sind die jeweiligen Atomkonfiguraionen der Spitze mit Holzkugeln nachgebildet.

8 Elektronen-Projektionsbilder von DNA-Strängen

8.1 Die Messung und ihre Rekonstruktion

Mit den ersten Messungen, die mit dem Mikroskop durchgeführt wurden, sollten die Auflösungseigenschaften untersucht werden. Hier bot sich das DNA als Objektmolekül an. Die DNA-Stränge sind lang genug, um den Objektträgerschlitz von 100 nm Breite zu überbrücken. Sollte die Aufnahme eines einzelnen Stranges gelingen, so läge der Durchmesser (20 Å) und die Periodizität entlang des Stranges (34 Å) im Bereich einer erwünschten Auflösung.

Die Objektmoleküle waren Kalbsthymus-DNA-Stränge¹. Sie wurden in Natriumperchloratlösung gelöst und anschließend verdünnt. Ein Tropfen dieser verdünnten Lösung wurde auf die Siliziummembran aufgebracht und die überschüssige Flüssigkeit nach ca. 1-2 Minuten mit einem Papiertuch abgesaugt.

STM-Aufnahmen von DNA-Doppelsträngen unter UHV-Bedingungen wurden schon publiziert [54]. Im Hochvakuum lassen sich die typischen Struktureigenschaften des Moleküls ohne Denaturierung abbilden [55]. In den Spalten der Siliziummembran kann es beim Trocknungsprozess jedoch zu Kapillarkräften kommen. Dies kann dazu führen, dass sich isolierte Moleküle zu komplexen Objektsträngen zusammendrängen, und dass sehr dünne Stränge unter der mechanischen Belastung reißen. Daher kann nicht mit Sicherheit davon ausgegangen werden, dass die zu beobachtenden Objektstränge tatsächlich einzelne DNA-Doppelstränge sind.

Bei der Annäherung lassen sich Objekte erkennen, die strangförmig die Schlitze überspannen, und andere, die sich über den Spalten gabeln (Abbildung 8.1).

Abbildung 8.2 zeigt die Aufnahme eines DNA Objekts. Die Elektronen hatten eine Energie von 40 eV. Links und rechts des Stranges sind die Schatten des Objektträgers zu erkennen.

Aus der Breite des Schattens des Siliziummembranspaltes lässt sich aus Bild 8.2 der Abstand zwischen Elektronenquelle und Objekt abschätzen: Aus dem Abfall der Intensität an den Rändern, der dem eines Fresnelmusters gleicht, kann man eine geometrische Schattenbreite von 47 mm auf dem Schirm abschätzen. Da der Schirm 10 cm von der Spitze entfernt ist, und die Spaltbreite der Siliziummembran 100 nm beträgt, folgt daraus ein Abstand zwischen Spitze und Probe von 210nm ($\pm 10\%$).

¹Calf thymus Deoxyribonucleic acid Sodium Salt, D1501, Sigma.



Abbildung 8.1: Ein DNA-Objekt, das sich über einem Spalt gabelt.



Abbildung 8.2: Die Elektronen-Projektionsaufnahme eines DNA Objekts. Elektronenenergie: 40 eV



Abstand: 140 nm





Abstand 200 nm



Abstand 230 nm

Abstand 260 nm

Abbildung 8.3: Rekonstruktionen des Interferenzbildes 8.2 bei verschiedenen Objektabständen.



Abbildung 8.4: Schnitte durch die Rekonstruktionen des DNA-Interferenzbildes bei verschiedenen Abständen.

Abbildung 8.3 vergleicht Rekonstruktionsbilder bei verschiedenen Abständen. Dasjenige Bild, das die Breite des Objektträgerschlitzes am besten wiedergibt, ist das Bild mit einem Abstand von 200 nm.

Es soll nun untersucht werden, ob das gemessene Bild eine Fokuseigenschaft aufweist, und ob dieser Fokus im Bereich des abgeschätzten Objektabstandes liegt. Dazu wurden Rekonstruktionsbilder bei verschiedenen Abständen berechnet, und der Schnitt quer zur Molekülachse extrahiert. In Abbildung 8.4 sind diese Schnitte von verschiedenen Objektabständen als Kurven aufgetragen. Die Rekonstruktionen im Abstand von 180 bis 210 nm weisen leicht steilere Flanken auf, als die anderen Kurven. Die Form der Kurve ähnelt stark der von simulierten nichttransparenten Objektsträngen (Abschnitt 3.3, Abbildung 3.10).



Abbildung 8.5: Rekonstruktionen bei größeren Abständen zeigen die zunehmende Auflösung des Fokus.

In Abschnitt 2.2.7 wurde theoretisch begründet, dass der wahrscheinlichste Objektfokus derjenige ist, der zuerst auftritt, wenn man bei verschiedenen Abständen vom Detektorschirm zur Elektronenquelle hin rekonstruiert. Abbildung 8.5 zeigt, dass zwischen dem Fokus bei 200 nm und dem Detektor kein weiterer Fokus mehr entsteht. In Abbildung 8.6 sind die Rekonstruktionen bei kürzeren Abständen aufgezeigt. Bei 90 nm deutet sich ein weiterer Fokus an. Ein Bild bei diesem Abstand gibt aber die Spaltbreite der Siliziummembran viel zu schmal wieder. Daher ist dieser Objektabstand unrealistisch. Dies ist ein virtueller Fokus, der aus der Überlagerung des Hologrammterms, des Twin-Image-Terms und des Selbstinterferenzterms kommt.



Abbildung 8.6: Rekonstruktionen bei kürzeren Abständen zeigen die Entwicklung zum Fokus hin.



Abbildung 8.7: Schnitte durch die Rekonstruktionen nach Hintergrundabzug bei verschiedenen Objektabständen.

Deutlicher sichtbar wird der Objektfokus, wenn man mit den Methoden, die in Kapitel 3.4 vorgestellt wurden, den Beitrag aus Quellterm und Selbstinterferenz weitgehend entfernt. Die Abbildungen 8.7 zeigen die Schnitte nach abgezogenem Hintergrund. Man sieht wiederum den Fokusbereich bei 180 bis 210 nm Objektabstand.

Aus den Schnittkurven kann man den Durchmesser des Rekonstruktionsobjekts ablesen. Er variiert zwischen 5,5 und 8 nm. Es soll am Schluss dieses Kapitels diskutiert werden, inwieweit dieser Rekonstruktionsdurchmesser eine zuverlässige Aussage über den wahren Objektdurchmesser darstellt. Abbildung 8.8 zeigt die Rekonstruktion des Bildes nach Invertierung und Anwendung eines Highpass-Filters. Der helle Bereich gibt das Objekt wieder.



Abbildung 8.8: Die Rekonstruktion des Bildes 8.2 nach Invertierung und Anwendung eines Highpass-Filter. die Kantenlänge des Bildes entspricht einer Länge von 1000 Å.

8.2 Simulation des gemessenen DNA-Stranges

In diesem Abschnitt soll nun dargelegt werden, wie gut sich das im Experiment aufgenommene Interferenzbild durch einen nichttransparentes Fokusobjekt simulieren lässt.

Die schwarze Kurve in Abbildung 8.10 zeigt einen Schnitt durch das experimentell aufgenommene Detektorbild 8.2. In roter Farbe dargestellt ist die dazugehörige Simulation eines nichttransparenten Objektes, das einen Durchmesser von 7 nm hat und sich in einem Abstand von 200 nm von der Elektronenquelle befindet. Der Vergleich dieser zweier Kurven zeigt, dass diese Simulation das experimentelle Bild nur unzureichend wiedergeben kann. Insbesondere ist die Absenkung der Intensität in der Mitte des Interferenzmusters deutlicher ausgeprägt und die Interferenzmaxima weisen andere Positionen auf. Daher wurde untersucht, ob durch Einbeziehung elektrostatischer Felder an die den Objektstrang umgeben, eine bessere Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment zu erreichen ist. Wie in Kapitel 5 dargestellt, ergeben sich bei der Modellierung des Potenzials eines Zylinderkondensators folgende Parameter: der innere Radius r_i , der äußere Radius r_a , sowie die Potenzialdifferenz ΔU . Durch systematische Variierung dieser drei Parameter wurde nun versucht, ein Interferenzbild zu simulieren, das mit dem experimentellen Detektorbild eine bessere Übereinstimmung hat. Das Ergebnis dieser Rechnung ist die grüne Kurve in Abbildung 8.10.

In dieser Simulation wurde ein positives elektrostatisches Potenzial von 0,2 eV gegenüber der geerdeten Siliziummembran verwendet. Die Reichweite betrug 35 nm. Schließlich wurde ein Anteil inelastisch gestreuter Elektronen von 20% eingerechnet.

Mit diesen Parametern lässt sich auch abschätzen, ob die Annahme der quasiklassischen Näherung in diesem Falle gültig ist. Setzt man die Werte für die maximale Potenzialänderung in Gleichung 5.1 ein, so erhält man folgende Werte:

$$\begin{split} \hbar m_e |\nabla U| &= 5, 3 \cdot 10^{-76} \, \frac{\mathrm{kg}^3 \cdot \mathrm{m}^3}{\mathrm{s}^3} \\ p^3 &= 3, 6 \cdot 10^{-71} \, \frac{\mathrm{kg}^3 \cdot \mathrm{m}^3}{\mathrm{s}^3}. \end{split}$$

Die Bedingung $p^3 \gg \hbar m_e |\nabla U|$ ist also erfüllt. Daher ist die quasiklassische Näherung anwendbar.

Man sieht bei einem Vergleich zwischen dieser Kurve und dem Verlauf des Detektorbildes, dass die Einbeziehung eines elektrostatischen Feldes zu einer besseren Übereinstimmung führt. Der Verlauf im Zentrum des Interferenzmusters ist annähernd gleich. Die Abnahme der Intensität ist nicht so ausgeprägt, wie bei der Kurve des ungeladenen Objektes. Überdies stimmen die Positionen der ersten Interferenzmaxima annähernd überein.

Um nun zu prüfen, ob die in der Simulation verwendeten Parameter physikalisch sinnvoll sind, kann man die Ladung des Objektstranges abschätzen. Über den Gaußschen Satz kann man die Potenzialifferenz um einen Zylinder mit homogener Oberflächenladung herleiten:

$$U(r) = \frac{Q}{2\pi l\epsilon_0} \ln \frac{r_i}{r_a}.$$

l bezeichnet dabei die Länge des Stranges, Q die Gesamtladung. r_i ist der Radius des Zylinders, r_a der Radius der (zylinderförmigen) Gegenelektrode. Eine Abschätzung mit diesem Modell ergibt eine Ladung des Objektstranges von 3 Elementarladungen. Da die metallisierte Siliziummembran in ihrer Geometrie stark von der eines Zylinders abweicht, werden die Feldlinien nur in der Mitte des Objektstranges und nahe der Objektoberfläche näherungsweise eine radiale Symmetrie haben. Daher kann dieses Ergebnis nicht als zuverlässig betrachtet werden. Dennoch ist die berechnete Ladung in ihrer Größenordnung ein physikalisch sinnvolles Ergebnis, und zeigt, dass die in den Simulationsrechnungen verwandte Potenzialdifferenz durchaus realistisch ist.

Leitfähigkeitsmessungen an DNA-Strängen haben ergeben, dass eine DNA-Doppelhelix entlang ihrer Achse bei niedrigen Spannungsdifferenzen ein Isolator ist. An 40 nm langen DNA-Strängen wurden Spannungen bis zu 10 V angelegt, und dabei Widerstände von mehr als 10 T Ω gemessen [56]. Dies würde eine Aufladung des Objektes im Elektronenstrahl der Quelle erklären können. Es ist allerdings auch denkbar, dass der Strang bereits in geladenem Zustand auf der Oberfläche adsorbiert. Ein reiner DNA-Strang hat pro Basenpaar zwei negativ geladene Phosphatgruppen. Diese Molekülladung kann allerdings durch Anlagerung von Ionen aus der Lösung wiederum kompensiert werden. So ist über den genauen Ladungszustand des Moleküles nach der Adsorption nichts bekannt.

Verbleibende Unterschiede zwischen Simulation und Messung können auf folgende Einflüsse zurückgeführt werden:

- Das in der Simulationsrechnung verwandte rotationssymmetrische Potenzial, das die elektrostatischen Felder beschreibt, entspricht nicht genau der wirklichen Potenzialgeometrie. Die Geometrie des leitfähigen Probenhalterschlitzes wird zu starken Abweichungen von diesem Potenzial führen. Nur in der Mitte des Stranges wird nahe der Objektoberfläche annähernd ein rotationssymmetrisches Potenzial herrschen.
- Das Objekt ist dreidimensional, simuliert wurde aber nur ein nichttransparentes verschwindend dünnes Objekt (Abschnitt 4.9).
- Die Aufladung des Objektstranges kann während der Belichtungszeit von 100 ms fluktuieren.
- Der Objektstrang weist nicht an allen Stellen die gleiche Dicke auf. Dies ist am Rekonstruktionsbild 8.8 zu erkennen.

Die Anzahl der verwendeten Parameter, sowie die Abweichung der realen Geometrie von der simulierten, lässt keine quantitative Aussage über den Ladungszustand des Objektes zu. Man kann jedoch mit diesen Rechnungen zeigen, dass sich die experimentellen Bilder nur dann simulieren lassen, wenn man eine weitreichende Verzerrung der Wellenfront in einem Bereich von 70 nm Durchmesser in den Rechnungen berücksichtigt.

Man könnte einwenden, dass eine Phasenverschiebung der Wellenfunktion auch durch das beschleunigende Feld der Elektronenquelle verursacht sein kann. Die dadurch verursachte Störung an der einfallenden Elektronenwelle wäre aber dann nicht mehr symmetrisch zur Objektachse, sondern rotationssymmetrisch zur optischen Achse. Mit Simulationen, die rotationssymmetrische Phasenverschiebungen beinhalten konnten jedoch keine vernünftige Anpassung an die Messung erreicht werden.

Nun stellt sich die Frage, inwieweit eine Objektladung die Rekonstruktionsbilder verfälscht. Dazu wurden die Simulationen von geladenen und ungeladenen Objekten rekonstruiert und miteinander verglichen. Bild 8.11 zeigt eine Gegenüberstellung von Schnitten durch die Rekonstruktionen. Es zeigt, dass sich der Fokus um 20 nm verschoben hat. Außerdem ist der Rekonstruktionsfokus des geladenen Objektes leicht verschwommen. Der Objektdurchmesser wird jedoch nicht merklich verändert; er ist nur durch die Verschmierung nicht mehr mit gleicher Präzision zu bestimmen.

Diese Rechnungen zeigen, dass bei den simulatorisch ermittelten Parametern die Objektgeometrien in den Rekonstruktionen nicht drastisch verzerrt werden. Dem entspricht auch die Beobachtung, dass die Interferenzbilder sowie deren Rekonstruktionen keine systematische



(a) Simulation: geladener Strang



(b) gemessenes Interferenzbild



(c) Simulation: ungeladener Strang

Abbildung 8.9: Vergleich des gemessenen Interferenzbildes mit den Simulationen eines Objektstranges auf Objektträger, bzw. eines Stranges, der im Vergleich zum Objektträger auf positivem liegt.



Abbildung 8.10: Ein Vergleich von Schnitten durch die Detektorbilder des gemessenen Stranges mit Simulationen auf der Grundlage eines geladenen und ungeladenen Objektstranges.



Abbildung 8.11: Die Rekonstruktionsschnitte des simulierten Objektstranges bei verschiedenen Rekonstruktionsabständen. (a) Der ungeladene Strang. (b) Der geladene Strang.

Änderungen in Abhängigkeit von der lateralen Quellenposition aufweisen. Ein weiterer Hinweis auf einen schwachen Einfluss der Felder auf das Rekonstruktionsbild ergibt sich aus dem Vergleich von Bildern aus verschiedenen Abständen der Elektronenquelle (Abschnitt 8.4). Eine Elektronenquelle, die eine Probe aus einer doppelt so großen Entfernung bestrahlt, wirkt auf das Objekt mit einem Viertel der ursprünglichen Intensität ein. Dennoch ergeben sich keine signifikanten Unterschiede in den Objektrekonstruktionen.

8.3 Reproduzierbarkeit des Messprozesses

Streubilder, die zu verschiedenen Zeitpunkten vom gleichen Objekt aufgenommen wurden, sollten bei idealen Abbildungsverhältnissen auch in der Rekonstruktion die gleichen Objektstrukturen wiedergeben. Ein Vergleich von Bildern solcher Serien ist ein Maß für die Zuverlässigkeit der Rekonstruktionen.

Bild Nr.	Bestrahlungszeit [min.]	Energie [eV]	Objektabstand [nm] (aus Re- konstruktion)		
1	0	40	200		
2	2	41	190		
3	6	38	180		
4	8	42	170		

Tabelle 8.1: Abbildungsparameter der Interferenzbilder in Abbildung 8.12.

Die Serie in Abbildung 8.12 zeigt verschiedene Aufnahmen vom gleichen DNA-Strang. Den Interferenzbildern mit der Bezeichnung (a) sind ihre entsprechenden Rekonstruktionen mit der Bezeichnung (b) gegenübergestellt. Zwischen den jeweiligen Aufnahmen wurde die Elektronenquelle durch horizontale Bewegung in eine andere Position bewegt. Die Bilder entstanden über einen Zeitraum von 8 Minuten. Die Elektronenquelle hatte bei jedem Bild eine andere Position. Die Abbildungsenergien blieben nahezu gleich. Sie lagen zwischen 40 und 42 eV. Während des gesamten Aufnahmezeitraums blieb die Spitze auf Emissionsspannung. Das Objekt war daher dauernder Bestrahlung ausgesetzt. Das Rekonstruktionsbild wurde am Abstand des schärfsten Fokus berechnet. Wie in Tabelle 8.1 zu sehen ist, schwanken die aus den Rekonstruktionsbildern ermittelten Abstände lediglich um 30 nm. Die Sequenz in Abbildung 8.13 zeigt die gleichen Rekonstruktionsbilder, nachdem die niederfrequenten Anteile der Elektronenquelle durch einen Hochpass herausgefiltert wurden, und das resultierende Bild invertiert wurde.

Es gibt zwei deutliche Strukturmerkmale, die in allen Bildern erkennbar sind. In der Sequenz 8.13 sind sie mit "Kerbe" und "Wölbung" markiert. Alle Bilder geben gemeinsam die Verbreiterung der Objektstruktur an beiden Rändern wieder. Eine Überlagerung der Objektgeometrien aller Bilder ist in Abbildung 8.14 gezeigt.

Diese gemeinsamen Strukturmerkmale treten auf obwohl die Elektronenquelle bei jedem Bild eine andere Position hatte. Die verschiedenen Teile des Objekts wurden dabei jeweils verschieden stark bestrahlt. Beim Bild Nr. 2 befand sich zum Beispiel die Elektronenquelle



Abbildung 8.12: Detektorbilder (a) und deren Rekonstruktionen (b) von aufeinanderfolgenden Aufnahmen des gleichen Objektes. Die Abbildungsparameter sind in Tabelle 8.1 aufgelistet.



Abbildung 8.13: Die Rekonstruktionen aus der Sequenz in Abbildung 8.12, nachdem der die Anteile der Elektronenquelle und des Selbstinterferenzterms weitgehend extrahiert wurden. Die Kantenlänge eines Bildes entspricht 150 nm. ganz am rechten Rand des Membranspaltes. Trotz der verschiedenen Positionen der Elektronenquelle sind keine systematischen Verzerrungen in den Interferenzbildern und ihren Rekonstruktionen zu erkennen. Beim Experimentieren muss also bei diesen Abständen keine Rücksicht auf die genaue Quellenposition genommen werden.

Der rote Kurvenverlauf in Abbildung 8.14 zeigt den Fehlerbereich, der sich bei der Abschätzung der Objektgrenze aus der Rekonstruktion ergibt. Er kommt also daher, dass auflösungsbegrenzende Faktoren sich auf die Fokusschärfe auswirken. Dieser Fehlerbereich umfasst $\pm 0,7$ nm. Die Abweichungen der einzelnen Rekonstruktionsbilder voneinander liegen innerhalb dieses Fehlerbereiches. Dennoch sind die Abweichungen meist systematisch, d.h. benachbarte Punkte schwanken nicht zufällig, sondern bilden eine gemeinsame Wölbung oder Kerbe. Schließlich fällt auf, dass die Rekonstruktion des Bildes Nummer 4 eine systematisch kleinere Objektausdehnung zeigt wie die anderen Bilder.

Ursache für diese Änderung der Rekonstruktionsbilder im Laufe der Belichtung kann zunächst das Objekt selber sein: es kann seinen Ladungszustand ändern; es kann aber auch eine Strukturänderung durch die Einwirkung des Elektronenstrahles stattgefunden haben. In diesen Fällen erwartet man jedoch eher eine lokale, über die Objektlänge ungleichmäßige Änderung der Objektgeometrie, die abhängig von der lokalen Bestrahlungsintensität ist. Der systematische und entlang des Objektstranges gleichmäßig kleinere Objektdurchmesser des Bildes Nr. 4 lässt sich damit deshalb nicht erklären. Plausibler ist in diesem Fall die Annahme, dass sich die räumliche Kohärenz geändert hat.

8.4 Vergleich von Bildern bei verschiedenen Abständen

Auch Aufnahmen aus größeren Entfernungen weisen die gleichen Fokuseigenschaften auf und geben ähnliche Objektstrukturen wieder. Abbildung 8.15 zeigt eine Aufnahme des gleichen DNA-Stranges aus einer doppelt so großen Entfernung. Die Abbildungsenergie betrug 50 eV. Die Abschätzung des Spitzen-Objekt-Abstandes aus dem Projektionsbild des Siliziumschlitzes ergibt 450 nm \pm 15%. Der Fokusabstand beträgt 410 nm \pm 5%. Daher stimmen auch hier Fokusabstand und Abstand aus der Abschätzung über den Schatten des Schlitzes überein.

Abbildung 8.16 vergleicht die Objektumrisse dieser Aufnahme mit den Aufnahmen aus einem geringeren Abstand von 200 nm im vorherigen Abschnitt. Es ist daraus erkennbar, dass grob die gleiche Objektgeometrie wiedergegeben werden. Feinere Strukturdetails, wie sie die Bilder bei näherem Abstand wiedergeben, sind hier jedoch weit weniger zu erkennen. Außerdem ist der ermittelte Objektumriss systematisch größer.

Das geringere Auftreten kleinerer Strukturdetails lässt auf eine verringerte Auflösung schließen - im Gegensatz zu einer Änderung der Objektstruktur infolge von Elektroneneinstrahlung. Bei Aufnahmen, die bei größeren Abständen gemacht werden, wird das Interferenzbild weniger vergrößert. Daher sind die Interferenzstreifen feiner. Dies kann dazu führen, dass die laterale Auflösung des Detektorsystems nicht mehr ausreicht, die hochfrequenten Anteile des Schirmbildes aufzulösen. Im Abschnitt 4.4 wurde erläutert, dass die Pixelbreite der CCD-Kamera die Auflösungsbegrenzung des Detektorsystems darstellt. Die feinsten noch



Abbildung 8.14: Die Umrisse des Objektstranges aus den Rekonstruktionen der verschiedenen Bilder (oben) und den daraus ermittelten Durchmesser (unten).



Detektorbild

Rekonstruktion





Abbildung 8.16: Die Umrisse des Bildes aus Abbildung 8.15 im Vergleich zu derer der "Nahaufnahmen" aus Abschnitt 8.3.

erkennbaren Interferenzstreifen des Bildes 8.15 haben eine Breite von 3 Bildpixel. Der Elektronendetektor und die CCD-Kamera können also die feinsten Interferenzstreifen nicht mehr auflösen.

8.5 Rückschlüsse auf das Auflösungsvermögen des Mikroskopes

Aus den Bildern von DNA-Strängen wurden Rekonstruktionen erhalten, die an den dünnsten Stellen einen Durchmesser von 5,5 nm haben. Die Rechnungen in Abschnitt 8.2 zeigen, dass die Aufladung des Objektstranges in der simulatorisch ermittelten Rekonstruktion nur eine Ausschmierung der Objektgrenzen von 1 nm Breite bewirkt. Die experimentellen Bilder zeigen eine Verbreiterung der Objektgrenzen von. 1,4 nm (Abbildung 8.14).

Unter der somit begründeten Annahme, dass die Aufladung des Objektes den Objektdurchmesser nicht merkbar verändert, kann man die örtliche Inkohärenz des Mikroskopes abschätzen. Da der Objektstrang mindestens den Durchmesser der DNA-Doppelhelix von 2 nm haben muss, kann man daraus schließen, dass die örtliche Inkohärenz weniger als 3,5 nm beträgt.

Wie in Abschnitt 4.3 beschrieben wurde, lässt sich aus dem Detektorbild eine Abschätzung der lateralen Kohärenzlänge der Quellenelektronen machen. Die Kurve in Abbildung 8.10 zeigt, dass das Interferenzmuster eine Ausdehnung von ca. 30 mm hat. Daraus lässt sich abschätzen, wie groß die Kohärenzlänge derjenigen Elektronen mit der maximalen lateralen Kohärenzlänge des Elektronenstrahles mindestens sein muss. Sie beträgt 15 mm auf dem Detektorschirm. Dies entspricht einem Öffnungswinkel von 8,6°.

8.6 Abhängigkeit der Auflösung von der Objektgröße

Die linke Seite der Abbildung 8.17 zeigt Aufnahmen von Objekten verschiedener Dicke. Sie befanden sich alle ungefähr im gleichen Abstand zur Elektronenquelle. Auf der rechten Seite sind die entsprechenden Simulationen dieser Stränge zu sehen. In diesen Rechnungen wurde in erster Näherung keine Aufladung berücksichtigt. Dennoch geben die Simulationen die grundlegenden Eigenschaften der experimentellen Detektorbilder wieder.

Abbildung 8.18 zeigt die dazugehörigen Rekonstruktionsschnitte bei verschiedenen Objektabständen quer zur Objektachse. Diese Kurven demonstrieren, dass mit zunehmendem Objektdurchmesser der Objektfokus immer undeutlicher wird. Während auf den ersten zwei Bildern der Fokusbereich und der Rekonstruktionsdurchmesser klar zu erkennen sind, ist auf dem rechten Bild der Fokusabstand nicht mehr eindeutig zu bestimmen. Die Simulation in Abbildung 8.17 wurde dadurch berechnet, dass der gleiche Objektabstand wie derjenige der ersten zwei Bilder angenommen wurde, und der Objektdurchmesser aus der Breite des Rekonstruktions-Intensitätsminimums abgeschätzt wurde.

Zunächst ist zu erwarten, dass Objekte, die einen größeren Durchmesser haben, auch eine größere Ausschmierung der Wellenfunktion an den Rändern des Objektes aufweisen (Abschnitt 4.9). Ein weiterer Grund für das Verschwinden des Fokusses ist die Tatsache, dass mit zunehmendem Objektdurchmesser auch der Anteil des Selbstinterferenzterms und Twin-Image-Terms relativ zum Hologrammterm zunimmt. Abbildung 8.19 demonstriert diesen Effekt. Mit zunehmendem Objektdurchmesser verschwindet der Fokuscharakter des Rekonstruktionsbildes (oberes Bild), da Selbstinterferenz- und Twin-Image-Term keinen Fokus im Objektbereich haben. Objekte können also durch ihre Geometrie nicht mehr rekonstruierbar sein, wenn der Hologrammterm nicht mehr einen dominanten Beitrag in der Objektebene hat.

8.7 Zusammenfassung

Die Experimente an den DNA-Objekten haben gezeigt, dass die Rekonstruktionen der Projektionsbilder einen Fokus aufweisen. Dass es sich hierbei um den tatsächlichen Objektfokus handelt, zeigen die Vergleiche von Bildern mit verschiedenen Positionen der Elektronenquelle: stets gibt es eine Übereinstimmung zwischen Abschätzung des Objektabstandes aus der Breite des Schlitzes der Siliziummembran und dem Fokusabstand. Außerdem zeigen Rekonstruktionen der jeweiligen Fokusebenen ähnliche Objektstrukturen.

Erst durch diesen experimentellen Nachweis eines Objektfokusses kann man die Elektronenprojektions-Mikroskopie als eine holographische Abbildungsmethode bezeichnen. Es ist dadurch demonstriert, dass die Detektorbilder eine dreidimensionale Information enthalten. Diese Information kann nur aus dem Hologrammanteil des Streubildes kommen (Abschnitt 2.2.3).

Es konnte weiterhin gezeigt werden, dass sich das Interferenzbild dadurch simulieren lässt, dass man eine zusätzliche Phasenverschiebung der Elektronenwelle durch elektrostatische Felder in einem zylinderförmigen Bereich von 70 nm Durchmesser um das Objekt herum mit einrechnet. Dies ist ein Indiz dafür, dass das Objekt sich in einem elektrisch geladenen Zustand befindet. Durch Rekonstruktionen von simulierten Projektionsbildern konnte



Abbildung 8.17: Vergleich von Aufnahmen von Objekten, die einen unterschiedlichen Durchmesser haben. Objektabstand: 440 nm. Die Elektronenenergien betrugen zwischen 76 und 92 eV.



Abbildung 8.18: Die Rekonstruktionen der Aufnahmen aus Abbildung 8.17.

gezeigt werden, dass die Grenzen des Objektfokusses durch diesen Effekt lediglich ausgeschmiert werden. Eine systematische Veränderung der Objektgeometrie war nicht nachzuweisen. Dies ist ein Indiz dafür, dass die gemessenen Objektgeometrien nur unmerklich von Aufladungseffekten beeinflusst sind. Für diese Tatsache spricht auch die starke Ähnlichkeit von Rekonstruktionsbildern bei verschiedenen Positionen der Elektronenquelle.

Es konnten reproduzierbar Objektstrukturen rekonstruiert werden. Die kleinsten Durchmesser der Rekonstruktionen haben einen Durchmesser von 5,5 nm. Daraus lässt sich schließen, dass die örtliche Inkohärenz kleiner als 3,5 nm sein muss.



Abbildung 8.19: Rekonstruktionen von simulierten Strangobjekten verschiedenen Durchmessers in einem Abstand von 440 nm.

9 Elektronen-Projektionsbilder von Fasern aus Kohlenstoff-Nanotubes

Im vorhergehenden Kapitel hat sich gezeigt, dass es eine bessere Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung gibt, wenn man in den Rechnungen berücksichtigt, dass die einfallende Welle mit elektrostatischen Feldern wechselwirkt, die das Objekt in einem Radius von ca. 35 nm umgeben. Dies war ein Hinweis darauf, dass das Objekt aufgeladen war.

Bei leitfähigen Proben sind Aufladungseffekte weniger zu erwarten. Trotzdem können elektrostatische Felder auftreten, wie weiter unten erläutert wird. A priori ist jedoch über deren Stärke nichts bekannt. Es wurden daher Experimente durchgeführt, um zu untersuchen, ob die Rekonstruktion von leitfähigen Objekten zu sinnvollen Ergebnissen führt.

Die Kohlenstoff-Nanotubes wurden auf TEM-Probenhaltern aufgebracht. Die hohe Stabilität der Nanotubefasern erlaubt es, sie im TEM ohne Kryotechnik abzubilden [57, 58]. Diese TEM-Aufnahmen haben eine Ausschmierung der Objektgrenzen von 0,7 nm. Die Elektronenenergie betrug 300 keV.

Um das Abbildungs- und Rekonstruktionsverhalten des Projektions-Elektronenmikroskops zu untersuchen, wurden die Detektorbilder und ihre Rekonstruktionen mit entsprechenden TEM-Aufnahmen verglichen. In Abbildung 9.1 ist ein Elektronen-Projektionsbild mit dem dazugehörigen TEM-Bild zu sehen. Von den TEM-Aufnahmen lag eine Annäherungssequenz vor, die es ermöglichte, die Elektronenquelle des Projektions-Elektronenmikroskops an die gleiche Stelle zu positionieren. Die Elektronen-Projektionsaufnahme der Gabel erfolgte bei einer Energie von 48 eV. Eine Schnittkurve senkrecht zu den Zweigen A und B des Bildes ist in Abbildung 9.2 wiedergegeben. Es fällt auf, dass die Interferenzmuster die typische Absenkung der Elektronenintensität (siehe z.B. Abbildung 3.4) nicht aufweisen.

Das Strukturdreieck bildet markante Stellen, die sich auf beiden Bildern lokalisieren lassen. Aus der Länge der auf dem TEM-Bild in Abb. 9.1 angegeben Strecke lässt sich durch ein Vergleich mit seinem Elektronen-Projektionsbild der Vergrößerungsfaktor und den Spitze-Probe-Abstand bestimmen. Aus dieser Rechnung ergibt sich eine Vergrößerung von 147.000 und damit einen Abstand zwischen Spitze und Elektronenquelle von 950 nm.

Berechnet man Simulationen von Objektsträngen in dieser Entfernung ohne die Einbeziehung elektrostatischer Felder an der Objektoberfläche, so unterscheiden die Ergebnisse sich deutlich von den experimentellen Aufnahmen. In Abbildung 9.3 ist das berechnete Detektorbild eines solchen Objektstranges gezeigt. Dabei wurde der Objektdurchmesser aus dem TEM-Bild ermittelt. Deutlich ist hier der erwartete Intensitätsabfall in der Mitte des Detektorbildes zu sehen. Dieser Unterschied zu den experimentellen Bildern ist aber ein Hinweis





Abbildung 9.1: Eine Gabel aus Kohlenstoff-Nanotubes. Aufgenommen im TEM (oben) und im Projektions-Elektronenmikroskop.



Abbildung 9.2: Schnitt durch das Detektorbild aus Abbildung 9.1.



Abbildung 9.3: Schnitt durch ein simuliertes Detektorbild.

darauf, dass die Elektronenwelle im Mikroskop mit langreichweitigen elektrostatischen Feldern wechselwirkt. Das Profil des Detektorbildes hat deutliche Ähnlichkeiten mit Biprismen-Bildern eines positiv geladenen Golddrahtes [59][60].

Für das Auftreten elektrostatischer Felder gibt es neben der Aufladung des Objektes zwei weitere Erklärungen:

- 1. Bei einer leitfähigen Oberfläche müssen vom Objekt Feldlinien ausgehen, die sich wegen deren kleinen Krümmung dort verdichten müssen. Das Potenzial fällt daher in der Nähe der Objektoberfläche ab (siehe Abbildung 9.4).
- 2. Sind die Austrittsarbeiten zwischen Objekt und Objektträger verschieden, so bilden sich zwischen Objekt und Objektträger langreichweitige elektrostatische Felder aus (siehe Abbildung 9.5).



Abbildung 9.4: Feldlinien bei einer leitfähigen Probe.



Abbildung 9.5: Unterschiedliche Austrittsarbeiten zwischen Objekt und Objektträger können zu einem elektrostatischen Feld in der Umgebung des Objektes führen.

Der erste Effekt hängt von der Geometrie von Objekt und Objektträger ab. Der zweite Effekt ergibt sich aus der Differenz der Austrittsarbeiten. Die Messung in Abbildung 9.1 entstand auf einer TEM-Kohlenstoffmaske. Die Austrittsarbeiten zwischen Objekt und Objektträger

unterscheiden sich daher nur gering voneinander (4,8 eV für Multiwalled Carbon Nanotubes [61], bzw. 5 eV für Graphit [62]).

9.1 Die Rekonstruktion

Bereits im Abschnitt 5.4 wurde erwähnt, dass ein starkes elektrostatisches Feld den Rekonstruktionsfokus ganz verschwinden lassen kann. Dies liegt daran, dass durch die Felder die Elektronenwelle auch noch im Raum zwischen der Objektebene und dem Detektor eine Wechselwirkung erfährt. Deshalb kann durch eine Rekonstruktion nicht die exakte Form von ψ_{sc} direkt hinter dem Objekt berechnet werden (Abbildung 5.3).



Abbildung 9.6: Die Rekonstruktion des Projektionsbildes aus Abbildung 9.1 bei einem Objektabstand von 950 nm. Die Kantenlänge des Bildes entspricht 200 nm.

In Bild 9.6 ist die Rekonstruktion der Gabel aus Kohlenstofffasern gezeigt. Das Bild lässt keinerlei Objektschatten erkennen. Lediglich ein verschwommener Untergrund gibt die Objektform grob wieder. Rekonstruktionen über einen weiten Bereich um den berechneten Objektabstand lassen keine Fokusebene erkennen. Dies ist in Abbildung 9.7 aufgezeigt. Der Schnitt wurde analog zum Schnitt durch die zwei Zweige in Abbildung 9.2 gelegt.

Aus dem TEM-Bild ergeben sich Objektdurchmesser von $9\pm0,5$ nm und $7,5\pm0,5$ nm für Zweig A, bzw. Zweig B. Die Schnitte in Abbildung 9.7 lassen aber kein Objekt dieses Durchmessers erkennen (Siehe zum Vergleich die DNA-Rekonstruktionen in Abbildung 8.4).

Die Detektorbilder der Kohlenstoff-Nanotube-Fasern zeigen also im Vergleich zu den simulierten Bildern eines nichttransparenten Objektes und den Bildern der DNA-Stränge ein deutlich abweichendes Verhalten. Die Rekonstruktionen ergaben keine holographisch interpretierbaren Bilder oder Schnitte.



Abbildung 9.7: Schnitte durch die Rekonstruktionen von Abbildung 9.1 bei verschiedenen Objektabständen.

9.2 Simulation von Nanotube-Objekten mit langreichweitigen Feldern

Um nun nachzuweisen, dass ein langreichweitiges Feld ein Interferenzmuster, wie in Abbildung 9.1 erzeugt, wurden Detektorbilder von Objektsträngen simuliert, die sich auf positivem Potenzial befinden. Es wurde dabei die quasiklassische Näherung benutzt, wie sie in Abschnitt 5.1 beschrieben wurde. Die Objektdurchmesser wurden dabei aus den TEM-Bildern extrahiert.

Die Kurven in Abbildung 9.8 zeigen, dass die Berechnungen die experimentellen Aufnahmen recht genau wiedergeben. Eine Gegenüberstellung der gemessenen mit den simulierten Parametern zeigt Tabelle 9.1. Die unsymmetrische Form der experimentellen Interferenzkurven können daher kommen, dass die einzelnen Stränge sich nicht nur im eigenen Feld, sondern auch im Feld ihres Nachbarstranges befinden, und dass sich die Interferenzmuster der einzelnen Stränge gegenseitig überlagern. Die in den Rechnungen verwandten Parameter unterscheiden sich nicht nur in ihren Objektdurchmessern. Beide Zweige haben zwar die gleiche Potenzialreichweite, aber leicht unterschiedliche Potenzialdifferenzen. Die Reichweite ist deutlich größer als diejenige, die in den Messungen an DNA-Strängen ermittelt wurde (70 nm). Dies kann auf die unterschiedlichen Geometrie des Probenträgers zurückgeführt werden. Der TEM-Probenhalter hat große Öffnungen im Mikrometerbereich, die Siliziummembranen hingegen nur Schlitzbreiten von 100 nm.

	Zweig A		Zweig B	
Paramter	Messung	Simulation	Messung	Simulation
Höhe des Zentralen Peaks [a.u.]	1±0,1	1	0,8±0,1	0,76
Abstand des Peaks erster Ordnung [mm]	1.58	1.65	2.3	2.5
Abstand des Peaks zweiter Ordnung [mm]	3.2	3.28	4.3	4.6
Durchmesser des Objektes (r_i) [nm]	9±1	9	7±1	7,5
Potenzial des Objektes (V_b) [eV]	-	1,4	-	0,8
Potenzialreichweite (r_a) [nm]	-	250	-	250

Tabelle 9.1: Gegenüberstellung der gemessenen Parameter mit der Simulation.

Man kann an den Daten in Tabelle 9.1 auch erkennen, dass die Felder mit dem Objektdurchmesser variieren. Kleinere Objekte scheinen einen geringeren Abfall aufzuweisen. Es ist daher durchaus möglich, dass bei einzelnen, sehr kleine Kohlenstoffröhren, wie etwa Singlewalled Carbon Nanotubes, die Felder derart gering werden, dass wieder ein Objektfokus rekonstruierbar wird.

9.3 Zusammenfassung

Die Experimente mit Kohlenstoff-Nanotube-Fasern haben gezeigt, dass diese leitfähige Objekte von elektrostatischen Feldern umgeben sind, die eine Analyse der Projektionsbilder durch Anwendung der Rekonstruktions-Integraltransformation unmöglich macht. Durch die



Abbildung 9.8: Numerische Simulationen der beiden Zweige aus Abbildung 9.2.
Rekonstruktion wird lediglich die Ausbreitung des Elektronenzustandes im Vakuum zurückgerechnet. Die starken langreichweitigen Felder verhindern dabei eine Rekonstruktion in dem Bereich direkt hinter dem Objekt. Die Rekonstruktionsbilder bei diesem Abstand geben daher nicht mehr den wahren Elektronenzustand wieder.

Die Interferenzbilder der Kohlenstoff-Nanotubes konnten durch Simulationen von Objekten mit langreichweitigen Feldern in ihren Grundzügen berechnet werden. Dies demonstriert die Anwendbarkeit dieser theoretischen Methode.

10 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde erforscht, inwieweit sich die Projektions-Elektronenmikroskopie zur Auflösung von Objektstrukturen im Nanometerbereich eignet.

Es wurde eine theoretische Beschreibung entwickelt, die einen Algorithmus zur Rekonstruktion der Objekte aus den Detektorbildern ergab. Umgekehrt können damit auch Detektorbilder auf der Grundlage von einfachen Objektmodellen simuliert werden. Durch die Anwendung der Sommerfeldschen Greensfunktion konnte der Rekonstruktionsalgorithmus auf eine Fouriertransformation zurückgeführt werden. Dies wiederum ermöglichte die Entwicklung einer schnellen Rekonstruktions- und Simulationssoftware, die ein Bild innerhalb weniger Sekunden berechnen kann. Zur Analyse der später experimentell aufgenommenen Daten wurde eine objektorientierte Softwarelibrary programmiert.

Mit Hilfe dieser theoretischen und numerischen Grundlagen wurden alle zu erwartenden Einflüsse auf die Auflösung eines Projektions-Elektronenmikroskopes untersucht. Diese Untersuchungen waren die Ausgangsbasis für die Konstruktion eines neuen Mikroskops, das in seiner Ausführung auf eine bestmögliche Auflösung optimiert sein sollte.

Das Projektions-Elektronenmikroskop wurde schließlich als Ultrahochvakuumsystem gebaut. Im Rahmen dieses Projektes wurde ein UHV-tauglicher 3-Achsen-Mikropositioniersystem entwickelt, das schleusbar ist und durch einen Kühlfinger derart kontaktiert werden kann, dass im Hochvakuum eine Präparation und Charakterisierung der Spitze durch Feldionenmikroskopie und Feldverdampfung möglich ist.

Mit der fertiggestellten Apparatur konnten Messungen an DNA-Strängen und Kohlenstoff--Nanotube-Fasern vorgenommen werden, um die Voraussagen des theoretischen Modells zu verifizieren, das Auflösungsvermögen des Mikroskopes zu untersuchen und schließlich die Tauglichkeit verschiedener Proben zu prüfen.

Die Analyse der DNA-Proben ergab den theoretisch erwarteten Rekonstruktionsfokus, der mit den durch das Projektionsbild der Siliziumschlitze abschätzbaren Objektabstand übereinstimmt. Das Auftauchen dieses Fokusses und seine Struktureigenschaften lassen sich durch Aufnahmen aus verschiedenen lateralen und vertikalen Elektronenquellenpositionen reproduzieren. Dadurch wurde der Nachweis erbracht, dass die Detektorbilder eine dreidimensionale Information enthalten, die vom Hologrammanteil des Detektorbildes herkommt. Dies ist ein Nachweis der holographischen Abbildungsmethode.

Rekonstruktionsbilder von gleichen Objekten zeigen gleiche Objektstrukturen. In den Rekonstruktionen konnten keine systematische Verzerrungen der Objektgeometrie in Abhängigkeit von der Position der Elektronenquelle erkannt werden. Dies demonstriert die Zuverlässigkeit der Aufnahmetechnik. Die schmalsten abgebildeten Objektstränge hatten an den dünnsten Stellen einen rekonstruierten Durchmesser von 5,5 nm. Daraus kann geschlossen werden, dass die örtliche Inkohärenz weniger als 3,5 nm betragen muss.

Ein Vergleich von DNA-Bildern mit Simulationen ergab, dass sich eine wesentlich bessere Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung ergibt, wenn man berücksichtigt, dass das Objekt innerhalb eines Radiusses von 35 nm von elektrostatischen Feldern umgeben ist. Eine Rekonstruktion der Simulationen schließlich ergab, dass der Objektdurchmesser in der Rekonstruktion durch Felder dieser Stärke nur unwesentlich beeinflusst wird. Daher können die Aussagen über Objektgeometrie und örtliche Inkohärenz als zuverlässig angesehen werden.

Die Projektionsbilder von Kohlenstoff-Nanotube-Fasern ergaben keine interpretierbaren Rekonstruktionen. Dies kann mit einem zu starken Einfluss elektrostatischer Felder erklärt werden, die von der Leitfähigkeit des Objektes und der unterschiedlichen Austrittsarbeit im Vergleich zum Objektträger herrühren können. Die typischen Veränderungen, die in den Detektorbildern dieser Objekte erscheinen, konnten in Simulationsrechnungen nachvollzogen werden.

Die Analyse der experimentellen Daten hat zusammen mit den Modellvorstellungen ein konsistentes Bild ergeben. Aus den DNA-Detektorbildern konnten reproduzierbar Objektinformationen extrahiert und auflösungsbegrenzende Einflüsse nachvollzogen werden. Damit wurde eine Grundlage geschaffen für weitere Experimente und Entwicklungen, die zu einer verbesserten Auflösung führen.

Ausblick

Durch die Auswertung der Daten konnten die kritischen Einflussfaktoren bestimmt werden, die die Auflösung in erster Linie begrenzen: es ist die räumliche Inkohärenz und die Aufladung des Objekts. Zukünftige Weiterentwicklungen der Apparatur sollten daher diese Faktoren weiterhin minimieren um die Auflösung zu verbessern.

Um eine genauere Aussage über die räumliche Inkohärenz des Mikroskopes treffen zu können, wäre es von Vorteil, Aufnahmen von Objekten zu machen, deren Strukturen a priori bekannt sind. Dies soll in naher Zukunft durch die Präparation von periodischen DNA-Nanostrukturen auf den Siliziummembranen erreicht werden [63, 64].

Experimente mit gepulsten Elektronenstrahlen können eine mögliche Aufladung des Objektes erforschen [65]. Dazu muss eine spezielle Pulselektronik entwickelt werden, da die Platten der Microchannelplate synchron zum Elektronenpuls aktiviert werden müssen.

Kohärente Elektronenquellen sind auch für den Einsatz in konventionellen Elektronenmikroskopen interessant [58]. Die entwickelte Apparatur eignet sich dazu, die Eigenschaften von feldemittierten Elektronenstrahlen zu studieren, da man hier Streuung an sehr kleinen Objekten durchführen kann, deren Struktur bekannt ist. Mit dem Mikroskop lassen sich verschiedene Spitzenpräparationstechniken durchführen und ihre Emissionseigenschaften charakterisieren.

Dadurch kann nachgeprüft werden, ob die sogenannten "ultrascharfen Feldemitter" tatsächlich eine bessere Kohärenz aufweisen, oder ob die Kohärenzeigenschaften einer Feldemitterquelle im wesentlichen durch das beschleunigende Feld, und damit vom globalen Radius bestimmt wird [50, 66].

Die Eigenschaften feldemittierter Elektronenstrahlen sind bis heute nicht mit ausreichender Genauigkeit studiert worden. Diese Apparatur bietet die Möglichkeit, diese Lücke zu schließen.

Liste der Abkürzungen

- FEM Feldemissions-Mikroskopie
- FIM Feldionen-Mikroskopie
- REM Raster-Elektronenmikroskopie
- STM Scanning Tunneling Microscopy (Rastertunnel-Mikroskopie)
- TEM Transmissions-Elektronenmikroskopie
- UHV Ultrahochvakuum

Literaturverzeichnis

- [1] E. Ruska. Rede anlässlich der Verleihung des Nobelpreises. 1986.
- [2] L. De Broglie. Ann. de Physiques, (3):22, 1925.
- [3] D. Gabor. Nature, 161:777, 1948.
- [4] G.A. Morton, E.G. Ramberg. Phys. Rev, 56:705, 1939.
- [5] D. Gabor. Science, 177(4046):299, 1972.
- [6] O. Scherzer. J. Appl. Phys., 20:20, 1949.
- [7] E.M. Slayter, S.S. Slayter. Light and Electron Microscopy. Cambridge, 1992.
- [8] A. Tonomura. *Electron Holography*. Springer, 1999.
- [9] H. Lichte. Proceedings of the 14th Internat. Congress on Electron Microscopy, ICEM14, Cancun (Mexico), (I):557–558, 1998.
- [10] H. Lichte, A. Orchowski, W. D. Rau. Phys. Rev. Lett., 74(3):399, 1995.
- [11] H.-W. Fink, W. Stocker, H. Schmid. Rhys. Rev. Lett., 65:1204, 1990.
- [12] H.J. Kreuzer, K. Nakamura, A. Wierzbicki. *Ultramicroscopy*, 45:381, 1992.
- [13] V.T. Binh, V. Semet, N. Garcia. Ultramicroscopy, 58:307, 1995.
- [14] H.-W. Fink, Heinz Schmid. Phys. Rev. Lett., 67(12):1543, 1991.
- [15] H.-W. Fink, H. Schmid, E. Ermantraut, T. Schulz. J. Opt. Soc. Am. A, (14):2168, 1997.
- [16] M.P. Seah, W.A. Dench. Surface Interface Analysis, 1:2, 1979.
- [17] J.C.H. Spence, W. Quian. J. Vac. Sci. Technol. A, 12(2):542, 1994.
- [18] V.T. Binh, S.T. Purcell. Appl. Surf. Science, 111:157, 1997.
- [19] H. Lichte, B. Freitag. Ultramicroscopy, 81:177, 2000.
- [20] Denis Gabor. Microscopy by reconstructed wave-fronts. *Proc. Roy. Soc. A*, 197:454, 1949.

- [21] Roger G. Newton. *Scattering Theory of Waves and Particles*. Springer Verlag, New York, 1982.
- [22] M. Shegelski, M. Reid, L. Pow. Ultramicroscopy, 83:159, 2000.
- [23] M. Shegelski, M. Whitwick, Holenstein. R. Can. J. Phys., 79:17, 2001.
- [24] D.P. Woodruff, T.A. Delchar. *Modern Techniques of Surface Science*. Cambridge University Press, 1994.
- [25] M.R.A. Shegelski, H.J. Kreuzer, S. Faltus, T. Clark. *Ultramicroscopy*, 74:169, 1998.
- [26] M. Born, E. Wolf. Principles of Optics, 6th ed. Pergamon Press, Oxford, 1980.
- [27] A. Sommerfeld. *Optics*. Academic Press, New York, 1964.
- [28] Jiri Komrska. Adv. in Electronics and Electron Optics, 30:139, 1971.
- [29] LD Landau. Quantenmechanik. Akademie-Verlag, Berlin, 1979.
- [30] J.C.H. Spence. *Optik*, 92:57, 1992.
- [31] R. D. Young. Phys. Rev., (113):110, 1959.
- [32] R. D. Young, E. W. Müller. Phys. Rev., 113:115, 1959.
- [33] H. U. Mueller, B. Voelkel, M. Hofmann, Ch. Woell, M. Grunze. *Ultramicroscopy*, 50:57, 1993.
- [34] N. Ernst, M. Grunze, H.W. Fink. Phys. Rev. Lett., 70(16):2503, 1993.
- [35] L.W. Swanson, L.C. Crouser. Phys. Rev., 163(3):622, 1967.
- [36] Ch. Gehrtsen, H.O. Kneser, H. Vogel. Physik. Springer, Berlin, 16 edition, 1989.
- [37] V.T. Binh, N. Garcia, V. Semet. Appl. Phys. Lett., 65(19):2493, 1994.
- [38] J.C.H. Spence, W. Quian, M.P. Silverman. J. Vac. Sci. Technol. A, 12(2):542, 1994.
- [39] W.G. Waden. Rev. Sci. Instrum., 27(11):910, 1956.
- [40] A.S. Dawydow. Quantenmechanik. VEB, Berlin, 1987.
- [41] M. Schmid, P. Varga. Ultramicroscopy, 42:1610, 1992.
- [42] D.W. Pohl. Rev. Sci. Instrum., 1(58):54, 1987.
- [43] S. Kleindiek, H.S. Kim, E. Kratschmer, T.H.P. Chang. J. Vac. Sci. Technol. B, (13):2653, 1995.
- [44] E. Ermantraut, K. Wohlfart, W. Tichelaar. Ultramicroscopy, 74:75, 1998.
- [45] R. Medenwaldt, M. Hettwer. Journal of X-Ray Science and Technology, 5(2):202, 1995.

- [46] C. David, D.R. Kayser, H.U. Müller, B. Völkel, M. Grunze. X-Ray- Microscopy and Spectromicroscopy, Kapitel: A New Method for the Manufacture of Large Area Condensor Zone Plates with Small Outermost Zone Widths. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1998.
- [47] W. Geyer. *Strukturierung selbstaggregierender Monolagen mit Elektronen*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2001.
- [48] Matthias Hofmann. Aufbau eines Feldionenmikroskopes und Präparation von einatomaren Spitzen. Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1989.
- [49] E.W. Müller, T.T. Tsong. Field Ions Microscopy, Principles and Applications. Elsevier, New York, 1969.
- [50] H.-W. Fink. IBM J. Res. Develop., 30(5):460, 1986.
- [51] B. Völkel. Präparation und Charakterisierung einatomarer Feldemitter. Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1991.
- [52] A.P. Janssen, J.P. Jones. J. Phys. D, 4:118, 1971.
- [53] G. Ehrlich, W.R. Graham. Surface Sci., 45:530, 1974.
- [54] R.J. Driscoll, J.D. Baldeschwieler, M.G. Youngquist. Nature, 346:294, 1990.
- [55] L. Haggerty, A.M. Lenhoff. Biotechnol. Prog., 9:1, 1993.
- [56] A.J. Storm, J. van Noort, S. de Vries, C. Dekker. Appl. Phys. Lett., 79(23):3881, 2001.
- [57] S. Iijima. Nature, 354:56, 1991.
- [58] L. Reimer. Transmission Electron Microscopy. Springer, 1997.
- [59] R. Morin. Microsc. Microanal. Microstruct., 5:501, 1994.
- [60] G.F. Missiroli, G. Pozzi, U. Valdre. J. Phys. E, 14, 1981.
- [61] A. Sobel. Scientific American, (May 1998):48, 1998.
- [62] J.-P. Dussaulcy. C.R. Acad. Sci. Ser. B, (278):659, 1974.
- [63] B. Jäger. Holographische Abbildung nicht-kristalliner organischer und biologischer Makromoleküle mit Elektronenpunktquellen. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2001.
- [64] C. N. Seeman, C. Mao, S. Weiquiong. J. Am. Chem. Soc., 121:5437, 1999.
- [65] Berthold Völkel. *Ein universelles Instrument zur Anwendung von ultrascharfen Feldemittern*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2001.
- [66] Hans-Werner Fink, Roger Morin. Appl. Phys. Lett, 18(65):2362, 1994.