

Off-axis Holografie im aberrationskorrigierten Transmissionselektronenmikroskop

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

**Doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)**

vorgelegt

**der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Dresden**

von

Dipl.-Phys. Martin Linck

geboren am 08.05.1981 in Wolfen

- 1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Hannes Lichte (TU Dresden)
- 2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Wolfgang Neumann (HU Berlin)

Tag der mündlichen Prüfung: 1. Juli 2010

gewidmet meinen Eltern

Kurzfassung

Die off-axis Elektronenholografie im Transmissionselektronenmikroskop (TEM) erlaubt die quantitative Rekonstruktion der komplexen Objektaustrittswelle mit atomarer Auflösung. Die Auswertung der Phase dieser Welle ermöglicht die Unterscheidung der Atomsorten bzw. das Zählen der Atome in Projektionsrichtung sowie die Bestimmung von Atompositionen. Damit ist ein TEM über die einfache Abbildung hinaus ein sehr leistungsstarkes Messgerät zur quantitativen Analyse kleinster Strukturen bis hin zur atomaren Skala.

Die Prozedur von der Aufnahme eines hochaufgelösten Elektronenhogramms über die Rekonstruktion bis zur bildfehlerkorrigierten Objektwelle ist jedoch sehr umfangreich und teils sehr anfällig für Artefakte. Diese Arbeit zeigt unter kritischer Betrachtung der einzelnen Einflüsse, wie dieser Weg zu beschreiten ist, um schlussendlich zu einer artefaktfreien, interpretierbaren Objektwelle zu gelangen.

Im letzten Jahrzehnt haben Bildfehler-Korrektoren die höchstauflösende Transmissionselektronenmikroskopie auf instrumenteller Seite revolutioniert. Auch die off-axis Holografie kann eine ganze Reihe von Vorteilen aus diesem elektronenoptischen Zusatzsystem ziehen. Neben der Analyse dieser einzelnen Verbesserungen, insbesondere der Phasensignalauflösung, wird gezeigt, wie es das Cs-korrigierte TEM zu optimieren gilt, um schließlich bestmögliche Ergebnisse für quantitative Objektanalyse zu erzielen.

Zwei Anwendungsbeispiele zeigen experimentelle Ergebnisse der Elektronenholografie mit Cs-korrigierten Mikroskopen. Bei der Analyse ferroelektrischer Nanoschichten erweisen sich die einzigartigen Möglichkeiten der holografischen Auswertung im Zusammenspiel mit der nunmehr hervorragenden Signalauflösung als äußerst nützlich, um die ferroelektrische Polarisierung zu ermitteln. Die Objektwellenrekonstruktion der Korngrenze in einer Goldfolie demonstriert weitere Verbesserungen für die Holografie, wenn zusätzlich eine neuartige Elektronenquelle mit höherem Richtstrahlwert zum Einsatz kommt. Einzelne Goldatome werden mit einem Signal-Rausch-Verhältnis von ca. 10 in Amplitude und Phase messbar.

Abstract

Off-axis electron holography in a transmission electron microscope (TEM) allows reconstructing the complex object exit-wave quantitatively with atomic resolution. Analyzing the phase shift of this wave gives access to the atomic species and enables counting the number of atoms in projection direction as well as determining atom positions. Therefore, a TEM is a very powerful measuring device for quantitative analysis of smallest structures down to the atomic scale beyond simple microscopic imaging.

The procedure of the recording of a high-resolution electron hologram, its reconstruction, and after numerical aberration correction finally ending up with the object-exit wave, is quite comprehensive and partially susceptible to artifacts. This work shows how to manage this procedure in order to obtain an interpretable object exit-wave, which is free of artifacts.

In instrumentation within the last decade aberration correctors have revolutionized high-resolution electron microscopy. Also off-axis holography can benefit from this electron optical add-on module. Besides the exploration of each improvement, in particular the phase detection limit, this work demonstrates, how to optimize the Cs-corrected TEM in order to get best possible results for quantitative object analysis.

Two application examples show experimental results of electron holography with Cs-corrected microscopes. For the investigation of ferroelectric nanolayers, the unique possibilities of the holographic evaluation together with the strongly improved signal resolution turn out to be very useful when determining the ferroelectric polarization. The object wave reconstruction of the grain boundary in a gold film demonstrates further improvements for holography, when additionally using a new electron gun with improved brightness. Single gold atoms become measurable with a signal-noise-ratio of about 10 in amplitude and phase.

Inhalt

Abkürzungen und Symbole	4
1 Einführung	5
2 Die Transmissionselektronenmikroskopie und ihre Grenzen	9
2.1 Aufbau des Transmissionselektronenmikroskops	10
2.2 Objektaustrittswelle und Phasenschiebung.....	11
2.3 Die konventionelle Transmissionselektronenmikroskopie.....	12
2.3.1 Abbildungstheorie und Bildfehler	13
2.3.2 Mikroskopie mit partiell kohärenter Beleuchtung.....	16
2.3.3 Die lineare Näherung und Kontrastübertragungsfunktionen.....	18
2.3.4 Die Messung von Bildfehlern.....	21
2.3.5 Delokalisierung.....	23
2.4 Bildfehlerkorrektur mittels Hardware.....	25
2.4.1 Aufbau und Wirkungsweise des Bildfehlerkorrektivs.....	26
2.4.2 Optimierung von Kontrastübertragung und Delokalisierung	27
2.5 Zusammenfassung	30
3 Die off-axis Elektronenholografie	31
3.1 Die Aufnahme von Elektronenhogrammen	33
3.1.1 Versuchsaufbau.....	33
3.1.2 Partielle Kohärenz	37
3.1.3 Inelastische Wechselwirkung	39
3.1.4 Stabilitätsanforderungen	40
3.1.5 Aufzeichnung mittels CCD-Kamera.....	40
3.2 Die Rekonstruktion der Bildwelle	43
3.3 Objektwellenrekonstruktion: Numerische Bildfehlerkorrektur.....	45
3.4 Signalauflösung	48
3.5 Informationsgehalt eines Elektronenhogramms	51
3.6 Zusammenfassung	52
4 Spezielle Aspekte der off-axis Holografie.....	53
4.1 Partielle räumliche Kohärenz im Hologramm.....	55
4.2 Anisotrope Vergrößerung	60
4.2.1 Charakterisierung der Verzerrung	61
4.2.2 Numerische Korrektur der Verzerrung.....	63

4.2.3	Bildfehlermessung unter anisotroper Vergrößerung	64
4.3	Rauschfilterung	68
4.3.1	Das Wiener-Filter und Wiener-ähnliche Filter	68
4.3.2	Wiener-Filterung der Hologrammintensität	72
4.3.3	Wiener-Filterung der rekonstruierten Welle zur Aberrationsbestimmung..	74
4.3.4	Mittelungsverhalten des Wiener-Filters	77
4.4	Zusammenfassung	78
5	Holografie im Cs-korrigierten Mikroskop.....	81
5.1	Verbesserungen durch den Cs-Korrektor	81
5.1.1	Partielle räumliche Kohärenz	81
5.1.2	Atomare Signale	82
5.1.3	Zwischenbildvergrößerung.....	83
5.1.4	Hologrammbreite und Signalauflösung.....	85
5.1.5	Strahlklippung zur Feinorientierung der Probe	87
5.1.6	Aberrationskorrektur	88
5.2	Optimierung des Tecnai F20 Cs-corr für Holografie	89
5.2.1	Holographische Auflösung und Hologrammbreite	90
5.2.2	Optimierung des aufgezeichneten Informationsgehalts	92
5.2.3	Optimierung der Beleuchtung	93
5.3	Ein neuer Freiheitsgrad: Die sphärische Aberration	100
5.3.1	Objektwellenrekonstruktion aus verrauschten Hologrammen	100
5.3.2	Simulation des Rauschens in der rekonstruierten Objektwelle	102
5.3.3	Begrenzung der Aberrationen	105
5.3.4	Optimierung der Aberrationsparameter.....	106
5.4	Zusammenfassung	111
6	Anwendung 1: Ferroelektrische Nanoschichten.....	113
6.1	Ferroelektrika und deren Eigenschaften.....	113
6.2	Präparation und Geometrie der Probe	115
6.3	Phasenschiebung in Ferroelektrika.....	117
6.4	Aufnahme, Rekonstruktion und Bildfehlerkorrektur	121
6.5	Bestimmung der tetragonalen Verzerrung mittels GPA.....	122
6.6	Bestimmung der Polarisierung aus Atompositionen	125
6.7	Bestimmung der Polarisierung im reziproken Raum	126
6.8	Bestimmung der Polarisierung aus Grenzflächenladungen.....	131
6.9	Zusammenfassung	132

7	Anwendung 2: Korngrenze in Gold	133
7.1	Geometrie der Probe	133
7.2	Aufnahme, Rekonstruktion und Bildfehlerkorrektur.....	135
7.3	Auswertung der rekonstruierten Objektwelle im Ortsraum.....	137
7.4	Nano-Beugung	140
7.5	Einzelreflexrekonstruktion.....	141
7.6	Zusammenfassung	143
8	Resümee und Ausblick	145
	Anhang.....	149
A1	Die kohärente Wellenaberration	149
A2	Intensität mit Transmissionskoeffizient.....	155
A3	Intensität in linearer Näherung	157
A4	Intensität im Zentralband	159
A5	Intensität im Seitenband.....	162
A6	Rauschen im Fourierraum: Rayleigh-Verteilung.....	166
A7	Geometrische Phasenanalyse	168
	Literaturverzeichnis	171

Abkürzungen und Symbole

Koordinaten:

z	optische Achse (positiv in Elektronenflugrichtung)
$\vec{r} = (x, y)$	zweidimensionaler Ortsvektor in der x-y-Ebene
$\vec{g} = (g_x, g_y) = g \cdot (\cos \alpha_g, \sin \alpha_g)$	reziproker Vektor mit Betrag g und Azimut α_g

Konstanten: [STÖCKER (2000)]

$\pi = 3.14159265359$	Kreiszahl Pi
$h = 6.6260755 \cdot 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$	Plancksches Wirkungsquantum
$e = 1.60217733 \cdot 10^{-19} \text{ C}$	Elementarladung
$c = 2.99792458 \cdot 10^8 \text{ m/s}$	Lichtgeschwindigkeit in Vakuum
$m_0 = 9.1093897 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Ruhemasse des Elektrons
$E_0 = 510.99906 \text{ keV}$	Ruheenergie des Elektrons
$\varepsilon_0 = 8.85418791762 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$	Elektrische Feldkonstante

Symbole:

\vec{k}	Wellenzahlvektor
$\lambda = \frac{1}{ \vec{k} }$	Wellenlänge
U_A	Beschleunigungsspannung
U_F	Biprismafadenspannung

Funktionen:

$$FT[\Psi(\vec{r})] = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi(\vec{r}) \cdot \exp\{-2\pi i \vec{g} \vec{r}\} d\vec{r} = \Psi^{FT}(\vec{g}) \quad \text{Fouriertransformation}$$

$$FT^{-1}[\Psi^{FT}(\vec{g})] = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{2\pi i \vec{g} \vec{r}\} d\vec{g} = \Psi(\vec{r}) \quad \text{inverse Fouriertransformation}$$

1 Einführung

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

”Is there no way to make the electron microscope more powerful?” [FEYNMAN (1959)]

„Es wäre sehr einfach, jede komplizierte chemische Substanz zu analysieren; alles, was man tun müsste, wäre sie anzuschauen und zu sehen, wo die Atome sind. Die einzige Schwierigkeit ist, dass das Elektronenmikroskop einhundert mal zu schwach ist.“ ...

„Gibt es nicht einen Weg, das Elektronenmikroskop leistungsfähiger zu machen?“

Fünfzig Jahre nach dieser Formulierung von Richard P. Feynman sind moderne Elektronenmikroskope in der Lage, Atome abzubilden. Die vielseitigen Methoden der Transmissionselektronenmikroskopie erlauben die Auswertung der atomaren Signale in Bezug auf Position und Atomsorte mit hoher Genauigkeit und bieten damit eine Antwort auf die Frage „Which atom is where?“

Es ist gerade diese Frage, die im Zeitalter der Nanotechnologie immer mehr an Bedeutung zunimmt: Die Positionen der Atome im Festkörper bestimmen maßgeblich dessen makroskopischen Eigenschaften. Fremdatome, Fehlstellen im Gitter und die Anordnung der Atome an Grenz- und Oberflächen sind für vielerlei physikalische makroskopische Effekte verantwortlich. Um daraus für zukünftige Technologien Nutzen zu ziehen, benötigt man Materialanalytik mit atomarer Auflösung. Die modernen Methoden der Transmissionselektronenmikroskopie sind dafür hervorragend geeignet und bieten für viele festkörperphysikalische Problemstellungen einen experimentellen Zugang, der den meisten anderen Methoden verwehrt bleibt.

Ein modernes Transmissionselektronenmikroskop (TEM) ist in der Lage, kleinstmögliche Strukturen bis 0.1 nm aufzulösen. Diese Größenordnung umfasst die Abbildung von Gitternetzebenen in Kristallen bis hin zu einzelnen atomaren Abständen; man spricht dabei von Hochauflösung. Die Interpretation der auftretenden Kontraste ist aufgrund des unvermeidlichen Öffnungsfehlers runder Elektronenlinsen jedoch problematisch: Die atomaren Strukturen modulieren die einfallende ebene Elektronenwelle hauptsächlich in der Phase. Diese wird durch die kohärenten Bildfehler nur teilweise in die Bildintensität übertragen. Die aufgezeichneten atomaren Details werden dabei über einen größeren Bereich „delokalisiert“ abgebildet und schränken die Interpretationsfähigkeit von Hochauflösungsaufnahmen deutlich ein. Gleichzeitig begrenzen die kohärenten Bildfehler unter partiell kohärenter Beleuchtung massiv das Auflösungsvermögen des TEMs.

Die seit einigen Jahren mögliche Bildfehlerkorrektur durch elektronenoptische Multipolelemente bietet für die Interpretationsfähigkeit enorme Verbesserungen. Durch die nunmehr nahezu aberrationsfreie Abbildung im Cs-korrigierten TEM können Hochauflösungsaufnahmen sogar bezüglich einzelner Atompositionen ausgewertet werden.

Die vorliegende Arbeit greift die phantastischen neuen Möglichkeiten mittels eines Cs-korrigierten TEMs auf und kombiniert diese mit der Elektronenholographie in atomaren Dimensionen. Jedoch ist hier ein grundlegendes Verständnis der Bildentstehung und Aufzeichnung der Bildintensität insbesondere unter partiell kohärenter Beleuchtung unumgänglich, was umfassend im zweiten Kapitel behandelt wird. Die damit verbundenen Probleme der Kontrastinterpretation und Delokalisierung werden ausführlich diskutiert.

Ein durchstrahlbares Objekt moduliert Amplitude und Phase der beleuchtenden Elektronenwelle. Die Objektphase enthält dabei die „interessantere“ Information über das Objekt. Einerseits resultiert eine Phasenschiebung durch das elektrische Potential des Objekts, andererseits verursachen auch magnetische Felder eine Modulation der Objektphase. Dagegen ist die Objektamplitude zumeist schwieriger zu interpretieren: Inelastische Wechselwirkung, Streuabsorption und Effekte der dynamische Beugung beeinflussen die Amplitude sehr stark. Es gehört jedoch zu den Schwachstellen der konventionellen Transmissionselektronenmikroskopie, dass die Kontrastübertragung großflächiger Phasendetails in die aufgezeichnete Intensität nicht möglich ist. Ein TEM ist demnach „blind“ für großflächigen Phasenkontrast.

Eine Lösung dieser Problematik bietet die off-axis Elektronenholografie. Dabei handelt es sich um ein Interferenzexperiment im TEM, das neben der konventionellen Intensität gleichzeitig Amplitude und Phase der Bildwelle aufzeichnet. Die nach holografischer Rekonstruktion vorliegende komplexe Bildwelle erlaubt eine nachträgliche numerische Korrektur der kohärenten Linsenfehler und führt zur bildfehlerfreien Objektwelle. Die Phase dieser Objektwelle ist frei von der Delokalisierung und den Kontrastübertragungsfunktionen konventioneller Aufnahmen und liefert direkt interpretierbare Informationen sowohl über großflächige elektrische Potentiale und magnetische Felder als auch kleinste Strukturen bis hin zu atomaren Details.

Die Grundlagen der holografischen Aufzeichnung, über die Rekonstruktion von Amplitude und Phase der Bildwelle, bis hin zur numerischen Bildfehlerkorrektur sind Inhalt des dritten Kapitels. Dazu werden systematisch die Grundlagen und Leistungsgrenzen der höchstauflösenden off-axis Elektronenholografie behandelt; die Signalauflösung spielt dabei eine besondere Rolle.

Die Aufnahme und Rekonstruktion eines off-axis Hologramms ist ein komplizierter Prozess, bei dem es eine Vielzahl von Einflüssen zu beachten gilt. Das Biprisma, diverse Linsenfehler, die Aufzeichnung mittels CCD-Kamera und ein begrenztes Signal-Rausch-Verhältnis können zu teils schwerwiegenden Artefakten während der Wiederherstellung der Objektaustrittswelle führen. Es bedarf genauer Kenntnis all

dieser Einflüsse, um bereits zum Zeitpunkt der Aufnahme Artefakte zu vermeiden und während der Rekonstruktion objektfremde Details zu reduzieren. Das vierte Kapitel gibt einen Überblick der auftretenden Artefakte und behandelt mit der partiellen räumlichen Kohärenz am Biprisma und der anisotropen Vergrößerung einige dieser Einflüsse im Detail. Mit dem Wiener-Filter kommt für die off-axis Holografie ein sehr wichtiges Werkzeug zur Reduzierung des Rauschens zum Einsatz. Anhand eines Beispiels werden die Vorteile dieser Methode für Hologrammintensität und rekonstruierte Welle gezeigt.

Sowohl der Cs-Korrektor als auch die off-axis Elektronenholografie sind der Lage, Bildfehler zu korrigieren. Trotzdem ist eine Kombination beider Methoden durchaus sehr sinnvoll. Die zwei Techniken ergänzen sich mit ihren jeweiligen Stärken und bieten gegenseitig Abhilfe bei methodischen Schwächen. Diese Verbesserungen werden im fünften Kapitel vorgestellt. Darüber hinaus zeigt dieses Kapitel, wie es das aberrationskorrigierte TEM und das holografische Setup zu optimieren gilt, um bestmögliche Ergebnisse im Experiment zu erzielen. Dies betrifft auch die Abbildungsbedingungen, unter denen ein höchstauflösendes Elektronenhologramm aufzuzeichnen ist. Eine neue Idee zur Optimierung der Aberrationsparameter bezüglich der lokalen Signalauflösung beschließt dieses Kapitel.

Kapitel sechs und sieben widmen sich zwei Anwendungsbeispielen der off-axis Elektronenholografie im aberrationskorrigierten TEM:

Die Fertigungsindustrie von Massenspeichern ist in ihrer Bestrebung zur Erhöhung der Speicherdichte und Reduzierung der Produktionskosten einem gewaltigen Wettbewerbsdruck ausgesetzt. Neben optischen Datenträgern wie der „Blu-ray“-Disc als Nachfolger der DVD und magnetischen Massenspeichern in Festplatten wird große Hoffnung in nichtflüchtige Speicherkomponenten auf Basis herkömmlicher RAMs (Random Access Memories) gesetzt. In RAMs werden Informationszustände durch das ständige Auffrischen elektrischer Ladungen auf winzigen Kondensatoren gespeichert. Wird der Speicher und damit das Auffrischen abgeschaltet, geht die Information verloren. Abhilfe sollen so genannte NVRAMS (Non-Volatile RAM) schaffen, bei denen unter anderen insbesondere zwei Verfahren konkurrieren: MRAMs (Magnetoresistive RAM) und FeRAMs (Ferroelectric RAM). Während der MRAM die Information in der Magnetisierungsrichtung spezieller magnetischer Schichten ablegt, erfolgt die Speicherung im FeRAM in der Polarisationsrichtung einer ferroelektrischen Schicht. In beiden Fällen geht die Information nach dem Abschalten des Gerätes im Gegensatz zu herkömmlichen RAMs nicht verloren.

Als Hersteller für Massenspeicher forscht auch Fujitsu (Japan) an der FeRAM-Technologie. Durch die Fragestellung, ob die ferroelektrischen Felder in polarisierten Nanoschichten mittels Elektronenholografie detektiert werden können, kam zwischen Fujitsu und dem Triebenberglabor der Technischen Universität Dresden eine Zusammenarbeit zustande.

Die kritische Betrachtung der physikalischen Grundlagen bezüglich ferroelektrischer Polarisation in Festkörpern und den damit verbundenen Abschirmeffekten durch freie Ladungen zeigt, dass die Phasenschiebung solcher Objekte weit schwieriger zu interpretieren ist als bislang angenommen. Diese Grundlagen sowie die holografischen Experimente und deren Ergebnisse sind im sechsten Kapitel zusammengefasst. Es zeigt sich, dass die Möglichkeiten der holografischen Analyse auf diesem Gebiet von großem Nutzen sind.

Die Signalauflösung der holografischen Phase ist durch die Anzahl der detektierten Elektronen je Objektdetail strikt begrenzt. Durch die begrenzte Dosis während der Aufnahmezeit sind rekonstruierte Phasenbilder verrauscht und nur begrenzt interpretierbar. Moderne Feldemissionsquellen mit hohem Richtstrahlwert haben dazu beigetragen, dass die off-axis Elektronenholografie sich methodisch so weit entwickeln konnte. Mit der so genannten „XFEG“ hat die Firma FEI eine neue „high-brightness“-Schottky-Feldemissionsquelle vorgestellt, die den bislang verwendeten Emittoren bezüglich des Richtstrahlwertes um nahezu eine Größenordnung überlegen ist. In Zusammenarbeit mit FEI Europe in Eindhoven und der TU Berlin wurde in einem TEM der neuesten Generation die Leistungsfähigkeit der off-axis Holografie unter Verwendung einer XFEG getestet. Die Hologramme einer Korngrenze in einer Goldfolie erreichen eine für Höchstauflösungshologramme bis dahin nie da gewesene Qualität. Kapitel sieben zeigt diese Experimente und deren Ergebnisse.

Die Arbeit schließt im achten Kapitel mit einer Zusammenfassung ab und wagt einen Ausblick auf die Herausforderungen der nahen Zukunft, die durch die beständige Weiterentwicklung von Elektronenoptik und Aufnahmegeräten eine Vielfalt von Experimenten und Anwendungen in greifbare Nähe rückt.

2 Die Transmissionselektronenmikroskopie und ihre Grenzen

Als Ernst Ruska 1928 am Institut für Elektrotechnik der Technischen Hochschule Berlin seine Diplomarbeit zur Verbesserung des Kathodenstrahloszillographen begann [RUSKA (1930)], war von niemandem zu erahnen, dass seine Arbeit die Untersuchungsmethoden für den Mikro- und Nano-Kosmos revolutionieren würde. Bereits 1926 zeigte Hans Busch die fokussierende Wirkung magnetischer Felder auf Elektronenstrahlen [BUSCH (1926)]. Aufbauend darauf gelang es Ernst Ruska gemeinsam mit Max Knoll und Bodo von Borries in nur wenigen Jahren die zweistufige Abbildung für Elektronenstrahlen mittels magnetischer Elektronenlinsen zu bewerkstelligen [RUSKA (1931), KNOLL (1932)]. Die zunächst geringe 16-fache Gesamtvergrößerung konnte mit der Erfindung des Polschuhs zur Kapselung des Magnetfelds (1933) und den Einsatz zusätzlicher Linsen auf bis zu 12000-fach erhöht werden. Die Auflösung des inzwischen dreistufigen Geräts (Kondensator, Objektiv, Projektiv) überflügelte schon damals leicht die wellenlängenbedingte Auflösungsgrenze von Lichtmikroskopen [VON BORRIES (1933)]. In den folgenden Jahren übertrafen Ruska und von Borries stetig ihre eigenen Auflösungs- und Vergrößerungsrekorde. Schließlich konnte 1939 von Siemens zum ersten Mal ein TEM kommerziell erworben werden. Das Siemens „Übermikroskop ÜM 100“, konnte mit Beschleunigungsspannungen von 40-100 kV betrieben werden und lieferte eine Auflösung von immerhin 25 nm bei 40000-facher Gesamtvergrößerung. Viele Gerätegenerationen später bieten kommerzielle TEMs zum heutigen Tage standardmäßig eine Auflösung bis 0.2 nm bei Beschleunigungsspannungen zwischen 40 und 300 kV. Für seine Arbeiten zur Elektronenmikroskopie wurde Ernst Ruska 1986 gemeinsam mit den Erfindern des Rastertunnelmikroskops, Gerd Binnig und Heinrich Rohrer, mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet.

Im Entwicklungsprozess um das Elektronenmikroskop spielt mit besser werdender Auflösung der Einfluss der Bildfehler eine immer größere Rolle. Während die Wellenlänge von 200 kV-Elektronen lediglich 2.5 pm beträgt, werden bis heute „nur“ Auflösungen erreicht, die zwei Größenordnungen schlechter sind. Für die Lichtoptik zeigte Ernst Abbe um 1870 erstmals, dass sich die sphärische Aberration auflösungsbegrenzend auswirkt. Während sich jedoch die sphärische Aberration in der Lichtoptik durch eine zusätzliche schwache Streulinse verhältnismäßig einfach korrigieren lässt, wies Otto Scherzer 1936 nach, dass für die Elektronenoptik kein solches einfaches Korrektorelement existiert. Das „Scherzer-Theorem“ besagt: Es gibt keine zeitunabhängige, raumladungsfreie, rotationssymmetrische Linsen für Elektronen mit negativer sphärischer Aberration [SCHERZER (1936)]. Jedoch bereits 1947 gab es Überlegungen von Scherzer, die Aberrationen durch Brechung der Rotationssymmetrie mit einer Kombination von elektromagnetischen Quadrupolen und Oktupolen zu korrigieren [SCHERZER (1947)]. Harald Rose konnte in seinen Berechnungen erstmals zeigen, dass solch ein Korrektorelement im Prinzip funktionieren kann [ROSE (1971)]. Es dauerte jedoch nahezu 30 Jahre, bis die Idee der Brechung der Rotationssymmetrie von Max Haider basierend auf einem Konzept von Harald Rose [ROSE (1990)]

verwirklicht werden konnte [HAIDER (1998), ROSE (1998)]. Mittlerweile bieten alle namhaften Hersteller von Elektronenmikroskopen aberrationskorrigierte Geräte an, die eine Auflösung besser als 0.1 nm erreichen. Bei der nächsten Generation korrigierter TEMs wurden bereits Auflösungen um 0.05 nm erreicht [KISIELOWSKI (2008)].

Dieses Kapitel behandelt neben dem Aufbau eines Mikroskops insbesondere die Bildentstehung in TEM und die daraus resultierenden Interpretationsschwierigkeiten durch die Einflüsse der Bildfehler und der partiellen Kohärenz. Der letzte Abschnitt dieses Kapitels widmet sich der aberrationskorrigierten Transmissionselektronenmikroskopie und zeigt deren Vorteile und Grenzen auf.

2.1 Aufbau des Transmissionselektronenmikroskops

Das Gesamtkonzept des TEMs hat sich seit dem ersten kommerziellen Gerät von Siemens (1939) bis zum heutigen Tag kaum verändert, auch wenn moderne Elektronenmikroskope mit einer Vielzahl zusätzlicher Korrektur Elemente, Ablenker, Zusatzlinsen und Detektoren ausgestattet sind. Abbildung 2.1 zeigt den Querschnitt einer TEM-Säule bestehend aus Elektronenquelle und -beschleuniger, Kondensator, Objektiv und Projektiv.

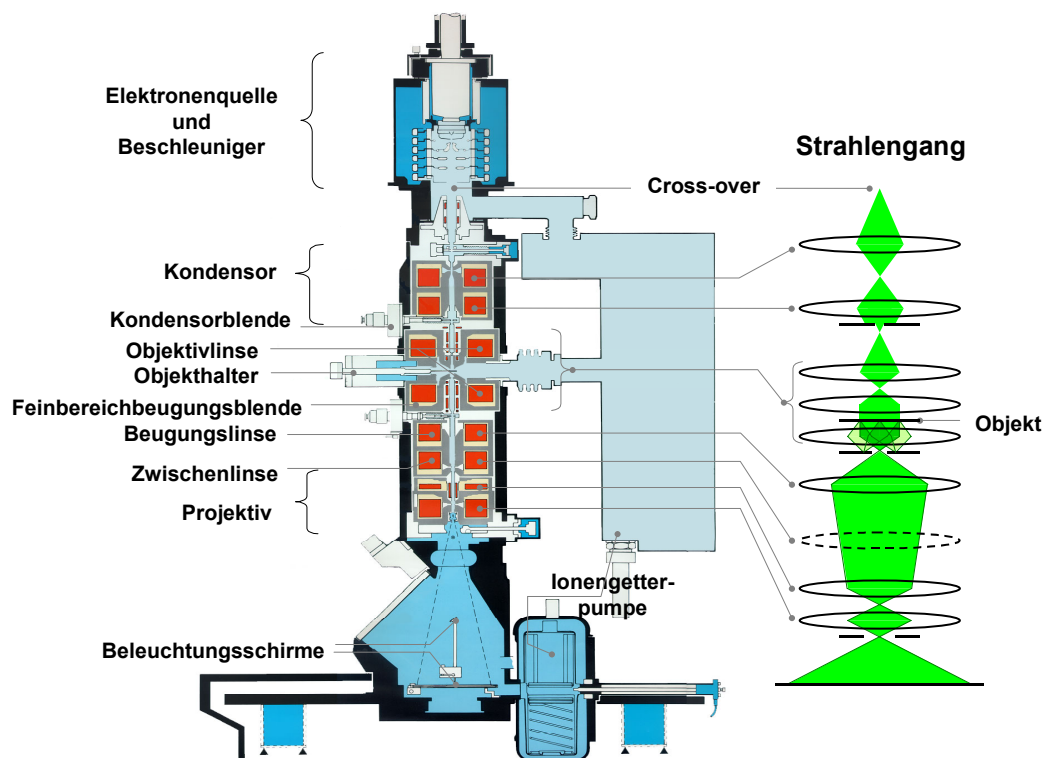


Abbildung 2.1 – Links: Querschnitt durch die Säule eines TEMs. Rechts: Der schematische Strahlengang zeigt die mikroskopische Abbildung des Objekts im Hellfeld. Die vergrößerte Abbildung des Beugungsbildes kann durch eine schwächere Anregung der Beugungslinse realisiert werden.

Als Elektronenquelle kommt zumeist ein Schottky-Feldemitter zum Einsatz, der sich durch einen hohen Richtstrahlwert bei geringer Energiebreite auszeichnet (siehe Abschnitt 2.3.2). Die emittierten Elektronen werden im Beschleuniger auf Energien bis zu 300 keV beschleunigt. In der darunter liegenden Optik formen zwei Elektronenlinsen aus dem beschleunigten Elektronenstrahl eine gleichmäßige Beleuchtung, um das Objekt in der Objektebene zu durchstrahlen. Dazu muss das Objekt speziell präpariert sein. Um atomare Auflösung erzielen zu können, ist eine Objektdicke im Bereich von wenigen Nanometern notwendig. Die Objektivlinse bildet den vom Objekt modulierten Elektronenstrahl in die erste Zwischenbildebene ab, von wo aus das Projektiv-Linsensystem auf dem Leuchtschirm bzw. Detektor (meist eine CCD-Kamera, siehe Abschnitt 3.1.5) ein Bild mit bis zu $4 \cdot 10^6$ -facher Vergrößerung erzeugt. Durch eine reduzierte Anregung der direkt unter dem Objektiv sitzenden Beugungslinse ist es möglich, statt der ersten Zwischenbildebene die hintere Brennebene der Objektivlinse auf den Leuchtschirm abzubilden. Durch eine Vielzahl von Detektoren, Spektrometern und speziellen Probenhaltern ist die Transmissionselektronenmikroskopie eine der vielseitigsten Untersuchungsmethoden für Neuentwicklungen im „Nano-Zeitalter“.

2.2 Objektaustrittswelle und Phasenschiebung

Elektronen besitzen sowohl Teilchen- als auch Wellencharakter: Der Impuls p als Teilcheneigenschaft des Elektrons und die Wellenlänge λ der Elektronenwelle sind über die de-Broglie-Beziehung

$$\lambda = \frac{h}{p} \quad (2.1)$$

miteinander verknüpft; h bezeichnet das Plancksche Wirkungsquantum.

Zur Beschreibung der Objektabbildung für Höchstauflösung ist der Formalismus am Objekt gestreuter Teilchen jedoch ungeeignet. Stattdessen wird auf die Wellenbeschreibung zurückgegriffen, d.h. eine Elektronenwelle wird am Objekt gebeugt.

Den Ausgangspunkt für die Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Objekt und Elektronenwelle in einem magnetfeldfreien Objekt¹ stellt die zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung dar:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - e \cdot V(x, y, z) \right] \Psi(x, y, z) = E \Psi(x, y, z). \quad (2.2)$$

Ψ ist die Wellenfunktion der Elektronen, $V(x, y, z)$ bezeichnet das elektrische Potential des Objekts, e die Elementarladung und $\hbar = h/2\pi$ das durch 2π geteilte Plancksche Wirkungsquantum h . Die relativistische Masse des Elektrons ist durch m gekennzeichnet und E repräsentiert die Gesamtenergie der Elektronen.

¹ In dieser Arbeit werden keine magnetischen Objekte untersucht, daher wird auf die Beschreibung der Elektronen im magnetischen Feld verzichtet.

Trifft eine ebene Elektronenwelle auf ein Objekt, wird diese am elektrischen Potential V der Atome gebeugt. Dies führt zu einer Modulation der ebenen Welle:

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = a(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi(\vec{r})\} \quad (2.3)$$

In einfachster Näherung kann die Amplitude $a(\vec{r})$ der Objektaustrittswelle als Abschwächung durch Absorption und Beugung in große Winkel verstanden werden, während die Phase das projizierte elektrostatische Potential repräsentiert:

$$\begin{aligned} \varphi(x, y) &= \sigma \cdot \int_{z_0}^{z_0+t} V(x, y, z) dz & \text{mit } \sigma &= \frac{2\pi m e \lambda}{h^2} \\ &= \sigma \cdot V_{proj}(x, y) \end{aligned} \quad (2.4)$$

σ bezeichnet die Interaktionskonstante, die von Elektronenmasse m , Elementarladung e sowie Elektronenwellenlänge λ abhängt; die Objektdicke ist durch t gekennzeichnet. Beim Ausdruck (2.4) handelt es sich jedoch um eine Näherung für kleine Streuwinkel, die bei der Interaktion mit dem Atompotential selbst für leichtere Elemente wie z.B. Silizium nicht gut erfüllt wird [ROTHER (2005A)]. Eine genauere Beschreibung erfordert die Berücksichtigung der Propagation der Welle von Atomlage zu Atomlage innerhalb des Kristalls und ermöglicht es, Effekte wie Mehrfachstreuung (Dynamische Beugung) zu erklären. Für Simulationsrechnungen haben sich als Lösungen der Schrödingergleichung vor allem die Blochwellen-Methode [BETHE (1928)] und der Multislice-Formalismus [COWLEY (1957)] aufgrund relativ geringem numerischen Aufwands durchgesetzt. Für Simulationen im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Programm von Axel Lubk für Multislice-Berechnungen genutzt [LUBK (2010)].

2.3 Die konventionelle Transmissionselektronenmikroskopie

Die vom Objekt modulierte komplexe Elektronenwelle

$$\Psi(\vec{r}) = a(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi(\vec{r})\} \quad (2.5)$$

wird durch die Elektronenoptik vergrößert auf dem Leuchtschirm bzw. Detektor abgebildet [REIMER (1989)]. Das aufgezeichnete Signal ist die Intensität

$$I(\vec{r}) = \Psi(\vec{r}) \cdot \Psi^*(\vec{r}) = |a(\vec{r})|^2 \quad (2.6)$$

Dies bedeutet den kompletten Verlust der Phaseninformation φ ; lediglich die Amplitude a wird registriert.

Des Weiteren ergibt das Abbe'sches Auflösungslimit

$$d = 0.61 \frac{\lambda}{\sin(\theta_{\max})} \quad (2.7)$$

bei einer Wellenlänge $\lambda = 2.5 \text{ pm}$ für 200 keV-Elektronen eine theoretische Lateralauflösung im Bereich weniger Pikometer. θ_{\max} bezeichnet die Objektivapertur, die sich im TEM aber nicht begrenzend auswirkt. Dass die tatsächliche Auflösung heutiger Mikroskope wesentlich schlechter ist, d.h. zwei Größenordnungen über der Wellenlänge liegt, lässt sich auf den Einfluss der Bildfehler insbesondere unter partiell kohärenter Beleuchtung durch die Elektronenquelle zurückführen.

Wie die Intensitätsbildung unter Einfluss von Bildfehlern und partiell kohärenter Beleuchtung vonstatten geht, vertiefen die folgenden Teilkapitel.

2.3.1 Abbildungstheorie und Bildfehler

Die Abbildung der Objektwelle in die Detektorebene wird maßgeblich durch die Bildfehler der Objektivlinse beeinflusst. Die nachfolgenden Linsen bewerkstelligen zwar letztlich die sehr hohe Gesamtvergrößerung ($\sim 10^6$ -fach), bilden gegenüber der Objektivlinse aber nur kleine Beugungswinkel ab, so dass deren Bildfehler die Übertragung der Elektronenwelle nur geringfügig beeinflussen.

Nach der Abbildungstheorie von Ernst Abbe (Abbildung 2.2.a) erfolgt die Übertragung der komplexen Objektwelle

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = a(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi(\vec{r})\} \quad (2.8)$$

mit objektmodulierter Amplitude a und Phase φ von der Objektebene in die erste Zwischenbildebene in zwei Schritten: Die Propagation der Objektwelle in die Brennebene der Objektivlinse entspricht einer Beugung in Fraunhofernäherung, die sich mittels Fouriertransformation beschreiben lässt. Das resultierende komplexe Beugungsspektrum der Objektwelle lautet

$$\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) = \mathbf{FT}[\Psi_{obj}(\vec{r})] = \int_{-\infty}^{+\infty} a(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi(\vec{r})\} \cdot \exp\{-2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r}\} d\vec{r} . \quad (2.9)$$

Im zweiten Schritt wird die Welle von der hinteren Brennebene in die erste Zwischenbildebene propagiert. Dies wird durch inverse Fouriertransformation des Spektrums beschrieben. Die resultierende Bildwelle lautet

$$\Psi_{ima}(\vec{r}) = \mathbf{FT}^{-1}[\Psi_{ima}^{FT}(\vec{g})] = \int_{-\infty}^{+\infty} \Psi_{ima}^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{+2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r}\} d\vec{g} . \quad (2.10)$$

Im Idealfall einer bildfehlerfreien Abbildung sind Bildwelle Ψ_{ima} und Objektwelle Ψ_{obj} bis auf Vergrößerung und Bildrotation identisch.

Anders als in der Lichtoptik verursachen Elektronenlinsen jedoch sehr starke Bildfehler. Durch den Öffnungsfehler (sphärische Aberration) werden größere Beugungswinkel des Objekts stärker fokussiert als kleine (Abbildung 2.2.b), d.h. die ideale sphärische Wellenfront wird deformiert. Unter der Annahme einer kurzen Brennweite und kleiner Beugungswinkel lassen sich diese Effekte durch die Multiplikation einer Phasenplatte $\exp\{-i\chi(\vec{g})\}$ in der hinteren Brennebene approximieren:

$$\Psi_{ima}^{FT}(\vec{g}) = \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{-i\chi(\vec{g})\}. \quad (2.11)$$

Die Zerlegung der Aberrationsfunktion $\chi(\vec{g})$ in eine Polynomreihe in \vec{g} (siehe Anhang A1) liefert

$$\begin{aligned} \chi(\vec{g}) = 2\pi k & \left[\frac{1}{2} A_1 \left(\frac{g}{k}\right)^2 \cos(2\alpha_g - \alpha_{A1}) + \frac{1}{2} C_1 \left(\frac{g}{k}\right)^2 \right. \\ & + \frac{1}{3} A_2 \left(\frac{g}{k}\right)^3 \cos(3\alpha_g - \alpha_{A2}) + B_2 \left(\frac{g}{k}\right)^3 \cos(\alpha_g + \alpha_{B2}) \\ & + \frac{1}{4} A_3 \left(\frac{g}{k}\right)^4 \cos(4\alpha_g - \alpha_{A3}) + S_3 \left(\frac{g}{k}\right)^4 \cos(2\alpha_g + \alpha_{S3}) + \frac{1}{4} C_3 \left(\frac{g}{k}\right)^4 \\ & + \frac{1}{5} A_4 \left(\frac{g}{k}\right)^5 \cos(5\alpha_g - \alpha_{A4}) + D_4 \left(\frac{g}{k}\right)^5 \cos(3\alpha_g + \alpha_{D4}) + B_4 \left(\frac{g}{k}\right)^5 \cos(\alpha_g + \alpha_{B4}) \\ & \left. + \dots \right] \end{aligned} \quad (2.12)$$

mit dem Betrag g und der Richtung α_g des reziproken 2D-Vektors \vec{g} . In Gleichung (2.12) sind diese bis zur vierten Ordnung angegeben¹. Der Defokus C_1 ist dem Benutzer über die Linsenanzug zugänglich, während die sphärische Aberration C_3 für jede Linse konstant ist. Die richtungsabhängige Defokussierung des zweizähligen und dreizähligen Astigmatismus (A_1, α_{A1}) und (A_2, α_{A2}) kann über elektromagnetische Quadrupole (Stigmatoren) vom Benutzer minimiert werden. Die axiale Koma zweiter Ordnung (B_2, α_{B2}), die einen Objektpunkt als Schweif abbildet, lässt sich vom TEM-Nutzer durch Justierung der Beleuchtungsrichtung auf die optische Achse der Objektivlinse minimieren.

Im konventionellen TEM spielen lediglich die Bildfehler bis zur dritten Ordnung eine signifikante Rolle, Koeffizienten höherer Ordnung sind vor allem gegenüber Defokus und sphärischer Aberration vernachlässigbar klein. Erst mit der Hardware-Bildfehlerkorrektur der niedrigen Bildfehlerordnungen müssen auch die höheren Glieder der Aberrationsfunktion χ in Betracht gezogen werden. Dies ist Inhalt von Kapitel 2.4.

¹ Unterschiedliche Notationen der Bildfehlerkoeffizienten sorgen regelmäßig für Verwirrung.

In dieser Arbeit wird durchgängig die Notation von CEOS verwendet [z. B. UHLEMANN (1998)]. Diese unterscheidet sich von anderen Darstellungen durch Vorfaktoren und azimuthale Abhängigkeit.

Unter Berücksichtigung der Wellenaberration besitzt die Bildwelle Ψ_{ima} die Gestalt:

$$\Psi_{ima}(\vec{r}) = \Psi_{obj}(\vec{r}) \otimes PSF(\vec{r}) \quad \text{mit} \quad PSF(\vec{r}) = \mathbf{FT}^{-1} \left[\exp\{-i\chi(\vec{g})\} \right]. \quad (2.13)$$

Die Funktion PSF charakterisiert die Verschmierung einer Objektpunktes durch die Wellenaberration χ und wird als „point spread function“ bezeichnet. Auch die Bildwelle lässt sich durch Amplitude und Phase ausdrücken, diese sind nun von denen der Objektwelle verschieden und hier durch die Großbuchstaben A und Φ gekennzeichnet:

$$\Psi_{ima}(\vec{r}) = A(\vec{r}) \cdot \exp\{i\Phi(\vec{r})\}. \quad (2.14)$$

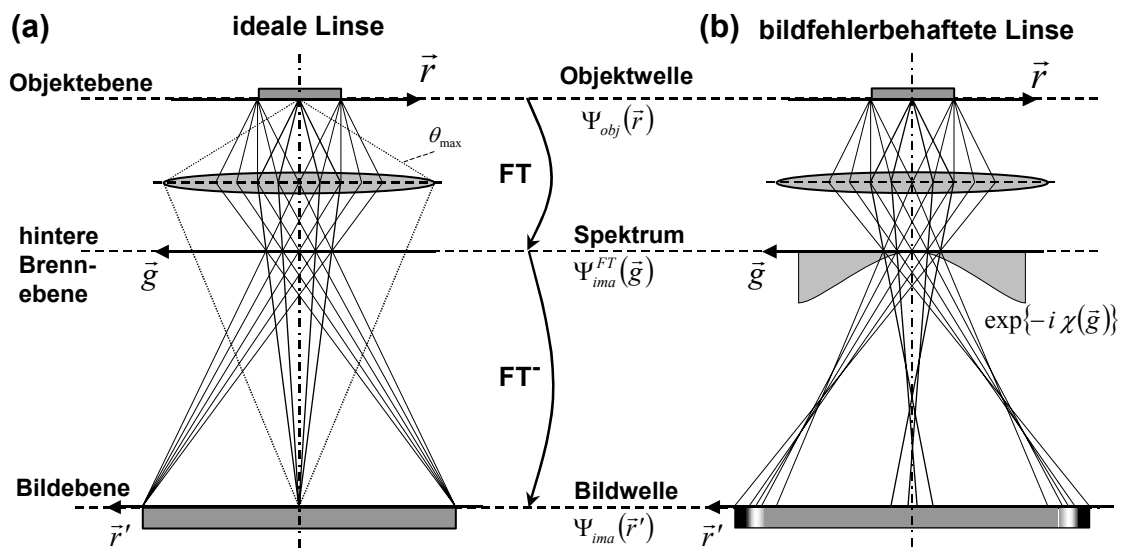


Abbildung 2.2 – (a) Bildentstehung nach Ernst Abbe: Die Propagation der Objektwelle in die hintere Brennebene wird durch die Fouriertransformation beschrieben; es resultiert das Spektrum der Objektwelle. Die weitere Ausbreitung der Welle in die Bildebene wird durch die inverse Fouriertransformation beschrieben. (b) Bei der bildfehlerbehafteten Linse fokussiert die sphärische Aberration größere Beugungswinkel stärker als kleinere, d.h. die Wellenfront hinter der Linse wird deformiert. Dies lässt sich näherungsweise durch die Multiplikation einer Phasenplatte $\exp(-i\chi)$ zum Spektrum der Objektwelle berücksichtigen. Die fehlerbehaftete Bildwelle entspricht der invers Fouriertransformierten des modifizierten Spektrums.

Bei den bislang aufgeführten Bildfehlern handelt es sich um so genannte isoplanatische Bildfehler, d.h. sie sind unabhängig von der Lage des Objektpunktes. Während bei der Aufzeichnung sehr kleiner Gesichtsfelder ($\leq 30 \times 30 \text{ nm}^2$) die Isoplanasie näherungsweise sehr gut erfüllt ist, muss für Abbildungen größerer Gesichtsfelder berücksichtigt werden, dass außeraxiale Aberrationen und Verzeichnungen an Einfluss gewinnen. Beispiele dafür sind anisotrope Vergrößerung, Bildzerrung, außeraxiale Koma u.v.m.

2.3.2 Mikroskopie mit partiell kohärenter Beleuchtung

Die Übertragung der objektmodulierten Elektronenwelle von der Objektebene in die Detektorebene wird maßgeblich von der Richtung der einfallenden Welle und der Energie der Elektronen beeinflusst. Die auf das Objekt bezogene Beleuchtungsapertur besitzt für eine Schottky-Feldemissionsquelle bei einer gaußförmig angenommenen Winkelverteilung eine $1/e$ -Breite von $\theta_C = 0.15$ mrad. Die unterschiedlichen Beleuchtungsrichtungen können zwar bei der Interaktion mit dem Objekt vernachlässigt werden, nicht jedoch bei der Betrachtung der Bildfehler des Objektivs. Da eine Verkippung der Beleuchtungsrichtung um den Winkel θ in der Objektebene für die hintere Brennebene eine Verschiebung des Spektrums gegenüber der Phasenplatte der Aberration um den Betrag $g = k \cdot \theta$ bedeutet, erfährt jede Beleuchtungsrichtung geringfügig unterschiedliche Aberrationseinflüsse. Die inkohärente Mittelung der Intensität über alle Beleuchtungsrichtungen $g = k \cdot \theta$ entsprechend ihrer zweidimensionalen normierten Verteilungsfunktion

$$F(\vec{g}_{ill}) = \frac{1}{\pi \cdot (k\theta_C)^2} \cdot \exp\left\{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}\right\}, \quad \int F(\vec{g}_{ill}) d\vec{g}_{ill} = 1 \quad (2.15)$$

führt zu Dämpfungseffekten im Informationstransfer. Für Elektronenwellen aus einer ausgedehnten Beleuchtungsquelle benutzt man auch den Begriff der partiellen räumlichen Kohärenz bzw. Winkelkohärenz.

Des Weiteren verursacht die chromatische Aberration C_C der Objektivlinse durch die Energiebreite der Elektronenquelle ΔE und durch Schwankungen der Linsenströme ΔI und der Beschleunigungsspannung ΔU_A eine leichte Defokussierung der Abbildung. Dazu sei eine gaußförmige Defokusschwankung

$$H(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \cdot \Delta} \exp\left\{-\frac{z^2}{\Delta^2}\right\}, \quad \int H(z) dz = 1, \quad (2.16)$$

mit dem $1/e$ -Wert

$$\Delta = C_C \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta E}{eU_A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta U_A}{U_A}\right)^2 + \left(2\frac{\Delta I}{I}\right)^2}, \quad (2.17)$$

angenommen. In der Detektorebene wird inkohärent über alle defokussierten Einzelintensitäten integriert und es kommt wiederum zu Dämpfungseffekten im Informationstransfer. Die Beziehung zwischen Elektronenwellen aus einer Quelle mit ausgedehnter Energieverteilung bezeichnet man auch als partielle zeitliche Kohärenz bzw. Längenkohärenz.

Unter der Annahme, dass jeder Punkt der Quelle \vec{g}_{ill} dasselbe Energiespektrum emittiert, d.h. also dieselbe Fokusschwankung produziert, können die Mittelungen über die Beleuchtungsrichtung \vec{g}_{ill} und die Fokusschwankung z separat durchgeführt werden [BORN (1993)].

Die am Detektor aufgezeichnete Intensität besitzt damit die Gestalt

$$I(\vec{r}) = \iint \Psi_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}, z) \cdot \Psi_{ima}^*(\vec{r}, \vec{g}_{ill}, z) \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} dz. \quad (2.18)$$

Die Fouriertransformierte der Intensität lautet somit

$$I^{FT}(\vec{g}) = \iint \left[\Psi_{ima}^{FT}(\vec{g}, \vec{g}_{ill}, z) \otimes \Psi_{ima}^{FT*}(\vec{g}, \vec{g}_{ill}, z) \right] \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz. \quad (2.19)$$

Nach Ausschreiben des Bildspektrums als modifiziertes Objektwellenspektrum erhält man unter Berücksichtigung der Einflüsse von \vec{g}_{ill} und z auf die Aberrationsfunktion χ :

$$I^{FT}(\vec{g}) = \iint \left[\left(\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{-i\chi(\vec{g} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)\} \right) \otimes \left(\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{-i\chi(\vec{g} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)\} \right)^* \right] \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz. \quad (2.20)$$

Nach Durchführung der Mittelung (Anhang A2) bleibt für die Fouriertransformierte der Intensität

$$I^{FT}(\vec{g}) = \int \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g} - \vec{h}) \cdot \Psi_{obj}^{FT*}(\vec{h}) \cdot TCC(\vec{g} - \vec{h}, \vec{h}) \cdot d\vec{h} \quad (2.21)$$

mit dem Transmissionskoeffizienten [ISHIZUKA (1980)]

$$TCC(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \exp\{-i\chi(\vec{g}_1) + i\chi(\vec{g}_2)\} \cdot E_s(\vec{g}_1, \vec{g}_2) \cdot E_c(\vec{g}_1, \vec{g}_2), \quad (2.22)$$

der angibt, mit welcher Phasendifferenz und mit welcher Dämpfung zwei Frequenzanteile \vec{g}_1 und \vec{g}_2 des Objektspektrums zur Intensität des Interferenzmusters in der Bildebene beitragen. Der Faktor $E_s(\vec{g}_1, \vec{g}_2)$ gibt die Dämpfung des Interferenzbeitrags der Frequenzen \vec{g}_1 und \vec{g}_2 aufgrund der Mittelung über die Beleuchtungsrichtungen an:

$$E_s(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \int \exp\{-i\vec{g}_{ill} [\nabla\chi(\vec{g}_1) - \nabla\chi(\vec{g}_2)]\} \cdot \frac{1}{\pi k^2 \theta_C^2} \exp\left\{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}\right\} \cdot d\vec{g}_{ill} \quad (2.23)$$

$$E_s(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \exp\left\{-\left(\frac{k\theta_C}{\sqrt{2}} [\nabla\chi(\vec{g}_1) - \nabla\chi(\vec{g}_2)]\right)^2\right\}.$$

Dieser ist über den Gradienten der Wellenaberration von den Bildfehlern der Objektivlinse abhängig und damit dem TEM-Nutzer über den Defokus in begrenztem Maße zugänglich.

Der Faktor $E_C(\vec{g}_1, \vec{g}_2)$ beschreibt die Dämpfung des Interferenzbeitrags der Frequenzen \vec{g}_1 und \vec{g}_2 , die durch die Mittelung über die Fokusschwankung resultiert:

$$E_C(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \int \exp\left\{-i z \frac{\pi}{k} [\vec{g}_1^2 - \vec{g}_2^2]\right\} \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi} \cdot \Delta} \exp\left\{-\frac{z^2}{\Delta^2}\right\} \cdot dz$$

$$E_C(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \exp\left\{-\left[\frac{\pi \Delta}{2k} (\vec{g}_1^2 - \vec{g}_2^2)\right]^2\right\}. \quad (2.24)$$

Damit der Einfluss der Dämpfung verschwindet, genügt es, dass \vec{g}_1 und \vec{g}_2 unabhängig von der Richtung beider Vektoren denselben Betrag haben. Diesen Betrag nennt man achromatischen Kreis.

2.3.3 Die lineare Näherung und Kontrastübertragungsfunktionen

Um einige Spezialfälle bei der Kontrastübertragung von Amplitude und Phase in die Bildintensität zu erklären, soll im Folgenden das schwache Objekt in linearer Näherung betrachtet werden.

Bei einer schwachen Modulation der Amplitude $a = 1-t$ und der Phase φ lässt sich die Objektwelle mit $t, \varphi \ll 1$ vereinfachen zu

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = a(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi(\vec{r})\} \approx 1 - t(\vec{r}) + i\varphi(\vec{r}). \quad (2.25)$$

Die lineare Näherung bedeutet für Gl. (2.21), dass lediglich Interferenzen zwischen den abgebeugten Reflexen und dem Nullstrahl, nicht jedoch untereinander auftreten. Damit ergibt sich aus (2.21)

$$I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = \begin{cases} \Psi_{obj}^{FT}(0) \cdot \Psi_{obj}^{FT*}(0) & : \vec{g} = 0 \\ \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot \Psi_{obj}^{FT*}(0) \cdot TCC(\vec{g}, 0) + \Psi_{obj}^{FT}(0) \cdot \Psi_{obj}^{FT*}(-\vec{g}) \cdot TCC(0, -\vec{g}) & : \vec{g} \neq 0. \end{cases} \quad (2.26)$$

Ein schwaches kosinusförmiges Testobjekt der Frequenz \vec{g}_0 , das als Objektwelle

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = 1 - (t_0 - i\varphi_0) \cdot \cos(2\pi \vec{g}_0 \vec{r} + \varepsilon) \quad (2.27)$$

mit Maximalamplitude t_0 , Maximalphasenschiebung φ_0 und Lateralphase ε liefert, besitzt als Spektrum die Gestalt

$$\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) = \delta(\vec{g}) + \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} \cdot [\delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot \exp\{+i\varepsilon\} + \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot \exp\{-i\varepsilon\}]. \quad (2.28)$$

Das Einsetzen in (2.26) führt zum Intensitätsspektrum

$$\begin{aligned}
I_{lin}^{FT}(\vec{g}) &= \delta(\vec{g}) \\
&+ \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} [\delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot \exp\{i\varepsilon\} + \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot \exp\{-i\varepsilon\}] \cdot TCC(\vec{g}, 0) \\
&+ \frac{-t_0 - i\varphi_0}{2} [\delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot \exp\{i\varepsilon\} + \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot \exp\{-i\varepsilon\}] \cdot TCC(0, -\vec{g}).
\end{aligned} \tag{2.29}$$

Nach intensiven Umformungen (siehe Anhang A3) verbleibt im Ortsraum die Intensität

$$\begin{aligned}
I_{lin}(\vec{r}) &= 1 - 2 \cdot \cos(\chi_S(\vec{g}_0)) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot t_0 \cdot \cos(2\pi \vec{g}_0 \vec{r} + \varepsilon - \chi_A(\vec{g})) \\
&+ 2 \cdot \sin(\chi_S(\vec{g}_0)) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot \varphi_0 \cdot \cos(2\pi \vec{g}_0 \vec{r} + \varepsilon - \chi_A(\vec{g})).
\end{aligned} \tag{2.30}$$

Demzufolge treten in der Intensität nicht nur Kontraste der Objektamplitude t auf, sondern ebenfalls Kontraste, die der Objektphase φ zugehörig sind. Einerseits sind diese Kontraste um die Lateralphase $\chi_A(\vec{g}_0)$ verschoben und unterliegen einer raumfrequenzabhängigen Dämpfung, die der partiellen Kohärenz geschuldet ist. Diese wirkt in Form der linearen Enveloppen der Winkelkohärenz

$$E_S^{lin}(\vec{g}) = \exp\left\{-\left[\frac{k\theta_C}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g})\right]^2\right\} \tag{2.31}$$

und der zeitlichen Kohärenz

$$E_C^{lin}(\vec{g}) = \exp\left\{-\left[\frac{\pi \Delta}{2k} \cdot \vec{g}^2\right]^2\right\}. \tag{2.32}$$

Zum anderen werden Amplitudenkontraste mit dem Kosinus der symmetrischen Wellenaberration χ_S gewichtet, während die Phasenkontraste mit dem Sinus von χ_S übertragen werden. Da jede beliebige Objektfunktion in eine Fourierreihe entwickelt werden kann, lässt sich die Kontrastübertragung der linearen Näherung auf jede beliebige Objektstruktur verallgemeinern: Die Einflüsse der Wellenaberration und der inkohärenten Dämpfung werden in den Kontrast-Transferfunktionen

$$\begin{aligned}
ACTF(\vec{g}) &= \cos(\chi_S(\vec{g})) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}) \quad \text{und} \\
PCTF(\vec{g}) &= \sin(\chi_S(\vec{g})) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}).
\end{aligned} \tag{2.33}$$

zusammengefasst. Die Amplitudenkontrast-Transferfunktion $ACTF(\vec{g})$ und die Phasenkontrast-Transferfunktion $PCTF(\vec{g})$ sind bildfehlerabhängig und damit dem TEM-Nutzer über den Defokus¹ zugänglich. Beide Funktionen sind in Abbildung 2.3 schematisch dargestellt.

¹ In diesem Unterkapitel wird die Betrachtung auf konventionelle TEMs beschränkt, in aberrations-korrigierten TEMs (Abschnitt 2.4) steht auch die sphärische Aberration als Freiheitsgrad zur Verfügung.

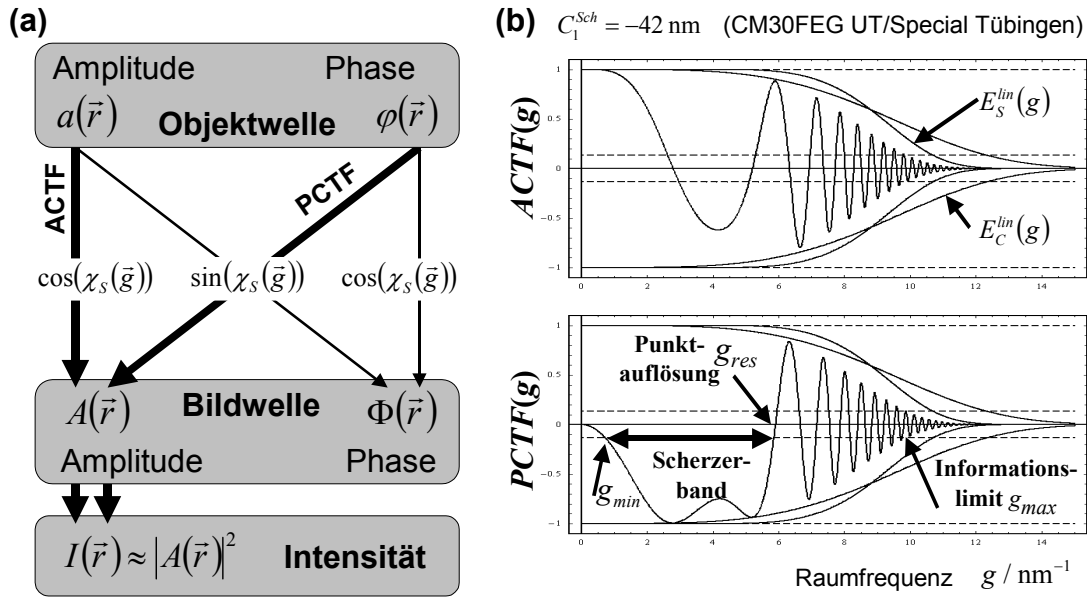


Abbildung 2.3 – (a) Kontrastübertragung im TEM: Amplitudenkontraste werden mit dem Kosinus der Wellenaberration χ_s (ACTF) gewichtet, während Phasenkontraste mit dem Sinus von χ_s (PCTF) in die Intensität übertragen werden. (b) Die Übertragungsfunktionen sind über den Defokus dem TEM-Nutzer zugänglich und im Scherzerfokus C_1^{Sch} für einen gleichmäßigen Phasenkontrast-Transfer optimiert. Die höchste direkt interpretierbare Raumfrequenz ist die Punktauflösung g_{res} , während die höchste über dem empirischen Rauschpegel $\exp\{-2\}$ übertragene Raumfrequenz als Informationslimit g_{max} bezeichnet wird.

Üblicherweise ist der HRTEM-Nutzer an der Phase der Elektronenwelle interessiert, da die zu untersuchenden Proben in der Hochauflösung sehr dünn sind und somit hauptsächlich die Phase der Welle moduliert wird. Daher ist eine gleichmäßige Phasenkontrast-Übertragungsfunktion $PCTF(\vec{g}) = \pm 1$ (d.h. $\chi_s = \pm\pi/2$, Zernike-Phase) über alle Raumfrequenzen \vec{g} erstrebenswert. Dies ist aufgrund der Sinusabhängigkeit in \vec{g} unmöglich. Dennoch lässt die geeignete Wahl des Defokus in gewissen Grenzen eine gleichförmige Übertragung von der Objektphase in die Intensität zu. Ein gleichmäßiger Phasenkontrastübertrag wird mit dem Scherzer-Fokus

$$C_1^{Sch} = -1.2 \sqrt{\frac{C_3}{k}} \quad (2.34)$$

erzielt [SCHERZER (1949)]. Der Wert hängt vom Koeffizienten der sphärischen Aberration C_3 ab und bietet über ein breitestmögliches Frequenzband $g_{min} \leq g \leq g_{res}$ eine Aberrationsfunktion χ_s nahe der Zernike-Phase $-\pi/2$. Dieses Frequenzband wird Scherzer-Band bezeichnet und besitzt die obere Grenze

$$g_{res} = 1.5 \cdot \sqrt[4]{\frac{k^3}{C_3}} \quad (2.35)$$

und die untere Grenze

$$g_{min} \approx \frac{g_{res}}{5}, \quad (2.36)$$

bei der der Betrag der PCTF unter das empirische Rauschlevel von $\exp\{-2\}$ fällt (vgl. Abbildung 2.3). Die obere Grenze des Scherzerbands legt die Punktauflösung

$$d_{res} = \frac{1}{g_{res}} = 0.67 \cdot \sqrt[4]{\frac{C_3}{k^3}} \quad (2.37)$$

fest („Scherzer resolution“), die ein Maß für die kleinste interpretierbare Information darstellt. Diese Auflösungsgrenze lässt sich zum einen durch einen kleineren Öffnungsfehler, aber auch durch eine größere Wellenzahl k mittels höherer Beschleunigungsspannung verbessern. In beiden Fällen erhöht sich zum Nachteil der Interpretierbarkeit großflächiger Details jedoch auch die untere Grenzfrequenz g_{min} .

Das Leistungsmerkmal, das durch die Stabilität des TEMs und die Kohärenz der Elektronenquelle festgelegt wird, ist das Informationslimit g_{max} . Dieses gibt die höchste Raumfrequenz an, die oberhalb der Punktauflösung g_{res} – wenn auch durch Oszillationen in den Transferfunktionen uninterpretierbar – über der empirischen Rauschgrenze von $\exp\{-2\}$ übertragen wird (vgl. Abbildung 2.3). Für das konventionelle TEM mit Feldemissionsquelle gilt als grobe Abschätzung für das Informationslimit $g_{max} \approx 2 \cdot g_{res}$. Um die Frequenzbeiträge $g > g_{res}$ interpretieren zu können, bedarf es entweder eines Hardware-Bildfehlerkorrektors (Abschnitt 2.4) oder holografischer Rekonstruktionsmethoden (Kapitel 3).

2.3.4 Die Messung von Bildfehlern

Da die Bildfehler der Objektivlinse die Übertragung der Objektinformation sehr empfindlich beeinflussen, ist eine sehr genaue Kenntnis über die Größe der einzelnen Bildfehlerbeiträge von großer Wichtigkeit.

Die am weitesten verbreitete Methode zur Bildfehlermessung nutzt die lineare Kontrastnäherung bei Objektwellen dünner amorpher Folien. Diese Objekte, zumeist amorphe Kohlefolie, produzieren in der Elektronenwelle ein schwaches Strukturrauschen in der Phase, während die Amplitude der Welle nahezu ungestört bleibt ($A(\vec{r}) \approx 1$). Nimmt man an, dass die Streuamplitude für alle Streuwinkel $\theta \leq g_{max}/k$ annähernd konstant ist, so lässt sich die Objektstruktur als weißes Rauschen verstehen¹. Das zur aufgezeichneten Intensität gehörige Diffraktogramm² zeigt aufgrund der Bildfehler konzentrische Ringe an den Nullstellen der PCTF („Phasenkontrast-Transferlücken“, siehe Abbildung 2.4.a). Die Positionen der Ringe lassen sich sektorweise auswerten und zur Bestimmung von Defokus C_1 und Astigmatismus A_1 der

¹ Für höchste Auflösungen ($g_{max} \leq 10 \text{ nm}^{-1}$) gelangt die Aberrationsbestimmung mit Kohlenstoffolie aufgrund der für diese hohen Streuwinkel stark abfallenden Streuamplitude an ihre Grenze.

Abhilfe schaffen dünne amorphe Folien von Elementen höherer Ordnungszahlen (z.B. Germanium oder Wolfram), deren Streuamplituden auch für höchste Auflösungen in der Phase der Welle eine signifikante Objektstruktur erzeugen.

² Als Diffraktogramm bezeichnet man die Amplitude der Fouriertransformierten einer Intensität. Diese ist immer symmetrisch bezüglich des Ursprungs und nicht mit dem Beugungsbild oder dem Spektrum einer Welle zu verwechseln.

symmetrischen Wellenaberration χ_S heranziehen. Dieses Verfahren steht dem TEM-Nutzer weitestgehend automatisiert zur Verfügung.

Da die antisymmetrische Wellenaberration χ_A keinen Einfluss und die symmetrische Wellenaberration höherer Ordnungen nur wenig Einfluss auf die Gestalt des Diffraktogramms besitzt, ist eine zusätzliche Prozedur notwendig, um auch diese genau ermitteln zu können. Als Messverfahren hat sich dafür die Aufnahme von Diffraktogrammserien unter Strahlkipfung durchgesetzt („Zemlin-Tableau“) [ZEMLIN (1978)]. Dabei wird ausgenutzt, dass eine Strahlkipfung gegenüber der optischen Achse der Objektivlinse zusätzliche Aberrationen induziert (vgl. Anhang A1). Bei einer Kippung um den Winkel θ in Richtung α_θ resultiert die um $|\vec{g}_\theta| = k \cdot \theta$ verschobene Wellenaberration

$$\chi(\vec{g} + \vec{g}_\theta) = 2\pi k \cdot \left\{ C'_0 + D'_0 \cdot \left(\frac{g}{k} \right) + A'_1 \cdot \left(\frac{g}{k} \right)^2 + C'_1 \cdot \left(\frac{g}{k} \right)^2 + \dots \right\} \quad (2.38)$$

mit einem konstanten Teil C'_0 , der effektiven Bildverschiebung D'_0 , dem effektiven zweizähligen Astigmatismus

$$\begin{aligned} A'_1 = & \frac{A_1}{2} \cos(2\alpha - \alpha_{A1}) \\ & + \theta \cdot [A_2 \cos(2\alpha - \alpha_\theta - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B2})] \\ & + \theta^2 \cdot \left[\frac{3}{2} A_3 \cos(2\alpha + 2\alpha_\theta - \alpha_{A3}) + 3S_3 \cos(2\alpha + \alpha_{S3}) + \frac{C_3}{2} \cos(2\alpha - 2\alpha_\theta) \right] \\ & + \theta^3 \cdot [2A_4 \cos(2\alpha + 3\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + B_4 \cos(2\alpha - 3\alpha_\theta - \alpha_{B4}) \\ & \quad + 3B_4 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B4}) + 6D_4 \cos(2\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{D4})] \end{aligned} \quad (2.39)$$

und dem effektiven Defokus

$$\begin{aligned} C'_1 = & \frac{C_1}{2} + \theta \cdot [2B_2 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B2})] + \theta^2 \cdot [3S_3 \cos(2\alpha_\theta + \alpha_{S3}) + C_3] \\ & + \theta^3 \cdot [6B_4 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B4}) + 4D_4 \cos(3\alpha_\theta + \alpha_{D4})] \end{aligned} \quad (2.40)$$

sowie den effektiven Bildfehlern höherer Ordnungen. Diese hängen direkt von der Stärke und Richtung der Kippung sowie von den symmetrischen und antisymmetrischen Bildfehlern höherer Ordnungen ab. Hier sind die Bildfehler bis zur vierten Ordnung berücksichtigt.

Damit ergeben sich für n unterschiedliche Kippungen θ_i in die unterschiedlichen Richtungen $\alpha_{\theta,i}$ aus dem effektiven Defokus $C'_{1,i}$ und dem effektiven Astigmatismus $A'_{1,i}$ gerade $2n$ Gleichungen. Bei hinreichend vielen Kipprichtungen n bilden diese ein überbestimmtes lineares Gleichungssystem, aus dem sich schlussendlich die gesuchten Bildfehlerkoeffizienten bestimmen lassen.

Diese Prozedur der Bildfehlermessung hat einen sehr hohen Automatisierungsgrad erreicht und wird standardmäßig in vielen Mikroskopen für Alignment-Routinen verwendet. Abbildung 2.4 zeigt zwei Diffraktogramm-Kippserien von amorpher

Kohlefolie mit unterschiedlichen Bildfehlern am Tecnai F20 Cs-corr-Elektronenmikroskop.

Weitere Möglichkeiten der Bildfehlerbestimmung liegen in der Analyse der kippungsabhängigen effektiven Bildverschiebung D'_0 [z.B. TYPKE (1977)]. Dieses Verfahren wird in dieser Arbeit jedoch nicht genutzt und daher nicht weiter vertieft.

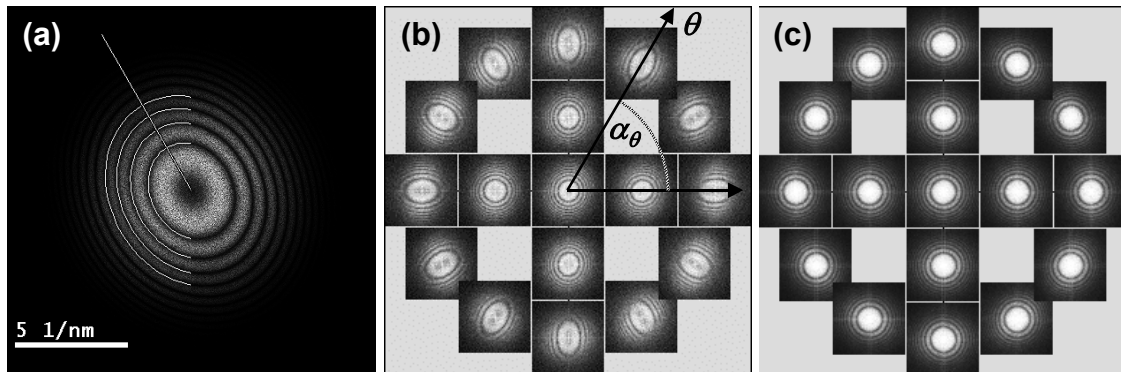


Abbildung 2.4 - Bestimmung von Bildfehlerkoeffizienten mittels Diffraktogrammen und Kippserien: (a) Bei der Abbildung dünner amorpher Objekte lassen sich die symmetrischen Bildfehler aus den konzentrischen Ringen der Diffraktogramme ermitteln. Diese entsprechen den Übertragungslücken der jeweiligen PCTF und geben Auskunft über Defokus und Astigmatismus. Die Positionen der Übertragungslücken und die Richtung des Astigmatismus sind halbseitig skizziert. (b) Die antisymmetrischen Aberrationen werden durch „Zemlin-Tableaus“ ermittelt. Die Diffraktogramme der Kippserie sind entsprechend der Kippstärke θ und der Kipprichtung α_θ angeordnet. In einem bildfehlerbehafteten TEM entstehen unter Strahlkipfung zusätzlich Astigmatismus und Defokus. (c) In einem TEM mit Cs-Korrektor treten unter Strahlkipfung keine zusätzlichen Aberrationen auf, daher besitzen die Diffraktogramme aller Kippungen die gleiche Gestalt.

2.3.5 Delokalisierung

Die bisherige Betrachtung bei der Kontrastübertragung von der Objektphase in die aufgezeichnete Intensität hat auf die beste Interpretierbarkeit gezielt. In diesem Zusammenhang ist die Punktauflösung g_{res} das zu optimierende Leistungsmerkmal. Erschwerend kommt hinzu, dass jeder Objektpunkt bei der Abbildung in die Bildebene räumlich über eine große Fläche verschmiert wird. Die vom Objektiv übertragenen Beugungswinkel $\theta = k \cdot g$ erhalten in der Linse durch den Gradienten der Wellenaberration

$$\nabla \chi(\vec{g}) = \frac{\partial \chi(\vec{g})}{\partial \vec{g}}. \quad (2.41)$$

eine zusätzliche Verkippung, so dass unterschiedliche Beugungswinkel in der Bildebene unterschiedlich fokussiert, also „verschmiert“ abgebildet werden (siehe Abbildung 2.5). Der Betrag der Verschmierung, die so genannte Delokalisierung

$$\rho = \frac{1}{2\pi} \cdot \max \left\{ \nabla \chi(\vec{g}) \right\}_{\vec{g} \leq \vec{g}_{opt}} \quad (2.42)$$

gibt an, über welchen Radius ρ die Frequenzen $|\vec{g}| \leq |\vec{g}_{opt}|$ aufgrund des Aberrationsgradienten $\nabla\chi(\vec{g})$ maximal verschmiert sind. Die Delokalisierung ρ lässt sich durch eine geeignete Beeinflussung der Wellenaberration über den Defokus C_1 optimieren und erreicht im konventionellen Mikroskop mit fester sphärischer Aberration C_3 ein Minimum beim Optimum-Defokus [LICHTE (1991A)]

$$C_1^{opt} = -\frac{3}{4}C_3\left(\frac{g_{opt}}{k}\right)^2. \quad (2.43)$$

Diese Fokuseinstellung ist abhängig von der sphärischen Aberration C_3 und vom größten zu optimierenden Beugungswinkel $\theta_{opt} = k \cdot g_{opt}$ und reduziert die Bildverschmierung aller kleineren Beugungswinkel auf ein Minimum von

$$\rho_{opt} = \frac{1}{4}C_3\left(\frac{\vec{g}_{opt}}{k}\right)^3. \quad (2.44)$$

Um die Grenzen der Übertragung auszunutzen, wird für die Frequenz g_{opt} üblicherweise das Informationslimit g_{max} des TEMs gewählt. Genau dann entspricht ρ_{opt} gerade dem Kreis der kleinsten Verwirrung („disc of least confusion“) in Abbildung 2.5. Dabei unterliegen die hohen Raumfrequenzen einer schwächeren Dämpfung durch partielle räumliche Kohärenz. D. h. durch den verringerten Betrag des Gradienten der Wellenaberration im TCC (siehe Gl. (2.23)) wird das Informationslimit g_{max} der Objektivlinse verbessert. Dies geht leider zu Lasten der Interpretierbarkeit der Bilddetails, da nunmehr kein gleichmäßiger Kontrast-Transfer zur Verfügung steht. Aus diesem Grund ist der Optimum-Defokus für die konventionelle Hochauflösungsmikroskopie nicht sehr praktikabel. In der aberrationskorrigierten Mikroskopie (Kapitel 2.4) und in der off-axis Holografie (Kapitel 3) spielt diese Fokuseinstellung jedoch eine große Rolle. In Abbildung 2.5 ist die PCTF für die UltraTwin-Linse des Philips CM30FEG UT/Special Tübingen-Elektronenmikroskops beim Optimum-Defokus für $g_{opt} = 10 \text{ nm}^{-1}$ dargestellt. Die Delokalisierung ρ wird von 4.1 nm im Scherzerfokus auf 2.4 nm verringert; das Informationslimit g_{max} verbessert sich von 9.5 nm^{-1} (vgl. Abbildung 2.3) auf 11 nm^{-1} .

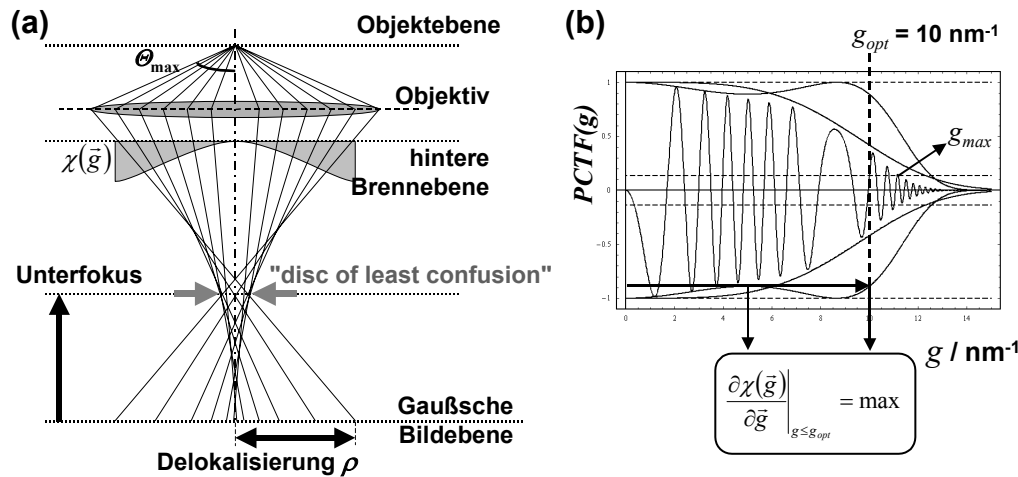


Abbildung 2.5 – (a) Delokalisierung durch sphärische Aberration: Im Objektiv werden große Beugungswinkel stärker fokussiert als kleinere. Die Bildverschmierung ρ (Delokalisierung) kann durch eine Unterfokussierung verringert werden und erreicht im Optimum-Defokus durch die Optimierung des Aberrationsgradienten ein Minimum. (b) Im Optimum-Defokus wird der Gradient der Wellenaberration für alle Frequenzen $g \leq g_{opt}$ gleichzeitig minimiert. Damit reduziert sich die Delokalisierung und es verbessert sich das Informationslimit. Dargestellt ist der Optimum-Fokus $C_1^{opt} = -183 \text{ nm}$ für $g_{opt} = 10 \text{ nm}^{-1}$ für das Philips CM30FEG UT/Special Tübingen-Elektronenmikroskop.

2.4 Bildfehlerkorrektur mittels Hardware

Es gibt keine zeitunabhängigen, raumladungsfreien, rotationssymmetrischen Linsen für Elektronen mit negativer sphärischer Aberration [SCHERZER (1936)]. Auch der gewaltige technische Fortschritt der letzten Jahrzehnte ändert nichts an der Gültigkeit des Scherzer-Theorems, das die Existenz der für die Aberrationskorrektur notwendigen runden Linsen mit negativem Öffnungsfehler ausschließt. Dennoch existieren einige sehr trickreiche Ansätze, wie die Wirkung einer Streulinse für Elektronen dennoch erzielt werden kann. Neben Otto Scherzers Überlegungen durch Symmetriebrechung in einer Kombination aus elektromagnetischen Quadrupolen und Oktupolen ein Korrektorelement zu bauen [SCHERZER (1947)], sieht ein Ansatz von Harald Rose eine Kombination aus zwei elektromagnetischen Hexapol-Elementen und vier zusätzlichen Linsen als Bildfehlerkorrektor vor [ROSE (1990)]. Seit Maximilian Haider im Jahre 1998 der Durchbruch bei der Realisierung dieses Konzepts gelang [HAIDER (1998), ROSE (1998)], aus dem heraus die Firma CEOS in Heidelberg gegründet wurde, hat sich der Hardware-Bildfehlerkorrektor in kürzester Zeit als Standardzubehör für hochauflösende TEMs durchgesetzt. Die nächste Generation eines Bildfehler-Korrektors mit Multipolelementen höherer Ordnungen zur Korrektur von sphärischer und chromatischer Aberration [HAIDER (2008)] ist im TEAM-Projekt bereits verwirklicht worden. Das folgende Unterkapitel beschäftigt sich in Kurzform mit Aufbau und Wirkungsweise des CEOS-Hexapol-Cs-Korrektors und mit den Besonderheiten beim Informationstransfer.

2.4.1 Aufbau und Wirkungsweise des Bildfehlerkorrektivs

Der Hexapol-Bildfehlerkorrektor verlängert die Säule des Tecnai F20-TEMs um ca. 30 cm und ist direkt unter der Objektivlinse in die Mikroskopsäule integriert (siehe Abbildung 2.6). Das Korrektiv besteht aus zwei Transferlinsenpaaren (Dubletts) und zwei magnetischen Hexapolelementen. Zur Kompensation der sphärischen Aberration der Objektivlinse liegt die vordere Nodalebene¹ N_0 des ersten Dubletts in der Objektivlinse und die hintere Nodalebene N_1 ist im ersten Hexapol zentriert (vgl. Abbildung 2.6). Diese Ebene N_1 ist gleichzeitig die vordere Nodalebene des zweiten Transferdubletts. In dessen hinterer Nodalebene N_2 ist der zweite Hexapol zentriert. Letztlich stellt die Adapterlinse (ADL) die Abbildung in die erste Zwischenbildebene sicher. Je nach Anregung der ADL erhöht sich die Zwischenbildvergrößerung von Objektivlinse mit Korrektor um den Faktor 1.2 ... 1.5.

Dank der nichtlinearen Brechkraft der starken magnetischen Hexapole verursacht der erste Hexapol neben einem starken dreizähligen Astigmatismus auch eine rotationssymmetrische Bildfehlerkomponente dritter Ordnung, die gerade einer sphärischen Aberration mit negativen Vorzeichen entspricht. Da jedoch nur der negative Öffnungsfehler „gewollt“ ist, wird ein zweiter, um 180° gedrehter Hexapol notwendig, um den dreizähligen Astigmatismus des ersten Hexapols zu kompensieren. Die negativen Öffnungsfehler der beiden Hexapole addieren sich dabei. Damit ist es möglich, durch gemeinsame Anregung der beiden Hexapole gezielt eine negative sphärische Aberration zu erzeugen und den positiven Öffnungsfehler der Objektivlinse zu kompensieren. Schlussendlich realisiert das Gesamtsystem eine öffnungsfehlerfreie runde Abbildung. Leider erhöht sich durch die zusätzlichen Linsen die chromatische Aberration C_C von Objektiv mit Korrektor von 1.3 mm auf bis zu 1.7 mm.

Zur Justierung des Bildfehlerkorrektors müssen insgesamt 29 Ströme in den Hexapolen, Transferlinsen sowie den zugehörigen Ablenkelementen und Stigmatoren gezielt eingestellt werden. Dies geschieht iterativ durch Messung der Bildfehlerkoeffizienten mittels Zemlin-Tableaus (Abschnitt 2.3.4) und Anpassen der Linsenströme durch die Software. Da jede Änderung der Linsenströme neue – wenn auch kleine – Aberrationen induziert, benötigt der TEM-Nutzer einige Iterationen, um eine nahezu aberrationsfreie Abbildung zu realisieren. Nach einer einmaligen sehr langwierigen Grundjustierung kann so innerhalb weniger Minuten eine adäquate Korrektur der Bildfehler erreicht werden.

¹ Im Schnittpunkt der Nodalebene mit der optischen Achse befinden sich die Nodalpunkte. Jedes Linsensystem besitzt zwei Nodalpunkte. Ein Strahl, der im vorderen Nodalpunkt – egal unter welchem Winkel – vom Linsensystem erfasst wird, verlässt das Linsensystem im hinteren Nodalpunkt unter exakt demselben Winkel. Die Nodalebene einzelner Linsen fallen stets mit den Hauptebenen zusammen, während dies in Systemen von mehreren Linsen nicht zwangsläufig der Fall ist. Beim Transferdublett fallen die Nodalebene mit den Brennebenen der Einzellinsen zusammen, während die Hauptebenen des Dubletts im Unendlichen liegen.

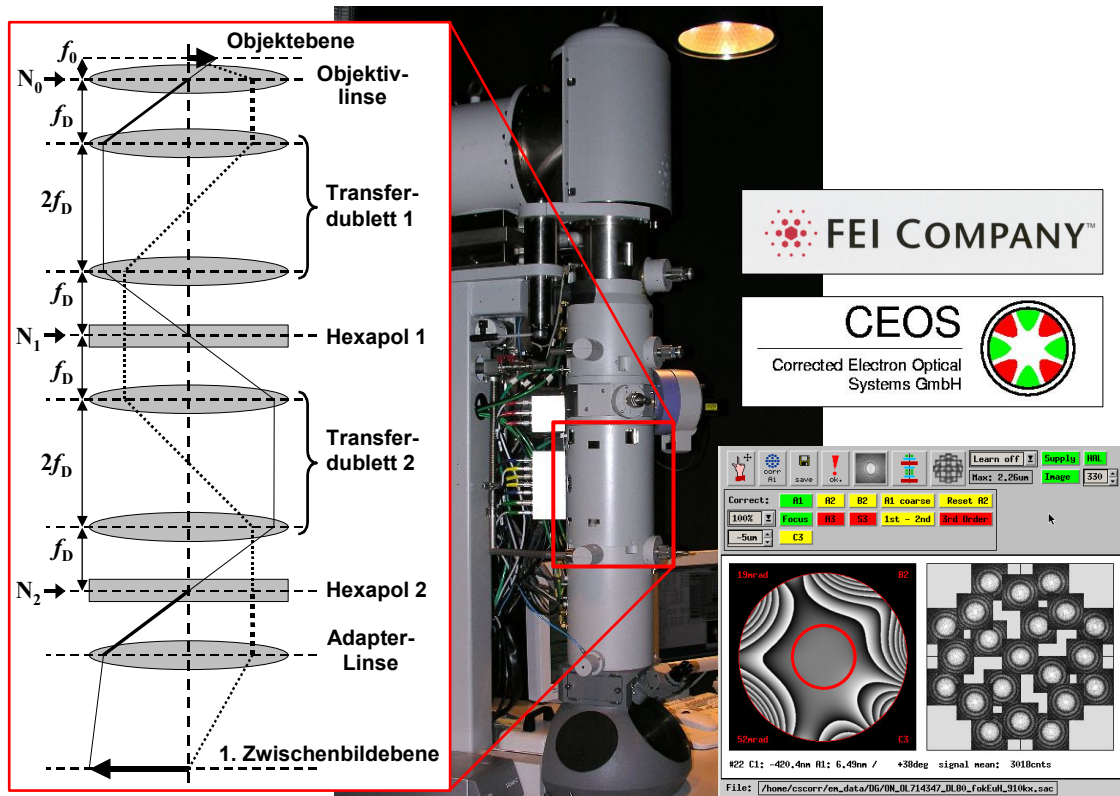


Abbildung 2.6 – Der Hexapol- C_5 -Korrektor des Tecnai F20 im Triebenberglabor: (Mitte) Gegenüber der Standardausführung ist die Mikroskopsäule um ca. 30 cm länger. Der Korrektor (schematisch, links) befindet sich direkt unterhalb der Objektivlinse und besteht aus zwei Transferdubletts, zwei Hexapolen und einer Adapterlinse (ADL). Eingezeichnet sind die Fundamentalbahnen und die Brennweiten der Objektivlinse f_0 , der Transferdubletts f_D sowie deren Nodalebenen N_0 , N_1 und N_2 . Die Korrektursoftware (Screen-Shot, rechts unten) misst die vorliegenden Aberrationen durch Kippserien von Diffraktogrammen und steuert die Korrektur Elemente für eine Korrektur entsprechend an.

2.4.2 Optimierung von Kontrastübertragung und Delokalisierung

Mit dem neuen Freiheitsgrad der sphärischen Aberration C_3 ist der Scherzerfokus

$$C_1^{Sch} = -\sqrt{\frac{4}{3}} \cdot \frac{C_3}{k} \quad (2.45)$$

für ein TEM keine feste Größe mehr. Nunmehr stehen mit Defocus C_1 und Öffnungsfehler C_3 zwei veränderliche Größen zur Verfügung, um den Phasenkontrast bis zu höchsten Raumfrequenzen zu realisieren. Für eine derartige Optimierung sollte es gleichzeitig das Ziel sein, den Gradienten der Wellenaberration so gering wie möglich zu belassen, um die damit verbundene Delokalisierung (Abschnitt 2.3.5) zu unterdrücken.

Dies gelingt durch Gleichsetzen des Scherzerfokus mit dem Optimumfokus [LENTZEN (2002)]:

$$\begin{aligned}
C_1^{Sch} &= C_1^{opt} \\
&\Downarrow \\
-\sqrt{\frac{4}{3} \cdot \frac{C_3}{k}} &= -\frac{3}{4} \cdot C_3 \left(\frac{g_{\max}}{k} \right)^2.
\end{aligned} \tag{2.46}$$

Umstellen nach C_3 liefert den optimierten Öffnungsfehler

$$C_3^{opt} = \frac{64}{27} \cdot \frac{k^3}{g_{\max}^4} \approx 2.4 \cdot \frac{k^3}{g_{\max}^4} \tag{2.47}$$

und durch Einsetzen in (2.45) ergibt sich der optimierte Defokus

$$C_1^{opt} = -\frac{16}{9} \cdot \frac{k}{g_{\max}^2} \approx -1.9 \cdot \frac{k}{g_{\max}^2}. \tag{2.48}$$

Unter Verwendung der Aberrationsparameter (C_1^{opt}, C_3^{opt}) gelingt es somit, den Radius der Delokalisierung auf

$$\rho^{opt} = 0.625 \cdot \left(\frac{g_{\max}}{k} \right) \tag{2.49}$$

zu verringern.

Unabhängig von dieser Optimierung lässt sich durch Vorzeichenwechsel in C_1 und C_3 , also Überfokus und negativer Öffnungsfehler, ein positiver Phasenkontrast bis hin zum Informationslimit g_{\max} des Elektronenmikroskops realisieren. Während die konventionelle Scherzer-Abbildung Atome als Punkte niedrigerer Intensität wiedergibt, kann man somit Atome als Punkte höherer Intensität abbilden. Da es bei der Verwendung des positiven Phasenkontrasts zu einer Überlagerung von linearen und nichtlinearen Intensitätsanteilen mit gleichem Vorzeichen kommt, erhöht diese Abbildungsbedingung den Kontrast der atomaren Details der Intensität. Diese Art der Abbildung wird auch als NCSI („Negative Cs-Imaging“) bezeichnet [JIA (2004)].

Es sei angemerkt, dass die Verbesserung der Punktauflösung g_{res} in Richtung des Informationslimits stets zulasten der Übertragung niedriger Raumfrequenzen geht ($g_{\min} \approx g_{res} / 5$) und damit den Phasenkontrast größerer Details verschlechtert.

Um die Vorteile der Cs-korrigierten Abbildung zu verdeutlichen, zeigt Abbildung 2.7 die Phasenkontrast-Transferfunktionen mit den zugehörigen Aberrationsparameter (C_1, C_3), Delokalisierungsradius ρ , Punktauflösung g_{res} und Informationslimit g_{\max} des unkorrigierten Philips CM200 TEM und des aberrationskorrigierten Tecnai F20 Cs-corr im direkten Vergleich.

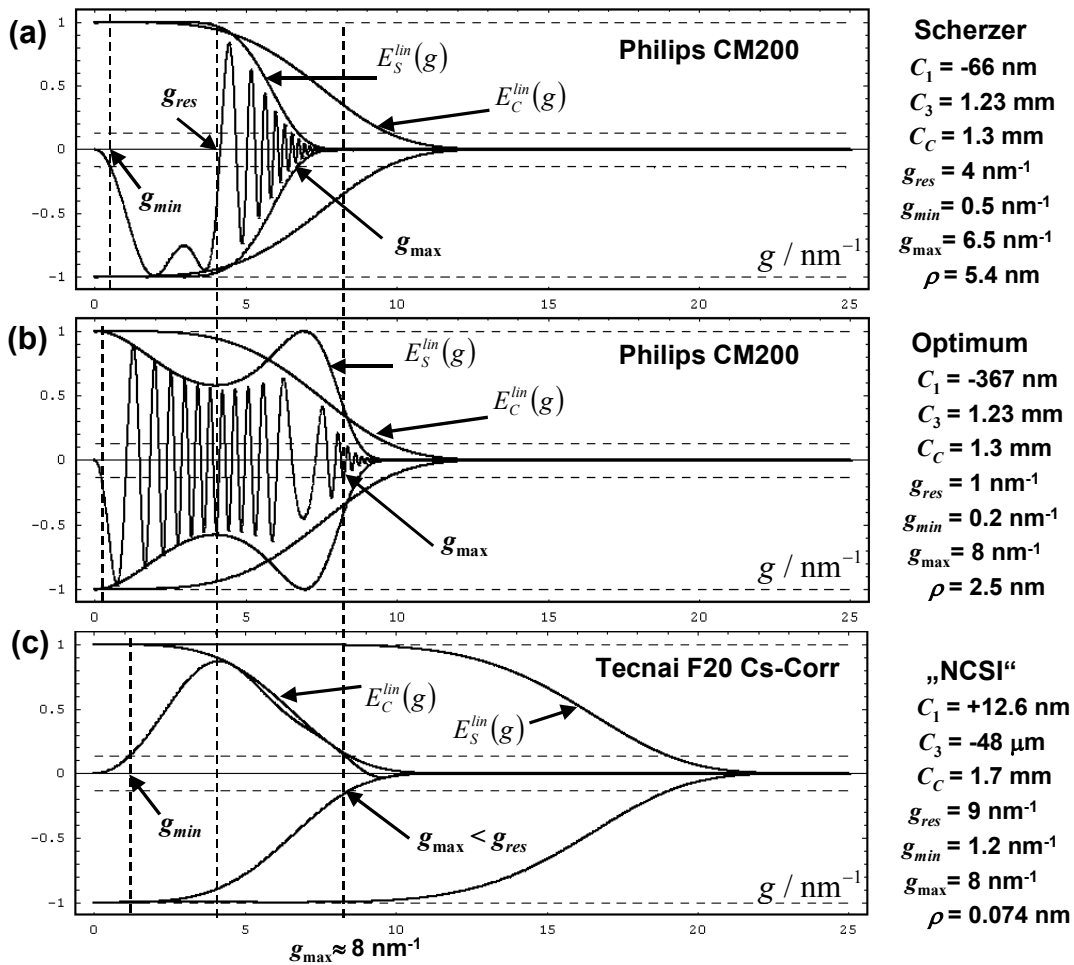


Abbildung 2.7 – Übertragungsfunktionen in konventionellen und C_S -korrigierten TEM bei 200 kV für die SuperTwin-Linse: Der Scherzerfokus (a) optimiert lediglich die Punktauflösung g_{res} für ein bildfehlerbehaftetes TEM, höhere Raumfrequenzen bleiben nicht direkt interpretierbar. Der Optimum-Fokus (b) minimiert dagegen den Gradienten der Wellenaberration (hier für alle $g \leq 8 \text{ nm}^{-1}$). (c) Bei der C_S -korrigierten Phasenkontrast-Übertragung werden (a) und (b) kombiniert und liefern unter einer verschwindend kleinen Delokalisierung eine gleichmäßige Übertragung bis hin zum Informationslimit auf Kosten niedriger Raumfrequenzen $g \leq g_{min}$.

2.5 Zusammenfassung

Die Interpretation von Hochauflösungsbildern im TEM ist aufgrund der Abbildungsfehler der Objektivlinse schwierig. Komplizierte Übertragungsfunktionen sind notwendig, um die in der Intensität auftretenden Kontraste im Sinne atomarer Details zu interpretieren. Zumeist geschieht dies durch Modellierung des Streuprozesses im Objekt und nachfolgend der elektronenmikroskopischen Abbildung und Aufzeichnung. Unter partiell kohärenter Beleuchtung bedarf es dazu mit dem Transmissionskoeffizienten einer sehr aufwändigen Simulation, um relative Kontrastunterschiede quantitativ analysieren zu können. Des Weiteren führt die Delokalisierung, die jeden Objektpunkt über einen Bereich mehrerer Nanometer verschmiert, insbesondere bei der Abbildung nichtperiodischer Objekte zu Interpretationsproblemen.

Gerade die nicht-periodischen Strukturen, also Abweichungen vom perfekten Kristallgitter, sind jedoch für die Eigenschaften der Materialien am interessantesten. So bedarf es zwingend einer Korrektur der Bildfehler, um eine Interpretation dieser Objektdetails zu ermöglichen. Der Cs-Korrektor kompensiert die Aberrationen auf dem Wege der Elektronenoptik und damit noch vor der eigentlichen Aufzeichnung. Durch diese Korrektur der Bildfehler können Objektkanten atomar scharf, also delokalisationsfrei abgebildet und die Signale einzelner Atome ausgewertet werden.

Es zeigt sich jedoch, dass auch dem Cs-korrigierten TEM gewisse Grenzen gesetzt sind: Zum einen sind die großflächigen Kontraste der aufgezeichneten Intensität – wie auch im unkorrigierten TEM – nie im Sinne einer großflächigen Objektphase interpretierbar. Zweitens erfordert die Übertragung von Phasenkontrasten atomarer Strukturen spezielle Aberrationsparameter, so dass die Abbildungsfehler nie komplett korrigiert werden können; geringe Restaberrationen sind demnach stets vorhanden.

Ein Ausweg besteht in der Aufzeichnung der kompletten komplexen Welle und der a-posteriori-Korrektur der Aberrationen. Dazu wird im folgenden Kapitel die off-axis Elektronenholografie vorgestellt.

3 Die off-axis Elektronenholografie

Bei der Aufzeichnung einer Welle liefert die Intensität stets nur deren Betragsquadrat, also die quadrierte Amplitude der Welle, die Phaseninformation geht im Aufzeichnungsprozess verloren. Mit dem Verlust der Phase arrangiert man sich im konventionellen TEM, indem die Bildfehler (insbesondere Defokus) zur Phasenkontrastübertragung optimiert werden. Dieser Kompromiss geht mit einer Delokalisierung der kleinsten Strukturen einher und erlaubt erst mit dem Einsatz eines Hardware-Bildfehlerkorrektivs eine quasi-„Eins-zu-Eins“-Abbildung atomarer Strukturen. Wäre es stattdessen möglich, zusätzlich die Phase der Bildwelle direkt aufzuzeichnen, könnten die verbleibenden Bildfehler der Objektivlinse nachträglich numerisch korrigiert werden. Das Resultat wäre eine vollständig aberrationsfreie komplexe Welle, die zusätzliche Information über das Objekt bietet.

Bereits 1920 versuchte der polnische Physiker Mieczyslaw Wolfke den optischen Abbildungsprozess in zwei Stufen zu unterteilen [WOLFKE (1920)]. Zunächst sollte kurzwellige Röntgenstrahlung vom Objekt ein Zwischenbild erzeugen, um es im zweiten Schritt mit sichtbarem Licht zu betrachten. Schwierigkeiten im experimentellen Aufbau ließen diesen Versuch scheitern. Den Grundstein zur Holografie legte der ungarische Ingenieur Dennis Gabor erst 1948 mit seinen Überlegungen, die Amplitude und die Phase der Welle in einem Interferenzmuster aufzuzeichnen und in einem nachfolgenden Schritt die komplette Welle zu rekonstruieren [GABOR (1948), GABOR (1949)]. Zwar für die Elektronenmikroskopie erdacht, zeigte Gabor das neue Prinzip zunächst nur lichtoptisch. Als Objektwelle diente die am Objekt gebeugte Welle; als Referenzwelle wurde der transmittierte Teil der einfallenden Welle genutzt. Die Überlagerung dieser beiden zueinander kohärenten Teilwellen erzeugt als Intensität ein so genanntes „Hologramm“. Das auf Photoplatte aufgezeichnete Interferenzbild wurde anschließend mit einer Quecksilberdampflampe beleuchtet und erlaubte die Rekonstruktion der ursprünglichen Objektwelle. Zu Gabors Überraschung wurde bei der Rekonstruktion ein zweites, zum ersten Bild komplex konjugiertes Bild sichtbar („twin-image“). Diese zusätzliche Erscheinung wird als pseudoskopisches Bild bezeichnet und ist in allen „in-line“-Verfahren der Holografie dem rekonstruierten Bild überlagert. Im Jahre 1952 gelang es M.E. Haine und T. Mulvey erstmals in einem Elektronenmikroskop ein „in-line“-Hologramm aufzuzeichnen und zu rekonstruieren [HAINE (1952)]. Die Qualität der Hologramme war jedoch aufgrund mangelnder Kohärenz sehr gering, da während dieser Zeit noch keine Feldemissionsquellen zur Verfügung standen.

Der Durchbruch in der Holografie wurde erst mit der Erfindung des Lasers 1960 durch den Physiker Theodore H. Maiman möglich [MAIMAN (1960)]. Die bislang vorhandenen Lichtquellen boten nur eine mäßig kohärente Beleuchtung bzw. geringe Intensität. Unter Verwendung eines Lasers gelang es den beiden Wissenschaftlern Emmett Leith und Juris Upatnieks durch die Kippung der Referenzwelle gegenüber der Objektwelle („off-axis holography“) das pseudoskopische Bild vom rekonstruierten Bild zu trennen [LEITH (1962)]. Dieses Verfahren wurde 1968 von Gottfried

Möllenstedt und Herbert Wahl auch in der Elektronenoptik erfolgreich realisiert [MÖLLENSTEDT (1968), WAHL (1975)]. Objekt- und Referenzwelle wurden dabei mit einem elektrostatischen Biprisma zur Überlagerung gebracht [MÖLLENSTEDT (1956)]. Das in der Bildebene erzeugte Hologramm wurde auf ein photographisches Medium aufgezeichnet und anschließend mittels Laserlicht rekonstruiert. Leider besitzen Elektronenquellen im Gegensatz zu Lasern nur ein geringes Maß an Kohärenz. Diese partielle Kohärenz führt sowohl zu Rauschproblemen als auch zu einer Verschlechterung der Auflösung. Erst unter Verwendung einer Feldemissionsquelle wurde die limitierende räumliche Kohärenz derart verbessert, dass das holografische Verfahren sowohl in Lateralauflösung als auch in Signalauflösung den Zugang zu den atomaren Details eines Objekts erlaubt [LICHTE (1986)]. Die zunächst noch mit Laserlicht auf einer optischen Bank realisierte Bildfehlerkorrektur mittels Phasenplatten konnte durch die beständige Weiterentwicklung der Rechentechnik und die Ablösung photographischer Medien durch CCD-Kameras nachträglich numerisch durchgeführt werden [FRANKE (1988)]. Dies wurde in den letzten Jahren dahingehend weiterentwickelt, dass einzelne Atomsäulen nicht nur aufgelöst werden können, sondern auch das Signal im Sinne unterschiedlicher Elemente und der Anzahl der Atome unterschieden werden kann [LICHTE (2007)].

Für das Prinzip der Holografie wurde Dennis Gabor im Jahre 1971 mit dem Nobelpreis für Physik geehrt.

Im mittleren Auflösungsbereich hat sich die Elektronenholografie wegen ihrer Einzigartigkeit der Rekonstruktion großflächiger Phasenstrukturen als Messmethode für elektrische und magnetische Felder etabliert; die Möglichkeit der numerischen Bildfehlerkorrektur spielt hierbei nur eine untergeordnete Rolle. Zur Anwendung kommt die Elektronenholografie bei mittlerer Auflösung beispielsweise bei der Bestimmung des mittleren inneren Potentials („mean inner potential“, MIP) [z.B. GAJDARDZISKA-JOSIFOVSKA (1993)] sowie bei der Analyse der elektrischen Potentialverteilung in Dotiergebieten von Halbleiterbauelementen [MCCARTNEY (1994), RAU (1996)]. Des Weiteren existieren zahlreiche holografische Untersuchungen von Magnetfeldern, angefangen beim experimentellen Nachweis des Aharonov-Bohm-Effekts [MÖLLENSTEDT (1962)], über Magnetfelder in supraleitenden Materialien [TONOMURA (1998)] bis hin zu magnetischen Domänen in Nanopartikeln [DUNIN-BORKOWSKI (2004)]. Im mittleren Auflösungsbereich wurde die Elektronenholografie kürzlich mit der tomographischen Rekonstruktion kombiniert und erlaubt damit eine 3D-Rekonstruktion von elektrischen und magnetischen Feldern mit einer Auflösung von nur wenigen Nanometern [TWITCHETT-HARRISON (2008), WOLF (2010)].

Diese Arbeit konzentriert sich auf die höchstauflösende Elektronenholografie. Dazu beschreibt dieses Kapitel zunächst die notwendigen Schritte, um ein Elektronenhologramm zu erzeugen, zu rekonstruieren und die Bildfehlerkorrektur zu realisieren. Dabei werden zunächst die Einflüsse der partiellen Kohärenz und des Detektors auf die aufgezeichnete Hologrammintensität und damit auf die rekonstruierbare Auflösung in der Elektronenwelle genauer betrachtet. Da für die Aufzeichnung eines Hologramms

nur eine begrenzte Anzahl von Elektronen zur Verfügung steht, sind Amplitude und Phase der rekonstruierten Elektronenwelle verrauscht. Das Maß für die Signalgüte in der vornehmlich interessierenden Phase stellt das Phasendetektionslimit dar. Dieses hängt direkt mit der lateralen Auflösung und der Größe des rekonstruierten Gesichtsfeld zusammen. Um die Leistungsgrenzen der off-axis Elektronenholografie zu verstehen, wird dieser Zusammenhang im vierten Abschnitt dieses Kapitels detailliert dargelegt.

3.1 Die Aufnahme von Elektronenhologrammen

Um off-axis Elektronenhologramme hoher Qualität erzeugen zu können, muss das TEM mit einer Feldemissionsquelle (FEG) ausgestattet sein, da nur so eine kohärente Beleuchtung mit hoher Intensität möglich ist. Des Weiteren benötigt man ein elektronenoptisches Biprisma [MÖLLENSTEDT (1956)] im Blendenhalter der Feinbereichsbeugungsblende.

Da die meisten TEMs heutzutage mit einer FEG ausgestattet sind und sich ein Biprisma leicht einbauen lässt, ist es prinzipiell in sehr vielen Mikroskopen möglich, Elektronenholografie zu betreiben. Die folgenden Abschnitte erläutern die Details der holografischen Aufnahme.

3.1.1 Versuchsaufbau

Das Herzstück der off-axis Elektronenholografie, das Möllenstedtsche Biprisma, besteht aus einem ca. 300-600 nm dicken Glasfaden mit einer leitfähigen Goldschicht auf der Oberfläche, die es erlaubt, eine elektrische Spannung an den Faden anzulegen. Der Faden ist zwischen zwei geerdeten Abschirmungen in den Blendenhalter der Feinbereichsbeugungsblende eingebaut. Die Anwendung dieser Blende erfordert, dass sich die erste Zwischenbildebene genau in der Blendenebene befindet, was bewirkt, dass lediglich der geometrische Biprismaschatten auf dem Detektor zu sehen ist („Selected-Area“-Mode, (SA)). Glücklicherweise ist der Strahlengang oberhalb von ca. 400'000-facher Vergrößerung leicht modifiziert: Um die Gesamtvergrößerung des TEMs zu optimieren („High-Magnification“-Mode, (MH)), wird die erste Zwischenbildebene durch eine stärkere Anregung der nachfolgenden Beugungslinse und durch Nachfokussierung der Objektivlinse nach unten verschoben. Dies hat zur Folge, dass sich das Biprisma nun oberhalb der ersten Zwischenbildebene befindet und beim Anlegen einer positiven Spannung ein Interferenzmuster der auf beiden Seiten zueinander abgelenkten Elektronenwellen entsteht (Abbildung 3.1).

Der Ablenkwinkel der Elektronen am Biprisma ist in guter Näherung linear von der Fadenspannung abhängig:

$$\gamma = \gamma_0 \cdot U_F \cdot \quad (3.1)$$

Die Konstante γ_0 repräsentiert dabei die Geometrie des Strahlteilers:

$$\gamma_0 = \frac{\pi}{2 \cdot \ln\left(\frac{d_{BP}}{r_F}\right)} \cdot \frac{1 + \frac{eU_A}{E_0}}{eU_A \cdot \left(1 + \frac{eU_A}{2E_0}\right)} \quad (3.2)$$

mit der Elementarladung e der Beschleunigungsspannung U_A , der Ruheenergie der Elektronen E_0 , dem Radius des Biprismafadens r_F und dem Abstand d_{BP} zwischen Biprismafaden und geerdeter Abschirmung (vgl. Abbildung 3.1).

Sowohl Bildwelle als auch Referenzwelle,

$$\Psi_{ima}(\vec{r}) = A(\vec{r}) \cdot \exp\{i\Phi(\vec{r})\} \quad \text{und} \quad \Psi_{ref}(\vec{r}) = A_0, \quad (3.3)$$

werden vom Biprisma aufeinander zugelenkt. Es ergeben sich die gekippten Wellen

$$\begin{aligned} \Psi'_{ima}(\vec{r}) &= A(\vec{r}) \cdot \exp\left\{+2\pi i \frac{1}{2} \vec{g}_C \vec{r} + i\Phi(\vec{r})\right\} \\ &\quad \text{und} \\ \Psi'_{ref}(\vec{r}) &= A_0 \cdot \exp\left\{-2\pi i \frac{1}{2} \vec{g}_C \vec{r}\right\}, \end{aligned} \quad (3.4)$$

die kohärent überlagert werden und ein stationäres Interferenzmuster formen.

Die Intensität der resultierenden Gesamtwelle lautet damit

$$\begin{aligned} I(\vec{r}) &= [\Psi'_{ima}(\vec{r}) + \Psi'_{ref}(\vec{r})] \cdot [\Psi'_{ima}(\vec{r}) + \Psi'_{ref}(\vec{r})]^* \\ &\quad \dots \\ &= A^2(\vec{r}) + A_0^2 + 2A(\vec{r})A_0 \cos(2\pi \vec{g}_C \vec{r} + \Phi(\vec{r})) \end{aligned} \quad (3.5)$$

und besitzt die Gestalt eines kosinusförmigen Interferenzmusters mit einer lokalen Modulation des Kontrasts durch die Amplitude $A(\vec{r})$ und einer lokalen Verschiebung der Interferenzstreifen durch die Phasenschiebung $\Phi(\vec{r})$.

Das Spektrum der Intensität besteht aus drei Teilen:

$$\begin{aligned} I^{FT}(\vec{g}) &= \mathbf{FT}[I(\vec{r})] \\ &= \mathbf{FT}[A^2(\vec{r}) + A_0^2] && \text{ZB} \\ &+ A_0 \cdot \mathbf{FT}[A(\vec{r}) \exp\{+i\Phi(\vec{r})\}] \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_C) && \text{SB+} \\ &+ A_0 \cdot \mathbf{FT}[A(\vec{r}) \exp\{-i\Phi(\vec{r})\}] \otimes \delta(\vec{g} + \vec{g}_C) && \text{SB-} . \end{aligned} \quad (3.6)$$

Während das Zentralband (ZB) das konventionelle Bild repräsentiert, beinhalten die Seitenbänder (SB \pm) die komplette Information über die komplexe Welle. Diese kann durch Ausschneiden und Zentrieren eines der Seitenbänder rekonstruiert werden (Abschnitt 3.2).

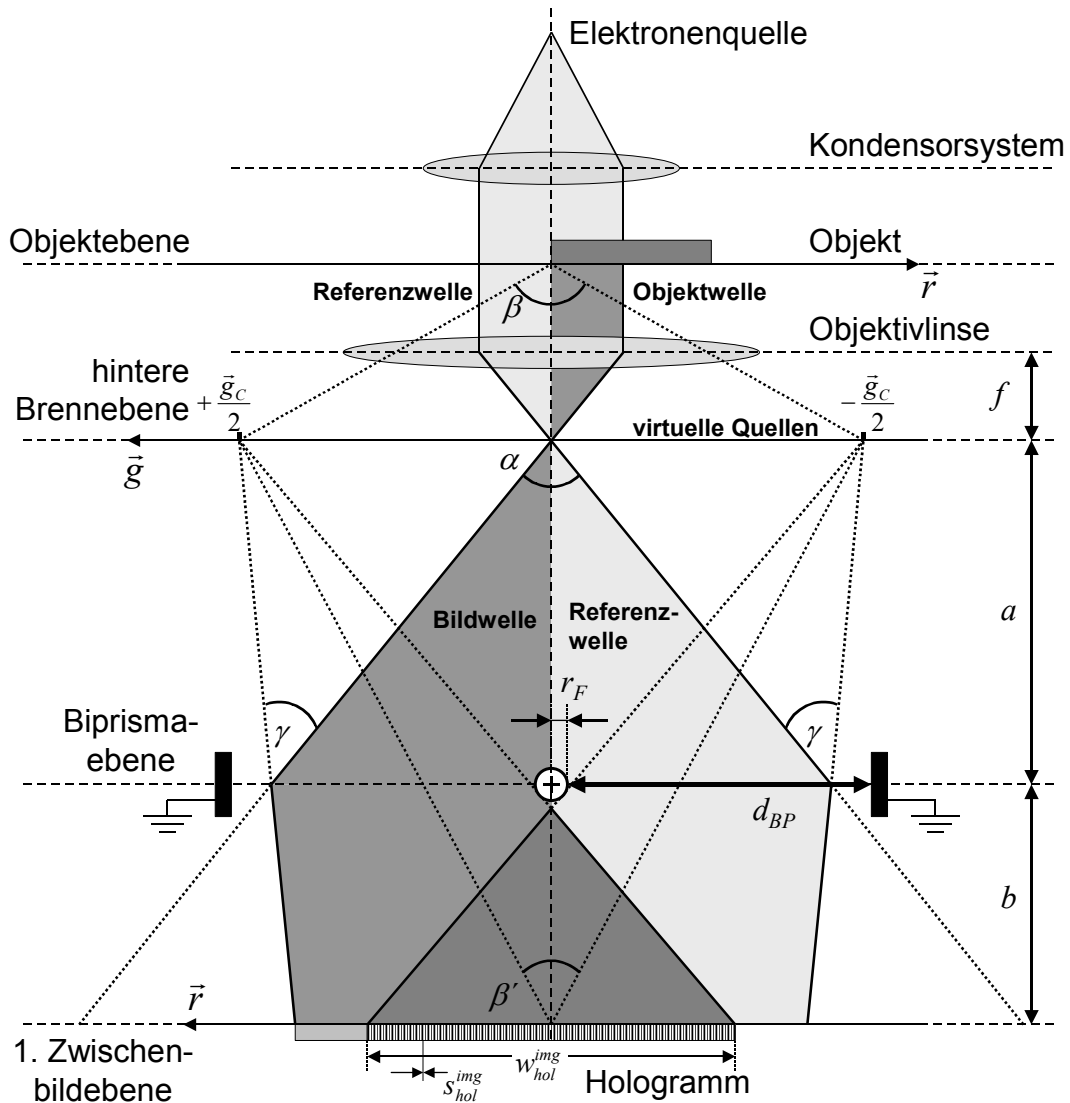


Abbildung 3.1 – Aufbau für off-axis Bildebenenholografie: Zwischen hinterer Brennebene des Objektivs und erster Zwischenbildebene befindet sich das Möllenstedt'sche Biprisma, das die beiden Teilwellen rechts und links des Biprismas aufeinander zulenkt, so dass in der hinteren Brennebene zwei virtuelle Quellen resultieren. Die Elektronenwellen aus diesen virtuellen Quellen überlagern sich in der ersten Zwischenbildebene und formen das Interferenzstreifenmuster. Da das Objekt nur die Hälfte der Objekzebene einnimmt, erfolgt unter dem Biprisma eine Überlagerung von Bildwelle und Referenzwelle.

Das im Abstand b unter dem Biprisma entstandene Interferenzstreifenmuster besitzt bezogen auf die Zwischenbildebene die Breite

$$w = 2\gamma_0 b \cdot U_F - 2r_F \frac{a+b}{a} \quad (3.7)$$

und den Interferenzstreifenabstand

$$s = \frac{1}{k \cdot \beta'} = \frac{a+b}{2a\gamma_0} \cdot \frac{1}{U_F} \quad (3.8)$$

mit der Wellenzahl k und dem Abstand a zwischen hinterer Brennebene und Biprismaebene. Im Experiment sind jedoch Interferenzfeldbreite und Streifenabstand bezogen auf die Objektebene von Interesse. Diese werden als Hologrammbreite und Hologrammstreifenabstand bezeichnet. Nach Berücksichtigung der Vergrößerung der Objektivlinse

$$M = \frac{L}{f} = \frac{a+b}{f} \quad (3.9)$$

mit der Brennweite f und der optischen Länge $L = a + b$ ergibt sich für die Hologrammbreite

$$w_{hol} = \frac{w}{M} = \frac{2bf\gamma_0}{a+b} \cdot U_F - 2r_F \frac{f}{a} \quad (3.10)$$

und für den Hologrammstreifenabstand

$$s_{hol} = \frac{s}{M} = \frac{f}{2ka\gamma_0} \cdot \frac{1}{U_F}. \quad (3.11)$$

Das Produkt von Hologrammstreifenabstand und Fadenspannung

$$\Gamma_{BP} = s_{hol} \cdot U_F = \frac{f}{2ka\gamma_0} \quad (3.12)$$

ist dabei ein durch das TEM gegebener fester Wert, der die Leistung des holografischen Aufbaus charakterisiert (je kleiner, desto besser), und wird als Biprismakonstante bezeichnet.

Um die Eigenschaften des Hologramms zu variieren, bleiben lediglich die Biprismafadenspannung U_F sowie der Abstand b zwischen Biprisma und erster Zwischenbildebene. Während der Hologrammstreifenabstand s_{hol} über die Fadenspannung einfach und direkt eingestellt werden kann, muss für die Hologrammbreite w_{hol} der Abstand b über die Anregung der Linsen verändert werden. Dazu benötigt das TEM eine Einstellmöglichkeit, die es erlaubt, neben der Objektivlinse auch die nachfolgende Beugungslinse anders anzuregen („Free-Lens-Control“)¹. Damit kann die Position der ersten Zwischenbildebene in bestimmten Grenzen frei eingestellt werden. In der Hochauflösung ist das Hauptkriterium für den Streifenabstand die erforderliche laterale Auflösung. Die Hologrammbreite muss dann je nach erforderlicher Gesichtsfeldbreite und

¹ Das Philips CM30FEG UT/Special Tübingen-TEM ist mit einer modifizierten Mikroskopsoftware ausgestattet, die es erlaubt, sowohl den Strom für die Objektivlinse als auch für die Beugungslinse direkt einzustellen.

Beim Philips CM200 FEG ST/LL-TEM erfolgt eine Änderung des Linsen-Setups über die Philips-Remote-Software eines externen Computers.

Im Tecnai F20 Cs-corr-TEM steht das so genannte „Holography ControlPanel“ zur Verfügung, das wie im CM30 ein freies Justieren der Beugungs- und Objektivlinse erlaubt.

erforderlicher Signalaufösung angepasst werden (siehe Abschnitt 3.4). In der mittleren Auflösung gelten andere Kriterien: Beispielsweise richten sich bei holografischen Messungen an Halbleiterbauelementen die einzustellenden Hologrammeigenschaften nach der Größe der zu untersuchenden Strukturen.

3.1.2 Partielle Kohärenz

Wie auch in der konventionellen Transmissionselektronenmikroskopie (Abschnitt 2.3.2) besitzt die partiell kohärente Beleuchtung einige nicht zu vernachlässigende Auswirkungen auf die ideale Hologrammintensität (3.5). Dazu betrachte man im Folgenden lediglich ein Interferenzmuster zweier ebener Wellen der Amplitude A_0 :

$$I(\vec{r}) = 2A_0^2 + 2A_0^2 \cos(2\pi \vec{g}_C \cdot \vec{r}). \quad (3.13)$$

Jeder Punkt der Quelle erzeugt mit jeder Energie des Energiespektrums der Quelle ein eigenständiges Interferenzmuster. Der Detektor registriert letztlich die inkohärente Summe aller dieser Einzelintensitäten. Wie auch zuvor in Kapitel 2 soll davon ausgegangen werden, dass jeder Punkt der Quelle dasselbe Spektrum emittiert, so dass die Mittelungen über Quellgröße $F(\vec{g}_{ill})$ und Energieverteilung¹ $G(k)$ separat durchgeführt werden können.

Besitzt eine Punktquelle eine gewisse Energieverteilung, so ist der Ablenkwinkel am Biprisma energieabhängig: $\gamma = \gamma(k)$, d.h. langsame Elektronen werden am Biprisma stärker abgelenkt als schnellere. Damit wird der Überlagerungswinkel über (3.2) und (3.8) von Objekt- und Referenzwelle folglich ebenso die Trägerfrequenz \vec{g}_C energieabhängig:

$$I(\vec{r}, k) = 2A_0^2 + 2A_0^2 \cos(2\pi \vec{g}_C(k) \cdot \vec{r}). \quad (3.14)$$

Als Gesamtintensität resultiert das gedämpfte Interferenzstreifenmuster

$$\begin{aligned} I_{ges}(\vec{r}) &= \int I(\vec{r}, k) \cdot G(k) \cdot dk \\ &= 2A_0^2 + 2 \cdot \mu_{ic}(\vec{r}) \cdot A_0^2 \cos(2\pi \vec{g}_C \cdot \vec{r}) \end{aligned} \quad (3.15)$$

mit dem ortsabhängigen zeitlichen Kohärenzgrad

$$\mu_{ic}(\vec{r}) = \mathbf{FT}_k \left[G(\vec{k}) \right], \quad (3.16)$$

der durch die Fouriertransformierte der Energieverteilung der Quelle gegeben ist und den Streifenkontrast in Abhängigkeit von der Entfernung zur optischen Achse bzw. der Ordnung n der Interferenzen reduziert. Glücklicherweise ist diese Dämpfung bei

¹ Die Energieverteilung der Quelle wird hier bereits als eine Verteilung der Wellenzahl k dargestellt.

Verwendung einer Feldemissionsquelle durch die geringe Energiebreite belanglos ($\mu_{ic} \approx 1$), da signifikante Dämpfungen erst bei Interferenzordnungen $n > 10^4$ auftreten [SCHMID (1985)] und bei einer 2k-Kamera mit einer Streifenbreite von vier Pixeln höchstens 512 Streifen ($n \leq 256$) aufgenommen werden können.

Bei einer ausgedehnten monochromatischen Quelle mit der Winkelverteilung

$$F(\vec{g}_{ill}) = \frac{1}{\pi \cdot (k\theta_C)^2} \cdot \exp\left\{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}\right\}, \quad \int F(\vec{g}_{ill}) d\vec{g}_{ill} = 1 \quad (3.17)$$

erzeugt jeder Punkt \vec{g}_{ill} der Quelle ein gegenüber der optischen Achse leicht verschobenes Interferenzstreifenmuster

$$I(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) = 2A_0^2 + 2A_0^2 \cos\left(2\pi \vec{g}_C \left[\vec{r} + \frac{\vec{g}_{ill}}{k} \cdot \frac{b}{M}\right]\right). \quad (3.18)$$

Da das Hologramm in der ersten Zwischenbildebene entsteht, wird bei der Winkelverteilung der Quelle die Angularverkleinerung $1/M$ der Objektivlinse berücksichtigt. b bezeichnet den Abstand zwischen Biprisma und erster Zwischenbildebene entsprechend Abbildung 3.1.

Durch die inkohärente Mittelung ergibt sich die gedämpfte Interferenzstreifenintensität

$$\begin{aligned} I_{ges}(\vec{r}) &= \int I(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \\ &= 2A_0^2 + 2 \cdot |\mu_{sc}| \cdot A_0^2 \cos(2\pi \vec{g}_C \cdot \vec{r} + \varepsilon_{sc}) \end{aligned} \quad (3.19)$$

mit dem komplexen Grad der räumlichen Kohärenz

$$\mu_{sc} = |\mu_{sc}| \cdot \exp\{i\varepsilon_{sc}\} = \mathbf{FT}_{\vec{g}_{ill}} [F(\vec{g}_{ill})], \quad (3.20)$$

$$\text{mit } |\mu_{sc}| = \exp\left\{-\left[\pi \vec{g}_C \cdot \frac{b}{M} \cdot \theta_C\right]^2\right\} \text{ und } 0 < |\mu_{sc}| < 1,$$

der durch die Fouriertransformierte der Winkelverteilung der Quelle gegeben ist (van-Cittert-Zernike-Theorem). Im Falle einer symmetrischen Verteilung $F(\vec{g}_{ill})$ ist die Lateralphase belanglos: $\varepsilon_{sc} = 0$. Der Einfluss der Kontrastdämpfung μ_{sc} ist erheblich und einer der limitierenden Faktoren in der off-axis Elektronenholografie. Um eine geringe Dämpfung zu realisieren, lassen sich mehrere Einflüsse in gewissen Grenzen variieren: Wird der Abstand b reduziert, verringert sich jedoch die Hologrammbreite w_{hol} (Gl. (3.10)) und damit das holografische Gesichtsfeld. Verringert man die Trägerfrequenz \vec{g}_C , so gelingt möglicherweise die holografische Rekonstruktion nicht mehr (Abschnitt 3.2). So verbleibt zur Verbesserung des räumlichen Kohärenzgrads

lediglich die Reduzierung des Konvergenzwinkels θ_C durch die Angularverkleinerung der Kondensorlinsen.

Tatsächlich darf der Kohärenzgrad jedoch nicht beliebig erhöht werden, da dieser einen direkten Einfluss auf den kohärenten Gesamtstrom

$$I_{coh} = -\ln[\mu_{sc}] \cdot \frac{B}{k^2} \quad (3.21)$$

mit dem Richtstrahlwert B des Strahlerzeuers besitzt. Bei sehr guter räumlicher Kohärenz ($\mu_{sc} \approx 1$) reduziert sich damit die Zahl der Elektronen, die zur Aufnahme eines Hologramms zur Verfügung stehen, und es verringert sich die Signalauflösung in der holografisch rekonstruierten Welle (Abschnitt 3.4).

Um unter hohem Kohärenzgrad μ_{sc} dennoch viele Elektronen zur Aufzeichnung zur Verfügung zu haben, nutzt man die elliptische Beleuchtung (Abbildung 3.2) [DÜKER (1955)]. Die Sonde wird durch den Kondensor-Stigmator senkrecht zum Biprisma stark vergrößert abgebildet, so dass die Beleuchtungsapertur θ_C reduziert, folglich der Winkelkohärenzgrad μ_{sc} verbessert wird. Parallel zum Biprisma bleibt der Strahl auf das Gesichtsfeld zusammengezogen; in dieser Richtung sind lediglich die Kohärenzanforderungen der konventionellen Hochoauflösung zu erfüllen (Kapitel 2).

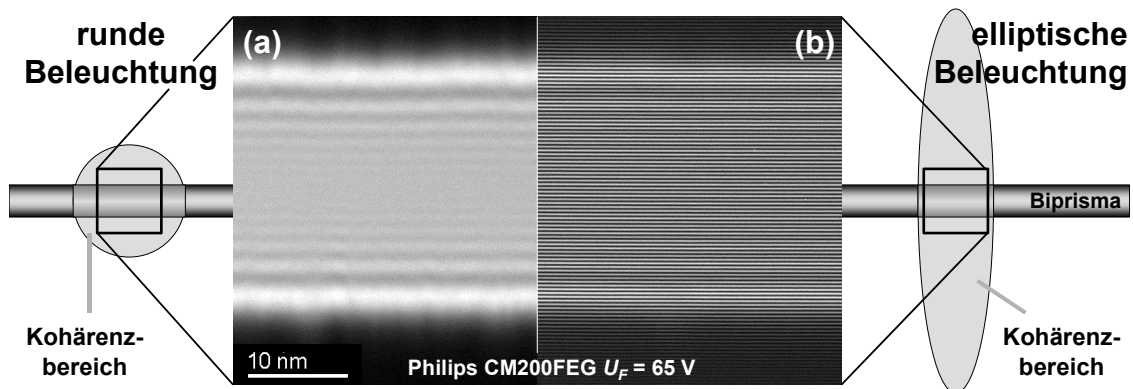


Abbildung 3.2 – Elliptische Beleuchtung: (a) Die runde Beleuchtung weist bei gleicher Intensität einen deutlich geringeren Streifenkontrast auf als die elliptische Beleuchtung (b). Bei der elliptischen Beleuchtung wird der Winkelkohärenzgrad in der Richtung senkrecht zum Biprisma verbessert und parallel zum Biprisma verschlechtert, so dass sich der Kohärenzbereich in der Überlagerungsrichtung deutlich vergrößert.

3.1.3 Inelastische Wechselwirkung

Im Objekt finden sowohl elastische als auch inelastische Prozesse statt. Da es bei inelastischen Prozessen zu einem Energieübertrag kommt, also der inelastische Teil der Bildwelle eine um ΔE verschobene Energie im Gegensatz zur Referenzwelle besitzt, ist dieser Anteil zum Interferenzstreifenmusters im Hologramm nicht mehr zeitlich konstant. Stattdessen verschieben sich die Interferenzstreifen durch den zusätzlichen zeitabhängigen Phasenfaktor

$$\Delta\Phi = \omega t = \frac{\Delta E}{\hbar} t. \quad (3.22)$$

Für eine Interferenzstreifenverschiebung um einen Streifenabstand pro Sekunde genügt bereits ein Energietransfer von $\Delta E = 4.135 \cdot 10^{-15}$ eV [LICHTE (1991B)]. Da alle im Objekt stattfindenden Energieüberträge größer sind, findet sich bei Integration über eine Aufnahmezeit von mehreren Sekunden lediglich ein konstanter inelastischer Untergrund in der Hologrammintensität. Damit wird bei der im Seitenband des Hologramms aufgezeichneten Welle lediglich die um einen Faktor μ_{inel} gedämpfte Amplitude

$$A_{el}(\vec{r}) = \mu_{inel}(\vec{r}) \cdot A(\vec{r}) \quad (3.23)$$

berücksichtigt.

3.1.4 Stabilitätsanforderungen

Im Bereich der Höchstauflösung geht es um Gesamtvergrößerungen in der Größenordnung von $M_{ges} \approx 10^6$. Mit den Objektstrukturen werden jedoch gleichzeitig alle Instabilitäten am Objekt und in der Objektivlinse mit vergrößert. Daher bedarf es einer äußerst störarmen Arbeitsumgebung für ein TEM. Dies betrifft mechanische Vibrationen genauso wie elektromagnetische Streufelder insbesondere niedriger Frequenzen. Des Weiteren muss eine extrem hohe Temperaturstabilität gewährleistet sein.

Bei der off-axis Elektronenholografie kommt erschwerend hinzu, dass neben der Übertragung durch die Objektivlinse auch die Qualität der Interferenzstreifen, die mittels Biprisma erzeugt werden, aufgrund der hohen Vergrößerungen durch die Projektive sehr anfällig auf äußere Störungen reagiert.

Um dennoch die Grenzen des technisch Möglichen auszureizen, wurde das Speziallabor Triebenberglab der Technischen Universität Dresden konzipiert [LICHTE (2000A)]. Durch konsequente Vermeidung elektromagnetischer Streufelder und mechanischer Vibrationen sowie unnötiger Geräuschbelastung und Temperaturschwankungen steht eine Arbeitsumgebung für die höchstauflösende Elektronenmikroskopie und -holografie zur Verfügung, die es erlaubt, zu jeder Tageszeit die volle Leistung der Geräte auszuschöpfen.

Im Falle eines Elektronenhologramms wird eine Instabilität durch einen zusätzlichen Kontrastdämpfungsfaktor μ_{inst} berücksichtigt:

$$I(\vec{r}) = A^2(\vec{r}) + A_0^2 + 2 \cdot \mu_{inst} |\mu_{sc}| A_{el}(\vec{r}) A_0 \cos(2\pi \vec{g}_C \vec{r} + \Phi(\vec{r})). \quad (3.24)$$

3.1.5 Aufzeichnung mittels CCD-Kamera

Das Elektronenhologramm wird durch das Linsensystem bestehend aus Beugungslinse, Zwischenlinse und zwei Projektivlinsen von der ersten Zwischenbildebene mit hoher Gesamtvergrößerung auf die CCD-Kamera abgebildet. Bei der Aufzeichnung mit dieser Art von Detektoren gibt es jedoch einige Aspekte zu beachten.

Um bei der Rekonstruktion die Seitenbänder vom Zentralband adäquat trennen zu können, muss die Trägerfrequenz g_C der Streifen mindestens drei mal so groß sein wie

die größte übertragene Raumfrequenz g_{\max} .¹ Gleichzeitig ist erforderlich, dass jeder Hologrammstreifen durch mindestens vier CCD-Pixel abgetastet wird [LENZ (1990)] :

$$g_C \geq 3 \cdot g_{\max}, \text{ sowie } g_C \leq \frac{g_N}{2}. \quad (3.25)$$

g_N bezeichnet die Nyquist-Frequenz, bei der ein Signal zweifach abgetastet wird (vgl. Abbildung 3.3):

$$g_N = \frac{1}{2 \cdot d_{\text{pix}}} = \frac{M_{\text{ges}}}{2 \cdot d_{\text{CCD}}} \quad (3.26)$$

mit der Größe d_{CCD} der CCD-Pixel, bzw. der Pixelgröße d_{pix} bezogen auf die Objektebene bei der Gesamtvergrößerung M_{ges} des Mikroskops.

Damit lässt sich für die größte rekonstruierbare Objektfrequenz g_{\max} die Bedingung

$$g_{\max} \leq \frac{M_{\text{ges}}}{12 \cdot d_{\text{CCD}}} \quad (3.27)$$

an die Gesamtvergrößerung M_{ges} und die CCD-Pixelgröße d_{CCD} stellen. Beispielsweise folgt daraus, dass für eine holografische Auflösung von $g_{\max} = 10 \text{ nm}^{-1}$ unter Verwendung von CCD-Pixeln der Größe $d_{\text{CCD}} = 24 \text{ }\mu\text{m}$ eine Gesamtvergrößerung von $M_{\text{ges}} = 2.88 \cdot 10^6$ erforderlich ist.

Die obigen Überlegungen berücksichtigen lediglich die Abtastung der Streifen, jedoch beeinflusst das Aufnahmeprinzip einer CCD-Kamera auch maßgeblich den Kontrast der aufgenommenen Strukturen. Dazu sei im Folgenden das Aufnahmeprinzip einer CCD-Kamera kurz veranschaulicht (Abbildung 3.3, b): Die Elektronen treffen auf den Szintillator, werden gestreut und erzeugen dabei Photonen. Durch Mehrfachstreuung der zu detektierenden Elektronen werden diese Photonen innerhalb einer Streubirne erzeugt, die je nach Szintillator und Elektronenenergie eine Ausdehnung von ca. $20 \mu\text{m}$ besitzt. Die Photonen werden mittels Glasfaseroptik auf den eigentlichen CCD-Chip übertragen und dort „gezählt“. Da die Größe der CCD-Pixel dieselbe Größenordnung wie die Streubirne besitzt (oft sogar kleiner), kommt es zu einer signifikanten Dämpfung der Kontraste der abzubildenden Strukturen [DE RUIJTER (1995)]. Die frequenzabhängige Kontrastdämpfung $MTF(g)$ ($0 < MTF < 1$) wirkt im Fourierraum multiplikativ und ist in Abbildung 3.3 c für zwei Kamera-Typen dargestellt. Im Ortsraum wird die Kontrastdämpfung entsprechend durch eine Faltung mit der Verschmierungsfunktion psf_{MTF} („point-spread-function“) beschrieben:

$$I_{\text{rec}}(\vec{r}) = I(\vec{r}) \otimes psf_{MTF} = \mathbf{FT}^{-1} [\mathbf{FT}[I(\vec{r})] \cdot MTF(g)]. \quad (3.28)$$

¹ Der Faktor drei gilt für den Allgemeinfall, für schwache Objekte genügt $g_C \geq 2 \cdot g_{\max}$.

Für den Fall eines im reziproken Raum gering ausgedehnten Seitenbandes ($g_{\max} \ll g_C$) lässt sich die MTF als konstanter Dämpfungsfaktor

$$\mu_{MTF} = MTF(g_C) \quad (3.29)$$

in der Hologrammintensität berücksichtigen. Für Hochauflösungshologramme ist dies nicht gerechtfertigt und eine Korrektur der MTF vor der Rekonstruktion notwendig, denn während die Dämpfung im Zentralband symmetrisch bezüglich des Nullstrahls ist, kommt es im Seitenband bezüglich des Ursprungs g_C zu einer asymmetrischen Dämpfung. Die der MTF-Korrektur resultierende Verstärkung des hochfrequenten Rauschens muss dabei zunächst in Kauf genommen werden [RAU (1994)]. Diese Problematik wird in Abschnitt 4.3 wieder aufgegriffen.

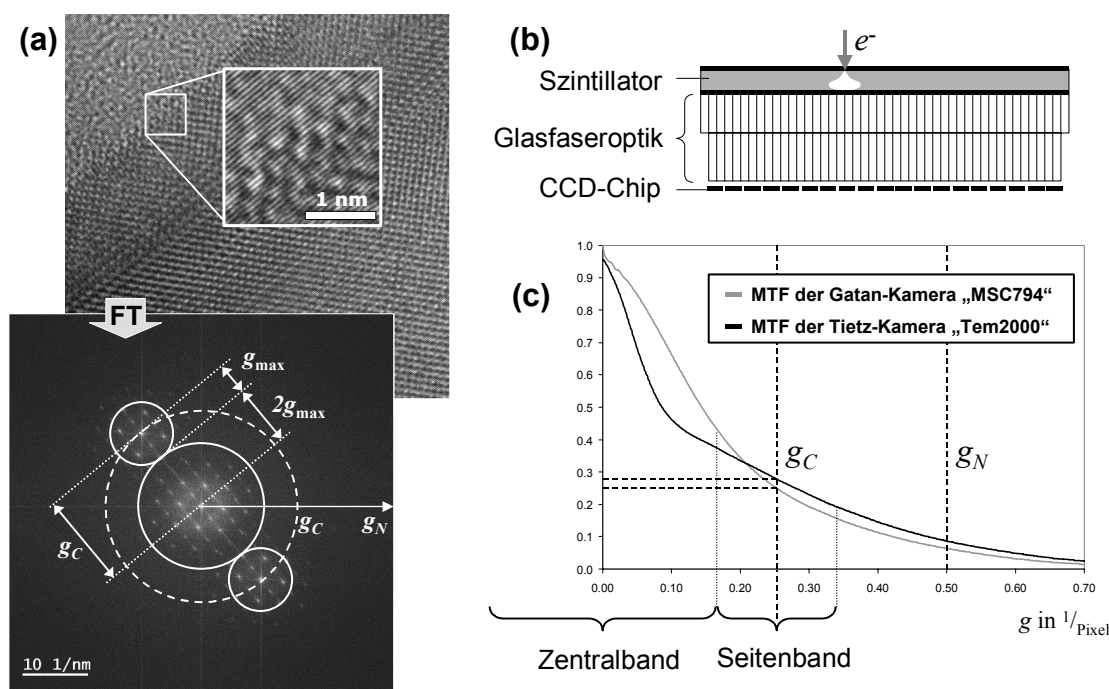


Abbildung 3.3 – Aufzeichnung mittels CCD-Kamera: (a) Für die Trennung von Zentral- und Seitenband muss die Trägerfrequenz g_C mindestens dreimal so groß sein wie das Informationslimit g_{\max} . Gleichzeitig darf die Trägerfrequenz die halbe Nyquist-Frequenz g_N nicht überschreiten. (b) Schematischer Aufbau einer CCD-Kamera: Die Elektronen werden im Szintillator gestreut und erzeugen Photonen, die durch eine Glasfaseroptik zum eigentlichen CCD-Chip übertragen werden. Die Streubirne im Szintillator schwächt den Kontrast hochfrequenter abzubildender Strukturen. Zusätzlich kann es in Glasfaseroptik durch leicht gegeneinander verschobene Faserbündel lokal zu einer lateralen Verschiebung des Bildes kommen. (c) Modulation-Transfer-Funktion (MTF): Das Signal der abgebildeten Struktur wird durch die Streuung der Elektronen im Szintillator verschmiert. Die daraus folgende Kontrastdämpfung wird durch die frequenzabhängige MTF beschrieben; sie ist für die Tietz-Kamera des Philips CM30 und für die Gatan-Kamera am Philips CM200 dargestellt. Im Bereich des Seitenbandes wird die Strukturinformation bereits auf ca. 25% ihres ursprünglichen Kontrasts gedämpft. Bezüglich des Ursprungs im Seitenband g_C kommt es dabei zu einer asymmetrischen Dämpfung [RAU (1994)].

Im Übrigen kann es vorkommen, dass die Bündel der Glasfaseroptik lokal leicht gegeneinander verschoben sind. Dies führt neben den Verzeichnungen durch Biprisma und Projektivlinsen zu einer zusätzlichen ortsabhängigen Verschiebung der Interferenzstreifen. Diese Einflüsse werden in einem orts- und frequenzabhängigen

Phasenterm $\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)$ berücksichtigt. Damit lautet die aufgezeichnete Hologrammintensität

$$I(\vec{r}) = A^2(\vec{r}) + A_0^2 + 2 \mu A_{el}(\vec{r}) A_0 \cos(2\pi \vec{g}_C \vec{r} + \Phi(\vec{r}) + \gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)) \quad (3.30)$$

mit dem gesamten Kontrastdämpfungseinfluss

$$\mu = \mu_{MTF} \cdot |\mu_{sc}| \cdot \mu_{inst} . \quad (3.31)$$

3.2 Die Rekonstruktion der Bildwelle

Die Rekonstruktion der Bildwelle findet numerisch im Computer statt. Die Hologrammintensität

$$I(\vec{r}) = A^2(\vec{r}) + A_0^2 + 2 \mu A_{el}(\vec{r}) A_0 \cos(2\pi \vec{g}_C \vec{r} + \Phi(\vec{r}) + \gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)) \quad (3.32)$$

besitzt nach Fouriertransformation die Gestalt

$$\begin{aligned} I^{FT}(\vec{g}) &= FT[A^2(\vec{r}) + A_0^2(\vec{r})] && \text{ZB} \\ &+ FT[\mu A_0 A_{el}(\vec{r}) \exp\{+i\Phi(\vec{r}) + i\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)\}] \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_C) && \text{SB+} \\ &+ FT[\mu A_0 A_{el}(\vec{r}) \exp\{-i\Phi(\vec{r}) - i\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)\}] \otimes \delta(\vec{g} + \vec{g}_C) && \text{SB-} . \end{aligned} \quad (3.33)$$

Das Seitenband „SB+“ wird von der Frequenz \vec{g}_C nach $\vec{g} = 0$ zentriert und mit einer Blende vom Rest des Spektrums getrennt. Nach inverser Fouriertransformation verbleibt die komplexe Bildwelle

$$\Psi'_{ima}(\vec{r}) = \mu A_0 A_{el}(\vec{r}) \exp\{+i\Phi(\vec{r}) + i\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)\} , \quad (3.34)$$

die sowohl alle Kontrastdämpfungseinflüsse μ als auch die störende Phasenmodulation $\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)$ beinhaltet. Des Weiteren ist die rekonstruierte Amplitude nicht normiert, sondern abhängig von der aufgezeichneten Intensität: $A \sim \sqrt{I}$.

Diese Einflüsse lassen sich eliminieren, indem unter exakt denselben Aufnahmebedingungen ein zweites Hologramm ohne Objekt aufgezeichnet wird. Dieses leere Referenzhologramm besitzt die Gestalt

$$I_{leer}(\vec{r}) = 2A_0^2 + 2\mu A_0^2 \cos(2\pi \vec{g}_C \vec{r} + \gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)) \quad (3.35)$$

und erlaubt die Rekonstruktion einer leeren Welle

$$\Psi'_{leer}(\vec{r}) = \mu A_0^2 \exp\{+i\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)\} . \quad (3.36)$$

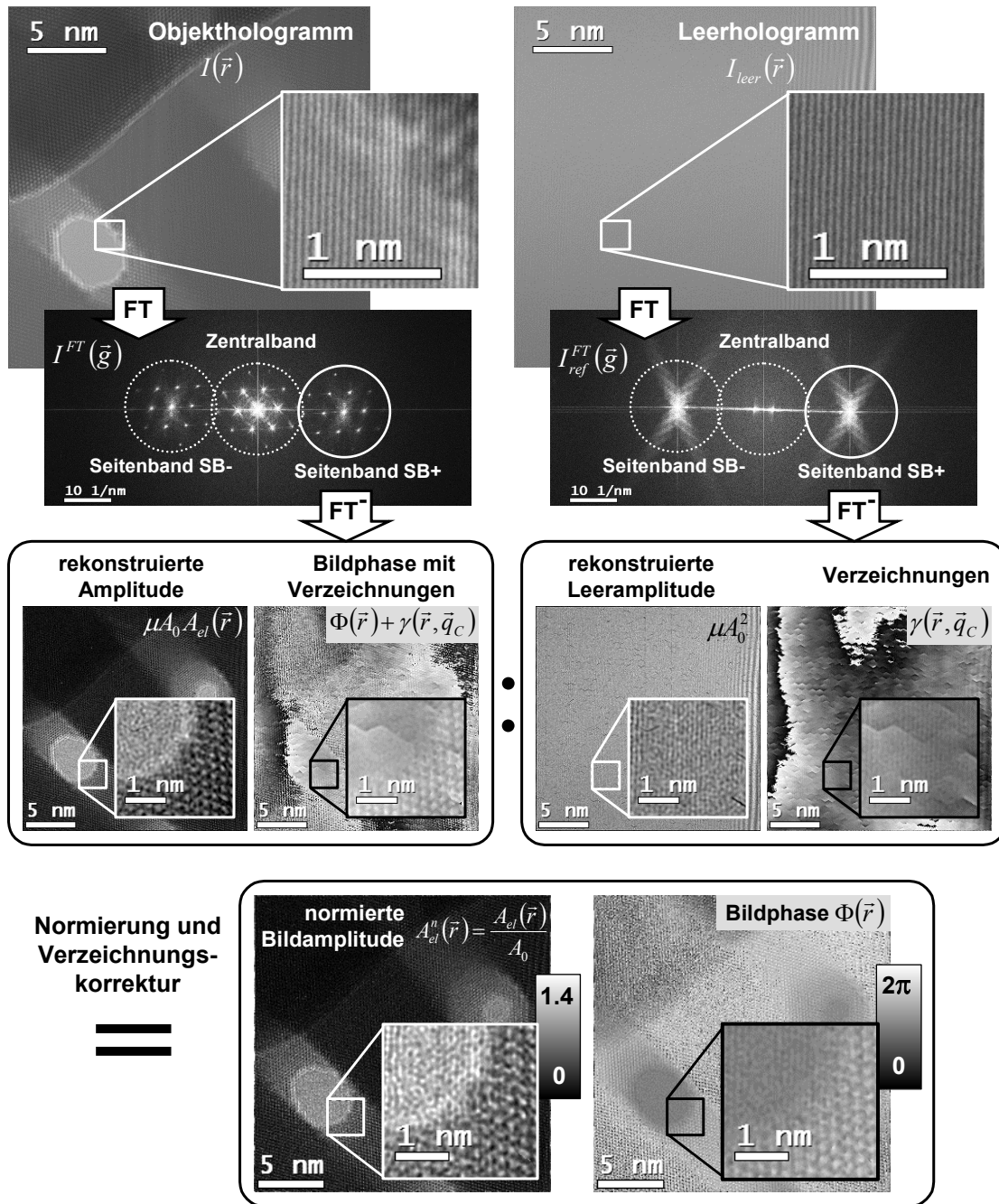


Abbildung 3.4 – Holografische Rekonstruktion: Die Hologrammintensität wird fouriertransformiert und das Seitenband SB+ herausgeschnitten und zentriert. Nach inverser Fouriertransformation liegt eine komplexe Welle vor, die auch einige Artefakte durch Mikroskopeinflüsse beinhaltet. Diese können separat durch ein zweites Hologramm ohne Objekt im Strahlengang (= Leerhologramm) aufgenommen und rekonstruiert werden. Die Division der beiden Wellen führt schlussendlich zu einer normierten phasenkorrigierten Bildwelle.

Die beiden rekonstruierten Wellen werden durcheinander geteilt und man erhält die normierte, phasenkorrigierte Bildwelle

$$\begin{aligned}\Psi_{ima}(\vec{r}) &= \frac{\Psi'_{ima}(\vec{r})}{\Psi'_{leer}(\vec{r})} = \frac{\mu A_0 A_{el}(\vec{r}) \exp\{i\Phi(\vec{r}) + i\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)\}}{\mu A_0^2 \exp\{i\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)\}} \\ &= \frac{A_{el}(\vec{r})}{A_0} \cdot \exp\{i\Phi(\vec{r})\} = A_{el}^n(\vec{r}) \cdot \exp\{i\Phi(\vec{r})\}\end{aligned}\quad (3.37)$$

mit der normierten Bildamplitude $A_{el}^n(\vec{r})$ und der Bildphase $\Phi(\vec{r})$. Die Rekonstruktionsprozedur ist in Abbildung 3.4 am Beispiel einer Goldfolie schematisch dargestellt.

An dieser Stelle sei angemerkt, dass sich die Korrektur der Verzeichnungen $\gamma(\vec{r}, \vec{g}_C)$ lediglich auf das Signal der Phase bezieht. Die laterale Position des Signals kann auf diese Art und Weise nicht korrigiert werden und erfordert zusätzliche Anstrengungen (siehe auch Kapitel 4.2).

3.3 Objektwellenrekonstruktion: Numerische Bildfehlerkorrektur

Die rekonstruierte Bildwelle (3.37) ist durch die kohärente Wellenaberration des Objektivs stark verfälscht. Da nun im Gegensatz zur konventionellen Transmissions-elektronenmikroskopie sowohl Amplitude als auch Phase vorliegen, ist es möglich, durch numerische Bildfehlerkorrektur die ursprüngliche Objektwelle wieder herzustellen.

Ausgangspunkt ist die rekonstruierte Bildwelle

$$\Psi_{ima}(\vec{r}) = A_{el}^n(\vec{r}) \cdot \exp\{i\Phi(\vec{r})\}.\quad (3.38)$$

Nach Fouriertransformation erhält man das Bildwellenspektrum

$$\Psi_{ima}^{FT}(\vec{g}) = FT[\Psi_{ima}(\vec{r})].\quad (3.39)$$

Durch Multiplikation mit einer numerisch generierten Phasenplatte mit der Wellenaberration χ_{num} erhält man das Spektrum

$$\begin{aligned}\hat{\Psi}^{FT}(\vec{g}) &= \Psi_{ima}^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{i\chi_{num}(\vec{g})\} \\ &= \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot \exp\{i[\chi_{num}(\vec{g}) - \chi(\vec{g})]\}\end{aligned}\quad (3.40)$$

und nach inverser Fouriertransformation die Welle

$$\hat{\Psi}(\vec{r}) = \mathbf{FT}^{-1} \left[\hat{\Psi}_{obj}^{FT}(\vec{g}) \right]. \quad (3.41)$$

Genau dann, wenn die numerische Phasenplatte für alle Frequenzen $|\vec{g}| \leq g_{\max}$ exakt die Aberrationen beschreibt, die zum Zeitpunkt der Aufnahme in der Objektivlinse präsent waren, entspricht die rekonstruierte numerisch korrigierte Welle der Objektwelle:

$$\chi_{num}(\vec{g}) - \chi(\vec{g}) \cong 0 \quad \forall |\vec{g}| \leq g_{\max} \Rightarrow \hat{\Psi}(\vec{r}) = \Psi_{obj}(\vec{r}). \quad (3.42)$$

Für die numerische Phasenplatte gilt es zu beachten, dass beim diskreten Abtasten der generierten Aberrationsfunktion das Rayleigh-Kriterium für den Gradienten der Phasenplatte

$$|\nabla \chi_{num}(\vec{g}) \cdot \Delta \mathbf{g}| \leq \frac{\pi}{6} \quad (3.43)$$

eingehalten wird.

Insbesondere für hohe Frequenzen \vec{g} unterliegt die Wellenaberration $\chi_{num}(\vec{g})$ einem sehr starken Gradienten. Ist dieser nicht mehr adäquat abgetastet, kommt es bei der Anwendung der numerischen Phasenplatte zu schwerwiegenden Artefakten in der komplexen Welle des Ortsraums. In diesem Zusammenhang ist der Optimum-Fokus (Abschnitt 2.3.5) von großer Bedeutung, da gerade dieser den Gradienten der Wellenaberration minimiert, demnach also die Genauigkeit der numerischen Bildfehlerkorrektur erhöht.

Die hier beschriebene Bildfehlerkorrektur ermöglicht eine Korrektur der isoplanatischen Bildfehler, d.h. für das gesamte Gesichtsfeld wird ein und dieselbe Aberrationsfunktion $\chi_{num}(\vec{g})$ korrigiert. Die elliptische Beleuchtung, die für das holografische Setup unerlässlich ist (Abschnitt 3.1.2), gewährleistet jedoch keine Beleuchtung mit ebenen Wellen. Durch den geringen Abstand zwischen unterem Strichfokus der Beleuchtung und Objekt (wenige Mikrometer) variiert die Beleuchtungsrichtung über dem Gesichtsfeld entsprechend einer zylindrischen Wellenfront. Da eine verkippte Beleuchtung zusätzliche Bildfehler induziert (Abschnitt 2.3.4), liegt eine ortsabhängige Wellenaberration vor. Um dies bei der Bildfehlerkorrektur zu berücksichtigen, wird vor der Berechnung des Bildwellenspektrums eine zylindrische Phasenmodulation zur Bildphase addiert. Diese führt zu einer Verzerrung des Bildspektrums, wie es in der hinteren Brennebene der Objektivlinse unter elliptischer Beleuchtung tatsächlich der Fall ist. Im weiteren Verlauf der Bildfehlerkorrektur wird die Phasenplatte zum Spektrum multipliziert und nach inverser Fouriertransformation des modifizierten Spektrums die zylindrische Phasenmodulation wieder abgezogen [LEHMANN (2004)].

Spezielle Anforderungen stellt die Bildfehlerkorrektur an die Hologrammbreite: Um in einem bestimmten Gesichtsfeld fov („field of view“) eine akkurate Bildfehlerkorrektur zu erreichen, muss eine Fläche der Breite $w'_{hol} = fov + 2\ psf$ aus dem Hologramm rekonstruiert werden. Dies gelingt nur, wenn eine Fläche $w_{hol} = w'_{hol} + 2\ psf$ kohärent mit Elektronen ausgeleuchtet wird. Mit der resultierenden Anforderung $w_{hol} = fov + 4\ psf$ geht damit ein großer Teil der Hologrammfläche bei der Bildfehlerkorrektur verloren, da in unkorrigierten TEMs der Durchmesser der PSF bei höchsten Auflösungen leicht 10 nm überschreiten kann.

Abbildung 3.5 zeigt am Beispiel der im Abschnitt 3.2 rekonstruierten Bildwelle schematisch den Ablauf der numerischen Bildfehlerkorrektur zur Wiederherstellung der komplexen Objektwelle.

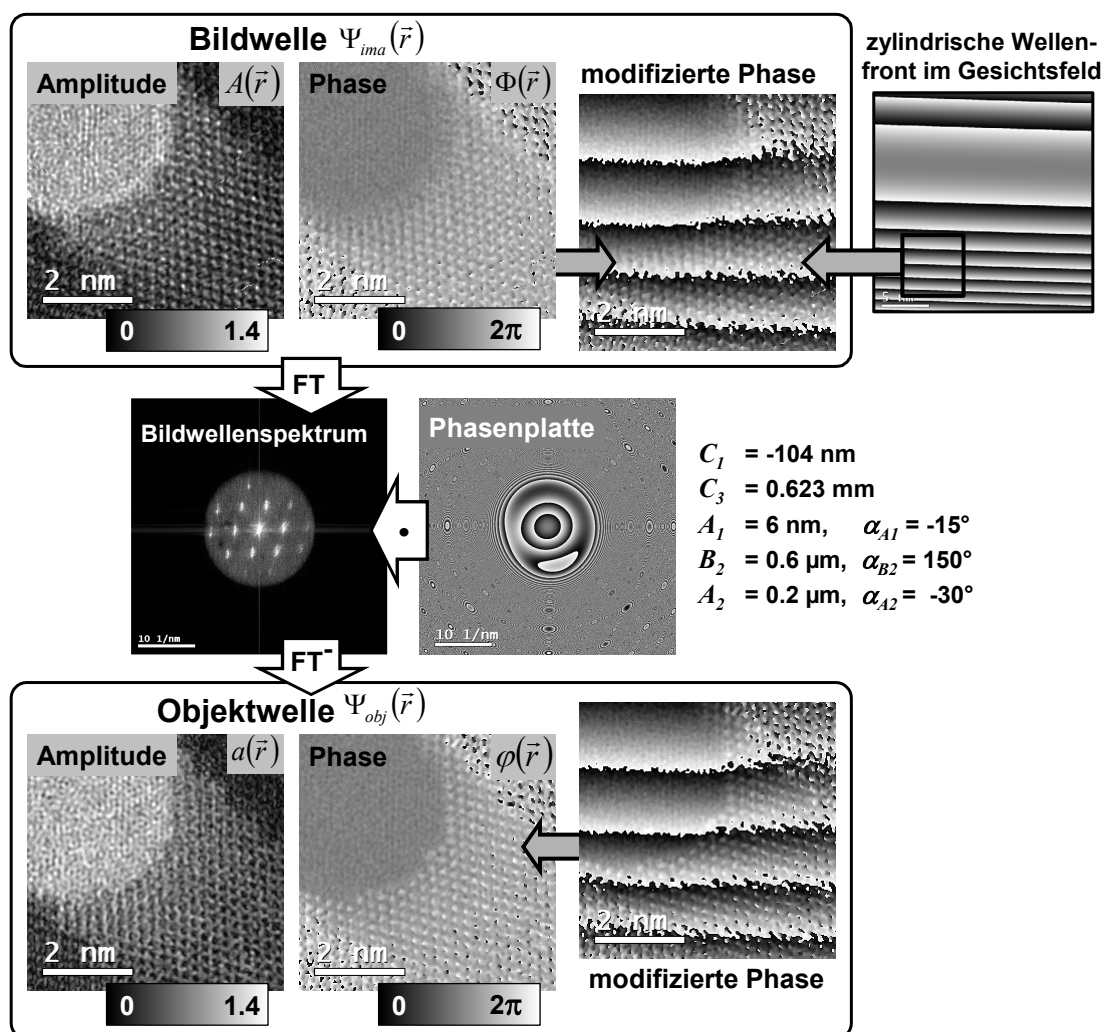


Abbildung 3.5 – Numerische Bildfehlerkorrektur: Die rekonstruierte Bildwelle wird fouriertransformiert und mit einer numerischen Phasenplatte multipliziert, die die Mikroskopaberration beschreibt. Nach inverser Fouriertransformation erhält man die bildfehlerfreie Objektwelle. Zusätzlich kann durch einen zylindrischen Offset der Phase im Ortsraum die über das Gesichtsfeld variierende Strahlkippung der elliptischen Beleuchtung nachempfunden werden. Diese Phasenkurve führt zu einem verzerrten Spektrum im Fourierraum und wird nach der Bildfehlerkorrektur im Ortsraum wieder abgezogen.

3.4 Signalauflösung

Neben der Lateralauflösung ist für die Interpretation der rekonstruierten Welle die Signalauflösung von großer Bedeutung. Da für die Aufnahme eines Elektronenhologramms nur eine begrenzte Anzahl an Elektronen zur Verfügung steht, ist die Intensität des aufgezeichneten Interferenzstreifenmusters verrauscht, folglich ebenso Amplitude und Phase der rekonstruierten Welle.

Zur Abschätzung für die Standardabweichung der rekonstruierten Amplitude und Phase dient eine modellbasierte Rekonstruktion [LENZ (1987)]: Eine beliebige diskretisierte Funktion (die Verteilung der Einschläge der N Elektronen) wird durch eine kosinusförmige Verteilung mit den Parametern Kontrast V und Phase Φ angenähert. Mit der Anzahl der Elektronen N und dem Kontrast V kann daraufhin eine Aussage über die Güte der Annäherung von V und Φ getroffen werden:

$$\sigma_V = \sqrt{\frac{2-V^2}{N}} \quad \text{und} \quad \sigma_\Phi = \frac{1}{V} \sqrt{\frac{2}{N}}; \quad (3.44)$$

neben der Abhängigkeit vom Streifenkontrast V bezeichnet N die Anzahl der detektierten Elektronen pro rekonstruiertem Pixel. Die Bedeutung der Standardabweichungen σ_V und σ_Φ ist in Abbildung 3.6 verdeutlicht.

Um die Phasenwerte zweier benachbarter rekonstruierter Pixel Φ_1 und Φ_2 mit einem bestimmten Signal-Rausch-Verhältnis snr unterscheiden zu können¹, muss für die Phasendifferenz $\Delta\Phi$ gelten:

$$\Delta\Phi = |\Phi_1 - \Phi_2| \geq snr \cdot \sigma_\Phi = \delta\Phi_{\text{lim}}. \quad (3.45)$$

Die Größe $\delta\Phi_{\text{lim}}$ wird dabei als Phasendetektionslimit bezeichnet und gibt die kleinste detektierbare Phasendifferenz zwischen zwei benachbarten rekonstruierten Pixeln an.

Das Phasendetektionslimit

$$\delta\Phi_{\text{lim}} = \frac{snr}{V} \cdot \sqrt{\frac{2}{N}} \quad (3.46)$$

beinhaltet über den Kontrast

$$V = |\mu_{sc}| \cdot \mu_{MTF} \cdot \mu_{inst} \cdot \mu_{inel} \quad (3.47)$$

die Einflüsse der partiellen Kohärenz μ_{sc} , die MTF der Kamera μ_{MTF} , die Instabilitäten des experimentellen Aufbaus μ_{inst} und im Falle eines durchstrahlten Objekts die Kontrastdämpfung durch inelastische Wechselwirkung μ_{inel} .

¹ Das so genannte Rose-Kriterium [ROSE (1948)] verlangt ein Signal-Rausch-Verhältnis von $snr = 3...5$, um das Signal sicher vom Rauschen unterscheiden zu können.

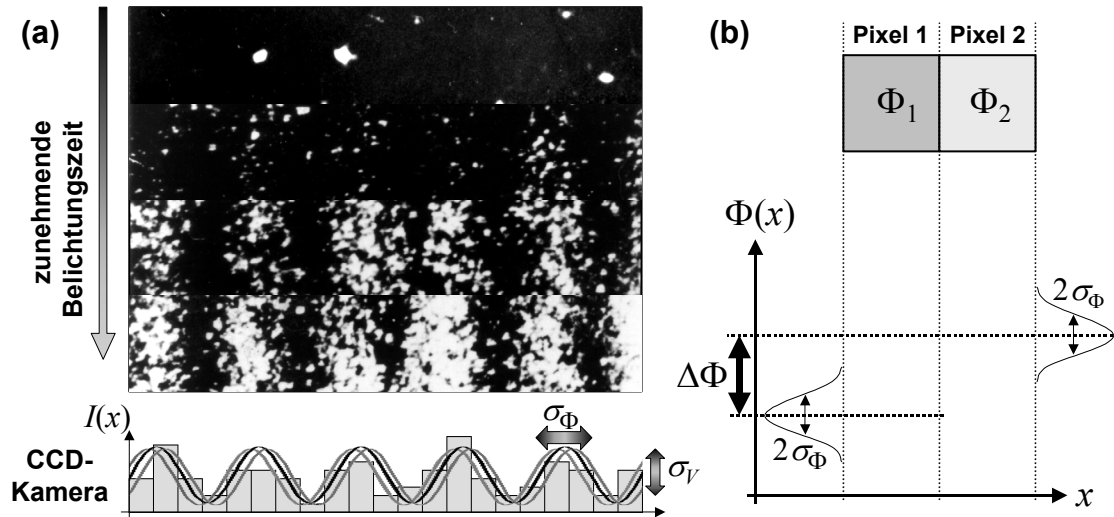


Abbildung 3.6 – Phasenrauschen: (a) Bei sehr kurzen Belichtungszeiten sind die Einschläge der einzelnen Elektronen sichtbar; ein Interferenzmuster ist nicht zu erkennen. Erst nach größerer Belichtungszeit kann in der Verteilung aller Elektroneneinschläge ein Interferenzmuster erkannt werden. Je weniger Elektronen zur Verfügung stehen, desto verrauschter ist die Intensität des Interferenzmusters und desto größer werden die Abweichungen σ_V und σ_Φ beim Fit einer kosinusförmigen Verteilung mit Kontrast V und Lateralphase Φ . (b) Um in einer σ_Φ -verrauschten Phase die Werte zweier benachbarter rekonstruierter Pixel mit einem bestimmten Signal-Rausch-Verhältnis (z.B. $\text{snr} = 5$) unterscheiden zu können, muss für die Phasendifferenz gelten: $\Delta\Phi \geq \text{snr} \cdot \sigma_\Phi$.

Die Anzahl signifikant detektierter Elektronen N hängt von der DQE der Kamera, der Belichtungszeit τ sowie der kohärenten Stromdichte j_{coh} über dem zu rekonstruierenden Pixel der Breite d_{rec} ab:

$$N = j_{coh} / e \cdot d_{rec}^2 \cdot \tau \cdot DQE. \quad (3.48)$$

e bezeichnet die Elementarladung. Aus dem kohärenten Gesamtstrom

$$I_{coh}(\mu_{sc}) = -\ln(\mu_{sc}) \frac{B}{k^2} \quad (3.49)$$

mit dem Winkelkohärenzgrad μ_{sc} und dem Richtstrahlwert der Elektronenquelle B leitet sich die kohärente Stromdichte j_{coh} über der mit dem Kohärenzgrad μ_{sc} beleuchteten Fläche ab: hier eine Kreisfläche πr^2 über der quadratischen Hologrammfläche w_{hol}^2 mit dem Radius $r = w_{hol} / \sqrt{2}$:

$$j_{coh} = \frac{I_{coh}}{\frac{\pi}{2} w_{hol}^2}. \quad (3.50)$$

Im Falle der elliptischen Beleuchtung der Elliptizität¹ ε verkleinert sich die beleuchtete Fläche parallel zum Biprismafaden; damit vergrößert sich die kohärente Stromdichte bei gleicher Winkelkohärenz senkrecht zum Biprisma zu

¹ Die hier eingeführte Größe der Elliptizität $\varepsilon = a/b$ als Quotient zwischen großer Halbachse a und kleiner Halbachse b einer Ellipse (im Allgemeinen eher ungebräuchlich) ist nicht mit der üblichen Beschreibung über die Exzentrizität e mit $e^2 = a^2 - b^2$ zu verwechseln. Für einen Kreis gilt $\varepsilon = 1$.

$$j_{coh} = \frac{I_{coh} \cdot \varepsilon}{\frac{\pi}{2} W_{hol}^2}. \quad (3.51)$$

Für die Elektronenanzahl pro Pixel N ergibt sich folglich

$$N = -\ln(|\mu_{sc}|) \frac{B}{k^2 e} \tau \varepsilon \frac{d_{rec}^2}{\frac{\pi}{2} W_{hol}^2} \cdot DQE. \quad (3.52)$$

Mit der Fläche eines rekonstruierten Pixels

$$d_{rec}^2 = \frac{1}{(2g_{max})^2} \quad (3.53)$$

ergibt sich für das Phasendetektionslimit [LICHTER (2008)]

$$\delta\Phi_{lim} = \frac{snr \sqrt{\pi} 2 g_{max} W_{hol}}{|\mu_{sc}| \mu_{MTF} \mu_{inst} \mu_{inel} \sqrt{-\ln(|\mu_{sc}|) \frac{B}{k^2 e} \varepsilon \tau \cdot DQE}}. \quad (3.54)$$

Der Ausdruck (3.54) ist durch eine Vielzahl von Parametern gegeben, lässt jedoch wenig Spielraum für eine Minimierung. Beispielsweise existiert für den Grad der Winkelkohärenz ein Optimum von $|\mu_{sc}| = 0.61$, bei dem das Phasendetektionslimit minimiert wird. Bei höherem Winkelkohärenzgrad verschlechtert sich $\delta\Phi_{lim}$ durch die geringere Dosis N ; bei niedrigerem Winkelkohärenzgrad verschlechtert sich $\delta\Phi_{lim}$ durch den geringeren Streifenkontrast V .

Während Kohärenzgrad, Belichtungszeit und Objektdicke durch den Benutzer zugänglich sind, sollten die Aspekte der Elektronenquelle, der Kamera und der Stabilität bereits beim Erwerb und Aufbau des Elektronenmikroskops bedacht werden. Dagegen sind bei der Wahl der Hologrammbreite und der Lateralauflösung die Erfordernisse der konkreten Problemstellung zu berücksichtigen: Im mittleren Auflösungsbereich werden entgegen obiger Optimierungskriterien große Hologrammbreiten benötigt; gleichzeitig kann dafür aber eine niedrige Lateralauflösung akzeptiert werden. Hingegen erfordert die Hochauflösung eine größtmögliche Lateralauflösung, gleichzeitig darf aber trotz kleiner Gesichtsfelder eine gewisse Mindesthologrammbreite nicht unterschritten werden (Abschnitt 3.2). Im Philips CM30FEG UT/Special Tübingen wird bei einer Auflösung von $g_{max} = 10 \text{ nm}^{-1}$ ein Phasendetektionslimit von $2\pi/30$ erreicht [LEHMANN (2002)].

3.5 Informationsgehalt eines Elektronenhologramms

Fasst man in Gleichung (3.54) alle Mikroskopeinflüsse zusammen in

$$NoiseFig = \frac{\sqrt{\pi}}{|\mu_{sc}| \mu_{MTF} \mu_{inst} \sqrt{-\ln(|\mu_{sc}|) \frac{B}{k^2 e} \varepsilon \tau \cdot DQE}} \quad (3.55)$$

und definiert die Anzahl unterscheidbarer Phasenwerte im Intervall $[0, 2\pi]$ als

$$n_{\Phi} = \frac{2\pi}{\delta\Phi_{lim}} = \frac{2\pi}{snr} \cdot \frac{\mu_{inel}}{NoiseFig} \cdot \frac{1}{2g_{max} w_{hol}}, \quad (3.56)$$

sowie die Anzahl rekonstruierter Pixel als

$$n_d = \frac{w_{hol}}{d_{rec}} = 2g_{max} w_{hol}, \quad (3.57)$$

so lässt sich ein Ausdruck für den Informationsgehalt eines Elektronenhologramms schreiben [LICHTE (2008)]:

$$InfoCont = n_{\Phi} \cdot n_d = \frac{2\pi}{snr} \cdot \frac{\mu_{inel}}{NoiseFig}. \quad (3.58)$$

Für ein Leerhologramm ($\mu_{inel} = 0$) ist diese Größe innerhalb jedes Elektronenmikroskops konstant. Damit lässt sich in Abhängigkeit von Hologrammbreite und Streifenabstand jederzeit abschätzen, welche Signalauflösung die aus dem Elektronenhologramm rekonstruierte Phase aufweist. Da Hologrammbreite und Streifenabstand, also n_d , sowie das Rauschen in der Phase experimentell ermittelt werden können, lässt sich der Informationsgehalt für jedes Elektronenmikroskop leicht bestimmen. Der Informationsgehalt am Philips CM200FEG ST/LL-Elektronenmikroskop beträgt $InfoCont \approx 7000$.

3.6 Zusammenfassung

Die off-axis Elektronenholografie ist eine äußerst leistungsstarke Methode zur Objektcharakterisierung an der Leistungsgrenze der Elektronenmikroskopie.

Nach umfassender Rekonstruktion steht eine komplexe Welle zur Verfügung, deren rekonstruierte Amplitude und Phase im Gegensatz zu einem Intensitätsbild sauber voneinander getrennt sind. Dank linearer Kontrastübertragung kann die rekonstruierte Welle direkt in Bezug auf Objekteigenschaften interpretiert werden. Bei der holografischen Aufnahme sind keine Zugeständnisse an Kontrasttransferfunktionen notwendig und durch das „Herausmitteln“ inelastischer Kontrastbeiträge liegt eine quasi-„zero-loss“ ($<10^{-15}$ eV) energiegefilterte Welle vor.

Die a-posteriori-Korrektur der Aberrationen bringt den Vorteil, dass alle kohärenten Aberrationen numerisch korrigiert werden können. Die Korrektur der höheren Bildfehlerordnungen, die einem Hardware-Korrektiv unzugänglich sind, und des Restdefokus lässt die Delokalisierung vollständig verschwinden.

Die holografische Auswertung bietet einzigartige Möglichkeiten, wie die Untersuchung von Amplitude und Phase einzelner Reflexe sowie „Nano-Diffraction“, der Analyse von Beugungsbildern kleinster Flächen (z.B. $\sim 2 \times 2 \text{ nm}^2$). Diese „Werkzeuge“ ermöglichen beispielsweise den Zugang zur lokalen Restverkipfung der durchstrahlten Objekte.

All diese Errungenschaften stehen nach der Aufnahme von nur einem einzigen off-axis Elektronenhologramm des Objekts zur Verfügung und erweitern damit die Möglichkeiten der konventionellen Mikroskopie erheblich.

4 Spezielle Aspekte der off-axis Holografie

Bei der holografischen Aufzeichnung und Rekonstruktion ist eine Vielzahl von Einflüssen zu beachten. Die dominanten Einflüsse bei der Aufnahme von Hologrammen sind das Biprisma, die Abbildung mittels Linsen und die Aufzeichnung mit einer CCD-Kamera.

1. Biprisma:

Mit dem Biprisma befindet sich in Hinsicht auf die Abbildung ein störendes Objekt im Strahlengang. Als Folge auf die Abschattung durch den Biprismafaden treten Vignettierung und Fresnel'sche Beugung auf [LICHTE (1996A)]. Vignettierung bewirkt eine ortsabhängige Abschattung des Bildwellenspektrums in einem Bereich des Hologramms. Die effektiv nutzbare Hologrammbreite verringert sich dadurch um bis zu einem Drittel. Die Fresnel'schen Beugungssäume des Biprismas sind darin begründet, dass es nicht in der Zwischenbildebene sondern etwas oberhalb positioniert ist. Der damit verbundene Propagationseffekt führt einerseits zu einer übergeordneten Modulation der Hologrammintensität und damit zu einer Beeinflussung von Amplitude und Phase, die mittels leerem Referenzhologramm nur teilweise eliminiert werden kann. Zum anderen verursacht dieser Defokuseffekt eine Kontrastdämpfung der Interferenzstreifen (Abschnitt 3.1.2). Die Kontrastdämpfung in einem objektmodulierten Hologramm ist im Detail jedoch weit komplizierter als bislang in einem leeren Interferenzstreifenmuster betrachtet. Das erste Unterkapitel dieses Abschnitts widmet sich der ausführlichen Darstellung dieser Problematik.

2. Linsen:

Neben den Biprisma-spezifischen Besonderheiten treten bei der elektronenoptischen Abbildung Verzeichnungen auf. Diese sind insbesondere die anisotrope Vergrößerung und Verzerrungen des Gesichtsfelds. Letztere bewirken eine ortsabhängige zusätzliche Verschiebung der Interferenzstreifen, d.h. eine zusätzliche Phasenschiebung der rekonstruierten Welle; sie werden hauptsächlich durch die letzte Projektivlinse verursacht, da dort das zu übertragende Gesichtsfeld am größten ist. Während sich diese künstlich induzierten Phasenschiebungen in der rekonstruierten Welle mittels leerem Referenzhologramm sehr gut eliminieren lassen, ist die laterale Verschiebung des Signals durch derartige Verzeichnungen schwieriger zu handhaben: Nach einer umfassenden Analyse der vorliegenden Verzeichnungen gelingt dies durch eine pixelweise Interpolation der rekonstruierten Signale entsprechend der zuvor bestimmten Verzeichnungskarte [LUBK (2010)].

Im zweiten Teil dieses Kapitels wird dazu die anisotrope Vergrößerung im Cs-korrigierten Tecnai F20 Cs-corr TEM des Triebenberglabors genauer untersucht und eine numerische Lösung dieses Problems vorgestellt.

3. Kamera:

Zusätzlich zur bereits beschriebenen Kontrastdämpfung durch die MTF der Kamera treten weitere störende Effekte bei der Benutzung von CCD-Kameras auf. Dies sind zum einen die Verzeichnungen der Faseroptik, die den Szintillator mit dem CCD-Chip verbinden, jedoch glücklicherweise durch das Leerhologramm weitestgehend korrigiert werden können (Abschnitt 3.2). Zum anderen verursacht der Detektor neben der ohnehin verrauschten Intensität zusätzliches Rauschen [DE RUIJTER (1995)]. Die für quantitative Analyse erforderliche Korrektur der MTF verstärkt das Rauschen im Hologramm enorm. Einerseits kann durch Rauschfilterung der aufgenommen Intensitäten eine Reduzierung des Rauschens erreicht werden, andererseits verursacht die damit verbundene räumliche Mittelung gravierende Artefakte. Der Einsatz eines Wiener-Filters zeigt in diesem Zusammenhang bedeutende Verbesserungen und wird im Abschnitt 4.3 beschrieben. Weiterhin kommt es durch vereinzelt Röntgen-Einschläge zu sogenannten „Hot and Dead Pixels“, die in negativen oder viel zu großen Pixelwerten resultieren. Werden diese nicht erkannt und berücksichtigt, pflanzen sie sich im holografischen Rekonstruktionsprozess fort und verursachen massiv Artefakte.

In einer umfassenden Rekonstruktionsprozedur gilt es, durch konsequente Beachtung der oben beschriebenen Einflüsse die Auswirkungen des Mikroskops zu minimieren und Artefakte zu vermeiden. Dazu bedarf es vor der eigentlichen holografischen Rekonstruktion einer gründlichen Vorbereitung der aufgezeichneten Intensität von Objekt- und Referenzhologramm [WOLF (2004), LINCK (2009B)]:

- selektive Glättung der „Hot and Dead Pixel“,
- Wiener-Filterung der Hologrammintensität (im Detail: Abschnitt 4.3.2),
- MTF-Korrektur,
- Filterung der Modulationen durch Fresnel'sche Beugung am Biprisma, und
- Multiplikation von Fensterfunktionen (z.B. Hanning-Fenster [RIFE (1970)]) zur Periodisierung im Ortsraum und Minimierung des Windowing-Effekts [LICHTE (1996A)].

In der anschließenden holografischen Rekonstruktion werden weitere Artefakte reduziert; durch

- Sinc-förmige Ausschneidefunktionen zur Trennung von Zentralband und Seitenband,
- Korrektur der Verzeichnungen in der Phase und Normierung der Amplitude durch das leere Referenzhologramm,
- numerische Korrektur der kohärenten Aberrationen (Kapitel 3.3),
- numerische Korrektur der anisotropen Vergrößerung (Abschnitt 4.2), und
- Wiener-Filterung der komplexen Welle (Abschnitt 4.3.3).

Die hier zusammengefasste Prozedur erlaubt es, die Objektwelle nahezu frei von Artefakten mit sehr hoher Qualität, d.h. Lateral- und Signalauflösung, zu rekonstruieren. Dies erlaubt es schließlich, Modulationen von Amplitude und Phase eindeutig den Objekteigenschaften zuzuordnen zu können.

4.1 Partielle räumliche Kohärenz im Hologramm

Bislang wurde der Einfluss der partiellen Kohärenz bezüglich der Abbildung des Objekts und des Interferenzstreifenkontrasts separat betrachtet: Die Mittelung über Beleuchtungsapertur und Energiebreite führen in der Bildwelle zu Dämpfungsfunktionen im Fourierraum und im Interferenzstreifenmuster zur Dämpfung des Streifenkontrasts im Ortsraum. Im Folgenden wird gezeigt, dass eine gemeinsame Mittelung bezüglich partieller räumlicher Kohärenz zu einem anderen Ergebnis führt als die in Kapitel 2.3.2 und 3.1.2 separat durchgeführten Mittelungen. Wie auch zuvor wird vereinfachend angenommen, dass kleine Verkippungen der Beleuchtungsrichtung die Interaktion der Welle mit dem Objekt nicht beeinflussen. Da die zeitliche Kohärenz den Interferenzstreifenkontrast innerhalb des Gesichtsfelds nicht nachweisbar beeinflusst, wird diese hier nicht betrachtet.

Um die Abbildung durch das Objektiv und die Ablenkung durch das Biprisma gleichzeitig zu betrachten, wird die Ausbreitung der Welle in mehrere Schritte zerlegt [KOCH (2010)]:

- Das Objekt wird aus unterschiedlichen Richtungen \vec{g}_{ill} beleuchtet:

$$\Psi_1(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) = \Psi_{obj}(\vec{r}) \cdot \exp\{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}\}. \quad (4.1)$$

- Die Objektwelle propagiert durch die bildfehlerbahaftete Linse in die Bildebene:

$$\Psi_2(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) = \Psi_1(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \otimes PSF(\vec{r}). \quad (4.2)$$

Die Point-Spread-Funktion der Wellenaberration ist dabei unabhängig von der Beleuchtungsrichtung; die Änderung der effektiven Aberrationen unter Kippung der Beleuchtung (vgl. Anhang A1) ergibt sich aus der Richtungsabhängigkeit der Objektwellen (4.1).

- Durch Rückpropagation der Bildwelle in die Biprismaebene im Abstand b erhält man die Welle

$$\Psi_3(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) = \Psi_2(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \quad (4.3)$$

mit dem Fresnel-Propagator (Defokus-Term)

$$P(\Delta z) = \mathbf{FT}^{-1} \left[\exp \left\{ -i \cdot 2\pi k \cdot \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\vec{g}}{k} \right)^2 \right\} \right] = \frac{k}{i \Delta z} \cdot \exp \left\{ i \cdot \frac{\pi k}{\Delta z} \cdot \vec{r}^2 \right\}. \quad (4.4)$$

Da die Welle bezogen auf die Objektebene betrachtet wird, ist die Propagationslänge b um die Zwischenbildvergrößerung M verkleinert.

- Es folgt die Ablenkung durch das Biprisma

$$\Psi_4(\vec{r}) = \Psi_3(\vec{r}) \cdot \exp\left\{2\pi i \frac{\vec{g}_C}{2} \vec{r}\right\} \quad (4.5)$$

- und die Vorwärtspropagation der abgelenkten Bildwelle in die Bildebene

$$\Psi'_{ima}(\vec{r}) = \Psi_4(\vec{r}) \otimes P\left(\frac{b}{M}\right). \quad (4.6)$$

Die resultierende Bildwelle besitzt dann die Gestalt

$$\Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) = \left\{ \left[\left(\Psi_{obj}(\vec{r}) \cdot \exp\{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}\} \right) \otimes PSF(\vec{r}) \right] \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \cdot \exp\left\{2\pi i \frac{1}{2} \vec{g}_C \vec{r}\right\} \right\} \otimes P\left(\frac{b}{M}\right) \quad (4.7)$$

und analog die Referenzwelle mit entgegen gerichteter Ablenkung

$$\Psi'_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) = \left\{ \left[\left(A_0 \cdot \exp\{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}\} \right) \otimes PSF(\vec{r}) \right] \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \cdot \exp\left\{-2\pi i \frac{1}{2} \vec{g}_C \vec{r}\right\} \right\} \otimes P\left(\frac{b}{M}\right). \quad (4.8)$$

Die Überlagerung der beiden Wellen formt bezüglich der Beleuchtungsrichtung \vec{g}_{ill} die Intensität

$$I_{\vec{g}_{ill}}(\vec{r}) = \left[\Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) + \Psi'_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \right] \cdot \left[\Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) + \Psi'_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \right]^*. \quad (4.9)$$

Durch Mittelung über die Beleuchtungsrichtungen entsprechend der normierten zweidimensionalen Verteilungsfunktion

$$F(\vec{g}_{ill}) = \frac{1}{\pi \cdot (k\theta_C)^2} \cdot \exp\left\{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}\right\} \quad \text{mit} \quad \int F(\vec{g}_{ill}) d\vec{g}_{ill} = 1 \quad (4.10)$$

ergibt die Gesamtintensität

$$I(\vec{r}) = \int I_{\vec{g}_{ill}}(\vec{r}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \quad (4.11)$$

im Detail den Ausdruck

$$\begin{aligned}
I(\vec{r}) = & \left. \begin{aligned} & \int \Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \\ & + \int \Psi'_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \\ & + \int \Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \\ & + \int \Psi'_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \end{aligned} \right\} \begin{array}{l} \mathbf{ZB} \\ \mathbf{SB} + \\ \mathbf{SB} - \end{array} \left\{ \begin{array}{l} I_{CB}^{ima}(\vec{r}) \\ I_{CB}^{ref}(\vec{r}) \\ I_{SB}(\vec{r}). \end{array} \right. \quad (4.12)
\end{aligned}$$

Der Anteil der Bildwelle am Zentralband (ZB)

$$I_{CB}^{ima}(\vec{r}) = \int \Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \quad (4.13)$$

kann nach intensiver Umformung (Anhang A4) geschrieben werden als

$$\begin{aligned}
I_{CB}^{ima}(r) = & \int \left[\Psi_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \exp\left\{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}\right\} \otimes \delta(\vec{r} + \vec{r}_D) \right] \\ & \cdot \left[\Psi_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \exp\left\{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}\right\} \otimes \delta(\vec{r} + \vec{r}_D) \right]^* \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill}. \quad (4.14)
\end{aligned}$$

und repräsentiert die konventionelle Intensität der gekippten Bildwelle mit konstanter Bildverschiebung

$$\vec{r}_D = -\frac{b}{2M} \cdot \frac{\vec{g}_c}{k}. \quad (4.15)$$

Dies ist die Verschiebung, die in der Bildebene zu sehen ist, sobald eine elektrische Spannung an das Biprisma angelegt wird. Da sowohl diese Bildverschiebung als auch die Kippung der Welle für alle Beleuchtungsrichtungen \vec{g}_{ill} gleich ist, lässt sich nachfolgend die Mittelung über die Intensitätsbeiträge der Beleuchtungsrichtungen gemäß Kapitel 2.3.2 durchführen; damit besitzt das Biprisma für die Kontraste in der konventionellen Bildintensität keine Auswirkungen.

Analog wird die Zentralbandintensität der Referenzwelle behandelt, bei der sich lediglich eine entgegengesetzte Bildverschiebung ergibt:

$$\begin{aligned}
I_{CB}^{ref}(r) = & \int \left[\Psi_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \exp\left\{-2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}\right\} \otimes \delta(\vec{r} - \vec{r}_D) \right] \\ & \cdot \left[\Psi_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \exp\left\{-2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}\right\} \otimes \delta(\vec{r} - \vec{r}_D) \right]^* \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill}. \quad (4.16)
\end{aligned}$$

Für eine leere Referenzwelle $\Psi_{ref} = A_0$ bricht dieser Intensitätsanteil auf den Ausdruck

$$I_{CB}^{ref}(r) = A_0^2 \quad (4.17)$$

zusammen.

Die Seitenbandintensität

$$I_{SB}(\vec{r}) = \int \Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \\ + \int \Psi'_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \quad (4.18)$$

führt nach einigen Umformschritten und der Integration über die Beleuchtungsverteilung (Anhang A5) zu der Intensitätskomponente:

$$I_{SB}(\vec{r}) = 2A_0 \cdot A(\vec{r} + \vec{r}_D) \cdot \cos[2\pi \vec{g}_C \vec{r} + \Phi(\vec{r} + \vec{r}_D)] \otimes psf_{sc}(\vec{r}). \quad (4.19)$$

Diese beschreibt die Interferenz einer verkippten leeren Referenzwelle mit der bildfehlerbehafteten, verkippten, um \vec{r}_D verschobene Objektwelle. Der Kontrast der Interferenzstreifen wird durch die Dämpfungsfunktion

$$psf_{sc}(\vec{r}) = \mathbf{FT}^{-1} [E_S'^{lin}(\vec{g}, \vec{g}_C)] \quad (4.20)$$

verschmiert. Die darin enthaltene erweiterte lineare Enveloppe

$$E_S'^{lin}(\vec{g}, \vec{g}_C) = \exp\left\{-\left[\frac{k}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g}) - \pi \vec{g}_C \frac{b}{M}\right]^2 \theta_c^2\right\} \quad (4.21)$$

lautet nach Ausschreiben des Exponentialterms

$$E_S'^{lin}(\vec{g}, \vec{g}_C) = \exp\left\{-\left[\frac{k\theta_c}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g})\right]^2 + \sqrt{2}\pi k \frac{b}{M} \theta_c \vec{g}_C \nabla \chi(\vec{g}) - \left[\pi \vec{g}_C \frac{b}{M} \theta_c\right]^2\right\} \\ = E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot \exp\left\{\sqrt{2}\pi k \frac{b}{M} \theta_c \vec{g}_C \nabla \chi(\vec{g})\right\} \cdot |\mu_{sc}| \quad (4.22)$$

und beinhaltet sowohl die Kontrastdämpfung der Objektstruktur in Form der linearen Enveloppe $E_S^{lin}(\vec{g})$ (vgl. Abschnitt 2.3.3), die Kontrastdämpfung $|\mu_{sc}|$ der Interferenzstreifen (vgl. Abschnitt 3.1.2) und darüber hinaus einen nicht separierbaren Mischterm beider Einflüsse. Diese Beiträge führen zu einer komplizierten Dämpfung der Objektstruktur im Seitenband. Der Vorgang lässt sich so verstehen, dass die beleuchtungsrichtungsbedingte Verschiebung der Streifen unter dem Biprisma vom Gradienten der Wellenaberration für unterschiedliche Objektfrequenzen teilweise kompensiert, teilweise aber auch verstärkt wird. Bei der Mittelung über alle Beleuchtungsrichtungen führt dies schlussendlich bezüglich des Ursprungs im Seitenband zu einer asymmetrischen Dämpfung der unterschiedlichen Objektfrequenzanteile. Abbildung 4.1 zeigt die berechnete Dämpfung innerhalb des Seitenbandes durch $E_S'^{lin}(\vec{g})$ im Philips CM200. Es wird zu Vereinfachung der Fall

dargestellt, bei dem die Trägerfrequenz mit $\vec{g}_C = (g_C, 0)$ genau in g_x -Richtung zeigt (in ähnlicher Form [GEIGER (2008B)]):

$$E_S^{\text{lin}}(g_x, g_y, g_C) = \exp \left\{ - \left[\frac{k}{\sqrt{2}} \frac{\partial \chi(\vec{g})}{\partial g_x} - \pi g_C \frac{b}{M} \right]^2 \cdot \theta_{CX}^2 - \left[\frac{k}{\sqrt{2}} \frac{\partial \chi(\vec{g})}{\partial g_y} \right]^2 \cdot \theta_{CY}^2 \right\}. \quad (4.23)$$

Durch die elliptische Beleuchtung mit dem Halbachsenverhältnis ε wird die Beleuchtungsapertur θ_C richtungsabhängig: $\vec{\theta}_C = (\theta_{CX}, \theta_{CY}) = \left(\frac{\theta_C}{\varepsilon}, \theta_C \right)$. Zur Berechnung der Enveloppe wurden verwendet: $\theta_C = 0.0015$ rad, $\varepsilon = 20$, $g_C = 20 \text{ nm}^{-1}$, $b = 2$ mm, $M = 50$ und $k = 400 \text{ nm}^{-1}$ (200 keV-Elektronen). Für das konventionelle TEM wurde eine Fokussierserie mit $-500 \text{ nm} \leq C_1 \leq +100 \text{ nm}$ (100 nm-Schrittweite) bei konstanter sphärischer Aberration $C_3 = 1.23$ mm simuliert. Innerhalb der Fokussierserie zeigt sich, wie sich die unterschiedlichen Dämpfungsbeiträge vom Biprisma und von der Wellenaberration der Objektivlinse teils kompensieren und teils verstärken.

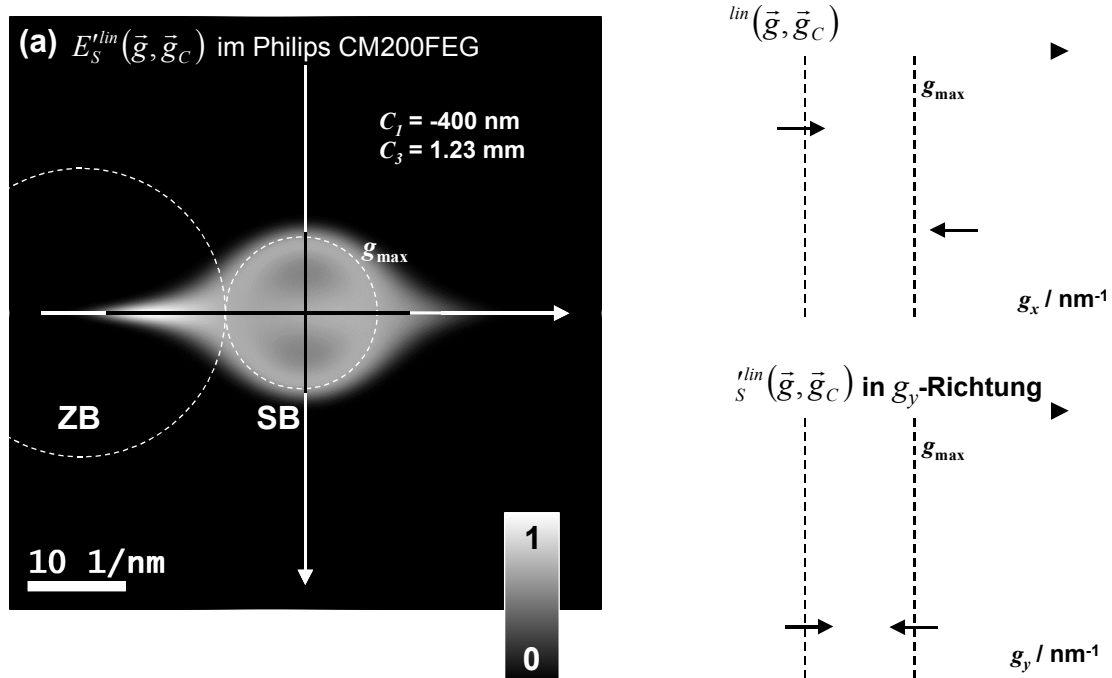


Abbildung 4.1 – Partielle räumliche Kohärenz im Seitenband: (a) Die lineare Enveloppe der partiellen räumlichen Kohärenz innerhalb des Seitenbands (SB) ist durch die elliptische Beleuchtung in Richtung der Trägerfrequenz auseinander gezogen und asymmetrisch (b). Die Einschnürung mittlerer Raumfrequenzen findet nur in der Richtung senkrecht dazu statt (c). Die Kontrastdämpfung im Seitenbandzentrum entspricht dem Dämpfungsfaktor der partiellen räumlichen Kohärenz $|\mu_{sc}|$ und entspricht mit $\sim 65\%$ in etwa dem optimalen Kohärenzgrad. Für höhere Frequenzen im Seitenband bewirkt der Aberrationsgradient eine Dämpfung in Form der räumlichen Enveloppe; da dieser Dämpfungseinfluss mit dem des Biprismas gekoppelt ist, wird die Kontrastdämpfung teils kompensiert und teils verstärkt. Um den komplizierten Zusammenhang zu illustrieren, zeigen die Profile (b) und (c) die resultierende Gesamtdämpfung für eine simulierte Fokussierserie am Philips CM200 TEM (in Pfeilrichtung von $C_1 = -500$ nm bis $+100$ nm in 100 nm Schritten). Das Informationslimit g_{\max} deutet den Bereich an, der experimentell tatsächlich zugänglich ist. Die Positionen von Zentralband (ZB) und Seitenband (SB) sind in (a) angedeutet.

Eine experimentelle Untersuchung dieser Effekte wird derzeit noch durch die chromatische Aberration erschwert. Der im Rahmen der linearen chromatischen Enveloppe $E_C^{lin}(\vec{g})$ tatsächlich übertragene Bereich ist in Abbildung 4.1 durch das Informationslimit g_{max} angedeutet.

Für den Optimum-Defokus (Abschnitt 2.3.5) besitzt diese neue ausführlichere Beschreibung keine Konsequenzen, da dieser auf eine Minimierung der PSF der Wellenaberration abzielt und dies ausschließlich den Aberrationsgradienten ohne die Einflüsse des Biprismas optimiert. Das bildfehlerkorrigierte TEM profitiert davon, dass der Aberrationsgradient nahezu bedeutungslos wird und somit eine gleichmäßige Dämpfung aller Frequenzanteile vorliegt (Abschnitt 5.1.1).

4.2 Anisotrope Vergrößerung

Der Hexapol-Aberrations-Korrektor ist ein kompliziertes elektronenoptisches System, bestehend aus Transferlinsen, magnetischen Ablenkern (Dipolen), Stigmatoren (Quadrupolen) und den Hexapol-Elementen. Der Elektronenstrahl wird im Korrektor in vielerlei Kombinationen gedreht, ablenkt, verzerrt, wieder entzerrt etc. Das richtige Zusammenspiel der Elemente erlaubt es zwar, die kohärente Wellenaberration zu korrigieren und atomare Auflösung zu erzielen, doch gleichzeitig besitzt für materialwissenschaftliche Anwendungen ein großes Gesichtsfeld eine hohe Bedeutung. Es erweist sich als sehr anspruchsvolle Aufgabe, das gesamte Gesichtsfeld verzerrungsfrei auf die Kamera zu übertragen. Wenn beispielsweise lokal die Änderung der Gitterkonstante an Kristallbaufehlern oder an Schichtgrenzen gemessen werden soll, kann die Auswertung bei verzerrter Abbildung durch das TEM zu Fehlinterpretationen führen.

Im Rahmen dieser Arbeit fiel bei der Messung von Gitterkonstanten in diversen Aufnahmen auf, dass das Tecnai F20 Cs-corr TEM eine nicht zu vernachlässigende Bildverzerrung aufweist. In Abbildung 4.2 ist zu sehen, dass die kubische Struktur von Silizium durch anisotrope Vergrößerung rhombisch verzerrt abgebildet wird.

In der Tat ist dieses Problem bei CEOS bekannt und eine Abhilfe durch spezielle Anregung einiger Korrektivkomponenten möglich [HARTEL (2009)]. Um dennoch die Interpretation der bisher erzielten Ergebnisse zu verbessern, wird im Folgenden eine numerische Lösung dieses Problems angeboten.

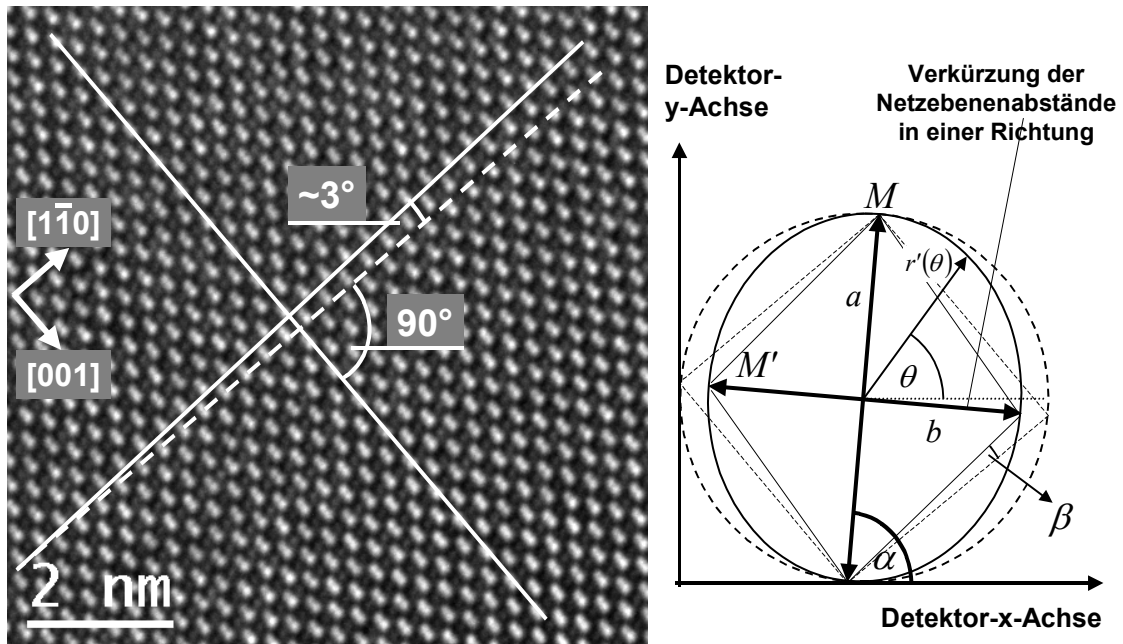


Abbildung 4.2 – Verzerrung durch anisotrope Vergrößerung im Tecnai F20 Cs-corr: Eine Richtung der Bildebene erfährt die Vergrößerung M , während die Richtung senkrecht dazu um $M' < M$ vergrößert wird. Dies führt dazu, dass ein Kreis als Ellipse abgebildet wird und ein Quadrat mit den Diagonalen entlang der Hauptachsen dieser Ellipse näherungsweise zu einem Rhombus deformiert wird. Dadurch zeigt die Aufnahme von Silizium in $[110]$ -Orientierung beim Ausmessen des Winkels zweier orthogonaler Netzebenen eine Abweichung von $2\beta \approx 3^\circ$. Die Aufnahme wurde von Dr. Dorin Geiger (Triebenberglabor, TU Dresden) durchgeführt. Die Probe wurde von Dr. Martin Hýtch (CEMES, Toulouse) zur Verfügung gestellt.

4.2.1 Charakterisierung der Verzerrung

Der Einfluss einer anisotropen Vergrößerung wurde bereits in früheren Arbeiten detailliert untersucht [LICHTE (1996A)]. In jedem Fall muss die geometrische Verzeichnung genau charakterisiert werden, um diese korrigieren zu können. Für die Verzeichnung wird angenommen, dass sie über das von der CCD-Kamera erfasste Gesichtsfeld konstant ist. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da insbesondere bei der höchstaflösenden Elektronenholografie lediglich sehr kleine Gesichtsfelder aufgenommen werden. Des Weiteren muss gewährleistet sein, dass keinerlei Verzerrung in der Probe vorliegt, damit Probeneinflüsse und Mikroskopeinflüsse klar voneinander getrennt werden können. Auch dies ist der Fall, da es sich bei der Aufnahme um einkristallines Silizium handelt und die betreffende Probenstelle frei von Versetzungen ist und nicht am Probenrand liegt.

Um die anisotrope Vergrößerung hinreichend zu beschreiben, ist es notwendig, den Winkel α und die maximale Anisotropie M/M' (vgl. Abbildung 4.2) zu bestimmen. Zur Bestimmung der Verzerrung werden aus dem Spektrum der Silizium-Aufnahme von Abbildung 4.2 die Netzebenenabstände $d_{hkl}^{\text{exp}} = 1/g_{hkl}$ unterschiedlicher Richtungen analysiert und mit den theoretischen Netzebenenabständen d_{hkl}^{th} verglichen. Abbildung 4.3 zeigt die azimuthale Verteilung der Verhältnisse von Experiment und Referenzmodell.

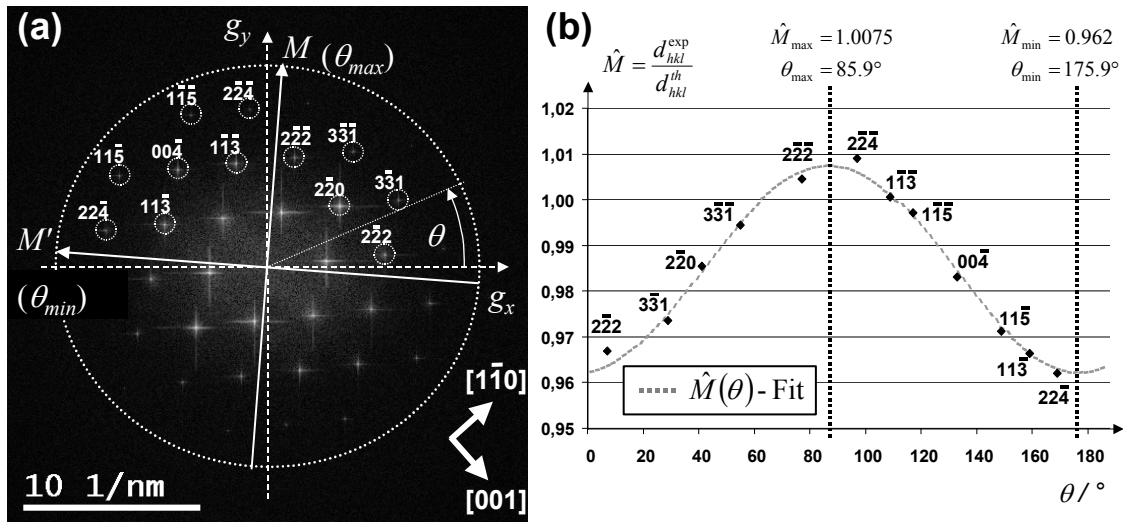


Abbildung 4.3 – Analyse der anisotropen Vergrößerung: (a) Aus dem Diffraktogramm der Silizium-Aufnahme aus Abbildung 4.2 wurden die Netzebenenabstände ermittelt und (b) ins Verhältnis zu den theoretischen erwarteten Netzebenenabständen gesetzt. Da gegenüberliegende Reflexe redundant sind, genügt es, den Bereich $0 \leq \theta \leq 180^\circ$ auszuwerten. Die azimutale Verteilung dieser Verhältnisse zeigt die unterschiedliche Vergrößerung in den Richtungen senkrecht zueinander. Die Maximalvergrößerung beträgt 102.4% der mittleren Vergrößerung und immerhin 104.7% der Minimalvergrößerung.

Bei anisotroper Vergrößerung ist das Verhältnis

$$\hat{M}(\theta) = \frac{d_{hkl}^{\text{exp}}(\theta)}{d_{hkl}^{\text{th}}} \quad (4.24)$$

in einer Richtung größer als in der Richtung senkrecht dazu. Als Fit dient das Verhältnis r'/r zwischen dem Radius einer Ellipse r' und dem Radius des Umkreises $r = a$ dieser Ellipse (vgl. Abbildung 4.2). Mit der Parameterdarstellung einer Ellipse

$$x(\theta) = a \cdot \cos(\theta - \alpha) \quad \text{und} \quad y(\theta) = b \cdot \sin(\theta - \alpha) \quad (4.25)$$

(große Hauptachse a , kleine Hauptachse b , vgl. Abbildung 4.2) ergibt das Verhältnis der Radien die winkelabhängige Größe

$$\frac{r'(\theta)}{r} = \frac{\sqrt{x^2(\theta) + y^2(\theta)}}{a} = \sqrt{\cos^2(\theta - \alpha) + \left(\frac{b}{a}\right)^2 \cdot \sin^2(\theta - \alpha)}. \quad (4.26)$$

Wegen

$$\frac{b}{a} = \frac{M'}{M} \quad (4.27)$$

gilt auch

$$\frac{r'(\theta)}{r} = \sqrt{\cos^2(\theta - \alpha) + \left(\frac{M'}{M}\right)^2 \cdot \sin^2(\theta - \alpha)}. \quad (4.28)$$

Ein verbleibender isotroper Kalibrierungsfehler kann durch einen zusätzlichen Vorfaktor K berücksichtigt werden:

$$\hat{M}(\theta) = K \cdot \frac{r'(\theta)}{r} = K \cdot \sqrt{\cos^2(\theta - \alpha) + \left(\frac{M'}{M}\right)^2 \cdot \sin^2(\theta - \alpha)}. \quad (4.29)$$

Mittels Least-Square-Fit [WOLFRAM (2003)] wurden die folgenden Parameter bestimmt:

$$\begin{aligned} \text{Kalibrierungsfehler:} & \quad K = 0.962 \\ \text{Vergrößerungsanisotropie:} & \quad M'/M = 1.047 \\ \text{Drehwinkel gegenüber x-Achse:} & \quad \alpha = 175.9^\circ \end{aligned} \quad (4.30)$$

4.2.2 Numerische Korrektur der Verzerrung

Die Korrektur der Vergrößerungsanisotropie ist in Abbildung 4.4 (a) illustriert. Das gesamte Gesichtsfeld wird um den Winkel $-\alpha$ gedreht, so dass sich die Korrektur auf die zeilenweise Kompression des Bildes um M'/M vereinfacht. Das nunmehr isotrop vergrößerte Gesichtsfeld wird um den Winkel $+\alpha$ zurück gedreht, um die anfängliche Orientierung der Aufnahme wieder herzustellen. Schlussendlich wird die Kalibrierung der Pixelgröße um den Faktor K korrigiert, so dass alle Abstände in allen Richtungen θ korrekt ausgewertet werden können.

Um Interpolationsartefakte zu minimieren, wird dieser Prozess mit einer einzelnen Interpolation bewerkstelligt. Die Verzerrung wird durch die Anwendung der Matrix D auf die Pixel-Positionen (x_i, y_j) beschrieben:

$$\begin{pmatrix} x'_i \\ y'_j \end{pmatrix} = D \cdot \begin{pmatrix} x_i \\ y_j \end{pmatrix}. \quad (4.31)$$

Die Matrix

$$D = R_2 \cdot \text{Mag} \cdot R_1, \quad (4.32)$$

besteht aus den Rotationsmatrizen

$$R_1 = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & -\sin(\alpha) \\ \sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad R_2 = R_1^{-1} = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & \sin(\alpha) \\ -\sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \quad (4.33)$$

sowie der Vergrößerungsmatrix

$$\text{Mag} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{M'}{M} \end{pmatrix} \quad (4.34)$$

und lautet folglich

$$D = \begin{pmatrix} \frac{M'}{M} \sin^2(\alpha) + \cos^2(\alpha) & (\frac{M'}{M} - 1) \sin(\alpha) \cos(\alpha) \\ (\frac{M'}{M} - 1) \sin(\alpha) \cos(\alpha) & \sin^2(\alpha) + \frac{M'}{M} \cos^2(\alpha) \end{pmatrix}. \quad (4.35)$$

Zur Korrektur wird die Matrix invertiert und auf alle Pixelkoordinaten (x', y') angewendet:

$$\begin{pmatrix} x_i \\ y_j \end{pmatrix} = D^{-1} \cdot \begin{pmatrix} x'_i \\ y'_j \end{pmatrix}. \quad (4.36)$$

Die invertierte Verzerrungsmatrix – und damit die Korrekturmatri – besitzt die Gestalt

$$D^{-1} = \begin{pmatrix} \cos^2(\alpha) + \frac{M}{M'} \sin^2(\alpha) & \cos(\alpha) \sin(\alpha) \left[\frac{M}{M'} - 1 \right] \\ \cos(\alpha) \sin(\alpha) \left[\frac{M}{M'} - 1 \right] & \sin^2(\alpha) + \frac{M}{M'} \cos^2(\alpha) \end{pmatrix}. \quad (4.37)$$

Abbildung 4.4 zeigt die korrigierte Aufnahme aus Abbildung 4.2. Da die Vergrößerung nun isotrop ist, sind orthogonale Netzebenen auch tatsächlich orthogonal abgebildet. Nachweislich stimmen die Netzebenenabstände von Silizium mit den theoretisch erwarteten Werten überein.

Für eine holografisch erfasste Welle ist die Verzerrungskorrektur ebenso möglich. Dazu werden Real- und Imaginärteil der Welle separat entzerrt. Prinzipiell könnten auch Amplitude und Phase oder sogar das Elektronenhologramm entzerrt werden. Da jedoch hochfrequente Information, wie z.B. Phasensprünge oder Hologrammstreifen, deutlich stärker unter Interpolationsartefakten zu leiden haben, sind Real- und Imaginärteil für die Verzeichnungskorrektur vorzuziehen.

Die ermittelte Verzeichnung beeinflusst neben der aufgezeichneten Intensität und damit der rekonstruierten Bildwelle auch die Messung der vorliegenden Bildfehler. Damit ist es erforderlich, zunächst die numerische Bildfehlerkorrektur mit eben diesen fehlerbehafteten Aberrationskoeffizienten durchführen, und erst danach die numerische Entzerrung zu bewerkstelligen.

4.2.3 Bildfehlermessung unter anisotroper Vergrößerung

Maßgeblich für eine Korrektur der Aberrationen mittels Hardware ist die akkurate Bestimmung der Bildfehlerkoeffizienten. Um die Güte der Bildfehlerbestimmung unter anisotroper Vergrößerung zu testen, wurde zunächst eine Defokusserie von Diffraktogrammen simuliert. Als Objektwelle dient ein schwaches Phasenobjekt gaußförmigen Rauschens ($\sigma_\varphi = 0.2$ rad) mit konstanter Amplitude ($A = 1$). Das Gesichtsfeld entspricht mit $40 \times 40 \text{ nm}^2$ bei 1024^2 Pixeln einer ~ 610000 -fachen elektronenoptischen Gesamtvergrößerung, einem üblichen Wert am Tecnai F20 Cs-corr. Durch den Abbildungsvorgang mit einem geringen Öffnungsfehler ($C_3 = -0.05 \text{ mm}$) sowie einem Defokus ($-200 \text{ nm} \leq C_1 \leq 0 \text{ nm}$, 20 nm Schrittweite) wird ein Teil des Rauschens in die Bildamplitude und damit in die Intensität übertragen.

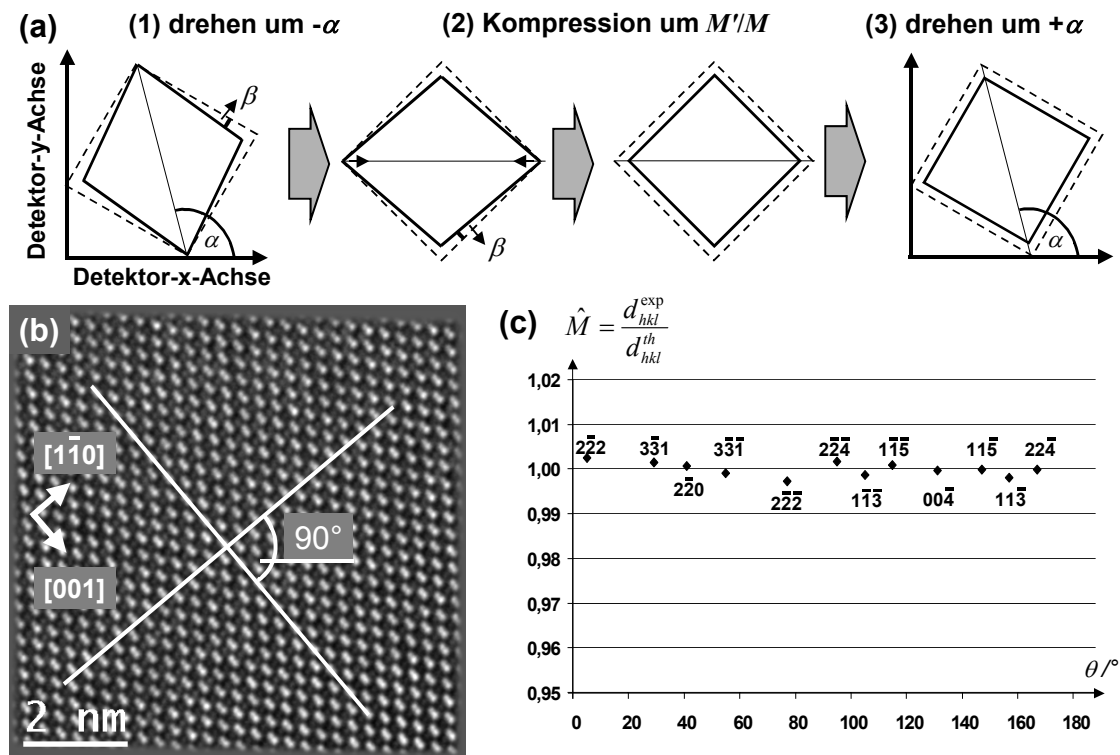


Abbildung 4.4 – Numerische Korrektur der anisotropen Vergrößerung durch Entzerrung: (a) Durch Drehen um den Winkel $-\alpha$ vereinfacht sich die Korrektur der anisotropen Vergrößerung um eine zeilenweise Kompression des Bildes. Schließlich wird durch Drehen um den Winkel $+\alpha$ die ursprüngliche Orientierung des nunmehr verzerrungsfreien Bildes wiederhergestellt. (b) Die Entzerrung der Aufnahme aus Abbildung 4.2 geht nahezu artefaktfrei vonstatten, lediglich in den Randbereichen sind Verschiebungseffekte erkennbar. Senkrecht zueinander stehende Netzebenen sind nun tatsächlich orthogonal abgebildet. (c) Der Vergleich der Netzebenenabstände aus dem entzerrten, rekalierten Datensatz mit den theoretischen d_{hkl} zeigt in azimuthaler Abhängigkeit eine gleichmäßige Vergrößerung in alle Richtungen. Die Skalierung der Ordinate ist zu Vergleichszwecken gegenüber Abbildung 4.3 (b) identisch gewählt.

Diese Intensität wird entsprechend der im Abschnitt 4.2.1 ermittelten anisotropen Vergrößerung verzerrt. Durch Analyse der zugehörigen Diffraktogramme wird anschließend der Defokus C_1' sowie der zweizählige Astigmatismus (A_1' ; $\alpha_{A1'}$) ermittelt. Wie in Abbildung 4.5 zu sehen ist, wird – obwohl beim Abbildungsvorgang nicht vorhanden – ein zweizähliger Astigmatismus A_1' in der Richtung der Vergrößerungsanisotropie ermittelt. Zudem weicht der gemessene Defokus C_1' vom simulierten Unterfokus ab. Die Vergrößerungsanisotropie wird nachweislich als Astigmatismus fehlgedeutet, obwohl der zweizählige Astigmatismus quadratisch mit der Raumfrequenz g in die Aberrationsfunktion $\chi(g)$ eingeht, während sich die anisotrope Vergrößerung linear in g auswirkt. Tatsächlich wird dieser Umstand auch dazu benutzt, um Verzeichnungen zu messen [HARTEL (2009)]. Das Problem der Bildfehlerbestimmung wird dadurch verschärft, dass Diffraktogramme verrauscht sind und oftmals nur wenige Transferlücken zur Auswertung genutzt werden können¹. Dies wird offensichtlich, wenn der Fehler der Bildfehlerbestimmung analysiert wird. Dieser steigt mit zunehmend fehl interpretiertem Astigmatismus stark an.

¹ Für das hier simulierte Beispiel wurden die ersten vier Transferlücken zur Bestimmung von C_1 und (A_1 , α_{A1}) herangezogen.

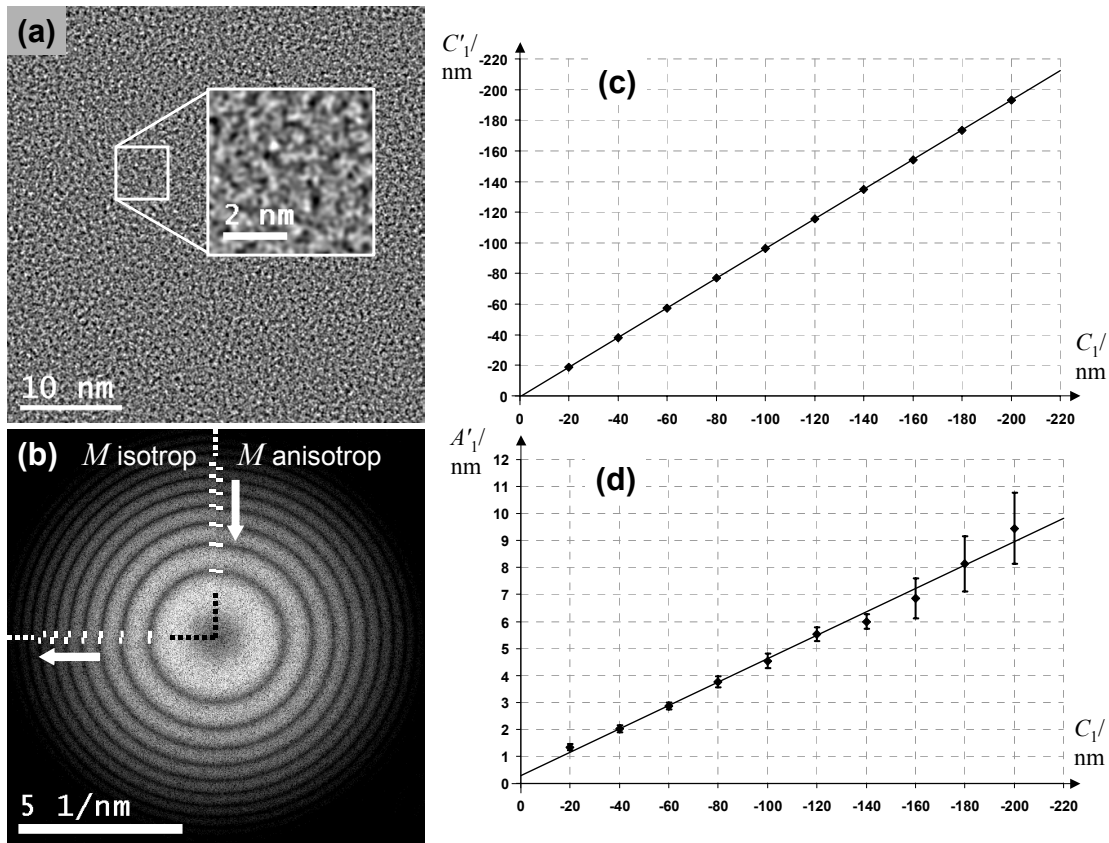


Abbildung 4.5 – Einfluss der anisotropen Vergrößerung auf die Bildfehlerbestimmung: (a) Die Welle einer dünnen amorphen Folie wird durch ein schwaches Rauschen in der Phase und eine konstante Amplitude simuliert. Nach Berücksichtigung der Bildfehler wird die Bildintensität berechnet und durch numerische Bildverzerrung die anisotrope Vergrößerung simuliert. Der vergrößerte Ausschnitt zeigt die typische Struktur bei der Abbildung einer amorphen Folie. (b) Das Diffraktogramm zeigt den Vergleich zwischen isotroper und anisotroper Vergrößerung. Die zur Bildfehlerbestimmung herangezogenen Transferlücken sind bei anisotroper Vergrößerung richtungsabhängig leicht verschoben. Der ermittelte Defokus (c) ist unter anisotroper Vergrößerung etwas kleiner als ursprünglich simuliert. Dafür wird ein zusätzlicher Astigmatismus (d) in die Richtung der Vergrößerungsanisotropie festgestellt. Der Fehler der Aberrationsbestimmung nimmt mit ansteigendem Defokus dabei überproportional zu.

Des Weiteren stellt sich die Frage, wie sich die anisotrope Vergrößerung bei der Bestimmung der Bildfehlerkoeffizienten höherer Ordnung mittels Zernin-Tableau auswirkt. Ein Blick auf die kohärente Wellenaberration χ unter gekippter Beleuchtung (Anhang A1) zeigt, dass die Ermittlung der höheren Bildfehlerglieder eine genaue Bestimmung des nach Strahlkipfung effektiven Astigmatismus und effektiven Defokus voraussetzt. Gerade dies ist nach Abbildung 4.5 nicht mehr gegeben. Daher werden im Folgenden Diffraktogramm-Kippserien mit und ohne anisotrope Vergrößerung simuliert und mittels CEOS-Software ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.6 und Tabelle 4.1 dargestellt und zeigen, dass unter anisotroper Vergrößerung deutliche Unterschiede bei den Bildfehlerkoeffizienten zu finden sind. Als dominierend erweist sich der zweizählige Astigmatismus erster Ordnung A_1 ; aber auch die Aberrationen höherer Ordnung weichen – wenn auch nicht stark – von den tatsächlichen Werten ab. Es ist äußerst schwierig über Defokus C_1 und Astigmatismus A_1 hinaus eine Systematik in den Abweichungen zu erkennen. Als Ergebnis dieses Abschnitts verbleibt somit die Warnung, dass die anisotrope Vergrößerung einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss auf die Qualität der Aberrationskorrektur ausübt.

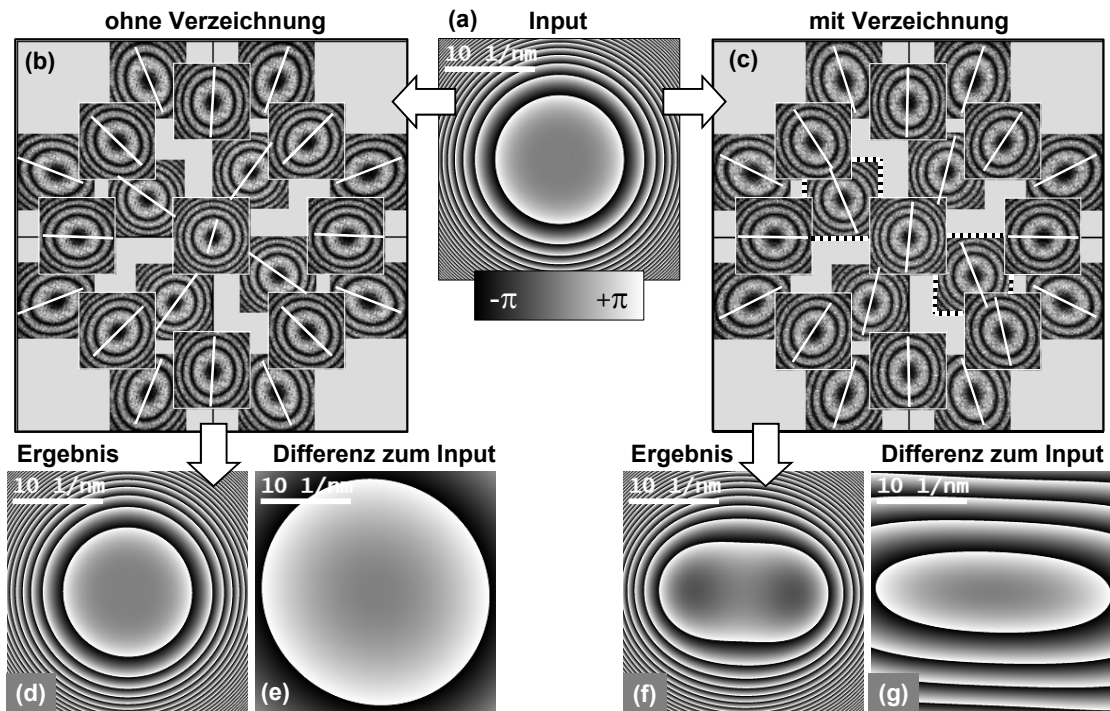


Abbildung 4.6 – Bildfehlermessung durch Diffraktogramm-Kippserien unter anisotroper Vergrößerung: (a) Ausgehend von der simulierten Wellenaberration mit $C_1 = -200 \text{ nm}$ und $C_3 = -50 \text{ }\mu\text{m}$ wurden Diffraktogramm-Kippserien (b) ohne und (c) mit Verzerrung simuliert und anschließend die Bildfehler mit der CEOS-Software bestimmt: (d) und (f). Während unter isotropen Bedingungen (e) die Differenz zum Input gering ausfällt, wird im anisotropen Fall (g) ein beträchtlicher zweizähliger Astigmatismus ermittelt. Zudem ignoriert die CEOS-Software beim Fit der Aberrationsfunktion die zwei inneren Diffraktogramme, deren Astigmatismus nicht ins Zentrum zeigt (c: gepunktet eingerahmt). Die Ergebnisse sind im Detail in Tabelle 4.1 aufgelistet.

	Simulation		M isotrop		M anisotrop	
C_1	-200 nm		-197.3 nm		-188.7 nm	
A_1, α_{A1}	0 nm	0°	0.193 nm	96.4°	9.406 nm	176°
A_2, α_{A2}	0 nm	0°	0.004 nm	136.5°	1.666 nm	62.3°
B_2, α_{B2}	0 nm	0°	0.034 nm	-29.6°	0.312 nm	-44.5°
C_3	50 μm		49.71 μm		47.62 μm	
A_3, α_{A3}	0 nm	0°	13.04 nm	-111.5°	199.7 nm	-105.5°
S_3, α_{S3}	0 nm	0°	42.52 nm	92.3°	814.8 nm	1.4°
A_4, α_{A4}	0 nm	0°	4.322 nm	-9.3°	1.406 nm	111.2°

Tabelle 4.1 – Input und Output der aus den simulierten Diffraktogramm-Kippserien bestimmten Bildfehlerkoeffizienten: Unter anisotroper Vergrößerung weichen die ermittelten Bildfehler, insbesondere Defokus und Astigmatismus, deutlich von den tatsächlichen Werten ab.

4.3 Rauschfilterung

In vielen physikalischen Messverfahren limitiert eine geringe Signalauflösung die Interpretierbarkeit der Ergebnisse. Nicht nur bei bildgebenden Verfahren erfordert das stark verrauschte aufgezeichnete Signal eine Rauschfilterung. Insbesondere bei der hoch auflösenden Elektronenmikroskopie, wo auf kleinster Größenskala viele periodische Strukturen auftreten, hat sich eine Art der Fourierfilterung durchgesetzt, die gezielt Raumfrequenzen aus dem Spektrum des Originalbildes ausschneidet und auf diese Weise periodisch wiederkehrende Strukturen „bevorzugt“. Die so genannte Bragg-Filterung produziert mitunter jedoch sehr stark Artefakte in den Bereichen ohne periodische Struktur und mittelt die nicht immer periodisch auftretenden Objektdetails nahezu über das gesamte Gesichtsfeld. In der Mikroskopie sind jedoch gerade die nicht periodischen Details von Interesse. Um verrauschte nichtperiodische Details dennoch gut interpretieren zu können, präsentiert dieser Abschnitt mit dem Wiener-Filter ein Rauschfilter mit überragenden Eigenschaften in Bezug auf Artefakte und Mittelung gegenüber dem herkömmlichen Bragg-Filter (Abschnitt 4.3.4). Das Wiener-Filter hat sich in der konventionellen Hochauflösungsmikroskopie bereits bewährt [MARKS (1996)], wurde bislang in der Elektronenholografie nach bestem Wissen jedoch noch nie eingesetzt. Es zeigt sich, dass dieses Filter sowohl für die Hologrammintensität (Abschnitt 4.3.2) als auch für die rekonstruierte Welle (Abschnitt 4.3.3) ein sehr nützliches Werkzeug darstellt.

4.3.1 Das Wiener-Filter und Wiener-ähnliche Filter

Für die folgende Betrachtung wird angenommen, dass Signal und Rauschen unkorreliert und additiv sind:

$$s_M(\vec{r}) = s(\vec{r}) + \text{noise}(\vec{r}). \quad (4.38)$$

Dies ist keineswegs gerechtfertigt; tatsächlich handelt es sich zumeist um multiplikatives Rauschen. An dieser Stelle würde dies die Beschreibung jedoch hochgradig erschweren. Das gemessene Signal s_M , das Rauschen noise und das tatsächliche Signal s können sowohl Intensitäten als auch komplexe Zahlen im Sinne einer komplexen Welle repräsentieren. Dabei kann das Rauschen in komplexen Zahlen zwischen Real- und Imaginärteil bzw. Amplitude und Phase unabhängig oder korreliert sein. Da das Objekt Amplitude und Phase gleichzeitig moduliert, muss hier von einer Korrelation ausgegangen werden.

Die Linearität der Fouriertransformation erlaubt es, die Annahme (4.38) in den Fourierraum zu übertragen:

$$\begin{aligned} FT[s_M(\vec{r})] &= FT[s(\vec{r})] + FT[\text{noise}(\vec{r})] \\ \Rightarrow S_M(\vec{g}) &= S(\vec{g}) + \text{NOISE}(\vec{g}). \end{aligned} \quad (4.39)$$

Um den Anteil des Rauschens zu minimieren, bedarf es einer Funktion $F(\vec{g})$ (im Folgenden als Filter bezeichnet), die auf das Signalspektrum angewendet wird:

$$\tilde{S}(\vec{g}) = F(\vec{g}) \cdot S_M(\vec{g}). \quad (4.40)$$

Im Idealfall entspricht das gefilterte Signal $\tilde{S}(\vec{g})$ gerade der Größe $S(\vec{g})$.

Drei ähnliche Filter $F(\vec{g})$ bieten sich für diese Idee an. Unterschiedliche Annahmen zur Gestalt des Rauschens führen einerseits zum Wiener-Filter $F_W(\vec{g})$ (auch „optimum filter“) [WIENER (1942)], zum Cannon-Filter $F_C(\vec{g})$ (auch als „homomorphes Filter“ bezeichnet) [CANNON (1977)] und zum Background-Subtraction-Filter $F_U(\vec{g})$ [z.B. KILAAS (1998)].

Das Wiener-Filter besitzt die Gestalt

$$F_W(\vec{g}) = \frac{|S_M(\vec{g})|^2 - |NOISE(\vec{g})|^2}{|S_M(\vec{g})|^2} = 1 - \frac{1}{SNR(\vec{g})^2}, \quad (4.41)$$

das Cannon-Filter entspricht mit

$$F_C(\vec{g}) = \sqrt{\frac{|S_M(\vec{g})|^2 - |NOISE(\vec{g})|^2}{|S_M(\vec{g})|^2}} = \sqrt{1 - \frac{1}{SNR(\vec{g})^2}} \quad (4.42)$$

gerade der Quadratwurzel des Wiener-Filters und das Background-Subtraction-Filter lautet

$$F_U(\vec{g}) = \frac{|S_M(\vec{g})| - |NOISE(\vec{g})|}{|S_M(\vec{g})|} = 1 - \frac{1}{SNR(\vec{g})}. \quad (4.43)$$

Für jedes der Filter gilt

$$F(\vec{g}) := 0, \text{ falls } SNR(\vec{g}) < 1, \text{ d.h. } |S_M(\vec{g})| < |NOISE(\vec{g})| \quad (4.44)$$

Damit folgt

$$0 \leq F(\vec{g}) \leq 1. \quad (4.45)$$

Die Charakteristik der Filter ist in Abbildung 4.7 als Abhängigkeit der Signal-Rausch-Verhältnisse SNR dargestellt und zeigt die unterschiedliche Dämpfung für geringe Signal-Rausch-Verhältnisse SNR .

Für jedes der Filter steht dasselbe Problem im Raum: Welche Gestalt besitzt der Rauschuntergrund $NOISE(\vec{g})$? Zur Bestimmung des Rauschanteils existieren mehrere Ansätze, die z.T. bereits in kommerzieller Software für (zu) viel Geld zu erwerben sind [ISHIZUKA (2007)]. Leider lässt diese Software den Nutzer nur wenig Spielraum bei der Auswahl der Filter-Einstellungen und agiert weitestgehend als „Blackbox“ – eine nicht zufrieden stellende Lösung für die quantitative Bildverarbeitung in der off-axis Holografie.

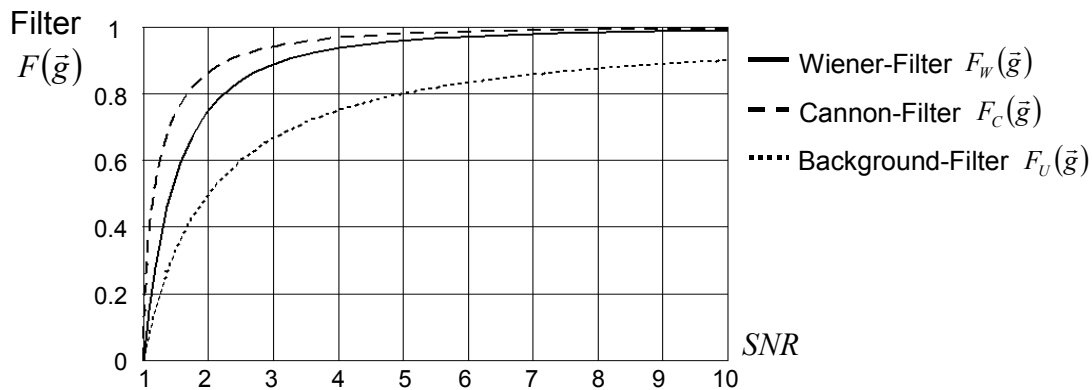


Abbildung 4.7 – Dämpfungsverhalten des Wiener-, Cannon- und Background-Filters in Abhängigkeit vom Signal-Rausch-Verhältnis SNR: In den Grenzbereichen verhalten sich alle Filtertypen gleich, d.h. sie schneiden unterhalb von $SNR = 1$ (d.h. $Noise \geq Signal$) das verrauschte Signal komplett weg, während die Dämpfung für große SNR gering wird. Im Bereich kleiner SNR-Werte gibt es jedoch signifikante Unterschiede.

Um Abhilfe zu schaffen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Programm für die Bildverarbeitungsplattform DigitalMicrograph [GATAN (2006)] geschrieben. Die Bestimmung des verrauschten Untergrunds beruht auf einer modifizierten Variante des radialen Mittelwerts im Fourierraum, bei dem es dem Nutzer erlaubt ist, interaktiv Artefakte zu entfernen und alle Parameter des Filters zu verändern.

Der Programmablauf sei hier kurz skizziert und in Abbildung 4.8 dargestellt:

- An das Datenfeld $s_M(\vec{r})$ werden keine Anforderungen gestellt: Es kann sowohl ein amorphes oder kristallines Objekt repräsentieren, aber auch „leer“ sein (Vakuum).
- Vom gemessenen Datenfeld $s_M(\vec{r})$, Abbildung 4.8 (a), wird eine Fouriertransformation durchgeführt und dargestellt (b).
- Der Benutzer maskiert mit dem vordefinierten Werkzeug die Bragg-Reflexe sowie weitere zu ignorierende Frequenzanteile (c) und legt den generell zu filternden Frequenzbereich sowie den prozentualen Anteil des zu unterdrückenden Rauschuntergrunds und den Typ des Filters fest (d).
- Im Hintergrund des Programms wird zum ursprünglichen Datenfeld $S_M(\vec{g})$ ein „Hanning-Window“ zur Unterdrückung von Artefakten der Nichtperiodizität multipliziert [RIFE (1970)]. Sowohl Maske als auch Spektrum werden in Polarkoordinaten transformiert (e und f).
- An den durch die Maske zugelassenen Pixeln wird eine frequenzabhängige Histogrammanalyse durchgeführt (g). Das Histogramm folgt einer Rayleighverteilung, aus deren Mittelwert der wahrscheinlichste Wert abgeleitet wird (siehe Anhang A6). Dieser stellt für den jeweiligen Betrag g der Raumfrequenz den Untergrund $NOISE(g)$ dar (h).
- Als Zwischenschritt wird der ermittelte Untergrund $NOISE(g)$ zusammen mit dem radial gemittelten Originalspektrum angezeigt, um dem Nutzer die Gelegenheit zu bieten, auf mögliche Artefakte aus z.B. unzureichend maskierten Bragg-Reflexen durch Anpassen der Einstellungen zu reagieren (d). Diese vorbereitende Prozedur kann beliebig oft wiederholt werden. Zumeist genügen ein bis zwei Anpassungsschritte für eine gute Abschätzung des Untergrunds.

- Akzeptiert der Nutzer den ermittelten Untergrund, wird dieser in den 2D-Fourierraum erweitert und mit der Amplitude des ursprünglichen Spektrum $|S_M(\vec{g})|$ zur Berechnung des zuvor ausgewählten Filters $F(\vec{g})$ mittels Gln. (4.41) - (4.44) herangezogen. Das Filter wird auf das komplexe Spektrum $S_M(\vec{g})$ des verrauschten Datenfeldes angewendet und führt nach inverser Fouriertransformation zum gefilterten Datenfeld $\tilde{s}(\vec{r})$ im Ortsraum.
- Um größtmögliche Kontrolle über den Programmablauf zu gewährleisten, kann sich der Benutzer das berechnete Filter $F(\vec{g})$ sowie das Residuum $\tilde{s}(\vec{r}) - s_M(\vec{r})$ des gefilterten Datensatzes im Ortsraum anzeigen lassen.

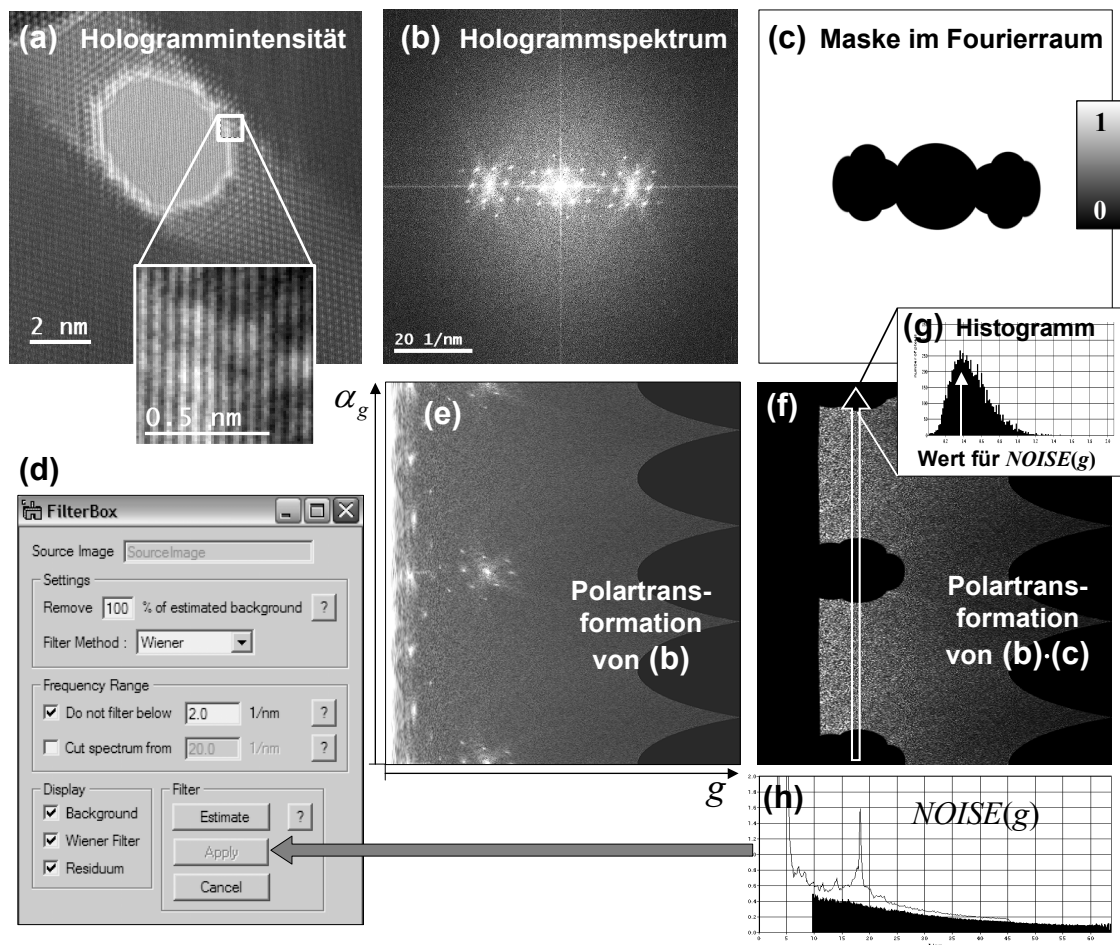


Abbildung 4.8 – Programmablauf für Anwendung des Wiener-Filters

Zur Filterung konventioneller HRTEM-Aufnahmen sei das gemessene Signal durch die reellen Intensitätswerte der CCD-Kamera gegeben: $s_M(\vec{r}) := I(\vec{r})$. Da das Spektrum $S_M(\vec{g})$ der reellen Eingangsgröße symmetrisch bzgl. \vec{g} ist, sind auch das Rauschen $NOISE(\vec{g})$ und die daraus abgeleitete Filterfunktion $F(\vec{g})$ symmetrisch bzgl. \vec{g} . Das resultierende gefilterte Spektrum $\tilde{S}(\vec{g}) = F(\vec{g}) \cdot S_M(\vec{g})$ bleibt damit symmetrisch und repräsentiert nach inverser Fouriertransformation $\tilde{I}(\vec{r}) := FT^{-1}[\tilde{S}(\vec{g})]$ wieder eine reelle Größe. Anders ist dies bei holografisch gemessenen Wellen, bei denen als gemessenes Signal eine komplexe Zahl mit Real- und Imaginärteil, bzw. Amplitude und Phase vorliegt: $s_M(\vec{r}) := \Psi(\vec{r})$. Die entsprechenden Größen im Fourierraum sind nicht

notwendigerweise symmetrisch bzgl. \vec{g} , so dass Rauschen, Filterfunktion und modifiziertes Spektrum ebenfalls unsymmetrische Größen sind und die gefilterte Welle im Ortsraum schließlich wieder eine komplexe Größe repräsentiert: $\tilde{\Psi}(\vec{r}) := \mathbf{FT}^{-1}[\tilde{S}(\vec{g})]$. Diese Art der Filterung, die darauf basiert, im Fourierraum durch radiale Mittelung den Untergrund zu ermitteln und zu reduzieren, funktioniert jedoch nicht für die innersten Bereiche des Spektrums. Wo nur wenige Fourier-Pixel für die radiale Mittelung zur Verfügung stehen, wird der Untergrund falsch abgeschätzt. Dies hat im Ortsraum entsprechend großflächige, künstliche Kontrastvariationen zur Folge. Aus diesem Grund wurde die Möglichkeit gegeben, einen Schwellwert für die Raumfrequenz \vec{g} anzugeben, unterhalb dessen keine Filterung des Spektrums stattfindet.

4.3.2 Wiener-Filterung der Hologrammintensität

Die Besonderheit des Wiener-Filters für Hologrammintensitäten besteht darin, dass ein Untergrund für alle Frequenzanteile im Seitenband bestimmt werden kann, also auch für den Ursprung des Seitenbands und die damit verbundenen großflächigen Details. Dagegen lässt sich für große Objektdetails im Zentralband gewöhnlich kein sinnvoller Untergrund bestimmen, da für die radiale Mittelung zu wenig Information zur Verfügung steht.

Abbildung 4.9 zeigt die Bestimmung des Wiener-Filters für ein Hologrammspektrum. Aus der Amplitude des Spektrums (a) und dem ermittelten radialen Untergrund (b) wird ein frequenzabhängiges Signal-Rausch-Verhältnis $SNR(\vec{g})$ ermittelt (c). Mit Hilfe der Formeln (4.41)-(4.44) lässt sich daraus das Filter $F(\vec{g})$ berechnen (d). Das hohe Signal-Rausch-Verhältnis innerhalb der Seitenbänder und der nichtperiodischen Details („Streaks“) ist dank logarithmischer Darstellung deutlich erkennbar. Eben genau diese Details werden durch die Filterfunktion entsprechend hoch gewichtet und nur wenig gedämpft. Im Gegensatz dazu findet sich in den äußeren Bereichen der Seitenbänder ein deutlich geringeres SNR . Für diese Details folgt im Filter $F(\vec{g})$ eine entsprechend geringere Gewichtung, jedoch nicht zwangsläufig eine komplette Dämpfung.

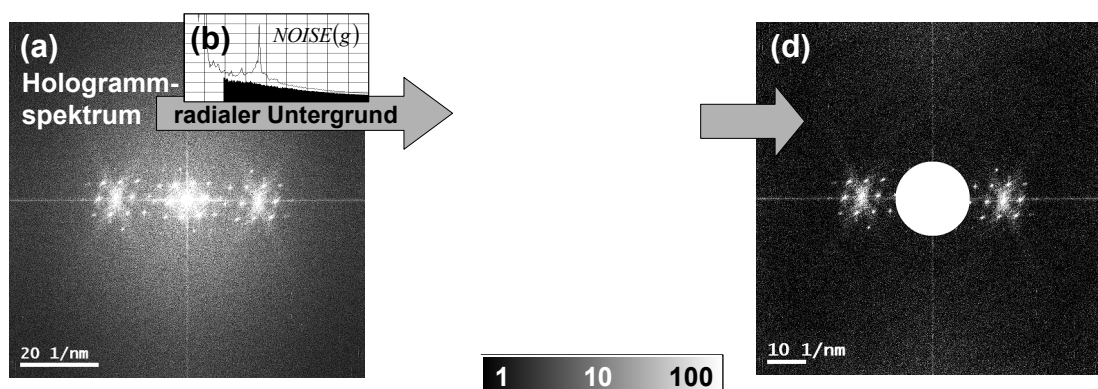


Abbildung 4.9 – Signal-Rausch-Verhältnis im Hologrammspektrum und Wiener-Filter: Das Filter bewahrt die Details, deren Frequenzbeiträge ein hohes Signal-Rausch-Verhältnis mit dem zuvor ermittelten Untergrund liefern.

Nach Anwendung des Filters $F(\vec{g})$ auf das ursprüngliche Hologrammspektrum und inverser Fouriertransformation steht die gefilterte Hologrammintensität im Ortsraum für

die weitere Auswertung zur Verfügung. Als Indikator für eine taugliche Rauschreduktion dient das Filter-Residuum, also die Differenz zwischen ursprünglicher und gefilterter Intensität. Zeigt dieses keinerlei Streifendetails, so wurde der Untergrund im Fourierraum sinnvoll ermittelt. Abbildung 4.10 zeigt die ursprüngliche (a) und die gefilterte Hologrammintensität (b) sowie das ermittelte Residuum (c).

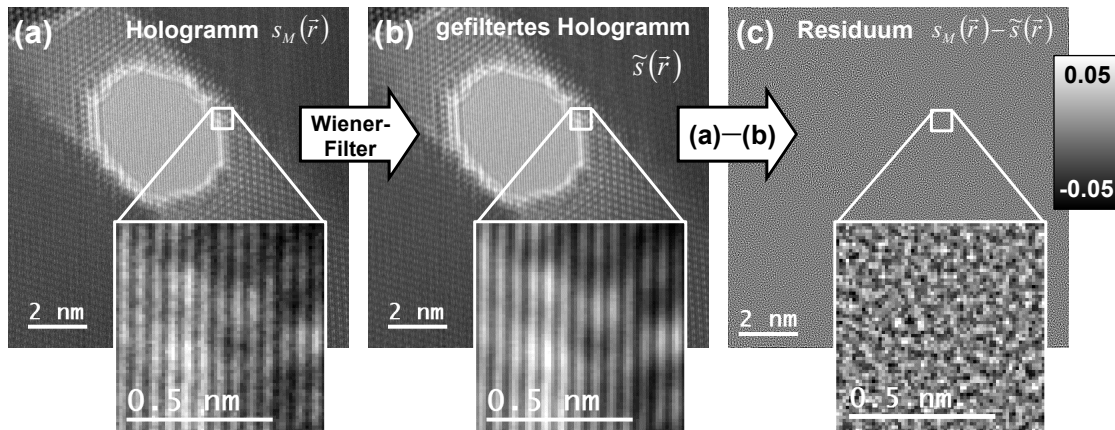


Abbildung 4.10 – Wiener-Filterung der Hologrammintensität und Residuum des gefilterten Ergebnisses. Die Graustufen des Residuums geben die relative Abweichung bezüglich der ursprünglichen mittleren Intensität an ($\pm 5\%$).

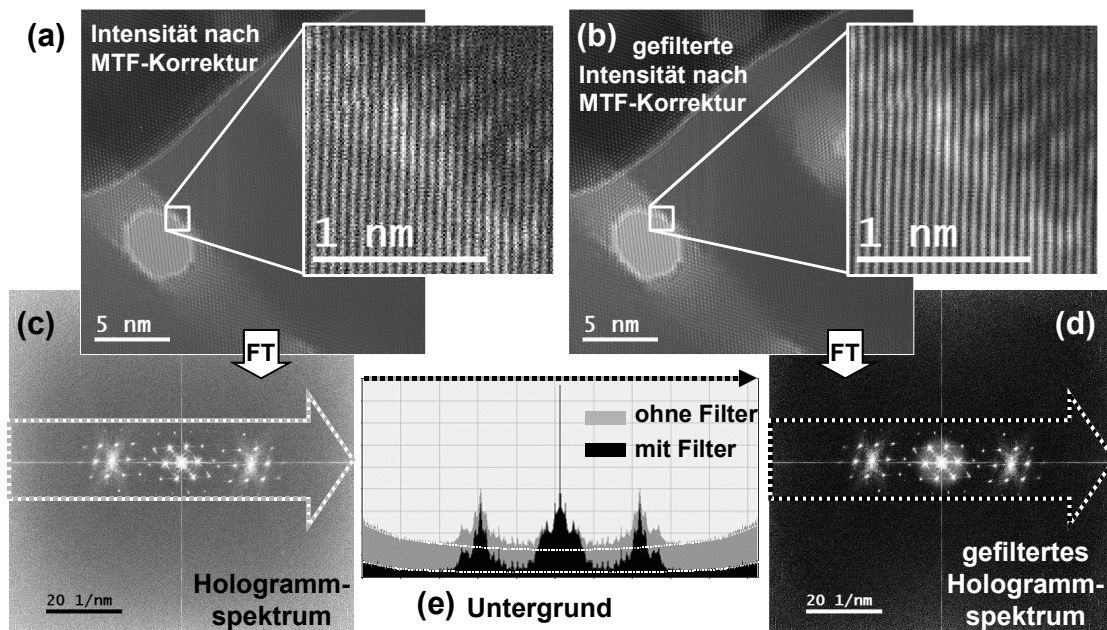


Abbildung 4.11 – MTF-Korrektur von (a) herkömmlicher und (b) gefilterter Hologrammintensität: Deutlich ist im Hologrammspektrum (c) die MTF-Korrektur-bedingte Verstärkung des hochfrequenten Rauschens zu sehen, die im Wiener-gefilterten Hologrammspektrum (d) unterbunden wird (gleiche Graustufenskalierung). Der direkte Vergleich im Linescan zeigt, die Reduzierung des Untergrunds bei gleich bleibendem Kontrast der Seitenbanddetails.

Die gefilterte Hologrammintensität ist für die Korrektur der Kamera-MTF nunmehr um vieles unempfindlicher bezüglich hochfrequenten Rauschens. Während die

MTF-Korrektur bislang eine asymmetrische Verstärkung des Rauschens im Fourierraum nach sich zog, findet man in der gefilterten Intensität nach MTF-Korrektur einen gleichmäßigen Rauschuntergrund im Fourierraum. Abbildung 4.11 zeigt den Vergleich zwischen ursprünglicher und gefilterter Intensität nach Korrektur der MTF und verdeutlicht die erreichte Reduzierung des verrauschten Untergrunds im Fourierraum.

4.3.3 Wiener-Filterung der rekonstruierten Welle zur Aberrationsbestimmung

Die Filterung der rekonstruierten Welle zielt nicht mehr nur darauf, das mit dem Aufzeichnungsprozess verbundene Rauschen zu reduzieren. Darüber hinaus gilt es, die Information kristalliner Objekte vom Strukturrauschen amorpher Deckschichten zu trennen. Dünne amorphe Objekte können näherungsweise als weißes Rauschen verstanden werden und somit durch Wiener-Filterung sehr gut vom „kristallinen Anteil“ der Ausgangswelle separiert werden. Abbildung 4.12 zeigt die Prozedur der Wiener-Filterung an der rekonstruierten Bildwelle. Gegenüber der Ausgangswelle verbessert sich die Standardabweichung im Vakuumbereich von Amplitude und Phase um ca. ein Drittel.

Prinzipiell spielt es keine Rolle, ob die Filterung vor oder nach der Bildfehlerkorrektur stattfindet: Da das Wiener-Filter im Spektrum der Welle lediglich die Amplituden der Fourierkoeffizienten dämpft und sich Bildwelle und Objektwelle lediglich in den Fourierphasen unterscheiden, besitzt das Wiener-Filter für beide Fälle dieselbe Gestalt. Als sehr hilfreich für die Bestimmung der Aberrationskoeffizienten zur numerischen Bildfehlerkorrektur erweist sich das Residuum der gefilterten Welle (vgl. Abbildung 4.12.c). Dahinter verbirgt sich im Wesentlichen – wie zuvor bei der Intensität – die Differenz zwischen Originalwelle und gefilterter Welle. Damit die Kontraste in Amplitude und Phase der Residuumwelle Ψ_{res} jedoch sinnvoll dargestellt werden können, wird der komplexe Mittelwert der ursprünglichen Welle hinzu addiert¹:

$$\Psi_{res}(\vec{r}) = \Psi(\vec{r}) - \tilde{\Psi}(\vec{r}) + \text{Mean}[\Psi(\vec{r})] . \quad (4.46)$$

Aufbauend auf der Approximation dünner amorpher Proben als schwache Phasenobjekte lassen sich die symmetrischen Bildfehlerkoeffizienten dadurch finden, dass man das Kontrastminimum der Amplitude ermittelt [ISHIZUKA (1994)]. Gleichzeitig muss entsprechend der linearen Abbildungstheorie (Abschnitt 2.3.3) in der Phase der korrigierten Welle ein Maximum beim Objektkontrast auftreten.

¹ Unkontrollierbare Phasensprünge treten auf, wenn das komplexe Residuum sich am Ursprung der komplexen Zahlenebene befindet. Die Addition des komplexen Untergrunds verschiebt das Residuum in der komplexen Zahlenebene an die Position der Ausgangswelle.

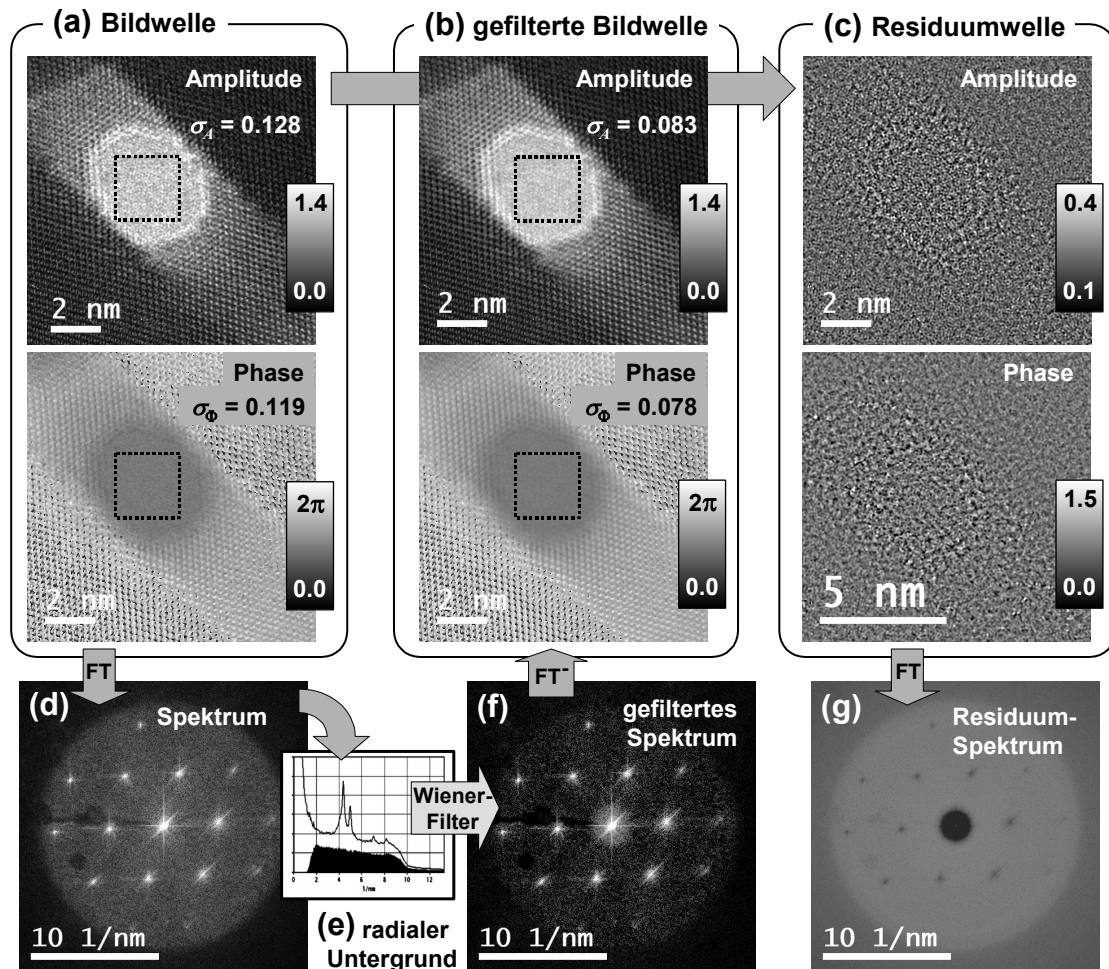


Abbildung 4.12 – Wienerfilterung der Welle: Durch die Rauschfilterung verbessert sich die Standardabweichung des Signals im Vakuumbereich (gepunktet markiert in Amplitude und Phase) von der Ausgangswelle (a) zur gefilterten Welle (b) um ca. ein Drittel. Gleichzeitig werden die atomaren Details in der Welle bewahrt. Im Residuum (c) treten deutliche Unterschiede zwischen den Bereichen des Vakuums im Loch und dem Untergrund der Goldfolie auf, was einen Hinweis auf eine dünne amorphe Deckschicht darstellt.

Dies entspricht im Wesentlichen dem Fokussierungsvorgang sowie der Astigmatismuskorrektur in der konventionellen Hochauflösungsmikroskopie – jedoch mit dem gravierenden Unterschied, dass die holografische Methode gleichzeitig die Phase zugänglich macht.

Um den Kontrast in Amplitude und Phase der Residuumschwelle zu bewerten, wird hier die Standardabweichung des „amorphen“ Rauschens benutzt. Abbildung 4.13 zeigt die Bildfehlerkorrektur am Residuum mit der Abhängigkeit der Standardabweichungen in Amplitude und Phase vom numerischen Defokus. Das Kontrastminimum der Amplitude und das Kontrastmaximum der Phase werden beim selben Defokuswert von $C_1 = -104$ nm gefunden. Der Astigmatismus, die (konstante) sphärische Aberration und die Phasenkurve der Beleuchtung wurden bei der Bildfehlerkorrektur mit berücksichtigt, der Übersichtlichkeit hier aber nicht mit dargestellt. In der Tat zeigt die Anwendung der gefundenen Aberrationsparameter auf die gefilterte Bildwelle hervorragende Ergebnisse bei den atomaren Details in Amplitude und Phase (siehe Abbildung 4.15).

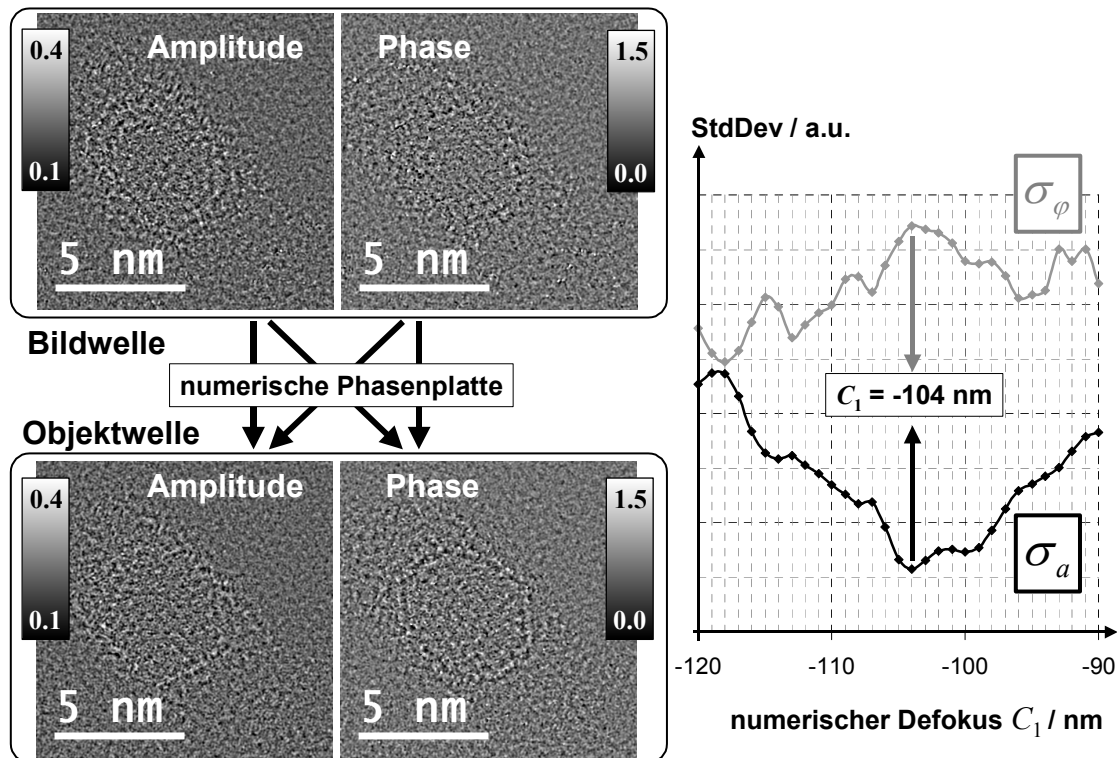


Abbildung 4.13 – Bildfehlerbestimmung am Wiener-Filter-Residuum: Die Bildfehler sind für dünne amorphe Objekte genau dann korrigiert, wenn der Kontrast in der Amplitude minimiert und in der Phase maximiert wird. Dieser Fall tritt bei einem numerischen Defokus von $C_1 = -104 \text{ nm}$ ein. Genau dann ist in der Amplitude das Loch kaum noch wahrzunehmen, während es in der Phase am deutlichsten zu erkennen ist.

Nachweislich handelt es sich beim Residuum in Abbildung 4.13 nicht um ein reines Phasenobjekt, da auch bei akkurater Bildfehlerkorrektur das „amorphe Rauschen“ in der Amplitude nicht völlig verschwindet. Dass die Prozedur dennoch zum Erfolg führt, liegt darin begründet, dass die amorphe Schicht die Objektphase deutlich stärker moduliert als die Objektamplitude. Für dickere amorphe Schichten verschärft sich jedoch das Problem: Da die Kontraste in Objektamplitude und $-$ phase ähnlich stark werden, existiert folglich kein Kriterium mehr für die Bildfehlerbestimmung.

Die Art und Weise der Bildfehlerbestimmung wurde bereits mittels genetischen Algorithmus weitestgehend automatisiert [LEHMANN (2000)]. Als Input jedoch das Residuum der Wiener-gefilterten Welle zu verwenden, dürfte weitere Verbesserungen insbesondere eine höhere Genauigkeit für die Aberrationskoeffizienten nach sich ziehen. Dieses Thema soll hier jedoch nicht weiter vertieft werden, sondern lediglich als Anstoß für weitere Arbeiten gesehen werden.

4.3.4 Mittelungsverhalten des Wiener-Filters

Jede Art von Rauschfilterung geht mit Artefakten durch räumliche Mittelung einher. Um die teils gravierenden Auswirkungen der Filterung zu verdeutlichen, soll hier kurz das unterschiedliche Mittelungsverhalten von Wiener-Filter und Bragg-Filter behandelt werden.

Die Multiplikation einer Filterfunktion im Fourierraum (hier bezogen auf eine komplexe Welle)

$$\tilde{\Psi}^{FT}(\vec{g}) = F(\vec{g}) \cdot \Psi^{FT}(\vec{g}) \quad (4.47)$$

kann auch als Faltung im Ortsraum geschrieben werden:

$$\tilde{\Psi}(\vec{r}) = psf_F(\vec{r}) \otimes \Psi(\vec{r}) \quad \text{mit} \quad psf_F(\vec{r}) = \mathbf{FT}^{-1}[F(\vec{g})]. \quad (4.48)$$

Dabei ist die Gestalt des Faltungskernels $psf_F(\vec{r})$ ausschlaggebend dafür, in welchem Maße und über welche räumliche Entfernung eine Mittelung erfolgt. Abbildung 4.14 zeigt die unterschiedlichen Faltungskernel, wie sie sich aus den Funktionen $F(\vec{g})$ von Bragg-Filter und Wiener-Filter für die zuvor behandelte Objektwelle der Goldprobe ergeben, sowie die resultierenden Objektwellen. Aus der Amplitude des jeweiligen Faltungskernels (Abbildung 4.14 (d) und (h)) lässt sich ablesen, wie groß die Beiträge der Signale in bestimmten Entfernungen zum resultierenden Signal am Kernel-Ursprung sind. Für die jeweilige Atomposition und deren nächste Nachbarn sind diese Gewichtungen in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Zum Vergleich wurden die Point-Spread-Functions psf_F der Filter so normiert, dass der Beitrag des zentralen atomaren Signals jeweils dem Wert Eins entspricht. Für den Bragg-Filter findet man, dass das resultierende Signal mit der Gewichtung $\sim 1/3$ vom Signal der nächstbenachbarten Atomsäule ergibt. Bei sechs nächsten Nachbarn ist die Wichtung der Nachbarsignale damit schon größer als das eigentliche Signal selbst. Dies setzt sich für die „zweiten“ und „dritten“ Nachbarn so fort. Als Folge dieser räumlichen Mittelung zeigen sich an Objektkanten Artefakte, z.B. in Form von sich ins Vakuum fortsetzenden Netzebenen (Abbildung 4.14 (f)). Letztendlich hat dies zur Folge, dass eine quantitative Aussage über das Signal einer ganz bestimmten Atomsäule nicht mehr möglich ist, obwohl die Lateralauflösung eigentlich dazu ausreicht.

Beim Wiener-Filter zeigt die Point-Spread-Function dagegen eine deutlich geringere räumliche Mittelung. Bereits die ersten Nachbarsignale erhalten insgesamt eine maßgeblich kleinere Gewichtung als das ursprüngliche zentrale Signal. Die Beiträge von den zweiten und dritten Nachbarpositionen sind sogar vernachlässigbar klein. Folglich treten an Objektkanten kaum Mittelungsartefakte auf und abrupte Kanten sind auch nach Filterung als solche zu erkennen. Damit erlaubt die Anwendung des Wiener-Filters auch weiterhin eine quantitative Interpretation an einzelnen Atompositionen. Eine „Entfaltung“ des atomaren Signals entsprechend der Wichtungen ist nicht möglich, da bei der Filterung ein Teil der Information auf Null gedämpft wird und damit verloren geht. Ohnehin würde eine Entfaltung die Verstärkung des zuvor reduzierten Rauschens nach sich ziehen und ist daher nicht sinnvoll.

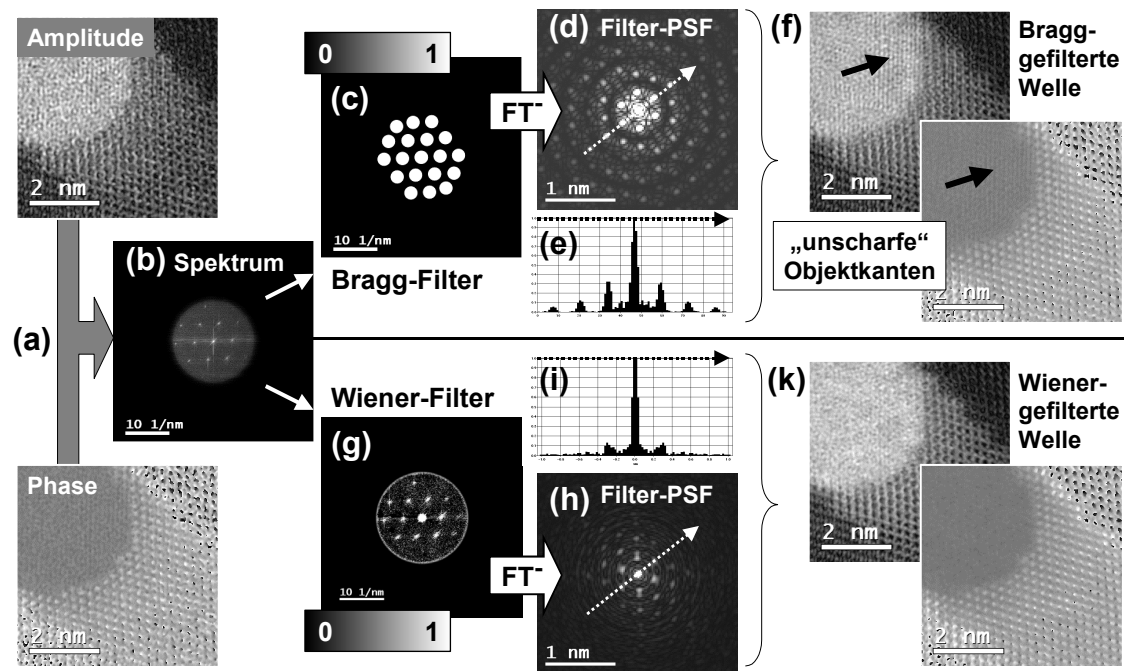


Abbildung 4.14 – Mittelungsverhalten von Bragg-Filter und Wiener-Filter: Während die starke räumliche Mittelung durch den Bragg-Filter insbesondere an nichtperiodischen Objektstellen (z.B. Objektkanten) Artefakte erzeugt, produziert das Wiener-Filter nahezu keine derartigen Effekte.

Nachbar	Anzahl	Entfernung	Bragg-Filter		Wiener-Filter	
			Wichtung	Gesamt	Wichtung	Gesamt
0.	1	0 nm	1	1	1	1
1.	6	~0.2 nm	0.32	1.92	0.13	0.78
2.	12	~0.4 nm	0.12	1.44	0.03	0.36
3.	18	~0.6 nm	0.05	0.9	<0.01	<0.18

Tabelle 4.2 – Quantifizierung der räumlichen Mittelung: Da beim Bragg-Filter die Signale bis über die dritten Nachbarn hinaus das resultierende Signal maßgeblich beeinflussen, geht die Bragg-Filterung mit starken Mittelungsartefakten einher (Abbildung 4.14 (f)). Dagegen spielt die räumliche Mittelung beim Wiener-Filter nur eine untergeordnete Rolle, so dass kaum Artefakte auftreten.

4.4 Zusammenfassung

Die Rekonstruktion einer Objektwelle aus einem Elektronenhologramm bedarf der Beachtung einer Vielzahl von Einflüssen.

Es stellt sich heraus, dass sich die resultierende Kontrastdämpfung in der holografisch erfassten Welle deutlich komplizierter verhält als bislang angenommen: Bezüglich des Seitenbandursprungs existiert eine asymmetrische Enveloppe. Für die Analyse der rekonstruierten Information ist diese Erkenntnis ein wichtiger Fortschritt, da die Berücksichtigung des tatsächlichen Dämpfungsverhaltens zur quantitativen Interpretation der Kontraste in Amplitude und Phase sehr wichtig ist.

Für die Auswertung atomarer Details, speziell der Atompositionen, zeigt sich die Notwendigkeit einer Korrektur von Verzeichnungen. Eine nachträgliche Korrektur – hier insbesondere der anisotropen Vergrößerung – durch numerische Interpolation ermöglicht derartige Auswertungen dennoch mit der nötigen Genauigkeit.

Wird die holografische Rekonstruktion umfassend und mit der nötigen Vorsicht durchgeführt, kann sicher gestellt werden, dass die resultierende Welle quasi frei von Artefakten ist und ausschließlich Objekteigenschaften repräsentiert. Abbildung 4.15 zeigt den direkten Vergleich zwischen einer einfachen Rekonstruktion (incl. MTF-Korrektur und Normierung mittels Leerhologramm) und der vorgeschlagenen umfassenden Rekonstruktionsprozedur anhand des Hologramms der Goldprobe. Es zeigt sich, dass insbesondere das Wiener-Filter für die Rekonstruktion von off-axis Elektronenhologrammen ein wichtiger Schritt auf dem Weg zur quantitativen Analyse mit hoher Güte bezüglich Lateral- und Signalauflösung darstellt. Darüber hinaus ermöglicht der Einsatz des Wiener-Filters auf die rekonstruierte Bildwelle mittels Bildfehlerkorrektur am subtrahierten Objektrauschen, die Aberrationsparameter genau zu bestimmen bzw. einen bestehenden Satz von Bildfehlerkoeffizienten zu verfeinern.

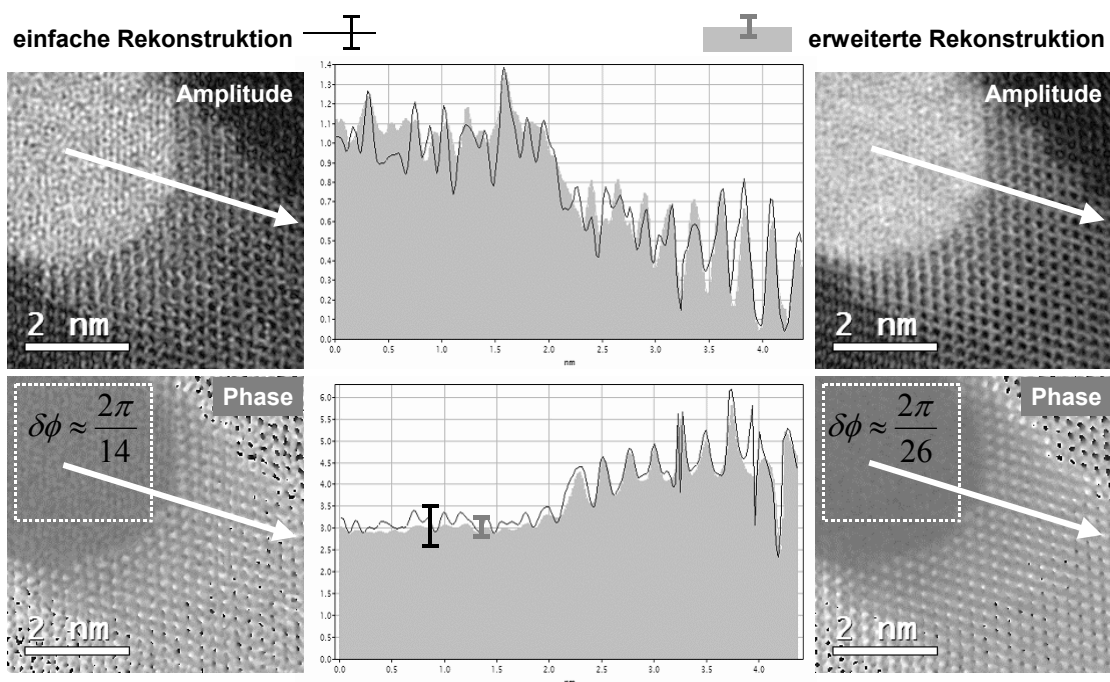


Abbildung 4.15 – Verbesserung der Rekonstruktion: Die „alte“ Rekonstruktion (links) ist sehr stark verrauscht; obwohl atomare Auflösung vorliegt, erlaubt das Signal mit dem bestehenden Fehlerbalken $\delta\phi$ keine eindeutige Zuordnung im Sinne der Anzahl der Atome pro Atomsäule (Phasenschiebung je Goldatom ≈ 0.5 rad). Dagegen liegt in den Ergebnissen der umfassenden Rekonstruktionsprozedur (rechts) bei gleich bleibender Lateralauflösung eine deutlich bessere Signalauflösung vor und erhöht damit die Genauigkeit beim Zählen der Goldatome je Atomsäule. Das jeweilige Phasendetektionslimit wurde aus der Standardabweichung der Objektphase im Vakuumbereich (gepunkteter Bereich) ermittelt und ist im Linienprofil der Objektphasen durch die Fehlerbalken illustriert.

5 Holografie im Cs-korrigierten Mikroskop

Die Vorzüge der off-axis Holografie, insbesondere Bildfehler numerisch korrigieren zu können, mit einem Bildfehlerkorrektiv zu kombinieren, mag zunächst widersprüchlich erscheinen. Bei genauerer Untersuchung der methodischen Leistungsgrenzen ergeben sich jedoch vielerlei Gründe, diese beiden Techniken zu vereinen. In einer Zusammenarbeit der Technischen Universität Dresden mit den Firmen CEOS und FEI wurde im Speziallabor Triebenberg mit dem FEI Tecnai F20 Cs-Corr eines der ersten bildfehlerkorrigierten Hochspannungs-Elektronenmikroskope weltweit aufgebaut. Dazu wurden im Rahmen des DFG-Projekts „Atomare Elektronenholografie im Öffnungsfehler-korrigierten Transmissions-Elektronenmikroskop“ die Möglichkeiten der aberrationskorrigierten off-axis Elektronenholografie ergründet und für hervorragend befunden [GEIGER (2008A), LICHT (2009)].

Dieses Kapitel widmet sich den Details dieser viel versprechenden Kombination. Dazu erläutert der erste Teil dieses Abschnitts die ermittelten Verbesserungen für das holografische Setup sowie für Aufnahme, Rekonstruktion und Bildfehlerkorrektur.

Um die Möglichkeiten der Elektronenholografie im Tecnai F20 Cs-corr TEM bestmöglich auszuschöpfen zu können, bedarf es einer gründlichen Analyse und Anpassung der Mikroskopparameter. Der zweite Abschnitt dieses Kapitels stellt sich dieser Aufgabe und optimiert das Setup für die Belange der höchstauflösenden Holografie.

Über die grundlegend untersuchten Verbesserungen hinaus vermittelt der dritte Abschnitt eine neue Idee, die durch den Korrektor nunmehr frei zugängliche sphärische Aberration künftig zur Optimierung anderer Hologrammeigenschaften heranzuziehen. Zwar erlaubt der derzeitige Stand der Technik nicht, die vorgestellte Idee experimentell zu verifizieren; eine ausführliche Modellierung führt jedoch zu schlüssigen Ergebnissen.

5.1 Verbesserungen durch den Cs-Korrektor

5.1.1 Partielle räumliche Kohärenz

Bei der holografischen Aufzeichnung werden die Details der Bildwelle durch die partielle räumliche Kohärenz auf komplizierte Weise gedämpft (Abschnitt 4.1). Im aberrationskorrigierten TEM wird der Gradient der Wellenaberration verschwindend gering, so dass der Ausdruck der Kontrastdämpfung (4.20):

$$\mu'_{sc} = \mathbf{FT}^{-1} [E'_s(\vec{g}, \vec{g}_c)] \quad (5.1)$$

mit

$$E'_s(\vec{g}, \vec{g}_c) = \exp \left\{ - \left[\frac{k}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g}) - \pi \vec{g}_c \frac{b}{M} \right]^2 \theta_c^2 \right\} \quad (5.2)$$

wieder auf eine gleichmäßig Dämpfung aller Frequenzbeiträge des Seitenbandes durch den Kohärenzgrad

$$E_S'^{lin}(\vec{g}, \vec{g}_C) \approx \exp\left\{-\left[\pi \vec{g}_C \frac{b}{M} \cdot \theta_C\right]^2\right\} = |\mu_{sc}|. \quad (5.3)$$

der räumlichen Kohärenz hinausläuft.

Abbildung 5.1 zeigt die Dämpfungsfunktion $E_S'^{lin}(\vec{g}, \vec{g}_C)$ für das Cs-korrigierte TEM. Um eine Vergleichsmöglichkeit zu der Dämpfung im konventionellen TEM (Abbildung 4.1) zu gewähren, werden für die Berechnung der Enveloppe die gleichen Parameter verwendet: $\theta_C = 0.0015$ rad, $\varepsilon = 20$, $g_C = 20 \text{ nm}^{-1}$, $b = 2 \text{ mm}$, $M = 50$ und $k = 400 \text{ nm}^{-1}$. Als Aberrationsparameter für das Cs-korrigierte TEM kommen mit $C_1 = -11 \text{ nm}$ und $C_3 = -50 \mu\text{m}$ die „NCSI“-Bedingungen zum Einsatz (Abschnitt 2.4.2). Damit spielt die partielle räumliche Kohärenz für die Übertragung der Objektdetails im Cs-korrigierten TEM keine Rolle mehr. Für den Streifenkontrast im Hologramm ist die partielle Kohärenz jedoch von unverändert großer Bedeutung.

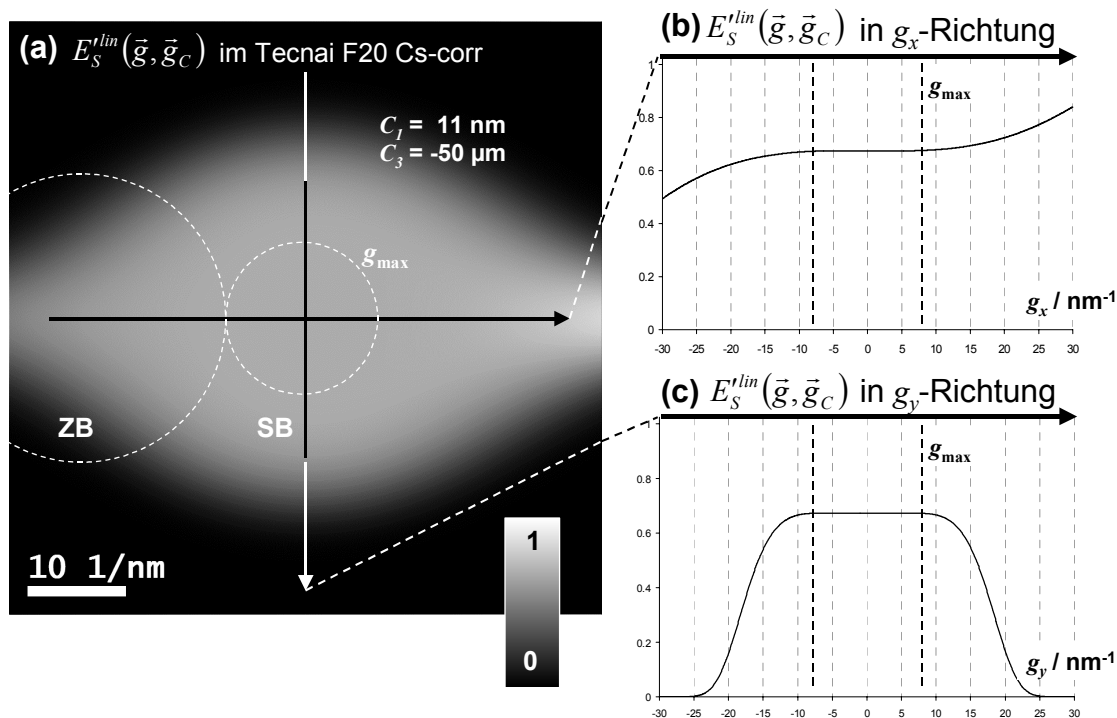


Abbildung 5.1 – Im aberrationskorrigierten TEM ist die Dämpfung durch die partielle räumliche Kohärenz viel gleichmäßiger als im konventionellen Mikroskop (vgl. Abbildung 4.1) und die Übertragung erreicht weit höhere Raumfrequenzen. Eine asymmetrische Dämpfung tritt erst deutlich oberhalb des Informationslimits g_{\max} (vertikal gestrichelt) auf und ist daher belanglos.

5.1.2 Atomare Signale

Ein möglichst hohes Informationslimit ist notwendig, um atomare Auflösung zu erzielen. Um einzelne Atome detektieren zu können, bedarf es auch einer hohen Signalauflösung. Da diese sich nicht beliebig erhöhen lässt, ist es notwendig, atomare Details mit möglichst hohem Signal übertragen werden.

Die Phasenschiebung einzelner Atome in der Bildwelle hängt zum einen davon ab, wie hoch das Informationslimit des TEMs ist: Je besser die Auflösung, desto höher die atomare Phasenschiebung [LINCK (2006)]. Zum anderen ist das Signal der Phase umso höher, je geringer die Ausschmierung durch die PSF der kohärenten Wellenaberration zuschlägt. Dazu zeigt Abbildung 5.2 die Simulation von Amplitude und Phasenschiebung eines einzelnen Goldatoms für das Philips CM200 und für das aberrationsfreie Tecnai F20.

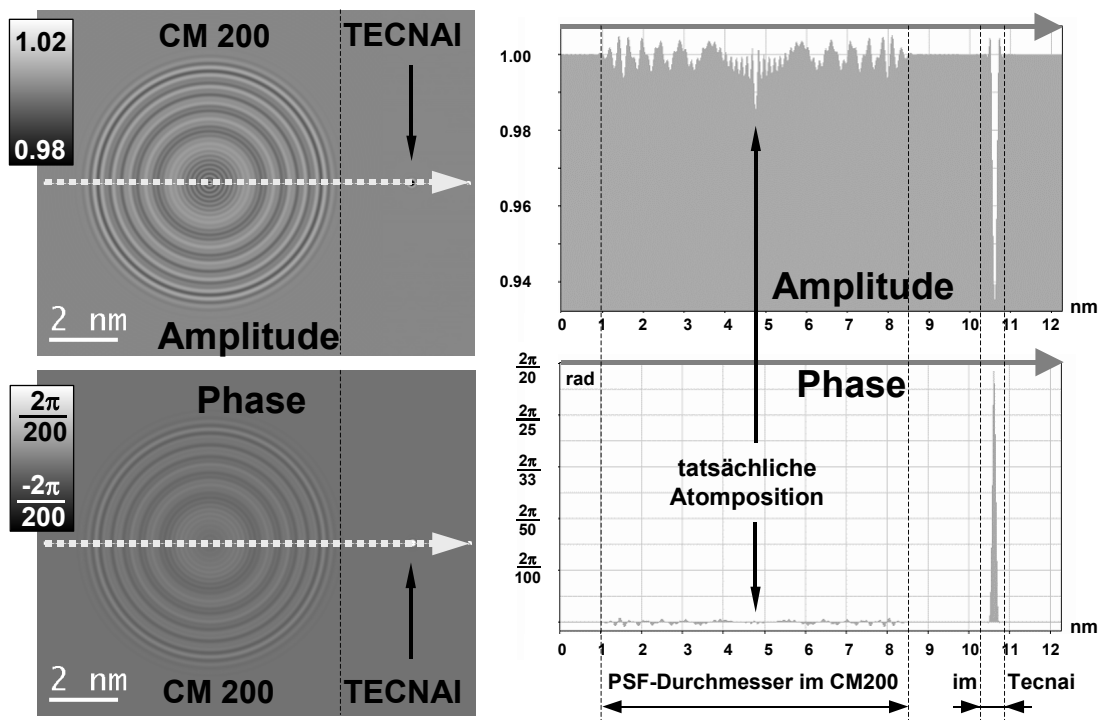


Abbildung 5.2 – Höheres Signal durch Aberrationskorrektur: Der Gradient der Wellenaberration führt zu einer Delokalisierung, die beispielsweise ein einzelnes Goldatom in einen weiten Bereich verschmiert. Die Verschmierung reduziert den Kontrast in Amplitude (oben) und Phase (unten) im Ortsraum sehr stark. Durch Aberrationskorrektur wird die PSF auf den atomaren Durchmesser reduziert, so dass das Signal in Amplitude und Phase an der Atomposition konzentriert und damit sehr viel größer ist. Für das CM200 wurde mit $C_1 = -367$ nm der Optimum-Defokus für das Informationslimit gewählt, während beim Tecnai die perfekte Korrektur aller Aberrationen simuliert wurde. In beiden Fällen dämpfen inkohärente Bildfehler in Form der linearen Enveloppen den Informationstransfer auf $g_{\max} = 7.5$ nm⁻¹ am CM200 und auf $g_{\max} = 8$ nm⁻¹ am Tecnai.

5.1.3 Zwischenbildvergrößerung

Das Interferenzmuster entsteht in der ersten Zwischenbildebene. Von Bedeutung ist jedoch stets das auf die Objektebene bezogene Hologramm. D.h. der tatsächliche Interferenzstreifenabstand und die Interferenzfeldbreite werden stets durch die Vergrößerung M zwischen Objektebene und erster Zwischenbildebene geteilt. Um kleinste Objektdetails holografisch erfassen zu können, ist daher eine hohe Zwischenvergrößerung M erstrebenswert [LICHTE (1996B)].

Es stellt sich heraus, dass die Kombination von Objektivlinse und Korrektor die Zwischenvergrößerung von ca. $M \approx 50$ um den Faktor 1.2 auf $M' \approx 60$ erhöht. Um auf

das Objekt bezogen einen vorgegebenen Streifenabstand zu erzeugen, ist damit ein kleinerer Ablenkwinkel am Biprisma folglich eine geringere Fadenspannung notwendig als am unkorrigierten TEM; demnach verbessert sich die Biprismakonstante

$$\Gamma_{BP} = s_{hol} \cdot U_F = \frac{s}{M} \cdot U_F. \quad (5.4)$$

Die Biprismakonstante vom Tecnai F20 beträgt $\Gamma_{BP}^{F20} = 19.5 \text{ V}\cdot\text{nm}$ und ist damit in etwa um den Faktor $M'/M \approx 1.2$ kleiner als die Biprismakonstante des CM200 mit $\Gamma_{BP}^{CM200} = 24 \text{ V}\cdot\text{nm}$ [GEIGER (2008A)].

Dies zieht zweierlei Verbesserungen nach sich: Die niedrigere Biprismaspannung U_F verbessert im Tecnai F20 gegenüber dem CM200 die elektrische Stabilität am Biprisma und damit die Stabilität der Hologrammstreifen μ_{inst} . Darüber hinaus führt die höhere Zwischenbildvergrößerung zu einer Verbesserung der Gesamtstabilität im Objekthologramm. Tabelle 5.1 zeigt die erforderliche Biprismaspannung U_F , die benötigt wird, um bestimmte Hologrammstreifenabstände s_{hol} einerseits am Philips CM200FEG ST/LL und andererseits am Tecnai F20 Cs-corr zu erreichen.

Hologrammstreifenabstand s_{hol} / nm	Fadenspannung U_F / V		Zwischenfaktor
	Philips CM200FEG ST/LL	Tecnai F20 Cs-corr	
0.115	200	170	1.18
0.094	250	210	1.19
0.079	300	250	1.20

Tabelle 5.1 – Biprismafadenspannung vs. Hologrammstreifenabstand: Die erforderliche Biprismaspannung für einen bestimmten objektbezogenen Streifenabstand ist im Tecnai F20 Cs-corr durch die höhere Zwischenvergrößerung M' geringer als im Philips CM200FEG ST/LL-Elektronenmikroskop. Dadurch bietet das Tecnai ein stabileres Setup zur Aufnahme von Elektronenhologrammen. Die Werte wurden von Dr. Dorin Geiger (Triebenberglabor) ermittelt.

Tatsächlich ist die Gesamtvergrößerung von Objektiv mit Korrektor mit einem Faktor 1.2 gegenüber dem unkorrigierten Mikroskop noch nicht ausgeschöpft. Es stellt sich heraus, dass die Zwischenbildvergrößerung maßgeblich durch die Adapterlinse (ADL) beeinflusst wird. Durch die Verkürzung der Brennweite f_{ADL} der Adapterlinse wird die resultierende Zwischenbildebene verschoben und erlaubt somit die Anpassung der Zwischenbildposition auf die nachfolgenden Linsen. Dabei wirkt die ADL wie eine verkleinernde Lupe. Abbildung 5.3 zeigt die gemessene Gesamtvergrößerung M_{ges} des Mikroskops in Abhängigkeit des ADL-Stroms I_{ADL} . Um bei gleicher Objektivlinsenanzug und Beugungslinseneinstellung die elektronenoptische Abbildung zu gewährleisten, wurde die Objekthöhe zum Refokussieren nachjustiert. Die dazu erforderliche z-Verschiebung des Objekts ist signifikant und wirkt sich verheerend auf die Aberrationskorrektur aus. Trotz Korrektur von zweizähligem Astigmatismus und axialer Koma während der Variation der Gesamtvergrößerung verbleiben ganz massiv Bildfehler höherer Ordnungen.

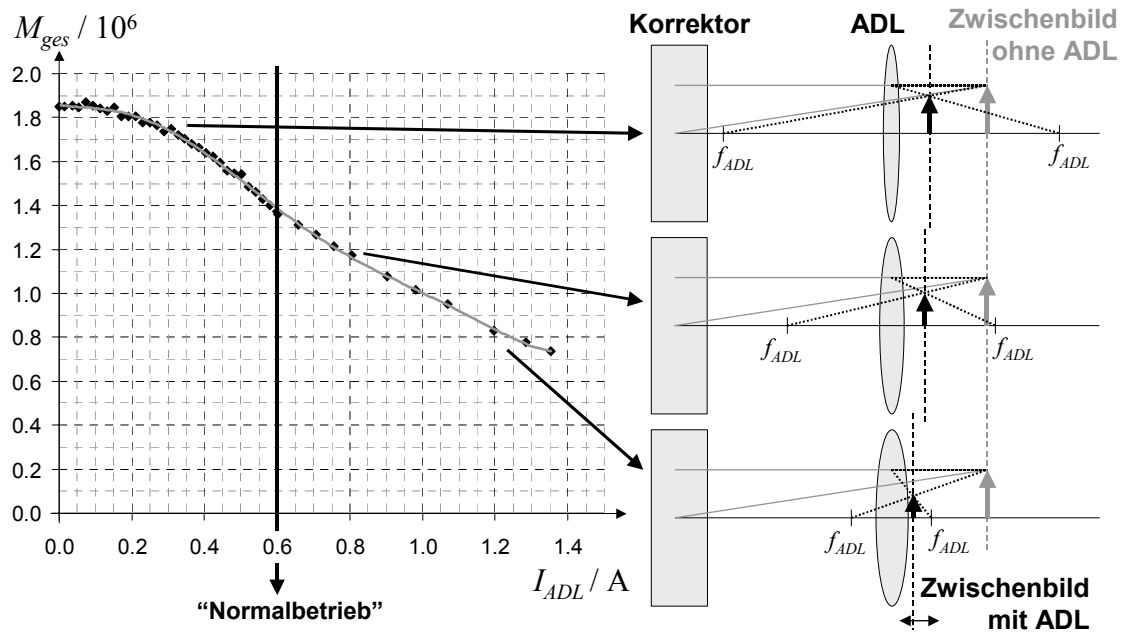


Abbildung 5.3 – Gesamtvergrößerung in Abhängigkeit des Adapterlinsenstroms: Die Adapterlinse (ADL) erlaubt es, die Position der ersten Zwischenbildebene anzupassen, damit nachfolgende Linsen nicht nachjustiert werden müssen. Dabei verändert sich die Gesamtvergrößerung maßgeblich und nimmt mit steigender Anregung stark ab (links). Damit verhält sich die ADL wie eine verkleinernde Lupe (rechts). Es existiert jedoch kein Optimum, da die Anregung der ADL für die Anpassung des Korrektors auf die erste Zwischenbildebene zwingend festgeschrieben ist.

Nach Abbildung 5.3 wäre es für das holografische Setup am besten, die Adapterlinse komplett abzuschalten, um die größtmögliche Zwischenbildvergrößerung zu erreichen. Da die erforderliche Refokussierung durch Höhenverschiebung des Objekts nicht möglich ist, bleiben dafür nur die Objektivlinse, das Korrektiv und die nachfolgende Beugungslinse. Eine Refokussierung durch die Objektivlinse oder die Transferlinsen des Korrektivs scheidet aus, da dies die Funktion des Cs-Korrektors beeinträchtigt [HARTEL (2009)]. Auch die nachfolgende Beugungslinse kann nicht beliebig zum Nachfokussieren verstellt werden, da die erforderliche Änderung der Linsenanregung zu einer viel zu großen, daher untauglichen Hologrammbreite führt (siehe Abschnitt 5.2). Damit ist die ADL-Anregung, folglich auch die Zwischenbildvergrößerung festgelegt, und eine Optimierung im Sinne der höchstauflösten Elektronenholografie ist nicht möglich.

5.1.4 Hologrammbreite und Signalauflösung

Die Mindesthologrammbreite, um ein Gesichtsfeld der Breite fov aberrationsfrei zu rekonstruieren, beträgt

$$w_{hol} = fov + 4 psf . \quad (5.5)$$

Im konventionellen TEM geht bei üblichen psf -Größen von ca. 10 nm ein erheblicher Teil der Hologrammbreite verloren. Da die Größe der Point-Spread-Function psf im aberrationsfreien TEM praktisch verschwindet, entspricht die Mindesthologrammbreite im Tecnai F20 dem aberrationsfrei zu rekonstruierenden Bereich:

$$w_{hol}^{F20} \approx fov. \quad (5.6)$$

Aus der Dämpfung durch partielle räumliche Kohärenz, Formel (3.20)

$$|\mu_{sc}| = \exp \left\{ - \left[\pi \bar{g}_c \frac{b}{M} \cdot \theta_c \right]^2 \right\} \quad (5.7)$$

folgt mit

$$w_{hol} \approx \frac{b}{M} \cdot \frac{g_c}{k} \quad (5.8)$$

die Beziehung

$$|\mu_{sc}| = \exp \left\{ - \left[\pi k w_{hol} \cdot \theta_c \right]^2 \right\}. \quad (5.9)$$

D.h. mit sinkender Hologrammbreite verringert sich bei gleich bleibender Beleuchtung die Dämpfung durch die partielle räumliche Kohärenz. Da in jedem Fall die Hologrammbreite mit einem Kohärenzgrad von $|\mu_{sc}| = 0.61$ ausgeleuchtet werden soll (Abschnitt 3.4), muss die Beleuchtung für kleinere Hologramme verengt, d.h. $|\mu_{sc}|$ wieder auf 0.61 verkleinert werden. Dies hat zur Folge, dass die kohärente Stromdichte der Beleuchtung

$$j_{coh} = \frac{I_{coh} \cdot \mathcal{E}}{\frac{\pi}{2} w_{hol}^2} \quad (5.10)$$

mit kleinerer Hologrammbreite ansteigt. Schlussendlich verbessert sich durch die höhere Dosis N pro rekonstruiertes Pixel das Phasendetektionslimit

$$\delta\Phi_{lim} = \frac{snr}{V} \cdot \sqrt{\frac{2}{N}}. \quad (5.11)$$

Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 5.4 illustriert und führt zu einer Verbesserung der Signalauflösung auf $\delta\Phi_{lim} = 2\pi/75$ für das Tecnai F20 Cs-corr beim Informationslimit $g_{max} = 8 \text{ nm}^{-1}$ [LICHTE (2009)].

Für das Experiment gilt es zu beachten, dass die Verengung der Beleuchtung zu einer Verstärkung der ortsabhängigen Kippung der Beleuchtungsrichtung über dem holografischen Gesichtsfeld führt. Während dies im Cs-korrigierten TEM keine Einschränkung in Bezug auf die Isoplanasie der Aberrationen bedeutet, ist die Interaktion zwischen der nunmehr sehr stark zylindrischen Elektronenwelle und dem Objekt nicht mehr zu vernachlässigen. Tatsächlich lässt sich bei einer extrem schmalen elliptischen Beleuchtung eine Variation der Objektorientierung über das holografisch rekonstruierte Gesichtsfeld beobachten. Dies sollte bei der Justierung der elliptischen Beleuchtung unbedingt berücksichtigt werden.

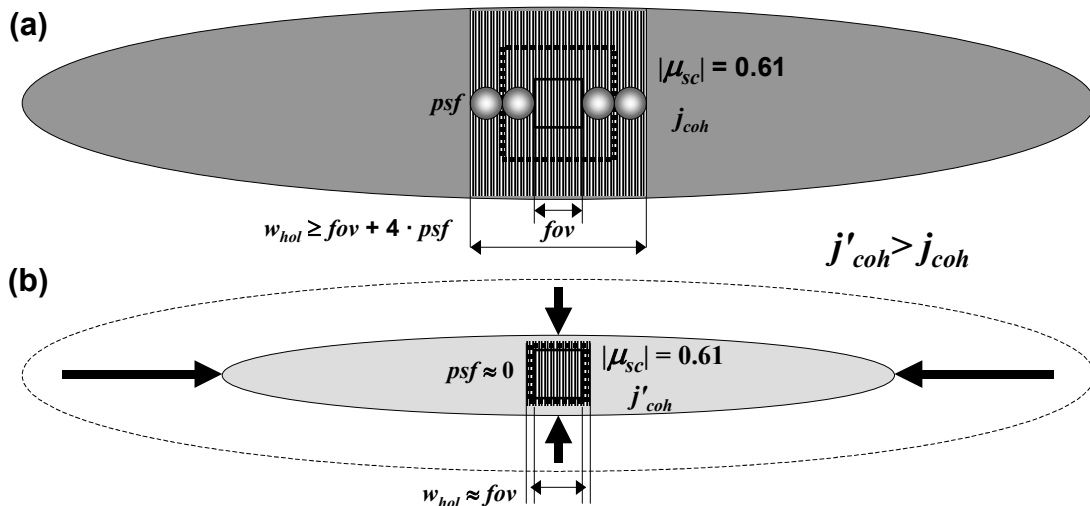


Abbildung 5.4 – Verbesserung der Signalauflösung durch kleinere Hologrammbreite: (a) Im konventionellen TEM muss durch die erforderliche Mindesthologrammbreite ein größerer Bereich mit $|\mu_{sc}| = 0.61$ kohärent ausgeleuchtet werden. Folglich reduziert sich durch die sehr ausgedehnte Beleuchtung die kohärente Stromdichte j_{coh} . (b) Im aberrationskorrigierten TEM reduziert sich die Mindesthologrammbreite deutlich; dadurch erhöht sich unter gleicher kohärenter Ausleuchtung die kohärente Stromdichte $j'_{coh} > j_{coh}$ und bei gleicher Belichtungszeit verbessert sich demnach das Phasendetektionslimit.

5.1.5 Strahlkippung zur Feinorientierung der Probe

Um Objekte mit atomarer Auflösung abzubilden, muss die kristalline Probe möglichst perfekt zur Beleuchtungsrichtung orientiert sein. Da bislang lediglich mechanisch gesteuerte Probenhalter zur Verfügung stehen, ist es sehr schwer, die Probe auf wenige mrad genau zu kippen. Das konventionelle TEM kann die Restverkipfung des Objekts nicht durch eine Kippung der Beleuchtung kompensieren, da dies massiv zusätzliche Bildfehler induziert (Anhang A1). Im bildfehlerkorrigierten TEM besteht dagegen die Möglichkeit, die Beleuchtungsrichtung im Bereich der üblichen Restverkipfungen zu variieren, ohne die Abbildung durch zusätzliche Aberrationen zu beeinträchtigen. Bei konventioneller Abbildung erweist es sich jedoch als problematisch, die Restverkipfung überhaupt zu erkennen, da die zur Orientierung der Probe genutzten Beugungsbilder eine Mittelung über große Objektbereiche darstellen und somit nicht zwangsweise die interessierende Objektstelle repräsentieren. Die off-axis Elektronenholografie ermöglicht hier einen Zugang, die Restverkipfung leicht zu erkennen und sukzessive durch Strahlkippung zu kompensieren. Mittels Echtzeit-Rekonstruktion lässt sich im Seitenband der fouriertransformierten Intensität eine Restverkipfung sofort erkennen und unmittelbar per Strahlkippung kompensieren. Abbildung 5.5 zeigt das Hologramm einer leicht verkippten Objektstelle, sowie das Hologrammspektrum vor und nach dem Feinorientieren der Probe mittels Strahlkippung.

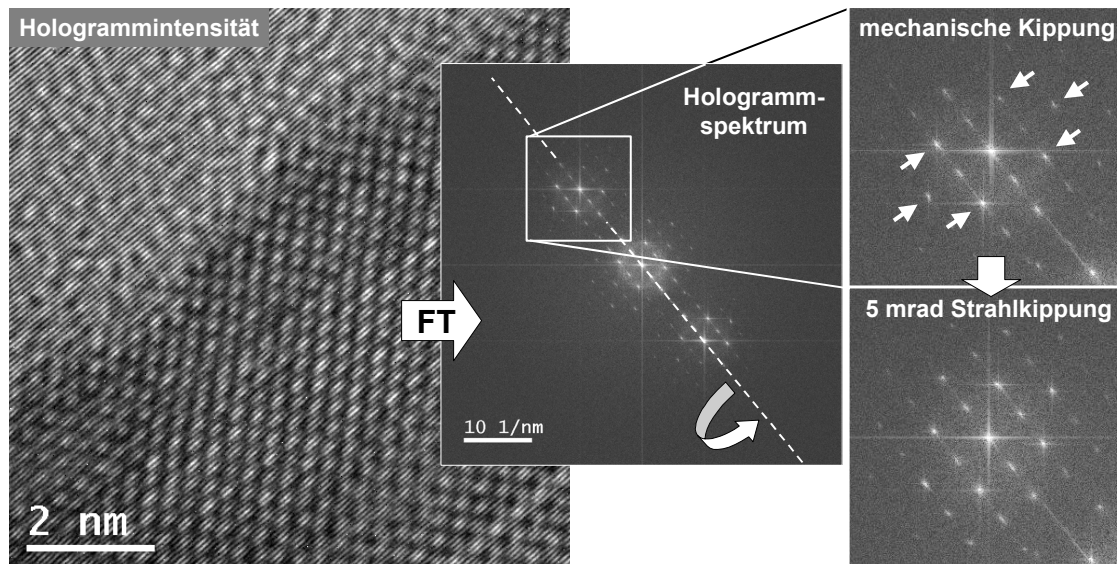


Abbildung 5.5 – Strahlkippung zur Feinorientierung der Probe: Die mechanische Kippung der Probe lässt sich nur auf einige mrad genau realisieren. Eine Restverkipfung lässt sich aus dem Seitenband des Hologrammspektrums unter Berücksichtigung der Kristallsymmetrie durch die unsymmetrische Anregung der Beugungswellen erkennen. Die zusätzliche Strahlkippung (hier 5 mrad) ermöglicht eine exakte Orientierung der Probe. Dies lässt sich nur im aberrationskorrigierten TEM durchführen, ohne starke zusätzliche Bildfehler zu induzieren. Das Hologramm zeigt eine SrRuO_3 -Schicht; die Probe wurde von Dr. Koichiro Honda (Fujitsu Japan) zur Verfügung gestellt.

5.1.6 Aberrationskorrektur

Die numerisch generierte Phasenplatte χ_{num} muss für die a-posteriori Aberrationskorrektur bei einer Fourierpixelbreite Δg zwingend das Abtastkriterium

$$|\nabla \chi_{num}(\vec{g}) \cdot \Delta g| \leq \frac{\pi}{6} \quad (5.12)$$

erfüllen, um Artefakte zu unterbinden. Im konventionellen TEM ist der Gradient der Aberrationsfunktion $\nabla \chi_{num}$ stets sehr groß und kann nur durch den Optimum-Fokus etwas reduziert werden. Dagegen spielt der Gradient der Wellenaberration im bildfehlerkorrigierten TEM praktisch keine Rolle mehr, so dass obiges Kriterium (5.12) stets für alle Frequenzen $g \leq g_{max}$ erfüllt wird.

Abbildung 5.6 zeigt den Anstieg der Wellenaberration im Vergleich zwischen konventionellem Philips CM200-Elektronenmikroskop und dem Tecnai F20 Cs-corr anhand zweier für diese Mikroskope typischer Phasenplatten.

Über die verbesserte Abtastung der numerischen Phasenplatte hinaus ergibt sich aus der Kombination von Cs-Korrektor mit off-axis Holografie ein weiterer Vorteil: Die zur Berücksichtigung der elliptischen Beleuchtung notwendige Phasenkurve (Abschnitt 3.3) kann vernachlässigt werden, da die lokale Verkipfung der Beleuchtung keine zusätzlichen Aberrationen mehr induziert.

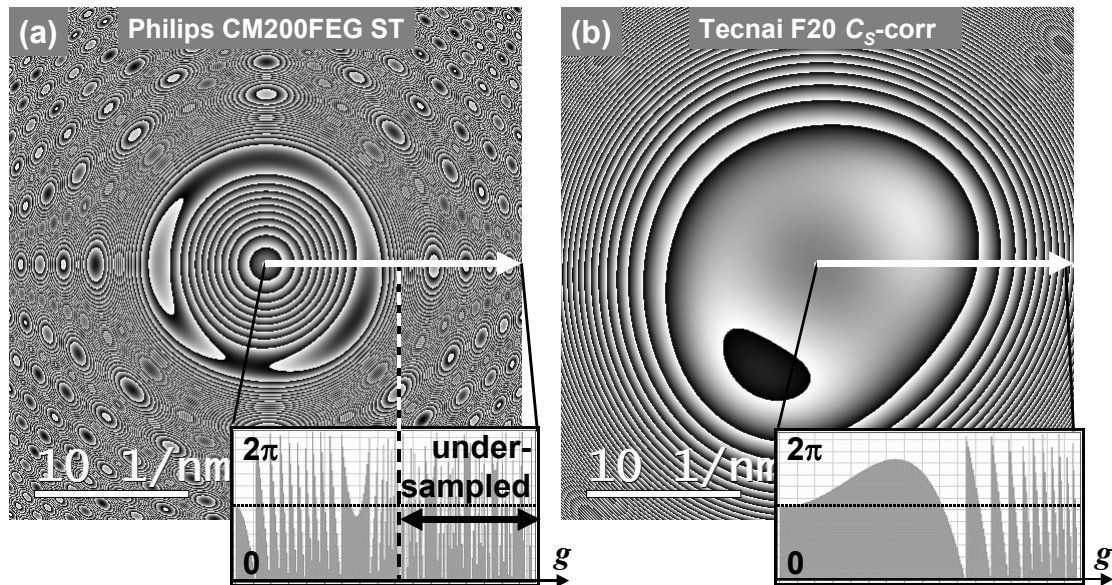


Abbildung 5.6 – Typische Beispiele für numerische Phasenplatten: (a) Im konventionellen TEM liegt bei großen Raumfrequenzen ein so hoher Aberrationsgradient vor, dass die Phasenplatte für die numerische Korrektur nur bis $g \leq 8 \text{ nm}^{-1}$ möglich ist. Bei der Phasenplatte für das Philips CM200 erkennt man dies am Moiré-Muster in den äußeren Bereichen. (b) Im aberrationskorrigierten TEM ist der Aberrationsgradient innerhalb des Informationslimits g_{max} und sogar weit darüber hinaus großzügig überabgetastet.

5.2 Optimierung des Tecnai F20 Cs-corr für Holografie

Zur Realisierung eines leistungsstarken Setups für off-axis Holografie in einem TEM ist eine Optimierung einiger bestimmter Mikroskopparameter essentiell. Da Lateralaufklärung, Gesichtsfeld und Signalaufklärung nicht unabhängig voneinander sind, ist diese Aufgabe nicht trivial. Beispielsweise beeinflusst die Anregung der Beugungslinse direkt die Hologrammbreite und damit die Signalaufklärung (vgl. Abschnitt 5.1.4), ändert aber indirekt gleichzeitig über die Gesamtvergrößerung die erreichbare holografische Auflösung und das holografische Gesichtsfeld. Während sich der erste Abschnitt diesen Kapitels mit der Auswirkung der Beugungslinsen-anregung auf die Lateralaufklärung und die Hologrammbreite befasst, wird im zweiten Abschnitt eine Optimierung bezüglich des aufgezeichneten Informationsgehalts durchgeführt. Der dritte Abschnitt widmet sich der für die Holografie notwendigen elliptischen Beleuchtung und zeigt mit der Optimierung des Beleuchtungsstigmators, wie dieser für eine Feinjustierung des räumlichen Kohärenzgrads genutzt werden kann.

5.2.1 Holographische Auflösung und Hologrammbreite

Die maximal erreichbare holografische Auflösung innerhalb des Informationslimits des TEMs

$$g_{\max} = \frac{M_{ges}}{12 \cdot d_{CCD}} \quad (5.13)$$

ergibt sich ausschließlich aus der Größe der CCD-Pixel $d_{CCD} = 24\mu\text{m}$ und der Gesamtvergrößerung M_{ges} des Elektronenmikroskops. Für das holografische Setup können jedoch lediglich Biprismaspannung U_F und Abstand b zwischen Biprisma und erster Zwischenbildebene variiert werden. Eine Änderung des Abstands b über die Anregung der Beugungslinse beeinflusst dabei die Gesamtvergrößerung M_{ges} . Abbildung 5.7 zeigt dazu die Gesamtvergrößerung M_{ges} und das holografische Auflösungslimit g_{\max} in Abhängigkeit von der Anregung $DIFF$ der Beugungslinse. In allen Fällen wurde die höchste Vergrößerungsstufe der Projektivlinsen gewählt und über die Biprismaspannung U_F ein Hologrammstreifenabstand von vier Pixeln eingestellt. Für jede Einstellung wurde anhand einer GaAs-Probe die Vergrößerung kalibriert. Es zeigt sich, dass die bestmögliche Auflösung bei maximaler Beugungslinsenanregung erzielt wird. Für die strikte Trennung von Zentralband und Seitenband ($g_C = 3 \cdot g_{\max}$) kann lediglich eine holografische Auflösung von 5.5 nm^{-1} erzielt werden. In Anbetracht eines Informationslimits von ca. 8 nm^{-1} ist dies zu wenig. Unter der entschärften Separationsbedingung für schwache Objekte ($g_C = 2 \cdot g_{\max}$) gelingt die Rekonstruktion jedoch auch bis zum Informationslimit des Mikroskops. Eine weitere Verbesserung ließe sich hier nur noch mit kleineren CCD-Pixeln zulasten der Kamera-MTF oder mit der Nachvergrößerung eines Post-Column-Energiefilters zulasten zusätzlicher Verzeichnungen erzielen.

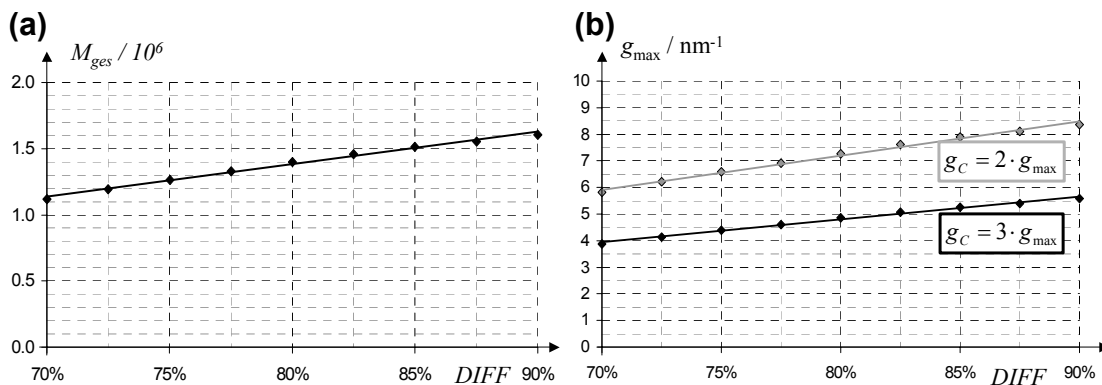


Abbildung 5.7 – Gesamtvergrößerung (a) und holografische Auflösung (b) in Abhängigkeit von der Beugungslinsenanregung. Die Gesamtvergrößerung reicht nicht aus, um in Hochauflösungshologrammen Zentralband und Seitenband für das Informationslimit von $g_{\max} = 8 \text{ nm}^{-1}$ strikt voneinander zu trennen ($g_C = 3 \cdot g_{\max}$). Für schwache Objekte ist die Separation dennoch möglich ($g_C = 2 \cdot g_{\max}$).

Mit der Änderung der Beugungslinsenanstregung verändert sich auch die Hologrammbreite. Abbildung 5.8 zeigt, dass mit zunehmender Anstregung $DIFF$ die Hologrammbreite am 4-Pixel-Abtastlimit um ein Vielfaches größer wird als das zur Verfügung stehende Gesichtsfeld fov der Kamera („field of view“). Ab einer Anstregung von $DIFF \approx 90\%$ ist eine Ermittlung der Hologrammbreite sogar nicht mehr ohne weiteres möglich. Aus diesem Grund wurde die Beugungslinsenanstregung in dieser Arbeit nicht über 90% hinaus erhöht.

Zusätzlich gilt es auch, die Vignettierung durch das Biprisma zu berücksichtigen [LICHTE (1996A)]. Dieser Effekt, eine ortsabhängige teilweise Abschattung des Objektwellenspektrums durch den Biprismafaden, betrifft unter Einhaltung des Separationskriteriums $g_C = 3 \cdot g_{\max}$ gerade 1/3 der gesamten Hologrammbreite. Die nutzbare Hologrammbreite reduziert sich damit auf 2/3 der tatsächlichen Hologrammbreite (gestrichelt in Abbildung 5.8).

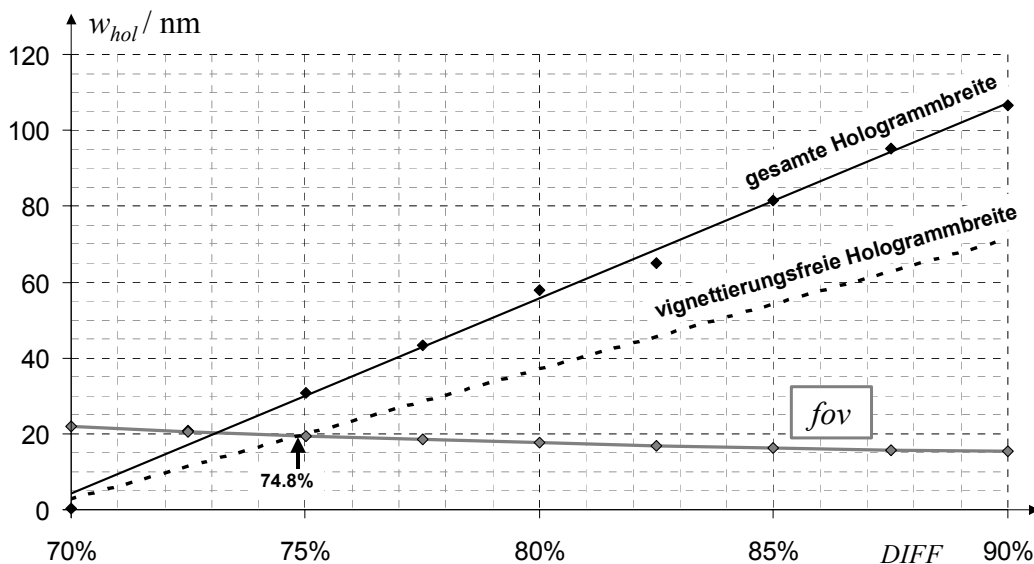


Abbildung 5.8 – Hologrammbreite bei einer Abtastung von vier Pixel (gestrichelt berücksichtigt Vignettierung) und Gesichtsfeldbreite fov in Abhängigkeit von der Beugungslinsenanstregung. Bei ca. 75% Beugungslinsenanstregung füllt der vignettierungsfreie Teil des Hologramms gerade das Gesichtsfeld der Kamera aus.

Insgesamt steht der TEM-Benutzer vor dem Dilemma, dass einerseits eine hohe Beugungslinsenanstregung notwendig ist, um die für höchste Auflösung notwendigen feinen Interferenzstreifen abtasten zu können. Andererseits steigt gleichzeitig die Hologrammbreite auf ein Vielfaches des Gesichtsfeldes an und reduziert damit die Signalauflösung gravierend (Abschnitt 5.1.4). Im nachfolgenden Unterkapitel wird mit der Erweiterung der Betrachtung auf die Signalauflösung jedoch klar, welche Einstellung des TEMs die sinnvollste darstellt.

5.2.2 Optimierung des aufgezeichneten Informationsgehalts

Der Informationsgehalt

$$InfoCont = n_{\Phi} \cdot n_d = \frac{2\pi}{snr} \cdot \frac{\mu_{inel}}{NoiseFig} \quad (5.14)$$

ist ein Maß für die Qualität eines Elektronenhologramms (Abschnitt 3.5). Für das Cs-korrigierte Tecnai F20 im Triebenberglabor wurde aus einem Leerhologramm ein Informationsgehalt $InfoCont \approx 14000$ ermittelt [LICHTE (2009)].

Für den Experimentator ist jedoch nicht immer nur der Informationsgehalt des gesamten Elektronenhologramms von Interesse, sondern insbesondere der Informationsgehalt, der schlussendlich von der CCD-Kamera erfasst wird. Dafür sei im Folgenden die Größe des „aufgezeichneten Informationsgehaltes“

$$InfoCont^{rec} = n_{\Phi} \cdot n_d^{rec} \quad (5.15)$$

definiert. Die Größe

$$n_d^{rec} = \begin{cases} \frac{2}{3} n_d & : \text{falls } \frac{2}{3} w_{hol} < fov \\ fov \cdot 2g_{max} & : \text{sonst} \end{cases} \quad (5.16)$$

gibt die Anzahl der im Gesichtsfeld fov aufgenommenen rekonstruierbaren Pixel an, bei der durch den Faktor $2/3$ die Vignettierung durch das Biprisma berücksichtigt ist. Damit lässt sich Ausdruck (5.15) schreiben als

$$InfoCont^{rec} = \begin{cases} n_{\Phi} \cdot \frac{2}{3} n_d & : \text{falls } \frac{2}{3} w_{hol} < fov \\ n_{\Phi} \cdot n_d \cdot \frac{fov}{w_{hol}} & : \text{sonst} \end{cases} \quad (5.17)$$

bzw.

$$InfoCont^{rec} = \begin{cases} InfoCont \cdot \frac{2}{3} & : \text{falls } \frac{2}{3} w_{hol} < fov \\ InfoCont \cdot \frac{fov}{w_{hol}} & : \text{sonst} \end{cases} \quad (5.18)$$

Abbildung 5.9 illustriert diesen Zusammenhang und zeigt die experimentell ermittelte Anzahl aufgenommener rekonstruierbarer Pixel n_d^{rec} und den aufgenommenen Informationsgehalt $InfoCont^{rec}$ in Abhängigkeit von der Beugungslinsenanzugung $DIFF$. Es ist offensichtlich, dass der aufgezeichnete Informationsgehalt genau dann maximal ist, wenn alle n_d^{rec} rekonstruierbaren Pixel innerhalb des Gesichtsfeldes fov liegen. Demnach wäre die optimale Anregung der Beugungslinse bei $\sim 75\%$ zu finden. Mit den 1024^2 CCD-Pixeln der Tecnai-Kamera können nie mehr als $n_d^{rec} = 177$ Objektpixel innerhalb der Gesichtsfeldbreite fov rekonstruiert werden.

Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass dieses Optimum neu bestimmt werden muss, sobald der Biprismafaden gewechselt wird. Die Dicke des Biprismafadens beeinflusst direkt die Hologrammbreite w_{hol} und damit die Lage des Beugungslinsoptimums.

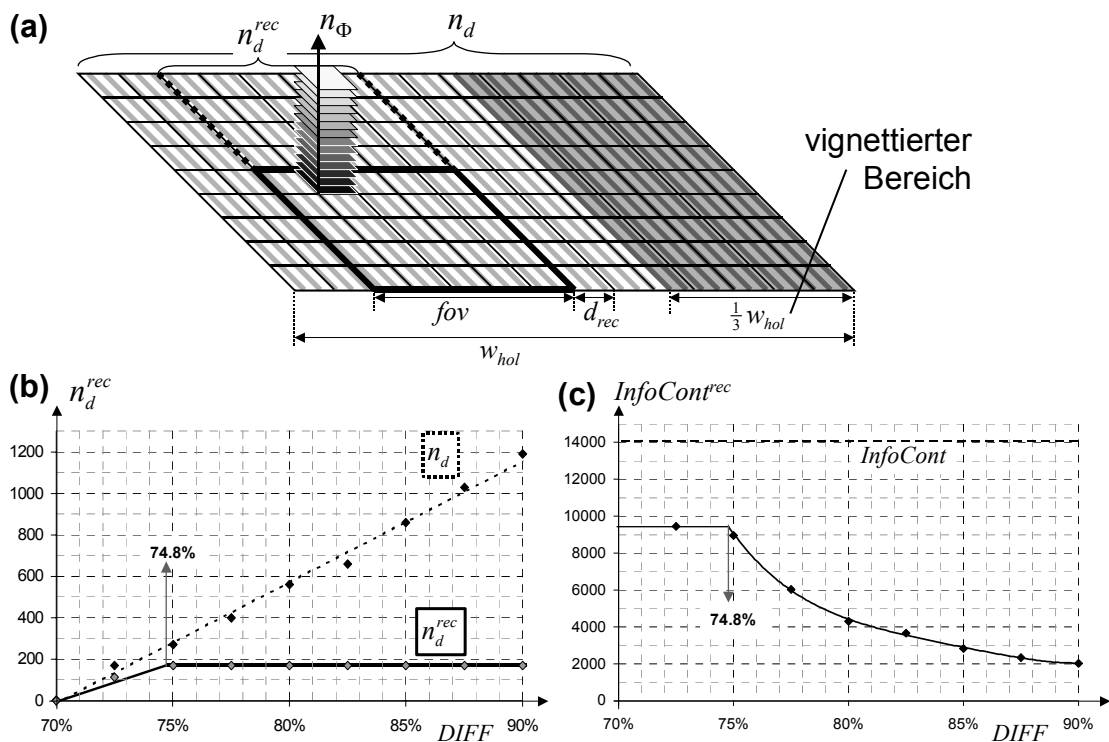


Abbildung 5.9 – (a) Holographischer Informationsgehalt: Die nutzbare Hologrammbreite wird durch Vignettierung um die Breite $\frac{1}{3} W_{hol}$ reduziert. Zusätzlich ist das Gesichtsfeld fov durch die Größe der CCD-Kamera limitiert. (b) Damit ist die Anzahl der aufgenommenen Pixel stets geringer als die Gesamtzahl aller Pixel im Hologramm. Folglich ist auch der aufgezeichnete Informationsgehalt (c) stets geringer als der Informationsgehalt des gesamten Hologramms. Dies gilt insbesondere dann, wenn die vignettierungsfreie Hologrammbreite größer wird als das Gesichtsfeld der Kamera.

5.2.3 Optimierung der Beleuchtung

Typischerweise wird die elliptische Beleuchtung (Abschnitt 3.1.2) dadurch eingestellt, dass der Kondensor-Stigmator auf ca. 95% seines Maximalstroms justiert wird. Die Grobeinstellung der Beleuchtungsgröße gelingt vorab durch geeignete Wahl der GunLens, der SpotSize (C1-Linse) und der C2-Blende. Auf diese Weise erzielt der Benutzer den für die Beleuchtung auf dem Objekt erforderlichen räumlichen Kohärenzgrad μ_{sc} .

Erste Tests am Tecnai F20 zeigen, dass der erzielbare Streifenkontrast leerer Hologramme bei den nunmehr geringen Hologrammbreiten nahezu ausschließlich durch die MTF der Kamera begrenzt ist. Damit ist der Kohärenzgrad mit $|\mu_{sc}| \approx 1$ höher als notwendig und eine Optimierung erforderlich ($|\mu_{sc,opt}| = 0.61$, siehe Abschnitt 3.4).

Im Folgenden wird gezeigt, dass eine Feinabstimmung der Winkelkohärenz mit Hilfe des Kondensor-Stigmators zwar sehr praktikabel, jedoch im Detail durchaus sehr kompliziert ist.

Um Kohärenzeigenschaften und Mikroskopeinflüsse möglichst gut voneinander trennen zu können, wird zunächst die MTF der Kamera bestimmt. Dazu werden leere, äußerst schmale Hologramme unter kurzen Belichtungszeiten $\tau = 1$ s aufgenommen (d.h.

$\mu_{inel} = 1$, $|\mu_{sc}| \approx 1$ und $\mu_{inst} \approx 1$). Damit hängt der Interferenzstreifenkontrast im Wesentlichen nur noch von der MTF der Kamera ab: $V \approx \mu_{MTF}$. Die Beugungslinsenanregung von $DIFF=70\%$ gewährleistet die sehr geringen Hologrammbreiten. Mit den Einstellungen von $GunLens = 2$ und $SpotSize = 4$ wurden die bislang üblichen Einstellungen beibehalten. Die ermittelte MTF für das Tecnai F20 ist für den Bereich des Seitenbands (um $g_{Nyq}/2$) in Abbildung 5.10.(a) dargestellt. Es stellt sich heraus, dass die Kontrastdämpfung durch die MTF der Kamera einen etwas geringeren Dämpfungseinfluss besitzt als die der Kamera des Philips CM200 (zum Vergleich ebenfalls aufgetragen). Dies ist auf unterschiedliche Szintillatoren an den beiden CCD-Kameras zurückzuführen. Die für das Tecnai holografisch ermittelte MTF wird anschließend dazu verwendet, um alle Werte der ermittelten Streifenkontraste zu normieren.

Die C2-Linse („Intensity“) bildet die Quelle in den Objektraum ab. Dies geschieht je nach C2-Anregung mit einer starken Defokussierung (üblicherweise Überfokus) und der damit verbundenen Lateralvergrößerung, d.h. Angularverkleinerung. Der Kondensor-Stigmator *StigC* verstärkt die Brechkraft der C2-Linse in einer Richtung und schwächt sie in der Richtung senkrecht dazu ab. Auf diese Weise wird die elliptische Beleuchtung realisiert.

Für eine konstante Beleuchtungsbreite der kurzen Ellipsenhauptachse über dem holografischen Gesichtsfeld sei vereinfacht angenommen, dass die Anregung *StigC* des Kondensor-Stigmatators einen linearen Einfluss auf die Elliptizität ε der Beleuchtung besitzt. (Die C2-Linse muss dafür nur geringfügig nachjustiert werden.) Damit erfährt die angulare Größe der Quelle θ_C entsprechend eine Verkleinerung:

$$\varepsilon \approx \varepsilon_0 \cdot StigC \Rightarrow \theta_C \approx \frac{\theta_0}{StigC}. \quad (5.19)$$

ε_0 und θ_0 seien Proportionalitätskonstanten für die Elliptizität und die angulare Größe der Quelle. Entlang der Überlagerungsrichtung folgt mit (3.20) für den Kohärenzgrad

$$|\mu_{sc}| = \exp\left\{-\left[\pi \bar{g}_c \frac{b}{M} \cdot \theta_C\right]^2\right\} \approx \exp\left\{-\left[\pi \bar{g}_c \frac{b}{M} \cdot \frac{\theta_0}{StigC}\right]^2\right\}. \quad (5.20)$$

Abbildung 5.10.(b) zeigt, dass der aus dem Streifenkontrast experimentell ermittelte Kohärenzgrad μ_{sc} diesem Verlauf deutlich folgt. Dazu wurde mittels Mathematica [WOLFRAM (2003)] der konstante Teil des Exponenten in (5.20) angefügt (graue Kurve).

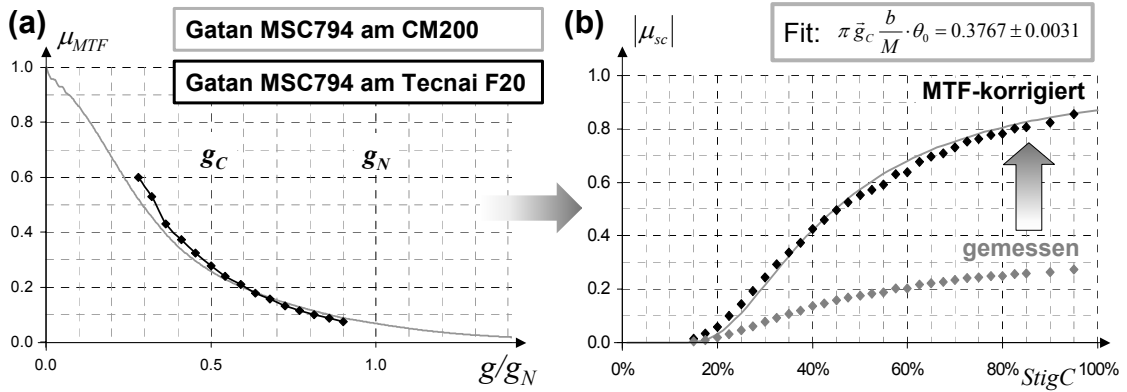


Abbildung 5.10 – MTF, Streifenkontrast und räumliche Kohärenz: Die experimentell ermittelte MTF der Tecnai-Kamera (a) wird dazu genutzt, den gemessenen Streifenkontrast (b) zu korrigieren. Damit lässt sich der Streifenkontrast in Abhängigkeit von Anregung *StigC* des Kondensator-Stigmators durch den Ausdruck für den räumlichen Kohärenzgrad (5.20) annähern (graue Kurve).

Zu jeder Kontrastmessung wurde die Anzahl der Elektronen N pro Pixel erfasst. Da nunmehr durch (5.20) eine Relation zwischen Kondensator-Stigmator *StigC* und dem Kohärenzgrad μ_{sc} besteht, lässt sich die gemessene Dosis N pro Pixel in Abhängigkeit vom Kohärenzgrad auftragen.

Mit der Aufnahmezeit τ , der Pixelbreite d_{rec} und der Elementarladung e sowie der *DQE* der Kamera (vgl. Abschnitt 3.4) ergibt sich die Anzahl der Elektronen

$$N = \tau \cdot d_{rec}^2 \cdot j_{coh} / e \cdot DQE. \quad (5.21)$$

In der elliptischen Beleuchtung der Elliptizität ε findet man für die kohärente Stromdichte

$$j_{coh} = \frac{I_{coh} \cdot \varepsilon}{\frac{\pi}{2} \cdot w_{hol}^2} = \frac{-\ln|\mu_{sc}| \cdot \frac{B}{k^2} \cdot \varepsilon}{\frac{\pi}{2} \cdot w_{hol}^2}. \quad (5.22)$$

In diesem Ausdruck sind sowohl Kohärenzgrad μ_{sc} als auch Elliptizität ε von der Anregung des Stigmators *StigC* abhängig:

$$j_{coh} = \frac{-\ln|\mu_{sc}(StigC)| \cdot \frac{B}{k^2} \cdot \varepsilon(StigC)}{\frac{\pi}{2} \cdot w_{hol}^2}. \quad (5.23)$$

Daraus ergibt sich in Vergleich zu der im Abschnitt 3.4 hergeleiteten Formel (3.52) ein leicht modifizierter Ausdruck für die Elektronenzahl pro Pixel

$$N = -\ln(|\mu_{sc}(StigC)|) \frac{B}{k^2 e} \tau \frac{d_{rec}^2}{\frac{\pi}{2} w_{hol}^2} \cdot DQE \cdot \varepsilon(StigC), \quad (5.24)$$

bei der die Änderungen des räumlichen Kohärenzgrads μ_{sc} und der Beleuchtungselliptizität ε durch die Verwendung des Kondensator-Stigmators *StigC* gekoppelt sind:

Während die Breite der Beleuchtung senkrecht zur Überlagerungsrichtung, d.h. die kleine Halbachse der Ellipse, konstant bleibt, ändert der Stigmator in der Überlagerungsrichtung die Beleuchtungsbreite und damit gleichzeitig die Elliptizität und den räumlichen Kohärenzgrad. Unter Zuhilfenahme von (5.19) und (5.20) lässt sich die Kopplung durch

$$|\mu_{sc}(\varepsilon)| \approx \exp\left\{-\left[\pi \bar{g}_C \frac{b}{M} \cdot \frac{\theta_0 \cdot \varepsilon_0}{\varepsilon}\right]^2\right\}, \text{ bzw. } \varepsilon(|\mu_{sc}|) \approx \frac{\pi \bar{g}_C \frac{b}{M} \theta_0}{\sqrt{-\ln|\mu_{sc}|}}. \quad (5.25)$$

ausdrücken.

Für die Anzahl der Elektronen pro Pixel in Abhängigkeit von der Anregung *StigC* des Kondensor-Stigmators ergibt sich demnach

$$\begin{aligned} N(\text{StigC}) &= \tau \cdot d_{pix}^2 \cdot \left(\pi \bar{g}_C \frac{b}{M} \theta_0\right)^2 \frac{B}{k^2 e} \cdot \frac{\varepsilon_0}{\frac{\pi}{2} w_{hol}^2} \cdot DQE \cdot \frac{1}{\text{StigC}} \\ &= N_{Stig} \cdot \frac{1}{\text{StigC}} \end{aligned} \quad (5.26)$$

mit der Proportionalitätskonstante N_{Stig} .

In Abhängigkeit vom Kohärenzgrad μ_{sc} folgt für die Elektronenzahl der Ausdruck

$$\begin{aligned} N(|\mu_{sc}|) &= -\ln|\mu_{sc}| \cdot \frac{B}{k^2 e} \tau \frac{d_{rec}^2}{\frac{\pi}{2} w_{hol}^2} \cdot DQE \cdot \frac{\pi \bar{g}_C \frac{b}{M} \theta_0}{\sqrt{-\ln|\mu_{sc}|}} \\ &= N_{\mu} \cdot \sqrt{-\ln|\mu_{sc}|} \end{aligned} \quad (5.27)$$

mit der Proportionalitätskonstanten N_{μ} .

Abbildung 5.11 (a) und (b) zeigen, dass die gemessene Anzahl der Elektronen N sowohl in Abhängigkeit der Stigmatoranregung *StigC* als auch in Abhängigkeit vom Kohärenzgrad μ_{sc} hervorragend den hergeleiteten Verteilungen folgt.

Die Ursache für die veränderte Abhängigkeit der Elektronenzahl N vom räumlichen Kohärenzgrad μ_{sc} ist in Abbildung 5.11 (c) illustriert: Die Kopplung von Elliptizität ε und Kohärenzgrad μ_{sc} führt dazu, dass bei Veränderung des Kondensor-Stigmators *StigC* ausschließlich Kombinationen (ε, μ_{sc}) auftreten, die entlang der eingezeichneten Kurve in der ε - $|\mu_{sc}|$ -Ebene liegen. Für jede andere Kombination der GunLens- und SpotSize-Einstellung besitzt diese Kurve eine ähnliche Gestalt: Über die Variation der Größe θ_0 (vgl. Formel (5.25)) wird die (ε, μ_{sc}) -Kurve gestreckt oder gestaucht – jedoch leider nur im Rahmen der vom Mikroskophersteller vorgegebenen Schrittweite. Alle anderen Kombinationen (ε, μ_{sc}) sind zwar prinzipiell auch zugänglich, jedoch nicht unter der Randbedingung, dass die Beleuchtungsbreite der kurzen Ellipsenhalbachse konstant ist und in etwa das holografische Gesichtsfeld überdeckt. Die Projektion der

3D-Kurve auf die N - $|\mu_{sc}|$ -Fläche führt zu der hergeleiteten Abhängigkeit (5.27), die hervorragend den Verlauf der experimentellen Werte reproduziert.

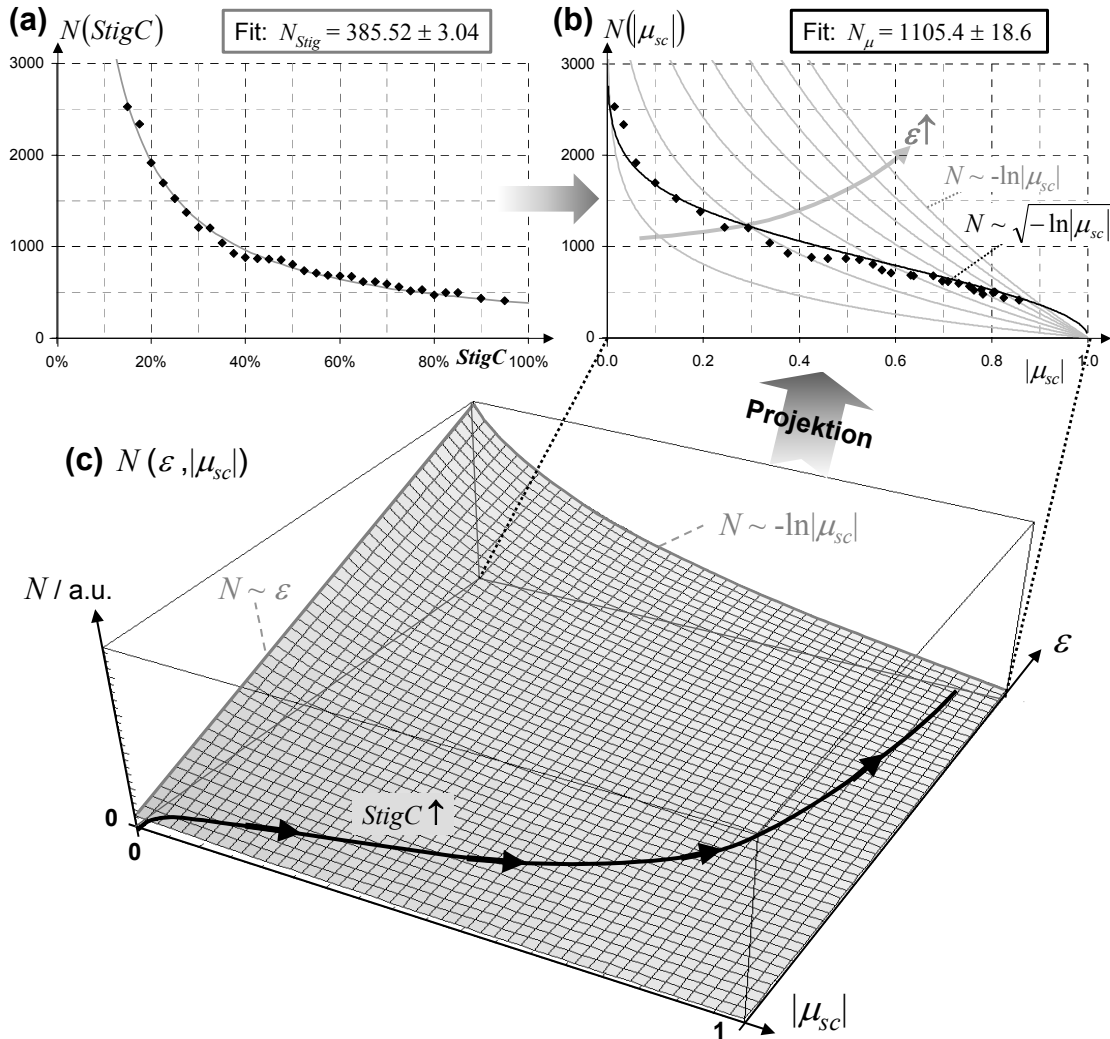


Abbildung 5.11 – Elektronenanzahl N pro Pixel in Abhängigkeit von der Stigmatoranregung (a) und vom Kohärenzgrad (b): In beiden Fällen lassen sich die experimentellen Werte (Belichtungszeit $\tau = 1$ s) hervorragend durch die hergeleiteten Funktionen annähern. (c) Die modifizierte Form der Abhängigkeit $N(|\mu_{sc}|)$ lässt sich durch den 3D-Plot $N(\epsilon, |\mu_{sc}|)$ erklären: Bei konstantem Kohärenzgrad ist $N \sim \epsilon$ und bei konstanter Elliptizität ist $N \sim -\ln(|\mu_{sc}|)$. Die Variation des Kondensator-Stigmatators $StigC$ verändert die Elliptizität ϵ und den räumlichen Kohärenzgrad $|\mu_{sc}|$ jedoch gleichzeitig, daher sind beide miteinander verknüpft. Diese Kopplung lässt sich durch die „ $StigC$ “-Kurve in (c) veranschaulichen. Die Projektion dieser Kurve auf die N - $|\mu_{sc}|$ -Ebene entspricht dem hergeleiteten Verlauf. Der Projektionseffekt wird in (b) durch einige N - $|\mu_{sc}|$ -Kurven (hellgrau) für konstante Elliptizitäten in äquidistanten ϵ -Schritten veranschaulicht.

Schlussendlich gilt es, das Optimum für minimales Phasenrauschen zu finden. Mit der Lenz'schen Formel für die Standardabweichung des Phasenrauschens

$$\sigma_{\phi} = \frac{1}{V} \sqrt{\frac{2}{N}} \quad (5.28)$$

ergeben sich mit $V \approx |\mu_{sc}|$ aus den obigen Zusammenhängen

$$\sigma_{\Phi}(StigC) = \exp \left\{ + \left(\pi \bar{g}_C \frac{b}{M} \frac{\theta_0}{StigC} \right)^2 \right\} \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot StigC}{N_{Stig}}} \quad (5.29)$$

und

$$\sigma_{\Phi}(|\mu_{sc}|) = \frac{1}{|\mu_{sc}|} \sqrt{\frac{2}{N_{\mu} \cdot \sqrt{-\ln|\mu_{sc}|}}} \quad (5.30)$$

Daraus ergibt sich ein vom bislang bekannten Optimum $|\mu_{sc,opt}| = 0.61$ verschiedener Wert $|\mu_{sc,min}| = 0.78$ für das Minimum des Phasenrauschens. Dieser Wert wird unter den gegebenen GunLens- und SpotSize-Einstellungen bei einer Stigmator-Anregung $StigC = 81.2\%$ erreicht. Abbildung 5.12 (a) und (b) zeigen die experimentellen Befunde mit den genäherten Funktionen (5.29) und (5.30). Dass es sich beim ermittelten Minimum $|\mu_{sc,min}|$ nicht um das globale Optimum handelt, ist im 3D-Plot $\sigma_{\Phi}(\varepsilon, |\mu_{sc}|)$ in Abbildung 5.12 (c) ersichtlich. Wie zuvor folgt die Kombination (ε, μ_{sc}) bei Variation des Kondensor-Stigmators der „ $StigC^c$ “-Kurve. Das Minimum des Phasenrauschens σ_{Φ} entlang dieser Kurve liegt bei dem räumlichen Kohärenzgrad $|\mu_{sc,min}| = 0.78$. Die Projektion des 3D-Plots auf die σ_{Φ} - $|\mu_{sc}|$ -Ebene veranschaulicht die Abweichung des Minimums $|\mu_{sc,min}|$ vom theoretischen Optimum $|\mu_{sc,opt}|$.

Folgender Gedankengang soll das Verständnis erleichtern: Zunächst wird der Kondensor-Stigmator $StigC$ gerade so angeregt, dass in Überlagerungsrichtung der optimale räumliche Kohärenzgrad $|\mu_{sc,opt}| = 0.61$ vorliegt und die kurze Halbachse der Beleuchtungsellipse gerade das Gesichtsfeld überdeckt. Wird bei konstanter Elliptizität der Kohärenzgrad verringert oder erhöht, verschlechtert sich in beiden Fällen die Phasensignalauflösung; es ist demnach völlig unstrittig, dass das Optimum des räumlichen Kohärenzgrads $|\mu_{sc}|$ für eine feste Elliptizität ε bei 0.61 liegt. Die Erhöhung des räumlichen Kohärenzgrads bewirkt jedoch bei konstanter Elliptizität, dass die Beleuchtung senkrecht zur Überlagerungsrichtung zu breit, d.h. die Elliptizität zu klein ist. Wird nun die Elliptizität erhöht, verengt sich die Beleuchtung wieder auf die Gesichtsfeldbreite und trotz höherem Kohärenzgrad steigt die Dosis pro Pixel wieder an und verringert folglich das Phasenrauschen. Dies verschiebt den optimalen Wert des räumlichen Kohärenzgrads auf $|\mu_{sc,min}| = 0.78$.

Da es sich um ein sehr „flaches“ und sehr ausgedehntes Minimum handelt, spielt der exakte Wert der Stigmator-Anregung letztlich jedoch nur eine untergeordnete Rolle.

Des Weiteren sind die ermittelten absoluten Werte für σ_{Φ} nicht repräsentativ, da lediglich kurze Belichtungszeiten ($\tau = 1$ s) genutzt wurden; es verbleibt ein gewisser Spielraum, durch längere Aufnahmezeiten das Phasenrauschen weiter zu verringern. Da dies nur im Rahmen der vorhandenen Stabilität geschehen kann, ist eine weitere Optimierung bezüglich der Aufnahmezeit notwendig.

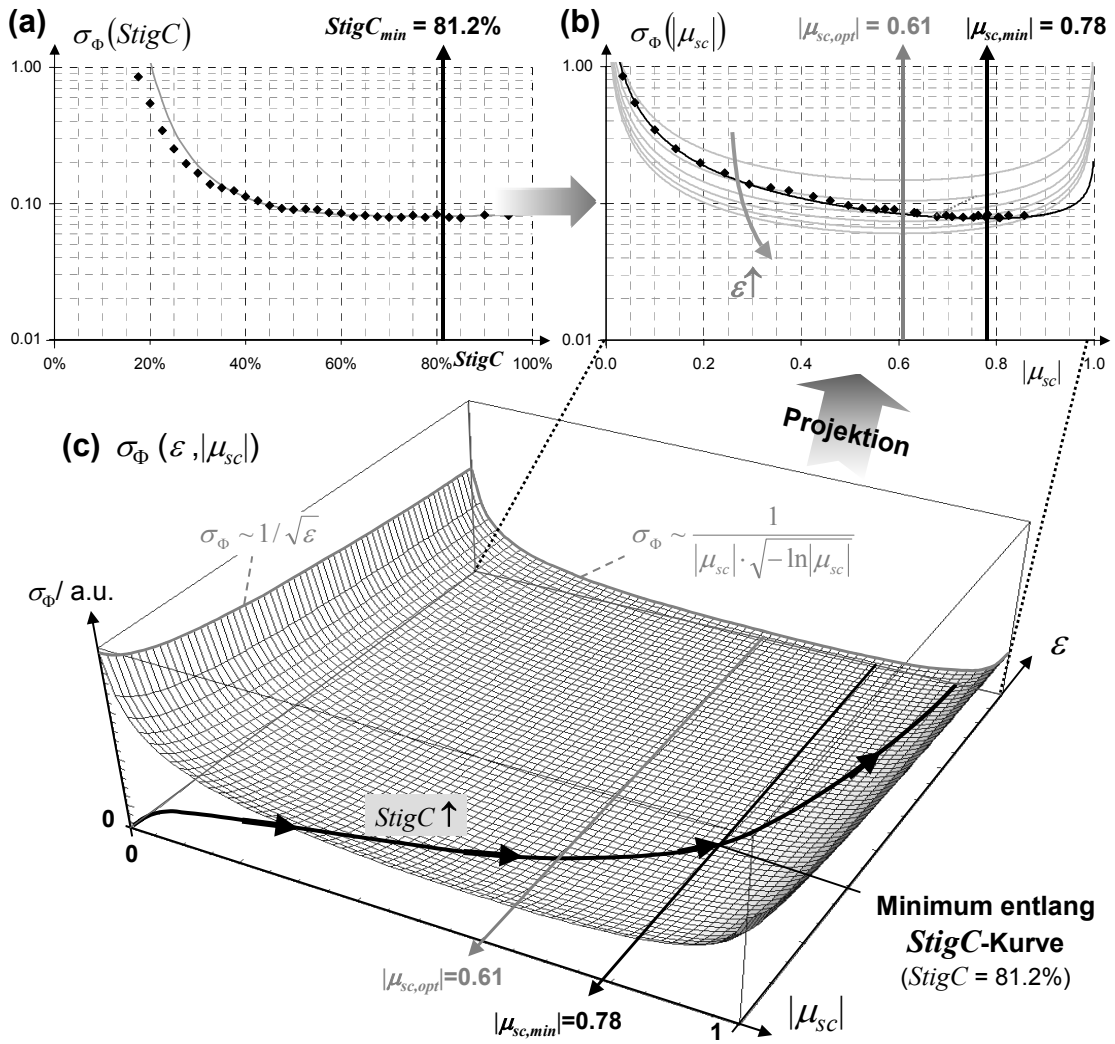


Abbildung 5.12 – Phasenrauschen σ_{Φ} in Abhängigkeit von der Stigmatoranregung $StigC$ (a) und vom Kohärenzgrad $|\mu_{sc}|$ (b). Ein Minimum befindet sich bei $StigC = 81.2\%$, respektive $|\mu_{sc}| = 0.78$. Im 3D-Plot (c) durchläuft die Kurve der Stigmatoranregung im σ_{Φ} - $|\mu_{sc}|$ - ϵ -Raum die illustrierte Bahn, da Elliptizität und Kohärenzgrad nicht unabhängig voneinander eingestellt werden können. Das σ_{Φ} -Minimum entlang dieser Kurve ist anstatt bei $|\mu_{sc, opt}| = 0.61$ bei $|\mu_{sc, min}| = 0.78$ zu finden. Die Projektion der 3D-Kurve auf die σ_{Φ} - $|\mu_{sc}|$ -Ebene ergibt den hergeleiteten modifizierten Verlauf $\sigma_{\Phi}(|\mu_{sc}|)$ mit dem entsprechenden Minimum. Zur Veranschaulichung sind in (b) die Projektionen einiger $\sigma_{\Phi}(|\mu_{sc}|)$ -Kurven für konstante Elliptizitäten in äquidistanten ϵ -Schritten in hellgrau eingefügt.

5.3 Ein neuer Freiheitsgrad: Die sphärische Aberration

Der Einsatz des Cs-Korrektors in der Elektronenholografie bringt immense Vorteile. Es verbleibt jedoch die Frage, welche Aberrationsparameter der TEM-Nutzer schließlich während der Hologrammaufnahme benutzen soll: Ist eine komplette Korrektur der Wellenaberration ($\chi \approx 0$) erstrebenswert? Spielt die genaue Gestalt der Phasenplatte, solange sie klein ist, möglicherweise gar keine Rolle, da sie in jedem Fall numerisch korrigiert werden kann? Oder kann die Wellenaberration als freier Parameter dazu genutzt werden, um andere Eigenschaften des Hologramms, beispielsweise die Signalauflösung zu verbessern?

Dieser Abschnitt klärt diese Fragen und liefert optimale Bildfehlerkoeffizienten zur Aufnahme von hoch aufgelösten Elektronenhologrammen.

5.3.1 Objektwellenrekonstruktion aus verrauschten Hologrammen

Im Mikroskop wird die elastisch gestreute Objektwelle

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = a_{el}(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi(\vec{r})\} \quad (5.31)$$

bei der Propagation in die Bildebene durch die Restaberration der korrigierten Objektivlinse verändert; es resultiert die Bildwelle

$$\Psi_{ima}(\vec{r}) = A_{el}(\vec{r}) \cdot \exp\{i\Phi(\vec{r})\} . \quad (5.32)$$

Die holografische Aufzeichnung führt aufgrund der begrenzten Anzahl der während der Bildentstehung zur Verfügung stehenden Elektronen zur verrauschten Intensität $I_{rec}(\vec{r})$. Aus dieser wird eine verrauschte Bildwelle

$$\Psi_{ima}^{rec}(\vec{r}) = A_{rec}(\vec{r}) \cdot \exp\{i\Phi_{rec}(\vec{r})\} \quad (5.33)$$

rekonstruiert, und nach numerischer Bildfehlerkorrektur liegt die verrauschte Objektwelle

$$\Psi_{obj}^{rec}(\vec{r}) = a_{rec}(\vec{r}) \cdot \exp\{i\varphi_{rec}(\vec{r})\} \quad (5.34)$$

vor.

Dabei unterscheiden sich die Amplituden A_{rec} und a_{rec} sowie die Phasen Φ_{rec} und φ_{rec} durch das Rauschen von den Amplituden und Phasen im Mikroskop:

$$A_{rec}(\vec{r}) = A_{el}(\vec{r}) + \Delta A(\vec{r}), \quad \Phi_{rec}(\vec{r}) = \Phi(\vec{r}) + \Delta\Phi(\vec{r}) \quad (5.35)$$

und

$$a_{rec}(\vec{r}) = a_{el}(\vec{r}) + \Delta a(\vec{r}), \quad \varphi_{rec}(\vec{r}) = \varphi(\vec{r}) + \Delta\varphi(\vec{r}). \quad (5.36)$$

In Abbildung 5.13 ist der Informationstransfer von der Objektwelle im Mikroskop zur verrauschten rekonstruierten Objektwelle im Computer schematisch dargestellt.

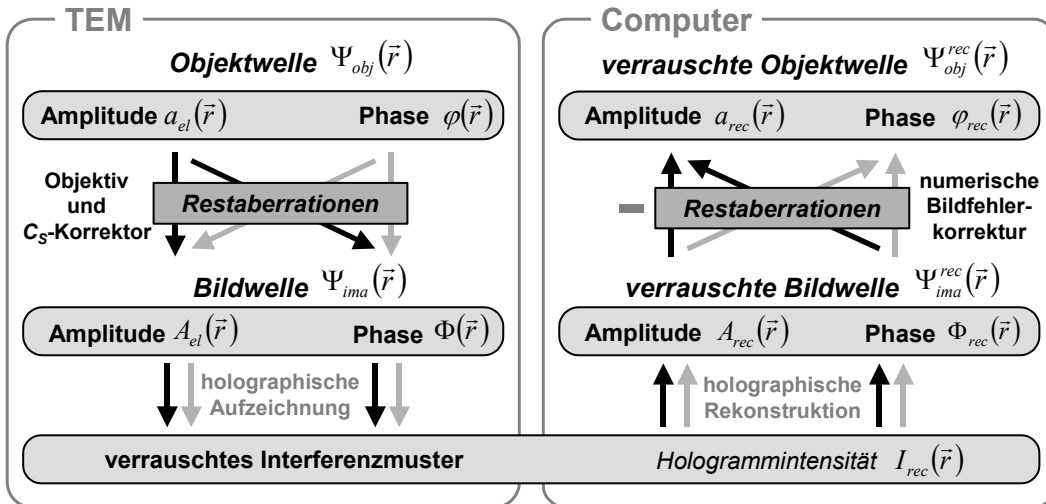


Abbildung 5.13 – Aufnahme und Rekonstruktion verrauschter Hologramme: Im Mikroskop wird ein verrauschtes Elektronenhologramm I_{rec} aufgezeichnet. Die im Computer rekonstruierten Bild- und Objektwellen unterscheiden sich durch das Rauschen von den ursprünglichen Wellen im Mikroskop, hier durch den Index „rec“ gekennzeichnet.

Für ein leeres Interferenzmuster wurden aus den statistischen Fehlern von Kontrast V und Dosis N im rekonstruierten Pixel

$$\sigma_V = \sqrt{\frac{2-V^2}{N}} \quad \text{und} \quad \sigma_N = \sqrt{N} \quad (5.37)$$

mittels Fehlerfortpflanzung für Amplitude A und Phasenschiebung Φ die Standardabweichungen

$$\sigma_A = \sqrt{2N} \quad \text{und} \quad \sigma_\Phi = \frac{1}{V} \sqrt{\frac{2}{N}} \quad (5.38)$$

ermittelt [LENZ (1987)]. Aus (5.38) ergibt sich das Problem, dass für eine zuverlässige Rekonstruktion der Phase ein hoher Kontrast V sowie eine hohe Anzahl N von Elektronen je rekonstruiertes Pixel notwendig ist. Gleichzeitig bedingt jedoch eine große Zahl detektierter Elektronen N eine große Standardabweichung in der Amplitude. Zur Optimierung der Phasensensitivität σ_Φ spielt dieser Sachverhalt bei mittlerer Auflösung aufgrund der großflächigen Objektstrukturen und der Vernachlässigung der Aberrationseinflüsse keine Rolle. Bei der höchstauflösenden Elektronenholografie werden Amplitude und Phase mit ihren jeweiligen Rauscheigenschaften jedoch durch die nachträgliche numerische Bildfehlerkorrektur entsprechend der linearen Kontrastübertragungstheorie auf komplizierte Weise ineinander überführt. Damit besitzt auch das Rauschen der rekonstruierten Bildamplitude einen Einfluss auf das Rauschen der bildfehlerkorrigierten Objektphase (Abbildung 5.13). Aus diesem Grund lassen sich für die rekonstruierte Objektamplitude a_{rec} und Objektphase φ_{rec} nicht ohne weiteres die Standardabweichungen angeben. Daher wird im nächsten Unterkapitel dieses Problem durch Simulation und Rekonstruktion verrauschter Hologramme näher untersucht.

5.3.2 Simulation des Rauschens in der rekonstruierten Objektwelle

Die Simulation und Rekonstruktion verrauschter Hologramme eröffnet einen einfachen Zugang zum Rauschen von Amplitude und Phase nach Bildfehlerkorrektur. Die dazu notwendigen Schritte sind in Abbildung 5.14 schematisch dargestellt und sollen im Folgenden im Detail aufgezeigt werden:

- Mit dem Simulationspaket EMS [STADELMANN (1987)] werden verschiedene Testobjekte simuliert. Um sowohl leichte als auch schwere Elemente sowie verschiedene Verbindungen und unterschiedliche zwischenatomare Abstände testen zu können, wurden Einheitszellen von GaAs [011], BeTe [011] und Gold [011] in allen Dicken bis 20 Monolagen simuliert.
- Mittels DigitalMicrograph [GATAN (2006)] wird die simulierte Welle der Einheitszelle periodisch fortgesetzt, so dass ein Gesichtsfeld von annähernd $9 \times 9 \text{ nm}^2$ ausgefüllt ist. Diese mit 1024 Pixeln abgetastete Welle dient als Objektaustrittswelle Ψ_{obj} . Bezogen auf eine 1024-Pixel-CCD-Kamera mit $24 \mu\text{m}$ Pixeln bedeutet dies eine Gesamtvergrößerung von $M_{ges} \approx 2.73 \cdot 10^6$.
- Die Objektwelle Ψ_{obj} propagiert durch die Objektivlinse mit den Aberrationen (C_1, C_3); die Mittelung über Energiebreite und Ausdehnung der Quelle führt zu einer Dämpfung hoher Raumfrequenzen. In der Simulation resultiert nach Anwendung der numerischen Phasenplatte sowie der chromatischen und räumlichen Enveloppen eine Bildwelle Ψ_{ima} .
- Die Bildwelle formt in der Bildebene mit der leeren Referenzwelle das Interferenzstreifenmuster:

$$I(\vec{r}) = 1 + A_{el}^2(\vec{r}) + 2\mu \cdot A_{el}(\vec{r}) \cdot \cos[2\pi \vec{g}_c \vec{r} + \Phi(\vec{r})]. \quad (5.39)$$

Der Faktor $\mu = 0.15$ beinhaltet die Dämpfung durch partielle Kohärenz, Instabilitäten und MTF der Kamera.

Die Trägerfrequenz \vec{g}_c wird exakt so gewählt, dass jeder Interferenzstreifen von vier Pixeln abgetastet wird. Bei einer Gesichtsfeldbreite von ca. 9 nm und einer Abtastung von 1024 Pixeln gelingt für ein Informationslimit $g_{max} = 8 \text{ nm}^{-1}$ somit problemlos die Trennung von Zentralband und Seitenband im Hogrammspektrum.

- Das Quantenrauschen der Elektronen wird mittels der DigitalMicrograph-Funktion **PoissonRandom**($\mathbf{N}_{i,j}$) simuliert. Dabei ist N_{ij} der Erwartungswert im Pixel (i, j), d.h. die Verteilung (5.39) multipliziert mit der mittleren Anzahl \bar{N} detektierter Elektronen. Mit $\bar{N} = 400$ wird ein für die holografische Aufzeichnung unter Belichtungszeiten von $\tau = 2 \dots 4 \text{ sec}$ üblicher Wert gewählt.

Das Resultat ist die Poisson-verrauschte Hologrammintensität

$$I_{rec}(\vec{r}) = \mathbf{PoissonRandom}(\bar{N} \cdot I(\vec{r})) . \quad (5.40)$$

- Aus den verrauschten Hologrammen $I_{rec}(\vec{r})$ wird durch Fourieranalyse das Seitenband mit einer weichen Maske (Butterworth-Filter 2. Ordnung) herausgeschnitten und zentriert. Nach inverser Fouriertransformation liegt die verrauschte rekonstruierte Bildwelle vor:

$$\Psi_{ima}^{rec}(\vec{r}) = A_{rec}(\vec{r}) \cdot \exp\{i \Phi_{rec}(\vec{r})\} . \quad (5.41)$$

- Zur Bildfehlerkorrektur wird das Fourierspektrum der Bildwelle mit derselben Phasenplatte, die zur Simulation der Bildwelle genutzt wird, dividiert. Im Ortsraum führt dies zur verrauschten bildfehlerfreien Objektwelle

$$\Psi_{obj}^{rec}(\vec{r}) = a_{rec}(\vec{r}) \cdot \exp\{i \varphi_{rec}(\vec{r})\} . \quad (5.42)$$

- Gleichzeitig wird eine idealisierte Welle

$$\bar{\Psi}_{obj} = \bar{a}(\vec{r}) \cdot \exp\{i \bar{\varphi}(\vec{r})\} \quad (5.43)$$

erzeugt. Dazu werden exakt dieselben Dämpfungsterme und Ausschneidefunktionen auf die simulierte Ausgangswelle angewendet, die im Laufe der obigen Simulation die Entstehung der verrauschten Welle beeinflussen. (Diese Welle entspricht exakt der simulierten Welle mit $\bar{N} \rightarrow \infty$ Elektronen; ein numerischer Test führt lediglich zu Differenzen im Bereich numerischen Rauschens in der Größenordnung von 10^{-8} im Real- und Imaginärteil der Welle.)

- Aus der rekonstruierten verrauschten Welle Ψ_{obj}^{rec} und der idealen Welle $\bar{\Psi}_{obj}$ lassen sich für die Amplitude und die Phase die jeweiligen Abweichungen der verrauschten Größen vom idealisierten Fall ermitteln:

$$\Delta a(\vec{r}) = a_{rec}(\vec{r}) - \bar{a}(\vec{r}) \quad \text{und} \quad \Delta \varphi(\vec{r}) = \varphi_{rec}(\vec{r}) - \bar{\varphi}(\vec{r}) . \quad (5.44)$$

- Damit lassen sich leicht die Standardabweichungen für Objektamplitude und Objektphase mit den $n_{\vec{r}}$ Pixelpositionen \vec{r}_i bestimmen:

$$\sigma_a = \sum_{\vec{r}_i} \sqrt{\frac{1}{n_{\vec{r}} - 1} |a_{rec}(\vec{r}_i) - \bar{a}(\vec{r}_i)|^2} \quad \text{und} \quad \sigma_\varphi = \sum_{\vec{r}_i} \sqrt{\frac{1}{n_{\vec{r}} - 1} |\varphi_{rec}(\vec{r}_i) - \bar{\varphi}(\vec{r}_i)|^2} . \quad (5.45)$$

Der numerische Test in Abbildung 5.14 zeigt, dass sowohl das Rauschen in der Amplitude als auch das der Phase jeweils einer Normalverteilung genügt.

Zur Begrenzung der Rechenzeit werden einige untergeordnete Aspekte der Bildentstehung in dieser Simulation nicht berücksichtigt. Dies sind

- die inelastische Intensität $A_{inel}^2(\vec{r})$ im Zentralband,
- die partielle Kohärenz im Zentralband mittels Transmissionskoeffizient,
- und die Signalübertragung der CCD-Kamera (frequenzabhängige MTF und korreliertes Rauschen).

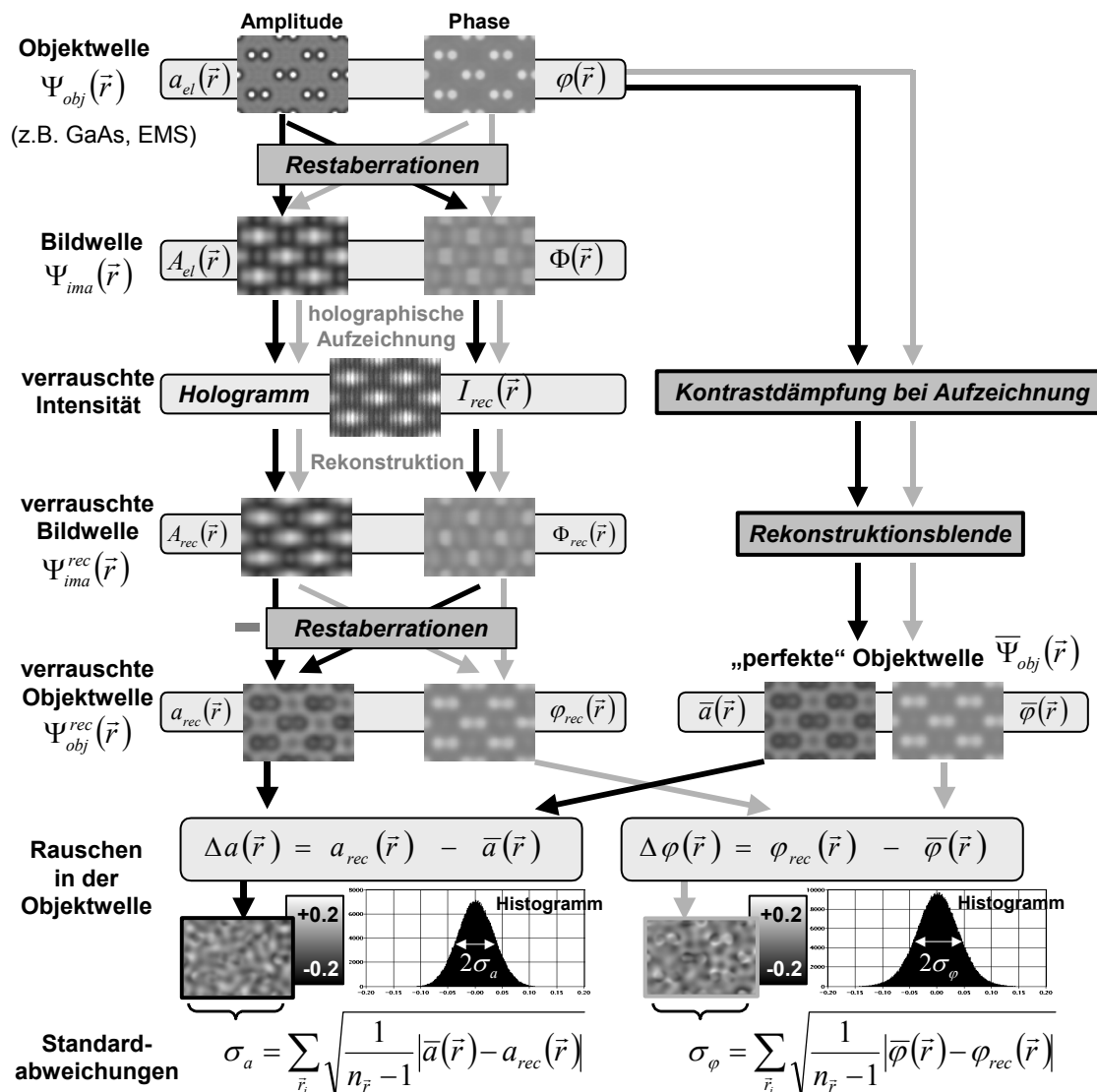


Abbildung 5.14 – Ablaufschema zur Simulation des Rauschens in der rekonstruierten Objektwelle

Damit steht nunmehr eine Routine zur Verfügung, um systematisch das Rauschen in der bildfehlerkorrigierten Welle orts aufgelöst, d.h. z.B. auf die Atompositionen beschränkt, zu analysieren. Da alle Testobjekte aus vielen identischen Einheitszellen aufgebaut sind, z.B. ca. 1400 Atompositionen im GaAs[011] bei $9 \times 9 \text{ nm}^2$, liegt mit jeder einzelnen

Simulation eine gute Statistik in den atomaren rekonstruierten, verrauschten Amplituden- und Phasenwerten um immer dieselben Mittelwerte vor. Um ein Optimum für die Bildfehlerpaare (C_1, C_3) zu ermitteln, kann nunmehr aus dem Phasenrauschen $\Delta\varphi(\vec{r})$ um den Mittelwert $\bar{\varphi}(\vec{r})$ die dazugehörige Standardabweichung σ_φ in Abhängigkeit der Aberrationsparameter (C_1, C_3) bestimmt werden. Zunächst gilt es jedoch, den Bildfehlern (C_1, C_3) Grenzen zu setzen.

5.3.3 Begrenzung der Aberrationen

Für eine Optimierung der Aberrationsparameter (C_1, C_3) muss zunächst geklärt werden, in welchen Grenzen diese variiert werden können, ohne die für die Holografie bereits erzielten Verbesserungen des Cs-Korrektors (Abschnitt 5.1) zunichte zu machen. Abgesehen von der höheren Zwischenbildvergrößerung resultieren alle zuvor berichteten Verbesserungen aus der Reduzierung des Aberrationsgradienten. Um die erreichten Erfolge nicht wieder einzuschränken, bleibt nur ein schmaler Bereich, in dem der Defokus C_1 und die sphärische Aberration dritter Ordnung C_3 eingestellt werden können.

Als Kriterium für eine Wahl von C_1 und C_3 bietet es sich an, dem Gradienten der Wellenaberration $\nabla\chi(g)$ für alle $g \leq g_{\max}$ eine Obergrenze zu setzen. Im Folgenden werden ausschließlich Kombinationen von C_1 und C_3 zugelassen, bei der die Größe der Point-Spread-Function *psf* den Wert von 1 nm nicht überschreitet.

Mit

$$psf = \frac{1}{2\pi} |\nabla\chi(\vec{g})|_{\max, g \leq g_{\max}} \leq 1 \text{ nm} \quad (5.46)$$

ergibt sich für den Aberrationsgradienten die obere Grenze

$$|\nabla\chi(\vec{g})|_{g \leq g_{\max}} \leq 2\pi / \text{nm}^{-1}. \quad (5.47)$$

Daraus lässt sich unter Einschränkung der Wellenaberration auf Defokus C_1 und sphärische Aberration C_3 für die Wertepaare (C_1, C_3) die Bedingung

$$C_1 \left(\frac{g}{k} \right) + C_3 \left(\frac{g}{k} \right)^3 \leq 1 \text{ nm} \quad \forall g \leq g_{\max} \quad (5.48)$$

ableiten.

Mit der Definition der linearen Enveloppe der partiellen räumlichen Kohärenz

$$E_S^{lin}(\vec{g}) = \exp \left\{ - \left[\frac{k\theta_C}{\sqrt{2}} \nabla\chi(\vec{g}) \right]^2 \right\} \quad (5.49)$$

ergibt sich mit der Einschränkung (5.47) bei einer Beschleunigungsspannung von 200 kV ($k = 400 \text{ nm}^{-1}$) und einer angularen Quellgröße von $\theta_C = 0.15 \text{ mrad}$ höchstens

eine Dämpfung auf 93.1%. Damit ist diese Dämpfung gegenüber der Dämpfung durch den chromatischen Fehler praktisch bedeutungslos.

Abbildung 5.15 zeigt, wie sich die Größe der Point-Spread-Function psf in Abhängigkeit vom Defokus C_1 und dem Öffnungsfehler C_3 verhält. Nur ein schmaler Bereich der Kombinationen (C_1, C_3) erfüllt die Bedingung (5.47).

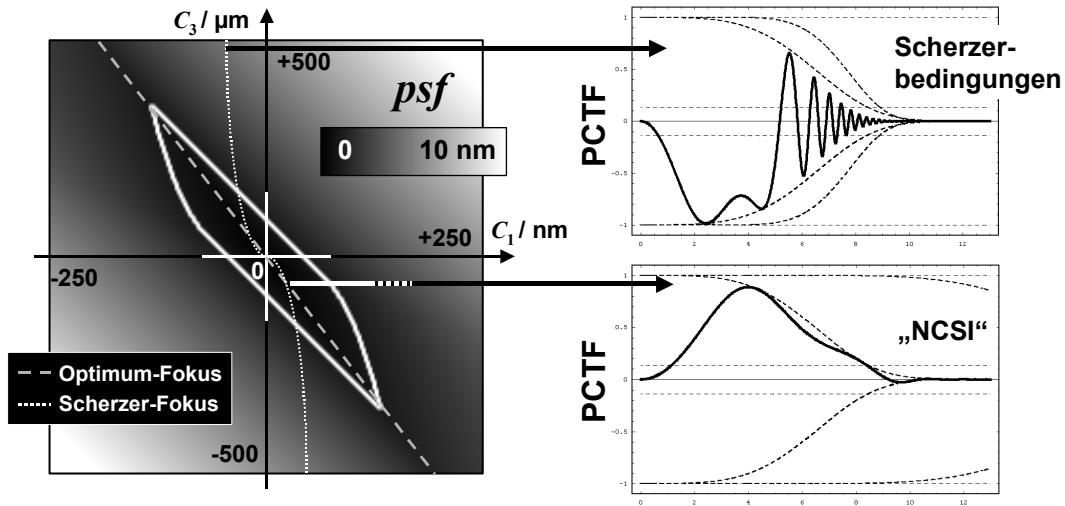


Abbildung 5.15 – Größe der Point-Spread-Function psf in Abhängigkeit von Defokus C_1 und sphärischer Aberration C_3 : Für die Optimierung der Bildfehler (C_1, C_3) steht der markierte innere Bereich ($psf \leq 1 \text{ nm}$) zur Verfügung, da nur für diese Parameter der Aberrationsgradient klein genug ist. Zum besseren Verständnis wurde das Schema um die Bedingungen des Scherzer-Fokus (gepunktet) und des Optimum-Fokus (gestrichelt) vervollständigt. An deren Schnittpunkt bei negativen C_3 befindet sich die Abbildungsbedingung für „NCSI“.

5.3.4 Optimierung der Aberrationsparameter

Als Kriterium zur Optimierung der Aberrationsparameter (C_1, C_3) wird hier das Phasenrauschen an den Atompositionen der rekonstruierten, bildfehlerkorrigierten Objektwelle ausgewählt. Nach der Simulation des Phasenrauschens $\Delta\varphi(\vec{r})$ (Abschnitt 5.3.2) wird dieses auf die Atompositionen \vec{r}_A eingeschränkt, indem eine harte kreisförmige Maske vom Durchmesser der Auflösung des Mikroskops $1/g_{\max}$ die Beiträge aller interatomaren Positionen entfernt. Die dazugehörige Standardabweichung für das Phasenrauschen an den $n_{\vec{r}_A}$ Atompositionen \vec{r}_A lautet dann

$$\hat{\sigma}_\varphi = \sum_{\vec{r}_A} \sqrt{\frac{1}{n_{\vec{r}_A} - 1} |\overline{\varphi}(\vec{r}) - \varphi_{\text{rec}}(\vec{r})|}. \quad (5.50)$$

Diese Größe repräsentiert in Form eines einfachen Zahlenwerts die Stärke des atomaren Phasenrauschens und eignet sich somit hervorragend als numerische Optimierungsgröße. In einem „Brute Force“-Ansatz wird hier über alle erlaubten Kombinationen von C_1 und C_3 nach einem Minimum gesucht. Abbildung 5.16 zeigt diesen Ablauf der Optimierung.

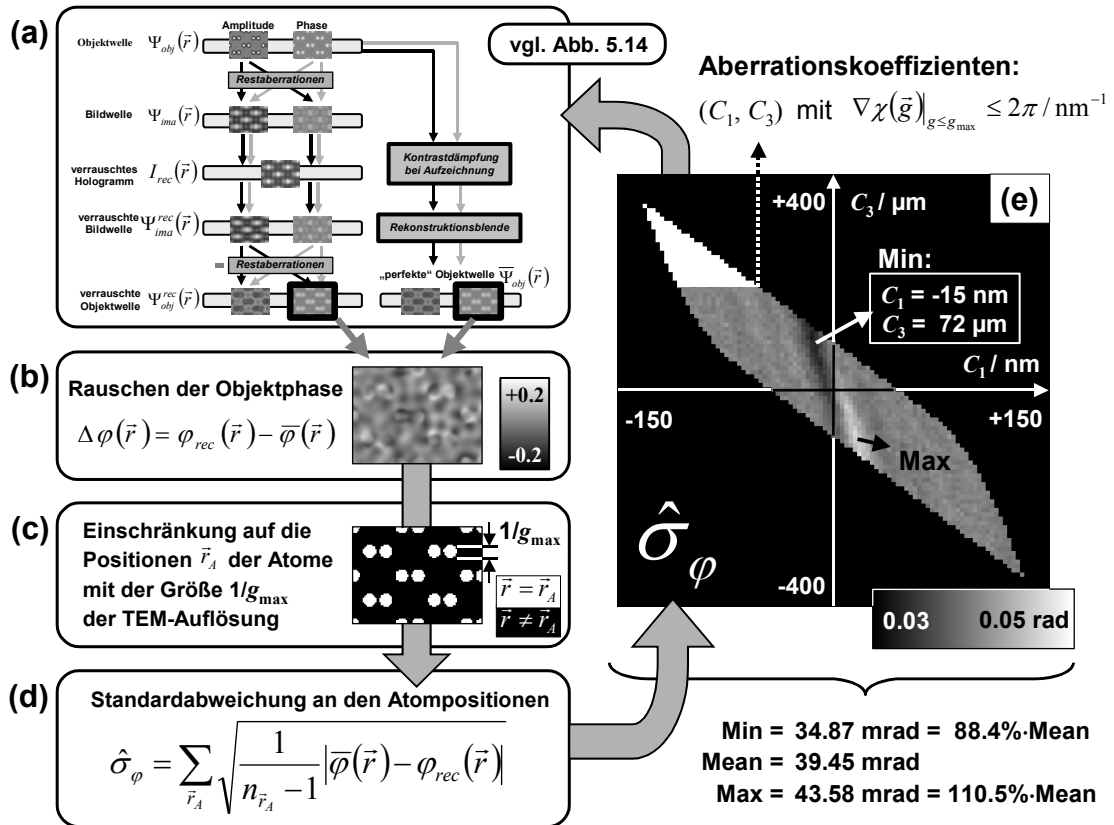


Abbildung 5.16 – Schema zur Optimierung der Aberrationskoeffizienten für [110]-orientiertes GaAs der Dicke 2.4 nm: In einer Doppelschleife über die „erlaubten“ Werte von Defokus C_1 und Öffnungsfehler C_3 wird (a) die verrauschte Objektwelle simuliert (vgl. Abbildung 5.14). Das Phasenrauschen (b) wird auf die Atompositionen (c) eingeschränkt und dessen Standardabweichung (d) in einer (C_1, C_3) -Karte (e) abgepeichert. Aus dieser lässt sich das Minimum bei $C_1 = -15 \text{ nm}$ und $C_3 = 72 \mu\text{m}$ ablesen. In diesem Fall beträgt das Minimum 11.6% weniger als der Mittelwert und sogar 20% weniger als das Maximum.

Die Optimierung des atomaren Phasenrauschens führt zu einem Minimum, das signifikant unterhalb des Mittelwerts liegt. Es ist erwähnenswert, dass der Mittelwert des Phasenrauschens unter den simulierten Hologrammeigenschaften nahezu mit dem Phasenrauschen σ_φ der Lenz-Formel (3.44) übereinstimmt. Beim simulierten Ergebnis ist auffällig, dass Abweichungen vom mittleren Rauschen insbesondere entlang der Abbildungsbedingung von Scherzer auftreten (vgl. Abbildung 5.15).

Da die Optimierung bislang nur an einer bestimmten Dicke einer bestimmten Struktur erfolgte, wird die Untersuchung im Folgenden auf eine Dickenserie von GaAs in [110]-Orientierung ausgeweitet. D.h. für jede Objektstärke innerhalb der Serie wird eine C_1 - C_3 -Karte des atomaren Phasenrauschens bestimmt und das jeweilige Minimum ermittelt. Abbildung 5.17 zeigt die Ergebnisse dieser Dickenserie bis zu einer Objektstärke von 16 nm in 0.8 nm-Schritten. Es ist erkennbar, dass das (C_1, C_3) -Optimum bezüglich des Phasenrauschens dickenabhängig und damit signalabhängig ist.

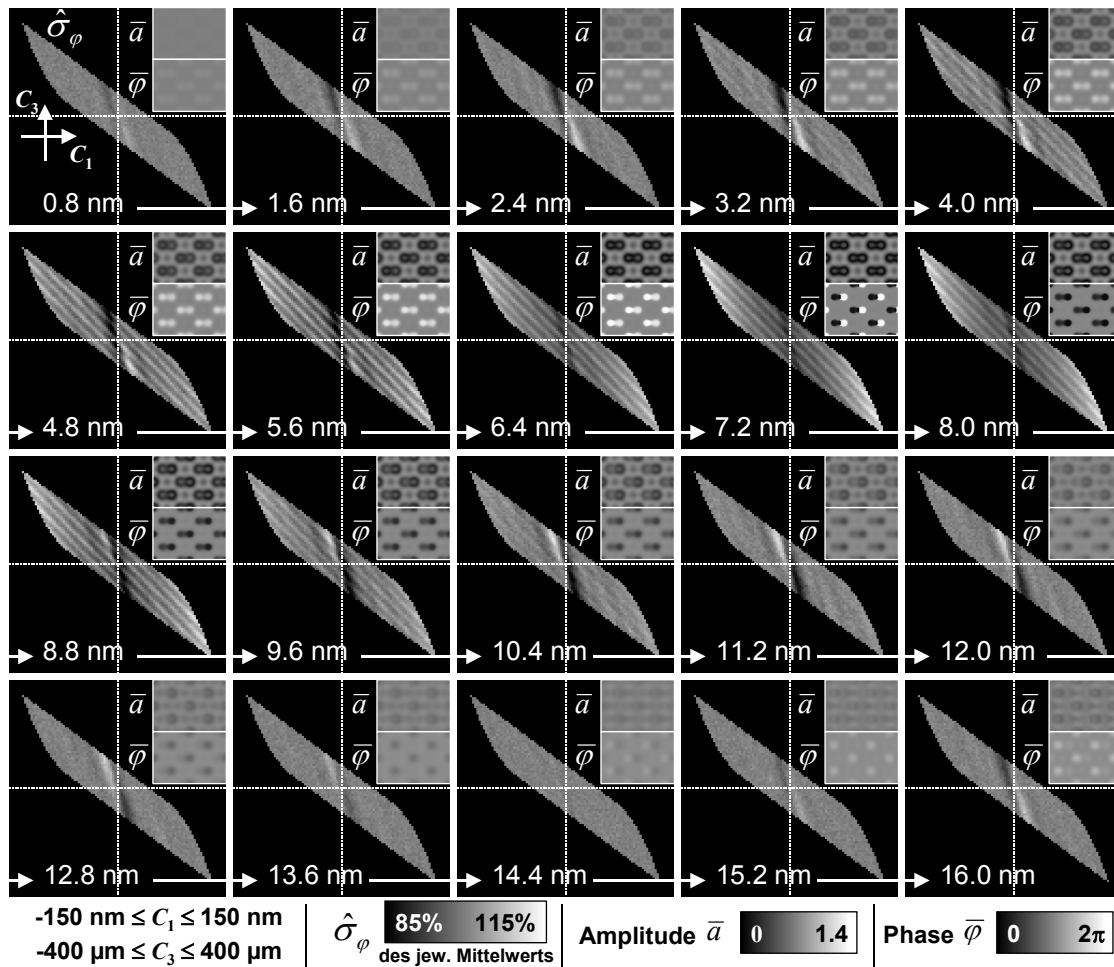


Abbildung 5.17 – Optimierungsergebnis der Dickenserie: In 0,8 nm-Schritten wird für jede Dicke bis 16 nm eine C_1 - C_3 -Karte des atomaren Phasenrauschens bestimmt. Für dünne Objekte unterhalb von 6 nm liegt ein ausgeprägtes Minimum bei positiver sphärischer Aberration und Unterfokus vor. Für die Dicken im Bereich der Kontrastumkehr (phase wrapping) „verschimmt“ das Optimum und findet sich auf der gegenüberliegenden Seite wieder (negativer Öffnungsfehler und Überfokus). Bei der Extinktionsdicke λ_E (GaAs: $\lambda_E = 14,4 \text{ nm}$) verschwinden Minimum und Maximum. Oberhalb der Extinktionsdicke wiederholt sich das Verhalten der Extrema bezüglich der Parameter (C_1 , C_3).

Die systematischen Änderungen bezüglich (C_1 , C_3) lassen sich mittels Abbildung 5.18 erklären. Dazu wurden innerhalb der Dickenserie die Objektwelle, die Bildwelle und die Hologrammintensität sowohl im Cs-korrigierten Scherzerfokus, als auch im negativen Scherzerfokus („NCSI“) gegenübergestellt. Der jeweilige zugehörige Zahlenwert für das Phasenrauschen ermöglicht den direkten Vergleich der beiden Abbildungsbedingungen miteinander.

Abbildung 5.18 zufolge wird das Phasenrauschen an der Atomposition genau dann am geringsten, wenn die Amplitude der abgebildeten Atomsäule klein ist. Dies tritt unterhalb der halben Extrinktionsdicke mit Scherzerbedingungen auf und gelingt zwischen halber und voller Extinktionsdicke gerade unter „NCSI“-Bedingungen, also denselben Bedingungen umgekehrten Vorzeichens.

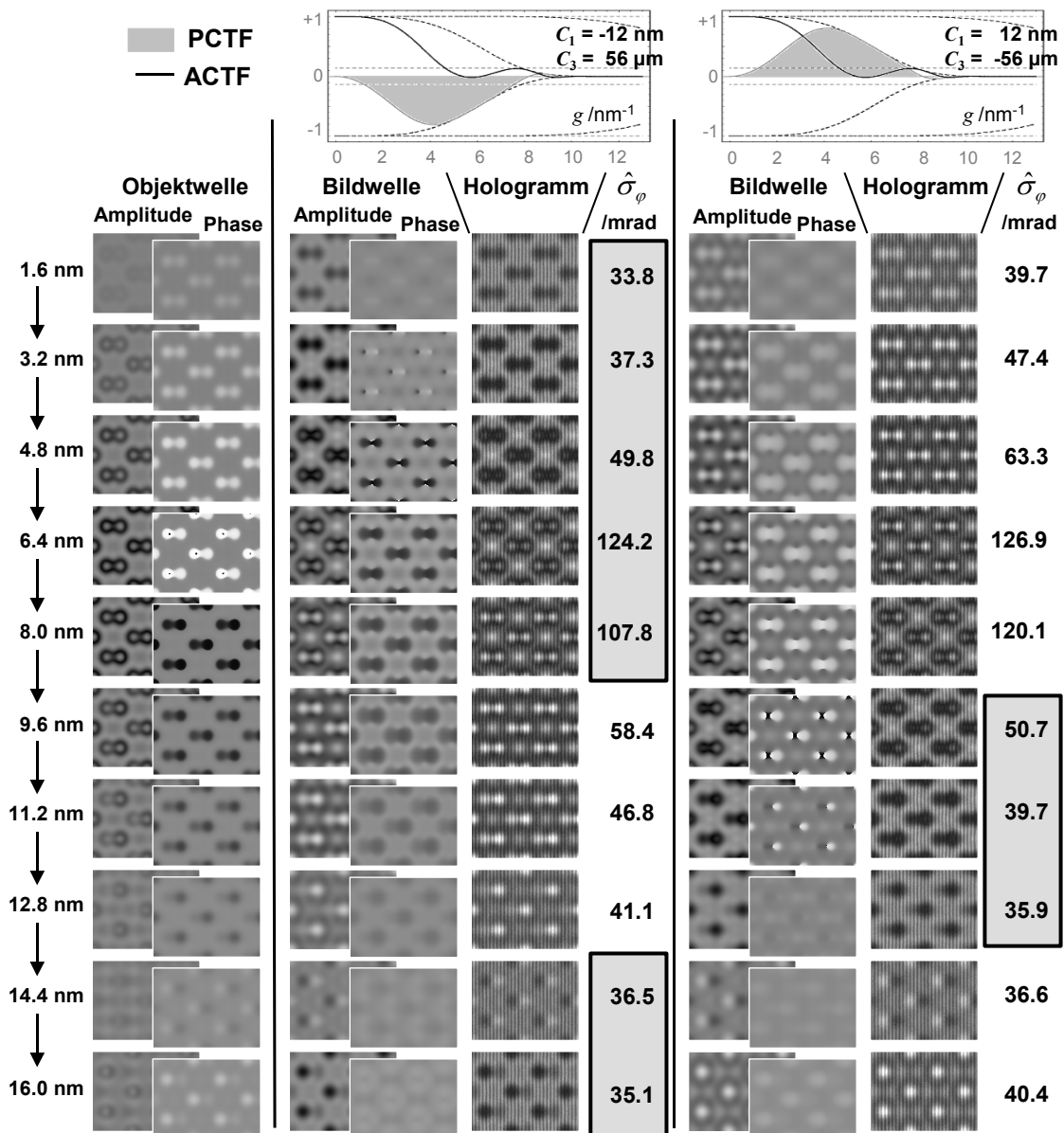


Abbildung 5.18 – Dickenserie von GaAs-Hologrammen unter positiven (Mitte) und negativen (rechts) Scherzer-Abbildungsbedingungen: Die Standardabweichung der bildfehlerkorrigierten atomaren Phasenschiebung ist genau dann am geringsten (grau unterlegt), wenn im Hologramm die Intensität an den Atompositionen niedrig ist.

Für eine direkte quantitative Auswertung sind dünne Proben unterhalb der halben Extinktionsdicke $\lambda_E/2$ am besten geeignet (kinematischer Bereich). Daher erfolgt in Abbildung 5.19 eine Mittelung der dickenabhängigen C_1 - C_3 -Karten über den Dickenbereich $0 < t < \lambda_E/2$. Ein sehr deutliches Minimum zeigt sich bei 12 nm Unterfokus und 56 μm Öffnungsfehler dritter Ordnung.

Neben Galliumarsenid wurden die Simulationen mit Berylliumtellurit und Gold wiederholt, um zu prüfen, ob Verbindungen mit unterschiedlichen Ordnungszahlen, bzw. anderer Struktur zum gleichen Ergebnis führen. Die Resultate für BeTe und Au in Abbildung 5.19 zeigen genau das gleiche Verhalten wie zuvor GaAs, wenn auch der optimale Wert für den Öffnungsfehler C_3 ein wenig, jedoch unbedeutend variiert.

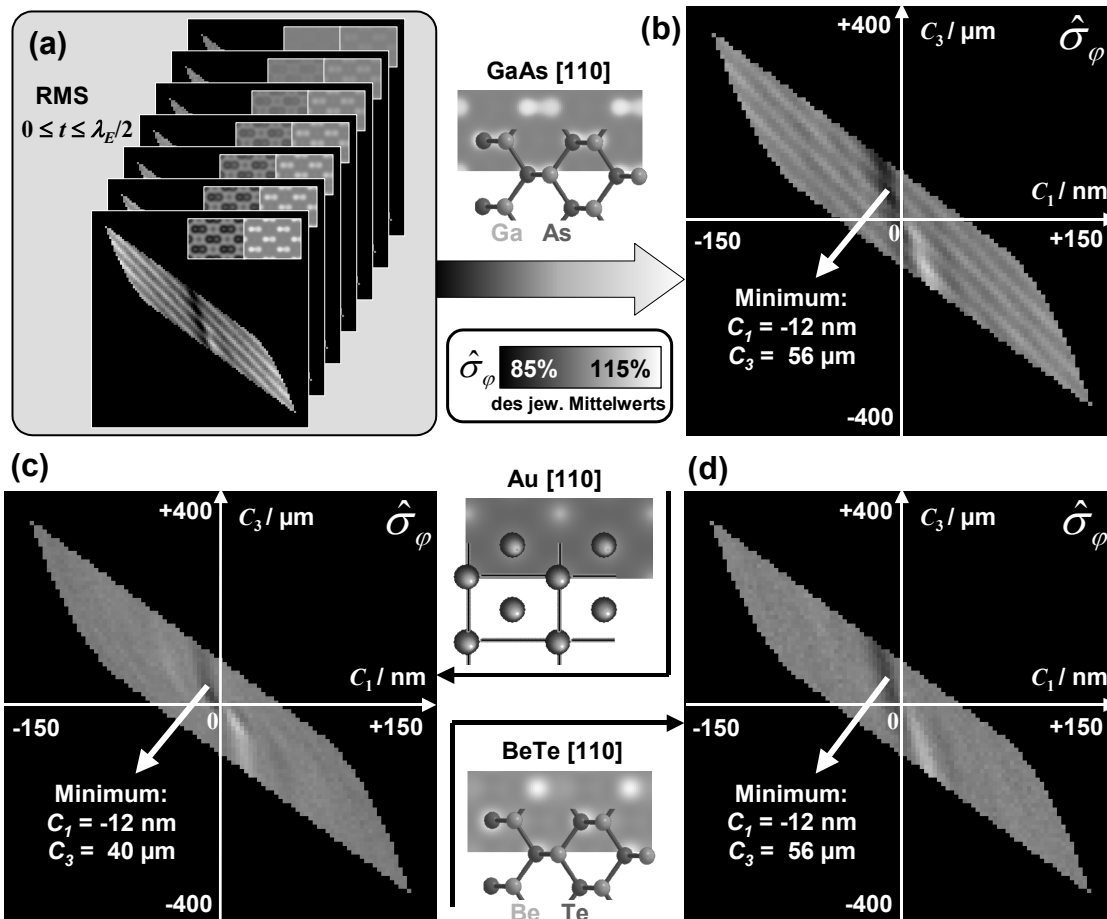


Abbildung 5.19 – Mittleres Optimum: Nach der Mittelung (a) der Ergebnisse für alle Objektdicken unterhalb der halben Extinktionsdicke ($t \leq \lambda_E/2 \approx 7 \text{ nm}$) tritt ein deutliches Minimum für das atomare Phasenrauschen bei Scherzer-Bedingungen mit positiver sphärischer Aberration und Unterfokus auf; (b) bei $C_1 = -12 \text{ nm}$ und $C_3 = 56 \mu\text{m}$ liegt das atomare Phasenrauschen 12% niedriger als der Mittelwert und sogar um 20% niedriger als das Maximum bei den Aberrationskoeffizienten entgegengesetzter Vorzeichen. Das gleiche Verhalten findet man für andere Strukturen und Verbindungen mit Elementen deutlich unterschiedlicherer Ordnungszahlen wie z.B. Gold (c) und Beryllium-Tellurit (d).

Für den Experimentator bedeuten die Ergebnisse unabhängig von der Dicke eine sehr einfache Vorgehensweise: Während der Hologrammaufnahme sind die Atompositionen in der Intensität dunkel abzubilden!

Bemerkenswert ist die Tatsache, dass sich für größere Werte von C_3 in allen Fällen nur kleine Änderungen bezüglich des Rauschens ergeben. Dies ist für die Elektronenholografie in konventionellen Mikroskopen ein wichtiges Ergebnis, da demnach keine spezielle Fokuseinstellung über den Optimum-Defokus hinaus notwendig ist.

Die Art und Weise der Optimierung lässt viel Spielraum für weitere systematische Untersuchungen. Es bleibt offen, ob ein anderes Optimierungskriterium möglicherweise zu einem anderen Ergebnis führt. Beispielsweise könnte das Rauschen der bildfehlerkorrigierten Objektamplitude für „Argand-Plots“ mit einbezogen werden. Auch könnte man statt der Atompositionen den interatomaren Raum als Kriterium

verwenden, wenn es um die Bestimmung von elektrischen Feldern in Festkörpern geht. All diese Überlegungen können Inhalt weiterführender Arbeiten sein.

In allen Fällen ist eine experimentelle Bestätigung der gefundenen Optima derzeit noch nicht möglich, da sowohl die instrumentelle Stabilität, die Objektstabilität als auch die Präparationsmethoden für eine systematische Untersuchung (noch) nicht ausreichen. Die derzeitigen Entwicklungen im Bereich der Elektronenmikroskopie lassen jedoch mit Zuversicht in die Zukunft blicken.

5.4 Zusammenfassung

Für die höchstauflösende Elektronenholografie bedeutet der Cs-Korrektor einen enormen Fortschritt. Insbesondere der verringerte Aberrationsgradient bringt eine ganze Reihe von bedeutenden Verbesserungen mit sich. Als Meilenstein der Weiterentwicklung sticht die Signalauflösung in der rekonstruierten Welle hervor; diese erlaubt eine bei dieser lateralen Auflösung noch nie da gewesene Phasensensitivität.

Es zeigt sich jedoch auch, dass die Mikroskopparameter sehr sorgfältig gewählt werden müssen, um die besten Ergebnisse zu erzielen. Dies betrifft – wie im unkorrigierten Mikroskop auch – einerseits die Beugungslinsenanzug und die Beleuchtung, andererseits mit dem zusätzlichen Freiheitsgrad der sphärischen Aberration aber auch die Bildfehlerkoeffizienten während der Hologrammaufzeichnung. Diese müssen wie zuvor nunmehr nicht nur genau bekannt sein, sondern während der Aufnahme auch gezielt eingestellt werden, damit die lokale Signalauflösung an den Atompositionen der rekonstruierten Objektphase optimiert wird.

6 Anwendung 1: Ferroelektrische Nanoschichten

Als nichtflüchtige Massenspeicher kommen dünne Schichten ferroelektrischer Kristalle in sogenannten FeRAMs (Ferroelectric Random Access Memories) zum Einsatz. Die Information wird im FeRAM in der Polarisationsrichtung der ferroelektrischen Schicht abgelegt, die sich durch ein äußeres elektrisches Feld in zwei Richtungen umschalten lässt. Diese zwei erlaubten Polarisationsrichtungen einer solchen Schicht ermöglichen das Speichern der Zustände „Null“ und „Eins“ eines Bits. Da es sich in ferroelektrischen Kristallen um eine permanente Polarisation handelt, bleibt die gespeicherte Information nach dem Abschalten des Gerätes im Gegensatz zu herkömmlichen RAMs erhalten.

Das beständige Bestreben um höhere Speicherdichten durch Verkleinerung der Strukturen erfordert Untersuchungsmethoden, die mit hoher Ortsauflösung eine ferroelektrische Polarisation detektieren können. Erste Simulationen solcher Polarisationsfelder zeigten, dass off-axis Elektronenholografie in der Lage sein sollte, diese elektrischen Felder zu messen [LICHTE (2002)].

Aus dieser Motivation heraus ergab sich zwischen Fujitsu Japan vertreten durch Dr. Koichiro Honda¹ und dem Triebenberglabor eine Kooperation. Die Experimente und deren Ergebnisse sind in diesem Kapitel zusammengefasst.

Nach einer Einführung in die Materialgruppe der Ferroelektrika folgt eine Diskussion darüber, welche Phasenschiebung bei einem polarisierten Material zu erwarten ist. Die Berücksichtigung der kompensierenden Oberflächenladungen, die eng mit der Polarisation verknüpft sind, ergeben neue Aspekte für die Interpretation holografisch rekonstruierter Phasenschiebungen. Im weiteren Verlauf werden die experimentellen Ergebnisse präsentiert und auf unterschiedliche Art und Weise zur Polarisationsbestimmung genutzt. Dabei erweist sich der Zugang zur komplexen Objektaustrittswelle im Orts- und Fourierraum als äußerst hilfreich.

6.1 Ferroelektrika und deren Eigenschaften

Die Materialgruppe der Ferroelektrika gehört zu den Dielektrika (Nichtleitern). Von den 32 Symmetriegruppen (SG) der dielektrischen Kristalle besitzen elf ein Inversionszentrum, d.h. es verbleiben 21 SG ohne Zentrosymmetrie. Bei 20 dieser SG, den so genannten Piezoelektrika, existiert eine Kopplung zwischen mechanischer Spannung und elektrischen Feld, d.h. ein mechanischer Druck verursacht eine Ladungstrennung im Festkörper (direkter piezoelektrischer Effekt), bzw. eine elektrische Spannung bewirkt eine Längenänderung (inverser piezoelektrischer Effekt). Bei der Hälfte der piezoelektrischen Kristallgruppen, d.h. bei zehn SG, existiert eine spontane Polarität innerhalb der Einheitszelle, die zu einer Kopplung zwischen Temperatur und elektrischem Feld, der Pyroelektrizität, führt: eine Erhitzung bewirkt eine Ladungstrennung (pyroelektrischer Effekt), bzw. eine elektrisches Feld führt zu einer Temperaturänderung des Festkörpers (elektrokalorischer Effekt). Einige der

¹ Dr. Koichiro Honda, Device&Materials Lab., Fujitsu Laboratories Ltd.
10-1 Morinosato-Wakamiya, Atsugi 243-0197, Japan.

pyroelektrischen Kristallgruppen lassen Polarisationszustände in mehreren Richtungen zu, die durch ein äußeres elektrisches Feld ineinander überführt werden können. Dieses Phänomen wird als Ferroelektrizität bezeichnet, die betreffenden Materialien heißen Ferroelektrika. Abbildung 6.1.a illustriert die Gruppeneinteilung innerhalb der Dielektrika. Weitere Kopplungsphänomene zwischen mechanischer Spannung und Temperatur führen zur thermischen Ausdehnung und zum piezokalorischen Effekt. Eine übersichtliche Darstellung dieser Kopplungseffekte ermöglicht das so genannte Heckmann-Diagramm (Abbildung 6.1.b). Dieses veranschaulicht die Kopplungseffekte als Verbindungen zwischen den intensiven Zustandsgrößen des elektrischen Feldes, der Temperatur und der mechanischen Spannung mit den extensiven Zustandsgrößen der dielektrischen Verschiebung, der Entropie und der Deformation [HECKMANN (1925)]. Die Kopplungsstärke wird durch skalare thermische Größen, vektorielle elektrische Größen und mechanische Tensoren beschrieben. In Ferroelektrika besitzen neben dem elektrischen Feld demzufolge auch mechanische Spannung und Temperatur eine Auswirkung auf die elektrischen Eigenschaften des Festkörpers. Dieser Sachverhalt kann experimentelle Untersuchungen unter ungünstigen Umständen (instabile mechanische Verspannungen des Kristallgitters oder plötzliche Temperaturdifferenzen) deutlich erschweren.

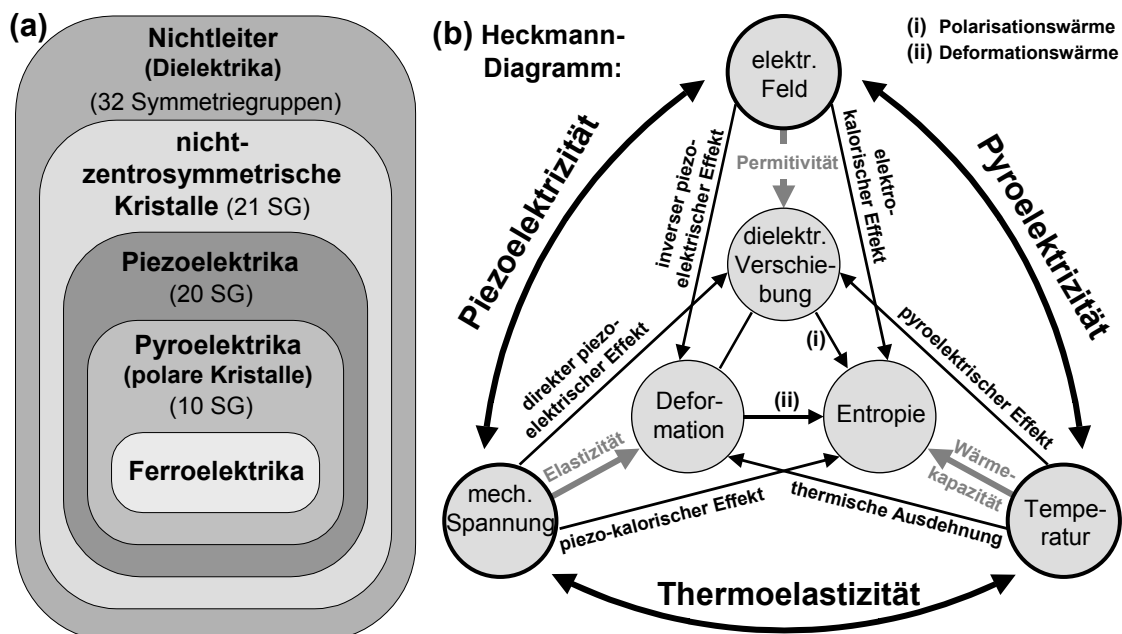


Abbildung 6.1 – Klassifikation von Di-, Piezo-, Pyro- und Ferroelektrika: (a) Alle Ferroelektrika sind auch Pyroelektrika, die ihrerseits zur Gruppe der Piezoelektrika gehören. In allen piezoelektrischen Kristallen ist die Zentrosymmetrie gebrochen und sie sind Nichtleiter. (b) Das Heckmann-Diagramm veranschaulicht die Kopplungseffekte zwischen mechanischer Spannung, elektrischen Feld und der Temperatur [HECKMANN (1925)].

Ferroelektrika zeichnen sich dadurch aus, dass die spontane Polarisation durch ein äußeres elektrisches Feld die Richtung ändern kann. Dies geschieht ausschließlich unterhalb der Curie-Temperatur T_C , bei deren Über- und Unterschreiten jeweils ein Phasenübergang stattfindet [HELLWEGE (1976)]. Im Falle des in dieser Arbeit

untersuchten Bleititanats PbTiO_3 , einem Vertreter der Perovskite, bedeutet dies, dass oberhalb von $T_C = 765.1 \text{ K}$ eine kubische Einheitszelle mit Inversionszentrum vorliegt (paraelektrische Phase) und unterhalb von T_C eine tetragonal verzerrte Struktur zu finden ist. Innerhalb dieser tetragonalen Einheitszelle kommt es zu einer Auslenkung der Ionen, so dass die positiven und negativen Ladungsschwerpunkte nicht mehr identisch sind und entlang der verzerrten Achse ein permanentes Dipolmoment \vec{p} erzeugen (ferroelektrische Phase). Aus dem Dipolmoment pro Volumen V_{uc} der Einheitszelle ergibt sich die Polarisation

$$\vec{P} = \frac{\vec{p}}{V_{uc}}, \quad (6.1)$$

die für PbTiO_3 im Bulk-Material mit $P = 0.81 \text{ C/m}^2$ ($= 81 \mu\text{C/cm}^2$) bestimmt wurde [MEYER (2001)]. Abbildung 6.2 zeigt die Struktur von Bleititanat in der paraelektrischen und der ferroelektrischen Phase mit den zwei auftretenden Polarisationszuständen.

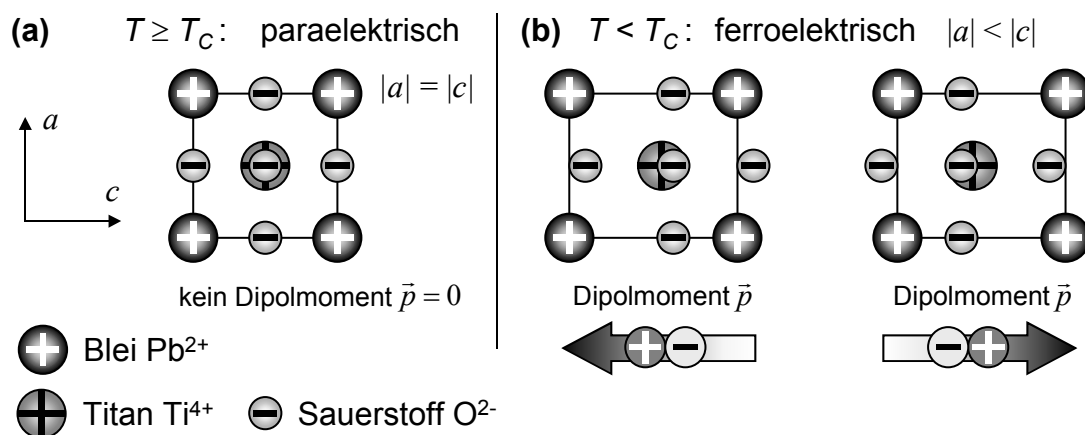


Abbildung 6.2 – Einheitszelle von Bleititanat: (a) Die Perovskit-Struktur PbTiO_3 tritt oberhalb der Curie-Temperatur $T_C = 765.1^\circ\text{C}$ nur als paraelektrische Phase mit kubischer, zentrosymmetrischer Struktur auf. Nach Abkühlen unter T_C wird eine tetragonale Phase beobachtet, bei der durch Auslenkung der Atome die Zentrosymmetrie gebrochen wird. Dabei werden die Titan- und Sauerstoff-Ionen in dieselbe Richtung ausgelenkt, Sauerstoff jedoch stärker als Titan (b). Die Atomverschiebungen bewirken ein permanentes Dipolmoment in der Einheitszelle, dass durch ein äußeres elektrisches Feld in zwei Richtungen entlang der tetragonal verzerrten c -Achse ausgerichtet werden kann.

6.2 Präparation und Geometrie der Probe

Zur Anwendung der Ferroelektrizität in FeRAMs wird eine dünne Schicht von PbTiO_3 zwischen zwei metallischen Elektroden benötigt. Werden diese kontaktiert, lässt sich schlussendlich ein elektrisches Feld anlegen, um die Polarisationsrichtung im Bleititanat hin und her zu schalten, bzw. dem Bit einen Wert „Null“ oder „Eins“ zuzuordnen. Als Material für diese Elektroden hat sich Strontiumruthenat (SrRuO_3) bewährt [HARTMANN (2000)]. Es besitzt eine quasi-kubische Struktur mit nahezu identischen Gitterparametern wie die a -Achse des PbTiO_3 und ermöglicht somit ein

versetzungsarmes, epitaktisches Schichtwachstum. Dies hat außerdem zur Folge, dass die Polarisationsrichtung innerhalb der dünnen PbTiO_3 -Schichten ausschließlich senkrecht zwischen den Elektroden auftritt. Als Substrat für diese Schichtanordnung eignet sich hervorragend der Isolator Strontiumtitanat (SrTiO_3). Auch dieses Material erlaubt aufgrund seiner gegenüber SrRuO_3 nahezu identischen Gitterparameter ein versetzungsfreies epitaktisches Kristallwachstum. Tabelle 6.1 gibt die Eigenschaften der verwendeten Materialien im Detail wieder.

	Strontiumtitanat SrTiO_3 (STO)	Strontiumruthenat SrRuO_3 (SRO)	Bleititanat PbTiO_3 (PTO)
	nichtleitend	metallisch	ferroelektrisch
Struktur	kubisch (Pm3m)	quasi-kubisch (Pm-3)	tetragonal (P4mm)
Gitterkonstanten			
<i>a</i>	0.3930 nm	0.3905 nm	0.3905 nm
<i>b</i>	0.3930 nm	0.3905 nm	0.3905 nm
<i>c</i>	0.3930 nm	0.3905 nm	0.4156 nm
Verzerrung <i>c/a</i>	1.000	1.000	1.064
Quelle	[NASSAU (1988)]	[ALBINA (2007)]	[GLAZER (1978)]

Tabelle 6.1 – Gitterparameter von SrTiO_3 , SrRuO_3 und PbTiO_3

Um die Abhängigkeiten der Polarisation von unterschiedlichen Probengeometrien untersuchen zu können, wurden bei Fujitsu mehrere Serien unterschiedlicher Schichtsysteme präpariert:

- PTO/STO : ferroelektrisch / nichtleitend
- PTO/SRO/STO : ferroelektrisch / metallisch / nichtleitend
- STO/PTO/STO : nichtleitend / ferroelektrisch / nichtleitend
- SRO/PTO/STO : metallisch / ferroelektrisch / nichtleitend
- STO/PTO/SRO/STO : nichtleitend / ferroelektrisch / metallisch / nichtleitend
- SRO/PTO/SRO/STO : metallisch / ferroelektrisch / metallisch / nichtleitend

Innerhalb der unterschiedlichen Schichtsysteme wurden die Schichtdicken für Bleititanat zwischen vier und 20 Monolagen variiert, da unterhalb einer gewissen Schichtdicke des PbTiO_3 das Verschwinden der Ferroelektrizität vermutet wird („critical size effects“) [LINES (1977)].

Das Schichtwachstum erfolgte mittels CVD („chemical vapor deposition“). Lediglich bei den abschließenden Deckschichten über dem Bleititanat erfolgte die Deposition des Materials mittels Sputtern (PVD-„physical vapor deposition“) [HONDA (2007)]. Während CVD hervorragend epitaktisches Wachstum ermöglicht, ist das Schichtwachstum durch Sputtern nicht ganz unproblematisch, da die abzuscheidenden Ionen durch hohe kinetische Energien einige Atomlagen in die Oberfläche hinein diffundieren können. Eine Durchmischung der beiden Verbindungen am entsprechenden Interface kann die Folge sein.

Für die elektronenmikroskopische Untersuchung wurden die Proben durch mechanisches Polieren und Argon-Ionenätzung querschnittspräpariert. Ein Teil der präparativ bedingten amorphen Deckschichten ließ sich durch wenige Sekunden Behandlung im Plasma-Cleaner entfernen. Abbildung 6.3 zeigt eine Übersichtsaufnahme eines SRO/PTO/SRO/STO-Systems, wie es zur holografischen Untersuchung zur Verfügung stand.

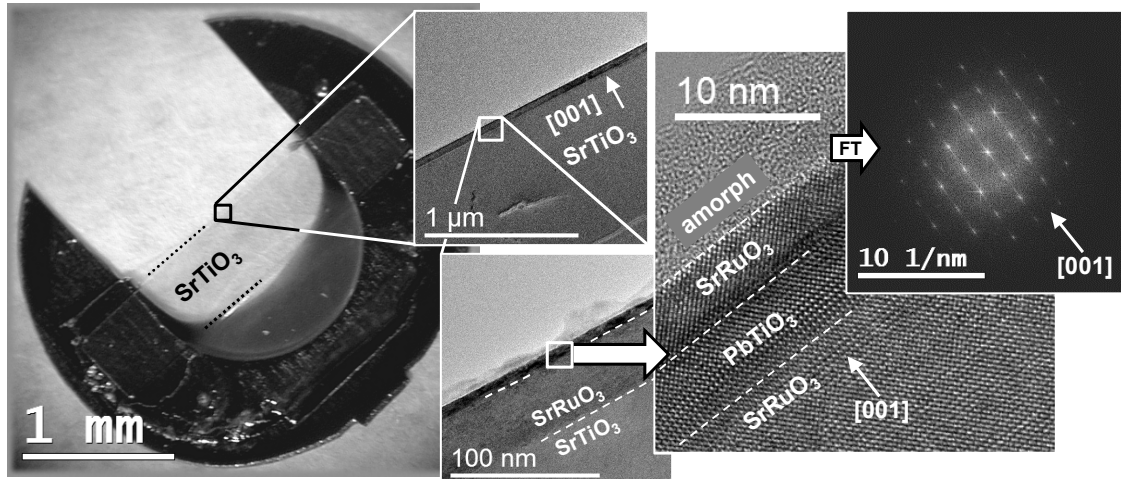


Abbildung 6.3 – Übersichtsaufnahme der querschnittspräparierten Probe eines $\text{SrRuO}_3/\text{PbTiO}_3/\text{SrRuO}_3$ -Schichtsystems, das epitaktisch auf einem SrTiO_3 -Substrat in $[001]$ Richtung gewachsen wurde. Die untere SrRuO_3 -Elektrode besitzt eine Dicke von 50 nm. Es folgt eine PbTiO_3 -Schicht von 10 Monolagen Dicke, die von einer zweiten SrRuO_3 -Elektrode von 5 nm Dicke abgeschlossen wird. Die amorphe Deckschicht ist präparativ bedingt und lässt sich nicht gänzlich vermeiden.

6.3 Phasenschiebung in Ferroelektrika

Die Auslenkung der Atome in der ferroelektrischen Einheitszelle lässt sich im korrigierten TEM direkt abbilden. Dies wurde bereits genutzt, um über die unterschiedlichen Atomverschiebungen die lokale Polarisation zu bestimmen [JIA (2007)]. Eine derartige Analyse in $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ (PZT) ermöglichte bereits die Abbildung der Polarisationsänderung an Domängengrenzen.

Die indirekte lokale Bestimmung der Polarisation über die Verrückungen der Atome sollte im Wesentlichen auch mittels höchstauflösender Elektronenholografie gelingen, da in beiden Fällen die Phasenschiebung der atomaren elektrischen Potentiale abgebildet wird. Die off-axis Elektronenholografie bietet im Gegensatz zur konventionellen Mikroskopie jedoch auch einen Zugang zu den großflächigen Phasenmodulationen, und es stellt sich damit die Frage: Können mittels Elektronenholografie zusätzliche Informationen über die mit der Polarisation verbundenen elektrischen Felder gewonnen werden?

Die Polarisation in einem dielektrischen Festkörper verursacht ein elektrisches Feld

$$\vec{E}_{pol} = -\frac{1}{\epsilon_0} \vec{P}. \quad (6.2)$$

Dieses Feld besitzt seine Quellen in der Ladungsdichte der gebundenen Ladungsträger des polaren Kristalls¹:

$$\operatorname{div} \vec{P} = -\rho_{pol}. \quad (6.3)$$

Gleichzeitig induziert das Polarisationsfeld durch die freien Ladungsträger an der Oberfläche, bzw. an den Grenzflächen des Ferroelektrikums, ein entgegen gesetztes elektrisches Feld

$$\vec{E}_{disp} = \frac{1}{\epsilon_0} \vec{D} \quad (6.4)$$

mit der dielektrischen Verschiebungsdichte \vec{D} , die durch die Ladungsdichte ρ_{frei} der beweglichen Ladungen beschrieben wird:

$$\operatorname{div} \vec{D} = \rho_{frei}. \quad (6.5)$$

Das gesamte elektrische Feld lautet dann

$$\vec{E}(\vec{r}) = \vec{E}_{pol}(\vec{r}) + \vec{E}_{disp}(\vec{r}) = \frac{1}{\epsilon_0} [\vec{D}(\vec{r}) - \vec{P}(\vec{r})]. \quad (6.6)$$

Schlussendlich wird in der holografisch ermittelten Phase die Projektion des elektrischen Potentials $V(\vec{r})$ aufgezeichnet, das über

$$\operatorname{div} \vec{E}(\vec{r}) = -\operatorname{div} \operatorname{grad} V(\vec{r}) = \frac{1}{\epsilon_0} [\rho_{frei}(\vec{r}) + \rho_{pol}(\vec{r})] \quad (6.7)$$

mit der Differenz der Ladungsdichten freier und gebundener Ladungsträger verknüpft ist. Das resultierende \vec{E} -Feld ist äußerst klein, das elektrische Potential demnach quasi konstant [MEYER (2001), JUNQUERA (2003), ALBINA (2007)].

Erste Arbeiten zur holografischen Analyse der elektrischen Polarisation in ferroelektrischen Materialien gingen davon aus, dass lediglich die elektrische Polarisation zum projizierten Potential in der Phasenschiebung beiträgt [ZHANG (1992), LICHT (2002)]. Fehlinterpretationen insbesondere infolge der Vernachlässigung kompensierender Oberflächenladungen folgten.

Abbildung 6.4 illustriert die Zusammenhänge in der vorliegenden Probengeometrie: Die gebundenen Ladungsträger im dielektrischen Festkörper verursachen aufgrund der Ionenauslenkung in der Einheitszelle eine Polarisation \vec{P} . Das System versucht das resultierende, sehr große elektrische Feld \vec{E}_{pol} zu kompensieren, indem sich an den Grenzflächen freie Ladungsträger sammeln und ein gleich großes Gegenfeld \vec{D} hervorrufen. Folglich ist das elektrische Potential V in der ferroelektrischen Schicht

¹ Der Vektor der Polarisation zeigt von den negativen zu den positiven gebundenen Ladungen, während das elektrische Feld stehts von positiven zu negativen Ladungen zeigt.

konstant und damit unabhängig von der Polarisation. An den Schichtgrenzen ändert sich jedoch das elektrische Potential: Die kompensierenden Oberflächenladungen führen zu einer lokalen Absenkung (negative Oberflächenladung), bzw. Erhöhung (positive Oberflächenladung) des Potentials und damit zu einer Variation in der Phasenschiebung der Elektronenwelle. Simulationen mithilfe von ab-initio-Methoden zeigen an der Grenzschicht zwischen PbTiO_3 und SrTiO_3 eine Potentialänderung um ca. 1 V lokalisiert über ca. eine Einheitszelle am Interface [ROTHER (2008)]. Für 200 kV-Elektronen ($\sigma_{200\text{ kV}} = 0.00728\text{ V/nm}$) würde dies bei einer Objektdicke von 15 nm zu einer Phasenschiebung von 0.1 rad ($\sim 2\pi/60$) führen. Bei einer derzeitigen Phasensensitivität von $\sim 2\pi/75$ am Tecnai F20 Cs-corr, ist es eine sehr anspruchsvolle Aufgabe neben den Phasenmodulationen atomarer Strukturen sowie amorpher Deckschichten ein solches Signal zu interpretieren (Abschnitt 6.8).

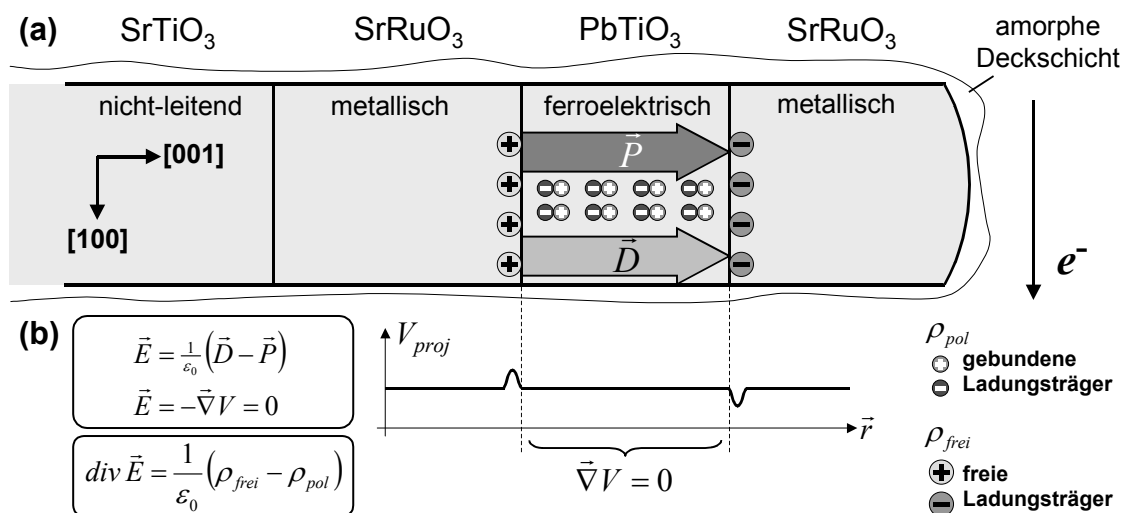


Abbildung 6.4 – Elektrische Felder in ferroelektrischen Schichten: Die gebundenen Ladungsträger rufen in der ferroelektrischen PbTiO_3 -Schicht ein Polarisationsfeld hervor. Dieses wird durch die freien Ladungsträger an der Schichtgrenze abgeschirmt, so dass die Phasenschiebung schlussendlich keine Variationen zeigt, die unmittelbar von der Polarisation herrühren. Stattdessen verursachen die abschirmenden freien Ladungsträger eine messbare Phasendifferenz an den Schichtgrenzen zum Ferroelektrikum.

Die Interpretation der atomaren Phasenschiebung erfordert in jedem Fall Modellierung und Bildsimulation. Um bei ferroelektrischen Kristallen das elektrische Feld der Polarisation zu berücksichtigen, wurde in ersten Arbeiten ein einfacher „Dipolkristall“ simuliert. Dazu wurde in der Einheitszelle das Potential der neutralen Atome um einen elektrischen Dipol mit materialspezifischem Dipolmoment ergänzt [LICHTE (2000B)]. Problematisch ist dies einerseits, da ein einfacher Dipol aus positiver und negativer Ladung nur in Fernfeldnäherung das Dipolmoment der Einheitszelle repräsentiert, folglich das Nahfeld in der Einheitszelle, auf das es bei höchstauflösenden TEM-Methoden ankommt, unzureichend beschreibt. Zum anderen wurden auch hier die kompensierenden Oberflächenladungen vernachlässigt und damit das resultierende elektrische Potential nicht korrekt beschrieben.

Vergleiche zwischen elektrischen Potentialen aus ab-initio-Rechnungen und Potentialen aus atomaren Streufaktoren [z.B. WEICKENMEIER (1991)] zeigen zwar einen geringen Einfluss des Dipolmoments der Einheitszelle auf das elektrische Streupotential [ROTHER (2005B)], jedoch ist die Auswirkung auf die Phasenschiebung der Welle um Größenordnungen geringer als die experimentelle Signalauf Lösungsgrenze. Damit ist die Phasenschiebung der Welle maßgeblich nur durch die Positionen der abgeschirmten Atompotentiale gegeben. Folglich wird im Experiment nur die Verrückung der Atome in der Einheitszelle, nicht aber das Dipolmoment innerhalb der Einheitszelle zu beobachten sein.

Richtig erkannt wurde zuvor dennoch, dass aufgrund der Symmetriebrechung durch die Auslenkung der Atome ein asymmetrisches Spektrum zu erwarten ist. Jedoch resultiert dies nicht – wie in [LICHTE (2000B)] vorgeschlagen – aus dem Dipolmoment der Einheitszelle, dafür aber maßgeblich aus der asymmetrischen Phasenschiebung durch die Auslenkung der Atome innerhalb der ferroelektrischen Einheitszelle.

Abbildung 6.5 zeigt die Probengeometrie und die darin auftretenden Strukturen sowie die simulierte Objektaustrittswellen für 3.5 nm Dicke. Bei der kubischen Struktur von SrTiO_3 und SrRuO_3 findet sich sowohl in der Amplitude als auch in der Phase die Zentrosymmetrie wieder. Folglich ist auch das Objektspektrum und damit das Beugungsbild symmetrisch. Im ferroelektrischen PbTiO_3 dagegen wird in Amplitude und Phase der Objektwelle die Verrückung der Atome und damit die Brechung der Zentrosymmetrie abgebildet. Die asymmetrische Phasenschiebung führt im reziproken Raum zu einer Asymmetrie im Beugungsbild. Dies wird in der Dunkelfeldabbildung bereits seit längerem ausgenutzt, um im mittleren Auflösungsbereich die Domänenstruktur in ferroelektrischen Kristallen abzubilden.

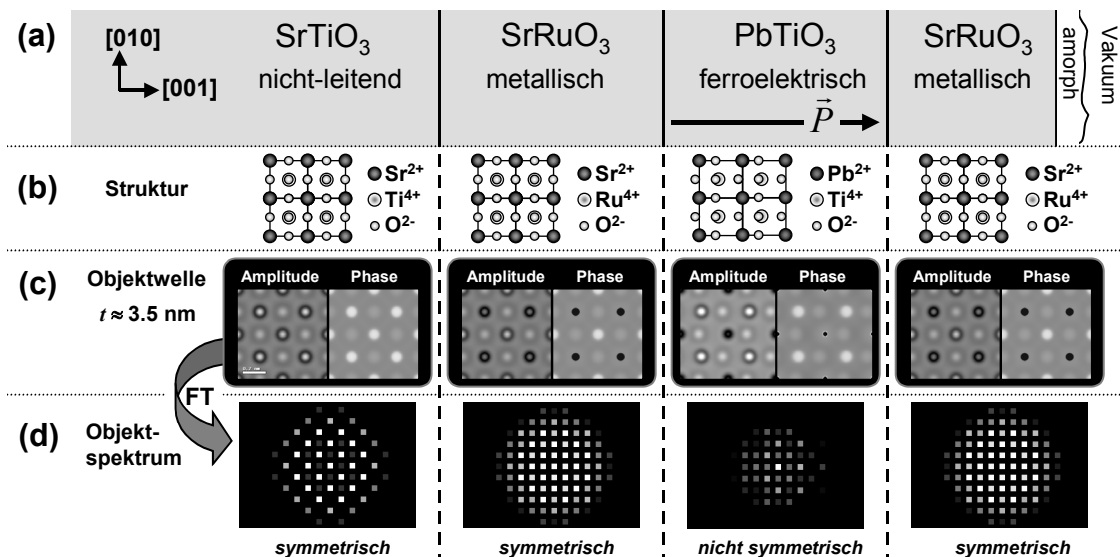


Abbildung 6.5 – Objektaustrittswelle von SrTiO_3 , SrRuO_3 und PbTiO_3 : Die Multislice-Simulation für 3.5 nm Dicke mit Hilfe der Streufaktoren neutraler Atome zeigt bei der zentrosymmetrischen Struktur von SrTiO_3 und SrRuO_3 symmetrische Beugungsbilder. Dagegen beobachtet man beim PbTiO_3 ein asymmetrisches Beugungsbild. Dies wird durch die Auslenkung der Atome in der ferroelektrischen Einheitszelle, die sich in Amplitude und Phase wieder findet, verursacht.

6.4 Aufnahme, Rekonstruktion und Bildfehlerkorrektur

Zur Aufnahme von höchstauflösenden Elektronenhologrammen wurde am Tecnai F20 der Cs-Korrektor für eine bestmögliche Korrektur aller zugänglichen Aberrationen eingestellt. Eine Beugungslinsenanzug von $DIFF = 85\%$ gewährleistet einen guten Kompromiss zwischen lateraler Auflösung und rekonstruierbarem Informationsgehalt (Kapitel 5.2). Diese Einstellung mit großer Hologrammbreite ($w_{hol} \approx 65 \text{ nm}$) wurde hauptsächlich auch gewählt, damit Objektstellen zugänglich werden, die durch die Schichtanordnung mit dem amorphen Rand bis zu 60 nm von der Probenkante entfernt liegen. Abbildung 6.6 zeigt ein Elektronenhologramm und das dazugehörige Spektrum eines STO/PTO/SRO/STO-Schichtsystems. Das STO-Substrat liegt dabei außerhalb des Gesichtsfeldes.

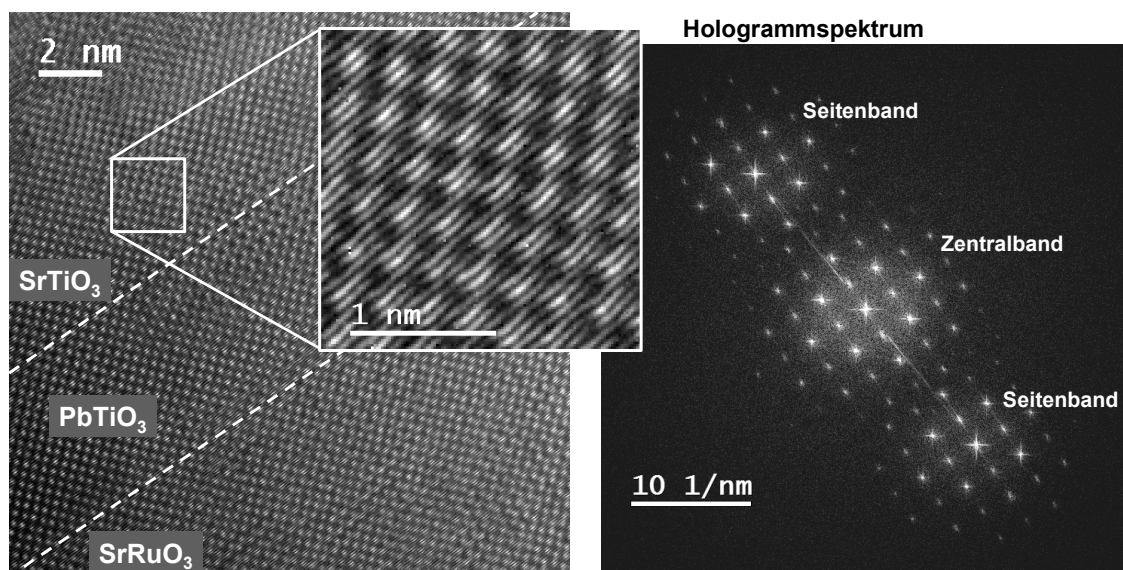


Abbildung 6.6 – Off-axis Elektronenhologramm einer Metall-Ferroelektrikum-Nichtleiter-Struktur: Der Hologrammstreifenabstand von 0.068 nm bei einem Kontrast von 20.3% mit einer mittleren Dosis von ca. 4400 CCD-Counts im Leerhologramm gewährleistet sowohl eine hohe Lateralaufklärung als auch eine hohe Signalaufklärung.

Die rekonstruierte Objektwelle ist in Abbildung 6.7 dargestellt. Dazu wurden die Erkenntnisse des Kapitels 4 in den Prozeduren der Hologrammvorbereitung, der Rekonstruktion, der Bildfehlerkorrektur und der Verzeichnungskorrektur entsprechend berücksichtigt. Auffällig ist, dass das Interface zwischen SrRuO₃ und PbTiO₃ sehr abrupt und „sauber“ zu erkennen ist, während die Schichtgrenze zwischen PbTiO₃ und SrTiO₃ weniger gut lokalisiert ist. Zudem treten in der SrTiO₃-Deckschicht vermehrt Kristallbaufehler auf. Dies bestätigt die Befürchtung einer leichten Durchmischung zweier Schichten durch das PVD-Kristallwachstum mittels Sputtern. Dennoch kann anhand der Kontrastunterschiede die PbTiO₃-Schicht klar von der SrTiO₃-Deckschicht unterschieden werden. Der Vergleich mit Streusimulationen mittels Multislice [LUBK (2010)] lässt auf eine Objektdicke zwischen 3 nm und 5 nm schließen. Sowohl in Amplitude als auch Phase lässt sich anhand der Gitterkonstanten direkt eine tetragonale Verzerrung in der PbTiO₃-Schicht erkennen, während die Struktur im SrTiO₃ und im

SrRuO_3 als kubisch identifiziert werden kann. Zusätzlich ist in der PbTiO_3 -Schicht die für die ferroelektrische Einheitszelle typische Auslenkung der Atome zu beobachten; im SrRuO_3 und SrTiO_3 ist die Struktur zentrosymmetrisch.

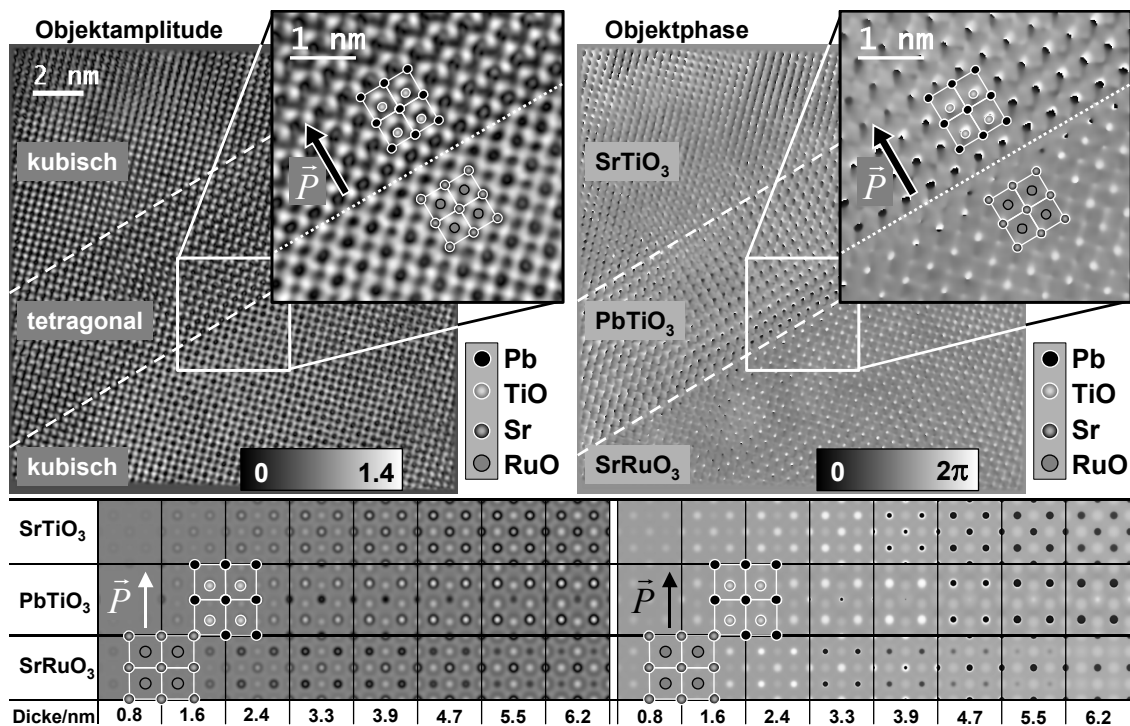


Abbildung 6.7 – Rekonstruierte Objektwelle: Sowohl in Amplitude (links) als auch in der Phase (rechts) lassen sich die unterschiedlichen Schichten anhand der atomaren Kontraste unterscheiden. Während in SrTiO_3 und SrRuO_3 eine symmetrische, kubische Struktur gefunden wird, liegt im PbTiO_3 eine tetragonale Verzerrung vor und die Zentrosymmetrie ist durch die Auslenkung der Atome gebrochen. Anhand derer lässt sich leicht die Polarisationsrichtung im PbTiO_3 einzeichnen. Die Simulation der Objektwellen von jeweils 2x2 Einheitszellen (unten) ermöglicht es, eine Objektdicke zwischen 3 nm und 5 nm abzulesen.

6.5 Bestimmung der tetragonalen Verzerrung mittels GPA

Eine lokale Abweichung der Raumfrequenz eines Gitters führt zu einer Änderung des Beugungswinkels bei der Elektronenbeugung an diesem Gitter. Im Fourierraum bewirkt dies eine Verschiebung des entsprechenden Reflexes. Dieser Zusammenhang ist die Grundlage der geometrischen Phasenanalyse (GPA) [HÛTCH (1998)]. Bei diesem Analyseverfahren werden die Partialwellen einzelner Reflexe rekonstruiert, um aus deren Phasengradienten im Ortsraum die lokale Verschiebung des Gitters, bzw. die Abweichung der Gitterperiodizität bestimmen zu können (siehe Anhang A7).

Üblicherweise wird dieses Verfahren auf einfache Intensitätsbilder angewendet, so dass nicht die einzelnen Beugungswellen, sondern lediglich die Fourierkomponenten des Intensitätsbildes ausgewertet werden. Dagegen erlaubt die Holografie eine direkte Analyse der komplexen Objektwelle, deren Fourierkomponenten tatsächlich den abgebeugten Wellen zugeordnet werden können.

Abbildung 6.8 zeigt die Analyse der geometrischen Phase aus den gegenüber liegenden (002)- und (00-2)-Reflexen der rekonstruierten Objektwelle aus Abbildung 6.7. Aus dem mittleren Anstieg der geometrischen Phase über die Breite der PbTiO₃-Schicht ergibt sich die mittlere Abweichung in der Raumfrequenz der jeweiligen Netzebene (vgl. Anhang A7):

$$\Phi_{\vec{g}_{00\pm 2}}(\vec{r}) = 2\pi \Delta\vec{g}_{00\pm 2}(\vec{r}) \cdot \vec{r} \quad \Rightarrow \quad \Delta\vec{g}_{00\pm 2}(\vec{r}) = \frac{\nabla\Phi_{\vec{g}_{00\pm 2}}(\vec{r})}{2\pi}. \quad (6.8)$$

Die detaillierte Auswertung in Tabelle 6.2 offenbart, dass die gegenüberliegenden Reflexe bezogen auf die Gitterkonstante der SrRuO₃-Struktur unterschiedliche Phasendifferenzen $\Delta\Phi$ über die Breite Δr der PbTiO₃-Schicht aufweisen. Folglich ergeben sich unterschiedliche Abweichungen Δg für die Raumfrequenzen der beiden PbTiO₃-Reflexe: Mit den mittleren Netzebenenabständen $d_{002} = 0.204$ nm und $d_{00-2} = 0.201$ nm resultieren über die PbTiO₃-Schicht somit zwei unterschiedliche Gitterkonstanten. Die Genauigkeit im Pikometerbereich ist dabei das Resultat einer Mittelung: Da hier lediglich ein mittlerer Phasengradient über die Breite der PbTiO₃-Schicht ausgewertet wird, repräsentieren auch die berechneten Netzebenenabstände lediglich gemittelte Größen.

Die Interferenz zweier Partialwellen unterschiedlicher Frequenzen führt im Ortsraum zu einer Schwebung im Netzebenenkontrast. Mit der Definition der Schwebungslänge

$$\hat{d} = \left| \frac{d_{002} \cdot d_{00-2}}{d_{002} - d_{00-2}} \right| \quad (6.9)$$

ergibt sich eine halbe Schwebungslänge von $\hat{d}/2 \approx 6.8$ nm, die gerade ungefähr der Breite der Bleititanat-Schicht entspricht. Dies ist ein Hinweis darauf, dass das GPA-Ergebnis maßgeblich durch die Shape-Funktion, also den unterschiedlichen Materialkontrast und die geringe Ausdehnung der PbTiO₃-Schicht beeinflusst wird. Die „Shape“-Funktion macht sich im Fourierraum durch Faltung als starke Verbreiterung jedes Reflexes bemerkbar. Im Ortsraum ist diese Schwebung aufgrund der Überlagerung mit allen anderen Partialwellen nicht unmittelbar zu sehen.

Darüber hinaus ist bekannt, dass die Analyse der geometrischen Phase in nicht-zentrosymmetrischen Kristallen nicht immer zuverlässig funktioniert. Dies ist darauf zurückzuführen, dass schon bei sehr kleinen Dicken- und Defokus-Änderungen Kontrastverschiebungen innerhalb der abgebildeten Einheitszelle auftreten. Bei den Kontrasten zentrosymmetrischer Kristallen treten diese Kontrastverschiebungen dagegen nicht auf [HÛTCH (2001)].

Nichtsdestotrotz konnte hier gezeigt werden, dass – wenn auch nicht quantitativ – ein ortsaufgelöster Nachweis der tetragonalen Verzerrung mittels Einzelreflexanalyse möglich ist.

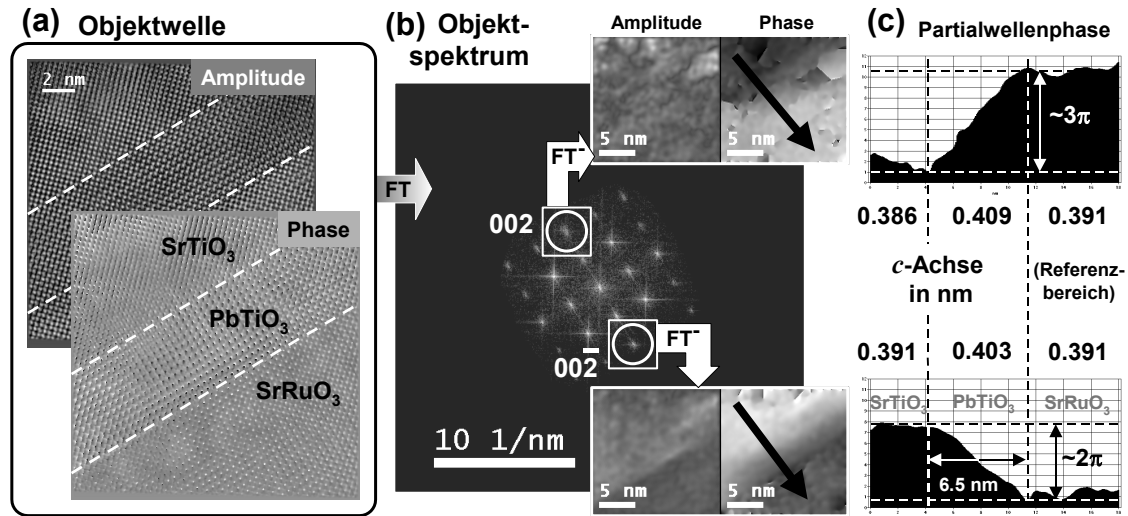


Abbildung 6.8 – Geometrische Phasenanalyse von Einzelreflexen (GPA, vgl. Anhang A7): Die Änderung der Gitterkonstante in Richtung der c -Achse des PbTiO₃ gegenüber der SrRuO₃-Elektrode führt zu einer leichten Änderung des Beugungswinkels und damit zu einer leichten Verschiebung der Reflexe im Fourierraum (b). Diese Abweichung lässt sich anhand des Phasengradienten der Einzelreflexrekonstruktion (c) im Ortsraum analysieren. Beim hier ausgewerteten Beispiel zeigen die gegenüber liegenden (002)- und (00-2)-Reflexe bezogen auf die SrRuO₃-Schicht starke Gradienten im PbTiO₃-Bereich. Damit sind die Netzebenenabstände im PbTiO₃ größer und es liegt eine tetragonale Verzerrung vor (siehe Tabelle 6.2). Da die gegenüber liegenden {002}-Reflexe im PbTiO₃ unterschiedliche Frequenzen besitzen, findet sich im Ortsraum eine Schwebung, deren halbe Periode gerade der Breite der PbTiO₃-Schicht entspricht. Damit lässt sich die tetragonale Verzerrung zwar qualitativ nachweisen, kann hier jedoch nicht quantitativ eindeutig ausgewertet werden.

hkl	SrRuO ₃		PbTiO ₃				
	d_{hkl} / nm	g_{hkl} / nm ⁻¹	Δr / nm	$\Delta\Phi_{hkl}$ / rad	Δg / nm ⁻¹	g_{hkl} / nm ⁻¹	d_{hkl} / nm
002	0.195	+5.128	-6.5	9.7	-0.24	+4.888	0.204
00-2	0.195	-5.128	-6.5	-6.7	+0.16	-4.968	0.201

Tabelle 6.2 – Bestimmung der mittleren (002)-Netzebenenabstände in der PbTiO₃-Schicht aus den gegenüberliegenden (002)- und (00-2)-Reflexen durch Auswertung der geometrischen Phase: Die Größen Δr und $\Delta\Phi_{hkl}$ beziehen sich auf eine Koordinatenachse entlang des Linescans und besitzen ihren Ursprung am PbTiO₃/SrRuO₃-Interface; daher ist das Vorzeichen für Δr und $\Delta\Phi_{hkl}$ entsprechend zu berücksichtigen.

6.6 Bestimmung der Polarisation aus Atompositionen

Die bislang veröffentlichten Arbeiten bezüglich der Polarisationsbestimmung durch Auswertung der Atomverschiebungen innerhalb der Einheitszelle [JIA (2007), JIA (2009A), JIA (2009B)] beziehen sich auf Perovskit-Strukturen in [110]-Orientierung. Während diese Durchstrahlungsrichtung z.B. im PbTiO_3 eine Abbildung reiner Sauerstoff- und Titansäulen und somit die Bestimmung deren relativer Atomverschiebungen ermöglicht, liegt in [100]-Orientierung das Titan ausschließlich in gemischten Ti/O-Atomsäulen vor. Dies ist problematisch, da die Atomauslenkungen von Sauerstoff und Titan unterschiedlich sind.

Unter der Annahme, die Position der Ti/O-Säulen seien durch die Sauerstoffatome nur schwach beeinflusst, gelingt die Auswertung dennoch. Abbildung 6.9 zeigt die Analyse in [100]-orientierten Proben anhand der rekonstruierten Elektronenhologramme zweier unterschiedlicher Schichtsysteme. Mithilfe eines Programms von Axel Lubk zur Auswertung von Atompositionen aus Hochauflösungsdaten¹ [LUBK (2010)] wurden die Positionen der Bleisäulen und der Titan/Sauerstoff-Säulen entlang der c-Achse ausgewertet. Aus diesen Daten lässt sich zum einen die tetragonale Verzerrung der Gitterzelle feststellen. Zum anderen ermöglichen die Daten, von der Auslenkung der Titanatome gegenüber den Bleiatomen auf die Richtung und Stärke der Polarisation des PbTiO_3 zu schließen. Die systematische Analyse in Polarisationsrichtung, d.h. senkrecht zu den Schichtgrenzen zeigt in beiden Fällen deutlich, dass das Titanatom in der Einheitszelle des PbTiO_3 entlang der Wachstumsrichtung verschoben ist. Die Polarisation zeigt demnach in die entgegengesetzte Richtung. Im ersten Beispiel kann auch eine signifikante tetragonale Verzerrung der Einheitszelle im Bereich der PbTiO_3 -Schicht festgestellt werden; im zweiten Beispiel liegt dagegen nur eine geringe Verzerrung vor.

Diese Analysemöglichkeiten erlauben es nun, bei unterschiedlichen Schichtsystemen systematisch diverse Einflüsse auf die Polarisation des Ferroelektrikums zu untersuchen. Beispielsweise zeigen die zwei Schichtsysteme in Abbildung 6.9 ein unterschiedlich abruptes Verhalten der Atomauslenkung an den Grenzen zum metallischen SrRuO_3 im Vergleich zum Isolator SrTiO_3 . Die metallische Schicht ermöglicht mittels ihrer freien Ladungsträger eine starke Abschirmung, folglich mit einer geringen Abschirmlänge (~ 0.8 nm). Dagegen besitzt die Abschirmung im SrTiO_3 mangels freier Ladungsträger einen ionischen Charakter, der eine größere Abschirmlänge nach sich zieht (~ 1.2 nm). Innerhalb der ionischen Abschirmlänge findet man auch im SrTiO_3 eine Auslenkung der Zentralatome der Einheitszelle.

¹ Die Atompositionen können sowohl in HRTEM-Intensitäten als auch in Amplitude und Phase holografisch rekonstruierter Wellen ausgewertet werden.

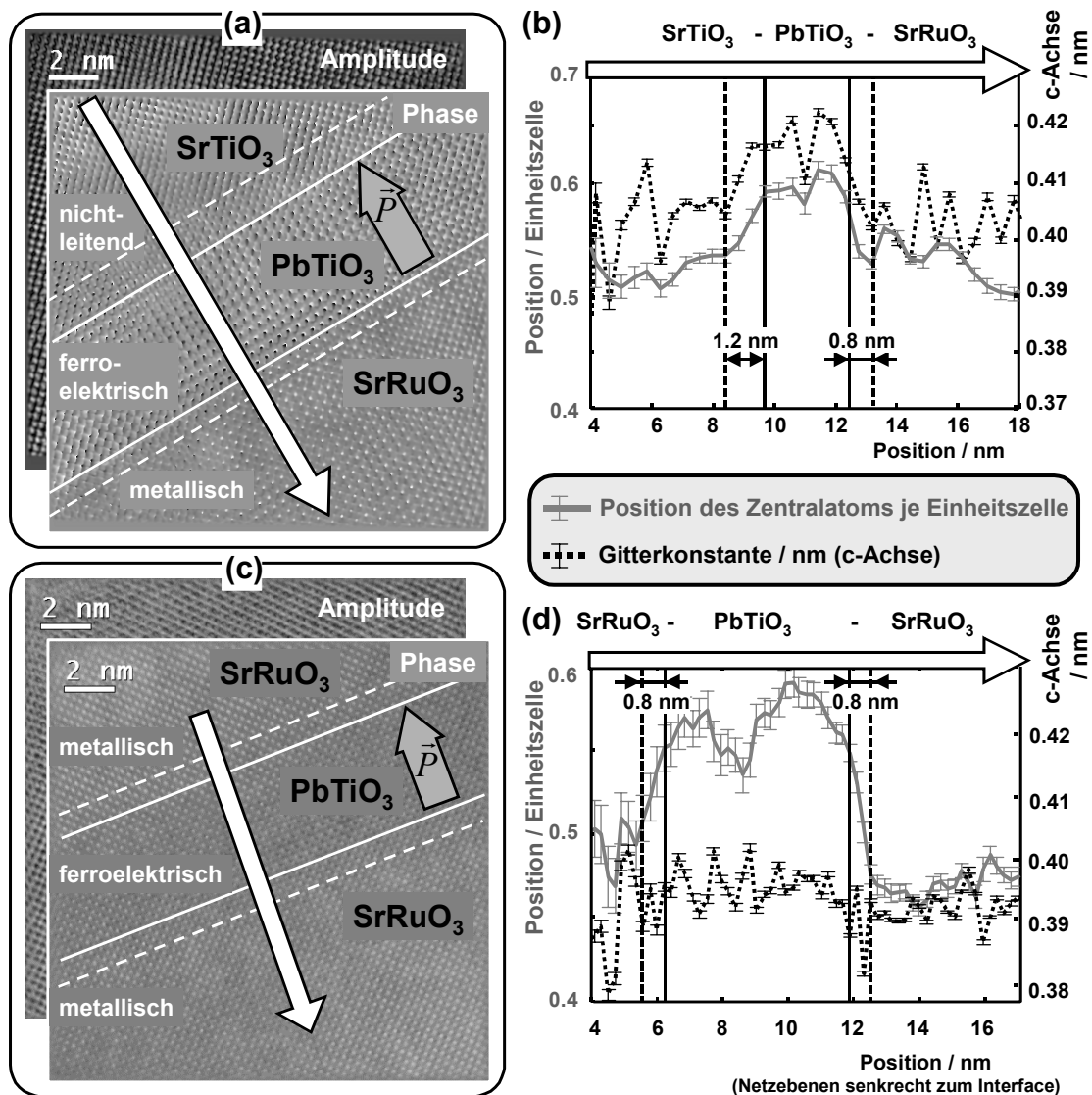


Abbildung 6.9 – Polarisationsbestimmung durch Auswertung der Atomposition: Durch Peak-Fitting können sowohl die Gitterkonstante in Richtung der c -Achse (gestrichelt) als auch die Auslenkung der Zentralatome (grau) bestimmt werden; die Fehlerbalken repräsentieren den Fit-Error bei der Bestimmung der Atompositionen bzw. Gitterkonstanten. In beiden Materialsystemen SRO/PTO/STO (a) und SRO/STO/SRO (c) lässt sich damit die Polarisationsrichtung eindeutig ermitteln. Aus den dazugehörigen Auswertungen (b) und (d) der Gitterkonstanten und Atomauslenkungen kann beispielsweise auf die unterschiedlichen Abschirmlängen an Schichtgrenzen zu Isolatoren (SrTiO₃) und metallischen Verbindungen (SrRuO₃) geschlossen werden. Die durchgezogenen Linien repräsentieren das Interface, während die gestrichelten Linien den Abschirmbereich andeuten.

6.7 Bestimmung der Polarisation im reziproken Raum

Holographische Nanobeugung erlaubt die Bestimmung komplexer Beugungsspektren auf Objektflächen weniger Quadratnanometer. Dies soll im Folgenden auf das Beispiel in Abbildung 6.7 angewendet werden. Dazu werden die komplexen Beugungsbilder durch Fouriertransformation $4 \times 4 \text{ nm}^2$ großer Bildausschnitte der komplexen Objektwelle berechnet. Die Anwendung einer Fensterfunktion („Hanning-Window“) sorgt für periodische Fortsetzbarkeit im Ortsraum zur Vermeidung von Artefakten. Abbildung 6.10 zeigt die Objektwelle mit den Fouriertransformierten dreier

Objektausschnitte, die sich jeweils auf die SrTiO_3 -, PbTiO_3 - und SrRuO_3 -Schichten beschränken. Erwartungsgemäß findet man bei SrTiO_3 und SrRuO_3 aufgrund der Zentrosymmetrie ein symmetrisches Beugungsspektrum. Dies ist zusätzlich ein Beweis einer nahezu perfekten Orientierung der Proben zum Elektronenstrahl. Dagegen weist das Beugungsbild der Bleititanat-Schicht eine starke Asymmetrie auf. Da eine Objektkippung ausgeschlossen werden kann, ist folglich die Zentrosymmetrie der Struktur gebrochen; d.h. das PbTiO_3 liegt in der ferroelektrischen Phase vor.

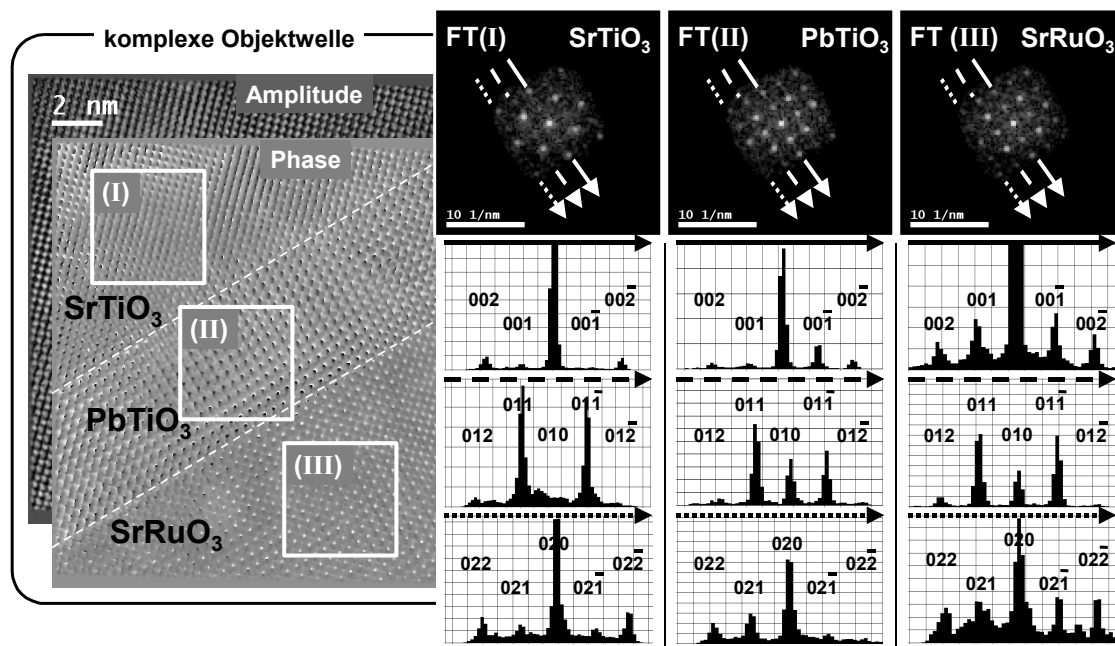


Abbildung 6.10 – Nano-Beugung: Von den $4 \times 4 \text{ nm}^2$ großen Ausschnitten (I)-(III) der Objektwelle wird jeweils eine Fouriertransformation durchgeführt und die Amplitude der resultierenden Spektren ausgewertet. Während bei SrTiO_3 (I) und SrRuO_3 (III) aus den symmetrischen Spektren auf eine perfekt orientierte, zentrosymmetrische Struktur geschlossen werden kann, weist die Asymmetrie des Beugungsbilds (II) im PbTiO_3 eine Symmetriebrechung und damit die ferroelektrische Phase nach.

Um die gefundene Asymmetrie mit der Stärke der Polarisation zu verknüpfen, wurde eine Serie von Simulationen durchgeführt. Angefangen bei der zentrosymmetrischen, kubischen Einheitszelle des paraelektrischen Bleititanats wurde schrittweise die tetragonale Verzerrung sowie die Auslenkung der Atome bis hin zur Bulk-Struktur erhöht. Obwohl die Stärke der Polarisation streng genommen nichtlinear mit der Atomauslenkung verknüpft ist, kann dieser Ansatz hier als Näherung dienen, um zunächst das Prinzip zu zeigen.

Die Auswertung der mittels Multislice¹ berechneten Objektwellen einer Einheitszelle des Bleititanats findet im reziproken Raum statt. Dazu werden sogenannte Beamplots erzeugt, d.h. die Amplitude einzelner Reflexe in Abhängigkeit von der Objektdicke aufgetragen. Abbildung 6.11 zeigt nebeneinander gestellt die Beamplots der in Polarisationsrichtung gegenüber liegenden Reflexe.

¹ Simulationsparameter: $U_A = 200 \text{ kV}$, Streufaktoren von Weickenmeier&Kohl [WEICKENMEIER (1991)], Atompositionen und Debye-Waller-Faktoren aus [GLAZER (1978)], keine Bildfehler und Enveloppen.

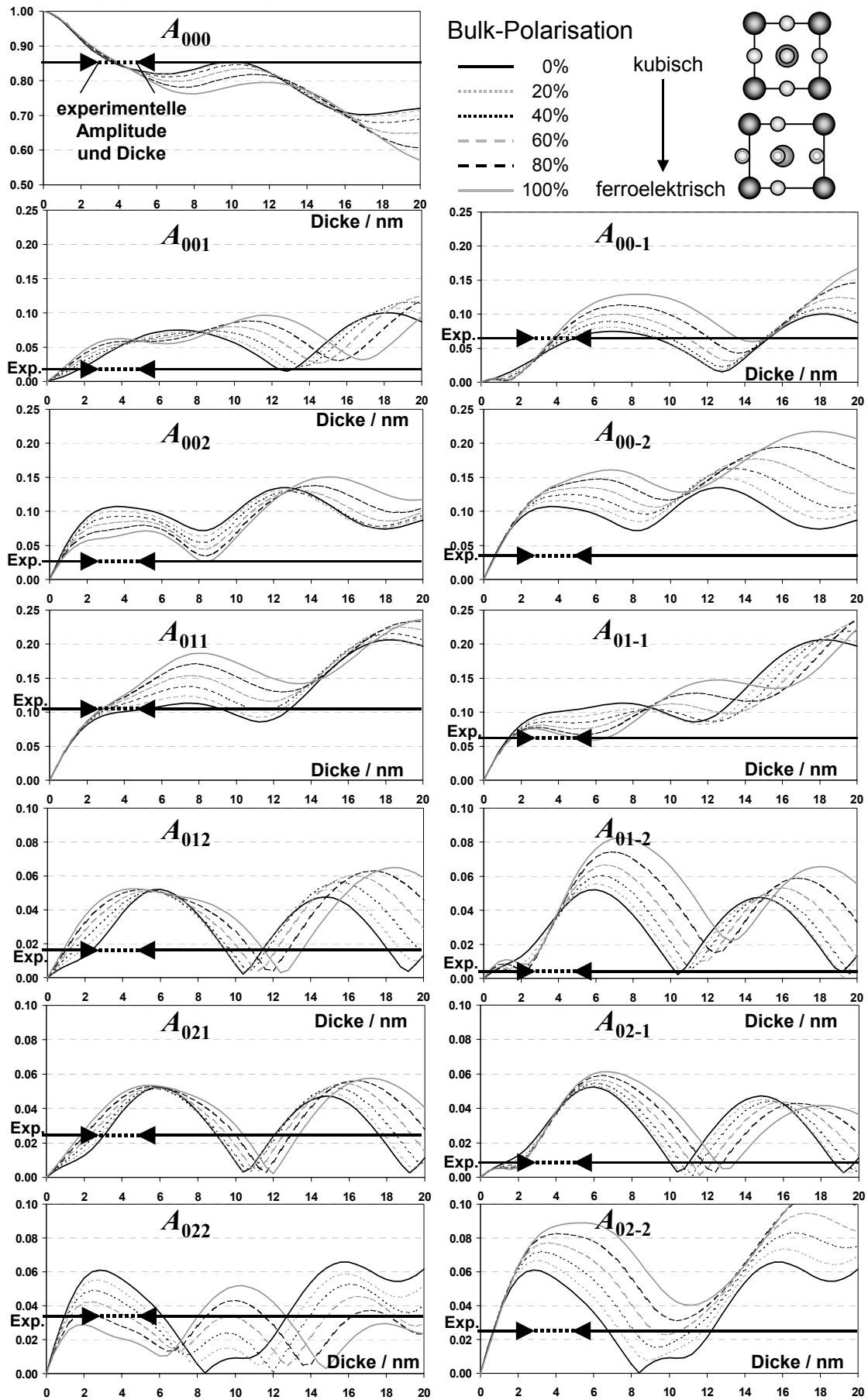


Abbildung 6.11 – Beamplots gegenüberliegender Reflexe bei unterschiedlich starker Polarisation.

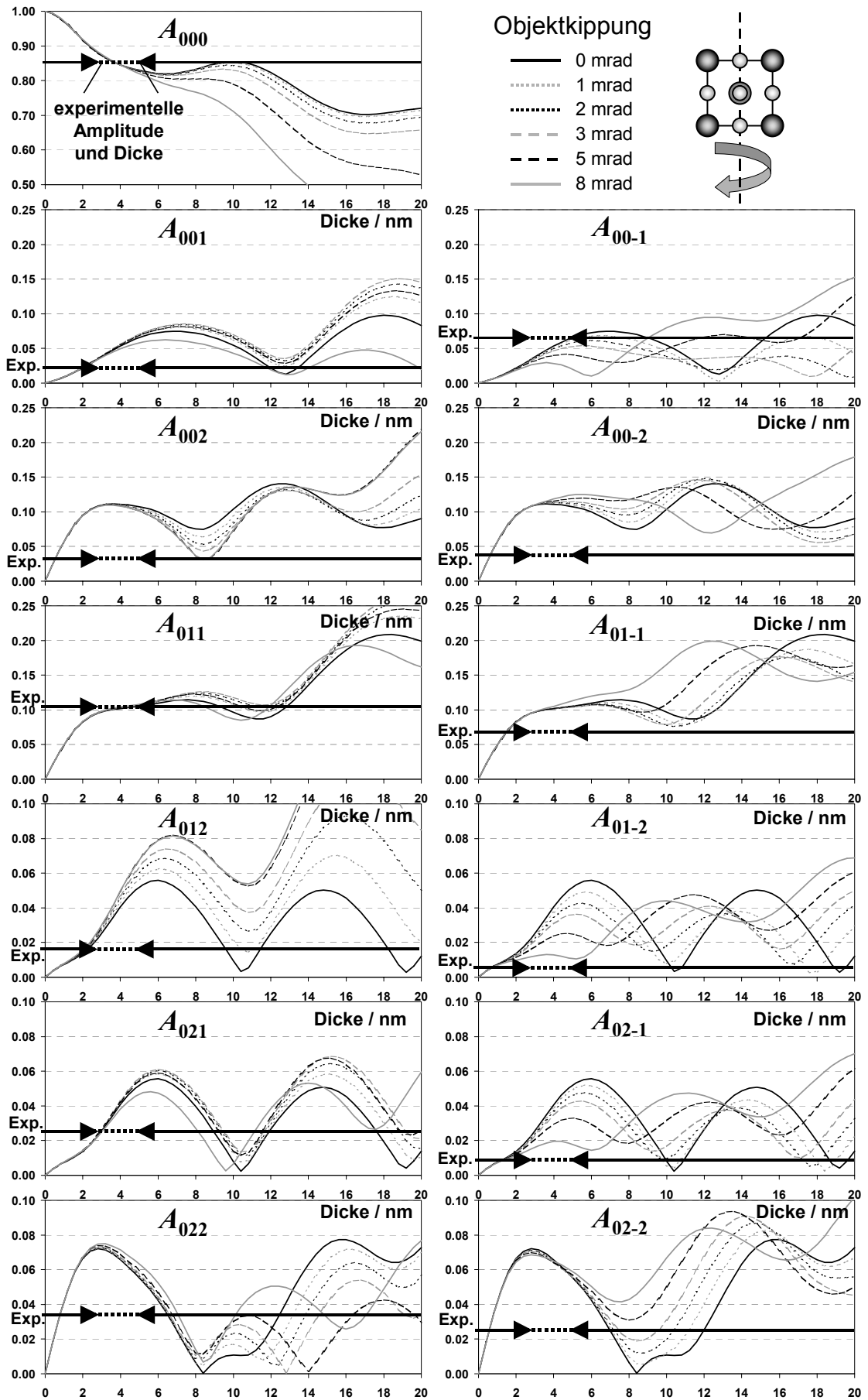


Abbildung 6.12 – Beamplots gegenüber liegender Reflexe bei unterschiedlicher Objektverkipfung.

Während bei zentrosymmetrischer, kubischer Struktur (0% Bulk-Polarisation) beide Reflexe gleich starke Amplituden besitzen, findet man mit steigender Polarisation eine zunehmende Asymmetrie. Bei höheren Objektdicken treten in den Beamplots in Bezug auf die dynamischen Oszillationen hoch komplizierte Effekte auf.

Um die experimentellen Daten aus Abbildung 6.10 quantitativ mit den simulierten Beamplot-Amplituden vergleichen zu können, wurde in der rekonstruierten Welle die chromatische Enveloppe korrigiert¹. Die experimentell ermittelten Reflex-Amplituden sind in die Beamplots in den zuvor in Abbildung 6.7 abgeschätzten Dickenbereich eingetragen (Doppelpfeile).

Tendenziell lässt sich insbesondere bei den innenliegenden Reflexpaaren eine den Simulationen ähnliche Asymmetrie erkennen. Die Polarisationsrichtung lässt sich damit eindeutig ermitteln. Die Signalgüte reicht jedoch nicht aus, um die Stärke der Polarisation zu bestimmen. Dass speziell die äußeren Reflexpaare deutliche Abweichungen gegenüber der Simulation zeigen, kann an mehreren Ursachen liegen: Einerseits ist es möglich, dass neben der chromatischen Enveloppe eine anisotrope Dämpfung durch geringe Instabilitäten auftritt, die die gegenüberliegenden Reflexamplituden quantitativ verfälscht. Andererseits kann immer noch eine sehr kleine Objektkippung vorliegen, die ebenso eine Asymmetrie verursacht. Da PbTiO_3 mit Blei ein sehr schweres Element beinhaltet, wirkt sich eine geringe Restverkipfung des Objekts viel gravierender auf die Beugung der Elektronenwelle aus als im SrRuO_3 und SrTiO_3 .

Um eine Vorstellung vom Einfluss der Objektkippung zu erlangen, wurde eine Kippserie der paraelektrischen Einheitszelle von Bleititanat simuliert. Die Kippachse liegt dabei senkrecht zur Richtung der Polarisation im ferroelektrischen Zustand. Abbildung 6.12 zeigt die simulierten Beamplots gegenüberliegender Reflexe bei Kippung von 0 mrad bis 8 mrad und die dabei auftretenden Asymmetrien. Während die simulierten Amplituden der inneren Reflexpaare kaum voneinander abweichen, treten bei den äußeren Reflexpaaren deutliche Unterschiede auf. Auch hier zeigen die Beamplots bei den dynamischen Oszillationen höherer Objektdicken ein sehr kompliziertes Verhalten. Mit den experimentell ermittelten Einzelreflexamplituden lässt sich jedoch keine systematische Übereinstimmung finden.

Tatsächlich treten im Experiment mehrere Effekte gleichzeitig auf: die Polarisation in der Einheitszelle und eine Restverkipfung des Kristalls. Die Objektverkipfung besitzt dabei zwei Freiheitsgrade: parallel und senkrecht zur Polarisationsrichtung. Damit vergrößert sich der Parameterraum mit der Dicke, der Polarisationsstärke und den zwei Kipprichtungen auf vier Größen. Um die experimentellen Ergebnisse eindeutig interpretieren zu können, bedarf es folglich deutlich umfangreicherer Simulationen mit allen Kombinationen dieser vier Parameter. Dies übersteigt den Rahmen dieser Arbeit bei Weitem und soll daher lediglich als „Roadmap“ für weiterführende Untersuchungen dienen.

¹ Die zur Korrektur herangezogene chromatische Enveloppe der Form (2.32) wurde so gewählt, dass sie beim Informationslimit $g_{\max} = 8 \text{ nm}^{-1}$ auf den Wert e^{-2} abfällt.

Die wichtige Aussage dieses Abschnitts besteht darin, dass die holografisch ermittelte Welle im reziproken Raum eine Aussage über die Polarisation ermöglicht, ohne sich über die Verschiebung der Atome im Ortsraum im Klaren zu sein. Der Vorteil dieser Auswertung besteht darin, dass eventuelle Restaberrationen, die eine eindeutige Positionsbestimmung der Atome verhindern, keinen Einfluss auf die Amplituden des Wellenspektrums besitzen. Auch für dickere Objekte kann diese Art der Analyse interessant sein: Wenn die atomare Phasenschiebung im Ortsraum aufgrund dynamischer Beugung verschwindet (Extinktionsdicke), kann die Beurteilung der Asymmetrien ausgewählter Reflexe im Fourierraum dennoch eine Bestimmung der Polarisation zulassen.

Weitere Verbesserungen in der Signalauflösung (Kapitel 7) geben Zuversicht auf eine Weiterentwicklung und Anwendung dieser Methode. Als nachteilig soll hier nicht verschwiegen werden, dass die Mittelung über den jeweiligen Objektausschnitt signifikante Reduzierung der Ortsauflösung nach sich zieht.

6.8 Bestimmung der Polarisation aus Grenzflächenladungen

Die Polarisation in einem ferroelektrischen Kristall zieht abschirmende Ladungen an der Objektoberfläche nach sich. Diese Ladungen produzieren bei Durchstrahlen des Objekts mit einer Elektronenwelle eine zusätzliche Phasendifferenz. Das zu erwartende Signal dieser Phasendifferenz in einer Hochauflösungsprobe ist aufgrund der geringen Objektdicke jedoch ab-initio Rechnungen zufolge mit $\sim 2\pi/60$ rad sehr klein und daher schwer zu detektieren (Abschnitt 6.3). Abbildung 6.13 zeigt die rekonstruierte Objektphase einer STO/PTO-Probe, bei der die Phasenschiebung einen Hinweis auf eine negative Abschirmladung liefert. Die tetragonale Verzerrung sowie die Auslenkung der Zentralatome in der PbTiO_3 -Einheitszelle erlauben die Bestimmung der Polarisationsrichtung hin zum SrTiO_3 -Substrat. Demzufolge ist am STO/PTO-Interface eine negative Grenzflächenladung zu erwarten. Tatsächlich zeigt das Profil der senkrecht zur Schichtgrenze gemittelten Phasenschiebung eine um ca. 0.4 rad geringere Phase über den Bereich einer Einheitszelle direkt am Interface. Eine positive Oberflächenladung an der Außenseite lässt sich jedoch bei diesem Beispiel nicht nachweisen, da die Objektkante von einer amorphen Schicht abgeschlossen wird und somit bezüglich kleinster Phasendifferenzen nur schwer zu interpretieren ist.

Die quantitative Interpretation der Phasendifferenz wirft jedoch Fragen auf, da die resultierende Oberflächenladung deutlich zu groß wäre. Liegt hier möglicherweise ein Beugungscontrast am Interface zweier unterschiedlicher Materialien vor? Hat die Probenpräparation am Interface zu einer Diffusion geführt und die Zusammensetzung der Schichten geändert? Oder lädt sich die Probe unter dem Elektronenstrahl positiv auf (SrTiO_3 ist ein Isolator), so dass die negativen Oberflächenladungen verstärkt werden? Die Beantwortung dieser Fragen, so denn überhaupt möglich, erfordert jedoch hoch komplizierte Modellierung und Simulation, was den Rahmen der Arbeit sprengen würde.

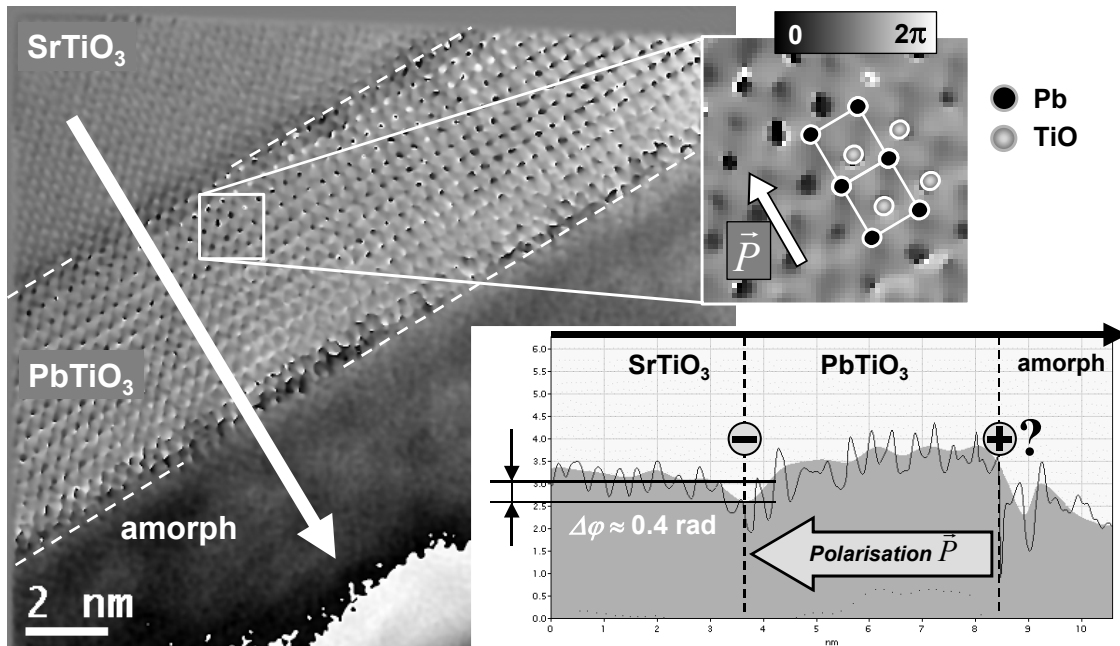


Abbildung 6.13 – Polarisationsbestimmung aus Oberflächenladungen: Die rekonstruierte Objektphase zeigt eine PbTiO_3 -Schicht auf einem SrTiO_3 -Substrat. Anhand der tetragonalen Verzerrung und der Atomverrückung im PbTiO_3 lässt sich die Richtung der Polarisation nachweisen. Eine geringere Phasenschiebung an der Grenze zwischen PbTiO_3 und SrTiO_3 weist in Übereinstimmung mit der Theorie auf eine negative Abschirmladung hin; diese ist gegenüber theoretischen Vorhersagen jedoch deutlich zu groß. Folglich müssen weitere Aspekte in der Interpretation berücksichtigt werden.

6.9 Zusammenfassung

Ein Gradient in der Phasenschiebung ferroelektrischer Objekte darf nicht direkt als Polarisation ausgelegt werden. Zur Interpretation der Phasenschiebung ist die Berücksichtigung der abschirmenden Grenzflächenladungen notwendig. Mit dieser Erkenntnis bleiben dennoch mehrere Möglichkeiten, eine ferroelektrische Polarisation mittels off-axis Elektronenholografie nachzuweisen. Im Ortsraum gelingt dies einerseits durch die Bestimmung der Gitterkonstanten und der Atomverschiebungen innerhalb der Einheitszelle und andererseits durch Nachweis der abschirmenden Grenzflächenladung. Letzteres ist bei der hier aufgezeigten Lateralauflösung zwar ausschließlich der off-axis Holografie vorbehalten, stellt aber äußerst hohe Anforderungen an die Signalauflösung. Darüber hinaus werfen experimentelle Ergebnisse diesbezüglich weitere Fragen auf, da Phasenschiebungen rekonstruiert wurden, die gegenüber theoretischen Vorhersagen deutlich zu groß sind.

Weiterhin erweist sich die geometrische Phasenanalyse als hilfreich, um aus einzelnen Reflexen der rekonstruierten Welle die tetragonale Verzerrung und damit die Ferroelektrizität nachzuweisen. Die holografische Nanobeugung erlaubt darüber hinaus, aus den Asymmetrien gegenüberliegender Reflexamplituden die Polarisationsrichtung zu bestimmen. Um auch die Polarisationsstärke zu ermitteln, bedarf es neben einer besseren Signalauflösung auch der Berücksichtigung einer eventuellen Objektverkipfung.

7 Anwendung 2: Korngrenze in Gold

Seit das Tecnai F20 Cs-corr Elektronenmikroskop im Jahr 2003 im Triebenberglabor aufgestellt wurde, hat sich bei allen Mikroskopherstellern die Hardware sehr viel weiter entwickelt. Bei der Firma FEI konnten insbesondere durch die Beteiligung am TEAM-Projekt [DENES (2009)] enorme Fortschritte für Höchstauflösungselektronenmikroskope erzielt werden. Unter anderem steht mit der sogenannten „XFEG“ eine neue Schottky-Feldemissionsquelle mit einem verbessertem Richtstrahlwert zur Verfügung. Es ist naheliegend, die vielseitigen Vorteile der off-axis Holografie mit den Möglichkeiten aktueller Geräte zu kombinieren, um die bisherigen Grenzen zu überschreiten.

Zu diesem Zwecke wurden im Rahmen einer Zusammenarbeit zwischen dem Triebenberglabor der TU Dresden, der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Michael Lehmann im Institut für Optik und Atomare Physik der TU Berlin sowie der Firma FEI in Eindhoven (NL) in einem „state-of-the-art“-TEM off-axis Elektronenhologramme aufgezeichnet. Im FEI-Nanoport¹ stand dazu ein FEI Titan 80-300 zur Verfügung, das neben dem Hexapol-Abbildungskorrektiv von CEOS und einem rotierbaren Biprisma in der SAED-Blende zusätzlich mit der neuen „high-brightness“-Schottky-Feldemissionsquelle („XFEG“) ausgestattet ist. Der verbesserte Elektronenemitter bietet gegenüber der herkömmlichen Schottky-Feldemissionsquelle einen bis zu achtfach höheren Richtstrahlwert [FREITAG (2008)]. Mit diesem Setup besteht eine exzellente Voraussetzung, um qualitativ hochwertige Elektronenhologramme mit überragender Phasenauflösung aufnehmen und rekonstruieren zu können. Im Rahmen dieser Zusammenarbeit wurde eine Phasenauflösungsgrenze von $2\pi/300$ bei atomarer Auflösung und damit eine Verbesserung um den Faktor vier gegenüber dem Cs-korrigierten Tecnai F20 im Triebenberglabor berichtet [LINCK (2009A)]. Für die off-axis Elektronenholografie stellt die XFEG damit eine zukunftsweisende Ergänzung dar.

Neben der holografischen Messung des Richtstrahlwertes und der Bestimmung der damit verbundenen Verbesserung der Signalauflösung gelang es, von einer 90° -Korngrenze in [110]-orientiertem Gold atomar aufgelöste off-axis Hologramme mit bislang nie da gewesener Qualität aufzunehmen. Die Aufnahme, Rekonstruktion und Analyse dieser Hologramme soll Inhalt dieses Kapitels sein.

7.1 Geometrie der Probe

Als Objekt für die Untersuchung im Titan TEM dient eine Goldfolie. Dünne Folien von Metallen werden unter anderem, wie hier z. B. Gold, durch epitaktisches Wachstum auf NaCl-Kristallen erzeugt. Je nach Kristallorientierung des Salz-Substrats gelingt es, die Metallschichten in bestimmten Vorzugsrichtungen zu wachsen [PASHLEY (1956), MATTHEWS (1965)]. Nach dem Kristallwachstum von nur wenigen Nanometern Dicke kann das Salzsubstrat durch Auflösen in wässriger Lösung entfernt werden. Die verbleibenden dünnen Metallschichten lassen sich auf Kupfernetzen als TEM-Proben

¹ Product-Demonstration Center: FEI Europe, Achtseweg Noord 5, Bldg, 5651 GG Eindhoven (NL)

präparieren und im Elektronenmikroskop untersuchen. Die auf diese Weise hergestellte Gold-Probe wurde freundlicherweise von Dr. Christian Kisielowski (NCEM, Berkeley/CA)¹ bereitgestellt. Abbildung 7.1 präsentiert eine Übersichtsaufnahme des Goldfilms. Die Struktur zeigt überwiegend einheitliche kristallographische Orientierung in $[110]$ -Richtung. Da eine Vielzahl von Korngrenzen, Versetzungen und Löchern vorhanden ist, stellt die Probe ein hervorragendes Testobjekt dar. Die im nachfolgenden Abschnitt präsentierten holografischen Ergebnisse entstammen der Korngrenze, die in der Übersichtsaufnahme markiert ist.

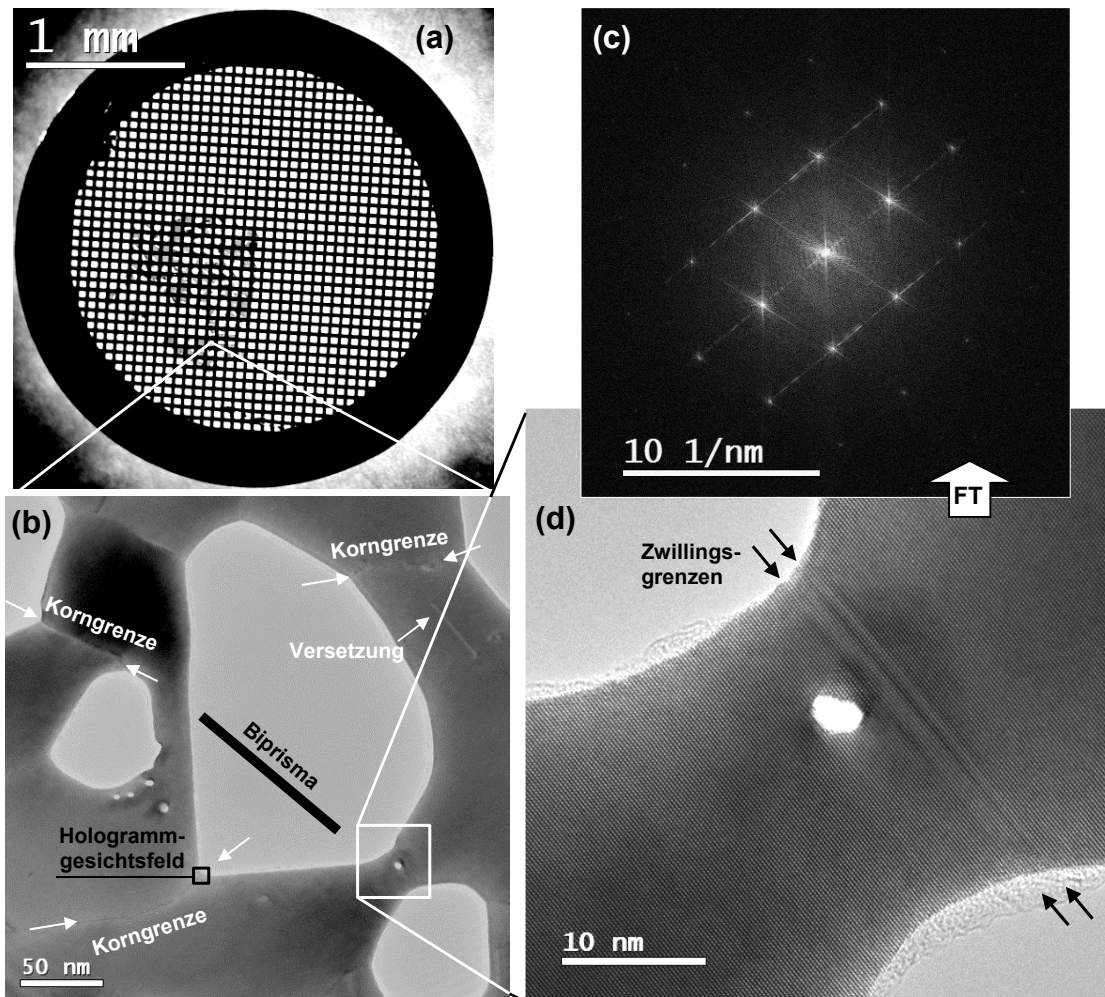


Abbildung 7.1 – Übersichtsaufnahme der Goldprobe: (a) Der Goldfilm wird nach dem Kristallwachstum vom Steinsalz-Substrat abgelöst und auf ein Kupfer-Netz präpariert. (b) Die Probe weist eine Vielzahl von Korngrenzen, Versetzungen und großen Löchern auf. Für die Holografie wurde der Randbereich einer Korngrenze ausgewählt (als Hologrammgesichtsfeld angedeutet). Die Orientierung des Biprismas relativ zur Probe ist illustriert. (c) Die überwiegende Kristallorientierung ist die $[110]$ -Richtung. (d) Mit dem Elektronenstrahl der XFEG ist es ein Leichtes, zusätzlich kleine Löcher in den Goldfilm zu brennen.

¹ Dr. Christian Kisielowski, National Center for Electron Microscopy, Lawrence Berkeley National Lab
1 Cyclotron Road, Bldg.72, Berkeley 94720, California, USA

7.2 Aufnahme, Rekonstruktion und Bildfehlerkorrektur

Bevor mit dem Titan-TEM off-axis Hologramme aufgenommen werden können, bedarf es einiger spezieller Einstellungen der Elektronenoptik. Die wichtigsten Betriebsparameter und notwendige Modifikationen seien hier kurz aufgelistet:

- Hochspannung: $U_A = 300$ kV
- Beugungslinsenanzregung: $DIFF = 65\%$:
Diese Einstellung passt die Hologrammbreite auf das verfügbare Gesichtsfeld der CCD-Kamera an (vgl. Abschnitt 5.2).
- Cs-Korrektor:
bestmögliche Korrektur aller Aberrationen bis einschließlich 3. Ordnung
- Aufnahme mit der CCD-Kamera des post-column Energie-Filter:
Durch die damit verbundene zusätzliche Nachvergrößerung wird bei einer Nominalvergrößerung von $3.2 \cdot 10^5$ eine ca. 10fach höhere Gesamtvergrößerung von $3.13 \cdot 10^6$ erzielt. Die 2048^2 Pixel besitzen eine Breite von $14 \mu\text{m}$.
- Elliptische Beleuchtung: Grobjustierung durch Stigmator der GunLens, Feineinstellung durch den Stigmator des Kondensor-Systems
- Biprismaspannung: $U_F = 900$ V

Abbildung 7.2 zeigt ein Hologramm der Gold-Korngrenze und das dazugehörige Diffraktogramm. Zur Kompensation verbleibender Restverkipfung nach der mechanischen Orientierung der Probe erfolgte eine Feinjustierung durch die Kippung der Beleuchtung (vgl. Abschnitt 5.1.5). Obwohl mit $U_F = 900$ V eine sehr hohe Biprismaspannung gewählt wurde, überlappen sich Zentralband und Seitenband im Hologrammspektrum noch teilweise. Um eine vollständige Trennung zu erzielen, bedarf es Interferenzstreifen von 33 pm Breite, die bei dem vorliegenden Setup erst bei Fadenspannungen um 1500 V erreicht werden können [LINCK (2009A)]. Der verwendete Biprismahalter gewährleistet die dafür erforderliche elektrische Stabilität jedoch nicht, so dass entweder ein stabilerer Biprismahalter oder eine veränderte Biprismaposition im Mikroskop notwendig ist.

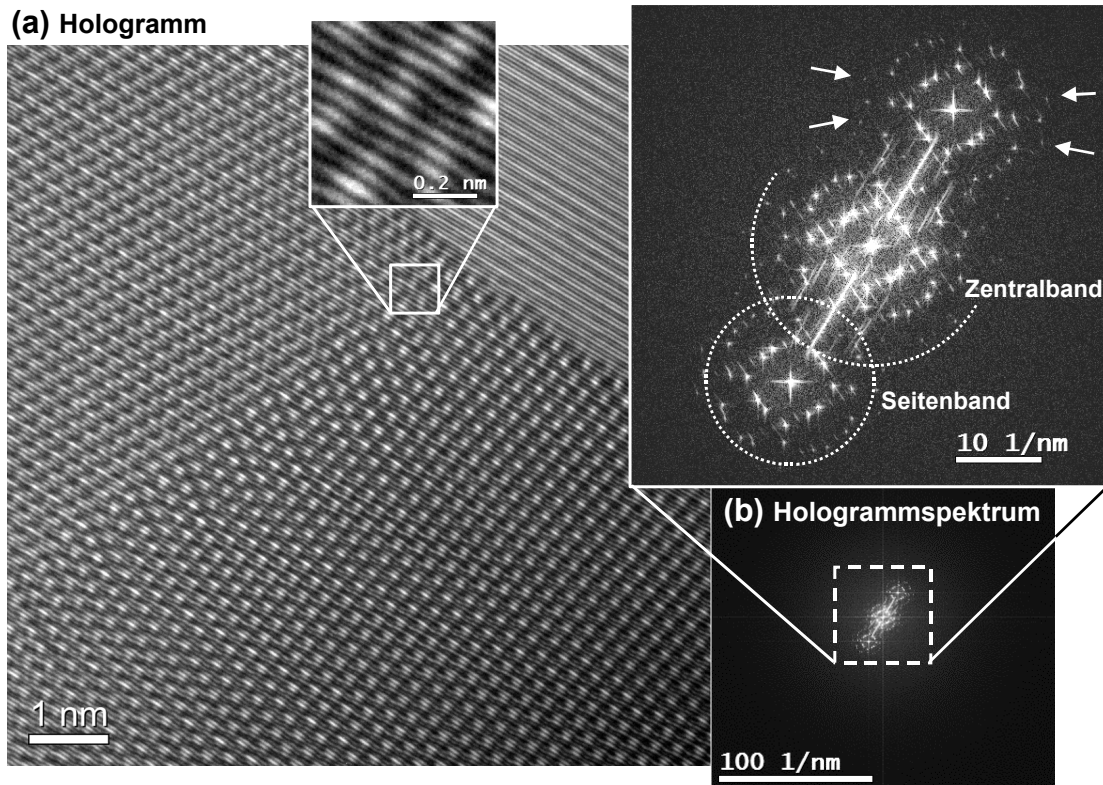


Abbildung 7.2 – (a) Hologramm einer 90°-Korngrenze in [110]-orientiertem Gold: Durch die sehr hohe Gesamtvergrößerung gelingt eine Abtaste von ca. zwölf Pixeln pro Streifen. Folglich ist das Hologrammspektrum (b) bezogen auf die Nyquistfrequenz sehr gering ausgedehnt. Der vergrößerte Bereich zeigt den symmetrischen Informationstransfer im Seitenband im Sub-Angstrom-Bereich (0.094 nm, {331}-Goldreflexe durch Pfeile angedeutet). Trotz der sehr hohen Biprismafadenspannung von 900 V gelingt die Trennung von Zentral- und Seitenband nicht vollständig. Das Hologramm wurde von Dr. Bert Freitag (FEI) aufgenommen.

Die Rekonstruktion der Bildwelle erfolgt entsprechend der verbesserten Prozeduren gemäß Kapitel 4. Die unvollständige Trennung von Zentralband und Seitenband wird durch eine subjektive Fourierfilterung von Zentralbandanteilen im Hologrammspektrum teilweise umgangen. Dennoch können nicht alle hochfrequenten Frequenzanteile des Seitenbandes mit in die Rekonstruktion einbezogen werden. Abbildung 7.3 zeigt (a) Amplitude und Phase der rekonstruierten Bildwelle sowie das dazugehörige Spektrum. Des Weiteren abgebildet sind (b) Amplitude und Phase nach Korrektur der verbleibenden sphärischen Aberration und des Defokus. Insbesondere im vergrößerten Ausschnitt der Amplitude erkennt man an den dunklen Atompositionen einen dreizähligen Astigmatismus, sowie die für axiale Koma typische Verschmierung vom Zentrum in eine Vorzugsrichtung. Erst nach der Korrektur aller Restaberrationen bis zur dritten Ordnung (c) repräsentieren Amplitude und Phase exakt die atomare Struktur. Zur Vollständigkeit sind die jeweiligen für die Korrektur herangezogenen Phasenplatten mit den entsprechenden Aberrationsparametern dargestellt. Die Bildfehlerkoeffizienten wurden von Prof. Dr. Michael Lehmann (TU Berlin) bestimmt.

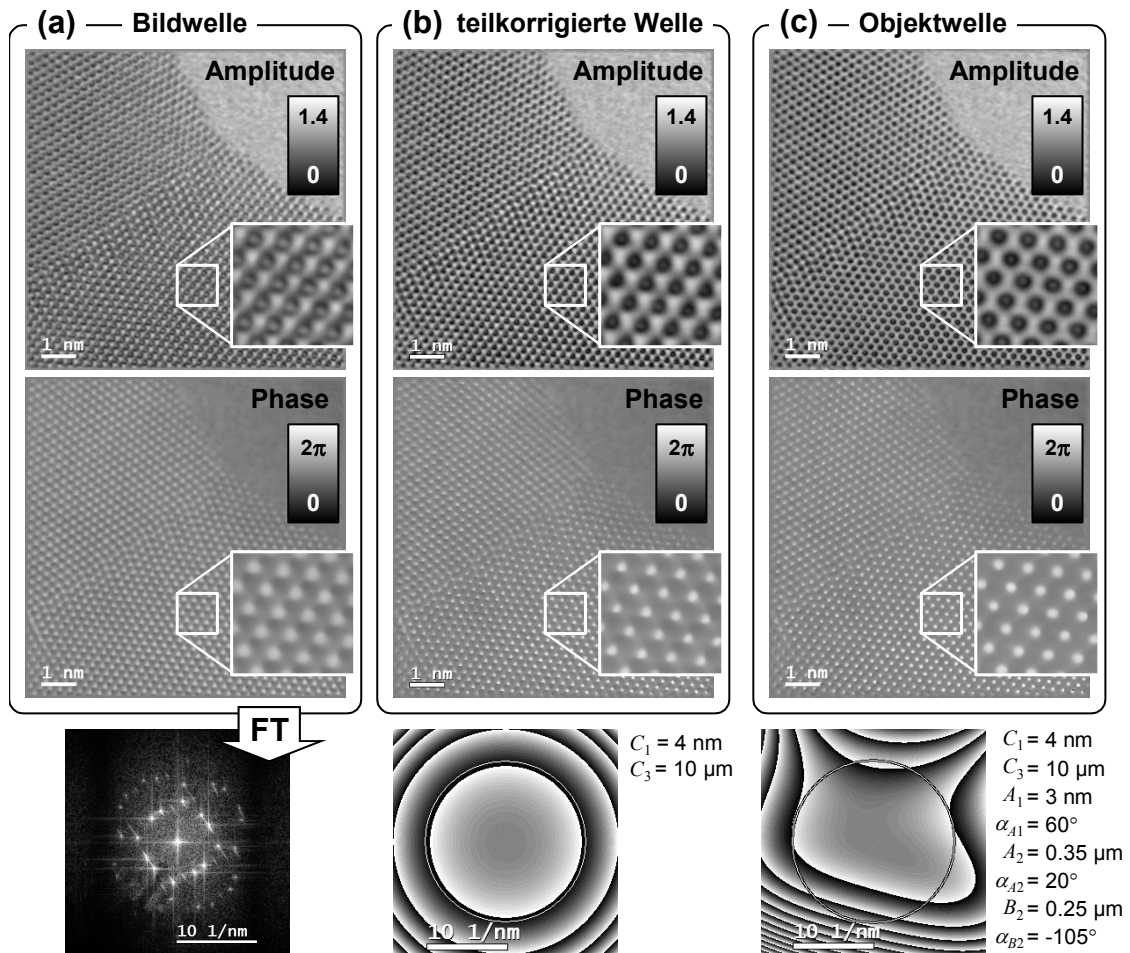


Abbildung 7.3 – Bildwellenrekonstruktion und numerische Aberrationskorrektur.

7.3 Auswertung der rekonstruierten Objektwelle im Ortsraum

Bei der hier analysierten Korngrenze handelt es sich um eine 90° -Grenze zweier $[110]$ -orientierter Kristallbereiche [vgl. MEDLIN (2001)]. Abbildung 7.4 zeigt die Struktur im Detail. Die (-111) -Fläche im oberen Bereich und die $(1-12)$ -Fläche im unteren Bereich passen kristallografisch nicht zusammen, so dass große zwischenatomare Abstände auftreten. Als Folge dessen relaxiert die Struktur in einen Zustand niedrigerer Gesamtenergie. Dabei tritt an der weniger stabilen $(1-12)$ -Fläche über einen Bereich von 2 nm eine Verbiegung der Netzebenen um bis zu 7° auf. In der energetisch stabileren (-111) -Fläche der Oberseite treten atomare Verschiebungen lediglich über einen Bereich von ca. 0.4 nm auf.

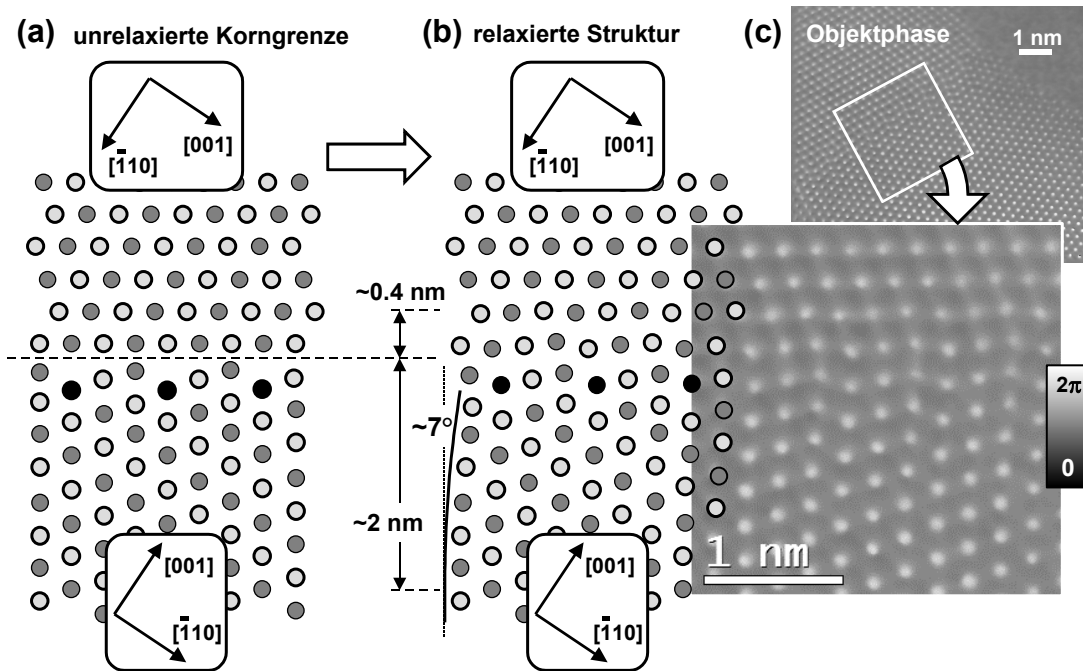


Abbildung 7.4 – Struktur der Korngrenze: (a) Zwei in $[110]$ -Orientierung um 90° gedrehte kristalline Bereiche treffen in einer Korngrenze aufeinander (Graustufen illustrieren Position in z -Richtung). Da die jeweiligen Randflächen der beiden Kristallkörner auf atomarer Skala nicht zusammenpassen, treten große interatomare Abstände auf (schwarze Positionen). (b) Durch Relaxation der Struktur wird die Energie des Systems minimiert. Dabei treten einseitig über einen Bereich von ca. 2 nm Verbiegungen von $\{111\}$ -Netzebenen um bis zu 7° auf. Bei Blickrichtung entlang der Korngrenze führt diese Relaxation aller drei $[-111]$ -Netzebenen des unteren Bereichs zu Stapelfehlern. Im oberen Bereich wird die Struktur lediglich über ca. 0.4 nm beeinflusst. Die rekonstruierte Phase (c) bildet diese Struktur exakt ab.

Die quantitative Auswertung von Objektamplitude und Objektphase in Abbildung 7.5 belegt eindrucksvoll, um wieviel einfacher und intuitiver sich die Phase gegenüber der Amplitude auswerten lässt. Das Phasenprofil entlang einer Netzebene weist das typisch stufenförmig zunehmende atomare Signal am Kristallrand aus, das auch schon zuvor in einem unkorrigierten TEM rekonstruiert werden konnte (vgl. Abbildung 4.15). Diesem Signal lässt sich ohne weiteres die Anzahl der Atome je Säule zuordnen. Im entsprechenden Amplitudenprofil ist eine solch direkte Interpretation nachweislich nicht möglich. Ein weiteres Profil entlang der zwischenatomaren Positionen der Goldprobe untermauert einen weiteren Vorteil der holografisch rekonstruierten Phase: Das atomare Signal in der Phasenschiebung ist deutlich besser lokalisiert als in der Amplitude. Die zwischenatomaren Positionen des Amplitudenprofils unterliegen deutlichen Modulationen; diese hängen stark von der Kontrastdämpfung inkohärenter Enveloppen ab. Dagegen bleibt die Phasenschiebung in den zwischenatomaren Bereichen nahezu völlig auf dem Wert der Vakuumphase und zeigt keine signifikante Modulation.

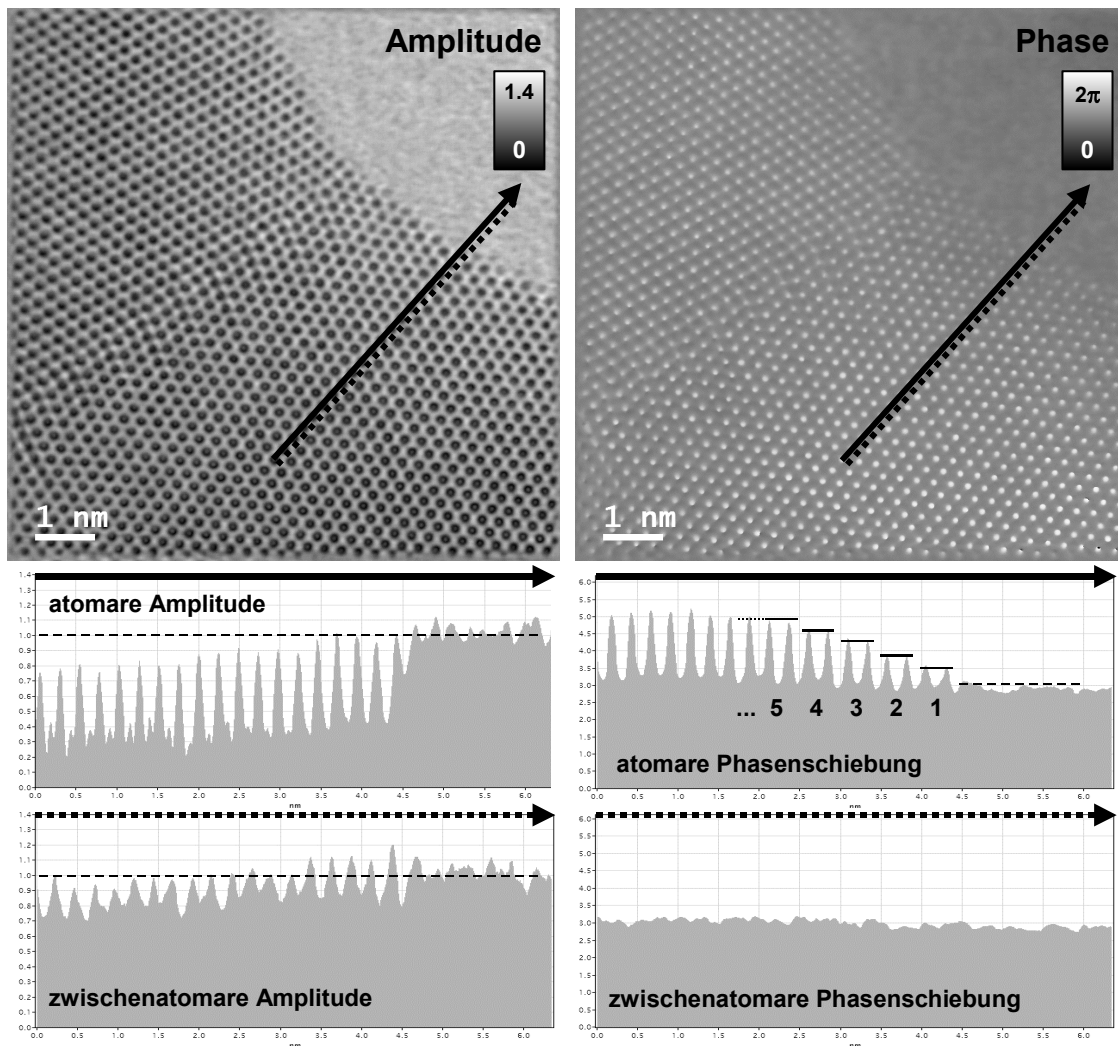


Abbildung 7.5 – Atomare Signale in Amplitude (links) und Phase (rechts): Die Profile entlang einer (111)-Netzebene verdeutlichen, dass sich die Phasenschiebung bei weitem einfacher als die Amplitude interpretieren lässt. Das stufenförmige Ansteigen der atomaren Phasenschiebung vom Probenrand in das Objekt entspricht der Dickenzunahme um einzelne Goldatome und erlaubt intuitiv das Zählen der Atome pro Säule. Zudem zeigen die Profile der zwischenatomaren Amplitude und Phase zwischen zwei benachbarten Netzebenen, dass das atomare Signal in der Phase deutlich besser lokalisiert ist: In der Phase fällt das atomare Signal auf den Wert des Vakuums ab; es treten keine signifikanten Variationen auf. Dagegen zeigt die Amplitude eine starke Modulation auch in den zwischenatomaren Bereichen.

Die hervorragende Signalauflösung zieht jedoch auch neue Herausforderungen für die quantitative Interpretation nach sich, da die Zahl der möglichen Ursachen für die feinen Phasenunterschiede, die nunmehr zugänglich sind, enorm ansteigt. Beispiele dafür können Oberflächenrekonstruktionen an dünnen Objektstellen sein, die dafür sorgen, dass Oberflächenatome ihre Position im Gitter leicht ändern, um einen energetisch günstigeren Zustand herzustellen. In solch einem Fall liegen nicht mehr alle Atome einer projizierten Säule an derselben Lateralposition und die Phase der Objektaustrittswelle ändert sich leicht. Des Weiteren sind Oberflächenatome weniger stark gebunden und zeigen daher stärkere thermische Schwingungen; auch dies zieht eine geringere Phasenschiebung in der projizierten Atomsäule nach sich. Für eine

eindeutige Interpretation – so denn überhaupt möglich – erfordert dies eine neue Qualität der Modellierung und Simulation, aber auch eine höhere Probenqualität.

Der Einsatz der „high-brightness electron gun“ bringt jedoch auch Probleme mit sich. Zunächst ist die hohe Stromdichte der XFEG mit Vorsicht einzusetzen: Im Experiment konnte bei sehr hoher Intensität beobachtet werden, wie sich die Probe durch das Erhitzen unter dem Elektronenstrahl einerseits thermisch ausdehnt, andererseits durch „surface melting“ die weniger stark gebundenen Goldatome an der Oberfläche aus dem Kristall herausgelöst werden. Das Fokussieren des Elektronenstrahls führt nach sehr kurzer Zeit sogar zu Löchern in der Goldfolie (vgl. Abbildung 7.1). Zusätzlich gelangen die CCD-Kameras als derzeit verwendete Detektoren an die Grenze ihrer Leistungsfähigkeit. Bei einem stabilen holographischen Setup gelingt es durchaus, die CCD-Kamera nach wenigen Sekunden zu „übersättigen“, d.h. die Dynamik der Kamera reicht nicht mehr aus. Verlust der Linearität beim Aufzeichnungsprozess und Artefakte der Aufnahme sind die Folge. Abhilfe kann hier durch die Aufnahme von schwächer belichteten Hologrammserien mit nachfolgender numerischer Mittelung geschaffen werden.

7.4 Nano-Beugung

Holographische Nano-Beugung erlaubt die Berechnung von komplexen Beugungsbildern sehr kleiner Objektbereiche. Zur qualitativen Beurteilung der Objektorientierung wurden von nunmehr nur noch $2 \times 2 \text{ nm}^2$ ($\sim 5 \times 5$ Einheitszellen!) großen Bildausschnitten der komplexen Objektwelle durch Fouriertransformation die Beugungsbilder berechnet. Wie zuvor sorgt die Anwendung einer Fensterfunktion („Hanning-Window“) für periodische Fortsetzbarkeit im Ortsraum zur Vermeidung von Artefakten. Abbildung 7.6 zeigt neben dem Gesamtspektrum der komplexen Objektwelle die Nano-Beugungsbilder dreier Ausschnitte. Es wurde neben den beiden unterschiedlich zueinander ausgerichteten [110]-orientierten Bereichen (I) und (III) auch ein Beugungsbild der Korngrenze (II) erzeugt. In allen Beugungsbildern ist die symmetrische Anregung aller Reflexe deutlich erkennbar, die bei der vorliegenden zentrosymmetrischen Struktur eine quasi-perfekte Probenorientierung beweist. Da sich die Nano-Beugungsbilder auf sehr kleine Objektbereiche beschränken, gelingt es im Bereich (II) Beugungsdetails zu erkennen und auszuwerten, die zuvor im Spektrum der Gesamtwelle kaum wahrnehmbar waren. Hier können zum einen die Überstrukturreflexe der aller drei Netzebenen periodisch auftretenden Stapelfehler der Gitterrelaxation visualisiert werden. Zum anderen erkennt man eine Verschmierung einiger Reflexe der {111}-Ebenen durch die Netzebenenverbiegung um ca. 7° .

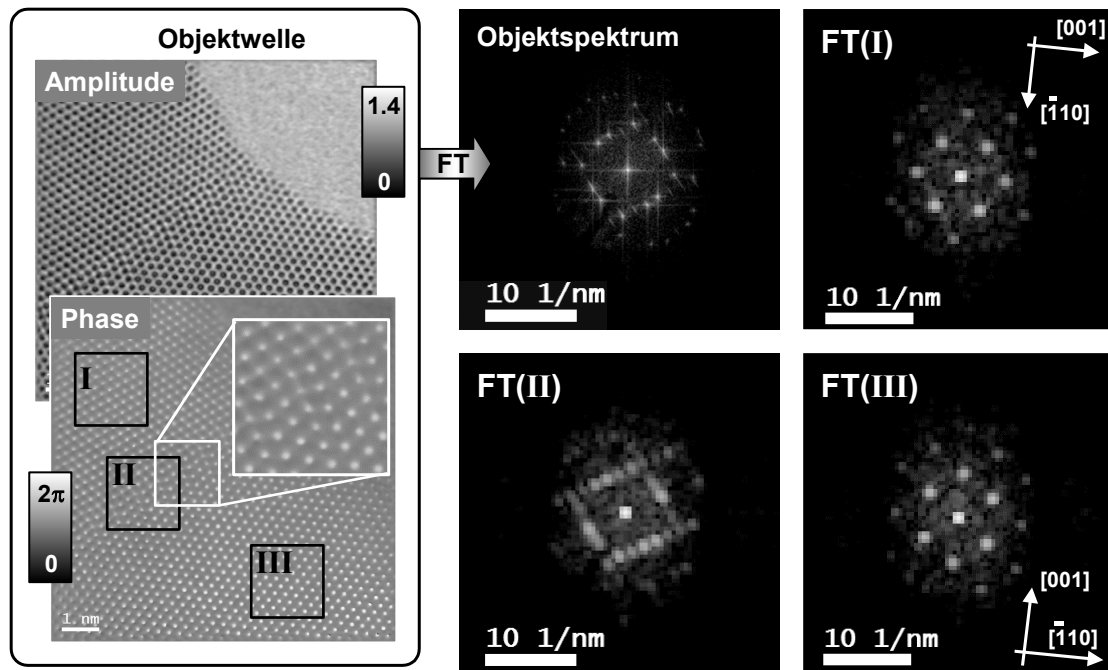


Abbildung 7.6 – Nanobeugung: Gegenüber dem Spektrum der Gesamtwelle (Mitte oben) zeigen die Fouriertransformierten der Ausschnitte I, II und III der Objektwelle lokale Details wie z.B. Kristallorientierung. Die symmetrische Erscheinung der Beugungsamplituden in allen Spektren weist eine sehr gute Orientierung der Probe nach. Im Korngrenzenbereich II zeigen sich im Spektrum zusätzliche Überstrukturreflexe, die den periodisch entlang der Korngrenze auftretenden Stapelfehlern zuzuordnen sind.

7.5 Einzelreflexrekonstruktion

Die holografisch rekonstruierte Objektwelle bietet mit der Einzelreflexrekonstruktion die Möglichkeit, Amplituden und Phasen einzelner Partialwellen auszuwerten: Einzelne Beugungswellen des Objektspektrums werden ausgeschnitten, zentriert und nach inverser Fouriertransformation im Ortsraum als Amplitude und Phase dargestellt.

Abbildung 7.7 zeigt die Rekonstruktion aller $\{111\}$ -Reflexe aus der Objektwelle der Gold-Korngrenze. Die rekonstruierten Amplituden paarweise gegenüberliegender Einzelreflexe geben anhand der Symmetrie Aufschluss über die lokale Probenorientierung. Weiterführend kann ein quantitativer Vergleich mit den Amplituden aus simulierten Beamplots (vgl. Kapitel 6.7) zur Dickenbestimmung und Analyse der Restverkipfung genutzt werden. Die Auswertung der Einzelreflexphasen geschieht für die beiden angrenzenden Kristallbereiche getrennt. Dazu wird der entsprechende Reflex jeweils zentriert, was im Ortsraum die Addition eines Phasenkeils bewirkt und somit die Kippung der jeweiligen Beugungswelle korrigiert. Auf diese Weise erhält man für die beiden kristallinen Bereiche getrennt voneinander die Einzelreflexphasen. Diese Information kann beispielsweise – wie in Abbildung 7.7 geschehen – genutzt werden, um mittels geometrischer Phasenanalyse (Anhang A7) eine Karte der Atomverschiebungen zu berechnen. Der Gradient der Einzelreflexphase repräsentiert die lokale Abweichung der Atompositionen gegenüber einem Referenzgitter – hier die ungestörte Struktur im dickeren Objektbereich. Bei

Auswertung der Phasen zweier Reflexe mit linear unabhängigen Gittervektoren kann somit das Verschiebungsfeld (displacement) in x- und y-Richtung bestimmt werden. Nach Ableitung in x- bzw. y-Richtung gewinnt man daraus unter anderem Information über Netzebenen-Rotation und Strain. Wie zuvor im Ortsraum ermittelt, weist auch diese Form der Analyse an der (1-12)-Fläche im unteren Korngrenzenbereich eine Netzebenenrotation um ca. 7° nach, während es in der oberen (-111)-Fläche nur unwesentlich zu Relaxationsverschiebungen kommt.

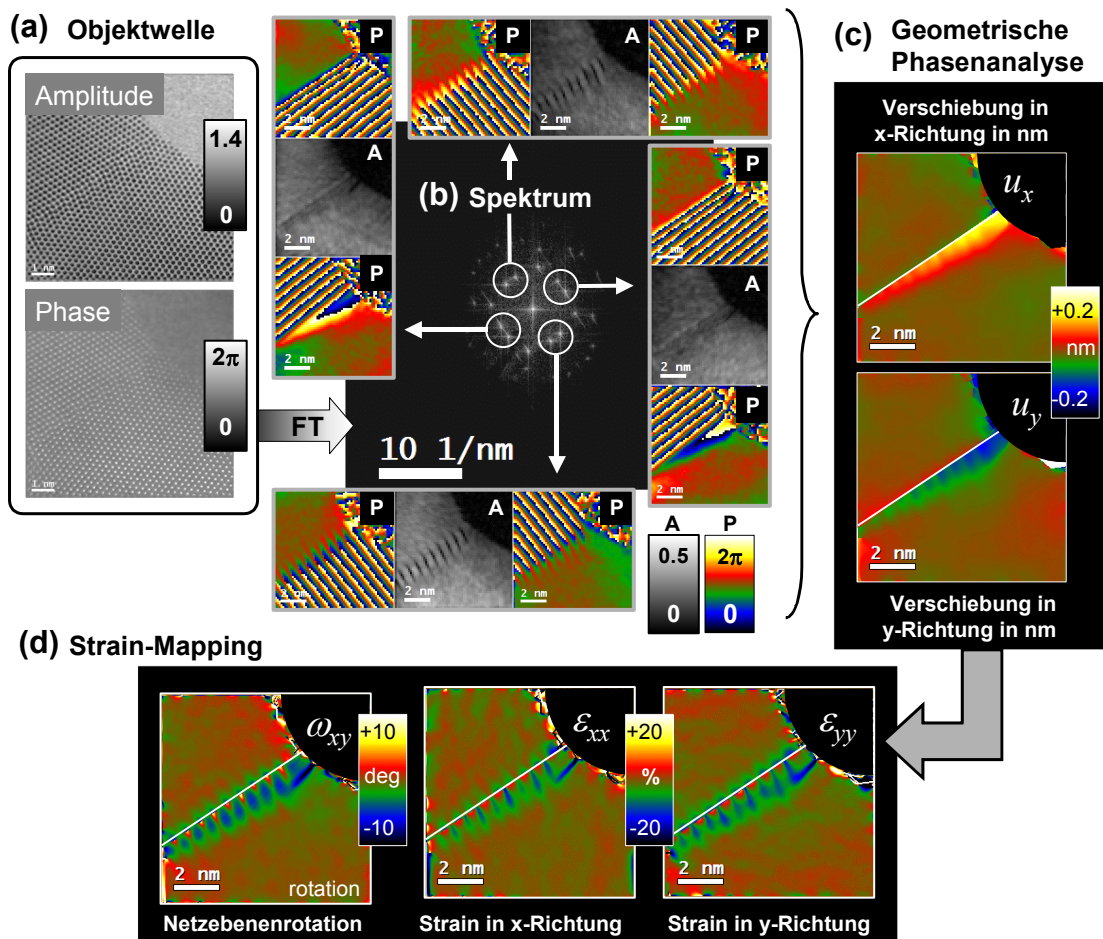


Abbildung 7.7 – Einzelreflexanalyse: Fouriertransformation der Objektwelle (a) ergibt das komplexe Spektrum (b). Ausschnitte einzelner Beugungsreflexe führen nach inverser Fouriertransformation zu Amplitude and Phase dieser Partialwellen. Während die Amplituden eine quantitative Analyse z. B. zur Bestimmung der Objektkippung erlauben, können aus den Phasen und deren Gradienten durch geometrische Phasenanalyse (vgl. Anhang A7) Verschiebungskarten für x- und y-Richtung berechnet werden (c). Die beiden kristallographisch gedrehten Bereiche der Korngrenze wurden dazu separat ausgewertet und in der Darstellung zusammengesetzt. Diese sogenannten Displacement-Maps erlauben unter anderem die Berechnung von lokalem Strain und Netzebenenrotation (d).

Ungeachtet der hervorragenden Ergebnisse müssen jedoch folgende kritische Fragen gestattet sein: Benötigt man diese Art der Analyse, wenn im Ortsraum bereits alle Atompositionen und -signale bereits derart präzise ermittelt werden können? Welche zusätzliche Information bietet die Methode? – In erster Hinsicht bringt eine Fouriertransformation keine neue Information, sondern „sortiert“ die bestehenden Daten

in anderer Art und Weise (hier nach den Raumfrequenzen). Es zeigt sich jedoch, dass bei bestimmten Fragestellungen wie z. B. der exakten Probenorientierung oder strukturellen Asymmetrien (vgl. Kapitel 6.7) die Auswertung im reziproken Raum sehr gut geeignet ist. Gerade in Hinblick auf die ferroelektrischen Objekte, bei denen eine Abbildung aller Atome einer Einheitszelle in bestimmten Durchstrahlungsrichtungen nicht möglich ist, kann eine Auswertung im Fourierraum sehr vorteilhaft sein. Dafür ist die hier erreichte Signalauflösung eine sehr wichtige Voraussetzung.

7.6 Zusammenfassung

Gegenüber dem vorangegangenen Anwendungsbeispiel im Kapitel 6 erlaubt die Holografie unter Zuhilfenahme der XFEG eine ganz neue Qualität der Analyse. Bislang im Rauschen der Phase verborgene Details werden nun zugänglich. Das Hauptaugenmerk bei der Auswertung der Objektwelle im Ortsraum bleibt dabei die Phasenschiebung, da sie der Amplitude in Bezug auf direkte Interpretierbarkeit nachweislich weit überlegen ist. Die Interpretation der Phase wird mit besserer Signalauflösung jedoch nicht unbedingt einfacher, da viele neue Aspekte zur quantitativen Analyse berücksichtigt werden müssen.

Die Auswertung der Objektwelle im reziproken Raum profitiert ebenfalls von der verbesserten Signalauflösung. Obwohl die Nanobeugungsbilder gegenüber Kapitel 6.7 von deutlich kleineren Objektbereichen berechnet wurden, steigt die Qualität unter Verwendung einer XFEG erheblich. Auch die Rekonstruktion der Amplituden und Phasen der einzelnen Reflexe verdeutlicht anhand der Verzerrungsanalyse die Vorteile der hohen Signalauflösung in der rekonstruierten Welle.

Diese Ergebnisse zeigen eindeutig, dass ein „high-brightness“-Schottky-Feldemitter unbedingt zur Ausstattung zukünftiger holografischer Hochauflösungs-TEMs gehören sollte.

8 Resümee und Ausblick

Die moderne Transmissionselektronenmikroskopie ist fraglos eines der wichtigsten Verfahren zur Materialanalytik auf atomarer Skala. Für viele Fragestellungen hat sich das TEM mit seinen phantastischen Möglichkeiten weit über die reine optische Abbildung hinaus als Messinstrument bewährt.

Die unvermeidlichen Abbildungsfehler der Objektivlinse und die damit verbundene Delokalisierung erschweren die Interpretation der im TEM aufgezeichneten Intensität jedoch erheblich. Diesbezüglich hat der Cs-Korrektor im vergangenen Jahrzehnt für großartige Fortschritte gesorgt: Durch die Korrektur der Bildfehler können Objektdetails atomar scharf, also delokalisationfrei abgebildet und die Signale einzelner Atome ausgewertet werden.

Leider sind dem TEM – ob mit oder ohne Korrektor – gewisse Grenzen gesetzt: Erstens sind die großflächigen Details aus der Objektphase bei konventioneller Aufzeichnung einer Intensität stets unzugänglich. Zweitens können die Aberrationen nie komplett korrigiert werden, da sie zum Teil für die Kontrastübertragung atomarer Strukturen notwendig sind.

Mit der off-axis Elektronenholografie steht eine leistungsstarke Methode zur Verfügung, die diesen Problemen Abhilfe schaffen kann. Diese Technik erlaubt es, neben der konventionellen Bildintensität die gesamte Bildwelle aufzuzeichnen und durch numerische Korrektur der kohärenten Bildfehler die Objektaustrittswelle wiederherzustellen. Dies bedeutet im Ergebnis nicht nur, dass die Delokalisierung verschwindet, sondern auch, dass die rekonstruierten Daten durch keinerlei Kontrasttransferfunktionen beeinflusst werden.

Methodische Weiterentwicklung der holografischen Auswertung:

Der Weg zu holografischen Ergebnissen höchster Qualität ist kompliziert: Bei der Aufnahme eines Elektronenhogramms werden sowohl die Bildwelle des Objekts als auch die momentanen Auswirkungen des TEMs gespeichert. Schlussendlich sind jedoch ausschließlich die Objekteigenschaften von Interesse; die Mikroskopeinflüsse sind während der holografischen Wiederherstellung der Objektwelle möglichst vollständig zu entfernen. Zu diesem Zweck wurde neben der detaillierten Analyse einiger Mikroskopeinflüsse eine umfassende Rekonstruktionsprozedur vorgestellt, die zu einer quasi-artefaktfreien Objektaustrittswelle führt. Die so rekonstruierte Welle kann eindeutig im Sinne des Objekts ausgewertet werden und schöpft die aufgezeichnete Hologrammintensität bei der Rekonstruktion bezüglich Lateralauflösung und Signalauflösung auf ein Höchstmaß aus.

Off-axis Holografie mit Cs-Korrektor:

Die unterschiedlichen Methoden der Cs-korrigierten Höchstauflösungsabbildung und die off-axis Elektronenholografie bieten unabhängig voneinander eine Vielzahl von Vorteilen. Es ist naheliegend, diese Vorteile miteinander zu verknüpfen, um die

bisherigen Grenzen zu überwinden und neue herausragende Untersuchungsmöglichkeiten zu schaffen. So wurden in dieser Arbeit die Vorzüge eines Cs-korrigierten TEMs mit den vielseitigen Möglichkeiten der off-axis Elektronenholografie genauer untersucht. Eine Vielzahl von Verbesserungen konnte dabei erzielt werden:

- Die zusätzliche Elektronenoptik bietet eine höhere Zwischenbildvergrößerung und ermöglicht damit ein verbessertes Setup zur Erzeugung von Hochauflösungshologrammen.
- Die zuvor hergeleitete komplizierte Dämpfung durch partielle räumliche Kohärenz im Hologramm verliert die schwer zu berücksichtigende asymmetrische Gestalt und vereinfacht sich zu einem konstanten Faktor.
- Durch die mögliche Aufnahme schmalere Hologramme verbessert sich die Signalauflösung in der holografisch rekonstruierten Phase deutlich. Die erreichte Phasendetektionsgrenze von $2\pi/75$ entspricht einer Weiterentwicklung um einen Faktor drei gegenüber den bislang berichteten Werten.
- Der Gradient der numerischen Phasenplatte zur a-posteriori Bildfehlerkorrektur verringert sich deutlich und reduziert damit numerische Artefakte.
- Der vernachlässigbare Aberrationsgradient ermöglicht die sukzessive Nutzung der Strahlkipfung zur in-situ Feinjustierung der Probenorientierung.
- Die Bildfehlerkoeffizienten stehen in gewissen Grenzen als Freiheitsgrade zur Verfügung und können für die lokale Signalauflösung in der rekonstruierten, bildfehlerkorrigierten Objektwelle insbesondere an den atomaren Positionen optimiert werden. Weiterführende Simulationen zeigen, dass die optimalen Bildfehlerkoeffizienten diesbezüglich je nach Objektstruktur und Objektstärke variieren.

Holografische Untersuchungen ferroelektrischer Nanoschichten:

Bei der holografischen Untersuchung ferroelektrischer Nanoschichten wurden die Grundlagen und neuen Erkenntnisse für die off-axis Elektronenholografie im Cs-korrigierten TEM zur Anwendung gebracht.

Die zur Interpretation notwendige kritische Auseinandersetzung mit dem Phänomen der Ferroelektrizität führte zu wichtigen Erkenntnissen:

- Grenzflächenladungen schirmen einen Großteil der ferroelektrischen Felder ab. Daher dürfen großflächige Phasendifferenzen nicht direkt als ferroelektrische Polarisation interpretiert werden.
- Die Auslenkungen der Ionen in der ferroelektrischen Einheitszelle lassen sich – wie auch in konventionellen HRTEM-Aufnahmen – in der rekonstruierten Objektwelle beobachten und führen zu asymmetrischen Beugungsbildern.
- Die Grenzflächenladungen verursachen lokale Phasenschiebungen, die Simulationen zufolge sehr gering sind und nahe der derzeitigen Phasendetektionsgrenze liegen.

Im Einklang damit konnte im Experiment mittels off-axis Elektronenholografie die Ferroelektrizität in Schichten von Bleititanat eindeutig nachgewiesen werden:

- Die Messung von Atomverschiebungen ermöglicht die Bestimmung von Stärke und Richtung der ferroelektrischen Polarisation sowie der tetragonalen Verzerrung.
- Holografische Einzelreflexanalyse und Nanobeugung erlauben die Identifikation der Polarisationsrichtung und der Tetragonalität im reziproken Raum.
- In Einklang mit den gefundenen Atomverschiebungen weist eine Phasendifferenz an der Schichtgrenze auf eine abschirmende Grenzflächenladung hin. Gegenüber Simulationen ist diese Phasenschiebung jedoch deutlich zu groß, so dass es weiterer Experimente und umfassenderer Simulationen bedarf, um die auftretenden Effekte interpretieren zu können.

In jedem Falle sind die erzielten Ergebnisse eine Bestätigung der Vorteile der Holografie: Die mittels Cs-korrigiertem TEM holografisch rekonstruierten Objektwellen zeigen dank der hervorragenden Signalauflösung einige bislang unzugängliche Details – wenn auch derzeit noch mit teils unklarer Ursache – und ermöglichen damit neuartige systematische Untersuchungen. Somit bieten die erzielbaren Daten eine ausgezeichnete Ausgangslage zur Klärung festkörperphysikalischer Fragestellungen.

Holografie mit „XFEG“:

Über die großartigen gezeigten Fortschritte hinaus erweist sich die neuartige „high-brightness electron gun“ als eine zukunftsweisende Ergänzung zum holografischen Setup. Die präsentierten Ergebnisse zeigen das beste bis dahin jemals aufgenommene Hochauflösungshologramm. Die neue Elektronenquelle verbessert den Informationsgehalt eines Hologramms um einen zusätzlichen Faktor vier und bietet bei atomarer Auflösung nahezu standardmäßig eine Phasendetektionsgrenze von $\sim 2\pi/300$ in nur einer einzigen holografischen Aufnahme. Nachweislich profitieren die holografischen „Werkzeuge“ der Nanobeugung und Einzelreflexanalyse erheblich von der verbesserten Hologrammqualität.

Ausblick:

Es zeigt sich, dass viele Vorteile der off-axis Holografie gegenüber der konventionellen TEM-Methoden dank der Vorzüge des Cs-Korrektors signifikant an Bedeutung gewinnen. Die enormen Verbesserungen insbesondere in Bezug auf die Signalauflösung erlauben es der höchstauflösenden Holografie (wie im mittleren Auflösungsbereich bereits lange geschehen), aus dem rein akademischen Bereich hervorzutreten, um als Anwendung materialwissenschaftliche und festkörperphysikalische Problemstellungen aufzuklären. In diesem Zusammenhang sind nun sowohl Theoretiker als auch Anwender gefragt, die vielen neuen Fragestellungen zu bearbeiten, deren Antworten nun ein Stück näher gerückt sind.

Die verbleibenden Grenzen der holografischen Methode verschieben sich nun immer weiter in Richtung des zu untersuchenden Objekts selbst. So nimmt die Qualität der Proben für Höchstauflösungsuntersuchungen einen immer größeren Stellenwert ein und stellt die Probenpräparation vor immer neue Herausforderungen. Doch darüber hinaus wirkt sich das Objekt selbst durch die Wechselwirkung mit dem Elektronenstrahl begrenzend aus: Aufladungen und Strahlenschäden können brauchbare Ergebnisse ebenso erschweren wie Phasenumwandlungen und lokale Verbiegungen durch die Änderung der Objekttemperatur bei Elektronenbeschuss.

Konsequenterweise folgt die technische Entwicklung dem Trend, die Hochspannung zur Vermeidung von Strahlenschäden zu reduzieren. Dabei wirkt sich insbesondere die chromatische Aberration C_C auflösungsbegrenzend aus. Um nicht auf Monochromatoren zurückgreifen zu müssen, die den Strahlstrom signifikant verringern, kommen neuartige Bildfehlerkorrektoren zum Einsatz, die in der Lage sind, auch den chromatischen Fehler zu korrigieren [HAIDER (2008)]. Erste Arbeiten noch ohne C_C -Korrektor zeigen bei Elektronenenergien von 80 keV bereits beeindruckende Hochauflösungsergebnisse [z.B. MEYER (2008)]. Im Rahmen des SALVE-Projekts soll atomare Auflösung sogar bei deutlich geringeren Hochspannungen erreicht werden [SALVE (2009)].

Auch die Elektronenholografie erfordert für die weitere Verbesserung der Lateralauflösung eine Korrektur der chromatischen Linsenfehler. Gleichzeitig gelangt jedoch das holografische Setup aufgrund der nötigen extrem hohen elektrischen Spannungen am Biprisma an seine Grenzen. Abhilfe könnte ein neues elektronenoptisches Design schaffen, bei dem sich das Biprisma zwischen erster und zweiter Zwischenbildebene befindet [LICHTE (1996B)]. Bezüglich elektrischer und mechanischer Stabilität wäre dieses dem bisherigen Setup deutlich überlegen.

Weitere Fortschritte für die off-axis Elektronenholografie stehen auf dem Gebiet der Detektoren an. Es zeichnet sich ab, dass neuartige Aufzeichnungsgeräte, die die Elektronen direkt detektieren können, in nicht allzu ferner Zukunft die CCD-Kameras ablösen werden. Diese „direct detection devices“ bieten überragende Eigenschaften bezüglich Kontrastübertragung und Signal-zu-Rauschen [DENES (2007), MOLDOVAN (2009)] und könnten in der Holografie für eine weitere gewaltige Verbesserung der Phasendetektionsgrenze sorgen.

Die erreichten und bevorstehenden Weiterentwicklungen lassen auf eine Vielzahl neuer spannender holografischer Experimente hoffen.

Dear Prof. Feynman,

there is plenty of room to make the electron microscope more powerful!

Anhang

A1 Die kohärente Wellenaberration

Zur Behandlung der Wellenaberration $\chi(\vec{g})$ wird der zweidimensionale reziproke Vektor $\vec{g} = (g_x, g_y)$ in Polarkoordinaten geschrieben: $\vec{g} = g \cdot e^{i\alpha_g}$. Als Hilfsmittel wird der reziproke Vektor mit Betrag und Richtung als Zahl der komplexen Zahlenebene dargestellt:

$$\omega = \left(\frac{g}{k}\right) \cdot e^{i\alpha_g} \text{ und komplex konjugiert dazu } \bar{\omega} = \left(\frac{g}{k}\right) \cdot e^{-i\alpha_g}, \quad (\text{A1.1})$$

d.h. x- und y-Richtung von \vec{g} werden durch den Real- und Imaginärteil der komplexen Zahl repräsentiert.

Die Polynomzerlegung einer reellen Funktion $\chi(\omega)$ in Gliedern von ω bis zur fünften Ordnung liefert:

$$\chi(\omega) = 2\pi k \cdot \Re \left[\begin{aligned} & d_0 \omega \\ & + \frac{a_1}{2} \bar{\omega}^2 + \frac{c_1}{2} \omega \bar{\omega} \\ & + \frac{a_2}{3} \bar{\omega}^3 + b_2 \omega^2 \bar{\omega}^{-1} \\ & + \frac{a_3}{4} \bar{\omega}^4 + s_3 \omega^3 \bar{\omega} + \frac{c_3}{4} (\omega \bar{\omega})^2 \\ & + \frac{a_4}{5} \bar{\omega}^5 + d_4 \omega^4 \bar{\omega} + b_4 \omega^3 \bar{\omega}^2 + \dots \end{aligned} \right]. \quad (\text{A1.2})$$

Nach Einsetzen der komplexen Aberrationskoeffizienten aus Tabelle A.1 sowie der komplexen Koordinaten ω und $\bar{\omega}$ folgt die reelle Darstellung der Wellenaberration:

$$\chi(\vec{g}) = 2\pi k \left[\begin{aligned} & D_0 \left(\frac{g}{k}\right) \cos(\alpha_g - \alpha_{D0}) \\ & + \frac{1}{2} A_1 \left(\frac{g}{k}\right)^2 \cos(2\alpha_g - \alpha_{A1}) + \frac{1}{2} C_1 \left(\frac{g}{k}\right)^2 \\ & + \frac{1}{3} A_2 \left(\frac{g}{k}\right)^3 \cos(3\alpha_g - \alpha_{A2}) + B_2 \left(\frac{g}{k}\right)^3 \cos(\alpha_g + \alpha_{B2}) \\ & + \frac{1}{4} A_3 \left(\frac{g}{k}\right)^4 \cos(4\alpha_g - \alpha_{A3}) + S_3 \left(\frac{g}{k}\right)^4 \cos(2\alpha_g + \alpha_{S3}) + \frac{1}{4} C_3 \left(\frac{g}{k}\right)^4 \\ & + \frac{1}{5} A_4 \left(\frac{g}{k}\right)^5 \cos(5\alpha_g - \alpha_{A4}) + D_4 \left(\frac{g}{k}\right)^5 \cos(3\alpha_g + \alpha_{D4}) + B_4 \left(\frac{g}{k}\right)^5 \cos(\alpha_g + \alpha_{B4}) \\ & + \dots \end{aligned} \right]. \quad (\text{A1.3})$$

Da sich die Bildverschiebung D_0 in Form eines Phasenkeils in der hinteren Brennebene auf alle Raumfrequenzen g gleichermaßen auswirkt, wird dieser Term meist weggelassen.

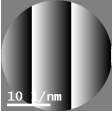


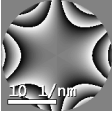


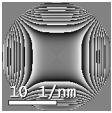
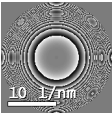
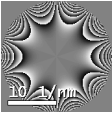

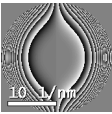
Koeffizient	Bezeichnung	Ordnung	Symmetrie	Darstellung	reelle Notation
$d_0 = D_0 \cdot e^{i\alpha_{D0}}$	Bildverschiebung	0	1		(D_0, α_{D0})
$a_1 = A_1 \cdot e^{i\alpha_{A1}}$	zweizähliger Astigmatismus	1	2		(A_1, α_{A1})
$c_1 = C_1$	Defokus	1	∞		C_1
$a_2 = A_2 \cdot e^{i\alpha_{A2}}$	dreizähliger Astigmatismus	2	3		(A_2, α_{A2})
$b_2 = B_2 \cdot e^{i\alpha_{B2}}$	axiale Koma zweiter Ordnung	2	1		(B_2, α_{B2})
$a_3 = A_3 \cdot e^{i\alpha_{A3}}$	vierzähliger Astigmatismus	3	4		(A_3, α_{A3})
$s_3 = S_3 \cdot e^{i\alpha_{S3}}$	„Sternfehler“	3	2		(S_3, α_{S3})
$c_3 = C_3$	sphärische Aberration	3	∞		C_3
$a_4 = A_4 \cdot e^{i\alpha_{A4}}$	fünzfähliger Astigmatismus	4	5		(A_4, α_{A4})
$d_4 = D_4 \cdot e^{i\alpha_{D4}}$	dreizähliger Astig. vierter Ordn.	4	3		(D_4, α_{D4})
$b_4 = B_4 \cdot e^{i\alpha_{B4}}$	axiale Koma vierter Ordnung	4	1		(B_4, α_{B4})
...

Tabelle A.1 – Koeffizienten der isoplanatischen kohärenten Wellenaberration bis zur vierten Ordnung. Die Glieder der Reihenentwicklung sind nach Ordnung und Symmetrie sortiert und deren Gestalt als Phasenplatte im Fourierraum illustriert.

Wird die Beleuchtung gegenüber der optischen Achse um den Winkel θ in Richtung α_θ gekippt, bedeutet dies in der hinteren Brennebene eine Verschiebung der Welle um $|\vec{g}_\theta| = k \cdot \theta$ gegenüber der Aberrationsfunktion χ . Für die komplexen Zahlen ω und $\bar{\omega}$ resultiert analog die Verschiebung

$$\omega_\theta = \left(\frac{g_\theta}{k} \right) \cdot e^{i\alpha_\theta} = \theta \cdot e^{i\alpha_\theta}$$

und (A1.4)

$$\bar{\omega}_\theta = \left(\frac{g_\theta}{k} \right) \cdot e^{-i\alpha_\theta} = \theta \cdot e^{-i\alpha_\theta} .$$

Aus Gleichung (A1.2) folgt dann

$$\begin{aligned} \chi(\omega + \omega_\theta) = 2\pi k \cdot \Re e \left[\right. & d_0 \cdot (\omega + \omega_\theta) \\ & + \frac{a_1}{2} \cdot (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^2 + \frac{c_1}{2} \cdot (\omega + \omega_\theta)(\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta) \\ & + \frac{a_2}{3} \cdot (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^3 + b_2 \cdot (\omega + \omega_\theta)^2 (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta) \\ & + \frac{a_3}{4} \cdot (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^4 + s_3 \cdot (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^3 (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta) + \frac{c_3}{4} \cdot (\omega + \omega_\theta)^2 (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^2 \\ & + \frac{a_4}{5} \cdot (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^5 + d_4 \cdot (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^4 (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta) + b_4 \cdot (\omega + \omega_\theta)^3 (\bar{\omega} + \bar{\omega}_\theta)^2 \\ & \left. + \dots \right], \end{aligned} \tag{A1.5}$$

und nach Ausmultiplizieren verbleibt

$$\begin{aligned}
\chi(\omega + \omega_\theta) = 2\pi k \cdot \Re \left[& d_0 \cdot (\omega + \omega_\theta) \right. \\
& + \frac{a_1}{2} \cdot (\bar{\omega}^2 + 2\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta + \bar{\omega}_\theta^2) + \frac{c_1}{2} \cdot (\omega\bar{\omega} + \omega_\theta\bar{\omega} + \omega\bar{\omega}_\theta + \omega_\theta\bar{\omega}_\theta) \\
& + \frac{a_2}{3} \cdot (\bar{\omega}^3 + 3\bar{\omega}^2\bar{\omega}_\theta + 3\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta^2 + \bar{\omega}_\theta^3) \\
& + b_2 \cdot (\omega^2\bar{\omega} + 2\omega\omega_\theta\bar{\omega} + \omega_\theta^2\bar{\omega} + \omega^2\bar{\omega}_\theta + 2\omega\omega_\theta\bar{\omega}_\theta + \omega_\theta^2\bar{\omega}_\theta) \\
& + \frac{a_3}{4} \cdot (\bar{\omega}^4 + 4\bar{\omega}^3\bar{\omega}_\theta + 6\bar{\omega}^2\bar{\omega}_\theta^2 + 4\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta^3 + \bar{\omega}_\theta^4) \\
& + s_3 \cdot (\omega^3\bar{\omega} + 3\omega^2\bar{\omega}\omega_\theta + 3\omega\bar{\omega}\omega_\theta^2 + \omega_\theta^3\bar{\omega} \\
& \quad + \omega^3\bar{\omega}_\theta + 3\omega^2\omega_\theta\bar{\omega}_\theta + 3\omega\omega_\theta^2\bar{\omega}_\theta + \omega_\theta^3\bar{\omega}_\theta) \\
& + \frac{c_3}{4} \cdot (\omega^2\bar{\omega}^2 + \omega_\theta\bar{\omega}^2\omega + \omega^2\bar{\omega}_\theta\bar{\omega} + \omega_\theta\bar{\omega}_\theta\omega\bar{\omega} \\
& \quad + \omega\bar{\omega}^2\omega_\theta + \omega_\theta^2\bar{\omega}^2 + \omega\bar{\omega}_\theta\omega_\theta\bar{\omega} + \omega_\theta^2\bar{\omega}_\theta\bar{\omega} \\
& \quad + \omega^2\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta + \omega_\theta\bar{\omega}\omega\bar{\omega}_\theta + \omega^2\bar{\omega}_\theta^2 + \omega_\theta\bar{\omega}_\theta^2\omega \\
& \quad + \omega\bar{\omega}\omega_\theta\bar{\omega}_\theta + \omega_\theta^2\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta + \omega\bar{\omega}_\theta^2\omega_\theta + \omega_\theta^2\bar{\omega}_\theta^2) \\
& + \frac{a_4}{5} \cdot (\bar{\omega}^5 + 5\bar{\omega}^4\bar{\omega}_\theta + 10\bar{\omega}^3\bar{\omega}_\theta^2 + 10\bar{\omega}^2\bar{\omega}_\theta^3 + 5\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta^4 + \bar{\omega}_\theta^5) \\
& + d_4 \cdot (\omega^4\bar{\omega} + 4\omega^3\omega_\theta\bar{\omega} + 6\omega^2\omega_\theta^2\bar{\omega} + 4\omega\omega_\theta^3\bar{\omega} + \omega_\theta^4\bar{\omega} \\
& \quad + \omega^4\bar{\omega}_\theta + 4\omega^3\omega_\theta\bar{\omega}_\theta + 6\omega^2\omega_\theta^2\bar{\omega}_\theta + 4\omega\omega_\theta^3\bar{\omega}_\theta + \omega_\theta^4\bar{\omega}_\theta) \\
& + b_4 \cdot (\omega^3\bar{\omega}^2 + 3\omega^2\omega_\theta\bar{\omega}^2 + 3\omega\omega_\theta^2\bar{\omega}^2 + \omega_\theta^3\bar{\omega}^2 \\
& \quad + 2\omega^3\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta + 6\omega^2\omega_\theta\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta + 6\omega\omega_\theta^2\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta + 2\omega_\theta^3\bar{\omega}\bar{\omega}_\theta \\
& \quad + \omega^3\bar{\omega}_\theta^2 + 3\omega^2\omega_\theta\bar{\omega}_\theta^2 + 3\omega\omega_\theta^2\bar{\omega}_\theta^2 + \omega_\theta^3\bar{\omega}_\theta^2) \\
& + \dots \left. \right].
\end{aligned} \tag{A1.6}$$

Nach Einsetzen von ω und $\bar{\omega}$ sowie ω_θ und $\bar{\omega}_\theta$ und den komplexen Aberrationskoeffizienten aus Tabelle A1 ergibt sich sortiert nach Ordnungen von g und θ :

$$\begin{aligned}
\chi(\bar{g} + \bar{g}_\theta) = & 2\pi k \cdot \left[\theta \cdot D_0 \cdot \cos(\alpha_\theta + \alpha_{D0}) \right. \\
& + \theta^2 \cdot \left[\frac{A_1}{2} \cos(2\alpha_\theta - \alpha_{A1}) + \frac{C_1}{2} \right] \\
& + \theta^3 \cdot \left[\frac{A_2}{3} \cos(3\alpha_\theta - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B2}) \right] \\
& + \theta^4 \cdot \left[\frac{A_3}{4} \cos(4\alpha_\theta - \alpha_{A3}) + S_3 \cos(2\alpha_\theta + \alpha_{S3}) + \frac{C_3}{4} \right] \\
& \left. + \theta^5 \cdot \left[\frac{A_4}{5} \cos(5\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + D_4 \cos(3\alpha_\theta + \alpha_{D4}) + B_4 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B4}) \right] \right] \\
& + \left(\frac{g}{k} \right) \cdot \left\{ D_0 \cos(\alpha + \alpha_{D0}) \right. \\
& + \theta \cdot [A_1 \cos(\alpha + \alpha_\theta - \alpha_{A1}) + C_1 \cos(\alpha - \alpha_\theta)] \\
& + \theta^2 \cdot [A_2 \cos(\alpha + 2\alpha_\theta - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(\alpha - 2\alpha_\theta - \alpha_{B2}) + 2B_2 \cos(\alpha + \alpha_{B2})] \\
& + \theta^3 \cdot [A_3 \cos(\alpha + 3\alpha_\theta - \alpha_{A3}) + C_3 \cos(\alpha - \alpha_\theta) \\
& \quad + S_3 \cos(\alpha - 3\alpha_\theta - \alpha_{S3}) + 3S_3 \cos(\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{S3})] \\
& + \theta^4 \cdot [A_4 \cos(\alpha + 4\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + 2B_4 \cos(\alpha - 2\alpha_\theta - \alpha_{B4}) + 3B_4 \cos(\alpha + \alpha_{B4}) \\
& \quad + 4D_4 \cos(\alpha + 2\alpha_\theta + \alpha_{D4}) + D_4 \cos(\alpha - 4\alpha_\theta - \alpha_{D4})] \left. \right\} \\
& + \left(\frac{g}{k} \right)^2 \cdot \left\{ \frac{A_1}{2} \cos(2\alpha - \alpha_{A1}) + \frac{C_1}{2} \right. \\
& + \theta \cdot [A_2 \cos(2\alpha - \alpha_\theta - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B2}) + 2B_2 \cdot \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B2})] \\
& + \theta^2 \cdot \left[\frac{3}{2} A_3 \cos(2\alpha + 2\alpha_\theta - \alpha_{A3}) + 3S_3 \cos(2\alpha + \alpha_{S3}) \right. \\
& \quad \left. + \frac{C_3}{2} \cos(2\alpha - 2\alpha_\theta) + 3S_3 \cos(2\alpha_\theta + \alpha_{S3}) + C_3 \right] \\
& + \theta^3 \cdot [2A_4 \cos(2\alpha + 3\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + B_4 \cos(2\alpha - 3\alpha_\theta - \alpha_{B4}) + 3B_4 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B4}) \\
& \quad + 6D_4 \cos(2\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{D4}) + 6B_4 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B4}) + 4D_4 \cos(3\alpha_\theta + \alpha_{D4})] \left. \right\} \\
& + \left(\frac{g}{k} \right)^3 \cdot \left\{ \frac{A_2}{3} \cos(3\alpha - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(\alpha + \alpha_{B2}) \right. \\
& + \theta \cdot [A_3 \cos(3\alpha + \alpha_\theta - \alpha_{A3}) + S_3 \cos(3\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{S3}) \\
& \quad + 3S_3 \cos(\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{S3}) + C_3 \cos(\alpha - \alpha_\theta)] \\
& + \theta^2 \cdot [2A_4 \cos(3\alpha + 2\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + 4D_4 \cos(3\alpha + \alpha_{D4}) + B_4 \cos(3\alpha - 2\alpha_\theta + \alpha_{B4}) \\
& \quad + 6D_4 \cos(\alpha - 2\alpha_\theta - \alpha_{D4}) + 3B_4 \cos(\alpha - 2\alpha_\theta - \alpha_{B4}) + 6B_4 \cos(\alpha + i\alpha_{B4})] \left. \right\} \\
& + \left(\frac{g}{k} \right)^4 \cdot \left\{ \frac{A_3}{4} \cos(4\alpha - \alpha_{A3}) + S_3 \cos(2\alpha + \alpha_{S3}) + \frac{C_3}{4} \right. \\
& + \theta \cdot [A_4 \cos(4\alpha + \alpha_\theta - \alpha_{A4}) + 3B_4 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B4}) + 2B_4 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B4}) \\
& \quad + 4D_4 \cos(2\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{D4}) + D_4 \cos(4\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{D4})] \left. \right\} \\
& + \left(\frac{g}{k} \right)^5 \cdot \left\{ \frac{A_4}{5} \cos(5\alpha - \alpha_{A4}) + D_4 \cos(5\alpha + \alpha_{D4}) + B_4 \cos(\alpha + \alpha_{B4}) \right\} + \dots \left. \right].
\end{aligned} \tag{A1.7}$$

Der in \bar{g} symmetrische Anteil der resultierenden Wellenaberration enthält nun Anteile der antisymmetrischen Wellenaberration der ungekippten Beleuchtung. Diese Anteile verstärken sich mit größer werdenden Kippwinkeln θ .

Die Gleichung (A1.7) lässt sich auf die Form

$$\chi(\bar{g} + \bar{g}_\theta) = 2\pi k \cdot \left\{ C'_0 + D'_0 \cdot \left(\frac{g}{k} \right) + A'_1 \cdot \left(\frac{g}{k} \right)^2 + C'_1 \cdot \left(\frac{g}{k} \right)^2 + \dots \right\} \quad (\text{A1.8})$$

bringen, wobei der Teil C'_0 konstant und damit für die Wellenaberration belanglos ist. Des Weiteren finden sich die effektive Bildverschiebung

$$\begin{aligned} D'_0 = & D_0 \cos(\alpha + \alpha_{D0}) + \theta \cdot [A_1 \cos(\alpha + \alpha_\theta - \alpha_{A1}) + C_1 \cos(\alpha - \alpha_\theta)] \\ & + \theta^2 \cdot [A_2 \cos(\alpha + 2\alpha_\theta - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(\alpha - 2\alpha_\theta - \alpha_{B2}) + 2B_2 \cos(\alpha + \alpha_{B2})] \\ & + \theta^3 \cdot [A_3 \cos(\alpha + 3\alpha_\theta - \alpha_{A3}) + C_3 \cos(\alpha - \alpha_\theta) \\ & \quad + S_3 \cos(\alpha - 3\alpha_\theta - \alpha_{S3}) + 3S_3 \cos(\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{S3})] \\ & + \theta^4 \cdot [A_4 \cos(\alpha + 4\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + 2B_4 \cos(\alpha - 2\alpha_\theta - \alpha_{B4}) + 3B_4 \cos(\alpha + \alpha_{B4}) \\ & \quad + 4D_4 \cos(\alpha + 2\alpha_\theta + \alpha_{D4}) + D_4 \cos(\alpha - 4\alpha_\theta - \alpha_{D4})], \end{aligned} \quad (\text{A1.9})$$

der effektive zweizählige Astigmatismus

$$\begin{aligned} A'_1 = & \frac{A_1}{2} \cos(2\alpha - \alpha_{A1}) \\ & + \theta \cdot \left[A_2 \cos(2\alpha - \alpha_\theta - \alpha_{A2}) + B_2 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B2}) \right] \\ & + \theta^2 \cdot \left[\frac{3}{2} A_3 \cos(2\alpha + 2\alpha_\theta - \alpha_{A3}) + 3S_3 \cos(2\alpha + \alpha_{S3}) + \frac{C_3}{2} \cos(2\alpha - 2\alpha_\theta) \right] \\ & + \theta^3 \cdot \left[2A_4 \cos(2\alpha + 3\alpha_\theta - \alpha_{A4}) + B_4 \cos(2\alpha - 3\alpha_\theta - \alpha_{B4}) \right. \\ & \quad \left. + 3B_4 \cos(2\alpha - \alpha_\theta + \alpha_{B4}) + 6D_4 \cos(2\alpha + \alpha_\theta + \alpha_{D4}) \right], \end{aligned} \quad (\text{A1.10})$$

der effektive Defokus

$$\begin{aligned} C'_1 = & \frac{C_1}{2} + \theta \cdot [2B_2 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B2})] + \theta^2 \cdot [3S_3 \cos(2\alpha_\theta + \alpha_{S3}) + C_3] \\ & + \theta^3 \cdot [6B_4 \cos(\alpha_\theta + \alpha_{B4}) + 4D_4 \cos(3\alpha_\theta + \alpha_{D4})] \end{aligned} \quad (\text{A1.11})$$

und analog die effektiven Bildfehler höherer Ordnungen.

A2 Intensität mit Transmissionskrekuzkoeffizient

Die aufgezeichnete Bildintensität ergibt sich durch Mittelung über die Intensitäten aus allen Beleuchtungsrichtungen \vec{g}_{ill} mit den Defokusschwankungen z als

$$I(\vec{r}) = \iint \Psi_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}, z) \cdot \Psi_{ima}^*(\vec{r}, \vec{g}_{ill}, z) \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} dz \quad (\text{A2.1})$$

mit der normierten Verteilung der Beleuchtungsrichtungen $F(\vec{g}_{ill})$ und der normierten Fokusverteilung $H(z)$.

Die Fouriertransformierte der Intensität lautet

$$I^{FT}(\vec{g}) = \iint \left[\Psi_{ima}^{FT}(\vec{g}, \vec{g}_{ill}, z) \otimes \Psi_{ima}^{FT*}(\vec{g}, \vec{g}_{ill}, z) \right] \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz. \quad (\text{A2.2})$$

Nach Einsetzen von Objektspektrum und Aberrationsfunktion für das Bildspektrum erhält man unter Beachtung der Einflüsse von \vec{g}_{ill} und z auf die Wellenaberration χ :

$$I^{FT}(\vec{g}) = \iint \left[\left(\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \right) \otimes \left(\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \right)^* \right] \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz. \quad (\text{A2.3})$$

Nach Ausschreiben der Faltung als Integral bleibt:

$$I^{FT}(\vec{g}) = \iiint \left(\Psi_{obj}^{FT}(\vec{g} - \vec{h}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g} - \vec{h} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \right) \cdot \left(\Psi_{obj}^{FT*}(\vec{h}) \cdot e^{+i\chi(\vec{h} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \right) \cdot d\vec{h} \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz \quad (\text{A2.4})$$

und Umstellen liefert

$$I^{FT}(\vec{g}) = \int \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g} - \vec{h}) \cdot \Psi_{obj}^{FT*}(\vec{h}) \cdot \iint \cdot e^{-i\chi(\vec{g} - \vec{h} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z) + i\chi(\vec{h} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \cdot F(\vec{g}_{ill}) H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz \cdot d\vec{h} \quad (\text{A2.5})$$

mit der Vereinfachung

$$I^{FT}(\vec{g}) = \int \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g} - \vec{h}) \cdot \Psi_{obj}^{FT*}(\vec{h}) \cdot TCC(\vec{g} - \vec{h}, \vec{h}) \cdot d\vec{h}. \quad (\text{A2.6})$$

Der Transmissionskrekuzkoeffizient TCC lautet

$$TCC(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \iint \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_1 + \vec{g}_{ill}, C_1 + z) + i\chi(\vec{g}_2 + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz. \quad (\text{A2.7})$$

Eine Entwicklung von χ in eine Taylor-Serie bis zur ersten Ordnung führt zu

$$\chi(\vec{g} + \vec{g}_{ill}, C_1 + z) = \chi(\vec{g}, C_1) + \vec{g}_{ill} \cdot \nabla_{\vec{g}} \chi(\vec{g}, C_1) + z \cdot \frac{\partial \chi(\vec{g}, C_1)}{\partial C_1} + \dots \quad (\text{A2.8})$$

Unter Verwendung von (A1.3) ergibt sich für die Ableitung nach dem Defokus C_1 :

$$z \cdot \frac{\partial \chi(\vec{g}, C_1)}{\partial C_1} = z \cdot \frac{\pi}{k} \vec{g}^2. \quad (\text{A2.9})$$

Nach Einsetzen in (A2.7) und Umsortieren lassen sich die Integrationen einzeln durchführen:

$$TCC(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = \iint \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_1 + \vec{g}_{ill}, C_1 + z) + i\chi(\vec{g}_2 + \vec{g}_{ill}, C_1 + z)} \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot H(z) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot dz, \quad (\text{A2.10})$$

so dass sich für den Transmissionskoeffizienten

$$TCC(\vec{g}_1, \vec{g}_2) = e^{-i[\chi(\vec{g}_1) - \chi(\vec{g}_2)]} \cdot E_S(\vec{g}_1, \vec{g}_2) \cdot E_C(\vec{g}_1, \vec{g}_2) \quad (\text{A2.11})$$

mit

$$\begin{aligned} E_S(\vec{g}_1, \vec{g}_2) &= \int e^{-i\vec{g}_{ill}[\nabla\chi(\vec{g}_1) - \nabla\chi(\vec{g}_2)]} \cdot \frac{1}{\pi(k\theta_C)^2} \cdot e^{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}} \cdot d\vec{g}_{ill} \\ &= e^{-\left\{\frac{k\theta_C}{2}[\nabla\chi(\vec{g}_1) - \nabla\chi(\vec{g}_2)]\right\}^2} \end{aligned} \quad (\text{A2.12})$$

und

$$\begin{aligned} E_C(\vec{g}_1, \vec{g}_2) &= \int e^{-iz\frac{\pi}{k}[\vec{g}_1^2 - \vec{g}_2^2]} \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi\Delta}} e^{-\frac{z^2}{\Delta^2}} \cdot dz \\ &= e^{-\left[\frac{\pi\Delta}{2k}(\vec{g}_1^2 - \vec{g}_2^2)\right]^2} \end{aligned} \quad (\text{A2.13})$$

ergibt.

A3 Intensität in linearer Näherung

Die Intensität

$$I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = \delta(\vec{g}) + \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} \left[\delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon} + \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon} \right] \cdot TCC(\vec{g}, 0) \\ + \frac{-t_0 - i\varphi_0}{2} \left[\delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon} + \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon} \right] \cdot TCC(0, -\vec{g}) \quad (\text{A3.1})$$

lässt sich nach Einsetzen des Transmissionskoeffizienten TCC schreiben als

$$I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = \delta(\vec{g}) \\ + \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon} \cdot e^{-i[\chi(\vec{g}) - \chi(0)]} \cdot E_S(\vec{g}, 0) \cdot E_C(\vec{g}, 0) \\ + \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} \cdot \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon} \cdot e^{-i[\chi(\vec{g}) - \chi(0)]} \cdot E_S(\vec{g}, 0) \cdot E_C(\vec{g}, 0) \\ + \frac{-t_0 - i\varphi_0}{2} \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon} \cdot e^{-i[\chi(0) - \chi(-\vec{g})]} \cdot E_S(0, -\vec{g}) \cdot E_C(0, -\vec{g}) \\ + \frac{-t_0 - i\varphi_0}{2} \cdot \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon} \cdot e^{-i[\chi(0) - \chi(-\vec{g})]} \cdot E_S(0, -\vec{g}) \cdot E_C(0, -\vec{g}). \quad (\text{A3.2})$$

Mit der Zerlegung $\chi(\vec{g}) = \chi_S(\vec{g}) + \chi_A(\vec{g})$ und der Berücksichtigung der Delta-Funktionen sowie $\chi(0) = 0$ bleibt

$$I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = \delta(\vec{g}) \\ + \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} \cdot e^{+i\varepsilon} \cdot e^{-i\chi_S(+\vec{g}_0) - i\chi_A(+\vec{g}_0)} \cdot E_S(+\vec{g}_0, 0) \cdot E_C(+\vec{g}_0, 0) \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \\ + \frac{-t_0 + i\varphi_0}{2} \cdot e^{-i\varepsilon} \cdot e^{-i\chi_S(-\vec{g}_0) - i\chi_A(-\vec{g}_0)} \cdot E_S(-\vec{g}_0, 0) \cdot E_C(-\vec{g}_0, 0) \cdot \delta(\vec{g} + \vec{g}_0) \\ + \frac{-t_0 - i\varphi_0}{2} \cdot e^{+i\varepsilon} \cdot e^{+i\chi_S(+\vec{g}_0) + i\chi_A(+\vec{g}_0)} \cdot E_S(0, +\vec{g}_0) \cdot E_C(0, +\vec{g}_0) \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_0) \\ + \frac{-t_0 - i\varphi_0}{2} \cdot e^{-i\varepsilon} \cdot e^{+i\chi_S(-\vec{g}_0) + i\chi_A(-\vec{g}_0)} \cdot E_S(0, -\vec{g}_0) \cdot E_C(0, -\vec{g}_0) \cdot \delta(\vec{g} + \vec{g}_0). \quad (\text{A3.3})$$

Mit den Gegebenheiten

$$\chi_S(\vec{g}) = \chi_S(-\vec{g}) \quad \text{und} \quad \chi_A(\vec{g}) = -\chi_A(-\vec{g}), \\ E_S^{lin}(\vec{g}) = E_S(\vec{g}, 0) \approx E_S(-\vec{g}, 0) \approx E_S(0, \vec{g}) \approx E_S(0, -\vec{g}), \\ E_C^{lin}(\vec{g}) = E_C(\vec{g}, 0) = E_C(-\vec{g}, 0) = E_C(0, \vec{g}) = E_C(0, -\vec{g}), \\ +i = e^{i\frac{\pi}{2}} \quad \text{und} \quad -i = e^{-i\frac{\pi}{2}} \quad (\text{A3.4})$$

ergibt sich als Intensität nach Einsetzen und weiteren Umformungsschritten

$$\begin{aligned}
I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = & \delta(\vec{g}) + E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot \left\{ \right. \\
& -\frac{t_0}{2} \cdot e^{-i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}-\vec{g}_0) + \frac{\varphi_0}{2} \cdot e^{-i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}-\vec{g}_0) \cdot e^{i\frac{\pi}{2}} \\
& -\frac{t_0}{2} \cdot e^{-i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) + \frac{\varphi_0}{2} \cdot e^{-i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) \cdot e^{i\frac{\pi}{2}} \\
& -\frac{t_0}{2} \cdot e^{+i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}-\vec{g}_0) + \frac{\varphi_0}{2} \cdot e^{+i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}-\vec{g}_0) \cdot e^{-i\frac{\pi}{2}} \\
& \left. -\frac{t_0}{2} \cdot e^{+i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) + \frac{\varphi_0}{2} \cdot e^{+i\chi_S(\vec{g}_0)} \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) \cdot e^{-i\frac{\pi}{2}} \right\}.
\end{aligned} \tag{A3.5}$$

Durch geschicktes Ausklammern und Nutzung der Euler-Beziehung bleibt

$$\begin{aligned}
I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = & \delta(\vec{g}) \\
& -t_0 \cdot \delta(\vec{g}-\vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot \cos(\chi_S(\vec{g}_0)) \\
& + \varphi_0 \cdot \delta(\vec{g}-\vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot \sin(\chi_S(\vec{g}_0)) \\
& -t_0 \cdot \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot \cos(\chi_S(\vec{g}_0)) \\
& + \varphi_0 \cdot \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \cdot E_S^{lin}(\vec{g}_0) \cdot E_C^{lin}(\vec{g}_0) \cdot \sin(\chi_S(\vec{g}_0)).
\end{aligned} \tag{A3.6}$$

Nach Zusammenfassen der Mikroskopeinflüsse in die Transferfunktionen

$$ACTF(\vec{g}) = E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot \cos(\chi_S(\vec{g})) \tag{A3.7}$$

und

$$PCTF(\vec{g}) = E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot E_S^{lin}(\vec{g}) \cdot \sin(\chi_S(\vec{g})), \tag{A3.8}$$

lässt sich das Intensitätsspektrum vereinfacht darstellen als

$$\begin{aligned}
I_{lin}^{FT}(\vec{g}) = & \delta(\vec{g}) - ACTF(\vec{g}_0) \cdot t_0 \cdot \left[\delta(\vec{g}-\vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} + \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \right] \\
& + PCTF(\vec{g}_0) \cdot \varphi_0 \cdot \left[\delta(\vec{g}-\vec{g}_0) \cdot e^{+i\varepsilon-i\chi_A(\vec{g}_0)} + \delta(\vec{g}+\vec{g}_0) \cdot e^{-i\varepsilon+i\chi_A(\vec{g}_0)} \right].
\end{aligned} \tag{A3.9}$$

Schließlich führt die inverse Fouriertransformation zur aufgezeichneten Intensität im Ortsraum:

$$\begin{aligned}
I_{lin}(\vec{r}) = & 1 - 2 \cdot ACTF(\vec{g}_0) \cdot t_0 \cdot \cos(2\pi \vec{g}_0 \vec{r} + \varepsilon - \chi_A(\vec{g})) \\
& + 2 \cdot PCTF(\vec{g}_0) \cdot \varphi_0 \cdot \cos(2\pi \vec{g}_0 \vec{r} + \varepsilon - \chi_A(\vec{g})).
\end{aligned} \tag{A3.10}$$

A4 Intensität im Zentralband

Der Anteil der Bildwelle am Zentralband lautet unter Vernachlässigung der partiellen zeitlichen Kohärenz

$$\begin{aligned}
 I_{CB}^{ima}(\vec{r}) &= \int \Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi_{ima}^*(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \\
 &= \int \left[\left[\left\{ \left(\Psi_{obj}(\vec{r}) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}} \right) \otimes PSF^{coh} \right\} \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \right] \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \right] \otimes P\left(\frac{b}{M}\right) \\
 &\quad \cdot \left[\left[\left\{ \left(\Psi_{obj}(\vec{r}) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}} \right) \otimes PSF^{coh} \right\} \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \right] \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \right]^* \\
 &\quad \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill}
 \end{aligned} \tag{A4.1}$$

und besitzt mit der Partialwellenzerlegung der Objektwelle

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = \sum_j c_j e^{2\pi i \vec{g}_j \vec{r}} \tag{A4.2}$$

nach Fouriertransformation der rechten Seite und Berücksichtigung komplex konjugierter Terme die Gestalt

$$\begin{aligned}
 I_{CB}^{ima}(\vec{r}) &= \iint \left[\left[\left(\sum_j c_j \delta(\vec{g} - \vec{g}_j) \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_{ill}) \right) \cdot e^{-i\chi(\vec{g})} \cdot e^{i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right] \right. \\
 &\quad \left. \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \cdot e^{i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \\
 &\quad \otimes \left[\left[\left(\sum_m c_m^* \delta(\vec{g} + \vec{g}_m) \otimes \delta(\vec{g} + \vec{g}_{ill}) \right) \cdot e^{+i\chi(\vec{g})} \cdot e^{i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right] \right. \\
 &\quad \left. \otimes \delta\left(\vec{g} + \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \cdot e^{i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g} \vec{r}} d\vec{g}.
 \end{aligned} \tag{A4.3}$$

Durch Umformen erhält man

$$\begin{aligned}
 I_{CB}^{ima}(\vec{r}) &= \iint \left[\sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) - i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}}{k}\right)^2} \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right] \\
 &\quad \otimes \left[\sum_m c_m^* \cdot e^{+i\chi(-\vec{g}_m - \vec{g}_{ill}) + i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{-\vec{g}_m - \vec{g}_{ill}}{k}\right)^2} \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_m + \vec{g}_{ill} + \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{-i2\pi k \frac{b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right] \\
 &\quad \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g} \vec{r}} d\vec{g}
 \end{aligned} \tag{A4.4}$$

und

$$\begin{aligned}
I_{CB}^{ima}(\vec{r}) = & \iint \left[\sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) - i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + \vec{g}_{ill})^2 + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + \vec{g}_{ill} + \frac{\vec{g}_c}{2})^2} \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \\
& \otimes \left[\sum_m c_m^* \cdot e^{+i\chi(-\vec{g}_m - \vec{g}_{ill}) + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_m + \vec{g}_{ill})^2 - i\pi \frac{b}{kM} (-\vec{g}_m - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_c}{2})^2} \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_m + \vec{g}_{ill} + \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \\
& \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g}.
\end{aligned} \tag{A4.5}$$

Nach Ausmultiplizieren der Exponenten und Zusammenfassen bleibt

$$\begin{aligned}
I_{CB}^{ima}(\vec{r}) = & \iint \left[\sum_j c_j e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) + i\pi \frac{b}{kM} \left(\frac{\vec{g}_c^2}{4} + [\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}] \vec{g}_c\right)} \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \\
& \otimes \left[\sum_m c_m^* e^{+i\chi(-\vec{g}_m - \vec{g}_{ill}) - i\pi \frac{b}{kM} \left(\frac{\vec{g}_c^2}{4} + [\vec{g}_m + \vec{g}_{ill}] \vec{g}_c\right)} \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_m + \vec{g}_{ill} + \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \\
& \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g}
\end{aligned} \tag{A4.6}$$

und durch geschicktes Zerlegen und Entfaltung der Delta-Funktionen findet man nach dem Sortieren der einzelnen Beiträge

$$\begin{aligned}
I_{CB}^{ima}(\vec{r}) = & \iint \left[\sum_j c_j e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill})} \cdot e^{i\pi \frac{b}{kM} ([\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}] \vec{g}_c)} \cdot e^{i\pi \frac{b}{kM} \frac{\vec{g}_c^2}{4}} \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill}\right) \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \\
& \otimes \left[\sum_m c_m^* e^{i\chi(\vec{g}_m + \vec{g}_{ill})} \cdot e^{-i\pi \frac{b}{kM} ([\vec{g}_m + \vec{g}_{ill}] \vec{g}_c)} \cdot e^{-i\pi \frac{b}{kM} \frac{\vec{g}_c^2}{4}} \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_m + \vec{g}_{ill}\right) \otimes \delta\left(\vec{g} + \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right] \\
& \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g}
\end{aligned} \tag{A4.7}$$

und

$$\begin{aligned}
I_{CB}^{ima}(\vec{r}) = & \iint \left[\left\{ \sum_j c_j e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill})} \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill}\right) \right\} \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g} \vec{g}_c)} \right] \\
& \otimes \left[\left\{ \sum_m c_m^* e^{i\chi(\vec{g}_m + \vec{g}_{ill})} \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_m + \vec{g}_{ill}\right) \right\} \otimes \delta\left(\vec{g} + \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{-i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g} \vec{g}_c)} \right] \\
& \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g}.
\end{aligned} \tag{A4.8}$$

Dies lässt sich unter Berücksichtigung der komplex konjugierten Terme schreiben als

$$\begin{aligned}
 I_{CB}^{ima}(\vec{r}) = & \int \int \left[\left\{ \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}, \vec{g}_{ill}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g})} \right\} \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{2\pi i \frac{b}{M} \frac{\vec{g}_c}{2} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)} \right] \\
 & \otimes \left[\left\{ \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}, \vec{g}_{ill}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g})} \right\} \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{2\pi i \frac{b}{M} \frac{\vec{g}_c}{2} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)} \right]^* \\
 & \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g}
 \end{aligned} \tag{A4.9}$$

und ergibt nach Ausführen der inversen Fouriertransformation mit

$$\begin{aligned}
 I_{CB}^{ima}(\mathbf{r}) = & \int \left[\left\{ \Psi_{obj}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \otimes PSF(\vec{r}) \right\} \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \otimes \delta\left(\vec{r} - \frac{\vec{g}_c}{k} \frac{b}{2M}\right) \right] \\
 & \cdot \left[\left\{ \Psi_{obj}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \otimes PSF(\vec{r}) \right\} \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \otimes \delta\left(\vec{r} - \frac{\vec{g}_c}{k} \frac{b}{2M}\right) \right]^* \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill}
 \end{aligned} \tag{A4.10}$$

die konventionelle Intensität einer gekippten Bildwelle mit einer zusätzlichen Verschiebung im Ortsraum:

$$\begin{aligned}
 I_{CB}^{ima}(\mathbf{r}) = & \int \left[\Psi_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \otimes \delta(\vec{r} + \vec{r}_D) \right] \\
 & \cdot \left[\Psi_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \otimes \delta(\vec{r} + \vec{r}_D) \right]^* \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill}.
 \end{aligned} \tag{A4.11}$$

Analog wird die Intensität der Referenzwelle mit der entgegengesetzten Ablenkung am Biprisma behandelt:

$$\begin{aligned}
 I_{ref}^{ima}(\mathbf{r}) = & \int \left[\Psi_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot e^{-2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \otimes \delta(\vec{r} - \vec{r}_D) \right] \\
 & \cdot \left[\Psi_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot e^{-2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \otimes \delta(\vec{r} - \vec{r}_D) \right]^* \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill}.
 \end{aligned} \tag{A4.12}$$

Mit der leeren Referenzwelle $\Psi_{ref} = A_0$ vereinfacht sich dieser Intensitätsanteil zu

$$I_{ref}^{ima}(\mathbf{r}) = A_0^2. \tag{A4.13}$$

A5 Intensität im Seitenband

Die Seitenbandintensität¹

$$\begin{aligned}
 I_{SB}(\vec{r}) &= \int \Psi'_{ima}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot \Psi'^*_{ref}(\vec{r}, \vec{g}_{ill}) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} + cc \\
 &= \int \left[\left\{ \left[\left(\Psi_{obj}(\vec{r}) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}} \right) \otimes PSF^{coh} \right] \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \right\} \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \right\} \otimes P\left(\frac{b}{M}\right) \right] \\
 &\quad \cdot \left[\left\{ \left[\left(A_0 \cdot \delta(\vec{g}) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_{ill} \vec{r}} \right) \otimes PSF^{coh} \right] \otimes P\left(-\frac{b}{M}\right) \right\} \cdot e^{-2\pi i \frac{\vec{g}_c}{2} \vec{r}} \right\} \otimes P\left(\frac{b}{M}\right) \right]^* \\
 &\quad \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} + cc
 \end{aligned} \tag{A5.1}$$

erhält nach Partialwellenzerlegung der Objektwelle und Fouriertransformation der rechten Seite sowie Berücksichtigung komplex konjugierter Terme die Gestalt

$$\begin{aligned}
 I_{SB}(\vec{r}) &= \iint \left[\left\{ \left(\sum_j c_j \delta(\vec{g} - \vec{g}_j) \right) \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_{ill}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g})} e^{i2\pi k \frac{-b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right\} \right. \\
 &\quad \left. \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{i2\pi k \frac{+b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right] \\
 &\quad \otimes \left[\left\{ \left(A_0 \cdot \delta(\vec{g}) \right) \otimes \delta(\vec{g} + \vec{g}_{ill}) \cdot e^{+i\chi(\vec{g})} e^{i2\pi k \frac{+b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right\} \right. \\
 &\quad \left. \otimes \delta\left(\vec{g} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \cdot e^{i2\pi k \frac{-b}{2M} \left(\frac{\vec{g}}{k}\right)^2} \right] \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g} \vec{r}} d\vec{g} + cc.
 \end{aligned} \tag{A5.2}$$

Durch Zusammenfassen gelangt man zu

$$\begin{aligned}
 I_{SB}(\vec{r}) &= \iint \left[\left\{ \left(\sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) - i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + \vec{g}_{ill})^2} \right) \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right\} \cdot e^{i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g})^2} \right] \\
 &\quad \otimes \left[\left\{ \left(A_0 \cdot e^{+i\chi(\vec{g}_{ill}) + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_{ill})^2} \right) \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_c}{2}\right) \right\} \cdot e^{-i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g})^2} \right] \\
 &\quad \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g} \vec{r}} d\vec{g} + cc.
 \end{aligned} \tag{A5.3}$$

¹ Es wird der Anteil des Seitenband+1 ausführlich beschrieben, der analog zu behandelnde komplex konjugierte Anteil wird durchweg mit cc abgekürzt.

Unter Vernachlässigung der Bildfehlerinflüsse für die leere Referenzzelle folgt nach weiterer Umformung

$$\begin{aligned}
I_{SB}(\vec{r}) = & \iint \left[\left(\sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) - i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + \vec{g}_{ill})^2} \cdot e^{i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + \vec{g}_{ill} + \frac{\vec{g}_C}{2})^2} \right) \cdot \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_C}{2}\right) \right] \\
& \otimes \left[\left(A_0 \cdot e^{i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_{ill})^2} \cdot e^{-i\pi \frac{b}{kM} (-\vec{g}_{ill} + \frac{\vec{g}_C}{2})^2} \right) \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_C}{2}\right) \right] \\
& \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc.
\end{aligned} \tag{A5.4}$$

Das Ausmultiplizieren der Exponenten liefert

$$\begin{aligned}
I_{SB}(\vec{r}) = & \iint \left[\left(\sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j \vec{g}_C + \vec{g}_{ill} \vec{g}_C + \frac{\vec{g}_C^2}{4})} \right) \cdot \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_C}{2}\right) \right] \\
& \otimes \left[\left(A_0 \cdot e^{-i\pi \frac{b}{kM} (-\vec{g}_{ill} \vec{g}_C + \frac{\vec{g}_C^2}{4})} \right) \delta\left(\vec{g} + \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_C}{2}\right) \right] \\
& \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc.
\end{aligned} \tag{A5.5}$$

Nach Durchführung der Faltung erhält man

$$\begin{aligned}
I_{SB}(\vec{r}) = & \iint \left[A_0 \cdot \sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j \vec{g}_C + \vec{g}_{ill} \vec{g}_C + \frac{\vec{g}_C^2}{4}) - i\pi \frac{b}{kM} (-\vec{g}_{ill} \vec{g}_C + \frac{\vec{g}_C^2}{4})} \right] \\
& \cdot \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_C\right) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc
\end{aligned} \tag{A5.6}$$

und durch Vereinfachen verbleibt

$$\begin{aligned}
I_{SB}(\vec{r}) = & \iint \left[A_0 \cdot \sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j + \vec{g}_{ill}) + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + 2\vec{g}_{ill}) \vec{g}_C} \right] \\
& \cdot \delta\left(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_C\right) \cdot F(\vec{g}_{ill}) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc.
\end{aligned} \tag{A5.7}$$

Die Taylorentwicklung in $\chi(\vec{g})$

$$\chi(\vec{g} + \vec{g}_{ill}) = \chi(\vec{g}) + \vec{g}_{ill} \cdot \nabla \chi(\vec{g}) + \dots \tag{A5.8}$$

und das Einsetzen der Winkelverteilung

$$F(\vec{g}_{ill}) = \frac{1}{\pi \cdot (k\theta_C)^2} \cdot e^{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}} \tag{A5.9}$$

liefern

$$I_{SB}(\vec{r}) = \frac{A_0}{\pi \cdot (k\theta_C)^2} \iint \left[\sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j) + i\vec{g}_{ill} \nabla \chi(\vec{g}_j) + i\pi \frac{b}{kM} (\vec{g}_j + 2\vec{g}_{ill}) \vec{g}_C} \cdot e^{-\frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}} \right] \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_C) \cdot d\vec{g}_{ill} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc. \quad (A5.10)$$

Es sei hier darauf hingewiesen, dass die durch \vec{g}_{ill} induzierte zusätzliche Lateralphase aus zwei Teilen besteht: dem Gradienten der Wellenaberration und dem Defokuseffekt des Biprismas. Dass diese beiden Anteile einander verstärken oder abschwächen können wird auf den Kontrast der Interferenzanteile großen Einfluss nehmen.

Nach Integration über \vec{g}_{ill} (2-dimensional) in

$$I_{SB}(\vec{r}) = \frac{A_0}{\pi \cdot (k\theta_C)^2} \int \sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j) + i\pi \frac{b}{kM} \vec{g}_j \vec{g}_C} \left[\int e^{i(\nabla \chi(\vec{g}_j) + \pi \frac{b}{kM} 2\vec{g}_C) \vec{g}_{ill} - \frac{\vec{g}_{ill}^2}{(k\theta_C)^2}} \cdot d\vec{g}_{ill} \right] \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_C) \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc \quad (A5.11)$$

ergibt sich mittels Mathematica [WOLFRAM (2003)]:

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \int \sum_j c_j \cdot e^{-i\chi(\vec{g}_j) + i\pi \frac{b}{kM} \vec{g}_j \vec{g}_C} \cdot e^{-\left[\frac{k}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g}_j) - \pi \vec{g}_C \frac{b}{M}\right]^2 \theta_C^2} \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_j - \vec{g}_C) \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc. \quad (A5.12)$$

Nach Zerlegung der Delta-Funktionen und Sortieren der Terme verbleibt

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \int \sum_j c_j \cdot \delta(\vec{g} - \vec{g}_j) \cdot e^{-i\chi(\vec{g})} \cdot e^{-\left[\frac{k}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g}) - \pi \vec{g}_C \frac{b}{M}\right]^2 \theta_C^2} \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_C) \cdot e^{+i\pi \frac{b}{kM} \vec{g}_C \vec{g}} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc, \quad (A5.13)$$

was sich schließlich als

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \int \Psi_{obj}^{FT}(\vec{g}) \cdot e^{-i\chi(\vec{g})} \cdot e^{-\left[\frac{k}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g}) - \pi \vec{g}_C \frac{b}{M}\right]^2 \theta_C^2} \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_C) \cdot e^{2\pi i \frac{\vec{g}_C}{k} \frac{b}{2M} \vec{g}} \cdot e^{2\pi i \vec{g}\vec{r}} d\vec{g} + cc \quad (A5.14)$$

darstellen lässt.

Nach Ausführung der inversen Fouriertransformation

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \cdot \Psi_{obj}(\vec{r}) \otimes PSF(\vec{r}) \otimes psf_{sc}(\vec{r}) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_c \vec{r}} \otimes \delta\left(\vec{r} + \frac{\vec{g}_c}{k} \frac{b}{2M}\right) + cc \quad (A5.15)$$

mit

$$psf_{sc}(\vec{r}) = \mathbf{FT}^{-1} \left[e^{-\left[\frac{k}{\sqrt{2}} \nabla \chi(\vec{g}) - \pi \vec{g}_c \frac{b}{M} \right]^2 \theta_c^2} \right] \quad (A5.16)$$

erhält man letztlich

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \cdot \Psi_{ima}(\vec{r}) \otimes psf_{sc}(\vec{r}) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_c \vec{r}} \otimes \delta\left(\vec{r} + \frac{\vec{g}_c}{k} \frac{b}{2M}\right) + cc. \quad (A5.17)$$

Durch Ausschreiben der Welle in Amplitude und Phase und die Berücksichtigung der komplex konjugierten Terme resultiert der Intensitätsanteil

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \cdot \left[\left(A(\vec{r}) \cdot e^{i\Phi(\vec{r})} \right) \otimes \delta(\vec{r} + \vec{r}_D) \cdot e^{2\pi i \vec{g}_c \vec{r}} \right. \\ \left. + \left(A(\vec{r}) \cdot e^{-i\Phi(\vec{r})} \right) \otimes \delta(\vec{r} + \vec{r}_D) \cdot e^{-2\pi i \vec{g}_c \vec{r}} \right] \otimes psf_{sc}(\vec{r}) \quad (A5.18)$$

mit der Bildverschiebung $\vec{r}_D = -\frac{b}{2M} \frac{\vec{g}_c}{k}$.

Durch weiteres Umformen gelangt man über

$$I_{SB}(\vec{r}) = A_0 \cdot \left[A(\vec{r} + \vec{r}_D) \cdot e^{i\Phi(\vec{r} + \vec{r}_D)} \cdot e^{2\pi i \vec{g}_c \vec{r}} \right. \\ \left. + A(\vec{r} + \vec{r}_D) \cdot e^{-i\Phi(\vec{r} + \vec{r}_D)} \cdot e^{-2\pi i \vec{g}_c \vec{r}} \right] \otimes psf_{sc}(\vec{r}) \quad (A5.19)$$

zur Intensität der kosinusförmigen Streifen

$$I_{SB}(\vec{r}) = 2A_0 \cdot A(\vec{r} + \vec{r}_D) \cdot \cos[2\pi \vec{g}_c \vec{r} + \Phi(\vec{r} + \vec{r}_D)] \otimes psf_{sc}(\vec{r}), \quad (A5.20)$$

die durch die Dämpfungsfunktion $psf_{sc}(\vec{r})$ verschmiert wird.

A6 Rauschen im Fourierraum: Rayleigh-Verteilung

Unkorreliertes Rauschen (reell oder komplex) mit endlicher Varianz genügt im Fourierraum näherungsweise Normalverteilungen im Real- und Imaginärteil der komplexen Fouriertransformierten. Es ist an dieser Stelle nicht möglich (und nicht notwendig) einen Beweis zu führen. Da sowohl die Simulationen von Rauschen unterschiedlicher Verteilungsfunktionen als auch verrauschte experimentelle Leerintensitäten (vgl. Abbildung A6.1) stets den oben beschriebenen Zusammenhang erfüllen, wird dies als empirischer Zusammenhang akzeptiert.

Sind die Schwankungen in Real- und Imaginärteil einer komplexen Zahl statistisch unabhängig, so genügt der Betrag der komplexen Zahl, hier die Fourieramplitude

$$A(\Psi^{FT}) = \sqrt{\Re e^2(\Psi^{FT}) + \Im m^2(\Psi^{FT})}, \quad (\text{A6.1})$$

einer Rayleigh-Verteilung¹ (vgl. Abbildung A6.1):

$$P(A) = \frac{A}{\sigma_A^2} \cdot e^{-\frac{A^2}{2\sigma_A^2}}. \quad (\text{A6.2})$$

Der Parameter σ_A charakterisiert das Maximum der Verteilung und ist über die Beziehung

$$\sigma_A^2 = \frac{\pi}{2} \cdot (\sigma_{\text{Re}}^2 + \sigma_{\text{Im}}^2) \quad (\text{A6.3})$$

mit den Varianzen σ_{Re}^2 und σ_{Im}^2 der Normalverteilungen von Real- und Imaginärteil verknüpft. Der Erwartungswert der Verteilung lautet

$$\langle P(A) \rangle = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \cdot \sigma_A. \quad (\text{A6.4})$$

¹ Die Erweiterung in eine dritte Dimension führt zur Maxwell-Boltzmann-Verteilung. (Beispiel: Das ideale Gas mit drei unabhängigen normalverteilten Geschwindigkeitskomponenten erfüllt im Betrag des Geschwindigkeitsvektors eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung.)

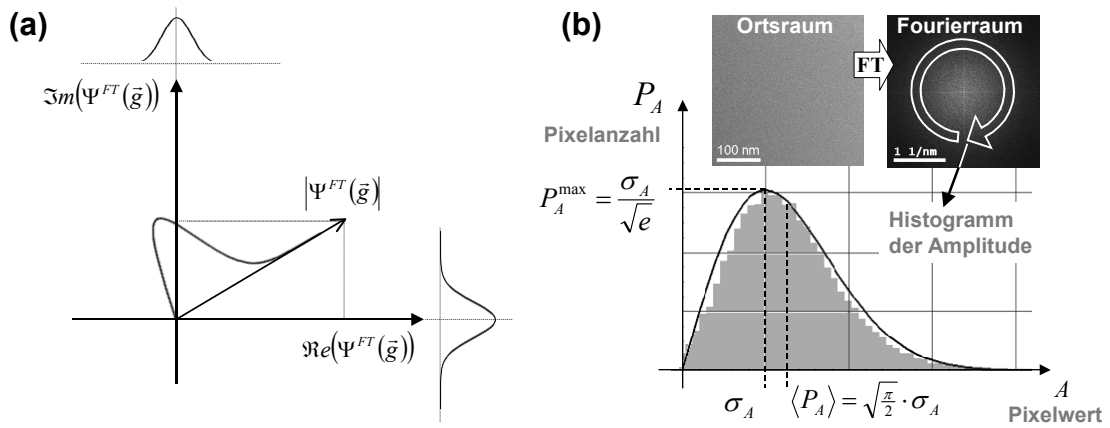


Abbildung A6.1 – Rayleigh-Verteilung: (a) In der komplexen Zahlenebene sind Real- und Imaginärteil unabhängig voneinander normal verteilt. Die resultierende Amplitude der komplexen Zahl folgt einer Rayleigh-Verteilung. (b) Die Amplitude des Spektrums einer experimentellen Intensitätsaufnahme zeigt im Histogramm über einen festen Frequenzbetrag $|\vec{g}|$ die Statistik einer Rayleigh-Verteilung. Der Schwerpunkt der Verteilung $\langle P_A \rangle$ und der wahrscheinlichste Wert $A = \sigma_A$ sind gekennzeichnet.

A7 Geometrische Phasenanalyse

In einem Objekt wird eine einfallende ebene Elektronenwelle gebeugt. Ist das Objekt ein periodisches Gitter, treten nur in bestimmten Richtungen Beugungswellen auf; dies sind die Winkel, für die die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Bei einer Änderung der Gitterperiodizität ändert sich lokal die Bragg-Bedingung und damit der Beugungswinkel und die Phase der abgebeugten Welle (vgl. Abbildung A7.1 a & b). Dies macht sich die geometrische Phasenanalyse zunutze [HÿTCH (1998)].

Die vom Objekt modulierte Welle Ψ_{obj} lässt sich zerlegen in:

$$\Psi_{obj}(\vec{r}) = \sum_i \Psi_{\vec{g}_i}(\vec{r}) \cdot \exp\{2\pi i \vec{g}_i \cdot \vec{r}\}. \quad (\text{A7.1})$$

Dabei repräsentieren die ebenen Wellen in die Richtungen \vec{g}_i die Bragg-Wellen der Beugung am periodischen Gitter. Die ortsabhängigen komplexen Koeffizienten

$$\Psi_{\vec{g}_i}(\vec{r}) = A_{\vec{g}_i}(\vec{r}) \cdot \exp\{i \Phi_{\vec{g}_i}(\vec{r})\} \quad (\text{A7.2})$$

beinhalten dagegen die lokale Variation der Amplitude, d.h. des jeweiligen Netzebenenkontrasts, und der so genannten geometrischen Phase, d.h. der jeweiligen Netzebenenposition, innerhalb einer Bragg-Welle.

Ein Zugang zur geometrischen Phase besteht in der Einzelreflexrekonstruktion: In der Fouriertransformierten der Objektwelle

$$\Psi_{obj}^{FT}(\vec{r}) = \sum_i FT[\Psi_{\vec{g}_i}(\vec{r})] \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_i) \quad (\text{A7.3})$$

sind die Fouriertransformierten der komplexen Koeffizienten um die Bragg-Reflexe gefaltet und lassen sich numerisch durch Zentrieren und Anwendung einer Blende ausschneiden und rekonstruieren. Die inverse Fouriertransformation führt zum komplexen Anregungsfaktor im Ortsraum:

$$\Psi_{\vec{g}_i}(\vec{r}) = FT^{-1} \left[\sum_i FT[\Psi_{\vec{g}_i}(\vec{r})] \otimes \delta(\vec{g} - \vec{g}_i) \right] = A_{\vec{g}_i}(\vec{r}) \cdot \exp\{i \Phi_{\vec{g}_i}(\vec{r})\}. \quad (\text{A7.4})$$

Eine subpixelgenaue Zentrierung um die Frequenz \vec{g}_i ist durch Addition eines kleinen Phasenkeils im Ortsraum möglich (vgl. Abbildung A7.1 e). Dies erlaubt es, die geometrische Phase im Ortsraum auf einen bestimmten Referenzbereich zu beziehen. Dazu wird der Offset der geometrischen Phase bezüglich des gewählten Bereiches auf Null gesetzt.

Die geometrische Phase kann auf zweierlei Wegen ausgewertet werden, um die sich ändernde Gitterperiodizität zu analysieren: Einerseits lässt sich die lokale Abweichung $\Delta\vec{g}(\vec{r})$ der reziproken Gittervektoren ermitteln, andererseits kann man das Verschiebungsfeld $\vec{u}(\vec{r})$ ermitteln, um die die Atompositionen gegenüber einer festen

Gitterkonstante verschoben sind. Letztlich sind beide Verfahren gleichwertig und liefern das Ergebnis entsprechend für $\Delta\vec{g}(\vec{r})$ im reziproken Raum und für $\vec{u}(\vec{r})$ im Ortsraum. Die lokale Abweichung der Gittervektoren $\Delta\vec{g}(\vec{r})$ lässt sich direkt aus dem Gradienten der geometrischen Phase ermitteln:

$$\Phi_{\vec{g}_i}(\vec{r}) = 2\pi \Delta\vec{g}(\vec{r}) \cdot \vec{r} \Rightarrow \Delta\vec{g}(\vec{r}) = \frac{\nabla\Phi_{\vec{g}_i}(\vec{r})}{2\pi}. \quad (\text{A7.5})$$

In einem Verschiebungsfeld (displacement fields) sind die Netzebenen der Frequenz \vec{g}_i von der Position \vec{r} nach $\vec{r} - \vec{u}(\vec{r})$ verschoben. Die geometrische Phase lautet damit

$$\Phi_{\vec{g}_i}(\vec{r}) = -2\pi \vec{g}_i \cdot \vec{u}(\vec{r}). \quad (\text{A7.6})$$

Diese Phase beinhaltet jedoch nur den Teil des Verschiebungsfeldes in Richtung des reziproken Gittervektors \vec{g}_i , so dass zur Ermittlung eines zweidimensionalen Verschiebungsfeldes die geometrischen Phasen zweier linear unabhängiger Vektoren \vec{g}_1 und \vec{g}_2 zu rekonstruieren sind:

$$\Phi_{\vec{g}_1}(\vec{r}) = -2\pi \vec{g}_1 \cdot \vec{u}(\vec{r}) = -2\pi [g_{1x} \cdot u_x(\vec{r}) + g_{1y} \cdot u_y(\vec{r})] \quad (\text{A7.7})$$

und

$$\Phi_{\vec{g}_2}(\vec{r}) = -2\pi \vec{g}_2 \cdot \vec{u}(\vec{r}) = -2\pi [g_{2x} \cdot u_x(\vec{r}) + g_{2y} \cdot u_y(\vec{r})]. \quad (\text{A7.8})$$

Die Lösung dieses linearen Gleichungssystems führt zu den Komponenten des Verschiebungsfelds $\vec{u}(\vec{r})$ ¹:

$$u_x(\vec{r}) = \frac{\Phi_{\vec{g}_1}}{2\pi} \cdot \frac{g_{2y}}{g_{1y} \cdot g_{2x} - g_{1x} \cdot g_{2y}} + \frac{\Phi_{\vec{g}_2}}{2\pi} \cdot \frac{g_{1y}}{g_{1x} \cdot g_{2y} - g_{1y} \cdot g_{2x}} \quad (\text{A7.9})$$

und

$$u_y(\vec{r}) = \frac{\Phi_{\vec{g}_1}}{2\pi} \cdot \frac{g_{2x}}{g_{1x} \cdot g_{2y} - g_{1y} \cdot g_{2x}} + \frac{\Phi_{\vec{g}_2}}{2\pi} \cdot \frac{g_{1x}}{g_{1y} \cdot g_{2x} - g_{1x} \cdot g_{2y}}. \quad (\text{A7.10})$$

Schlussendlich erlaubt die Ableitung nach x bzw. y eine Bestimmung der Strain-Komponenten in in x -Richtung

$$\varepsilon_{xx}(\vec{r}) = \frac{\partial u_x(\vec{r})}{\partial x}, \quad (\text{A7.11})$$

in y -Richtung

$$\varepsilon_{yy}(\vec{r}) = \frac{\partial u_y(\vec{r})}{\partial y} \quad (\text{A7.12})$$

¹ Das hier verwendete x-y-Koordinatensystem liegt der Bildbearbeitungsplattform DigitalMicrograph [GATAN (2006)] zugrunde: x-Achse von links nach rechts, y-Achse von „oben“ nach „unten“.

und der Netzebenenrotation¹

$$\omega_{xy}(\vec{r}) = -\frac{1}{2} \left\{ \frac{\partial u_x(\vec{r})}{\partial y} + \frac{\partial u_y(\vec{r})}{\partial x} \right\}. \quad (\text{A7.13})$$

Als sehr wichtig erweist sich die Wahl des Referenzbereichs zur Feinkippung der geometrischen Phase. Ungeachtet der Kalibrierung der Pixelgröße der aufgezeichneten Welle oder einer Verkippung der Gesamtwelle kann dem Referenzbereich ein ganz bestimmter reziproker Gittervektor \vec{g} zugewiesen werden. Dies hat den Vorteil, dass die Ergebnisse der Abweichungen vom Gittervektor bzw. die berechneten Verschiebungsfelder unabhängig von einem Kalibrierungsfehler oder einer ungenügenden Zentrierung der Welle im Fourierraum sind. Als Referenzbereich wird zumeist ein Bildausschnitt gewählt, in dem eine bekannte Gitterkonstante vorliegt, wie z.B. ein Substrat.

Die Auswertung der geometrischen Phase zur Bestimmung von Displacement und Strain-Maps wurde im Rahmen dieser Arbeit in einem DigitalMicrograph-Programm benutzerfreundlich umgesetzt.

Abbildung A7.1 illustriert das Verfahren der geometrischen Phasenanalyse für den eindimensionalen Fall am Beispiel eines Gitters mit variierenden Gitterabständen.

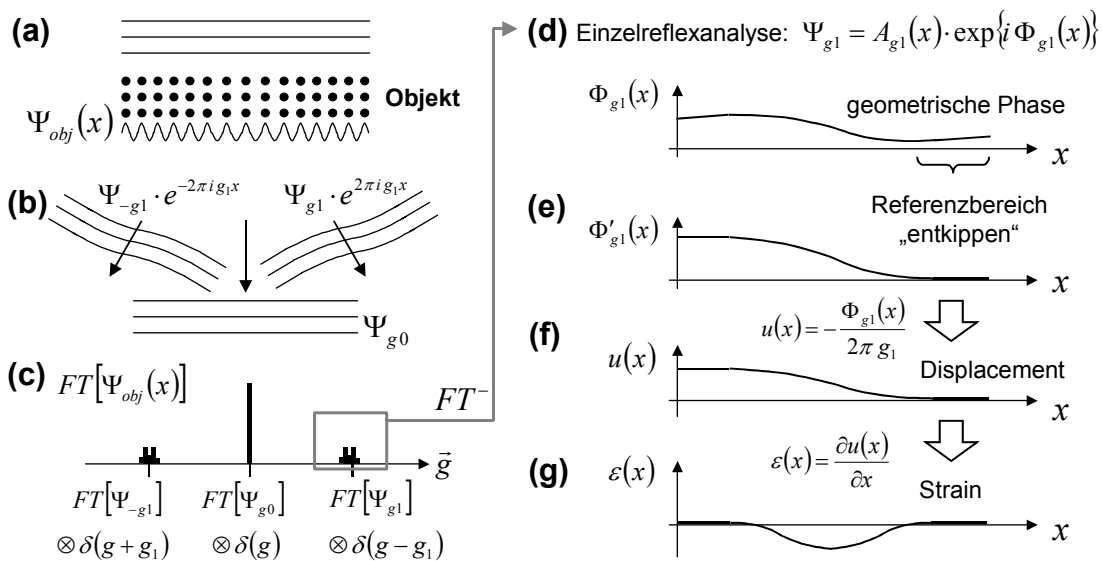


Abbildung A7.1 – Geometrische Phasenanalyse und Strain-Mapping: (a) Ein Objekt mit variierenden Gitterabständen moduliert eine einfallende Elektronenwelle. (b) Der Winkel einer abgebeugten Partialwelle ändert sich mit der Gitterkonstanten; dies moduliert die Phase der abgebeugten Welle. (c) Die Fouriertransformation erlaubt die Trennung der Partialwellen, so dass sie einzeln rekonstruiert werden können (d). Die Feinkippung der geometrischen Phase (e) entspricht der subpixel genauen Zentrierung der Partialwelle im Fourierraum in Bezug auf einen Referenzbereich des Ortsraumes. Aus der geometrischen Phase kann beispielsweise das Verschiebungsfeld (f) bestimmt werden. Durch partielle Ableitung lässt sich daraus der Strain ermitteln (g).

¹ Der Winkel der Netzebenenrotation verläuft trotz des Koordinatensystems entgegen dem Uhrzeigersinn.

Literaturverzeichnis

ALBINA (2007)

J.-M. Albina, M. Mrovec, B. Meyer, C. Elsässer:
Structure, stability and electronic properties of SrTiO₃/LaAlO₃ and SrTiO₃/SrRuO₃ interfaces.
Physical Review **B 76** (2007), 165103.

BETHE (1928)

H.A. Bethe:
Theorie der Beugung von Elektronen an Kristallen.
Annalen der Physik **87** (1928), 55, Leipzig.

BORN (1993)

M. Born, E. Wolf:
Principles of Optics (Sixth Edition),
Pergamon Press (1993), Oxford, ISBN 0-08-026482-4.

BUSCH (1926)

Hans Busch:
Calculation of the Path of an Electron Beam in an Axial Symmetrical Electromagnetic Field.
Annalen der Physik **81** (1926), 974.

CANNON (1977)

T.M. Cannon:
Digital Image Deblurring by Nonlinear Homomorphic Filtering.
PhD Thesis, Computer Science Department, University of Utah,
Salt Lake City, UT, 1977.

COWLEY (1957)

J.M. Cowley, A.F. Moodie:
*The Scattering of Electrons by Atoms and Crystals:
I. A New Theoretical Approach.*
Acta Cryst. **10** (1957), 609-619.

DENES (2007)

P. Denes, J.-M. Bussat, Z. Lee, V. Radmilovic:
Active Pixel Sensors for electron microscopy.
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A 579** (2007), 891-894.

DENES (2009)

P. Denes on behalf the TEAM collaboration:
The TEAM Project.
Proc. MC2009, Vol. **1**: Instrumentation and Methodology, Verlag der TU Graz 2009, 3-8.
DOI 10.3217/978-3-85125-062-6-002.
<http://ncem.lbl.gov/TEAM-project/index.html>

DE RUIJTER (1995)

W.J. de Ruijter:
Imaging Properties and Applications of Slow-Scan Charge-Coupled Device Cameras Suitable for Electron Microscopy.
Micron Vol. **26**, No. 3 (1995), 247-275.

DÜKER (1955)

H. Düker:
Lichtstarke Interferenzen mit einem Biprisma für Elektronenwellen.
Zeitschrift für Naturforschung **10a**, Heft 3 (1955), 256.

DUNIN-BORKOWSKI (2004)

R. Dunin-Borkowski, T. Kasama, A. Wei, S.L. Tripp, M.J. Hytch, E. Snoeck, R.J. Harrison, A. Putnis:
Off-Axis Electron Holography of Magnetic Nanowires and Chains, Rings and Planar Arrays of Magnetic Nanoparticles.
Microscopy Research and Technique **64** (2004), 390-402.

FEYNMAN (1959)

R.P. Feynman:
There's Plenty of Room at the Bottom.
Meeting of the American Physical Society, California Institute of Technology,
Pasadena/California, USA, 29.12.1959.

FRANKE (1988)

F.J. Franke, K.-H. Herrmann, H. Lichte:
Numerical reconstruction of the electron object wave from an electron hologram including the correction of aberrations.
Scanning Microscopy Supplement **2** (1988), 59-67.

FREITAG (2008)

B. Freitag, G. Knippels, S. Kujawa, P.C. Tiemeijer, M. Van der Stam, D. Hubert, C. Kisielowski, P. Denes, A. Minor, U. Dahmen:
First performance measurements and application results of a new high brightness Schottky emitter for HR-S/TEM at 80-300 kV acceleration voltage.
Proceedings EMC2008 Aachen, Vol. **1**: Instrumentation and Methods, pp. 55-56, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2008.

GABOR (1948)

D. Gabor:
A new microscopic principle.
Nature **161**, No. **4098** (1948), 777-778.

GABOR (1949)

D. Gabor:
Microscopy by reconstructed wave-fronts.
Proc. Roy. Soc. **A197** (1949), 454-487.

GAJDARDZISKA-JOSIFOVSKA (1993)

M. Gajdardziska-Josifovska, M.R. McCartney, W.J. de Ruijter, D.J. Smith, J.K. Weiss, J.M. Zuo:
Accurate measurements of mean inner potential of crystal wedges using digital electron holograms.
Ultramicroscopy **50** (1993), 285-299.

GATAN (2006)

Gatan Software Team:
DigitalMicrograph 3.11.0. for GMS 1.6.0.
Gatan Inc. (2006), <http://www.gatan.com>.

GEIGER (2008A)

D. Geiger, H. Lichte, M. Linck, M. Lehmann:
Electron Holography with Cs-corrected Transmission Electron Microscope.
Microscopy and Microanalysis **14** (2008), 68-81.

GEIGER (2008B)

D. Geiger, A. Rother, M. Linck, H. Lichte, M. Lehmann, M. Haider, B. Freitag:
Electron Holography with Cs-corrected Tecnai F20 – elimination of the incoherent damping introduced by the byprism in conventional electron microscopes.
Proceedings EMC2008 Aachen, Vol. **1**: Instrumentation and Methods, pp. 255-256, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2008.

GLAZER (1978)

A.M. Glazer, S.A. Mabud:
Powder Profile Refinement of Lead Zirconate Titanate at Several Temperatures.
Acta Cryst. **B 34** (1978), 1065-1070.

HAIDER (1998)

M. Haider, H. Rose, S. Uhlemann, E. Schwan, B. Kabius, K. Urban:
Electron Microscopy Image Enhanced.
Nature **392** (1998), 768-769.

HAIDER (2008)

M. Haider, H. Müller, S. Uhlemann, J. Zach, U. Loebau, R. Hoeschen:
Prerequisites for a C_c/C_s -corrected ultrahigh-resolution TEM.
Ultramicroscopy **108** (2008), 167-178.

HAINÉ (1952)

M.E. Haine, T. Mulvey:
The Formation of the Diffraction Image with Electrons in the Gabor Diffraction Microscope.
Journal of the Optical Society of America **42** No. 10 (1952), 763-773.

HARTEL (2009)

P. Hartel: private Kommunikation, St. Aygulf (F), Mai 2009.

HARTMANN (2000)

J.A. Hartmann, M. Nelson, R.N. Lamb, K. Watanabe, J.F. Scott:
Ruthenium oxide and strontium ruthenate electrodes for ferroelectric thin-film capacitors.
Applied Physics Letters A **70** (2000), 239-242.

HECKMANN (1925)

G. Heckmann:
Die Gittertheorie der festen Körper.
Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften **4** (1925), 100-153.

HELLWEGE (1976)

K.H. Hellwege:
Einführung in die Festkörperphysik.
Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York (1976),
ISBN 3-540-07500-3.

HONDA (2007)

K. Honda: private Kommunikation, Triebenberglabor, August 2007.

HÛTCH (1998)

M.J. HÛtch, E. Snoeck, R. Kilaas:
Quantitative measurement of displacement and strain fields from HRTEM micrographs.
Ultramicroscopy **74** (1998), 131-146.

HÛTCH (2001)

M.J. HÛtch, T. Plamann:
Imaging conditions for reliable measurement of displacement and strain in high-resolution electron microscopy.
Ultramicroscopy **87** (2001), 199-212.

ISHIZUKA (1980)

K. Ishizuka:
Contrast Transfer of Crystal Images in TEM.
Ultramicroscopy **5** (1980), 55-65.

ISHIZUKA (1994)

K. Ishizuka, T. Tanji, A. Tonumura, T. Ohno, Y. Murayama:
Aberration correction using off-axis holography: I. Aberration assessment.
Ultramicroscopy **53** (1994), 361-370.

ISHIZUKA (2007)

K. Ishizuka, P.H.C. Eilers, T. Kogure:
Optimal Noise Filters in High-Resolution Electron Microscopy.
Microscopy Today **09/07** (2007), 16-20.

JIA (2004)

C.L. Jia, M. Lentzen, K. Urban:
High-resolution transmission electron microscopy using negative spherical aberration.
Microscopy and Microanalysis **10** (2004), 174-184.

JIA (2007)

C.L.Jia, S.-B. Mi, K. Urban, I. Vrejoiu, M. Alexe, D. Hesse:
Atomic-scale study of electric dipoles near charged and uncharged domain walls in ferroelectric films.
Nature Materials **7** (2007), 57-61.

JIA (2009A)

C.L. Jia, S.B. Mi, M. Faley, U. Poppe, J. Schubert, K. Urban:
Oxygen octahedron reconstruction in the SrTiO₃/LaAlO₃ heterointerfaces investigated using aberration-corrected ultrahigh-resolution transmission electron microscopy.
Physical Review B **79** (2009), 081405(R).

JIA (2009B)

C.L. Jia, S.B. Mi, K. Urban, I. Vrejoiu, M.- Alexe, D. Hesse:
Effect of a Single Dislocation in a Heterostructure Layer on the Local Polarization of a Ferroelectric Layer.
Physical Review Letters **102** (2009), 117601.

JUNQUERA (2003)

J. Junquera, P. Ghosez:
Critical thickness for ferroelectricity in perovskite ultrathin films.
Nature **422** (2003), 506-509.

KISIELOWSKI (2008)

C. Kisielowski, B. Freitag, M. Bischoff, H. Van Lin, S.Lazar, G. Knippels, P. Tiemeijer, M. Van Der Stam, S. Von Harrach, M.Stekelenburg, M. Haider, S. Uhlemann, H. Mueller, P. Hartel, B. Kabius, D.Miller, I. Petrov, E.A. Olson, T. Donchev, E.A. Kenik, A.R. Lupini, J.Bentley, S.J. Pennycook, I.M. Anderson, A.M. Minor, A.K. Schmid, T. Duden, V.Radmilovic, Q.M. Ramasse, M. Watanabe, R. Erni, E. Stach, P. Denes and U.Dahmen:
Detection of single atoms and buried defects in three dimensions by aberration-corrected electron microscope with 0.5-angstrom information limit.
Microscopy and Microanalysis **14** (2008), 469-77.

KILAAS (1998)

R. Kilaas:
Optimal and near-optimal filters in high-resolution electron microscopy.
Journal of Microscopy **190** (1998), 45-51.

KNOLL (1932)

M. Knoll, E. Ruska:
Das Elektronenmikroskop.
Zeitschrift für Physik **78** (1932), 318-339.

KOCH (2010)

W. Koch, A. Rother, F. Grossmann, H. Lichte, R. Schmidt:
Coherent and incoherent effects on the imaging and scattering process in Transmission Electron Microscopy and off-axis Holography.
submitted to Ultramicroscopy (2010).

LEITH (1962)

E.H. Leith, J. Upatnieks:
Reconstructed wavefronts and communication theory.
J. Opt. Soc. of America **52** (1962), 1123-1130.

LEHMANN (2000)

M. Lehmann:
Determination and correction of the coherent wave aberration from a single off-axis electron hologram by means of a genetic algorithm.
Ultramicroscopy **85** (2000), 165-182.

LEHMANN (2002)

M. Lehmann:
Contributions of Elastically and Inelastically Scattered Electrons to High-Resolution Off-Axis Electron Holograms – a Quantitative Analysis.
Proc. Microsc. Micoanal. **8** Suppl.2, Quebec 2002, 34-35.

LEHMANN (2004)

M. Lehmann:
Influence of the elliptical illumination on aquisition and correction of coherent aberrations in high-resolution electron holography.
Ultramicroscopy **100** (2004), 9-23.

LENTZEN (2002)

M. Lentzen:
High-resolution imaging with an aberration-corrected transmission electron microscope.
Ultramicroscopy **92** (2002), 233-242.

LENZ (1987)

F. Lenz:
Statistics of phase and contrast determination in electron holograms.
Optik **79**, No. 1 (1987), 13-14.

LENZ (1990)

F. Lenz, E. Völkl:
Stochastic limitations to phase and contrast determinations in electron holography.
Proc. XIIth International Congress for Electron Microscopy.

LICHTE (1986)

H. Lichte:
Electron holography approaching atomic resolution.
Ultramicroscopy **20** (1986), 293-304.

LICHTE (1991A)

H. Lichte:
Optimum focus for taking electron holograms.
Ultramicroscopy **38** (1991), 13-22.

LICHTE (1991B)

H. Lichte:
Electron Image Plane Off-axis Holography of Atomic Structures.
Advances in Optical and Electron Microscopy **12** (1991), 25-91.

LICHTE (1996A)

H. Lichte, D. Geiger, A. Harscher, E. Heindl, M. Lehmann, D. Malamidis, A. Orchowski, W.-D. Rau:
Artefacts in electron holography.
Ultramicroscopy **64** (1996), 67-77.

LICHTE (1996B)

H. Lichte:
Electron holography: Optimum position of the biprism in the electron microscope.
Ultramicroscopy **64** (1996), 79-86.

LICHTE (2000A)

H. Lichte, D. Schulze, M. Lehmann:

Das Triebenberg-Laboratorium für Höchstauflösungselektronenmikroskopie und elektronenoptische Holografie an der Technischen Universität Dresden.

Wissenschaftliche Zeitschrift der TU-Dresden **49** (2000), Heft 1, 62-65.

LICHTE (2000B)

H. Lichte:

Are Ferroelectric Crystals Blaze-Gratings for Electrons?

Cryst. Res. Technol. **35** (2000), 887-898.

LICHTE (2002)

H. Lichte, M. Reibold, K. Brand, M. Lehmann:

Ferroelectric electron holography.

Ultramicroscopy **93** (2002), 199-212.

LICHTE (2007)

H. Lichte, P. Formánek, A. Lenk, M. Linck, C. Matzeck, M. Lehmann, P. Simon:

Electron Holography: Applications to Materials Questions.

Annual Review of Materials Research, Vol. **37** (2007), 539-588,

ISBN 978-0-8243-1737-9.

LICHTE (2008)

H. Lichte:

Performance limits of electron holography.

Ultramicroscopy **108** (2008), 256-262.

LICHTE (2009)

H. Lichte, D. Geiger, M. Linck:

Electron holography in an aberration-corrected TEM.

Philosophical Transactions of the Royal Society A **367** (2009), 3773-3793.

doi: 10.1098/rsta.2009.0126.

LINCK (2006)

M. Linck, H. Lichte, M. Lehmann:

Off-axis electron holography: Materials analysis at atomic resolution.

Int. J. Mat. Res. (chem. Z. f. Metallkunde) **97** (2006), 890-898.

LINCK (2009A)

M. Linck, M. Lehmann, B. Freitag, S. Kujawa, T. Niermann:

Applied wave optics on the atomic scale: Electron holography materials characterization in a Titan TEM.

Proc. MC2009, Vol. **1**: Instrumentation and Methodology, Verlag der TU Graz 2009, 17-18.

DOI 10.3217/978-3-85125-062-6-007.

LINCK (2009B)

M. Linck, D. Wolf, A. Lubk, F. Röder:

Improved object wave reconstruction in off-axis holography.

Proc. MC2009, Vol. **1**: Instrumentation and Methodology, Verlag der TU Graz 2009, 27-28.

DOI 10.3217/978-3-85125-062-6-012.

LINES (1977)

M.E. Lines, A.M. Glass:

Principles and Applications of Ferroelectric and Related Materials.

Oxford University Press, New Edition, 2001.

ISBN 978-0198507789.

LUBK (2010)

A. Lubk:

Quantitative TEM-Holography and (multi-)ferroic interfaces.

Dissertation, Technische Universität Dresden 2010.

MAIMAN (1960)

T.H. Maiman:
Stimulated Optical Radiation in Ruby.
Nature **187** (1960), 493-494.

MARKS (1996)

L.D. Marks:
Wiener-filter enhancement of noisy HREM images.
Ultramicroscopy **62** (1996), 43-52.

MATTHEWS (1965)

J.W. Matthews, E. Grünbaum:
The Structure of Gold Films Grown in Ultra-high Vacuum on Sodium Chloride Substrates.
Philosophical Magazine **11** (1965), 1233-1244.

MEDLIN (2001)

D.L. Medlin, S.M. Foiles, D. Cohen:
A dislocation-based description of grain boundary dissociation: Application to a 90° <110> tilt boundary in gold.
Acta mater. **49** (2001), 3689-3697.

MCCARTNEY (1994)

M.R. McCartney, D.J. Smith, R. Hull, J.C. Bean, E. Völkl, B. Frost:
Direct observation of potential distribution across Si/Si p-n junctions using off-axis electron holography.
Phys. Lett. **65** (1994), 2603.

MEYER (2001)

B. Meyer, D. Vanderbilt:
Ab initio study of BaTiO₃ and PbTiO₃ surfaces in external electric fields.
Physical Review **B 63** (2001), 205426.

MEYER (2008)

J.C. Meyer, C. Kiesilowski, R. Erni, M.D. Rossell, M.F. Crommie, A. Zettl:
Direct Imaging of Lattice Atoms and Topological Defects in Graphene Membranes.
Nano Letters Vol. **8**, No. 11 (2008), 3582-3586.

MOLDOVAN (2009)

G. Moldovan, B. Jeffery, A. Nomerotski, A. Kirkland:
Imaging modes for direct electron detection in TEM with column parallel CCD.
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **A 607** (2009), 13-16.

MÖLLENSTEDT (1956)

G. Möllenstedt, H. Düker:
Beobachtungen und Messungen an Biprisma-Interferenzen mit Elektronenwellen.
Zeitschrift für Physik **145** (1956), 377-397.

MÖLLENSTEDT (1962)

G. Möllenstedt, W. Bayh:
Messung der kontinuierlichen Phasenschiebung von Elektronenwellen im kraftfeldfreien Raum durch das magnetische Vektorpotential einer Luftspule.
Die Naturwissenschaften **49** (1962), 81.

MÖLLENSTEDT (1968)

G. Möllenstedt, H. Wahl:
Elektronenholografie und Rekonstruktion mit Laserlicht.
Die Naturwissenschaften **55** (1968), 340-341.

NASSAU (1988)

K. Nassau, A.E. Miller:
Strontium Titanate: An index to the literature on properties and the growth of single crystals.
Journal of Crystal Growth **91** (1988), 373-381.

PASHLEY (1956)

D. W. Pashley:
The study of epitaxy in thin films.
Advances in Physics **5** (1956),173-240.

RAU (1994)

W.-D. Rau:
Ein on-line Bildverarbeitungssystem für die Bildebenen-Off-Axis Holographie mit Elektronen.
Dissertation, Universität Tübingen 1994.

RAU (1996)

W.-D. Rau, F.H. Baumann, J.A. Rentschler, P.K. Roy, A. Ourmazd:
Characterization of stacked gate oxides by electron holography.
Appl.Phys.Lett. **68** (1996), 3410-3412.

REIMER (1989)

L. Reimer:
Transmission Electron Microscopy.
Springer Series in Optical Sciences, Vol. **36**, 2. Edition (1989),
ISBN 0-387-50499-0.

RIFE (1970)

D.C. Rife, G.A. Vincent:
Discrete Fourier Transform.
Bell System Technical Journal **49** (1970), 197-228.

ROSE (1948)

A. Rose:
Television pickup tubes and the problem of vision.
Advances in Electronics and Electron Physics **1** (1948), 131-166.

ROSE (1971)

H. Rose:
Elektronenoptische Aplanate.
Optik **34** (1971), 285-311.

ROSE (1990)

H. Rose:
Outline of a spherically corrected semiaplanatic medium-voltage transmission electron microscope.
Optik **85** (1990), 19-24.

ROSE (1998)

H. Rose, M. Haider, K. Urban:
Elektronenmikroskopie mit atomarer Auflösung.
Physikalische Blätter **54** (1998), 411-416.

ROTHER (2005A)

A. Rother:
Zur Charakterisierung von Kristalleigenschaften in der Elektronenholografie.
Diplomarbeit, Technische Universität Dresden, 2005.

ROTHER (2005B)

A. Rother, S. Gemming, H. Lichte:
Ab-initio simulation of the object exit wave of ferroelectrics.
Proc. Microscopy Conference MC2005, Davos, Switzerland.

ROTHER (2008)

A. Rother, S. Gemming, D. Geiger and N. Spaldin:
(Multi-)ferroic domain walls– a combined ab-initio and microscopical investigation.
Proc. EMC 2008, Vol. **2**: Materials Science, pp.573-574, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2008.

RUSKA (1930)

E. Ruska:

Untersuchung elektrostatischer Sammelvorrichtungen als Ersatz der magnetischen Konzentrierspulen beim Kathodenstrahloszillographen.

Diplomarbeit Technische Hochschule Berlin, Lehrstuhl für Hochspannungs-technik, 1930.

RUSKA (1931)

E. Ruska, M. Knoll:

Die magnetische Sammelspule für schnelle Elektronenstrahlen.

Zeitschrift für technische Physik **12** (1931), 389-400 und 448.

SALVE (2009)

<http://www.uni-ulm.de/einrichtungen/hrem/forschung/salve.html>.

SCHERZER (1936)

O. Scherzer:

Über einige Fehler von Elektronenlinsen.

Zeitschrift für Physik **101** (1936), 593-603.

SCHERZER (1947)

O. Scherzer:

Sphärische und chromatische Korrektur von Elektronen-Linsen.

Optik Bd. **2** (1947), 114-132.

SCHERZER (1949)

O. Scherzer:

The theoretical resolution limit of the electron microscope.

Journal of Applied Physics **20** (1949), 20-29.

SCHMID (1985)

H. Schmid:

Ein Elektronen-Interferometer mit 300 µm weit getrennten kohärenten Teilbündeln zur Erzeugung hoher Gangunterschiede und Messung der Phasenschiebung durch das magnetische Vektorpotential bei metallisch abgeschirmtem Magnetfluß.

Dissertation (1985), Universität Tübingen.

STADELMANN (1987)

P.A. Stadelmann:

EMS – A Software Package For Electron Diffraction Analysis And HREM Image Simulation In Materials Science.

Ultramicroscopy **21** (1987), 131.

STÖCKER (2000)

H. Stöcker:

Taschenbuch der Physik.

Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main (2000), 4., korrigierte Auflage,

ISBN 3-8171-1627-6.

TONOMURA (1998)

A. Tonumura:

The Quantum World unveiled by Electron Waves.

World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. (1998),

ISBN 981-02-2510-5.

TWITCHETT-HARRISON (2008)

A.C. Twitchett-Harrison, T.J.V. Yates, R.E. Dunin-Borkowski, P.A. Midgley:

Quantitative electron holographic tomography for the 3D characterization of semiconductor device structures.

Ultramicroscopy **108** (2008), 1401-1407.

TYPKE (1977)

D. Typke, D. Köstler:

Determination of the wave aberration of electron lenses from superposition diffractograms of images with differently tilted illumination.

Ultramicroscopy **2** (1977), 285-295.

UHLEMANN (1998)

S. Uhlemann, M. Haider:

Residual wave aberrations in the first aberration corrected transmission electron microscope.

Ultramicroscopy **72** (1998), 109-119.

VON BORRIES (1933)

B. v. Borries, E. Ruska:

Die Abbildung durchstrahlter Folien im Elektronenmikroskop.

Zeitschrift für Physik **83** (1933), 187-193.

WAHL (1975)

H. Wahl:

Bildebenenholografie mit Elektronen.

Habilitationsschrift (1975), Universität Tübingen.

WEICKENMEIER (1991)

A.L. Weickenmeier, H. Kohl:

Computation of Absorptive Form Factors for High-Energy Electron Diffraction.

Acta Cryst. **A47** (1991), 590-597.

WIENER (1942)

N. Wiener:

Extrapolation, Interpolation and Smoothing of Stationary Time Series.

MIT Press, Cambridge, MA, 1942.

WOLF (2004)

D. Wolf:

Analyse der im holographischen Seitenband und Zentralband gefundenen Objektinformation.

Diplomarbeit (2004), Technische Universität Dresden.

WOLF (2010)

D. Wolf, A. Lubk, H. Lichte, H. Friedrich:

Towards automated electron holographic tomography for 3D mapping of electrostatic fields.

Ultramicroscopy in press, corrected proof (2010).

WOLFKE (1920)

M. Wolfke:

Über die Möglichkeit der Optischen Abbildung von Molekulargittern.

Physikalische Zeitschrift **21**, Nr.18 (1920), 495-497.

WOLFRAM (2003)

Wolfram Research Inc.:

Mathematica5.0,

<http://www.wolfram.com> (2003).

ZEMLIN (1978)

F. Zemlin, K. Weiss, P. Schiske, W. Kunath, K.-H. Hermann:

Coma-free alignment of high resolution electron microscopes with the aid of optical diffractograms.

Ultramicroscopy **3** (1978), 49-60.

ZHANG (1992)

X. Zhang, T. Hashimoto, D.C. Joy:

Electron holographic study of ferroelectric domain walls.

Advanced Physics Letters **60** (1992), 784.

Danksagung

Man sagt, ein guter Wissenschaftler zeichnet sich durch Fleiß und Kreativität aus. Dies müssen im konkreten Fall die Hochschullehrer der Prüfungskommission, insbesondere die Gutacher dieser Arbeit beurteilen.

Allein mit Fleiß und Kreativität ist es jedoch nicht getan: Es sind auch die beruflichen Randbedingungen und das persönliche Umfeld, die die Qualität der wissenschaftlichen Arbeit von Grund auf beeinflussen.

So bin ich meiner Frau Madlen und meiner Tochter Anika zu tiefstem Dank verpflichtet: Der Rückhalt einer eigenen Familie hat mir sehr geholfen, auch in schwierigen Phasen das Ziel nicht aus den Augen zu verlieren. Es lässt sich nur schwerlich in Worte fassen, welche ein Antrieb die Freude sein kann, die ein kleines Kind zu verbreiten in der Lage ist.

Weiterhin weiß ich den glücklichen Umstand zu schätzen, als wissenschaftlicher Mitarbeiter des Speziallabors Triebenberg am Institut für Strukturphysik der Technischen Universität Dresden von einer hervorragenden Arbeitsumgebung profitieren zu können; die gute Laborausstattung und das kreative Arbeitsklima haben beträchtlich zum Erfolg der Arbeit beigetragen. Diesbezüglich gilt Herrn Prof. Dr. Hannes Lichte mein besonderer Dank für die wissenschaftliche Betreuung dieser Doktorarbeit. Darüber hinaus bedanke ich mich herzlich bei den derzeitigen und ehemaligen Mitarbeitern des Triebenberglabors für die sehr ergiebige Zusammenarbeit. Die intensive Diskussion und die gemeinsame Arbeit insbesondere mit Daniel Wolf, Petr Formánek (inzw. IPF Dresden), Axel Lubk (inzw. CEMES Toulouse), Prof. Dr. Michael Lehmann (inzw. TU Berlin), Dr. Dorin Geiger, Falk Röder, Jan Sickmann und Bernd Einkenel haben sehr zum Gelingen der Arbeit beigetragen.

Auch den Projektpartnern bin ich zu Dank verpflichtet: Die Kooperationen mit Dr. Koichiro Honda von Fujitsu Japan und mit Dr. Bert Freitag von FEI Eindhoven haben für die vorliegende Arbeit beeindruckende Ergebnisse hervorgebracht. Auch danke ich Dr. Peter Hartel von der CEOS GmbH Heidelberg für einige sehr hilfreiche Hinweise im Umgang mit dem Bildfehlerkorrektor.

Zu einer kreativen Arbeitsumgebung gehört auch, sich keine Sorgen über den Lebensunterhalt machen zu müssen. Deshalb danke ich dem Freistaat Sachsen für die Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter und die damit verbundene monatliche Gehaltsüberweisung. Diese trägt nicht unerheblich zu einem unbekümmerten Dasein als Wissenschaftler bei. In diesem Zusammenhang sind auch die Deutsche Forschungsgemeinschaft und die Europäische Union zu nennen, deren Geld die Universität freundlicherweise zum Teil für mein Gehalt ausgeben durfte.

Schlussendlich gebührt meinen Eltern der herzlichste Dank dafür, ein erfolgreiches Physikstudium überhaupt erst ermöglicht zu haben: nicht nur bezüglich finanzieller Aspekte, sondern auch in Hinblick auf die Erziehung zur Selbstständigkeit und die Förderung analytischen Denkens von klein auf.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Dresden, der _____
Martin Linck

Anerkennung der Promotionsordnung

Hiermit erkläre ich, dass ich die Promotionsordnung der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen Universität Dresden in der Fassung vom 20. März 2000 vollständig anerkenne.

Dresden, der _____
Martin Linck