

Entwicklung und Anwendung elektrostatischer Phasenplatten in der Transmissionselektronenmikroskopie

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN

von der Fakultät für Physik

des Karlsruher Instituts für Technologie

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Katrin Schultheiß

aus Bühl (Baden)

Tag der mündlichen Prüfung:	16.04.2010
Referentin:	Prof. Dr. Dagmar Gerthsen
Korreferent:	Prof. Dr. Rasmus R. Schröder

Inhalt

1 Elektrostatische Phasenplatten in der Transmissionselektronenmikroskopie: Motivation und Herausforderungen	1
1.1 Stand der Technik bei elektrostatischen Phasenplatten	2
1.2 Phasenkontrasterzeugung mit elektrostatischen Phasenplatten	3
1.3 Gliederung der Arbeit	4
2 Kontrastentstehungsmechanismen im Transmissionselektronenmikroskop	5
2.1 Beeinflussung der Elektronenwelle in der Probe	5
2.2 Kontrastübertragung durch das abbildende System und die Näherung des schwachen Phasenobjekts.....	6
2.2.1 Optimale Kontrastübertragung durch die Wahl des Defokuswertes und Objektwellenrekonstruktion mittels Fokussereien	11
2.2.2 C_s als neuer Parameter im Kontrasttransfer	12
2.3 Physikalische Phasenplatten.....	13
2.3.1 Zernike Filmphasenplatten	15
2.3.2 Hilbert Filmphasenplatten	17
2.3.3 Elektrostatische Boersch Phasenplatten	19
2.3.4 Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope (PACEM)	22
2.3.5 Anamorphotische Phasenplatten	23
2.3.6 Zach Phasenplatten.....	24
2.4 Nicht-lineare Bildentstehung.....	25
3 Herstellung elektrostatischer Phasenplatten und Einbau in ein Transmissionselektronenmikroskop	27
3.1 Design der elektrostatischen Phasenplatten-Typen	27
3.2 Abscheidung dünner Schichten mittels Elektronenstrahlverdampfung	29
3.3 Strukturieren der zentralen Elektrode mittels Elektronenstrahlolithographie.....	30
3.4 Strukturierung der Phasenplatte im Fokussierten Ionenstrahl System	32
3.5 Letzte Prozessschritte zum Fertigen der elektrostatischen Phasenplatten	33
3.5.1 Fertigstellung einer Boersch Phasenplatte	34
3.5.2 Fertigstellung einer Zach Phasenplatte	34

3.6 Herstellung eines Anamorphotischen Phasenplatten-Prototyps.....	35
3.7 Kontaktierung und Einbau einer Phasenplatte in ein Transmissionselektronenmikroskop.....	37
3.8 Experimentelle Techniken zu Justage und Arbeit im Phasenplattenmodus	39
3.9 Zusammenfassung	40
4 Transmissionselektronenmikroskopie mit Boersch Phasenplatten.....	42
4.1 Experimentelle Ergebnisse I: Eigenschaften der Boersch Phasenplatte	42
4.1.1 Betrieb im ZEISS 912 mit LaB ₆ Kathode	44
4.1.2 Betrieb im ZEISS 923 mit Feldemissionskathode	46
4.1.3 Betrieb im “Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope” (PACEM)	49
4.2 Experimentelle Ergebnisse II: Phasenplatten Transmissionselektronenmikroskopie mit Boersch Phasenplatten.....	51
4.2.1 Phasenkontrastabbildungen mit dem ZEISS 912	51
4.2.2 Phasenkontrastabbildungen mit dem ZEISS 923	55
4.3 Diskussion	59
4.3.1 Einfluss der Elektronenquelle	59
4.3.2 Effekte und Einfluss der Abschattung von Elektronen durch die Phasenplattenstruktur	60
4.3.3 Kontamination der Phasenplatte und Haltbarkeit.....	62
4.3.4 Zusammenfassung	63
5 Transmissionselektronenmikroskopie mit Zach Phasenplatten	64
5.1 Prinzip einer Zach Phasenplatte	64
5.2 Experimentelle Ergebnisse III: Eigenschaften der Zach Phasenplatte im Transmissionselektronenmikroskop.....	66
5.3 Experimentelle Ergebnisse IV: Phasenkontrastabbildungen mit Zach Phasenplatten ..	68
5.4 Diskussion	82
5.4.1 Einfluss der asymmetrischen Phasenschiebung	82
5.4.2 Kontamination der Phasenplatte und Wiederverwertbarkeit	87
5.4.3 Analogie zum anamorphotischen Potential und mögliche Vorexperimente	87
5.5 Zusammenfassung	88

6	Rekonstruktion der Wellenfunktion mit Phasenplatten	
	Transmissionselektronenmikroskopie	90
6.1	Motivation für die Wellenfunktionsrekonstruktion und bisher verwendete Verfahren	90
6.2	Phasenplattenbasiertes Rekonstruktionsverfahren im Realraum	91
6.3	Erstes experimentelles Beispiel: Rekonstruktion der Phase von Platin Nanopartikeln .	93
6.4	Diskussion	96
6.5	Zusammenfassung	96
7	Zusammenfassung und Ausblick	98
7.1	Zusammenfassung	98
7.2	Ausblick: Die komplett abschattungsfreie Phasenplatte	100
	Variablen und Konstanten.....	101
	Referenzen	104
	Danksagung	108

Abkürzungen

aC	<i>amorphous carbon</i> , amorpher Kohlenstoff
APP	Anamorphotische Phasenplatte
BPP	Elektrostatische Boersch Phasenplatte
FEG	Feldemissionsquelle
FIB	Fokussierter Ionenstrahl (<i>focused ion beam</i>)
FWTM	<i>full width at tenth maximum</i>
HPP	Hilbert Filmphasenplatte
MIP	Mittleres inneres Potential
NS	Nullstrahl, Brennpunkt der ungestreuten Elektronen in der hinteren Brennebene
PACEM	<i>Phase Contrast Aberration Corrected EM</i>
PCTF	Phasenkontrastübertrag
PP	Phasenplatte
SEM	Rasterelektronenmikroskop (<i>scanning electron microscope</i>)
SNR	Signal-zu-Rausch Verhältnis
SSB	<i>single sideband</i>
TCC	<i>transmission cross coefficient</i>
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
WPO	Schwaches Phasenobjekt (<i>weak phase object</i>)
WTF	Wellentransferfunktion
ZPP	Zernike Filmphasenplatte

1 Elektrostatische Phasenplatten in der Transmissionselektronenmikroskopie: Motivation und Herausforderungen

In einem Durchstrahlungs-Lichtmikroskop können transparente Proben mit einer Auflösung von wenigen 100 nm untersucht werden. Einige Präparate sind jedoch komplett durchsichtig, da sich die Probendetails nur in einer geringen Varianz des Brechungsindex unterscheiden, was eine kleine lokale Phasenschiebung verursacht. Durch das Betragsquadrat eines Abbildungsprozesses geht jedoch die Phaseninformation der Probe verloren, weshalb kein Kontrast sichtbar ist. Bereits 1934 entwickelte Zernike eine Theorie zum Phasenkontrastübertrag, die besagt, dass durch eine zusätzliche relative Phasenschiebung um $\pi/2$ zwischen gestreutem und ungestreutem Wellenanteil sichtbarer Phasenkontrast erzeugt werden kann. Mit Hilfe sog. $\lambda/4$ -Plättchen kann seither in Phasenkontrast Lichtmikroskopen eine zusätzliche Phasenschiebung auf den ungestreuten Wellenanteil aufgeprägt werden, was zu erheblicher Kontrastverbesserung führt.

Auch in der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM), deren Auflösungsgrenze bei etwa 0,05 nm liegt, gibt es Objekte, die nur schwachen Kontrast erzeugen. Besonders bei amorphen biologischen Proben, die aus leichten Elementen bestehen, wird die Elektronenwelle nur leicht in ihrer Phase beeinflusst. Jedoch auch in der Materialwissenschaft gibt es Proben bzw. Probenbereiche, die nur schwachen Kontrast erzeugen, z.B. Fehlstellen, Polymere oder sehr kleine Nanopartikel.

Eine Möglichkeit, solche Objekte besser sichtbar zu machen, ist das Ausnutzen von Aberrationen, da nicht direkt die Objektwellenfunktion, sondern deren Faltung mit der sog. Wellentransferfunktion (WTF) abgebildet wird, einer Funktion, die die Fehler der abbildenden Optik beinhaltet. Diese Funktion bewirkt eine frequenzabhängige zusätzliche Phasenschiebung zwischen gestreuten und ungestreuten Elektronen, die für schwache Phasenobjekte sinusförmig verläuft. Das heißt, dass für diejenigen Ortsfrequenzen, bei denen die Sinusfunktion maximal ist, sichtbarer Kontrast im Bild erzeugt wird. Durch die Aberrationen, die die zusätzliche Phasenschiebung bewirken, entstehen jedoch auch ungewünschte Effekte, wie eine Delokalisierung der Information durch Defokussieren und Kontrastumkehr für verschiedene Ortsfrequenzen. Daher wäre es wünschenswert, die Aberrationen zu minimieren, was einen verschwindenden Bildkontrast für schwache Phasenobjekte zur Folge hat.

Von Boersch [1947] stammen erste Vorschläge für Phasenplatten (PP) in der TEM. Diese sollen, wie im Lichtmikroskop, eine für alle Ortsfrequenzen konstante zusätzliche Phasenschiebung zwischen ungestreutem und gestreutem Wellenanteil erzeugen. Daher soll die PP in der hinteren Brennebene der Objektivlinse positioniert werden, wo diese Anteile

räumlich getrennt sind. Für die Phasenschiebung der Elektronen schlägt Boersch das innere Potential eines dünnen Films oder elektrostatische Felder vor. Abb. 1.1 zeigt eine Grafik aus Boersch's Arbeit, die die verschiedenen PP-Vorschläge skizziert.

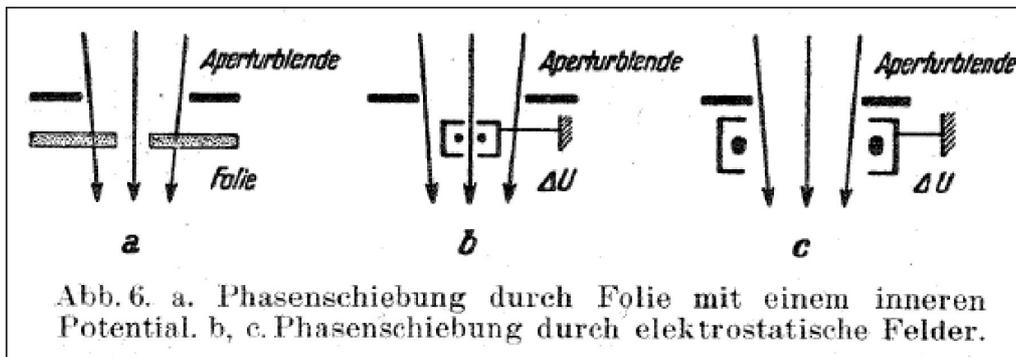


Abbildung 1.1: Grafik aus Boersch's Arbeit „Über die Kontraste von Atomen im Elektronenmikroskop“ [1947].

Durch die erforderlichen kleinen Dimensionen einer PP für ein Transmissionselektronenmikroskop konnte viele Jahre lang keine seiner Ideen realisiert werden. Ende der 90er Jahre entwickelte die Gruppe von Nagayama erste PPs, die aus einem dünnen amorphen Kohlenstoff (aC) Film bestehen, in dessen Mitte sich eine kleine Öffnung von etwa $1 \mu\text{m}$ Durchmesser befindet [Danev 2001,1]. Die gestreuten Elektronen erfahren durch das mittlere innere Potential des Films eine zusätzliche Phasenschiebung, während der Nullstrahl (NS) die PP unbeeinflusst durch das Loch passiert.

Durch die zusätzliche Wechselwirkung der gestreuten Elektronen geht jedoch kohärentes Signal verloren, weshalb eine Phasenschiebung durch ein elektrostatisches Potential von Vorteil wäre. Matsumoto und Tonomura [1996] schlugen erstmals ein Design für eine elektrostatische PP vor, welche aus einer fünfschichtigen Ringlinse besteht, die im Bereich des NS ein elektrostatisches Feld erzeugen soll (vgl. Abb. 1.1 b). Durch die Struktur selbst wird ein Teil der Elektronen abgeschattet – diejenigen Elektronen, die jedoch zum Bild beitragen, sind keinen weiteren Streuprozessen ausgesetzt.

1.1 Stand der Technik bei elektrostatischen Phasenplatten

In den Vorarbeiten zu dieser Arbeit konnte erstmals ein Herstellungsverfahren für eine solche elektrostatische PP entwickelt und deren phasenschiebende Wirkung im

Transmissionselektronenmikroskop belegt werden [Schultheiß 2006]. Von Cambie et al. [2007] wurde eine sog. drift tube präsentiert, die aus einer Doppelelektrodenanordnung besteht und deren phasenschiebende Wirkung ebenfalls demonstriert wurde.

Durch die zu großen Abmessungen der Ringstruktur konnten jedoch keine Phasenkontrast Abbildungen mit den elektrostatischen PPs gezeigt werden, da die Filterung eines breiten Frequenzbandes aus der Aufnahme den Bildkontrast dominierte.

Hieraus ergeben sich die Herausforderungen in der Entwicklung von elektrostatischen PPs:

- Kann der Herstellungsprozess für elektrostatische Phasenplatten optimiert werden, sodass es möglich ist, filigranere Strukturen zu erzeugen, die ein geringeres Frequenzband an Elektronen abschatten?
- Gibt es elektronenoptische Lösungen, die die Abschattungen durch eine PP vermindern?
- Kann durch neue PP Konzepte die Abschattung eines kompletten Frequenzbandes verhindert werden?

1.2 Phasenkontrasterzeugung mit elektrostatischen Phasenplatten

Nach erfolgreicher Weiterentwicklung des Herstellungsprozesses bzw. Realisierung neuer elektrostatischer Konzepte steht die Anwendung im Transmissionselektronenmikroskop im Fokus der weiteren Arbeit. Folgende Fragestellungen ergeben sich bei der TEM mit elektrostatischen PPs:

- Kann durch elektrostatische Phasenplatten sichtbare Kontrastverbesserung im Transmissionselektronenmikroskop erzeugt werden?
- Was gibt es durch die Wechselwirkung der Elektronen mit der Phasenplattenstruktur für zusätzliche (unerwünschte) Effekte? Können diese reduziert bzw. eliminiert werden?
- Wie ist die Haltbarkeit bzw. die Lebensdauer einer elektrostatischen PP und wie kann diese maximiert werden?

- Was sind die Grenzen und Einschränkungen der Methode?

1.3 Gliederung der Arbeit

In **Kapitel 2** werden die Kontrastentstehung im Transmissionselektronenmikroskop und die Besonderheit schwacher Phasenobjekte erläutert. Etablierte Methoden zur Phasenkontrasterzeugung und deren Einschränkungen werden diskutiert. Schließlich werden das Konzept physikalischer PPs und die wichtigsten PP-Typen präsentiert.

Der Herstellungsprozess von elektrostatischen PPs und dessen Entwicklung sind der Hauptteil des **3. Kapitels**. Anschließend werden der Einbau einer elektrostatischen PP in ein Transmissionselektronenmikroskop und die experimentellen Techniken zur Arbeit im PP-Modus erläutert.

Das **4. Kapitel** zeigt experimentelle Ergebnisse aus der Arbeit mit elektrostatischen Boersch PPs. Zunächst wird die Funktionsweise geprüft und anschließend werden anhand von einigen Beispielen die Möglichkeiten und Einschränkungen der Methode untersucht. Dabei werden verschiedene Mikroskope verwendet und deren Eignung für PP TEM verglichen.

In **Kapitel 5** wird ein neuer Vorschlag für eine elektrostatische PP vorgestellt. Die Zach PP ermöglicht PP TEM ohne die Abschattung eines kompletten Frequenzbandes. Die ersten experimentellen Ergebnisse werden präsentiert und die Besonderheiten der asymmetrischen Feldanordnung untersucht.

Die erste experimentelle Anwendung eines PP-basierten Objektwellenrekonstruktionsverfahrens wird in **Kapitel 6** gezeigt. Bei dieser neuen Rekonstruktionsmethode werden lediglich drei PP TEM Aufnahmen mit beliebiger unterschiedlicher Phasenschiebung benötigt, um die komplexe Objektwelle zu rekonstruieren.

2 Kontrastentstehungsmechanismen im Transmissionselektronenmikroskop

Dieses Kapitel erläutert die grundlegenden Kontrastentstehungsmechanismen im Transmissionselektronenmikroskop. Vor allem biologische Proben, aber auch materialwissenschaftliche Proben bestehend aus leichten Elementen zeigen wenig Kontrast, da Amplitude und Phase der einfallenden Elektronenwelle nur wenig modifiziert werden. Um sichtbaren Phasenkontrast zu erzeugen, können die Objektivlinsenaberrationen variiert oder eine physikalische Phasenplatte verwendet werden, was im Folgenden dargelegt wird.

2.1 Beeinflussung der Elektronenwelle in der Probe

In der TEM wird eine auf maximal einige hundert Nanometer gedünnte Probe von einer ebenen Elektronenwelle durchstrahlt. Beim Durchlaufen der Probe können sich verschiedene Streuprozesse ereignen. In elastischen Streuprozessen verliert das Elektron keine Energie, wohingegen in inelastischen Streuprozessen Energie abgegeben wird. Durch die Streuprozesse können Anteile der auslaufenden Elektronenwelle kohärent oder inkohärent in Bezug zum ungestreuten Anteil der Elektronenwelle sein. Im Folgenden wird zunächst die Wechselwirkung zwischen Elektronenwelle und Probe in nicht-kristallinen Objekten betrachtet. Nicht-lineare Bildentstehung wird in Kapitel 2.4 beschrieben.

Die Austrittswellenfunktion $f(\mathbf{r})$ nach Durchlaufen der Probe kann wie folgt dargestellt werden:

$$f(\mathbf{r}) = (1 - a(\mathbf{r}))f_0 e^{i\varphi(\mathbf{r})}, \quad (2.1)$$

mit den Lateralkoordinaten $\mathbf{r} = (x, y)$, der einfallenden Welle f_0 , dem Amplitudenfaktor $(1 - a(\mathbf{r}))$ und der Phase $\varphi(\mathbf{r})$.

Amplitudenkontrast ($0 < a(\mathbf{r}) < 1$) kann durch elastische Streuprozesse in große Winkel und durch Mehrfachstreuung entstehen, da hierbei die Elektronen von der Objektivblende

abgefangen werden. Eine weitere Möglichkeit der Entstehung von Amplitudenkontrast ist die Verwendung eines Energiefilters, der inelastisch gestreute Elektronen herausfiltert.

Mit $\varphi(\mathbf{r})$ wird der Einfluss der Probe auf die Phase der Welle beschrieben, also gewissermaßen die Verbiegung der Wellenfront. Mit dem elektrostatischen Potential $\rho(\mathbf{r}, z)$ und der Probendicke t kann $\varphi(\mathbf{r})$ ermittelt werden:

$$\varphi(\mathbf{r}) = \frac{\pi e}{\lambda E} D(E) \int_{-t/2}^{t/2} \rho(\mathbf{r}, z) dz. \quad (2.2)$$

Hierbei ist e die Elektronladung, λ die Wellenlänge der Elektronen (3,35 pm bei einer Beschleunigungsspannung von $U = 120$ kV) und E die Elektronenenergie. $D(E)$ ist ein relativistischer Korrekturfaktor, der sich wie folgt berechnen lässt:

$$D(E) = \frac{2(E_0 + E)}{2E_0 + E}. \quad (2.3)$$

E_0 beschreibt die Ruheenergie der Elektronen. Bei einer Elektronenenergie von 120 keV ergibt sich für die relativistische Konstante $D(E) = 1,1$.

Im Transmissionselektronenmikroskop wird der Austrittswellenfunktion beim Bildentstehungsprozess eine ortsfrequenzabhängige Phasenschiebung aufgeprägt, was im folgenden Kapitel erläutert wird.

2.2 Kontrastübertragung durch das abbildende System und die Näherung des schwachen Phasenobjekts

Während des Abbildungsprozesses wird die Austrittswellenfunktion durch das optische System moduliert. Die im Transmissionselektronenmikroskop verwendeten elektromagnetischen Linsen sind gewöhnlich fehlerbehaftet, was als Aberration bezeichnet wird.

Die wichtigsten Linsenaberrationen sind der Defokus Z der Objektivlinse, welcher beschreibt, wie weit die fokussierte Brennebene von der Objektebene abweicht. Mit der sphärischen Aberration wird der Effekt beschrieben, dass achsenferne Elektronen stärker gebeugt werden als achsennahe (Aberrationskonstante C_s). Die chromatische Aberration mit der Aberrationskonstante C_c führt zu einer stärkeren Fokussierung der Elektronen niedrigerer Energie bei einer endlichen Energiebreite des Elektronenstrahls.

Durch die Linsenaberrationen wird jeder Punkt auf der Probe in ein Scheibchen abgebildet, wodurch es zu einem Verschmieren des Bildes kommt. Dieser Effekt kann beschrieben werden mit Hilfe der sogenannten *point spread function* $h(\mathbf{r})$ [Williams 1996]:

$$g(\mathbf{r}) = \int f(\mathbf{r}')h(\mathbf{r} - \mathbf{r}')d\mathbf{r}' = f(\mathbf{r}) \otimes h(\mathbf{r}), \quad (2.4)$$

hierbei ist $g(\mathbf{r})$ die Bildfunktion.

Mit Hilfe des Faltungstheorems kann eine Faltung im Ortsraum durch eine Multiplikation im reziproken Raum dargestellt werden:

$$G(\mathbf{u}) = F(\mathbf{u})H(\mathbf{u}), \quad (2.5)$$

hierbei sind $G(\mathbf{u})$, $F(\mathbf{u})$ und $H(\mathbf{u})$ die Fouriertransformierten der Funktionen $g(\mathbf{r})$, $f(\mathbf{r})$ und $h(\mathbf{r})$, die Koordinaten des reziproken Raums werden mit \mathbf{u} bezeichnet. $H(\mathbf{u})$ ist die sogenannte Wellentransferfunktion (WTF) und setzt sich aus mehreren Faktoren zusammen:

$$H(\mathbf{u}) = A(\mathbf{u})E(\mathbf{u})B(\mathbf{u}). \quad (2.6)$$

$A(\mathbf{u})$ ist hierbei die sogenannte Blendenfunktion, die das Ausfiltern eines Teils der Elektronen in der hinteren Brennebene durch eine Objektivblende beschreibt. Durch sie werden Elektronen ab einer bestimmten Ortsfrequenz abgefangen:

$$u_0 = \frac{r_0}{f \cdot \lambda'}, \quad (2.7)$$

hierbei sind u_0 die Grenzfrequenz, r_0 der Radius der Objektivblende und f die Brennweite der Objektivlinse.

Mit der Envelopenfunktion $E(\mathbf{u})$ wird die Dämpfung der Elektronen höherer Ortsfrequenzen durch eine teilkohärente Beleuchtung beschrieben. Sie setzt sich zusammen aus dem Produkt der zeitlichen und räumlichen Einhüllenden:

$$E(\mathbf{u}) = E_T(\mathbf{u}) \cdot E_S(\mathbf{u})$$

$$= \exp\left(-\frac{1}{2}(\pi\lambda\Delta Z)^2 \mathbf{u}^4\right) \cdot \exp\left[-\left(\frac{\pi\alpha}{\lambda}\right)^2 (C_s\lambda^3 \mathbf{u}^3 + Z\lambda\mathbf{u})^2\right], \quad (2.8)$$

mit dem Semikonvergenzwinkel α , der Öffnungsfehlerkonstanten C_s und dem *defocus spread* ΔZ , der die Instabilitäten des Transmissionselektronenmikroskops sowie die Energiebreite des Strahls wie folgt beschreibt:

$$\Delta Z = C_c \left[4\left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 + \left(\frac{\Delta U}{U}\right)^2\right]^{1/2}. \quad (2.9)$$

Hierbei fließen die Instabilitäten der Spannungs- und Stromversorgung ΔU und ΔI , sowie die Energiebreite der Elektronen ΔE (maßgeblich durch die Elektronenquelle beeinflusst), der Strom I und die Hochspannung U ein.

Der letzte der drei Terme in der Transferfunktion ist die Aberrationsfunktion $B(\mathbf{u})$. Sie beschreibt den Einfluss der Linsenaberrationen der Objektivlinse, die eine frequenzabhängige Phasenschiebung der gestreuten Elektronen bewirken. Sie wird beschrieben durch den Phasenfaktor:

$$B(\mathbf{u}) = e^{-i\chi(\mathbf{u})}. \quad (2.10)$$

Die Wellenaberrationsfunktion $\chi(\mathbf{u})$ beinhaltet zwei für diese Arbeit relevante Hauptterme:

$$\chi(\mathbf{u}) = \frac{\pi}{2}(C_s\lambda^3 \mathbf{u}^4 + 2Z\lambda\mathbf{u}^2). \quad (2.11)$$

In der Näherung schwacher Phasen- und Amplitudenobjekte geht man von einer sehr kleinen Änderung der Phase und der Amplitude aus ($\varphi(\mathbf{r}) \ll 1$, $0 < a(\mathbf{r}) \ll 1$). In diesem Fall kann die Exponentialfunktion in der Austrittswellenfunktion (Gl. 2.1) in der Phase entwickelt werden:

$$e^{i\varphi(\mathbf{r})} \approx 1 + i\varphi(\mathbf{r}) - \frac{\varphi^2(\mathbf{r})}{2} \pm \dots. \quad (2.12)$$

Dann ergibt sich die Austrittswelle zu:

$$\begin{aligned} f(\mathbf{r}) &= (1 - a(\mathbf{r}))(1 + i\varphi(\mathbf{r}) \mp \dots)f_0 \\ &\approx (1 - a(\mathbf{r}) + i\varphi(\mathbf{r}))f_0. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Als ein sogenanntes schwaches Phasenobjekt (WPO: *weak phase object*) wird eine Probe bezeichnet, die die Amplitude nicht beeinflusst ($a(\mathbf{r}) = 0$) und die Phase der Elektronenwelle nur leicht schiebt ($\varphi(\mathbf{r}) \ll 1$).

Für diesen Fall ergibt sich dann die Austrittswellenfunktion in erster Näherung zu

$$f(\mathbf{r}) = f_0 + if_g(\mathbf{r}) \mp \dots \quad \text{mit} \quad f_g(\mathbf{r}) = f_0 \cdot \varphi(\mathbf{r}). \quad (2.14)$$

Bei Streuung an einem Phasenobjekt ist also die Phase der gestreuten Elektronen $f_g(\mathbf{r})$ in erster Näherung um $\pi/2$ im Vergleich zu den ungestreuten Elektronen verschoben. In Abb. 2.1 sind schematisch die Streuung an einem schwachen Phasenobjekt und die resultierende Austrittswellenfunktion dargestellt. Die resultierende Intensität unterscheidet sich kaum von der der einfallenden Welle, also ist der Kontrast vernachlässigbar.

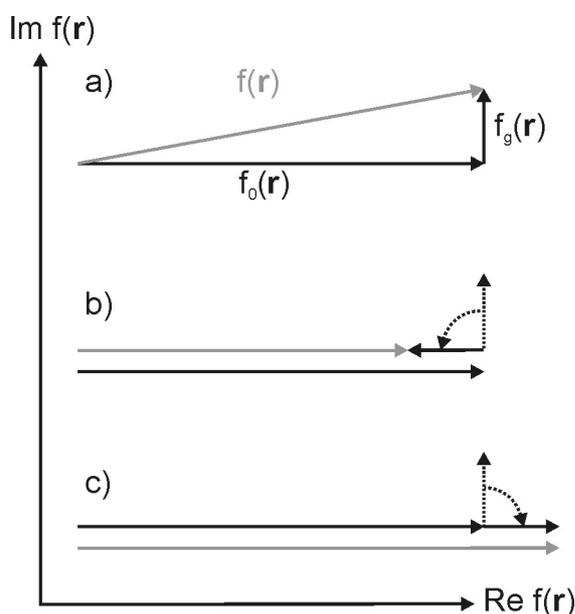


Abbildung 2.1: a) Schematische Darstellung der Austrittswellenfunktion eines schwachen Phasenobjektes. Der gestreute Anteil ist um $\pi/2$ phasengeschoben zum ungestreuten Anteil. Die resultierende Intensität (entsprechend der Länge der Pfeile) unterscheidet sich kaum von der einfallenden Welle. b und c) Durch eine zusätzliche relative Phasenschiebung um $\pm \pi/2$ zwischen dem gestreuten und dem ungestreuten Anteil ändert sich die resultierende Intensität merklich und Phasenkontrast wird sichtbar. Es wird unterschieden zwischen positivem Phasenkontrast (b) und negativem Phasenkontrast (c).

Durch eine zusätzliche relative Phasenschiebung zwischen dem gestreuten und ungestreuten Anteil der Elektronenwelle um $\pm \pi/2$ ändert sich die resultierende Intensität und Phasenkontrast wird sichtbar.

Im Falle eines schwachen Phasen- und Amplitudenobjekts ergibt die Aufprägung der Transferfunktion innerhalb der Objektivblende bei Vernachlässigung der Dämpfungsfunktionen und unter der Annahme $f_0 = 1$:

$$G(\mathbf{u}) = [\delta(\mathbf{u}) - \tilde{a}(\mathbf{u}) + i\tilde{\varphi}(\mathbf{u})]\exp(-i\chi(\mathbf{u})). \quad (2.15)$$

Durch Fourierrücktransformation erhält man die Bildfunktion $g(\mathbf{r})$:

$$g(\mathbf{r}) = 1 + \mathcal{F}^{-1}\{(-\tilde{a}(\mathbf{u}) + i\tilde{\varphi}(\mathbf{u}))\exp(-i\chi(\mathbf{u}))\}. \quad (2.16)$$

Die Intensität des Bildes wird durch das Betragsquadrat berechnet. Nimmt man an, dass $A(\mathbf{u})$ und $\chi(\mathbf{u})$ nur symmetrische Anteile haben, ergibt sich unter Berücksichtigung von Symmetrien:

$$I(\mathbf{r}) = 1 + 2\mathcal{F}^{-1}\{(-\tilde{a}(\mathbf{u})\cos(\chi(\mathbf{u})) + \tilde{\varphi}(\mathbf{u})\sin(\chi(\mathbf{u}))\}. \quad (2.17)$$

Der Amplitudenanteil wird also kosinusförmig und der Phasenanteil sinusförmig übertragen. Bei einem schwachen Phasenobjekt ist der Amplitudenanteil zu vernachlässigen und es ergibt sich eine rein sinusabhängige Kontrastübertragung:

$$I(\mathbf{r}) = 1 + 2\mathcal{F}^{-1}(\tilde{\varphi}(\mathbf{u})\sin(\chi(\mathbf{u}))). \quad (2.18)$$

Berücksichtigt man die Dämpfungsfunktion, so tritt der Term multiplikativ auf:

$$I(\mathbf{r}) = 1 + 2\mathcal{F}^{-1}(\tilde{\varphi}(\mathbf{u})E(\mathbf{u})\sin(\chi(\mathbf{u}))). \quad (2.19)$$

2.2.1 Optimale Kontrastübertragung durch die Wahl des Defokuswertes und Objektwellenrekonstruktion mittels Fokussereien

Durch die sinusförmige Kontrastübertragung oszilliert der Kontrasttransfer in Abhängigkeit von u , was zu Übertragungsbändern unterschiedlichen Vorzeichens sowie Übertragungslücken führt. Mit der Wahl eines geeigneten Defokuswertes kann die Form der Übertragungsbänder optimiert werden.

Wegen der reinen Sinusfunktionalität findet jedoch für kleine Ortsfrequenzen nur sehr wenig Kontrastübertrag statt. Um die Interpretierbarkeit der Aufnahmen zu ermöglichen, wird in der Regel nur Kontrastübertrag eines Vorzeichens zugelassen, also bestimmt der erste Nulldurchgang der Sinusfunktion die Auflösung der Aufnahme.

Mit dem sog. Scherzer-Fokus hat Scherzer [1949] einen Wert ermittelt, der ein möglichst breites Frequenzband gleichmäßig phasenschiebt. Dieser ist wie folgt definiert:

$$Z_{Sch} = -1,2(C_s\lambda)^{1/2}. \quad (2.20)$$

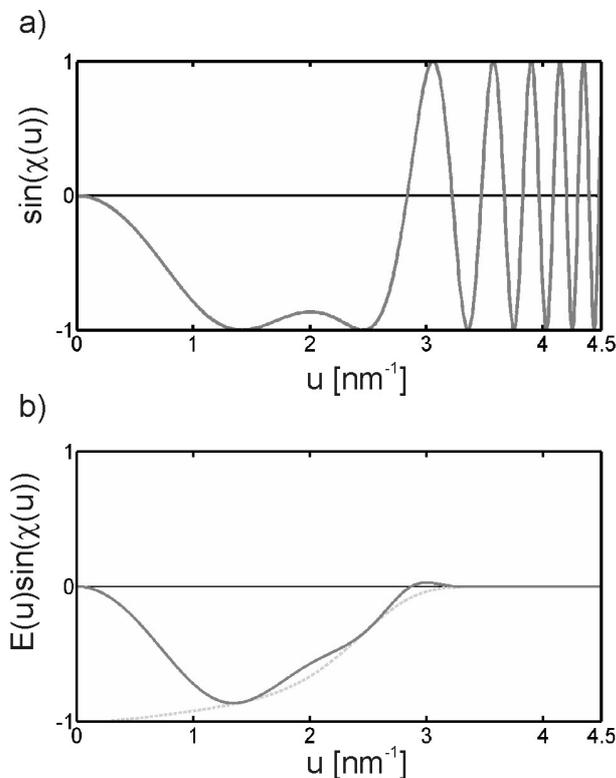


Abbildung 2.2: a) Aufgetragen ist der Sinus der Wellenaberrationsfunktion als Funktion von u , mit dem der Kontrastübertrag eines schwachen Phasenobjekts beschrieben wird. Die verwendeten Parameter sind $C_s = 2,2$ mm, $\lambda = 3,35$ pm und der Scherzerfokus $Z_{Sch} = -96,1$ nm. Es ergibt sich ein breites Übertragungsband bis zur Grenzfrequenz $u_{Sch} = 2,8$ nm⁻¹.

b) Hier ist die obige Sinusfunktion mit der Einhüllenden $E(u)$ (hellgrau gestrichelt dargestellt) multipliziert aufgetragen. Für die Dämpfungsfunktion wurden folgende Werte angenommen: $C_c = 2,2$ mm, $\Delta I/I = 1 \cdot 10^{-6}$, $\Delta E/E = 6,7 \cdot 10^{-6}$, $\Delta U/U = 8,3 \cdot 10^{-6}$ und $\alpha = 1$ mrad.

In Abb. 2.2 ist der Sinus der Wellenaberrationsfunktion für den Scherzerfokus grafisch dargestellt. Die verwendeten Mikroskopparameter in $\chi(\mathbf{u})$ sind: $C_s = 2,2 \text{ mm}$, $\lambda = 3,35 \text{ pm}$ und $Z_{\text{Sch}} = -96,1 \text{ nm}$. Die Scherzer-Auflösung wird dann durch den ersten Nulldurchgang der Sinusfunktion bestimmt.

Er lässt sich berechnen mit:

$$u_{\text{Sch}} = 1,51C_s^{-1/4}\lambda^{-3/4} = 2,8 \cdot 10^9 \text{ m}^{-1}. \quad (2.21)$$

Diese Ortsfrequenz bestimmt die Auflösung der Aufnahme, die sich aus dem Kehrwert zu $r_{\text{Sch}} = 0,36 \text{ nm}$ ergibt.

Der Scherzerfokus bietet also ein breites Übertragungsband bis hin zu hohen Auflösungen und wird deshalb in der hochauflösenden TEM häufig verwendet. Vor allem für biologische Objekte ist jedoch der Kontrastübertrag von kleineren Ortsfrequenzen (was größeren Strukturen in der Probe entspricht) entscheidend – und diese ist für den Scherzerfokus für alle Strukturen $> 1,5 \text{ nm}$ in diesem Beispiel unter 50 %. Um biologische Proben abbilden zu können, ist häufig ein sehr starker Defokuswert von mehreren Mikrometern notwendig, damit auch niedrige Ortsfrequenzen übertragen werden. Dies führt jedoch zu starken Delokalisierungseffekten sowie Fresnelsäumen an Umrissen und Kanten.

Ein Verfahren, um ein schwaches Phasenobjekt abzubilden, ist die Fokuserien-Rekonstruktion [Coene 1996, Thust 1996, Koch 2008]. Hierbei wird eine Probenstelle mehrmals hintereinander unter Verwendung verschiedener Defokuswerte abgebildet. Hierdurch verschieben sich die Übertragungsbänder der Transferfunktion und es ist möglich aus diesen Aufnahmen ein korrigiertes Bild zu rekonstruieren.

Da die Kontrastübertragung für schwache Phasenobjekte immer sinusförmig erfolgt, bleibt jedoch das Problem der schwachen Kontrastübertragung für niedrige Ortsfrequenzen. Eine weitere Problematik vor allem aus dem Bereich der biologischen und medizinischen Forschung ist die Strahlungsempfindlichkeit der Proben. Diese beschränkt die maximal sinnvolle Bestrahlungsdosis häufig auf wenige Elektronen pro Å^2 . Wenn eine Maximaldosis auf eine Serie von zum Beispiel sechs Bildern aufgeteilt werden muss, verschlechtert sich das Signal-zu-Rausch Verhältnis (SNR) und eine Rekonstruktion wird damit kaum möglich.

2.2.2 C_s als neuer Parameter im Kontrasttransfer

Mit der Entwicklung des Doppel-Hexapol Aberrations-Korrektors [Rose 1990, Haider 1998, 1-3, Urban 1999] wurde die Öffnungsfehlerkonstante C_s zu einem freien Mikroskopparameter,

vergleichbar mit dem Fokuswert. Sowohl positive als auch negative Werte können eingestellt werden und somit erhöhen sich die Möglichkeiten der Modulation des Kontrasttransfers immens.

Die Verwendung des Scherzerfokuses ist im Rahmen der neuen Möglichkeiten nicht mehr unbedingt günstig. Lentzen [2004] bestimmte Abbildungsbedingungen, die für verschiedene Probedicken die ideale Kombination aus C_s und Defokuswert liefern. Dieser besteht aus drei Möglichkeiten: Positives C_s mit Unterfokus, C_s und Fokus gleich Null, sowie negatives C_s mit Überfokus.

Für schwache Phasenobjekte bleibt jedoch ein geringer Kontrasttransfer für niedrige Ortsfrequenzen erhalten. Die optimale Abbildungsbedingung hierfür wäre die Kombination eines C_s -Korrektors mit einer physikalischen Phasenplatte, so dass die Hauptterme der Wellenaberration komplett unterdrückt werden könnten (mit $Z = 0$ und $C_s = 0$). Mit Hilfe der Phasenplatte kann dann eine frequenzunabhängige relative Phasenschiebung zwischen gestreuten und ungestreuten Elektronen Phasenkontrast erzeugen.

2.3 Physikalische Phasenplatten

Im Gegensatz zur Erzeugung von frequenzabhängigem Phasenkontrast mit Hilfe der Transferfunktion ist die Idee einer physikalischen Phasenplatte (PP), eine gleichmäßige Phasenschiebung für alle Ortsfrequenzen zu erzeugen. Im Idealfall eines aberrationsfreien Mikroskops würde dann eine einzige Abbildung genügen, um ein schwaches Phasenobjekt mit sichtbarem Phasenkontrast abzubilden.

In einem konventionellen Transmissionselektronenmikroskop ohne C_s -Korrektor wirkt die Phasenplatte zusätzlich zur Wellenaberration. Sie kann beschrieben werden durch eine zusätzliche konstante Phasenschiebung φ_{PP} :

$$\chi_{PP}(\mathbf{u}) = \frac{\pi}{2}(C_s\lambda^3\mathbf{u}^4 + 2Z\lambda\mathbf{u}^2) + \varphi_{PP}. \quad (2.22)$$

Bei Erzeugung einer Phasenschiebung von $\pi/2$ wandelt sich der Sinus der Gleichung (2.19) für schwache Phasenobjekte in eine Kosinusfunktion:

$$I_{PP}(\mathbf{r}) = 1 + 2\mathcal{F}^{-1}(\tilde{\varphi}(\mathbf{u}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{u}) \cdot \cos(\chi(\mathbf{u}))). \quad (2.23)$$

Damit erfolgt bereits für kleine Ortsfrequenzen ein starker Kontrastübertrag und mit der Wahl eines Scherzer-ähnlichen Defokuswertes lässt sich ein breites Übertragungsband erzeugen [Danev 2001, 1]:

$$Z_{PP} = -0,73(C_s \lambda)^{1/2}. \quad (2.24)$$

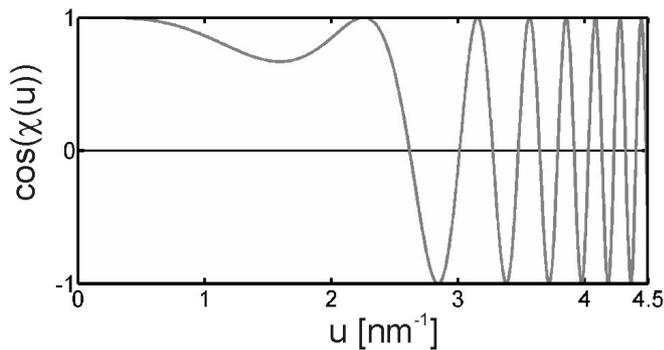


Abbildung 2.3: Aufgetragen ist der Kosinus der Wellenaberrationsfunktion als Funktion von u , mit dem der Kontrastübertrag eines schwachen Phasenobjekts bei Verwendung einer Phasenplatte mit Phasenschiebung $\pi/2$ beschrieben wird. Die verwendeten Parameter sind $C_s = 2,2 \text{ mm}$, $\lambda = 3,35 \text{ pm}$ und der Scherzer-ähnliche Fokus $Z_{PP} = -62,7 \text{ nm}$.

Dieser ergibt $Z_{PP} = -62,7 \text{ nm}$ für $C_s = 2,2 \text{ mm}$ und $\lambda = 3,35 \text{ pm}$. Durch die Kosinusfunktionalität verschiebt sich der erste Nulldurchgang des Kontrasttransfers leicht zu niedrigeren Frequenzen, weshalb die Punktauflösung etwas verschlechtert wird. Der Nulldurchgang kann berechnet werden mit:

$$u_{PP} = 1,40 C_s^{-1/4} \lambda^{-3/4} = 2,6 \cdot 10^9 \text{ m}^{-1}. \quad (2.25)$$

Die Auflösung des Bildes wird geringfügig auf $r_{PP} = 0,38 \text{ nm}$ reduziert.

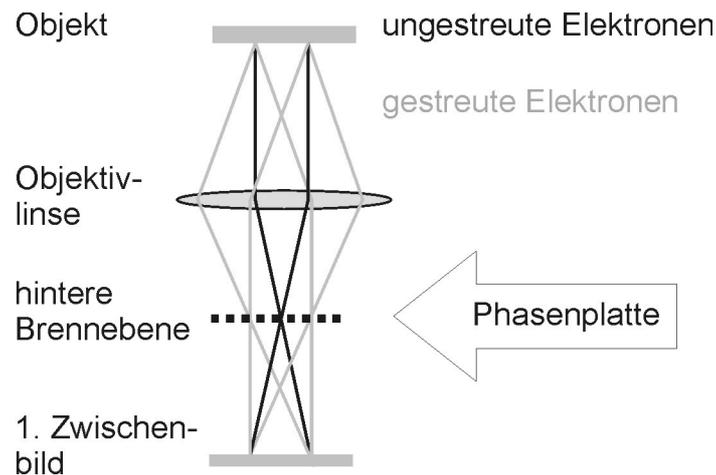


Abbildung 2.4 Strahlengang in einem Transmissionselektronenmikroskop zwischen der Objektebene und der ersten Zwischenbildebene. Durch die Objektivlinse treffen sich alle ungestreuten Elektronen in der hinteren Brennebene im Nullstrahl. Hiervon sind die gestreuten Elektronen räumlich getrennt, weshalb in dieser Ebene eine physikalische Phasenplatte eingebracht werden kann.

Um eine konstante relative Phasenschiebung zwischen ungestreuten und gestreuten Elektronen zu erwirken, bietet sich die hintere Brennebene der Objektivlinse an. Hier sind die gestreuten von den ungestreuten Elektronen räumlich getrennt (siehe Abb. 2.4). Da die Phasenschiebung nur relativ sein muss, ist sowohl die Wirkung einer physikalischen Phasenplatte auf den gestreuten als auch auf den ungestreuten Elektronenteil möglich.

Theoretische Arbeiten zur Phasenkontrasttheorie in der Lichtoptik, sowie Möglichkeiten zu analogen Konstruktionen im Transmissionselektronenmikroskop wurden bereits vor über 60 Jahren veröffentlicht [Zernike 1935, Boersch 1947].

In der Praxis wurden bis heute mehrere Varianten zu zwei unterschiedlichen Prinzipien realisiert: Dünnschicht-Phasenplatten und elektrostatische Phasenplatten. Im Folgenden werden die Konzepte der wichtigsten Typen kurz vorgestellt.

2.3.1 Zernike Filmphasenplatten

Zernike Filmphasenplatten (ZFP) wurden erstmals von der Gruppe um Nagayama realisiert [Danev 2001, 1] und bestehen aus einem sehr dünnen amorphen Kohlenstoff (aC) Film, der in der Mitte eine kleine kreisrunde Öffnung von etwa 1 μm Durchmesser hat. Dieser dünne Film wird in der hinteren Brennebene senkrecht zum Elektronenstrahl eingebaut und die

innere Öffnung um den Nullstrahl (NS) positioniert, sodass dieser die Phasenplatte unbeeinflusst passieren kann.

Die gestreuten Elektronen passieren den aC Film, werden dort durch das mittlere innere Potential des Kohlenstoffs beschleunigt und dadurch relativ zum NS phasengeschoben. Wird die Filmdicke entsprechend gewählt, kann eine Phasenschiebung von $\pi/2$ erreicht werden. Die Phasenschiebung kann analog zu Gl. 2.2 wie folgt berechnet werden:

$$\varphi_{ZPP}(\mathbf{r}) = \frac{\pi e}{\lambda E} D(E) V_i t, \quad (2.26)$$

mit dem mittleren inneren Potential (MIP) des Kohlenstoffs V_i und der Dicke des Filmes t . Nehmen wir als MIP einen Wert von 9,09 V an [Wanner 2006], so kann die Schichtdicke, die zu einer Phasenschiebung von $\pi/2$ führt, zu 22,4 nm bestimmt werden (für 120 kV Beschleunigungsspannung).

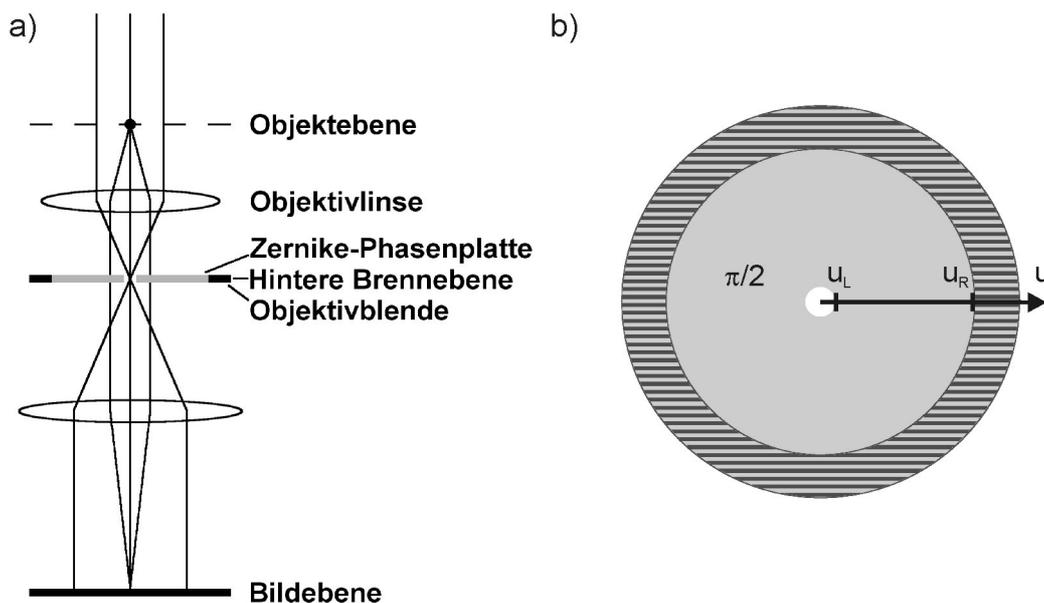


Abbildung 2.5: a) Schematische Darstellung einer ZPP im Strahlengang eines Transmissionselektronenmikroskops. Der Film befindet sich in der hinteren Brennebene, wobei die zentrale Öffnung so positioniert wird, dass der NS unbeeinflusst die PP passieren kann. Die gestreuten Elektronen durchlaufen das MIP des aC Films. b) Schematische Darstellung einer ZPP, die weiße Fläche zeigt die innere Öffnung für den NS, die graue Fläche den Bereich des aC Filmes und die schraffierte Fläche stellt die Berandung durch eine Objektivblende dar. Die Ortsfrequenzen der Elektronen in der hinteren Brennebene werden durch die u -Achse beschrieben. u_L ist die Grenzfrequenz am Rand des Lochs, ab welcher die Phasenschiebung durch den Film wirkt, u_R ist die obere Grenzfrequenz am Rand, bis zu welcher Frequenzen maximal übertragen werden können.

In Abb. 2.5a) ist schematisch eine positionierte ZPP dargestellt. Der Film sitzt in der hinteren Brennebene der Objektivlinse. Abb. 2.5b) zeigt die relevanten Raumfrequenzen im Fourierraum, um die Grenzen des Kontrastübertrags zu beschreiben.

Die Frequenz, ab der die Phasenplatte auf die gestreuten Elektronen wirkt, wird cut-on Frequenz genannt. In Abb. 2.5b) ist sie mit u_L bezeichnet. In der WPO-Näherung findet ein kosinusförmiger Kontrasttransfer für die Frequenzen zwischen dem Lochrand (u_L) und dem Rand der Objektivblende (u_R) statt.

Zusätzlich zu dem gewünschten Phasenschiebungseffekt kommt es innerhalb des Filmes zur Streuung von Elektronen, weshalb der kohärente Anteil der Austrittswelle gedämpft wird [Majorovits 2002]. Vor allem für höhere Ortsfrequenzen wird das SNR dadurch sehr schlecht, da durch den Abfall der Übertragungsfunktion durch die Envelopen nur schwache hochfrequente Anteile der Wellenfunktion zum Bild beitragen, deren Amplitude durch den Film weiter verringert wird.

Durch experimentelle Unsicherheiten kann die gewünschte Schichtdicke nur mit einer bestimmten Genauigkeit hergestellt werden – die resultierende Phasenschiebung ist damit festgelegt und kann nicht variiert werden. Außerdem kann es durch eine Granularität im Film zu einer räumlich inhomogenen Phasenschiebung kommen.

Restmoleküle im Vakuum führen zur Kontamination des Filmes und die deponierten Kohlenwasserstoffe können sich lokal aufladen, was zu zusätzlichen ungewünschten Ablenkungen der Elektronen führt. Um diesen Effekt zu minimieren, werden die Phasenplatten beheizt [Danev 2009].

Trotz der erwähnten Nachteile ist die ZPP aufgrund der einfachen Herstellung hauptsächlich in der Biologie ein etabliertes Hilfsmittel zur Erzeugung von Phasenkontrast.

2.3.2 Hilbert Filmphasenplatten

Bei der Hilbert Filmphasenplatte (HPP, [Danev 2001, 2]) wird nur die Hälfte der hinteren Brennebene von einem aC Film bedeckt (siehe Abb. 2.6a). Dieser wird in der Dicke allerdings so gewählt, dass die durchlaufenden Elektronen eine zusätzliche Phasenschiebung von π erfahren. Die restlichen gestreuten Elektronen sowie der NS durchlaufen unbeeinflusst die hintere Brennebene. In Abb. 2.6b) ist schematisch die Lage der HPP im Fourierraum dargestellt. Nur die Elektronen mit $u_x < u_K$ werden phasengeschoben.

Für eine HPP Aufnahme ergibt sich folgende Intensität (WPO-Näherung):

$$I_{HPP}(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 + 2\mathcal{F}^{-1}(\tilde{\varphi}(\mathbf{u}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{u}) \cdot \sin(\chi(\mathbf{u})), & |u_x| \leq |u_K| \\ 1 + 2\mathcal{F}^{-1}(i \cdot \text{sign}(u_x) \cdot \tilde{\varphi}(\mathbf{u}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{u}) \cdot \cos(\chi(\mathbf{u})), & |u_K| < |u_x| \leq |u_R| \end{cases} \quad (2.27)$$

D.h. innerhalb eines schmalen Streifens $|u_x| \leq |u_K|$ findet eine konventionelle sinusförmige Kontrastübertragung statt. Für den äußeren Frequenzbereich $|u_K| < |u_x| \leq |u_R|$ ähnelt die Kontrastübertragung der in Gl. (2.23), die den Übertrag mit einer symmetrischen $\pi/2$ Phasenplatte beschreibt.

Die Intensität eines ZPP-Bildes kann daher aus einer HPP Aufnahme rekonstruiert werden [Danev 2004]. Hierfür wird die Fouriertransformierte der unteren Gleichung von Gl. (2.27) mit dem Faktor $-i \cdot \text{sign}(u_x)$ multipliziert, d.h. der Wellenanteil, der durch den Film lief, wird mit $\exp(i\pi/2) = i$ und der andere mit $\exp(-i\pi/2) = -i$ multipliziert. Die resultierende Rekonstruktion zeigt Zernike Phasenkontrast.

Die Nachteile einer HPP sind ähnlich der ZPP (Dickenunsicherheit, Kontamination, Kohärenzverluste durch inelastische Streuung). Ein praktischer Vorteil der HPP ist, dass bei Kontamination einer Stelle die Phasenplatte entlang der Kante verschoben und eine andere Stelle verwendet werden kann.

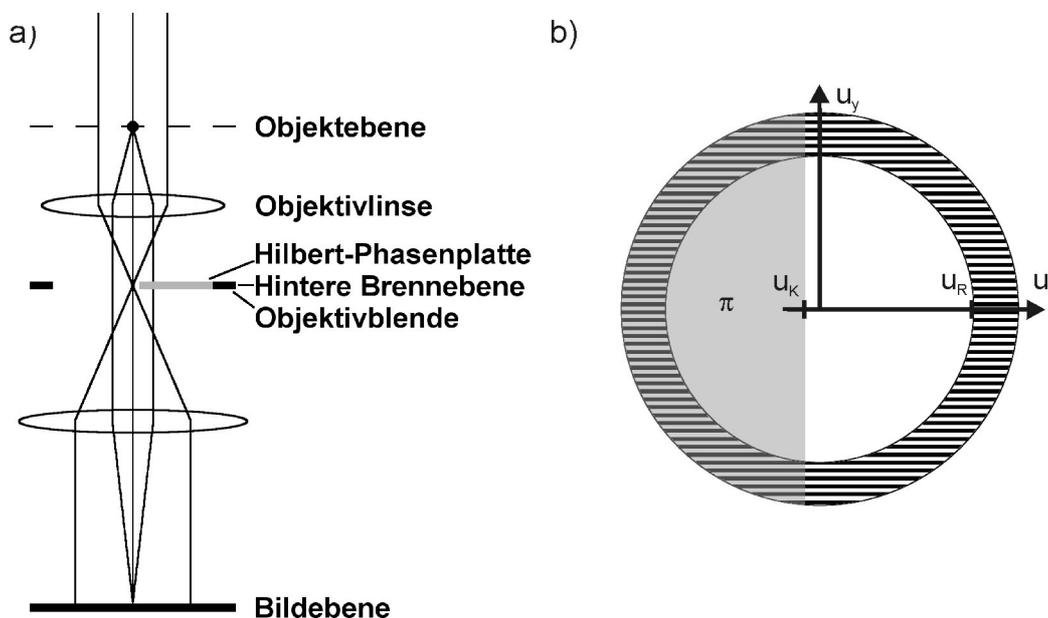


Abbildung 2.6: a) Schematische Darstellung einer HPP im Strahlengang eines Transmissionselektronenmikroskops. Der Film verdeckt die Hälfte der hinteren Brennebene. b) HPP dargestellt im reziproken Raum. Durch den weißen Bereich laufen die NS und die von der HPP unbeeinflussten gestreuten Elektronen. Der Anteil der gestreuten Elektronen mit $u_x \leq u_K$ läuft durch den Film, der den Elektronen eine zusätzliche Phasenschiebung von π aufprägt.

2.3.3 Elektrostatische Boersch Phasenplatten

Im Gegensatz zu den Filmphasenplatten wird bei den elektrostatischen PPs die zusätzliche Phasenschiebung mit einem stark lokalisierten elektrostatischen Potential in der hinteren Brennebene erzeugt. Die theoretischen Überlegungen von Boersch [1947] scheiterten über 60 Jahre an der technischen Realisierung, da die Anforderungen an die Dimensionen die vorhandenen Möglichkeiten übertrafen. Die Boersch Phasenplatte (BPP) besteht aus einer ringförmigen elektrostatischen Mikrolinse, die um den NS positioniert wird (siehe Abb. 2.7a). Durch Anlegen einer Spannung wird ein symmetrisches Potential erzeugt, das die ungestreuten Elektronen zuerst beschleunigt und dann wieder abbremst (oder umgekehrt bei anderem Vorzeichen der Spannung). Dies ist möglich durch einen mehrschichtigen Aufbau, bei dem eine mittlere Elektroden-schicht jeweils oben und unten von einem Isolator und einer Erdungsschicht umgeben ist. Hierdurch wird eine Phasenschiebung relativ zu den gestreuten Elektronen erzeugt, die die hintere Brennebene außerhalb der Ringlinse durchlaufen.

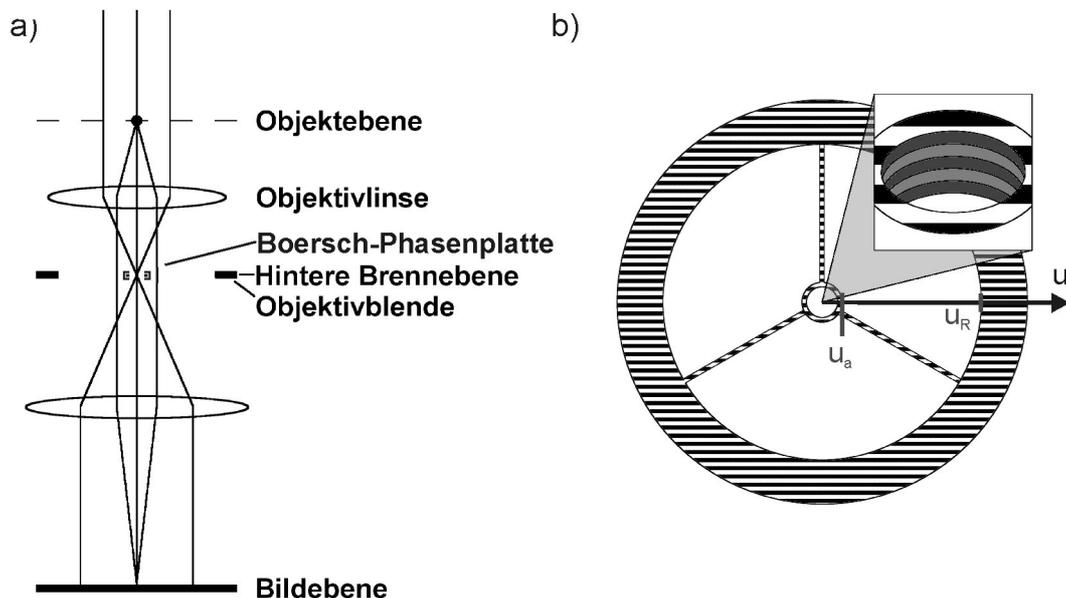


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung einer BPP im Strahlengang eines Transmissionselektronenmikroskops. Die Ringelektrode liegt um den NS und erzeugt dort eine variable Phasenschiebung. b) BPP dargestellt im reziproken Raum. Durch die innere Öffnung läuft der NS und erfährt durch das elektrostatische Potential eine Phasenschiebung. Die gestreuten Elektronen ab einer Frequenz von u_a durchlaufen unbeeinflusst den feldfreien Raum in den drei äußeren Sektoren. Im vergrößerten Ausschnitt ist die Schichtstruktur der Mikrolinse zu erkennen.

In Abb. 2.7b) ist eine BPP schematisch im reziproken Raum dargestellt. Die Ringlinse sitzt um den NS und ist mittels dreier Stege fixiert. Ab der Grenzfrequenz u_a , die dem äußeren Rand der Ringlinse entspricht, findet in der WPO-Näherung kosinusförmiger Kontrastübertrag (vgl. Gl. 2.23) analog zur ZPP statt. Raumfrequenzen, die auf dem Ring liegen (zwischen dem inneren und äußeren Rand, entsprechend u_i und u_a), werden durch die Struktur verdeckt, ebenso wie Elektronen durch die Stege aus der Aufnahme herausgefiltert werden.

Matsumoto und Tonomura beschrieben erstmals eine technische Realisierung der BPP mit einer elektrostatischen Einzellinse [Matsumoto 1996]. Die Phasenschiebung, die durch das Potential erzeugt wird, kann wie folgt berechnet werden:

$$\varphi_{PP} = \frac{\pi e}{\lambda E} D(E) \int_{-\infty}^{\infty} dz \phi(z). \tag{2.28}$$

Mit Hilfe der Laplace-Gleichung zeigten sie, dass in der Näherung einer schwachen Linse das integrierte Potential Φ_0 innerhalb der Ringlinse konstant ist. Abb. 2.8 zeigt ein einfaches Modell, mit dem Φ_0 in Abhängigkeit der Schichtdicken bestimmt werden kann.

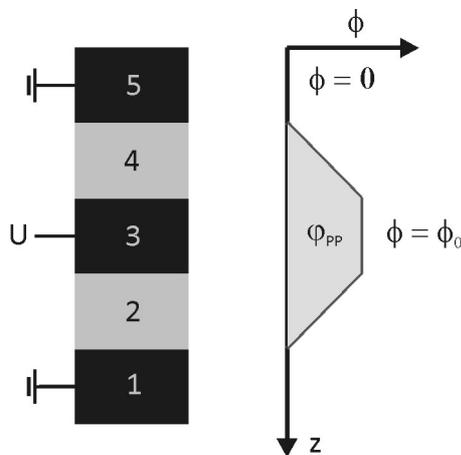


Abbildung 2.8: Einfaches Modell zur Berechnung des integrierten elektrostatischen Potentials Φ_0 [Barton 2005]. Links ist der Schichtaufbau der Mikrolinse zu sehen. Die Schichten 1 und 5 sind geerdete Metallschichten, das Potential in diesem Bereich ist Null. An die Elektrodenlage 3 ist die Spannung ϕ_0 angelegt, über diesen z-Bereich wird angenommen, das Potential sei konstant ϕ_0 . Im Verlauf der Isolationsschichten (2 und 4) wird ein linearer Abfall des Potentials zu den Erdungsschichten angenommen.

Es wird hierbei angenommen, dass das Potential über den z-Bereich der Elektrode konstant bleibt und im Bereich des Isolators linear zu den Erdungsschichten abnimmt. Damit ergibt sich Φ_0 zu:

$$\Phi_0 = \phi_0 \left(\frac{t_2}{2} + t_3 + \frac{t_4}{2} \right), \tag{2.29}$$

mit den Schichtdicken t_i wie in Abb. 2.8 zu sehen. Mit diesem Modell ergäbe sich für eine BPP mit gleichmäßigen Schichtdicken von $t_i = 100$ nm bei einer angelegten Spannung von 1,02 V eine Phasenschiebung von $\pi/2$.

Die Näherung einer schwachen Linse gilt für sehr große Brennweiten F . Den fokussierenden Effekt der BPP kann man beschreiben, indem man die Wegdifferenz betrachtet, die ein Elektron im äußeren Feldbereich verglichen mit einem Elektron auf der optischen Achse zurücklegt. Daraus ergibt sich eine Phasendifferenz $\varphi_{Linse}(r)$:

$$\varphi_{Linse}(r) = \frac{2\pi r^2}{\lambda F}. \quad (2.30)$$

In der hinteren Brennebene ergibt sich damit eine u^2 -Abhängigkeit der Phasenschiebung:

$$\varphi_{Linse}(u) = 2\pi\lambda \cdot \frac{f^2}{F} \cdot u^2. \quad (2.31)$$

Damit entspricht ein möglicher Linseneffekt der BPP dem Einfluss auf den Kontrasttransfer durch das Defokussieren der Objektivlinse.

In den von den Stegen verdeckten Bereichen wird durch deren asymmetrische Anordnung für Friedel-symmetrische Strukturfaktoren Kontrast durch eine sogenannte Single Sideband (SSB) Abbildung erzeugt. Dabei wird eine Hälfte der Brennebene im Bereich des Steges komplett verdeckt, während Elektronen der Friedel-symmetrischen Strukturfaktoren auf der gegenüberliegenden Hälfte ungestört die hintere Brennebene durchlaufen können. Die Intensität einer Abbildung mit SSB Kontrastübertrag lässt sich wie folgt beschreiben [Majorovits 2007]:

$$I_{SSB}(\mathbf{u}) = 1 + 2\mathcal{F}^{-1}\left(\frac{1}{2} \cdot i \cdot \text{sign}(u_x) \cdot \tilde{\varphi}(\mathbf{u}) \cdot E(\mathbf{u}) \cdot \exp(i \cdot \text{sign}(u_x) \cdot \chi(\mathbf{u}))\right). \quad (2.32)$$

Durch die dreizählige Symmetrie der Stege geht also keine Bildinformation komplett verloren, sondern kann in den entsprechenden Bereichen korrigiert werden. Hierfür werden im Fourierraum die inversen Funktionen aus Gl. 2.32 auf die Frequenzen aufmultipliziert, also $-i \cdot \text{sign}(u_x) \cdot \exp(i \cdot \text{sign}(u_{x,Steg}) \chi'(\mathbf{u}))$ auf den teilverdeckten Bereich. Das stellt gegenüber einer BPP mit zwei gegenüberliegenden Stegen einen Vorteil dar, da bei diesen jeweils beide Teile der symmetrischen Friedel Strukturfaktoren verloren gehen.

Bei einer SSB Abbildung gehen allerdings 50% der kohärent gestreuten Elektronen verloren, was bei einer Abbildung mit begrenzter Strahldosis das SNR weiter verschlechtert.

2.3.4 Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope (PACEM)

Das Phase Aberration Corrected Electron Microscope (PACEM) ist ein speziell für die Phasenplattenmikroskopie entwickeltes Transmissionselektronenmikroskop, das mit einer zusätzlichen Elektronenoptik ausgestattet ist. Das PACEM wurde in einer Kooperation des Max-Planck Instituts für Biophysik (Frankfurt am Main) mit Carl Zeiss SMT (Oberkochen) gebaut.

In einem Transferdoublet wird eine vergrößerte Abbildung der Beugungsebene erzeugt. Der Strahlengang der Vergrößerungseinheit ist in Abb. 2.9 zu sehen [Barton 2008]. Die Beugungsebene in der 2. Transferlinse ist um das Fünffache vergrößert. Hierdurch wird der Effekt der Blockierung von Elektronen kleiner Frequenzen durch den Ring einer BPP dramatisch reduziert und es können mehr Bilddetails niedriger Raumfrequenzen aufgenommen werden.

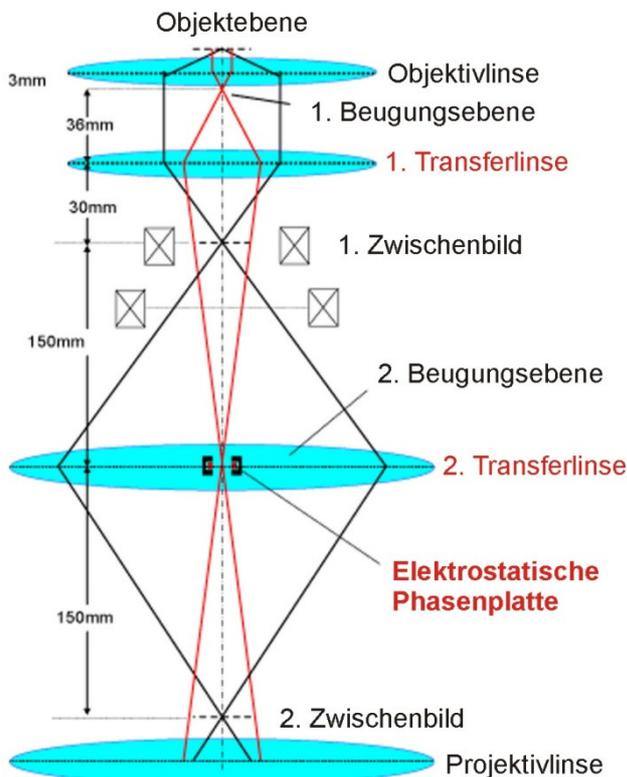


Abbildung 2.9: Strahlengang der Vergrößerungseinheit im PACEM. Die zusätzlichen Transferlinsen erzeugen ein verkleinertes 1. Zwischenbild und ein vergrößertes Bild der Beugungsebene in der Ebene der 2. Transferlinse. In diese vergrößerte Beugungsebene kann eine BPP positioniert werden. Durch die Fünffache Vergrößerung der Beugungsebene verdeckt der Ring der Phasenplatte nur ein Fünftel der Ortsfrequenzen im Vergleich zu einer herkömmlichen Optik. Damit kann die Aufnahmequalität bei positionierter PP erheblich verbessert werden. [Barton 2008]

Die cut-on Frequenz wird durch eine Vergrößerung M der Brennweite wie folgt beeinflusst:

$$u_a^{(M)} = \frac{r_a}{M\lambda f} \quad (2.33)$$

mit dem äußeren Radius der Ringelektrodenstruktur einer BPP r_a .

Um die ungewünschte Verstärkung der Linsenaberrationen zu kompensieren, die mit der vergrößerten Brennweite verknüpft ist, wurde das Mikroskop mit einem Doppel-Hexapol C_5 Korrektor ausgestattet. Damit sind die optimalen Bedingungen für BPP TEM gegeben und es kann maximaler Phasenkontrast erzeugt werden [Gamm 2008].

Das PACEM ist mittlerweile installiert und es wurden erste Tests mit einer BPP durchgeführt (siehe Kap. 4).

2.3.5 Anamorphotische Phasenplatten

Die ebenfalls elektrostatische anamorphotische Phasenplatte (APP) wurde das erste Mal von Schröder vorgestellt [Schröder 2007]. Die Besonderheit bei diesem Konzept ist, dass eine spezielle Optik benötigt wird, um ein anamorphotisches Bild der Brennebene der Objektivlinse zu erzeugen. Die anamorphotische Brennebene ist in einer Richtung gestaucht, sodass das Beugungsbild nicht mehr rund, sondern oval mit sehr starker Vorzugsachse erscheint.

Durch diese Optik ist es möglich, die Elektronen ohne Behinderung durch die PP Geometrie mit einem zusätzlichen elektrostatischen Potential zu beeinflussen. Alle Elektronen, die die hintere Brennebene passieren, tragen somit zum Bild bei (vgl. Abschattung durch den Ring und die Stege bei der BPP).

Das Feld wird wie bei der BPP durch eine fünfschichtige Elektrodenanordnung erzeugt. Diese ist jedoch rechteckig in einem bestimmten Aspektverhältnis (z.B. 10:1). In Abb. 2.10 ist das Schema einer anamorphotischen Phasenplatte dargestellt. Zu sehen ist die mittlere Elektrodenschicht. Sie besteht aus zwei Elektroden, an die eine Spannung angelegt werden kann. Hier ist die linke Elektrode geerdet und auf der rechten Seite eine Spannung U angelegt, sodass die gestreuten Elektronen auf dieser Seite um π phasengeschoben werden.

Der NS und die linke Hälfte der gestreuten Elektronen laufen durch den feldfreien Bereich. Hierdurch entsteht ein Hilbert-artiger Kontrast (vgl. Kap. 2.3.2), ohne dass jedoch eine Dämpfung der phasengeschobenen Elektronen auftritt.

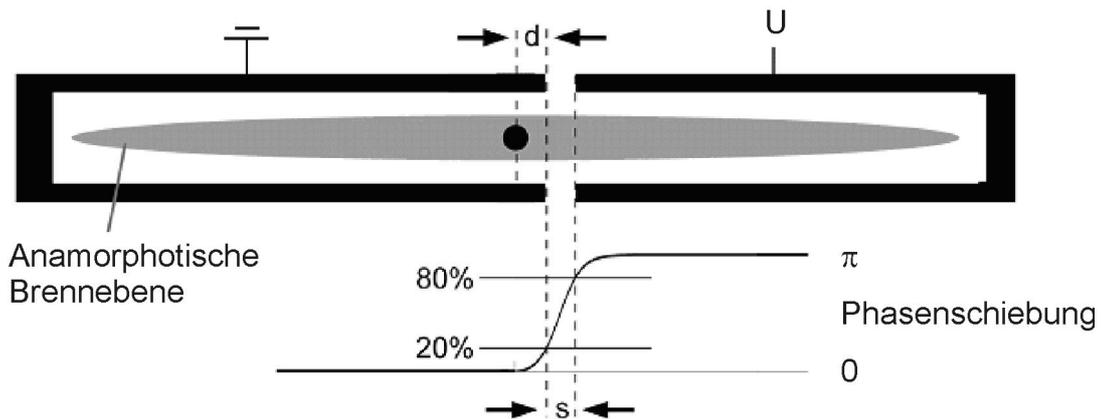


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung einer anamorphotischen PP im Hilbert-Modus. Die PP ist in einer anamorphotischen Brennebene angebracht, die in einer Richtung stark gestaucht ist. Durch die Spannung U wird auf der rechten Seite ein Potential erzeugt, durch das die eine Hälfte der gestreuten Elektronen läuft. Sie wird hierbei um π phasengeschoben, was einen Hilbert-artigen Kontrast erzeugt.

Durch eine andere Anordnung der Elektroden ist es auch möglich, Zernike-artigen Phasenkontrast zu erzeugen, in dem ein Potential nur im Bereich des NS bzw. auf beiden Seiten nur im Bereich der gestreuten Elektronen erzeugt wird.

Der Übergang zwischen unterschiedlichen Potentialbereichen verläuft in jedem Fall nicht beliebig steil (siehe Abb. 2.10 unten). Während der Strecke s erhöht sich die aufgeprägte Phasenschiebung von 20% auf 80%, sodass es eine Art fließende cut-on Frequenz gibt. Simulationen mit variierenden Schichtdicken sowie unterschiedlichen Aspekt-Verhältnissen und Nullstrahlpositionen [Frindt 2009] zeigen die optimalen Parameter für das Design einer APP.

Das Konzept der APP ist vielversprechend, da eine Phasenschiebung erzeugt werden kann ohne dass die Elektronen durch Wechselwirkung mit Materie ungewünscht beeinflusst werden. Durch die spezielle Anforderung an die Optik wurde bisher noch keine APP experimentell getestet.

2.3.6 Zach Phasenplatten

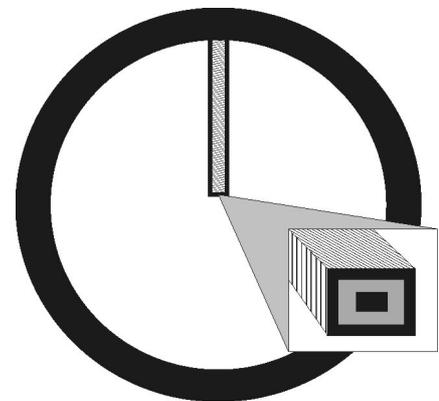
Ein von Zach vorgeschlagenes neues PP-Konzept [Zach Patent] ist eine neue Variante der elektrostatischen PP. Die Zach Phasenplatte besteht aus einem coaxialen Mikrokabel, das in der Nähe des NS gebracht wird. In Abb. 2.11 ist ein Schema einer Zach PP zu sehen. Bei

Anlegen einer Spannung an die zentrale Leitung entsteht von der Spitze ausgehend ein elektrostatisches Potential, das nach außen hin schnell abfällt.

Wird der NS durch dieses Potential geführt, so ist es möglich, eine relative Phasenschiebung zu den gestreuten Elektronen zu erzeugen, da diese kaum durch das Potential beeinflusst werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde zum ersten Mal eine Zach PP hergestellt und damit PP TEM Bilder aufgenommen [Schultheiß 2010].

Der große Vorteil gegenüber der BPP ist hierbei, dass kein komplettes Frequenzband aus dem Bild herausgefiltert wird. In Kapitel 5 wird das Potential der Zach PP detailliert besprochen.

Abbildung 2.11: Schematische Darstellung einer Zach PP. Ein koaxiales Mikrokabel wird in der Nähe des NS positioniert. Das Kabel besteht aus einer zentralen metallischen Elektrode, an die ein Potential angelegt werden kann. Sie ist von einer Isolationsschicht und einer Erdungsschicht umgeben. Legt man eine Spannung an die Elektrode an, bildet sich an der Spitze der Zach PP ein radial schnell abfallendes Potential aus, durch das der NS phasengeschoben werden kann.



2.4 Nicht-lineare Bildentstehung

Für kristalline Proben gilt die WPO-Näherung nicht, da diese Proben schon bei geringen Schichtdicken stark streuen. Hinzu kommt, dass auch die gebeugten Strahlen miteinander wechselwirken. Für die Kontrastübertragung wird deshalb der sog. *transmission cross coefficient* (TCC) verwendet. Die Intensität im Fourierraum wird damit dargestellt wie folgt:

$$I(\mathbf{u}) = \int T(\mathbf{u}' + \mathbf{u}, \mathbf{u}') \cdot F(\mathbf{u}' + \mathbf{u}) \cdot F^*(\mathbf{u}') d\mathbf{u}' = \int T(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') \cdot F(\mathbf{u}'') \cdot F^*(\mathbf{u}') d\mathbf{u}'. \quad (2.34)$$

Jeder Punkt der Intensität besteht also aus Beiträgen aller Raumfrequenzen. Der TCC setzt sich folgendermaßen zusammen:

$$T(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') = A(\mathbf{u}'') \cdot A(\mathbf{u}') \cdot E_T(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') \cdot E_S(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') \cdot \exp \{-i(\chi(\mathbf{u}'') - \chi(\mathbf{u}'))\}, \quad (2.35)$$

hierbei sind die Envelopen gegeben durch:

$$E_T(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') = \exp \left(-\frac{1}{2} (\pi \lambda \delta)^2 \cdot (\mathbf{u}''^2 - \mathbf{u}'^2)^2 \right), \quad (2.36)$$

$$E_S(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') = \exp \left(-\left(\frac{\pi \alpha}{\lambda} \right)^2 \cdot \left((C_s \lambda^3 \mathbf{u}''^3 + Z \lambda \mathbf{u}'') - (C_s \lambda^3 \mathbf{u}'^3 + Z \lambda \mathbf{u}') \right)^2 \right). \quad (2.37)$$

Für vernachlässigbare Wechselwirkung zwischen gestreuten Elektronen wäre $\mathbf{u}' = 0$ und in diesem Grenzfall würde der TCC wieder der normalen CTF entsprechen. Für die Intensität einer Aufnahme ergibt sich:

$$I(\mathbf{u}) = \mathcal{F}^{-1} \left(\int T(\mathbf{u}'', \mathbf{u}') \cdot F(\mathbf{u}'') \cdot F(\mathbf{u}') d\mathbf{u}' \right). \quad (2.38)$$

Wenn eine Phasenplatte bei Proben mit nicht-linearer Bildentstehung verwendet wird, so muss deren Einfluss auf alle Raumfrequenzen \mathbf{u}' überprüft werden.

3 Herstellung elektrostatischer Phasenplatten und Einbau in ein Transmissionselektronenmikroskop

Bereits 1947 wurde von Boersch die Verwendung elektrostatischer Phasenplatten im Transmissionselektronenmikroskop vorgeschlagen [Boersch 1947]. Durch eine elektrostatische Mikrolinse bestehend aus drei Elektroden, soll in der hinteren Brennebene der Objektivlinse ein elektrostatisches Feld erzeugt werden, das den Nullstrahl um $\pi/2$ phasenschiebt. Da jedoch die erforderlichen Linsendimensionen zu klein waren, war eine technische Realisierung zu dieser Zeit undenkbar. Durch die Entwicklung der Mikro- und Nanostrukturierung und einer Vielzahl neuer Techniken konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals ein Verfahren zur Herstellung elektrostatischer Boersch Phasenplatten entwickelt und patentiert werden [Gerthsen, Pérez-Willard, Schultheiß 2006].

Ausgehend von einer freitragenden, isolierenden Membran werden Elektronen- und Ionenstrahlolithographie kombiniert mit Dünnschicht-Aufdampfprozessen. Das Verfahren wurde auch zur Herstellung von Zach und anamorphotischen Phasenplatten weiterentwickelt.

3.1 Design der elektrostatischen Phasenplatten-Typen

Die elektrostatische Boersch Phasenplatte besteht aus einer ringförmigen Mikrolinse, die an einem oder mehreren Stegen gehalten wird und um den Nullstrahl in der hinteren Brennebene der Objektivlinse positioniert wird. Die lateralen Anforderungen an die Dimensionen sind wie folgt: Da der Nullstrahldurchmesser in dieser Ebene etwa 500-1000 nm beträgt, sollte die innere Öffnung der Phasenplatte etwa 1 μm im Durchmesser messen. Der Außendurchmesser der Ringlinse – und somit die Breite des Ringes - sollte so gering wie möglich sein, um so wenig Elektronen wie möglich durch die Struktur zu blockieren. Die Länge der Stege, respektive der Radius der äußeren Blende, sollte mindestens 20 μm betragen, damit Elektronen genügend hoher Ortsfrequenzen zur Bildentstehung beitragen.

In Abb. 3.1 ist der Schichtaufbau der Phasenplatte schematisch dargestellt. Die mittlere Schicht stellt die Elektrode da, die durch einen der Stege mit Spannung versorgt werden soll. Die darüber und darunter liegenden Schichten sind Isolatoren, um einen Kurzschluss der spannungsführenden Elektrode mit den äußeren geerdeten Elektroden zu verhindern. Die

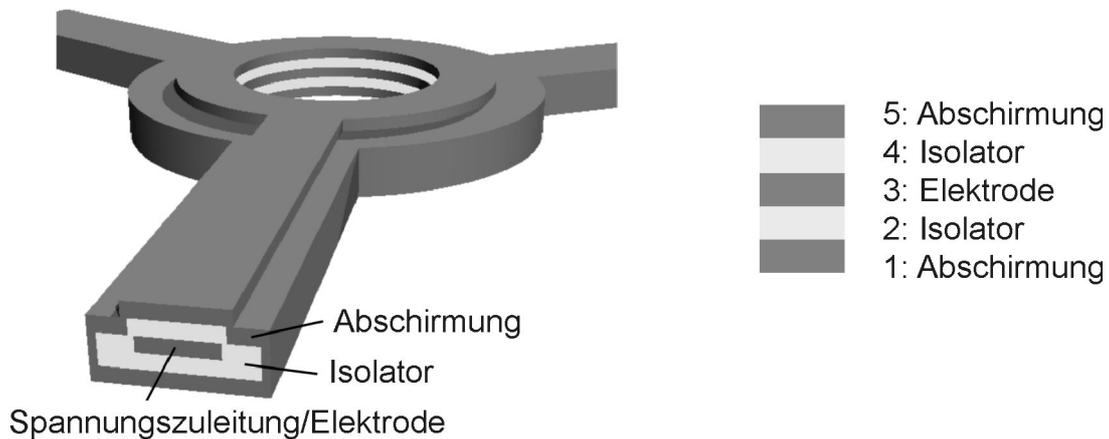


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung einer Boersch Phasenplatte. Die ringförmige Mikrolinse besteht aus einer fünf-schichtigen Struktur. Die zentrale Metallschicht (Nr. 3) ist die spannungsführende Elektrode und kann durch einen der Stege mit Spannung versorgt werden. Schichten 2 und 4 sind Isolatoren und Schichten 1 und 5 geerdete Metallschichten, die das Feld abschirmen und eine Aufladung der Struktur vermeiden sollen.

komplette Struktur ist mit einem geerdeten Metall umgeben, um Aufladungen der Phasenplatte zu vermeiden. Dies ist im Schema durch die Schichten 1 und 5 dargestellt.

Beim Anlegen einer Spannung an die zentrale Elektrode bildet sich ein Feld zwischen dieser und den äußeren geerdeten Elektroden. Die Dicke der einzelnen Schichten sollte etwa zwischen 100 und 500 nm sein. Dünnere Schichtdicken könnten zu elektrischen und mechanischen Instabilitäten führen. Bei dickeren Schichten und damit einer dickeren Gesamtlinse wäre die Ausdehnung des Feldes in z-Richtung nicht mehr auf die Fokus-Ebene der Objektivlinse beschränkt. Außerdem wäre die Abtragung überschüssigen Materials (die drei Sektoren bei der Boersch Phasenplatte) erschwert.

Die Zach Phasenplatte besteht aus einem einzigen Steg, der eine Länge von mindestens 20 μm haben sollte. Durch diesen Steg führt eine elektrische Zuleitung, die an deren Ende freiliegt. Der Schichtaufbau ist analog zur Boersch Phasenplatte mit umgebenden Isolator-Schichten ober- und unterhalb und einer abschirmenden geerdeten Metallschicht, ebenso wie die Anforderungen an die Schichtdicken analog sind. Die äußere Blende sollte auch einen Radius von mindestens 20 μm haben.

Als Ausgangsbasis des entwickelten Herstellungsprozesses für elektrostatische Mikrolinsen dient eine spannungsarme $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ Membran auf einem 200 μm dicken Si Chip von 5 mm x 12 mm. Die Membranen sind kommerziell in verschiedenen Schichtdicken zu erwerben. In dieser Arbeit wurden 200 nm dicke Schichten verwendet. Aus dem Si des Chips sind zwei quadratische Fenster ausgeätzt, an denen die Membran freitragend ist. Die Größe der Fenster ist variabel, jedoch wurde als maximale Größe 125 μm x 125 μm ermittelt, da bei größeren Fenstern die Membranen bei den weiteren Prozessschritten zerrissen. Das Material der Membran ist trotz stöchiometrischer Varianz isolierend, was in Vorversuchen getestet wurde [Schultheiß, 2005]. Damit kann die $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ -Schicht als Isolator-Schicht Nr. 2 (siehe Abb. 3.1) verwendet werden. Die restlichen Schichten wurden mittels Elektronenstrahlverdampfung aufgebracht.

3.2 Abscheidung dünner Schichten mittels Elektronenstrahlverdampfung

Der erste und auch der häufigste Prozessschritt in der Herstellung elektrostatischer Mikrolinsen ist die Abscheidung dünner Materialschichten auf den Si Chip. Hierfür wurde die Elektronenstrahlverdampfungsanlage PVD75 von Lesker verwendet.

Im Elektronenstrahlverdampfer wird ein 7 keV Elektronenstrahl mittels Magnetfelder auf ein festes Substratmaterial in einem Tiegel fokussiert. Durch den Elektronenstrahl können sehr hohe Energiedichten und Temperaturen erreicht werden, weshalb sich mit diesem Verfahren praktisch alle Feststoffe verdampfen lassen. Die Probe wird auf einem Halter befestigt, der sich durch zwei Shutter getrennt über dem Tiegel befindet. Der Halter kann entweder senkrecht zum Tiegel oder in einem Winkel von 45° angebracht werden und ist mit einem Motor zur Rotation um die Aufhängungsachse ausgestattet.

Für das Aufbringen von bis zu vier verschiedenen Materialien in einem Prozess sind vier Tiegel-Plätze in einem rotierbaren gekühlten Tiegelhalter vorhanden. Für die in dieser Arbeit verwendeten Aufdampf-Materialien wurden Graphit-Tiegel eingesetzt. Es gibt jedoch auch weitere Tiegelmateriale, die sich für andere Elemente besser eignen. Nach Einbau der Probe und des Aufdampfmaterials im Tiegel wird die Probenkammer unter Hochvakuum versetzt. Die Anlage ist betriebsfähig bis zu einem Druck von maximal $4 \cdot 10^{-5}$ mbar. Durch Regelung des Strahlstromes wird die Aufdampfrate festgelegt. In der Nähe des Quellen-Shutters befindet sich der Quellen-Sensor, ein Schwingquarz, mit dem man die lokale Aufdampfrate auf 0,001 nm/s genau bestimmen kann. Ist die gewünschte Rate erreicht, kann man die beiden Shutter öffnen. Anschließend wird die Rate weitergeprüft und die gesamte aufgebraute Schichtdicke gemessen mit dem Proben-Sensor, einem zweiten Schwingquarz, der in unmittelbarer Nähe zur Probe angebracht ist. Nach Erreichen der

gewünschten Schichtdicke werden die Shutter geschlossen und der Elektronenstrom langsam herunter gefahren.

In der Anlage ist es möglich, mittels einer Lampe die Probe zu heizen und damit die Mobilität des Materials, also die Oberflächendiffusion zu erhöhen. Dies wird benötigt beim Aufdampfen von Al_2O_3 , was als Isolator mit Schicht Nr. 4 (siehe Abb. 3.1) verwendet wird. Durch Aufheizen der Probe auf etwa 200 °C wird eine größere Oberflächenglattheit erreicht.

Wenn die zu bedampfende Probe mit einem hitzeempfindlichen Lack beschichtet ist, gibt es auch die Möglichkeit, die Probe an einem speziellen Halter an der Kühlung des oberen Schwingquarzes zu befestigen. Damit wird verhindert, dass der Lack durch die Hitze austrocknet und sich nicht mehr von der Probe entfernen lässt.

Für die Metallschichten der Phasenplatten wurde Gold verwendet. Beim Aufdampfen von Gold verflüssigt sich das gesamte im Tiegel befindliche Material und schmilzt zu einer Kugel. Deshalb ist streng darauf zu achten, dass der Tiegel immer zu mehr als 50 % gefüllt ist, damit sich das flüssige Gold nicht unter dem Strahl weg bewegt und der Elektronenstrahl auf Tiegelmateriale trifft, da dies zu Verunreinigungen des Goldes führt. Außerdem muss Gold bei sehr kleinen Aufdampfraten von maximal 0,03 – 0,06 nm/s abgeschieden werden, da es sonst zu Kugelbildung auf den aufgedampften Schichten kommt. Für die Herstellung von elektrostatischen Phasenplatten sind glatte Oberflächen unerlässlich, da es sonst in weiteren Prozessschritten zu Kurzschlüssen zwischen den Schichten kommen kann.

Um eine gute Haftung der Goldschicht auf der Ausgangsmembran zu erhalten, wird vor der Abscheidung zunächst eine Chrom Haftschrift aufgebracht. Eine Schichtdicke von etwa 3,5 nm ist hierfür ausreichend.

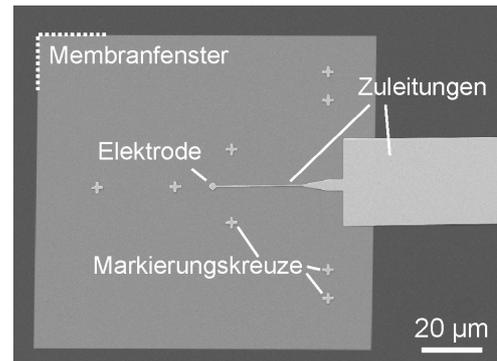
Der erste Prozessschritt besteht also aus Abscheiden einer Chrom Haftschrift auf die Unterseite des $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ -Membran Chips und anschließendes Abscheiden einer 100-200 nm dicken Goldschicht als Erdungsschicht Nr. 1 (siehe Abb. 3.1). Hierdurch wird die Stabilität der Membran für weitere Prozessschritte erhöht. Des Weiteren wird die anschließende Bearbeitung der Membranen im Rasterelektronenmikroskop und im Ionenmikroskop erleichtert, da sich die unbeschichteten Membranen schnell aufladen können und durch die Metallisierung der Unterseite die Ladung besser abfließen kann.

3.3 Strukturieren der zentralen Elektrode mittels Elektronenstrahlithographie

Der zweite Prozessschritt ist die Strukturierung der mittleren Metallschicht. Diese besteht bei der Boersch Phasenplatte aus einer kreisförmigen Elektrode von etwa 2 µm Durchmesser, an die sich eine mikroskopische Zuleitung von etwa 0,5 µm Breite anschließt,

welche später die Phasenplatte durch einen der Stege mit Spannung versorgen wird. An diese schließen sich makroskopische Zuleitungen zu einem Kontaktpad von 0,5 mm x 0,5 mm, an das später von Hand Drähte zur Kontaktierung fixiert werden können. Außerdem werden zusätzlich acht Markierungskreuze von 4 μm x 4 μm in der Nähe der Elektrode strukturiert, damit die Probe in weiteren Prozessschritten genau positioniert werden kann.

Abbildung 3.2: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme einer strukturierten Au Elektrode mit Zuleitungen und Markierungskreuzen. Die 60 nm Au Schicht liegt auf der $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ -Membran. Unter den dunklen Bereichen befindet sich der Si-Chip und das graue Quadrat von 125 x 125 μm^2 zeigt die freitragende Membran, auf deren Unterseite Au aufgedampft wurde. Die Elektrode liegt mitten auf diesem Feld, damit aus diesem die PP-Struktur ausgeschnitten werden kann.



Zunächst wird mit einer Lackschleuder ein elektronenstrahlempfindlicher Lack (PMMA 950k) auf die Membran aufgebracht. Durch eine hohe Drehzahl von etwa 8000 Umdrehungen pro Minute werden wenige Tropfen des Lackes gleichmäßig in eine dünne Schicht von etwa 200 nm verteilt. Dann wird der Lack fünf Minuten auf einer Heizplatte bei 160 $^{\circ}\text{C}$ ausgeheizt. Der Lack ist nun bereit zur Belichtung mit dem Rasterelektronenmikroskop.

Im verwendeten Rasterelektronenmikroskop Zeiss Gemini SUPRA wird ein Elektronenstrahl aus einer Schottky Feldemissionsquelle mit 10 kV beschleunigt. Mit einem XY Ablenssystem wird der fokussierte Strahl zeilenweise über die Probe gerastert. Die Probenkammer befindet sich dabei im Hochvakuum. An das Mikroskop ist eine externe Lithographie-Einheit Elphy Plus von Raith angeschlossen, die das Schreiben beliebiger Formen ermöglicht.

Da der belackte Chip elektronenstrahlempfindlich ist, muss beim Positionieren der Probe darauf geachtet werden, dass er wenig mit dem Elektronenstrahl in Kontakt ist. Zunächst wird der Elektronenstrahl in einen Faradayschen Käfig fokussiert, um die genauen Ströme für verschiedene Kondensorenblenden zu bestimmen. Für die feineren Strukturen wird eine 10 μm große Blende verwendet, die den Strom auf etwa 25 pA beschränkt. Die gröberen Strukturen werden mit einer 30 μm Blende geschrieben, bei der der Strom etwa 250 pA beträgt.

Nun wird mit der Lithographie-Einheit ein Koordinatensystem auf den Chip gelegt, in dem die Positionen und Fokuswerte dreier Ecken des Chips gespeichert werden. Damit wird es möglich, die grobe Position der $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ -Membranfenster mit geblancktem Strahl anzufahren. Zur Korrektur der Position wird der Strahl kurz auf die Probe gelenkt und die Probe

gegebenenfalls leicht verschoben. Nun werden in die Lithographie-Software die exakten Ströme der jeweilig benutzten Blende eingegeben und damit die Verweildauer des Strahls an einer Position berechnet, damit bei einer Schrittweite von etwa 15 nm eine benötigte Dosis von $100 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ deponiert wird. Diese wird benötigt um den PMMA Lack zu belichten. Das vorgegebene Design kann nun abgerastert werden, wobei verschiedene Vergrößerungen verwenden werden.

Nach der Belichtung der kompletten Strukturen wird der Chip in Methylisobutylketon entwickelt. Hierbei löst sich der Lack unter den beschriebenen Stellen auf und es bleibt eine negative Lackschablone des gewünschten Layouts stehen. Jetzt können mit der Elektronenstrahlverdampfungsanlage unter Verwendung des Kühllalters zur Schonung des Lackes eine Chromhaftschrift und eine 60 nm dicke Goldschicht abgeschieden werden. Anschließend wird im Lift-Off Prozess der Chip in $40 \text{ }^\circ\text{C}$ warmem Aceton geschwänkt, sodass sich der PMMA und das darauf befindliche Gold ablösen. In Abbildung 3.2 ist eine fertig strukturierte Elektrode mit dem vorderen Teil der Zuleitungen zu sehen (Schicht Nummer 3 in Abb. 3.1). Die makroskopischen Zuleitungen und das Kontaktpad befinden sich außerhalb des Sichtfeldes.

3.4 Strukturierung der Phasenplatte im Fokussierten Ionenstrahl System

Das Zeiss EsB1540 SEM/FIB Cross Beam System besteht aus einem Rasterelektronenmikroskop, das zusätzlich mit einer Ga^+ -Ionensäule ausgestattet ist. Die zusätzliche Säule ist im Winkel von 54° zur Elektronensäule angebracht. Die Ga^+ -Ionen werden mit 30 kV beschleunigt und können mit dem Rastergenerator ebenfalls zeilenweise über die Probe gerastert werden. Hierbei kann die größere Masse der Ionen im Vergleich zu den Elektronen ausgenutzt werden, um gezielt Material abzutragen. Das Cross Beam System ist ebenfalls ausgestattet mit der externen Lithographie-Einheit Elphy Plus von Raith, mit der sowohl Elektronenstrahl als auch Ionenstrahl extern über beliebige Strukturen gerastert werden können. Außerdem ist in der Probenkammer ein Mikrogreifer an einem Mikromanipulator von Kleindiek eingebaut, der mit einer Genauigkeit von weniger als 15 nm bewegt werden kann.

Der Membran-Chip wird in die Probenkammer eingebaut und der Halter wird auf die Ebene des Kreuzungspunktes der beiden Strahlen im Arbeitsabstand von etwa 5,3 mm positioniert. Somit ist es möglich, die Probenstelle mit dem Elektronenstrahl abzubilden und gleichzeitig mit dem Ionenstrahl zu schneiden. Nachdem die Probe mit dem Elektronenstrahl grob positioniert wurde, kann man mit der Lithographie-Einheit einen Markscan durchführen.

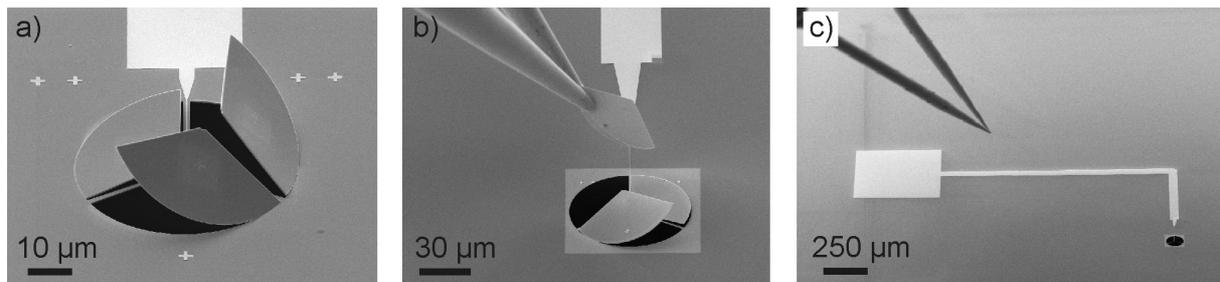


Abbildung 3.3: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen. a) Die Konturen der Phasenplattenstruktur wurden mit dem fokussierten Ga^+ -Ionenstrahl ausgeschnitten. Durch elektrostatische Aufladung richten sich die Segmente auf. b) Mit dem Mikrogreifer (Spitzen von links oben im Bild) wird ein herausgeschnittenes Segment entfernt. c) Hier ist eine fertig geschnittene Phasenplatte zu sehen, bei der alle Segmente entfernt wurden. Zu sehen ist auch die makroskopische Zuleitung mit dem Kontaktpad und die Spitzen des Mikrogreifers, dessen Länge insgesamt 30 mm beträgt.

Hierbei werden Felder um die Markierungskreuze mit dem Ionenstrahl abgerastert und die Position der Probe damit auf 100 nm genau nachjustiert. Anschließend können die vordefinierten Strukturen mit einem Ionenstrom von 500 pA in mehreren Runden abgerastert werden, bis die $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ -Membran und die darunter liegende Goldschicht durchgeschnitten sind.

Im ersten Stadium der Entwicklung des Verfahrens wurden die drei Sektoren flächig abgetragen, was eine lange Ätzdauer und Kurzschlussrisiken durch Frässpäne zur Folge hatte. Eine Weiterentwicklung dieses Prozessschrittes etablierte das Ausschneiden der Konturen. In einem ersten Schritt werden hierbei der spannungsführende Steg von etwa 1,5 μm Breite und zwei Halterungsstege ausgeschnitten. Die Breite der Stege ohne Elektrode verjüngt sich von außen 1,5 μm auf innen ca. 1 μm . Sind diese Linien komplett frei geschnitten, wird der äußere Blendenrand – also die drei Kreissegmente (Durchmesser der Blende zwischen 50 μm und 100 μm) – abgetragen. Die abgetrennten Sektoren richten sich durch elektrostatische Aufladung in den meisten Fällen auf, wie in Abbildung 3.3a) zu sehen ist. Sie können mit dem Mikrogreifer aufgenommen und an den Rand des Chips entfernt werden (siehe Abbildung 3.3b). In Abbildung 3.3c) ist eine fertig geschnittene Phasenplatte mit Zuleitung und Kontaktpad zu sehen.

3.5 Letzte Prozessschritte zum Fertigen der elektrostatischen Phasenplatten

Auf die strukturierte Elektrodenschicht wird nun etwa 200 nm Al_2O_3 als Isolationsschicht Nr. 4 (siehe Abb. 3.1) abgeschieden. Anschließend werden als oberste Schicht (Nr. 5 in Abb. 3.1)

eine Chromhaftschiicht und die abschirmende Goldschicht von etwa 200 nm abgeschieden. Bei diesen beiden Abscheidungsprozessen muss das Kontaktpad mit einer Maske bedeckt sein, damit es hinterher noch frei zugänglich ist. Außerdem muss darauf geachtet werden, dass es beim Aufdampfen der Goldschicht nicht zu einem Kurzschluss mit der Elektrode kommt.

Zur Abschirmung der Seitenflächen der Stege wird anschließend die Probe unter einem Winkel von 45° in den Elektronenstrahlverdampfer eingebaut. Unter Rotation des Halters werden alle Seitenflächen mit Gold bedeckt, sodass das elektrische Feld, das bei Anlegen eines Potentials an die mittlere Schicht erzeugt wird, nirgends austreten kann.

3.5.1 Fertigstellung einer Boersch Phasenplatte

Nachdem alle Schichten komplett sind, wird der Chip noch einmal in das Fokussierte Ionenstrahlsystem eingebaut. Hier muss die Phasenplatte noch einmal sehr genau positioniert werden. Mit einem feinen Ionenstrom von maximal 50 pA wird eine Öffnung in die Mitte der kreisförmigen Elektrode gefräst. Hierbei wird das komplette Material der fünf Schichten flächig abgetragen. Das Loch sollte einen Durchmesser von etwa $1\ \mu\text{m}$ haben, um später den Nullstrahl im Transmissionselektronenmikroskop durchführen zu können. Es ist darauf zu achten, dass der Ionenstrahl gut fokussiert ist, damit das Gold an den inneren Seitenflächen nicht verschmiert und es zu Kurzschlüssen zwischen den Schichten kommt. Gegebenenfalls muss die Innenfläche nachpoliert werden, bis die Innenseite schön glatt aussieht. In Abb. 3.4a) ist eine fertige Boersch Phasenplatte zu sehen. Der Durchmesser der äußeren Blende ist hier etwa $60\ \mu\text{m}$, der Außendurchmesser der Ringlinse etwa $3,5\ \mu\text{m}$ und der Innendurchmesser etwa $1,2\ \mu\text{m}$. In dem vergrößerten Ausschnitt ist die innere Ringöffnung mit den fünf Schichten zu sehen.

3.5.2 Fertigstellung einer Zach Phasenplatte

Wenn der fertig bedampfte Chip vorliegt, kann anstelle des Verfahrens in 3.5.1 auch eine Zach Phasenplatte aus der Struktur hergestellt werden. Hierfür wird der Chip ebenfalls wieder in das Fokussierte Ionenstrahlsystem eingebaut. Mit einem feinen Ionenstrom von maximal 50 pA wird zunächst der spannungsführende Steg kurz vor der Ringelektrode durchtrennt. Anschließend werden die beiden anderen Stege am Blendenrand von der Struktur abgetrennt und die zwei Stege und die Ringelektrode mit Hilfe des Mikrogreifers von der Probe entfernt. Wie beim Schneiden der inneren Öffnung, so ist auch hier darauf zu achten, dass die Vorderseite des Steges, an der die Elektrodenschicht freiliegt, schön glatt poliert ist und kein geschmolzenes Gold die Schichten kurzschließt. In Abb. 3.4b) ist eine

fertige Zach Phasenplatte zu sehen. Der Durchmesser der Außenblende beträgt etwa $60\ \mu\text{m}$ und die Länge des Steges etwa $30\ \mu\text{m}$. Im vergrößerten Ausschnitt ist das Schichtpaket deutlich zu erkennen: In der Mitte endet die Goldelektrode rundum bedeckt von Isolator. Umschlossen ist der Steg von abschirmendem Gold.

Aus Stabilitätsgründen ist es ratsam, auch die Zachsche Phasenplatte zunächst mit drei Stegen herzustellen. Da die Probe vor allem bei den Aufdampfprozessen extremen Temperaturgradienten ausgesetzt ist, verbiegt sich hierbei ein einzelner Steg. Durch das Bedampfen im stabilen Dreisteg-Design kann dies vermieden werden. Nachdem das Schichtpaket komplett ist, ist der einzelne Steg nach Abtrennung der beiden anderen mechanisch stabil und verbiegt sich auch im Transmissionselektronenmikroskop nicht.

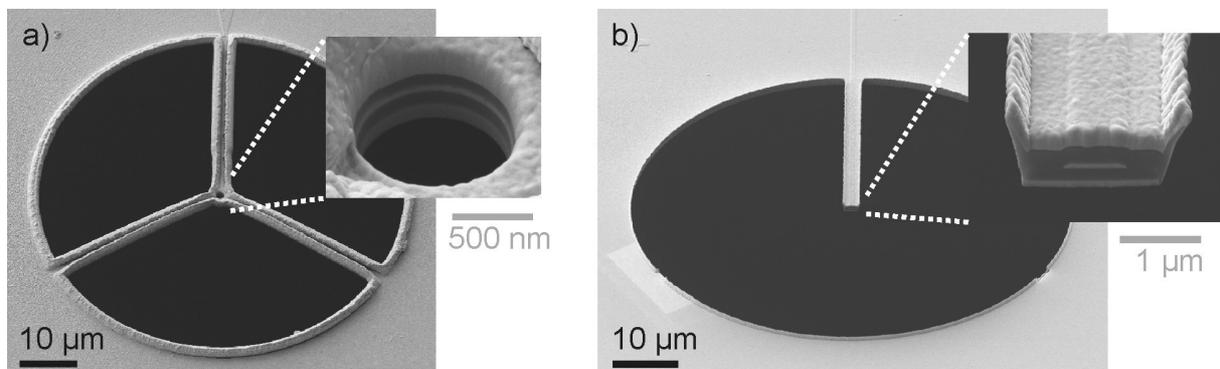


Abbildung 3.4: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen. a) Fertige Boersch Phasenplatte. Der Durchmesser der Außenblende beträgt etwa $60\ \mu\text{m}$. Durch den oberen Steg führt die Spannungszuleitung zur Ringelektrode. Der Außendurchmesser des Ringes beträgt etwa $3,5\ \mu\text{m}$, der Durchmesser der inneren Öffnung etwa $1,2\ \mu\text{m}$. Im vergrößerten Ausschnitt sind die fünf Schichten zu sehen (v.u.n.o.): $200\ \text{nm Au}$, $200\ \text{nm Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$, $60\ \text{nm Au}$, $200\ \text{nm Al}_2\text{O}_3$, $300\ \text{nm Au}$. b) Fertige Zach Phasenplatte. Der Durchmesser der Außenblende ist etwa $60\ \mu\text{m}$, die Länge des Steges etwa $30\ \mu\text{m}$. Im vergrößerten Ausschnitt sind die Schichten zu sehen (v.u.n.o.): $100\ \text{nm Au}$, $200\ \text{nm Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$, $60\ \text{nm Au}$, $250\ \text{nm Al}_2\text{O}_3$, $200\ \text{nm Au}$.

3.6 Herstellung eines Anamorphotischen Phasenplatten-Prototyps

Die anamorphotische Phasenplatte (APP) besteht aus einer rechteckigen elektrostatischen Linse mit Seitenlängen von etwa $3\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m}$. Abb. 3.5a) zeigt den schematischen Aufbau der fünf Schichten. Wie bei den anderen elektrostatischen Phasenplattentypen befinden sich oben und unten abschirmende Metallschichten, angrenzend an Isolationsschichten. In der

Mitte befindet sich die zentrale Elektrodenschicht, die sich aus drei Teilen zusammensetzt, um die Phasenplatte in verschiedenen Moden betreiben zu können.

Um eine Mikrolinse dieser Struktur herzustellen, wurden dieselben Prozessschritte wie bei der Herstellung der Boersch Phasenplatte verwendet, wobei die Reihenfolge der Schritte angepasst wurde. Nach Abscheiden einer Chromhaftschiicht und einer Goldschicht von etwa 100 nm auf die Rückseite eines $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ -Membran-Chips (Dicke der Membran: 100 nm) wurde mit Elektronenstrahlithographie die Elektrodenschicht definiert.

In Abbildung 3.5b) ist das Design der etwa 50 nm dicken Goldschicht zu sehen. Sie besteht aus drei Elektroden in der Mitte des Membranfensters, wobei die äußeren beiden Abmessungen von etwa $30\ \mu\text{m} \times 8\ \mu\text{m}$ haben und die mittlere eine Breite von etwa $1\ \mu\text{m}$. Außerdem wurden wieder vier Markierungskreuze definiert, um die Probe in späteren Prozessschritten exakt zu Positionieren. Die Elektroden können über die vier Zuleitungen mit Spannung versorgt werden. Die mittlere Elektrode benötigt zwei Kontaktpads, da sie im weiteren Verfahren in der Mitte durchtrennt wird.

Nach Fertigstellung der Elektrodenschicht werden nun die beiden oberen Schichten abgeschieden, zuerst eine etwa 250 nm dicke Al_2O_3 -Schicht, dann nach einer Chromhaftschiicht die etwa 200 nm dicke Abschirmungsschiicht aus Gold.

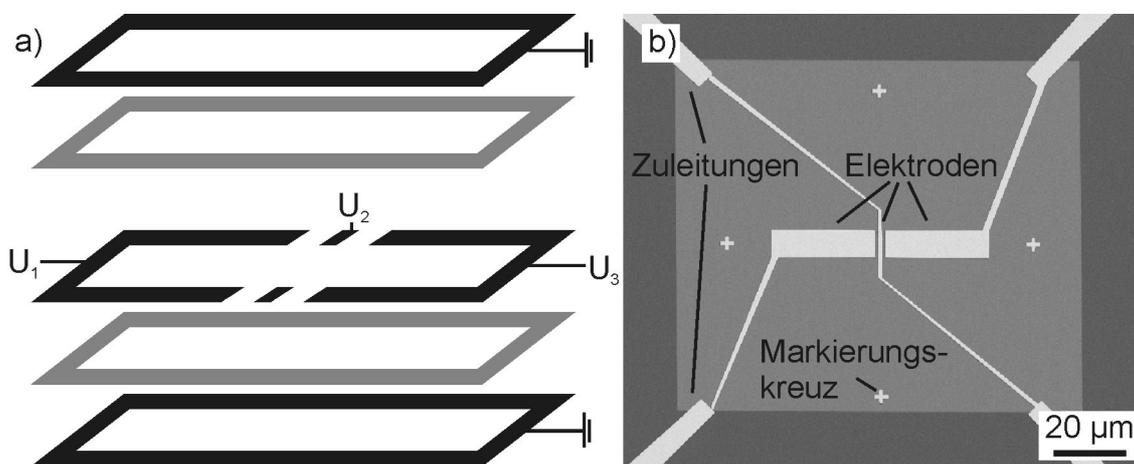


Abbildung 3.5a) Schematische Abbildung des Schichtaufbaus einer anamorphotischen Phasenplatte. Die obere und untere Schicht bestehen aus geerdetem Metall. Die beiden grauen Schichten stellen Isolationsschichten dar. Die mittlere Schicht ist die spannungsführende Elektrodenschicht. Es lassen sich je nach Betriebsart der Phasenplatte drei unterschiedliche Potentiale an die Schicht anlegen. U_1 und U_3 beeinflusst den gestreuten Anteil der Elektronen – U_2 ist im Bereich des Nullstrahls. b) Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der fertig strukturierten mittleren Goldschicht. Zu sehen sind in der Mitte des Membranfensters die drei Elektroden, die durch vier Zuleitungen mit Spannung versorgt werden können. An den Seiten sind vier Markierungskreuze zur Positionierung der Probe in weiteren Prozessschritten angebracht.

Der Si Chip mit dem fertigen Schichtpaket wird nun in das Fokussierte Ionenstrahl-System eingebaut und die Probe mit Hilfe der Markierungskreuze genau positioniert. Nun wird mit einem Ionenstrahl von 50 pA der Umriss eines Rechteckes von $50\ \mu\text{m} \times 3\ \mu\text{m}$ durch die Schichten geschnitten, sodass die fünf Schichten an der Innenseite der Öffnung frei liegen.

In Abb. 3.6 ist ein fertiggestellter Prototyp einer anamorphotischen Phasenplatte zu sehen. Durch Anlegen einer Spannung an die zentrale Elektrode wird die Phasenplatte im Zernike Modus betrieben. Im vergrößerten Ausschnitt sind die fünf Schichten deutlich zu erkennen (v.u.n.o.): 100 nm Au, 100 nm $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$, 50 nm Au, 250 nm Al_2O_3 und 200 nm Au. Im Rahmen dieser Arbeit wurden noch keine Tests mit den anamorphotischen Phasenplatten im Transmissionselektronenmikroskop durchgeführt, da die benötigte Optik in den vorhandenen Mikroskopen nicht zur Verfügung stand. Es ist jedoch geplant, Vorversuche mit der normalen Optik durchzuführen, bis ein geeignetes Gerät zur Verfügung steht.

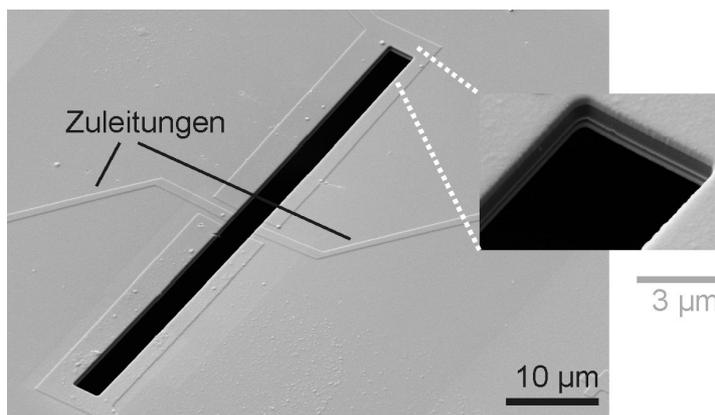


Abbildung 3.6: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme eines fertigen anamorphotischen PP Prototyps. Die Abmessungen des Schlitzes betragen $3\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m}$. Im vergrößerten Ausschnitt ist die Schichtfolge zu sehen (v.u.n.o.): 100 nm Au, 100 nm $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$, 50 nm Au, 250 nm Al_2O_3 , 200 nm Au.

3.7 Kontaktierung und Einbau einer Phasenplatte in ein Transmissionselektronenmikroskop

Die fertig hergestellten Phasenplatten auf den Si Chips müssen nun kontaktiert und in die hintere Brennebene des Transmissionselektronenmikroskops eingebracht werden. Hierbei ist besondere Sorgfalt geboten, da die Chips sehr empfindlich gegenüber elektrostatischen Entladungen sind.

Zur Positionierung der Phasenplatte in der hinteren Brennebene wurde ein Mikromanipulator (Kleindiek mm3 Nanomotor) an einem an den Objektivraum des Transmissionselektronenmikroskops passenden Flansch montiert, der über eine Spannungsvakuumdurchführung verfügt. Der Mikromanipulator enthält drei Nanomotoren,

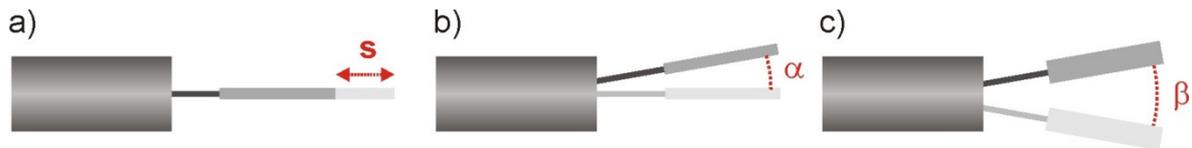


Abbildung 3.7: Bewegungsrichtungen des Kleindiek Manipulators. In Seitenansicht zu sehen: a) Vor- und Rückwärtsbewegung s und b), die Bewegung um α , mit der die Höhe verändert werden kann. In der Draufsicht in c) zu sehen ist die Kipprichtung β zur lateralen Positionierung.

mit denen die Phasenplatte auf wenige Nanometer genau positioniert werden kann. In Abb. 3.7 sind die drei Bewegungsrichtungen dargestellt. Abb. 3.7a) und b) zeigen die Seitenansicht des Manipulators. Der erste Motor bewegt die Spitze vor und zurück, wie s in der Abb. 3.7a) anzeigt. Die anderen beiden Motoren machen eine Kippbewegung. Abb. 3.7b) zeigt den Kippwinkel α , mit dem die Spitze nach oben und unten bewegt wird.

Abb. 3.7c) zeigt die Draufsicht auf den Manipulator. Der dritte Motor bewegt die Spitze um den Winkel β , womit eine Lateralbewegung in der Brennebene ermöglicht wird. Mit den vorhandenen Motoren ist es leider nicht möglich, eine vertikale Positionierung ohne die Verkippung der Phasenplatte vorzunehmen. Daher wird die Höhenjustage mit Hilfe der Elektronenoptik durchgeführt (siehe folgendes Kapitel).

Abb. 3.8a) zeigt ein Foto des Flansches, aus dem der Arm des Manipulators heraussteht. An der Spitze wird ein Al Plättchen festgeschraubt, auf das der Phasenplattenchip aufgebracht wird. In Abb. 3.8b) ist ein Schema des Al Halters zu sehen.

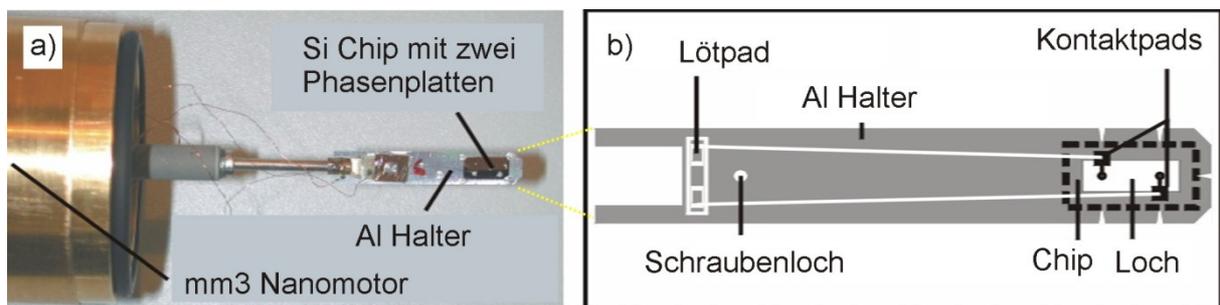


Abbildung 3.8: a) Mikroskopflansch mit eingebautem Kleindiek Mikromanipulator. An der Spitze ist ein Al Plättchen festgeschraubt, auf dem der Phasenplattenchip aufgeklebt ist. b) schematische Darstellung des Al Plättchens. Der PP Chip wird über der Öffnung rechts angebracht. Die strukturierten Kontaktpads sind durch isolierte Drähtchen mit dem Lötpad am hinteren Ende verbunden, an die auch die Vakuumdurchführung zur Spannungsversorgung angelötet ist. Durch Einkerbungen am Rand wird die Positionierung der PPs erleichtert.

Zuerst werden die im hinteren Bereich des Plättchens angebrachten Löt pads kontaktiert und das Plättchen mit der Erde verbunden, sodass sich keine Ladung darauf ansammelt. Der Si Chip wird mit Leitsilber über der Öffnung an der Spitze des Plättchens geklebt, sodass Elektronen über die Erdung des Plättchens abfließen können. Die strukturierten Kontaktpads auf dem Phasenplattenchip werden zuletzt durch isolierte Lackdrähtchen und Leitsilber mit den Löt pads verbunden.

Nach der Kontaktierung muss das Leitsilber zunächst gut austrocknen, um die Ausgasung im Elektronenmikroskop zu minimieren. Anschließend kann das Mikroskop im Säulenbereich belüftet und der Flansch in den Objektivraum eingebaut werden. In Abb. 3.9 ist der geöffnete Objektivraum des ZEISS 912 zu sehen. Der obere und untere Polschuh haben einen Abstand von etwa 12 mm, worin die Probe sowie die Phasenplatte mit Haltern eingebracht werden. Zu sehen ist auch ein Antikontaminator, der das Vakuum im Objektivbereich verbessert.

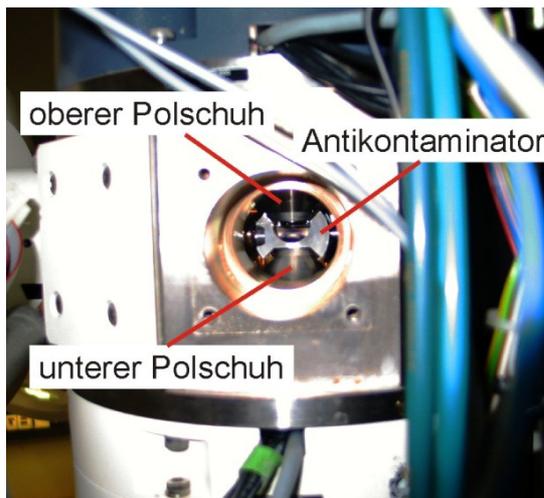


Abbildung 3.9: Blick in den Objektraum des Transmissionselektronenmikroskops ZEISS 912 bei abgeschraubtem Flansch. Zu sehen sind der obere und untere Polschuh im Abstand von etwa 12 mm. Um die Probe herum ist ein Antikontaminator angebracht, der durch Befüllen mit flüssigem Stickstoff zur Verbesserung des Vakuums im Proben- und Phasenplattenbereich führt.

3.8 Experimentelle Techniken zu Justage und Arbeit im Phasenplattenmodus

Die PP Experimente wurden in einem 120 kV ZEISS 912 Omega Mikroskop mit einer LaB₆ Kathode am LEM durchgeführt, sowie am Bioquant in Heidelberg in einem ZEISS 923 Omega Mikroskop mit Feldemissionsquelle (FEG), das ebenfalls mit 120 kV betrieben wurde.

Zum Positionieren der PP wird das Mikroskop zunächst im Low-Magnification Modus betrieben und der Halter mit dem Mikromanipulator soweit eingefahren, bis die Spitze des Al Plättchens auf dem Schirm zu sehen ist. Anhand von Einkerbungen im Plättchen (siehe

Abb. 3.8 b) kann die laterale Position richtig angefahren und der Manipulator weiterbewegt werden, bis die Phasenplatte auf dem Schirm zentriert ist.

Anschließend wird das Mikroskop zurück in die normale Vergrößerung und dann in den Beugungsmodus umgeschaltet. Damit die Phasenplatte genau in der Höhe der Beugungsebene sitzt, fokussiert man zunächst den Rand der Phasenplatte mit dem Diffraktionsfokus, bis dieser scharf zu sehen ist. Stimmt die Höhe der PP nicht mit der Beugungsebene überein, wird hierdurch der NS defokussiert und zu einem Scheibchen. Um die Koinzidenz von Beugungsebene und PP Ebene zu erzeugen, wird die dritte Kondensorlinse benutzt, um die Beugungsebene nach oben bzw. unten zu ziehen und damit den NS in der fokussierten Ebene zu minimieren.

Anschließend kann die Phasenplatte lateral so positioniert werden, dass der NS durch die innere Öffnung läuft. Um eine hohe räumliche Kohärenz zu erreichen, wird die kleinste Kondensorblende verwendet. Außerdem sollte ausschließlich mit kleinen Öffnungswinkeln bis maximal ungefähr 0.5 mrad gearbeitet werden.

Die gezeigten TEM Bilder wurden aufgenommen mit einer 1024x1024 pixel tvips bioscan CCD Kamera am ZEISS 912 und mit einer 1024x1024 pixel GATAN slow-scan CCD Kamera am ZEISS 923.

In Kooperation mit Bastian Barton konnten auch erste Experimente im PACEM am Max Planck Institut für Biophysik in Frankfurt durchgeführt werden. Das PACEM verfügt ebenfalls über eine FEG und wurde bei 200 kV betrieben. Mit dem Aberrationskorrektor konnte der C_s -Wert auf 50 μm reduziert werden. In Tabelle 3.1 ist eine Übersicht über die verwendeten Mikroskop-Parameter dargestellt.

	ZEISS 912 Omega	ZEISS 923 Omega FEG	PACEM
Beschleunigungsspannung	120 kV	120 kV	200 kV
Wellenlänge	3,35 pm	3,35 pm	2,51 pm
C_s	2,7 mm	2,2 mm	50 μm
Brennweite Objektiv	3,6 mm	3 mm	15 mm

Tabelle 3.1: Verwendete Mikroskoptypen und Parameter

3.9 Zusammenfassung

Knapp 60 Jahre nach den ersten theoretischen Überlegungen durch Boersch konnte erstmals ein Verfahren zur Herstellung von elektrostatischen Mikrolinsen als Phasenplatten für die Transmissionselektronenmikroskopie entwickelt werden. Das Herstellungsverfahren der

Boersch Phasenplatte kombiniert modernste Mikro- und Nanoprozessierung und wurde weiter optimiert. Durch Variation der Prozessschritte konnten auch erste Prototypen von Zach und anamorphotischen Phasenplatten hergestellt werden.

Der aus vielen Einzelschritten aufgebaute Herstellungsprozess ist äußerst subtil, da kleinste Fehler bei späteren Prozessschritten den erneuten Start mit einer neuen Charge zur Folge haben können. Die dünnen Schichten sind außerdem sehr empfindlich gegenüber elektrostatischen Entladungen, weshalb diesbezüglich äußerste Vorsicht im Umgang mit den Phasenplatten-Chips geboten ist.

Die Phasenplatten können durch einen Mikromanipulator in der hinteren Brennebene positioniert werden und werden durch eine Vakuumdurchführung von einem externen Spannungsgenerator mit Spannung versorgt.

4 Transmissionselektronenmikroskopie mit Boersch Phasenplatten

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse von Funktionstests der BPP in drei verschiedenen Mikroskopen präsentiert. Anhand einiger Beispiele von TEM Aufnahmen werden die Möglichkeiten sowie die Einschränkungen der BPP untersucht.

4.1 Experimentelle Ergebnisse I: Eigenschaften der Boersch Phasenplatte

Um die experimentellen Eigenschaften der BPP zu bestimmen, wurden zunächst Versuche mit dünnen aC Filmen mit dünner Pt Beschichtung durchgeführt. Diese stellen für mittlere Vergrößerungen näherungsweise ein weißes Ortsrauschen dar, sodass Elektronen in alle Ortsfrequenzen gestreut werden. Berechnet man nun die Fouriertransformierte eines solchen Bildes (das sog. Diffraktogramm), so wird hierin die durch das Mikroskop aufgeprägte Phasenkontrastübertrag (PCTF) in sog. Thonringen sichtbar. In Abb. 4.4a ist exemplarisch das Diffraktogramm eines aC Filmes gezeigt.

Die Intensität $I(\mathbf{u})$ des Diffraktogrammes entspricht der Abbildung der Fouriertransformierten der Bildintensität $I(\mathbf{r})$ (vgl. Gl. 2.19). Also folgt für $I(\mathbf{u})$:

$$I(\mathbf{u}) \approx |2\tilde{\varphi}(\mathbf{u})E(\mathbf{u})\sin(\chi(\mathbf{u}))|^2. \quad (4.1)$$

Zur Auswertung des Diffraktogramms werden die Nachvergrößerung des Mikroskops p_{mag} und die Pixelgröße des CCD Chips p_{CCD} benötigt. Damit und mit der eingestellten Vergrößerung mag kann dann die Pixelgröße des aufgenommenen Bildes p_{size} berechnet werden:

$$p_{size} = \frac{p_{CCD}}{p_{mag} \cdot mag}. \quad (4.2)$$

Mit den Werten $p_{\text{CCD}} = 24 \mu\text{m}$, $p_{\text{mag}} = 1.615$ (ZEISS 923) und bei $\text{mag} = 80.000$ ergibt sich $p_{\text{size}} = 1,86 \cdot 10^{-10} \text{ m}$. Als Nyquist-Frequenz u_N wird die maximale Frequenz im Diffraktogramm bezeichnet. Sie kann wie folgt berechnet werden:

$$u_N = \frac{1}{2 \cdot p_{\text{size}}}. \quad (4.3)$$

In diesem Beispiel ergibt sich u_N zu $2,9 \text{ nm}^{-1}$. In Abb. 4.1a) ist ein Ausschnitt des Diffraktogramms zu sehen. Die Lage der Thonringe entspricht den Extrema des $\sin^2(\chi_{\text{PP}}(u))$ in Gl. 4.1. Um das Diffraktogramm nun quantitativ auszuwerten, wird ein radialer Linescan über die Halbebene durchgeführt, um das Rauschen zu minimieren. Das über 180° gemittelte Intensitätsprofil ist in Abb. 4.4b) in der roten Linie zu sehen. Hierbei wurden die Pixel nahe des NS Null gesetzt, sowie ein Untergrund abgezogen, um den Verlauf zwischen 0 und 1 darzustellen. Durch den Ausläufer der NS Intensität kommt es bei sehr kleinen Ortsfrequenzen zu einer hohen Diskrepanz zwischen dem Linescan und der gefitteten Kurve.

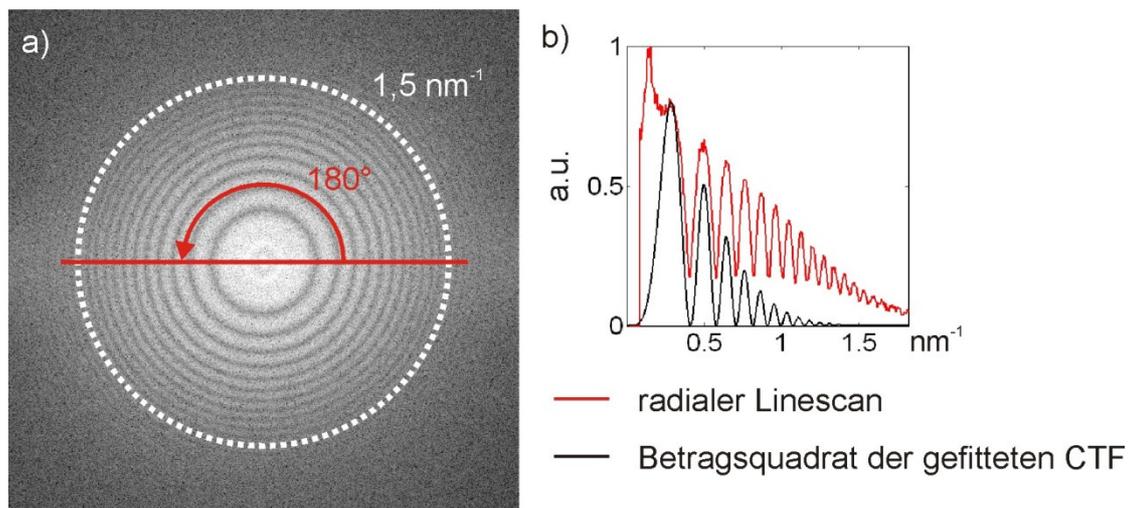


Abbildung 4.1: Exemplarische Auswertung eines Diffraktogramms. a) Ausschnitt eines Diffraktogramms. Die Thonringe entsprechen den Extrema des Betragsquadrats der CTF. In b) ist in rot der über 180° gemittelte Linescan abzüglich eines Untergrundes aufgetragen. Die schwarze Kurve ist eine gefittete CTF mit dem ermittelten Defokus $Z = -1750 \text{ nm}$.

Anschließend wird abschnittsweise ein Polynom an die Minima gefittet, um deren Ortsfrequenzen zu bestimmen. Mit der Lage der PCTF Minima kann man eine erste Näherung der Werte Z und φ_{PP} berechnen mit den bekannten Parametern $C_s = 2,2 \text{ mm}$ und $\lambda = 3,35 \text{ pm}$ des ZEISS 923 Mikroskops. Da in diesem Beispiel keine PP verwendet wurde ergibt sich $\varphi_{\text{PP}} = 0$. Um den exakten Defokuswert zu bestimmen, wird dieser variiert bis ein

optimaler Fit der experimentellen mit den simulierten Daten erreicht ist. Der optimale Fit ist in Abb. 4.1b in schwarz eingezeichnet und entspricht einer Defokuseinstellung von $Z = -1750$ nm. Hierbei ist anzumerken, dass es sich bei dem Verfahren lediglich um das Fitten der Minima handelt, also kann hiermit die Funktion $\chi_{pp}(u)$ ermittelt werden, jedoch nicht die Dämpfung.

Der Defokuswert kann in der Regel mit einer Genauigkeit von etwa ± 20 nm bestimmt werden, die Phasenschiebung mit etwa $\pm 0,01 \pi$ oder besser. Die Präzision der Parameterbestimmung hängt jedoch stark von der Qualität des Diffraktogramms ab, was zum einen das Rauschen und zum anderen die Symmetrie, also leichter Astigmatismus oder Aufladungen an den Stegen betrifft.

4.1.1 Betrieb im ZEISS 912 mit LaB₆ Kathode

Zunächst wurden im ZEISS 912 Experimente zur Bestimmung der Eigenschaften der BPP durchgeführt. Hierbei wurden Bilderserien mit konstantem Fokus und variierender PP Spannung durchgeführt, um den Einfluss auf Phasenschiebung und Defokus zu bestimmen. Da die verwendete Hochspannung ebenfalls 120 kV betrug, ist $\lambda = 3,35$ pm. In diesem Mikroskop ist der C_s -Wert mit 2,7 mm jedoch etwas höher als beim 923. In Abb. 4.2a) sind zwei Diffraktogrammhälften mit verschiedenen Spannungen übereinander abgebildet. Die BPP ist durch das Betragsquadrat der Abbildung mit sechs Stegen zu sehen. Unter den Stegen findet durch den SSB Effekt noch Kontrastübertrag statt, weshalb sie nicht wie der zentrale Elektrodenring dunkel erscheinen, sondern grau mit abnehmender Intensität nach außen. Zwischen den Stegen sind Thonringe zu sehen, die jedoch durch leichte Aufladungen an der PP nicht exakt rund, sondern leicht spinnennetzartig erscheinen.

Abb. 4.2b) zeigt in rot den gemittelten radialen Linescan der oberen Diffraktogrammhälfte, also bei einer angelegten Spannung von 0 V. Mit dem in schwarz dargestellten Fit ergeben sich Werte zu: $Z = -2,1 \mu\text{m}$ und $\varphi_{pp} = 0 \pi$. In Abb. 4.2c) ist die entsprechende Auswertung des unteren Diffraktogramms von 4.2a) zusehen. Bei einer angelegten Spannung von 0,3 V ergeben sich $Z = -2,1 \mu\text{m}$ und $\varphi_{pp} = 0,4 \pi$. In 4.2b) und c) kommt es wieder zu starken Abweichungen zwischen Linescan und Fit für sehr kleine Ortsfrequenzen. Dies liegt zum einen wieder am Ausläufer des NS, kann jedoch auch mit einer Aufladung im Bereich des Ringes zusammenhängen. Mit den roten Pfeilen in Abb. 4.5a) sind die fast komplementären Thonringe markiert.

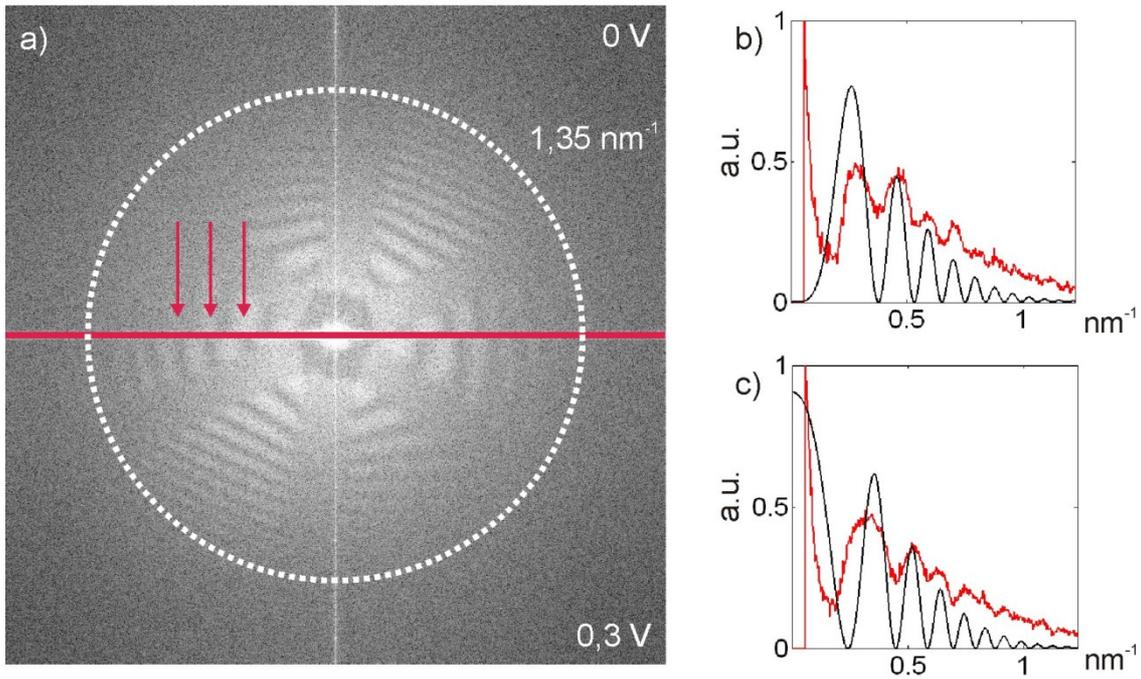


Abbildung 4.2: Phasenplattentests im ZEISS 912. a) Zwei Diffraktogrammhälften bei 0 V und 0,3 V übereinander zusammengefügt. Die BPP erscheint durch das Betragsquadrat der Abbildung mit sechs Stegen. Die roten Pfeile markieren die fast komplementären Thonringe. Durch Aufladungen an den Stegen sind die Thonringe leicht verbogen. b) Linescan (rot) und CTF-Fit (schwarz) der oberen Hälfte bei 0 V, es ergeben sich $Z = -2,1 \mu\text{m}$ und $\varphi_{\text{PP}} = 0 \pi$. c) Linescan und CTF-Fit der unteren Hälfte bei 0,3 V, $Z = -2,1 \mu\text{m}$ und $\varphi_{\text{PP}} = 0,4 \pi$.

Die durch die Fits an die Linescans ermittelten Werte von φ_{PP} sind in Abb. 4.3 in Abhängigkeit der angelegten Spannung aufgetragen. Es ergibt sich eine mittlere Steigung von $1,2 \pi/\text{V}$ ($\pm 0,04 \pi/\text{V}$). Dadurch ergibt sich eine Phasenschiebung von $\pi/2$ bei einer angelegten Spannung von 0,42 V.

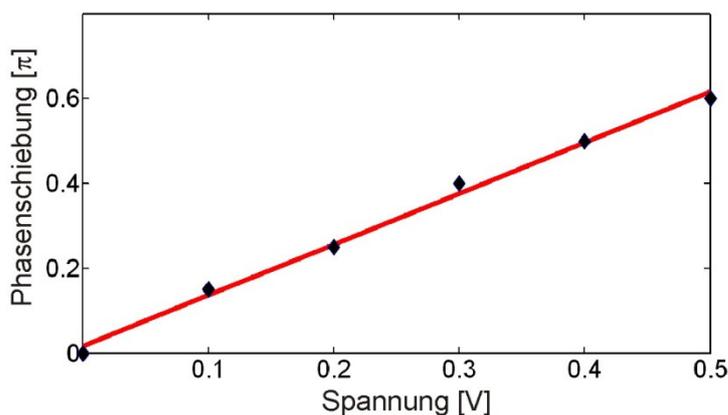


Abbildung 4.3: Aufgetragen ist φ_{PP} über der angelegten PP-Spannung. Es ergibt sich ein linearer Zusammenhang mit einer Steigung von $1,2 \pi/\text{V}$.

Dieser Wert kann nun verglichen werden mit dem theoretisch nach Gleichungen 2.28 und 2.29 erwarteten Wert, in dem die entsprechenden Schichtdicken eingesetzt werden. In Abb. 4.4 ist die eingebaute BPP abgebildet. Abb. 4.4a) zeigt die komplette Struktur und in Abb. 4.4b) ist die innere Öffnung vergrößert dargestellt. Die Abmessungen der BPP sind: Blendenradius $r_R = 28,6 \mu\text{m}$, äußerer Radius der Ringblende $r_a = 1,9 \mu\text{m}$ und der Radius der inneren Öffnung $r_i = 0,6 \mu\text{m}$. Die fünf Schichten sind deutlich zu sehen und deren Dicken eingezeichnet. Mit den gemessenen Schichtdicken ergibt sich eine berechnete Spannung von $0,59 \text{ V}$, um eine Phasenschiebung von $\pi/2$ zu erzeugen.

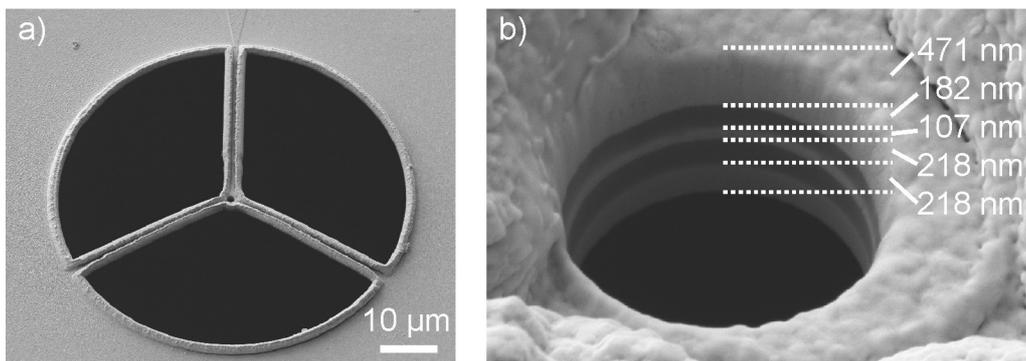


Abbildung 4.4: Zu Tests in das ZEISS 912 eingebaute BPP. a) Komplette PP Struktur. Die Abmessungen sind: $r_R = 28,6 \mu\text{m}$, $r_a = 1,9 \mu\text{m}$, $r_i = 0,6 \mu\text{m}$. b) Vergrößerte Darstellung der inneren Öffnung zur Bestimmung der Schichtdicken. Die hellen Schichten sind Goldschichten, die dunklen Schichten Isolatoren.

Die experimentell ermittelten Werte für die Phasenschiebung stimmen also in der Größenordnung mit den in erster Näherung theoretisch erwarteten überein. Ein spannungsabhängiger Defokuseffekt war bei den Tests nicht zu erkennen. Da die Ringe jedoch an den Stegen „verbiegen“, gibt es bei Aufnahmen mit dieser PP auch unerwünschte Effekte durch Aufladungen.

4.1.2 Betrieb im ZEISS 923 mit Feldemissionskathode

Mit einer in das ZEISS 923 eingebauten BPP wurden ebenfalls zunächst Testaufnahmen zur Bestimmung der Eigenschaften durchgeführt. In Abb. 4.5a) sind wieder zwei Diffraktogrammhälften gezeigt, die obere Hälfte bei einer angelegten Spannung von 0 V , die untere Hälfte bei $0,4 \text{ V}$. Die Thonringe sind deutlich zu erkennen und bis in höhere Ortsfrequenzen sichtbar. Mit den roten Pfeilen sind die komplementären Thonringe markiert, die eine relative Phasenschiebung von $\pi/2$ indizieren.

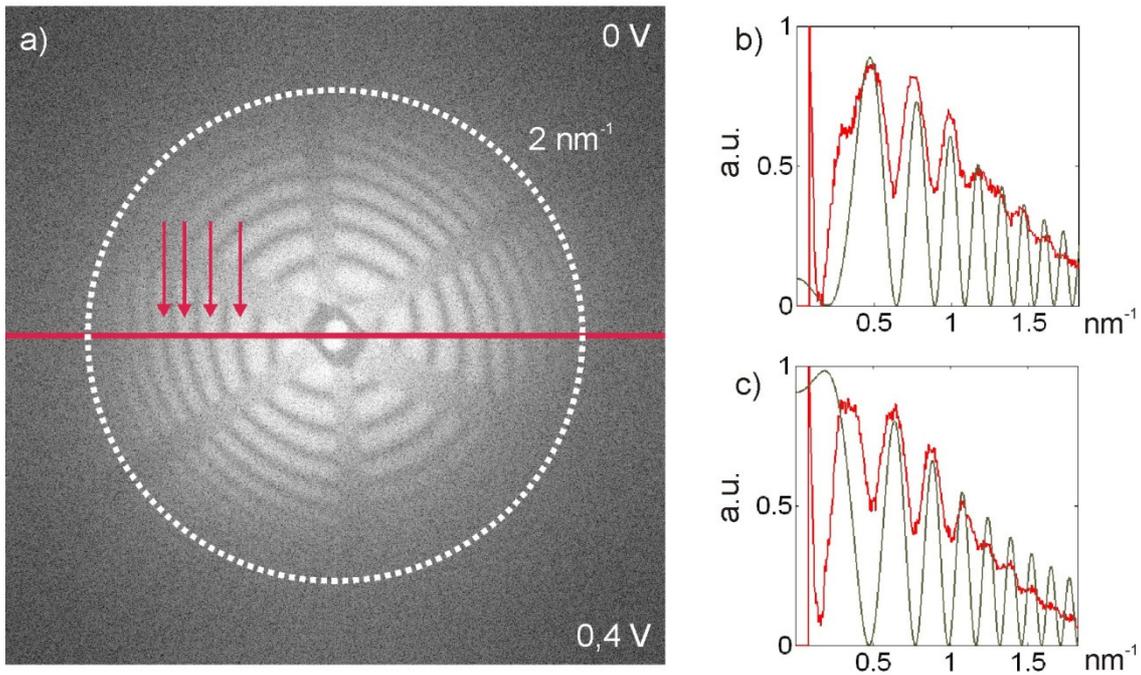


Abbildung 4.5: Phasenplattentests im ZEISS 923. a) Zwei Diffraktogrammhälften bei 0 V und 0,4 V übereinander geschnitten. Die roten Pfeile markieren die komplementären Thonringe, was eine relative Phasenschiebung von $\pi/2$ belegt. b) Linescan (rot) und CTF-Fit (schwarz) der oberen Hälfte bei 0 V, es ergeben sich $Z = -780 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,1 \pi$. c) Linescan und CTF-Fit der unteren Hälfte bei 0,4 V, $Z = -790 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,6 \pi$.

Abb. 4.5b) zeigt in rot den gemittelten radialen Linescan der oberen Diffraktogrammhälfte, also bei einer angelegten Spannung von 0 V. Mit dem in schwarz dargestellten Fit ergeben sich Werte zu: $Z = -780 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,1 \pi$. In Abb. 4.5c) ist die entsprechende Auswertung des unteren Diffraktogramms von 4.5a) zusehen. Bei einer angelegten Spannung von 0,4 V ergeben sich $Z = -790 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,6 \pi$, was einer zum obigen Diffraktogramm relativen Phasenschiebung von $\pi/2$ entspricht.

In einer Spannungsserie bei konstant gehaltenem Defokuswert wurden wieder in 0,1 V Schritten Bilder von aC Filmen aufgenommen und Z sowie φ_{PP} aus den zugehörigen Diffraktogrammen ermittelt. In Abb. 4.6 ist die Phasenschiebung in Abhängigkeit der Spannung aufgetragen. Hierbei wurde eine Ausgleichsgerade mit einer Steigung von $1,25 \pi/\text{V}$ ($\pm 0,07 \pi/\text{V}$) und einem Offset von $0,09 \pi$ ($\pm 0,02 \pi$) ermittelt. Dadurch ergibt sich eine relative Phasenschiebung von $\pi/2$ bei einer angelegten Spannung von 0,4 V.

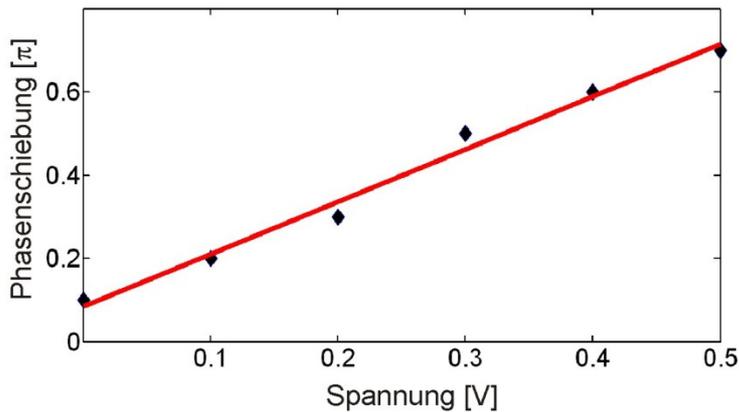


Abbildung 4.6: Aufgetragen ist φ_{PP} über der angelegten PP-Spannung. Es ergeben sich ein linearer Zusammenhang mit einer Steigung von $1,25 \pi/V$, sowie ein Offset von $0,09 \pi$.

In Abb. 4.7 ist die eingebaute BPP gezeigt. In Abb. 4.7a) ist die komplette Struktur zu sehen, aus der folgende Abmessungen bestimmt wurden: Blendenradius $r_R = 26,4 \mu\text{m}$, äußerer Radius der Ringblende $r_a = 1,5 \mu\text{m}$ und der Radius der inneren Öffnung $r_i = 0,5 \mu\text{m}$. Abb. 4.7b) zeigt den Schichtaufbau der Phasenplatte und die ermittelten Schichtdicken. Mit den gemessenen Werten ergibt sich eine berechnete Spannung von $0,46 \text{ V}$, um eine Phasenschiebung von $\pi/2$ zu erzeugen (nach Gleichungen 2.28 und 2.29). Dieser Wert stimmt gut mit dem experimentell bestimmten Wert überein.

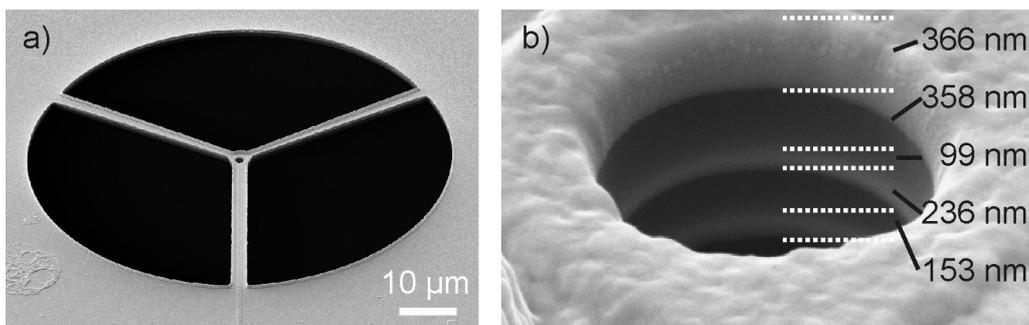


Abbildung 4.7: Zu Tests in das ZEISS 923 eingebaute BPP. a) Komplette PP Struktur. Die Abmessungen sind: $r_R = 26,4 \mu\text{m}$, $r_a = 1,5 \mu\text{m}$, $r_i = 0,5 \mu\text{m}$. b) Vergrößerte Darstellung der inneren Öffnung zur Bestimmung der Schichtdicken.

Wie auch bei den Tests mit der BPP im ZEISS 912 konnte keine spannungsabhängige Defokusänderung festgestellt werden. Der bei 0 V angelegter Spannung gemessene Offset in der Phasenschiebung stammt möglicherweise von einer leichten Aufladung im Lochbereich.

4.1.3 Betrieb im “Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope” (PACEM)

Auch im PACEM konnten Testaufnahmen zur Bestimmung der Phasenplatteneigenschaften durchgeführt werden. Durch den Aberrationskorrektor konnte der C_s -Wert auf $50 \mu\text{m}$ reduziert werden. Die verwendete Beschleunigungsspannung betrug 200 kV . In Abb. 4.8a) sind zwei Diffraktogrammhälften bei 0 V und $0,7 \text{ V}$ angelegter PP Spannung abgebildet. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Phasenplattenstruktur durch die Vergrößerungseinheit (Transferdoublett) weniger Elektronen abschattet als in den beiden zuvor gezeigten Beispielen. Die zusätzliche Brennebene war hier fünffach vergrößert. Mit den roten Pfeilen sind die komplementären Thonringe markiert. Es ist eine deutlich bessere Kohärenz der Elektronen entlang der Schnittebene als senkrecht dazu zu erkennen.

In Abb. 4.8b) und c) sind radiale Linescans und CTF-Fits der beiden Diffraktogramme gezeigt. Der ermittelte Defokuswert beträgt bei beiden Linescans $Z = -5,8 \mu\text{m}$, die Phasenschiebung bei 0 V ergibt $\varphi_{\text{PP}} = -0,25 \pi$ und bei $0,7 \text{ V}$ ergibt sich $\varphi_{\text{PP}} = 0,25 \pi$. Daraus resultiert eine relative Phasenschiebung von $\pi/2$.

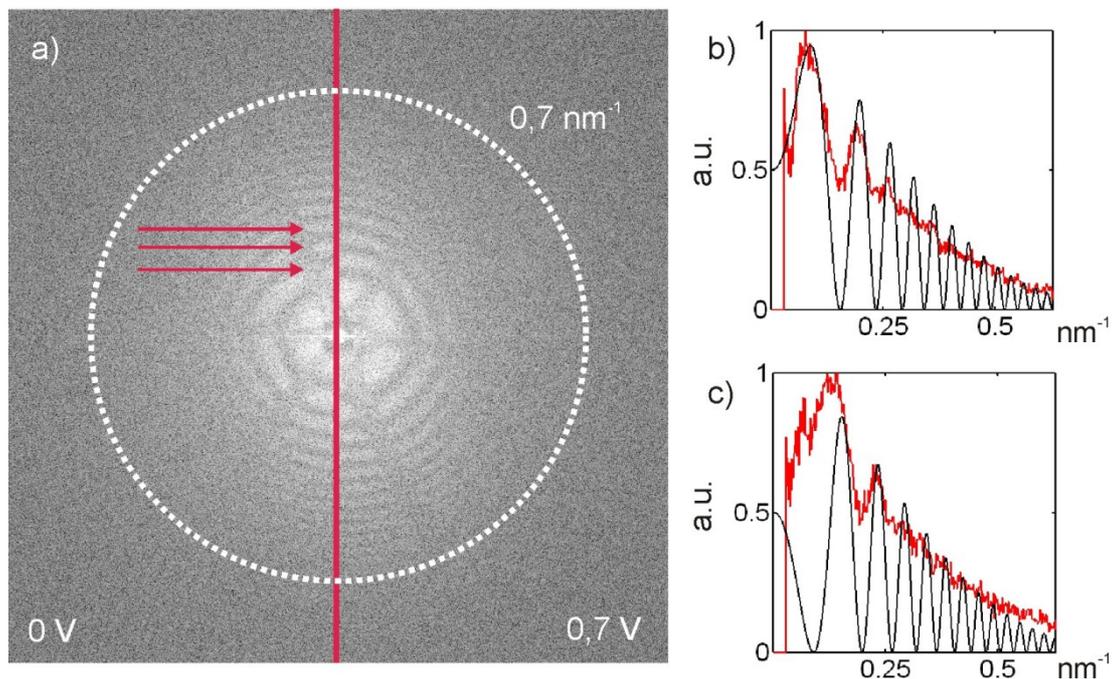


Abbildung 4.8: Phasenplattentests im PACEM. a) Zwei Diffraktogrammhälften bei 0 V und $0,7 \text{ V}$ nebeneinander zusammengefügt. Die roten Pfeile markieren die komplementären Thonringe, was eine relative Phasenschiebung von $\pi/2$ belegt. b) Linescan (rot) und CTF-Fit (schwarz) der linken Hälfte bei 0 V , es ergeben sich $Z = -5,8 \mu\text{m}$ und $\varphi_{\text{PP}} = -0,25 \pi$. c) Linescan und CTF-Fit der unteren Hälfte bei $0,7 \text{ V}$, $Z = -5,8 \mu\text{m}$ und $\varphi_{\text{PP}} = 0,25 \pi$.

Aus einer Spannungsserie von 0 V bis 1 V bei konstant gehaltenem Defokuswert wurden die zugehörigen Thonringe analysiert, um die Parameter Z sowie φ_{PP} zu bestimmen. Abb. 4.9 zeigt die Phasenschiebung in Abhängigkeit der Spannung. Die ermittelte Ausgleichsgerade hat eine Steigung von $0,66 \pi/V$ ($\pm 0,02 \pi/V$) und einen Offset von $-0,25 \pi$ ($\pm 0,01 \pi$). Dadurch ergibt sich eine relative Phasenschiebung von $\pi/2$ zwischen einer angelegten Spannung von 0 V und 0,76 V.

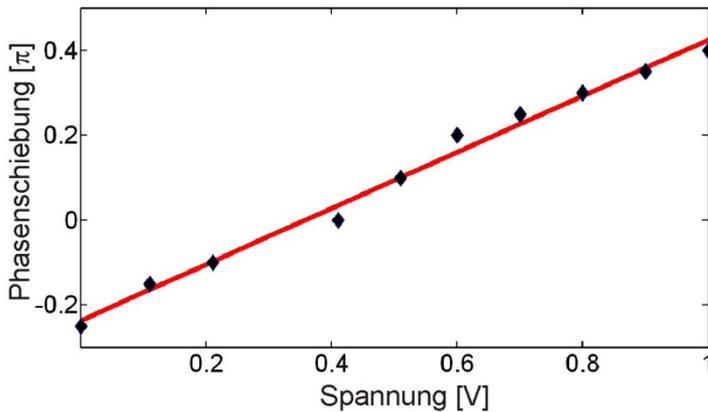


Abbildung 4.9: Aufgetragen ist φ_{PP} über der angelegten PP-Spannung. Es ergeben sich ein linearer Zusammenhang mit einer Steigung von $0,66 \pi/V$, sowie ein Offset von $-0,25 \pi$.

Abb. 4.10a) zeigt die eingebaute Phasenplatte. Der Radius der äußeren Blende betrug $r_R = 47,5 \mu\text{m}$, die Abmessungen der Ringelektrode waren $r_a = 1,6 \mu\text{m}$, $r_i = 0,6 \mu\text{m}$. In Abb. 4.10b) ist der fünfschichtige Elektrodenaufbau zu sehen und die Schichtdicken sind bestimmt. Die aus den Schichtdicken mit Gl. 2.28 und 2.29 berechnete Spannung für eine Phasenschiebung von $\pi/2$ für 200 keV Elektronen beträgt 0,53 V. Dies ist leicht weniger, als der experimentell bestimmte Wert.

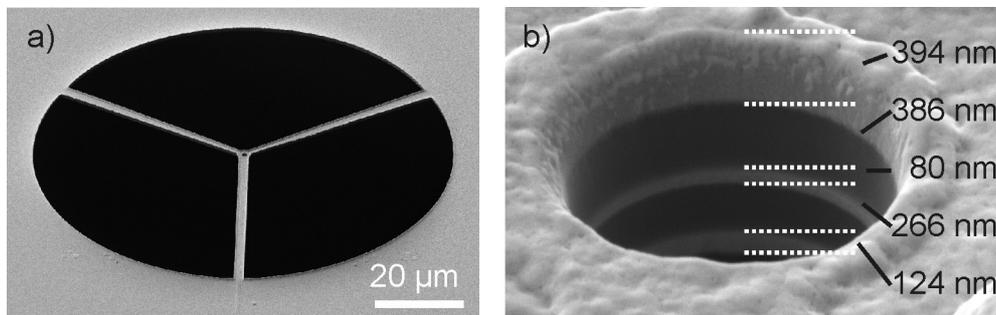


Abbildung 4.10: BPP für das PACEM. a) Komplette Struktur. Der äußere Blendenradius wurde im Vergleich zu den anderen Phasenplatten auf $r_R = 47,5 \mu\text{m}$ vergrößert, um die Auflösung nicht zu sehr einzuschränken beim Verwenden der vergrößerten Brennebene. Die Ringabmessungen sind $r_a = 1,6 \mu\text{m}$, $r_i = 0,6 \mu\text{m}$. b) Vergrößerte Abbildung der inneren Öffnung zur Bestimmung der Schichtdicken.

In der durchgeführten Spannungsserie konnte kein spannungsabhängiger Defokus festgestellt werden. Da jedoch der verwendete Defokuswert mit $-5,8 \mu\text{m}$ sehr hoch war, ist es zu erwarten, dass eine spannungsabhängige Defokusänderung unter der Nachweisgrenze liegt.

4.2 Experimentelle Ergebnisse II: Phasenplatten Transmissionselektronenmikroskopie mit Boersch Phasenplatten

4.2.1 Phasenkontrastabbildungen mit dem ZEISS 912

a) Zinkoxid Nanosäule

Als erstes Beispiel sind Zinkoxid Nanosäulen von etwa 60 nm Durchmesser auf aC Film zu sehen. Abb. 4.11a) zeigt eine konventionelle TEM Aufnahme nahe des Gauss Fokus, Abb. 4.11d) das zugehörige Diffraktogramm. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Aufnahme einen Astigmatismus aufweist. Die Abb. 4.11b) und c) wurden bei positionierter BPP aufgenommen (siehe zugehörige Diffraktogramme in 4.11e) und f). In 4.11b) war keine Spannung angelegt, in 4.11c) eine Spannung von 0,4 V. Aus radialen Linescans und gefitteten CTFs wurden analog zu Kap. 4.1 die Aufnahmeparameter zu $Z = -900 \text{ nm}$ und $\varphi_{\text{PP}} = -0,4 \pi$ (4.11e) und 0π (4.11f) bestimmt.

Auffällig ist der Kontrastunterschied zwischen den Aufnahmen mit positionierter BPP und der ohne, welcher erheblich stärker ist als die Veränderung der beiden Bilder mit unterschiedlicher Spannung und Phasenschiebung. Durch das Positionieren der PP und die damit verbundene Abschattung eines Teils der Elektronen kommt es zu einer Frequenzfilterung des Bildes, entsprechend den verdeckten Ortsfrequenzen durch die zentrale Ringelektrode. Die Aufnahmen sehen hierdurch unscharf aus, da keine klaren Ränder an den Strukturen zu erkennen sind. Die in 4.11a) im aC Film erkennbaren Partikel im unteren Teil des Bildes erscheinen mit positionierter BPP als dunklere Flecken ohne spezifische Form. Durch den stärkeren Defokuswert der BPP Aufnahmen erscheint der aC Film sehr granular.

Auffällig an den BPP Bildern ist außerdem ein zusätzlicher Randeffect in Form eines dunklen Streifens etwa 18 nm über- und unterhalb der Säule, sowie ein heller Streifen innerhalb der Säule entlang des Rands im Abstand von etwa 12 nm (siehe rote Pfeile in Abb. 4.11b). Um diese Streifen sowie die Fresnelsäume am Rand der Säule genauer zu untersuchen, wurde in allen drei Bildern ein 50 nm langer und über 100 Pixel Breite gemittelter Linescan senkrecht zur Säule durchgeführt. Der Verlauf des Linescans ist in 4.11g) eingezeichnet. Zur Normierung wurde die mittlere Intensität der Aufnahmen verwendet.

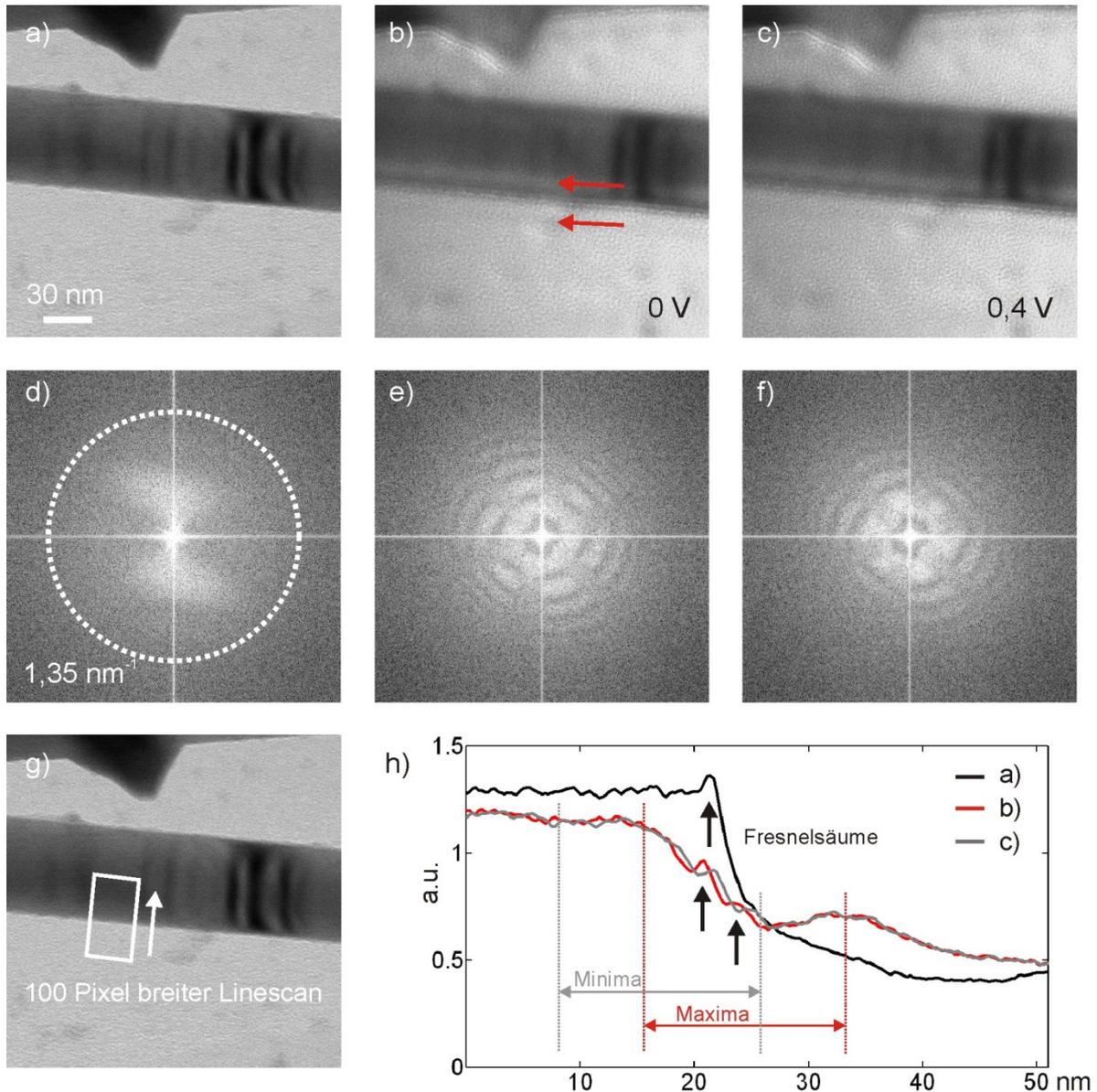


Abbildung 4.11: ZnO Nanosäule auf *a*C Film. a) Konventionelle TEM Aufnahme nahe des Gauss Fokus. b) PP TEM Aufnahme ohne angelegte Spannung. Mit roten Pfeilen ist ein zusätzlicher Randeffekt markiert. c) PP TEM Aufnahme mit angelegter Spannung 0,4 V. d) Diffraktogramm zu a), es ist ein Astigmatismus zu erkennen. e) Diffraktogramm zu b). Aus den Thonringen wurden $Z = -900$ nm und $\varphi_{PP} = -0,4 \pi$ bestimmt. f) Diffraktogramm zu c). Die Parameter $Z = -900$ nm und $\varphi_{PP} = 0 \pi$ wurden hieraus ermittelt. g) Aufnahme a) mit markiertem Linescanbereich. h) Über 100 Pixel gemittelter Linescan (siehe g) aus den Bildern a) bis c). Die Intensität wurde auf die mittlere Intensität der Aufnahmen normiert. Mit schwarzen Pfeilen sind die Fresnelsäume markiert, in grau und rot die Minima bzw. Maxima des zusätzlichen Randeffekts.

Abb. 4.11h) zeigt den Linescanbereich aus g) in den drei Bildern 4.11a) bis c) gemessen. Die schwarze Linie aus a) zeigt einen relativ konstanten Untergrund mit einem scharfen Rand der Säule begrenzt durch einen hellen Fresnelsaum. Anschließend nimmt die Intensität

gleichmäßig ab. In den beiden Linescans aus den PP TEM Aufnahmen (rot und grau) ist der Rand der Säule nicht deutlich zu erkennen. Es ist eine Schwingung um die Kante mit einer Wellenlänge von etwa 20 nm zu sehen, mit einem Minimum etwa 18 nm unter dem Rand und einem Maximum bei etwa 12 nm über dem Rand. Die Wellenlänge $\lambda = 20$ nm entspricht einer Ortsfrequenz von 0.05 nm^{-1} . Diese Frequenz ist die kleinste vom Phasenplattening ausgefilterte Ortsfrequenz. Die Oszillation verläuft unabhängig der angelegten Spannung, was die Koinzidenz der beiden Profile zeigt. Am unteren Rand der Säule ist der zusätzliche Kanteneffekt stärker ausgeprägt als am oberen.

Am Rand der Nanosäule sind in den defokussierten BPP Bildern Fresnelsäume zu sehen, die sich durch die angelegte Spannung an der BPP verschieben.

b) Festelektrolyt Kondensatoren

Als zweites Beispiel für PP TEM Abbildung im ZEISS 912 ist im Folgenden die Mikrostruktur eines Festelektrolytkondensators zu sehen. Abb. 4.12a) bis c) zeigen TEM Aufnahmen einer konventionell präparierten Kondensator Probe. Im Ausschnitt zu sehen ist die Niob Anode umgeben von einer Niobpentoxid Dielektrikumschicht. Abb. 4.12a) ist eine quasi-konventionelle TEM Aufnahme, da sie durch einen Sektor der BPP aufgenommen wurde. Abb. 4.12g) zeigt das zugehörige Diffraktogramm, indem die PP Struktur punktsymmetrisch am rechten und linken Rand zu sehen ist.

In den Aufnahmen 4.12b) und c) ist die BPP um den Nullstrahl zentriert, wobei in b) 0 V und in c) 0,4 V an die zentrale Elektrode angelegt wurden. In den Bildern ist zu sehen, dass die Vakuumbereiche in der Mitte und links oben wie in einer Dunkelfeldaufnahme dunkel erscheinen. Außerdem erscheint ein heller Fleck jeweils rechts neben den Vakuumrändern innerhalb der Probe. In 4.12h) und i) sind die zugehörigen Diffraktogramme zu sehen. Da in keinem der Diffraktogramme Thonringe zu sehen sind, ist es nicht möglich, die exakten Mikroskopparameter zu bestimmen. Die Aufnahmen sind jedoch bei kleinen Defokuswerten durchgeführt und zwischen 4.12b) und c) liegt vermutlich eine relative Phasenschiebung von etwa $0,4 \pi$.

4.12d) bis f) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des Bildes (siehe Markierung in 4.12b). Hierbei ist nur in der Aufnahme f) ein Bilddetail zu sehen, das in den anderen beiden Aufnahmen unsichtbar ist. Es scheint sich dabei um die Überlappung zweier Nb_2O_5 -Bereiche zu handeln. Die zusätzliche Grenzlinie konnte durch Anlegen einer Spannung an die BPP wiederholt und in verschiedenen Vergrößerungen sichtbar und unsichtbar gemacht werden, sodass es sich hierbei sicher um durch die BPP sichtbar gewordenen Phasenkontrast handelt. Mit etwa 2 nm ist die Abmessung der sichtbaren Kante auch deutlich außerhalb des durch den Ring verdeckten Frequenzbereichs, da die cut-on Frequenz etwa bei $1/6,35 \text{ nm}^{-1}$ liegt.

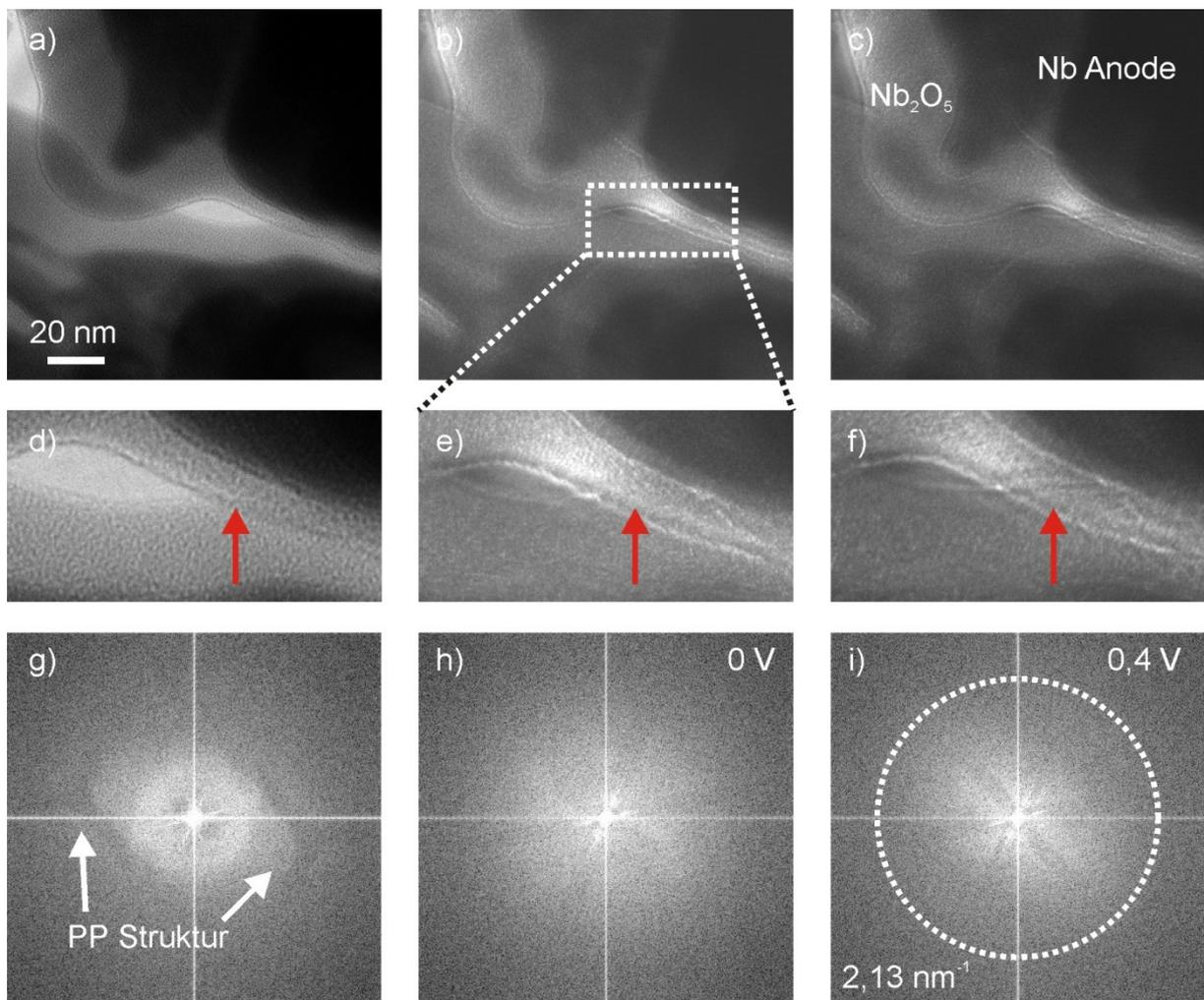


Abbildung 4.12: Festelektrolytkondensatoren. a) TEM Aufnahme durch einen Sektor der BPP. Zu sehen ist eine Nb Anode mit aufgewachsener Nb_2O_5 Dielektrikumschicht. b) PP TEM Aufnahme mit angelegter Spannung 0 V. c) PP TEM Aufnahme mit angelegter Spannung von 0,4 V. d) bis f) Vergrößerter Ausschnitt aus den Bildern a) bis c), welcher in b) markiert ist. Die roten Pfeile markieren das in f) zusätzlich zu sehende Bilddetail, in den anderen Ausschnitten die entsprechende Stelle. g) Diffraktogramm zu a). Rechts und links am Rand ist punktsymmetrisch die PP Struktur zu sehen. h) und i) sind die zu b) und c) gehörigen Diffraktogramme. Die BPP ist hier um den NS zentriert.

4.2.2 Phasenkontrastabbildungen mit dem ZEISS 923

a) Keilprobe mit Schichten

Die in diesem Beispiel gezeigte Probe ist eine aus mehreren dünnen Schichten aufgebaute Probe. Auf einem Si Substrat wurden zunächst eine etwa 24 nm dicke Al_2O_3 -Schicht, dann eine etwa 67 nm dicke C-Schicht und zuletzt eine etwa 20 nm dicke Mo-Schicht mittels PVD abgeschieden. Aus dem fertigen Schichtpaket wurde mit dem FIB-System eine keilförmige Querschnittsprobe hergestellt. In Abb. 4.13a) ist eine konventionelle TEM-Aufnahme nahe des Gauss Fokus zu sehen, in der die einzelnen Schichten gekennzeichnet sind. Unterhalb der Mo-Schicht ist eine Pt-Schutzschicht zu erkennen, die für die Probenpräparation mittels FIB benötigt wird. Das zugehörige Diffraktogramm ist in 4.13g) zu sehen. In der defokussierten konventionellen Aufnahme in 4.13b) (Diffraktogramm in 4.13h) sind die Übergänge zwischen Schichten deutlicher zu erkennen. Außerdem sieht man sowohl im Bereich des Kohlenstoffs als auch im Pt Körnigkeiten.

In Abb. 4.13c) (mit Diffraktogramm 4.13i) wurde eine Frequenzfilterung des Bildes 4.13a durchgeführt, um den Einfluss der Ringelektrode diesbezüglich abzuschätzen. Hierfür wurden die Ortsfrequenzen zwischen $0,08 \text{ nm}^{-1}$ und $0,2 \text{ nm}^{-1}$ aus der Fouriertransformierten gelöscht, was im Realraum Abständen zwischen 5 nm und 12,5 nm entspricht. Es ist zu erkennen, dass durch die Filterung die Körnigkeiten in der C-Schicht nicht mehr sichtbar sind. Außerdem sind an den Kanten und Grenzflächen zusätzliche Hell-Dunkel-Streifen zu sehen im Abstand von etwa 10-15 nm, ähnlich dem in Kap. 4.2.1a beschriebenen Effekt.

In den Abb. 4.13d) bis f) (mit Diffraktogrammen 4.13j) bis l) ist nun die BPP um den NS positioniert. Wie im frequenzgefilterten Bild c) sind die Inhomogenitäten im Bereich des C nicht mehr zu sehen und es gibt zusätzliche Helligkeitsoszillationen um die Grenzflächen, jedoch ist dieser Effekt wesentlich stärker ausgeprägt als in c). Da sich durch die unterschiedlichen Spannungen an der BPP in d) bis f) die Grenzzone zwischen Si und Al_2O_3 stark verändert, wurde dieser Bereich mit Linescans genauer betrachtet. Ein über 20 Pixel gemittelter Linescan wurde senkrecht zu den Schichten durchgeführt (siehe rote Linie in 4.13a). Die Intensität wurde hierbei auf die Al_2O_3 -Schicht normiert.

4.13m) zeigt einen Grafen mit Linescans aus dem fokussierten Bild a) in rot, sowie dem defokussierten Bild b) in grau. Die Grenze im fokussierten Bild erscheint als eine Doppelschicht mit Peak-Abstand von etwa 1,3 nm. Im defokussierten Bild ist nur ein Peak zu sehen, der heller und breiter ist. 4.13n) vergleicht das konventionelle fokussierte Bild a) in rot mit der BPP Aufnahme d) ohne angelegte Spannung in grau. In dem BPP Bild erscheint an der Grenze wieder ein Doppelpeak, diesmal jedoch mit einem vergrößerten Abstand von etwa 3,1 nm. Die Peak-Intensitäten sind etwa gleich hoch.

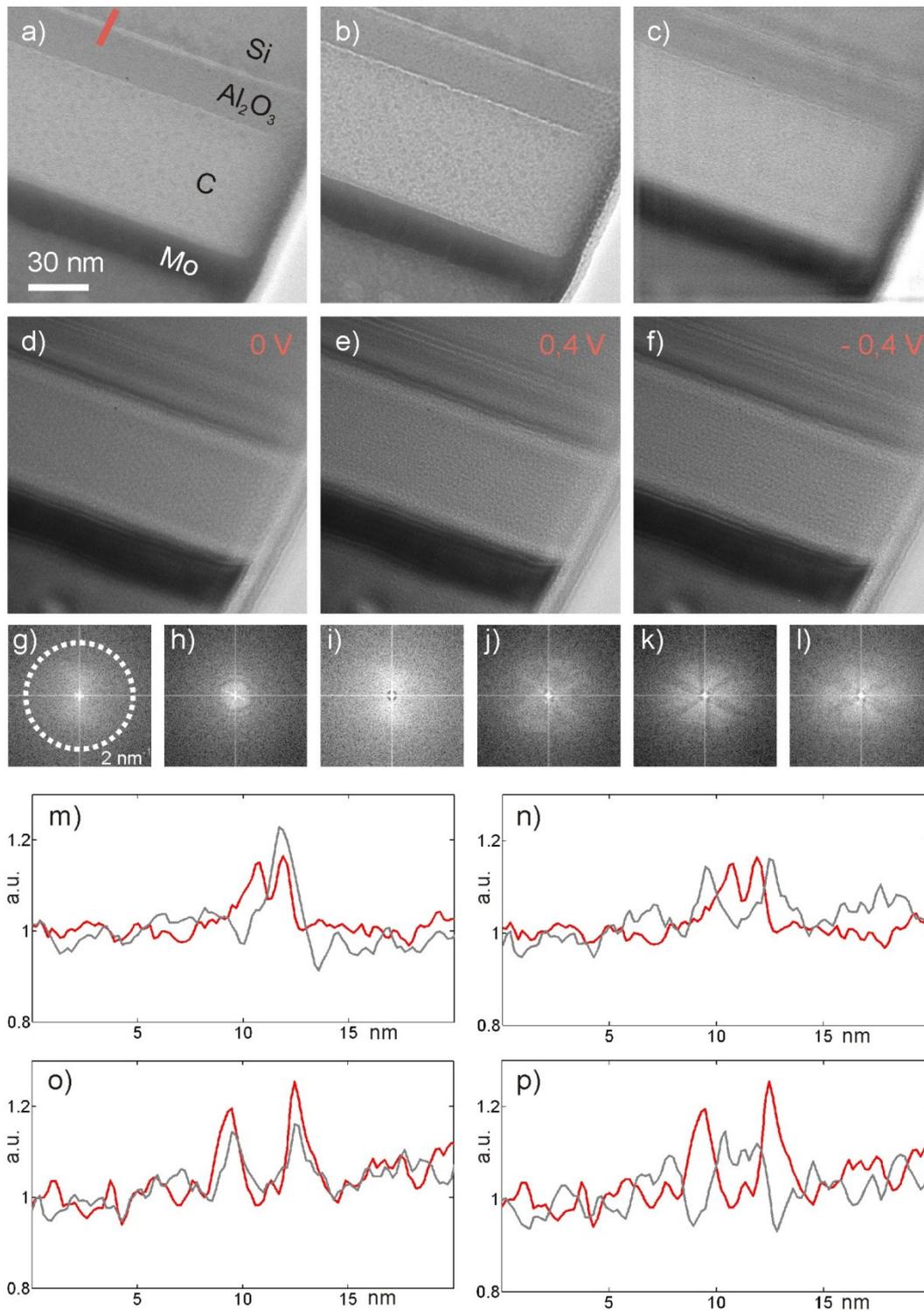


Abbildung 4.13: Keilprobe aus aufgedampften dünnen Schichten. a) Infokus TEM Aufnahme mit eingezeichneter Schichtfolge. b) Defokussierte TEM Aufnahme. c) frequenzgefilterte Abbildung von a), Filter zwischen $0,08 \text{ nm}^{-1}$ und $0,2 \text{ nm}^{-1}$. d) BPP TEM Aufnahme bei 0 V. e) BPP TEM Aufnahme bei 0,4 V. f) BPP TEM Aufnahme bei -0,4 V. g) bis h) Diffraktogramme der Bilder a) bis f). m) Intensitätsprofile entlang des 20 Pixel breiten Linescans in a) (rot) und an der entsprechenden Stelle in b) (grau). n) Linescans in a) (rot) und d) (grau). o) Linescans in d) (grau) und e) (rot). p) Linescans in e) (rot) und f) (grau).

In 4.13o) sind die beiden BPP Bilder d) in grau und e) in rot verglichen. Hierbei erkennt man, dass sich durch das Anlegen einer Spannung und die damit verbundene Phasenschiebung der Peak-Abstand nicht ändert, jedoch deren Höhen. Der Kontrast erhöht sich um etwa 35-45% durch das Anlegen der positiven Spannung. Die Profile in 4.13p) sind aus den BPP Bildern e) und f) mit positiver Spannung in rot, sowie negativer Spannung in grau. Bei negativer Spannung ist wieder eine Doppelschicht mit demselben Peak-Abstand wie in den anderen BPP Bildern zu sehen, jedoch ist der Doppelpeak diesmal dunkel, also die Spitzen sind als Minima im Profil zu sehen.

Vermutlich hat sich an der Grenzfläche zwischen Si und Al_2O_3 eine dünne SiO_2 Zwischenschicht von etwa 2,5 nm ausgebildet. In der fokussierten Aufnahme in Abb. 4.13a) ist diese durch leichten Kontrast zu erkennen. Bei positionierter PP verliert die Zwischenschicht selbst den Kontrast, an deren Ränder bilden sich jedoch sichtbare Abgrenzungen in Form von Peaks aus, die sich mit der angelegten Spannung im Kontrast verändern lassen. Der Verlust der Körnigkeiten in der C Schicht ist auf die Frequenzfilterung des Rings der BPP zurückzuführen, da deren Größe den abgeschatteten Raumfrequenzen entspricht.

b) Platin Nanopartikel

Die hier verwendete Probe besteht aus etwa 2,5-3,5 nm großen Pt Nanopartikeln, die mittels PVD auf einen etwa 10 nm dicken aC Film aufgedampft wurden. Die Partikelgröße ist gerade klein genug, dass man sie trotz des frequenzfilternden Rings der BPP noch abbilden kann, da die cut-on Frequenz etwa bei $0,2 \text{ nm}^{-1}$ liegt, was im Realraum Abständen von 5 nm entspricht.

Die Bilder sind mit 250.000-facher Vergrößerung aufgenommen. Da der Beleuchtungswinkel nur 0,5 mrad betrug, konnten trotz einer Belichtungsdauer von 8 Sekunden nur sehr niedrige Countraten erreicht werden, was zu einem hohen Rauschanteil im Bild führt.

In Abb. 4.14a) ist eine BPP TEM Aufnahme der Probe ohne angelegte Spannung zu sehen. Aus dem zugehörigen Diffraktogramm 4.14d) wurden als Parameter $Z = -230 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = 0 \pi$ bestimmt. Ohne angelegte Spannung sind keine Pt Partikel zu sehen. Abb. 4.14b) zeigt eine Aufnahme bei angelegten 0,4 V. Hier sind deutlich helle Partikel sichtbar. Das zugehörige Diffraktogramm 4.14e) ergibt als verwendeten Defokus $Z = -270 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = 0,65 \pi$. Bei der Aufnahme des letzten Bildes 4.14c) war eine Spannung umgekehrten Vorzeichens von -0,2 V angelegt. Die Partikel erscheinen nun dunkel. Aus dem zugehörigen Diffraktogramm 4.14f) ergeben sich $Z = -230 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = -0,35 \pi$. Zum direkten Vergleich der Partikelkontraste wurden zwei Probenbereiche mit jeweils drei Nanopartikeln weiß markiert.

Außerdem wurden über zwei Partikel links oben im Bild (siehe weiße Markierung in 4.14b) ein über 10 Pixel gemittelter Linescan durchgeführt. In Abb. 4.14g) ist in grau der Linescan an

entsprechender Stelle in 4.14a) eingezeichnet und in rot der Linescan in 4.14b) mit angelegter Spannung von 0,4 V. Die Intensitäten sind auf die mittlere Bildintensität normiert. Durch die zusätzliche Phasenschiebung konnte ein Partikelkontrast von etwa 30 % erreicht werden. Abb. 4.14h) zeigt das Intensitätsprofil des Linescans in 4.14c). Hier ist ebenfalls ein guter Partikelkontrast von etwa 30 % auszumachen, wobei die Partikel hier einen umgekehrten Kontrast aufweisen.

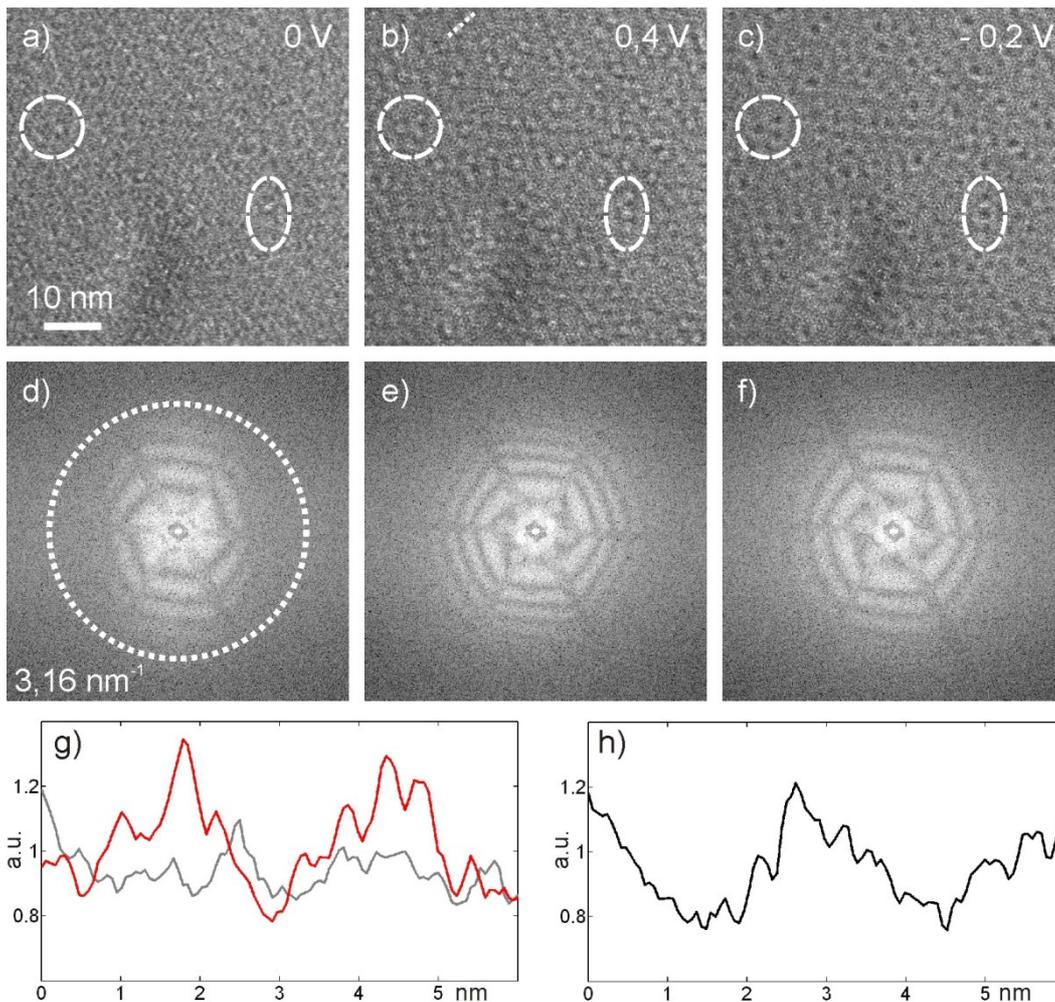


Abbildung 4.14: Pt Nanopartikel auf aC Film. a) BPP TEM Aufnahme ohne angelegte Spannung. b) BPP TEM Aufnahme mit 0,4 V angelegter Spannung. c) BPP TEM Aufnahme mit angelegter Spannung von -0,2 V. d) zu a) gehöriges Diffraktogramm, es ergeben sich daraus $Z = -230 \text{ nm}$, $\varphi_{pp} = 0 \pi$. e) Diffraktogramm von b), es wurden $Z = -270 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = 0,65 \pi$ bestimmt. f) Diffraktogramm von c) mit $Z = -230 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = 0,35 \pi$. g) Intensitätsprofile von Linescans über zwei Partikel entlang der in b) markierten weißen Linie normiert auf die mittlere Bildintensität. In grau. Linescan in a), in rot, Linescan in b). h) Linescan in c), die Partikel erscheinen mit niedrigerer Intensität.

4.3 Diskussion

In den Vorarbeiten zu dieser Arbeit konnte bereits die Funktion einer BPP mit sich umkehrenden Thonringen und Spannungsserien nachgewiesen werden [Schultheiß et al. 2006]. Zu diesem Zeitpunkt war es jedoch noch nicht möglich bzw. sinnvoll, PP TEM Aufnahmen mit elektrostatischen Phasenplatten zu erzeugen, da die Dimensionen der Struktur und die damit verbundenen Abschattungen zu groß waren. Die mit dem verbesserten Verfahren hergestellten PPs weisen filigranere Strukturen auf, was jedoch auf die Funktionalität der PP keinen negativen Einfluss hat, wie in Kap. 4.3 für alle drei Phasenplatten in den verschiedenen Geräten gezeigt wurde.

In der vor kurzem veröffentlichten Arbeit von Alloyeau et al. [2009] wurden auch erste TEM Bilder gezeigt, bei denen eine BPP verwendet wurde. Der Effekt der Phasenschiebung war jedoch im Vergleich zu Absorptionseffekten durch die PP Struktur nur schwach. Da die Bilddetails kleiner, also die zugehörigen Raumfrequenzen größer waren als die cut-on Frequenz, erklärt Alloyeau den zusätzlichen Kontrast bei Positionierung der PP durch eine leichte Fehlpositionierung der PP und einem damit verbundenen Herausfiltern eines Teils der NS Elektronen. Durch die zusätzlichen ungewünschten Kontrastbeiträge erscheinen die durch die Phasenschiebung erzielten Kontraständerungen marginal.

Im Folgenden wird eingegangen auf drei Hauptpunkte der Arbeit mit BPPs, zunächst die Elektronenquelle, dann die Effekte durch die Abschattung aufgrund der Ringelektrode und schließlich auf Kontaminationsprobleme und Haltbarkeit der BPP.

4.3.1 Einfluss der Elektronenquelle

Für Phasenkontrastmikroskopie ist eine hohe räumliche Kohärenz von immenser Wichtigkeit. In den Experimenten hat sich herausgestellt, dass es deshalb sehr schwierig ist, an einem Gerät ohne FEG zu arbeiten. Es wurden zwar Ergebnisse mit sich ändernden Probedetails präsentiert, jedoch war durch die Kombination der LaB₆ Kathode mit der Stabilität des Mikroskops und der Probe eine Vergrößerung von maximal 40.000-63.000 fach möglich. Das resultiert daraus, dass der Beleuchtungswinkel nicht über 0,5 mrad gewählt werden kann und damit für große Vergrößerungen zu wenig Intensität auf die CCD Kamera trifft, was eine Verlängerung der Belichtungszeit verlangen würde.

Bei Verwendung dieser relativ niedrigen möglichen Vergrößerungen ist nur die Untersuchung von Proben möglich, die entsprechend große Bilddetails ausweisen. Von deren zugehörigen Raumfrequenzen fallen allerdings ein großer Teil in den Ring der BPP, bzw. die cut-on Frequenz entspricht im Bild kaum sichtbaren Details. D.h. der sichtbare

Bildkontrast mit positionierter BPP setzt sich hauptsächlich aus Ortsfrequenzen der inneren BPP Öffnung zusammen.

Eine FEG produziert durch die sehr feine Spitze extrem hohe Stromdichten und hat eine im Vergleich zu LaB_6 Kathode wesentlich geringere Crossover Größe, was der effektiven Quellengröße entspricht. Die hier jedoch entscheidende Größe ist der Richtstahlwert, der die Stromdichte pro Einheitswinkel angibt. Je höher der Richtstahlwert ist, desto mehr Elektronen tragen zu einem Elektronenstrahl fest gegebener Größe bei. In Tab. 4.1 [Williams 1996] sind einige Eigenschaften von LaB_6 Kathode und FEG verglichen.

Mit dem ZEISS 923 FEG Mikroskop konnte also auch trotz kleinerer Beleuchtungswinkel bei höheren Vergrößerungen bis zu 250.000 fach gearbeitet werden. Bei dieser Vergrößerung sind dann die Bilddetails zu den Frequenzen oberhalb der cut-on Frequenz gut erkennbar, wie das Beispiel der Pt Partikel zeigt.

	Einheit	LaB_6	FEG
Stromdichte	A/m^2	10^6	10^{10}
Crossover Größe	μm	10	< 0,01
Brightness	$\text{A}/\text{m}^2\text{sr}$	$5 \cdot 10^{10}$	10^{13}

Tabelle 4.1: Einige Eigenschaften der LaB_6 Kathode verglichen mit der FEG.

4.3.2 Effekte und Einfluss der Abschattung von Elektronen durch die Phasenplattenstruktur

Bei den gezeigten Beispielen von PP TEM Aufnahmen mit BPPs ist auffällig, dass der Effekt auf das Bild durch die reine Positionierung der Phasenplatte sehr stark ist. Je größer der verdeckte Frequenzbereich der zum Bild beitragenden Elektronen, desto stärker ist das Bild beeinflusst. Vor allem in den Bildern bei niedriger Vergrößerung im ZEISS 912 sind starke Veränderungen zwischen konventionellen Aufnahmen und BPP Aufnahmen (auch ohne angelegte Spannung) zu beobachten. Durch die reine Filterung eines Frequenzbandes sind jedoch nicht alle Effekte zu erklären, wie in Abb. 4.13c) gezeigt.

Es kommt auch zu zusätzlichen Kanteneffekten, wie bei Abb. 4.11 an der Nanosäule genauer untersucht, jedoch auch bei der Keilprobe in Abb. 4.13 am Probenrand zu sehen. Die zusätzlichen hellen und dunklen Streifen in Kantenbereichen sind vermutlich verursacht durch leichte Fehljustierung der PPs, z.B. Teilabschattung des Nullstrahls oder Verkippung. Alloyeau et al [2009] beschreiben den Effekt als asymmetrischen Hilbertkontrast, da der NS evtl. nicht symmetrisch durch die innere Öffnung geführt wird. So ist der im Linescan in 4.13 gezeigte Kanteneffekt an der Unterseite der Säule stärker ausgeprägt als an der oberen. Eine weitere Auswirkung möglicher Fehljustierung könnte die delokalisierte Intensität in Abb.

4.12 b) und c) sein. Hier erscheinen die Vakuumbereiche der Probe dunkel, während rechts neben den Probenkanten helle Flecken zu sehen sind.

Um einen Effekt zu erhalten, der durch das Anlegen verschiedener Spannungen an die BPP dominiert ist, sind also eine hohe Vergrößerung, bzw. kleinere PP-Strukturen sowie eine optimale Justage der PP notwendig.

In weiteren Experimenten am PACEM konnte gezeigt werden, dass trotz positionierter BPP die Strukturen von Fettsäure-Synthetase, die etwa 10 nm messen, noch gut zu erkennen sind (siehe Abb. 4.15, [Barton 2010]). Die Vergrößerung der hinteren Brennebene um das Fünffache bei etwa gleichbleibenden Abmessungen der Ringelektrode ermöglicht also eine breitere Auswahl an Proben und bietet damit eine vielversprechende Möglichkeit der Anwendung von BPPs.

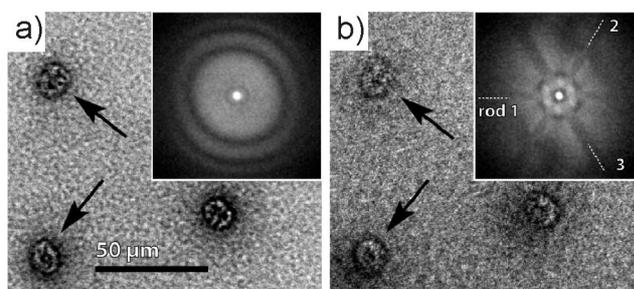


Abbildung 4.15: TEM Aufnahmen von Fettsäure-Synthetase im PACEM [Barton 2010]. a) Konventionelle TEM Aufnahme. b) Aufnahme mit positionierter BPP um den NS. Die Abschattung der PP beeinflusst das Bild kaum.

Um den Einfluss der Ringgröße und Brennweite der Objektivlinse auf die Ortsfrequenzen zu vergleichen, sind in Tab. 4.2 die verwendeten Parameter für die drei Mikroskope noch einmal verglichen. Mit einer cut-on Frequenz von $1/23,5 \text{ nm}^{-1}$ bietet das PACEM eine enorme Verbesserung gegenüber den anderen Mikroskopen.

	ZEISS 912	ZEISS 923	PACEM
Äußerer Radius der Ringelektrode	1,9 µm	1,5 µm	1,6 µm
Brennweite Objektiv	3,6 mm	3 mm	15 mm
Cut-on frequency	$1/6,35 \text{ nm}^{-1}$	$1/6,7 \text{ nm}^{-1}$	$1/23,5 \text{ nm}^{-1}$

Tabelle 4.2: Einfluss des BPP Ringes auf die cut-on Frequenz in den verschiedenen Mikroskopen.

4.3.3 Kontamination der Phasenplatte und Haltbarkeit

Bei den Fits der CTFs an die gemittelten Linescans in den Diffraktogrammen konnte sowohl in den Spannungsserien am ZEISS 923 und am PACEM, als auch bei einigen PP TEM Bildern ein Offset in der Phase festgestellt werden. Das bedeutet, dass die PP in diesem Fall auch ohne angelegte Spannung eine Phasenschiebung erzeugt. Dieser Effekt kann dadurch erklärt werden, dass es im Bereich der inneren Öffnung mit zunehmender Betriebszeit zu Kontaminationen kommt, die sich auch aufladen können und damit ein zusätzliches Feld erzeugen. Außerdem fließt mit zunehmender Betriebsdauer und Kontamination ein höherer Leckstrom zwischen den Elektroden. Innerhalb weniger Tage in Betrieb verstärkt sich der Effekt, sodass die PP unbrauchbar wird. Auch die spinnennetzartigen Verbiegungen an den Stegen, die in der Spannungsserie am ZEISS 912 zu sehen sind, rühren vermutlich von Kontaminationen und Aufladungen her.

Das Vakuum im Objektivraum sollte bestmöglich sein (besser als etwa $2 \cdot 10^{-7}$ mbar), um Kontaminationen zu minimieren. Wie bei den ZPPs üblich, wurde auch im PACEM eine Heizung der PP getestet und Kontaminationen konnten reduziert werden. Für zukünftige Arbeiten sollten die PPs generell geheizt werden, damit die Haltbarkeit verlängert wird.

In Abb. 4.19 sind drei ausgebauten BPPs zu sehen. 4.19a) zeigt eine BPP aus dem ZEISS 912, hier sind die fünf Schichten durch den aufgewachsenen Kontaminationsfilm nur noch verschwommen zu erkennen. In 4.19b) sieht man in Draufsicht den durch Kontamination um ca. 200 nm verringerten Lochdurchmesser, der aus dem ZEISS 923 ausgebauten BPP. Abb. 4.19c) zeigt die aus dem PACEM ausgebaute BPP. Diese wurde vermutlich durch den Temperaturgradienten beim Aufheizen und Abkühlen zerstört. Die unteren Schichten im Bereich der Elektrodenzuleitung sind abgeplatzt.

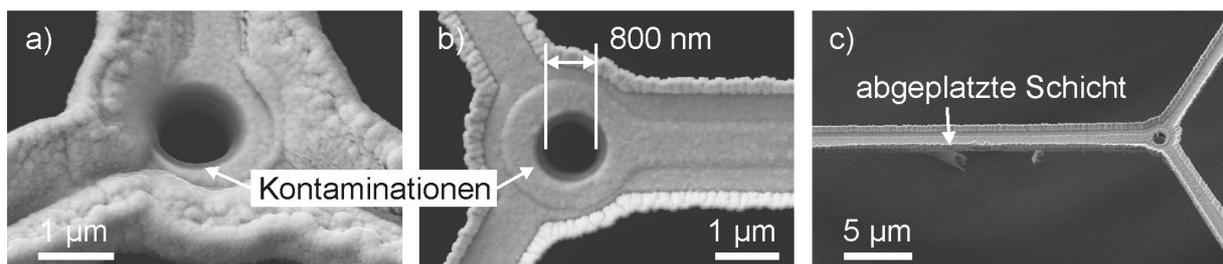


Abbildung 4.19: Ausgebaute BPPs. a) BPP aus dem ZEISS 912. Die fünf Schichten der Elektrode sind durch die Kontamination nur noch verschwommen sichtbar. b) Ausgebaute BPP aus dem ZEISS 923. Der Durchmesser der inneren Öffnung ist auf etwa 800 nm reduziert. c) BPP aus dem PACEM. Im Zuleitungsbereich sind die unteren Schichten abgeplatzt.

4.3.4 Zusammenfassung

Mit den kleineren PP Strukturen konnten erstmals BPP TEM Bilder mit sichtbaren Kontrastverbesserungen gezeigt werden. Mit angelegter positiver bzw. negativer Spannung konnten Pt Nanopartikel mit verstärktem Kontrast hell bzw. dunkel abgebildet werden.

Die Einschränkungen der BPP wurden untersucht und es kann zusammenfassend daraus geschlossen werden, dass für BPP Aufnahmen eine FEG sowie eine Heizung ratsam sind. Außerdem sollte die Justage sehr genau sein und die Struktur der BPP möglichst wenige Elektronen abschatten – wofür die Vergrößerungseinheit des PACEMs eine gute Möglichkeit bietet.

Eine noch bessere Lösung wäre allerdings ein PP Design, das ohne einen Ring um den NS und die damit verbundene Frequenzfilterung und Abschattung auskommt, wie die Zach PP und die anamorphotische PP.

5 Transmissionselektronenmikroskopie mit Zach Phasenplatten

Das folgende Kapitel beschreibt zunächst das Prinzip der neu vorgeschlagenen Zach Phasenplatte. Anschließend werden deren Eigenschaften im Transmissionselektronenmikroskop beschrieben, sowie die ersten vielversprechenden Phasenkontrastabbildungen mit einer Zach Phasenplatte präsentiert. Schließlich folgen eine Diskussion über die Unterschiede zur BPP, den Einfluss der Inhomogenität der Phasenschiebung sowie der Analogie zum anamorphotischen Potential im Zernike Modus.

5.1 Prinzip einer Zach Phasenplatte

Die Zach PP besteht aus einem Mikro-Koaxialkabel mit einem offenen Ende in der Nähe des NS. Abb. 3.4b) zeigt eine REM-Aufnahme einer fertigen Zach PP. Durch Anlegen einer Spannung an die zentrale Elektrode wird ein stark inhomogenes und schnell abfallendes Potential an der Spitze der PP erzeugt, das den NS phasenschiebt, während die gestreuten Elektronen kaum davon beeinflusst werden.

In Abb. 5.1a) ist der Querschnitt der ersten getesteten Zach PP schematisch dargestellt. Die Dicken der Schichten waren wie folgt: Obere Au Schicht 200 nm, Al_2O_3 Schicht 350 nm, zentrale Au Schicht 60 nm, $\text{Si}_{3+x}\text{N}_{4-x}$ Schicht 200 nm und untere Au Schicht 100 nm. Die PP war etwa 2,2 μm breit, die Dicke der abschirmenden seitlichen Au Schichten betrug etwa 100 nm und die zentrale Elektrode war etwa 600 nm breit. Die Position der zentralen Elektrode war leicht asymmetrisch nach links verschoben.

Abb. 5.1b) zeigt das berechnete elektrostatische Potential integriert entlang des Elektronenstrahls bei exakt den PP Abmessungen wie in Abb. 5.1a) zu sehen. Die Berechnung wurde mittels einer Boundary Element Methode [Sauter 2004] durchgeführt, was die Frage der Verteilung der Oberflächenladung auf Grenzflächen bei gegebenen Randbedingungen löst. Die verwendete Skalierung entspricht einer angelegten Spannung von 1 V. Die zusätzliche Phasenschiebung des NS hängt bei der Zach PP also nicht nur von der angelegten Spannung sondern auch vom Abstand des NS von der Spitze der PP ab.

Für eine feste Position des NS kann die Phasenschiebung mit der bekannten Formel 2.28 berechnet werden. Für einen ideal punktförmigen NS wirkt die Zach PP wie eine fast ideale

PP. Einschränkungen ergeben sich nur durch die Abschattung durch die PP selbst, sowie durch die Phasenschiebung der gestreuten Elektronen bei sehr kleinen Ortsfrequenzen, die ebenfalls vom elektrostatischen Feld beeinflusst werden.

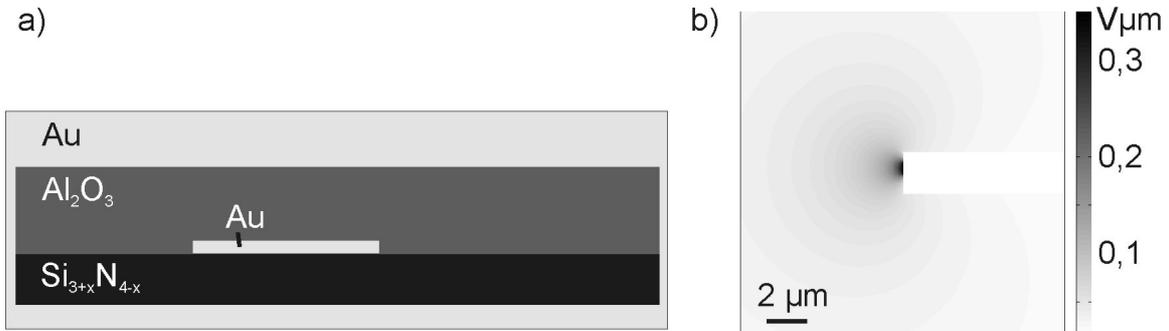


Abbildung 5.1: a) Schematischer Aufbau des ersten Zach PP Prototyps, Blick auf die Spitze. Die zentrale Elektrode ist leicht asymmetrisch links von der Mitte platziert. b) Berechnetes elektrostatisches Potential entlang der Strahlrichtung in der Umgebung der PP Spitze für eine angelegte Spannung von 1 V. Die Zach PP befindet sich auf der rechten Seite.

In Abb. 5.2 ist die Phasenschiebung des NS als Funktion des Abstandes von der PP Spitze bei einer angelegten Spannung von 1 V aufgetragen. Hieraus kann man ablesen, dass bei der gewählten Spannung im Abstand von etwa 600 nm eine Phasenschiebung von $0,5 \pi$ erzeugt wird.

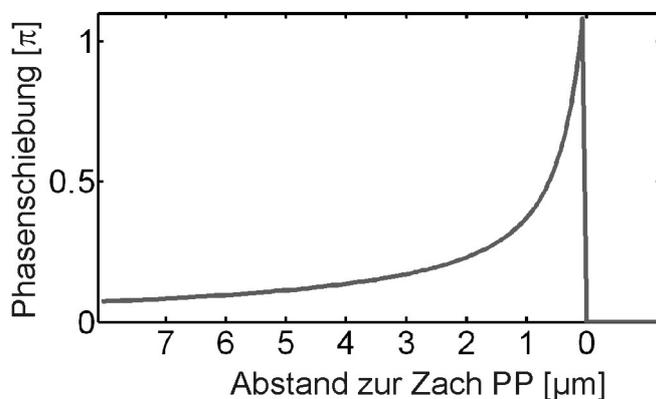


Abbildung 5.2: Phasenschiebung des NS als Funktion des Abstandes von der PP Spitze berechnet aus dem simulierten elektrostatischen Potential bei einer angelegten Spannung von 1 V.

5.2 Experimentelle Ergebnisse III: Eigenschaften der Zach Phasenplatte im Transmissionselektronenmikroskop

Um die Eigenschaften der Zach PP im Transmissionselektronenmikroskop zu bestimmen, wurde ein Prototyp in das ZEISS 912 Mikroskop eingebaut. Als Testobjekt wurde ein etwa 15 nm dicker aC Film mit einer dünnen Pt Beschichtung verwendet. Um den Einfluss der angelegten Spannung auf Phasenschiebung und Defokus zu untersuchen, wurden Spannungsserien bei konstant gehaltenem Defokus aufgenommen.

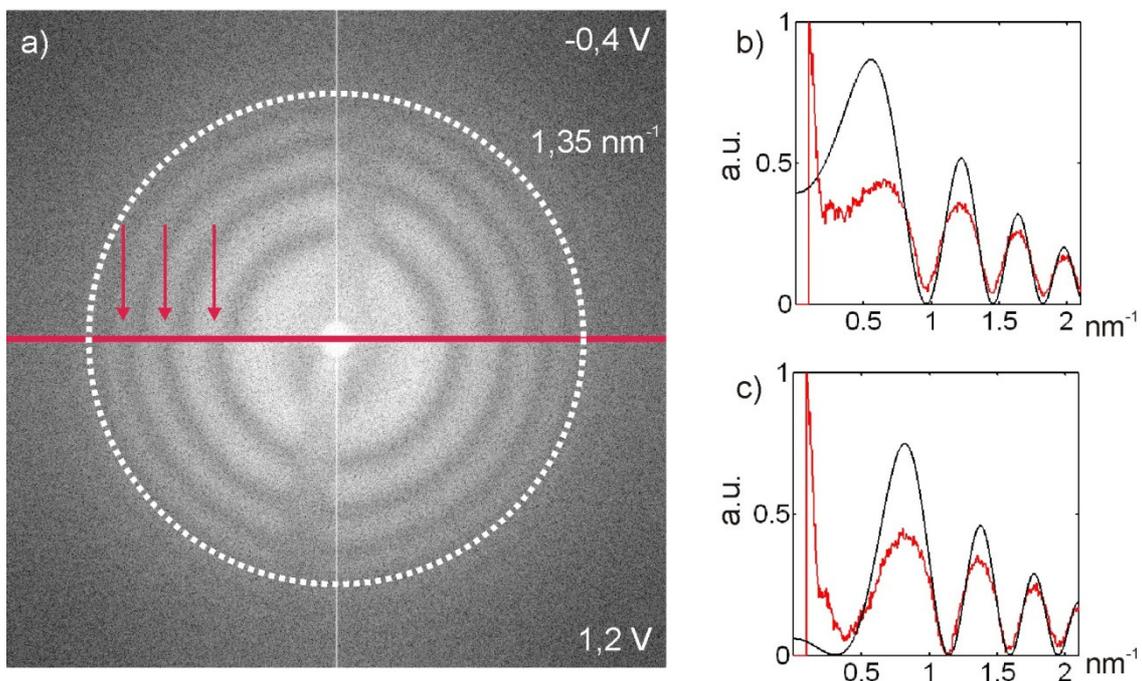


Abbildung 5.3: Phasenplattentest der Zach PP im ZEISS 912. a) Zwei Diffraktogramme bei -0,4 V und 1,2 V übereinander zusammengefügt. Die Zach PP erscheint durch das Betragsquadrat der Abbildung zentrosymmetrisch verdoppelt. Mit den roten Pfeilen sind die um etwa $\pi/4$ geschobenen Thonringe markiert. b) Linescan (rot) und CTF-Fit (schwarz) der oberen Hälfte bei -0,4 V. Es ergeben sich $Z = -740 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = -0,22 \pi$. c) Linescan (rot) und CTF-Fit (schwarz) der unteren Hälfte bei 1,2 V. Es ergeben sich $Z = -720 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,08 \pi$.

In Abb. 5.3a) sind zwei Diffraktogrammhälften aus der Spannungsserie übereinander abgebildet. Die obere Hälfte wurde bei -0,4 V aufgenommen, die untere Hälfte bei 1,2 V. Es ist deutlich zu erkennen, dass durch die Zach PP wesentlich weniger Elektronen abgeschattet werden als durch die BPP. Der Steg ist durch das Betragsquadrat der Abbildung

zentrosymmetrisch gespiegelt zu sehen. Die roten Pfeile markieren die gleichmäßig um etwa $\pi/4$ geschobenen Thonringe. Abb. 5.3b) zeigt in rot einen über 180° gemittelten radialen Linescan im oberen Diffraktogramm bei $-0,4$ V. In schwarz dargestellt ist eine gefittete CTF mit den ermittelten Parametern $Z = -740$ nm und $\varphi_{pp} = -0,22 \pi$. In Abb. 5.3c) ist der Linescan aus der unteren Diffraktogrammhälfte bei $1,2$ V in rot aufgetragen. Die ermittelte schwarze CTF ergibt die Parameter $Z = -720$ nm und $\varphi_{pp} = 0,08 \pi$.

In Abb. 5.4 ist die aus der Spannungsserie bestimmte Phasenschiebung über der angelegten Spannung aufgetragen. Es ist wie bei den BPP ein linearer Zusammenhang zu erkennen. Bei der Ausgleichsgerade wurde die Steigung zu $0,17 \pi/V$ ($\pm 0,01 \pi/V$) und der Offset zu $-0,16 \pi$ ($\pm 0,01 \pi$) bestimmt. Diese ermittelten Werte gelten natürlich nur für den verwendeten Abstand zwischen Zach PP und NS.

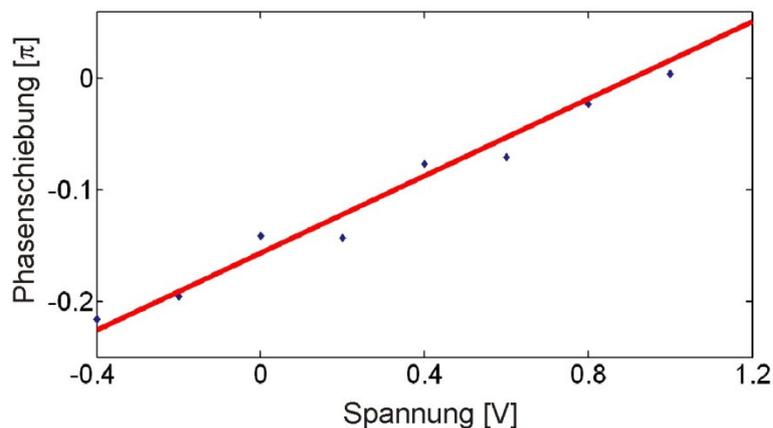


Abbildung 5.4: Aufgetragen ist φ_{pp} über der angelegten PP-Spannung. Es ergibt sich ein linearer Zusammenhang mit der Steigung $0,17 \pi/V$ und einem Offset von $-0,16 \pi$.

Um die ermittelten Eigenschaften der Zach PP mit dem simulierten Potential zu vergleichen, muss also zunächst der Abstand zwischen Zach PP und NS bestimmt werden. In Abb. 5.5a) ist hierfür der innere Ausschnitt aus dem unteren Diffraktogramm bei $1,2$ V vergrößert dargestellt. Mit bekannter Objektivbrennweite sowie der Wellenlänge kann mit Gl. 2.7 der ermittelte Abstand im reziproken Raum von $0,24 \text{ nm}^{-1}$ in einen realen Abstand von $2,9 \mu\text{m}$ umgerechnet werden. Abb. 5.5b) zeigt noch einmal die Phasenschiebung in Abhängigkeit des Abstands zwischen NS und Zach PP bei einer angelegten Spannung von 1 V mit dem ermittelten Abstand von $2,9 \mu\text{m}$ markiert. Die Phasenschiebung von etwa $0,2 \pi$, die sich für den gemessenen Abstand aus dem simulierten Potential ergibt, stimmt sehr gut mit dem aus den Experimenten bestimmten Wert von $0,17 \pi/V$ überein, wenn man den Offset der Phasenschiebung bei 0 V berücksichtigt. Ein spannungsabhängiger Defokus konnte bei den Spannungsserien nicht festgestellt werden.

Da der ermittelte Spannungs-Phasenschiebungs-Zusammenhang sehr stark von der Position der Zach PP abhängt, ist bei weiteren Experimenten mit Hilfe von Live-FFT während der

Arbeit am Mikroskop der jeweilige Einfluss der PP zu beobachten, um die gewünschte Phasenschiebungen zu erreichen.

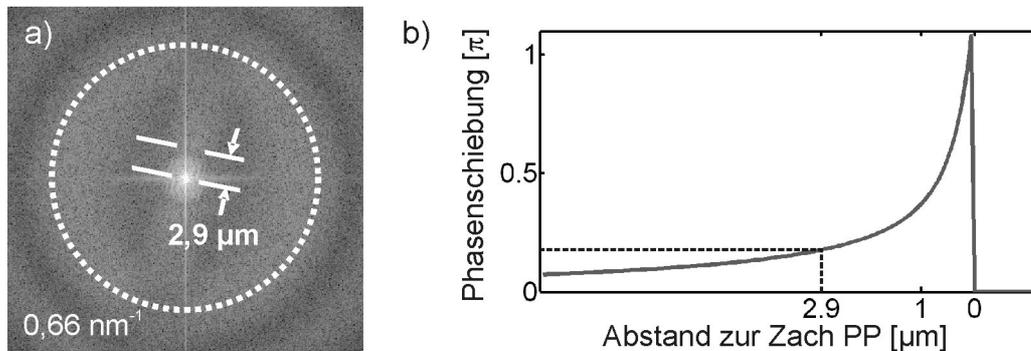


Abbildung 5.5: a) Vergrößerter Ausschnitt des unteren Diffraktogramms in Abb. 5.3a) zur Bestimmung des Abstandes zwischen Zach PP und NS. b) Phasenschiebung in Abhängigkeit des Abstandes des NS von der Zach PP bei 1 V. Der bestimmte Abstand von 2,9 μm ergibt eine Phasenschiebung von etwa 0,2 π .

5.3 Experimentelle Ergebnisse IV: Phasenkontrastabbildungen mit Zach Phasenplatten

a) Keilprobe mit Schichten

Als erstes Beispiel wird noch einmal die in Kap. 4.2.2a mit der BPP untersuchte Keilprobe mit der Zach PP untersucht. Die TEM Aufnahmen wurden am ZEISS 923 durchgeführt. In Abb. 5.6a) ist die keilförmige Schichtprobe zu sehen, der gewählte Ausschnitt zeigt den unteren Teil der 67 nm dicken C-Schicht und die etwa 20 nm dicke Mo-Schicht. Im Bereich des Kohlenstoffs sind etwa 4-5 nm große Inhomogenitäten zu sehen, in der Nähe des Probenrandes auch etwas kleinere. Das Bild ist etwa im Gauss-Fokus aufgenommen.

Abb. 5.6b) zeigt eine weitere konventionelle TEM Aufnahme, die bei einem Überfokus von etwa $Z = 350$ nm aufgenommen wurde. Abb. 5.6c) bis e) zeigen Zach PP Aufnahmen c) ohne angelegte Spannung, d) bei 0,4 V und e) -0,4 V angelegter Spannung. Bei allen Abbildungen mit positionierter Zach PP ist ein zusätzliches Kontrastmerkmal zu sehen von links unten nach rechts oben, also senkrecht zur PP. Außerdem wirken die Probedetails sowie die Oberfläche zum Teil leicht plastisch, was durch eine asymmetrische Phasenschiebung von Elektronen kleinster Ortsfrequenzen resultieren kann. Dies wäre vergleichbar mit dem plastisch wirkenden Hilbertkontrast, bei dem die zentrosymmetrischen Ortsfrequenzen

ebenfalls mit unterschiedlichem Vorzeichen phasengeschoben werden. Eine genauere Betrachtung hierzu erfolgt im Diskussionsteil. Zu beachten ist, dass im Gegensatz zu Beispiel 4.2.2a mit BPP die Körnigkeit in der C-Schicht durch das Positionieren der PP nicht verschwindet.

Abb. 5.6f) bis j) zeigen den in b) markierten Ausschnitt aus allen fünf Bildern vergrößert dargestellt, um die Kontraständerung der Granularitäten besser vergleichen zu können. In der fokussierten konventionellen Aufnahme in f) sind die Granularitäten leicht dunkler als der Hintergrund zu sehen. Die Umrisse sind sehr deutlich zu erkennen. Dazu im Gegensatz ist die Körnigkeit im überfokussierten Bild in g) kaum sichtbar, nur in einigen leicht dunkleren Flecken ohne scharfe Umrandung. In Abb. 5.6h) mit positionierter Zach PP ohne angelegte Spannung sind die Körner leicht heller als der Hintergrund zu sehen und weisen jeweils links über sich eine zusätzliche asymmetrische helle Umrandung auf, die jedoch nicht scharf erscheint. Abb. 5.6i) mit einer Spannung von 0,4 V zeigt eine deutliche Kontrastumkehr zu Abb. 5.6f). Die Körner sind hier hell mit starkem Kontrast und deutlichen Umrandungen auf dunklem Untergrund zu sehen. Der Kontrast der Abb. 5.6j) bei -0,4 V angelegter Spannung ähnelt dem Kontrast in f). Die Körner sind etwas dunkler als der Hintergrund und sehr scharf umrandet. Hier sind jedoch vor allem kleinere Strukturen noch deutlicher zu erkennen als in f).

In Abb. 5.6k) bis o) sind Ausschnitte der Diffraktogramme zu a) bis e) zu sehen. In m) bis o) waren die Aufnahmeparameter nur grob zu bestimmen, da maximal ein Thonring zu sehen ist und außerdem eine leichte Asymmetrie vermutlich durch Aufladung am Steg die Bestimmung erschwert.

Die Parameter sind in etwa $Z = 350 \text{ nm}$ ($\pm 50 \text{ nm}$), m) $\varphi_{PP} = 0 \pi$, n) $\varphi_{PP} = 0,2 \pi$ und m) $\varphi_{PP} = -0,2 \pi$, ($\pm 0,05 \pi$).

Dieses erste Beispiel für die PP TEM mit Zach PP verdeutlicht eindrucksvoll den Vorteil der neuen PP gegenüber der Boersch PP, die für die Abbildung dieser Probendetails nicht verwendbar war, da sie die für die Körnigkeit wichtigen Raumfrequenzen aus dem Bild gefiltert hat.

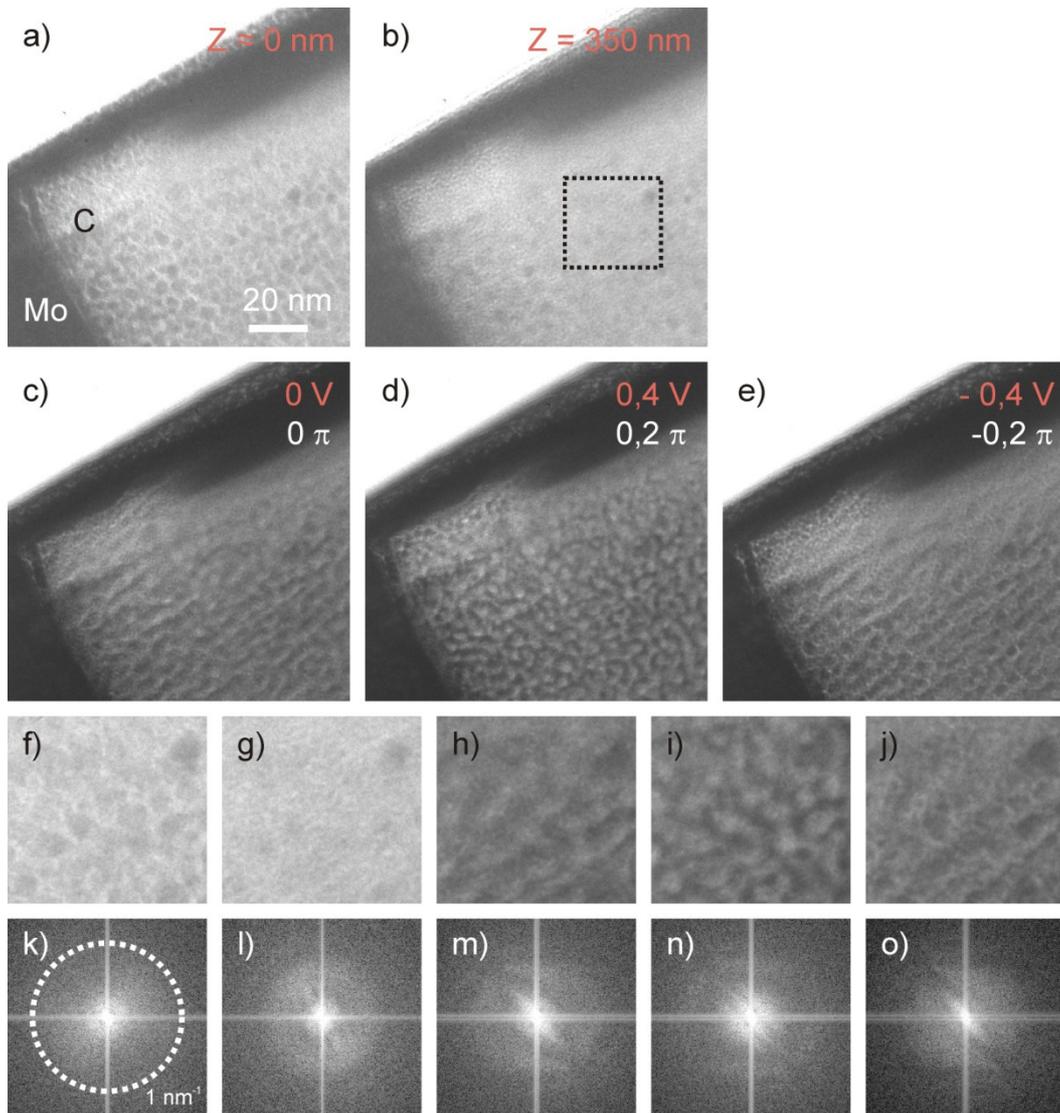


Abbildung 5.6: Keilprobe aus dünnen Schichten (vgl. Kap. 3.2.2a). Zu sehen sind die 67 nm dicke C-Schicht und die 20 nm dicke Mo Schicht. a) Konventionelle TEM Aufnahme nahe des Gauss Fokus b) Konventionelle TEM Aufnahme leicht überfokussiert, $Z = 350 \text{ nm}$. c) bis e) Zach PP Abbildungen bei c) 0 V , d) $0,4 \text{ V}$ und e) $-0,4 \text{ V}$. f) bis j) Vergrößerter Ausschnitt von dem in b) markierten Bereich aus allen Abbildungen zum Vergleich der Körnigkeiten. k) bis o) Ausschnitt der Diffraktogramme von a) bis e).

b) Dünnschnitte von Darmkrebszellen

Im Folgenden wird die Untersuchung von etwa 50 nm dicken Ultramikrotom Dünnschnitten von menschlichen Darmkrebszellen (HT29) gezeigt. Die etwa $10 \mu\text{m}$ großen Zellen wurden auf Transwell-Membranen gewachsen und in Epon eingebettet. In konventionellen TEM Abbildungen zeigen die Proben ungefärbt kaum Kontrast, weshalb Experimente mit Hilfe der

Zach PP versucht wurden. Die Abbildungen wurden mit dem ZEISS 912 bei 40.000-facher Vergrößerung aufgenommen.

Abb. 5.7a) zeigt eine konventionelle TEM Aufnahme mit $Z = 1180 \text{ nm}$, e) ist das zugehörige Diffraktogramm. In Abb. 5.7b) ist eine konventionelle Infokus Abbildung zu sehen mit Diffraktogramm in f). Wie an dem Maßstab erkennbar, ist in den Abbildungen nur ein sehr kleiner Ausschnitt der Zelle sichtbar und es ist schwierig, die Details genau zu bestimmen. Bei den helleren Bereichen handelt es sich wahrscheinlich um Membran umhüllte Strukturen, evtl. um Vesikel, außerdem könnte das im linken unteren Teil zu sehende längliche Detail eine Doppelmembranstruktur zeigen.

Abb. 5.7c) und d) zeigen Zach PP TEM Aufnahmen, in c) ohne angelegte Spannung, in d) bei einer angelegten Spannung von 1 V. Wie in den zugehörigen Diffraktogrammen g) und h) zu sehen, sind die Bilder sehr nahe am Fokus aufgenommen, da keine Thonringe erkennbar sind. Die Phase ist deutlich geschoben, da im Diffraktogramm g) die PP einen dunklen Kontrast und in h) kaum Kontrast aufweist bzw. teilweise heller als die Umgebung erscheint. Hieraus kann die relative Phasenschiebung auf $\pi/4$ bis $\pi/2$ abgeschätzt werden. Da sich bei den bisherigen Experimenten herausgestellt hat, dass durchaus ein Phasenoffset ohne angelegte Spannung auftreten kann, lässt sich der Absolutwert von φ_{PP} weder für c) noch für d) bestimmen und es ist davon auszugehen, dass in keinem der beiden $\varphi_{PP} = 0$ ist.

In den Zach PP Aufnahmen ist der Kontrast deutlich erhöht im Vergleich zu den konventionellen TEM Aufnahmen. Es sind scharfe Umrandungen an den beiden großen Membran umhüllten Strukturen sowie um viele kleinere Probedetails zu erkennen, die vorher nicht zu sehen waren. Lediglich die Doppelmembranstruktur ist durch die PP schwächer zu erkennen. Der Kontrast ist in den PP TEM Aufnahmen umgekehrt; die in den konventionellen Aufnahmen hell zu sehenden Probedetails sind in den Zach PP Aufnahmen dunkel. Da sich der Kontrast trotz veränderter Phasenschiebung zwischen den Abb. c) und d) nur wenig ändert, ist davon auszugehen, dass die enorme Kontrastverbesserung im Vergleich zu den konventionellen Bildern durch eine teilweise Abschattung des NS entsteht, was eine Überlagerung von Dunkelfeld und Hellfeld Aufnahme zur Folge hat. Bei sehr geringem Abstand zwischen NS und Zach PP kann auch SSB Kontrast einen wichtigen Beitrag zur Kontrastverbesserung bei niedrigen Ortsfrequenzen darstellen.

Ohne genaue Vorkenntnisse über die Probe erwies sich die Untersuchung mit PP TEM als schwierig, da ohne positionierte Phasenplatte bei niedrigen Vergrößerungen praktisch kein Kontrast zu sehen ist und damit keine Übersicht über Positionen der einzelnen Zellen und die Epon Zwischenschichten erlangt werden kann. Das Arbeiten mit PP ist aus Kohärenzgründen nur mit der kleinsten Kondensorblende möglich, weshalb das Sichtfeld auf der Probe sehr eingeschränkt und die minimale Vergrößerung auf 25.000 beschränkt ist.

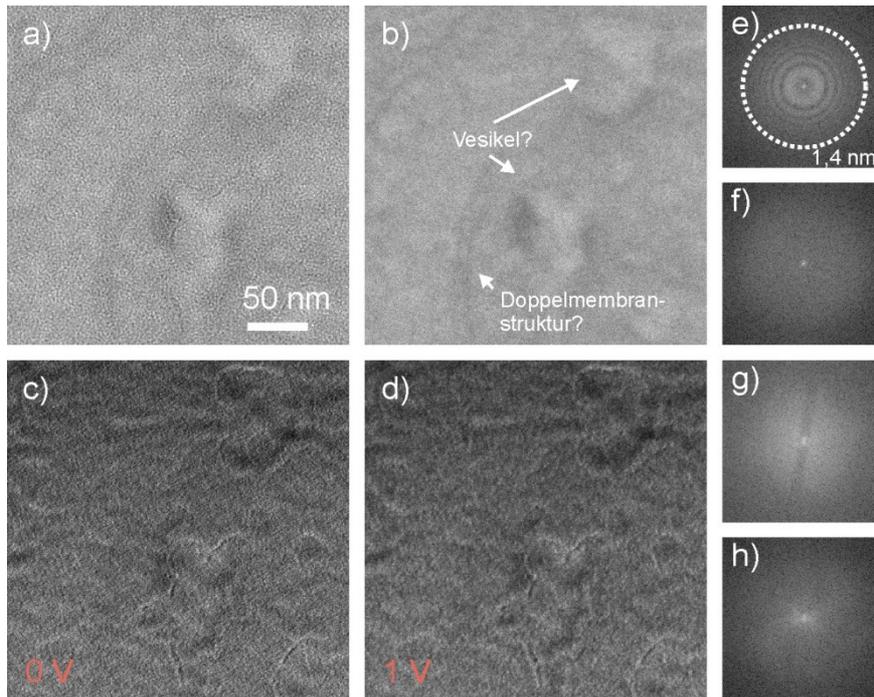


Abbildung 5.7: Ultramikrotom Dünnschnitte von menschlichen Darmkrebszellen (HT29). a) konventionelle TEM Aufnahme mit $Z = 1180 \text{ nm}$. b) Konventionelle Infokus TEM Aufnahme. Zu sehen sind größere helle Bereiche, die Vesikel sein könnten. Auf der linken unteren Seite könnte eine Doppelmembranstruktur zu sehen sein. c) Zach PP TEM Aufnahme nahe des Gauss Fokus, ohne angelegte Spannung. d) Zach PP TEM Aufnahme nahe des Gauss Fokus mit angelegter Spannung 1 V. e) bis h) Diffraktogramme zu den Aufnahmen a) bis d).

Ist jedoch die genaue Lage der Zellen in den Schnitten auf dem Grid durch Voruntersuchungen mit anderen Methoden bekannt, können diese durch die Orientierung entlang des sichtbaren Grids angefahren und Strukturdetails in den Zellen mittels Zach PP TEM genauer untersucht werden.

c) Cadmiumselenid Nanopartikel

Im nächsten Beispiel wurden CdSe Nanopartikel in unterschiedlichen Größen von 2-6 nm auf einem dünnen aC Film im ZEISS 923 untersucht und der Kontrast der Partikel zum Film bei einem festen Defokuswert und verschiedenen Phasenplattenspannungen verglichen. In Abb. 5.8a) bis d) sind Zach PP Aufnahmen mit verschiedenen angelegten Spannungen bei $Z = -720 \text{ nm}$ zu sehen. Abb. 5.8a) wurde ohne angelegte Spannung aufgenommen. Aus dem zugehörigen Diffraktogramm in e) wurde eine Phasenschiebung von $\varphi_{pp} = -0,4 \pi$ ermittelt. Die Partikel sind ohne klare Umrisse mit hell-dunkel Verlauf von links oben nach rechts unten zu sehen. Abb. 5.8b) zeigt die Probe bei 0,4 V angelegter Spannung. Aus dem Diffraktogramm 5.8f) wurde $\varphi_{pp} = -0,25 \pi$ bestimmt. Der Bildeindruck ist ähnlich wie in a), da die einzelnen Partikel wieder einen hell-dunkel Kontrastverlauf von links oben nach rechts unten aufweisen, diesmal jedoch noch stärker ausgeprägt als in a).

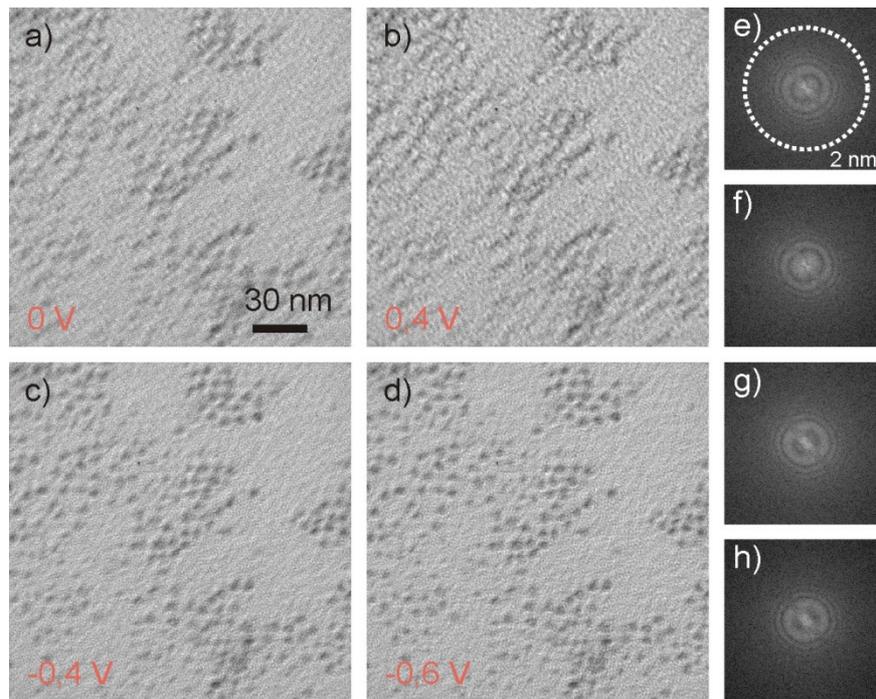


Abbildung 5.8: CdSe Nanopartikel auf aC Film. a) bis d) Zach PP TEM Aufnahmen bei $Z = -720$ nm. a) ohne angelegte Spannung mit $\varphi_{PP} = -0,4 \pi$, b) mit 0,4 V angelegter Spannung mit $\varphi_{PP} = -0,25 \pi$, c) mit -0,4 V angelegter Spannung und $\varphi_{PP} = -0,5 \pi$, d) mit -0,6 V angelegter Spannung und $\varphi_{PP} = -0,6 \pi$. e) bis h) Diffraktogramme zu den Aufnahmen a) bis d).

Abb. 5.8c) wurde bei -0,4 V aufgenommen. Aus dem zugehörigen Diffraktogramm in g) wurde die Phasenschiebung zu $\varphi_{PP} = -0,5 \pi$ bestimmt. Die Partikel wirken hier klarer begrenzt und dunkler im Vergleich zum umgebenden aC Film. In Abb. 5.8d) war schließlich eine Spannung von -0,6 V angelegt. Die Phasenschiebung wurde aus h) zu $\varphi_{PP} = -0,6 \pi$ ermittelt. Die Partikel weisen einen starken dunklen Kontrast sowie klare Umrandungen auf.

Für diese Probe und den Defokuswert von $Z = -720$ nm ist damit eine optimale Abbildungsbedingung bei $\varphi_{PP} = -0,6 \pi$ gegeben. Auffällig ist die starke Vorzugsrichtung in 5.8b) trotz des symmetrischen Diffraktogramms. Eine genaue Betrachtung der Asymmetrie erfolgt im Diskussionsteil.

d) Gold Nanopartikel

Bei dieser Probe, die aus Au Nanopartikeln von 1-3 nm auf dünnem aC Film besteht, werden systematisch eine Reihe von Abbildungsbedingungen miteinander verglichen und anschließend quantitativ der Kontrast der Partikel zum aC Film untersucht. Die Aufnahmen wurden im ZEISS 923 bei identischen Mikroskopbedingungen (Beleuchtungswinkel, Belichtungszeit) durchgeführt.

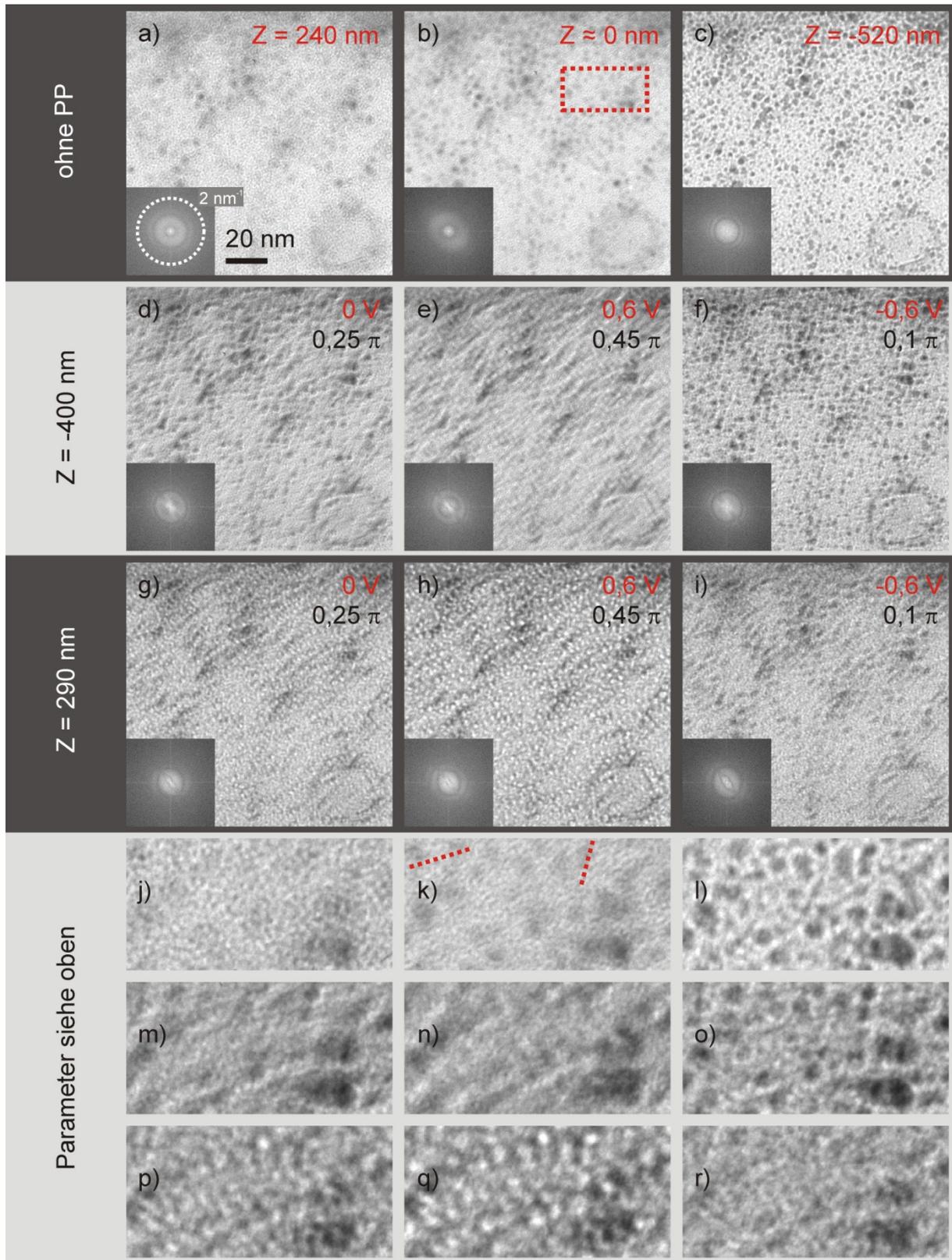


Abbildung 5.9: Au Nanopartikel auf aC Film. a) bis c) konventionelle TEM Aufnahmen, a) Überfokus, b) nahe Gauss Fokus, c) Unterfokus. d) bis i) Zach PP TEM Aufnahmen bei verschiedenen Spannungen (siehe Grafik, rot) und Defokuswerten. d) bis f) $Z = -400$ nm, g) bis i) $Z = 290$ nm. j) bis r) Vergrößerter Ausschnitt aus den Abb. a) bis i), markierter Bereich in b). Die roten Linien in k) zeigen die Bereiche der Linescans, die in Abb. 5.10 gezeigt sind.

Abb. 5.9 zeigt die Probenstelle für verschiedene Abbildungsbedingungen. In der ersten Zeile sind zunächst konventionelle TEM Aufnahmen mit unterschiedlichen Defokuswerten abgebildet. Abb. 5.9a) mit vergrößerter Detailansicht 5.9j) ist im Überfokus bei $Z = 240$ nm aufgenommen. Die Au Partikel zeigen sehr schwachen Kontrast und der aC Film ist sehr granular. Abb. 5.9b) mit Detailansicht 5.9k) ist bei einem Defokus nahe des Gauss Fokus aufgenommen. Der aC Film ist sehr homogen und die Partikel darauf erscheinen leicht dunkler. Hier ist der für die Detailansichten verwendete Probenbereich markiert. In Abb. 5.9c) ist der Defokus $Z = -520$ nm. Der Kontrast der Partikel, die ebenfalls dunkel erschienen, ist deutlich erhöht.

Die Abbildungen der zweiten Zeile wurden im Unterfokus bei $Z = -400$ nm und positionierter Zach PP bei verschiedenen Spannungen aufgenommen. In Abb. 5.9d) mit Detailansicht 5.9m) ist die angelegte Phasenplattenspannung 0 V. Aus dem zugehörigen Diffraktogramm wurde eine Phasenschiebung von $\varphi_{pp} = 0.25 \pi$ ermittelt. Die Partikel erscheinen sehr deutlich sichtbar mit dunklem Kontrast und einem leichten 3D-Effekt, der sie z.T. wie Vertiefungen im aC Film erscheinen lässt. Abb. 5.9e) mit Detailansicht 5.9n) zeigt eine Aufnahme bei 0,6 V angelegter Spannung. Die Aufnahme wird dominiert von einem starken zusätzlichen Muster mit Vorzugsrichtung von links unten nach rechts oben, welches ähnlich wirkt wie ein Astigmatismus. Die Partikel sind dadurch kaum zu erkennen. Im Diffraktogramm, welches als Inlay zu sehen ist, erkennt man jedoch, dass kein Astigmatismus vorhanden ist, da die Thonringe rund zu sehen sind. Aus dem Diffraktogramm wurde die Phasenschiebung bestimmt zu $\varphi_{pp} = 0.45 \pi$. Eine genaue Betrachtung des Effekts der starken Vorzugsrichtung erfolgt im Diskussionsteil. Abb. 5.9f) zeigt schließlich eine Aufnahme bei einer negativen Spannung von -0,6 V. Die resultierende Phasenschiebung wurde bestimmt zu $\varphi_{pp} = 0.1 \pi$. Die dunklen Partikel zeigen sehr starken Kontrast und durch einen leichten 3D Effekt eine sehr gute Sichtbarkeit.

In der dritten Zeile sind Aufnahmen im Überfokus bei $Z = 290$ nm abgebildet. Abb. 5.9g) mit Detailansicht 5.9p) wurde wieder ohne angelegte Spannung aufgenommen, was eine Phasenschiebung von $\varphi_{pp} = 0.25 \pi$ ergab. Die Au Partikel erscheinen hier heller als der Untergrund, jedoch nur mit schwachem Kontrast. Die Aufnahme zeigt wieder einen zusätzlichen Kontrast mit Vorzugsrichtung senkrecht zur Zach PP. In Abb. 5.9h) mit Detailansicht 5.9q) ist eine Aufnahme bei angelegter Spannung von 0,6 V zu sehen. Die Phasenschiebung ergab sich damit zu $\varphi_{pp} = 0.45 \pi$. Die Partikel sind mit starkem Kontrast heller als der Hintergrund zu sehen. Abb. 5.9i) mit Detailansicht 5.9r) zeigt schließlich wieder eine Aufnahme bei negativer angelegter Spannung von -0,6 V. Die ermittelte Phasenschiebung ergibt sich zu $\varphi_{pp} = 0.1 \pi$. Der Bildeindruck erscheint ähnlich wie in Bild 5.9d) mit dunklen Partikeln jedoch ohne den 3D-Effekt, der die Teilchen wie Vertiefungen im Film erscheinen lässt. Es ist auch wieder ein zusätzlicher Kontrast streifenförmig von links unten nach rechts oben zu erkennen.

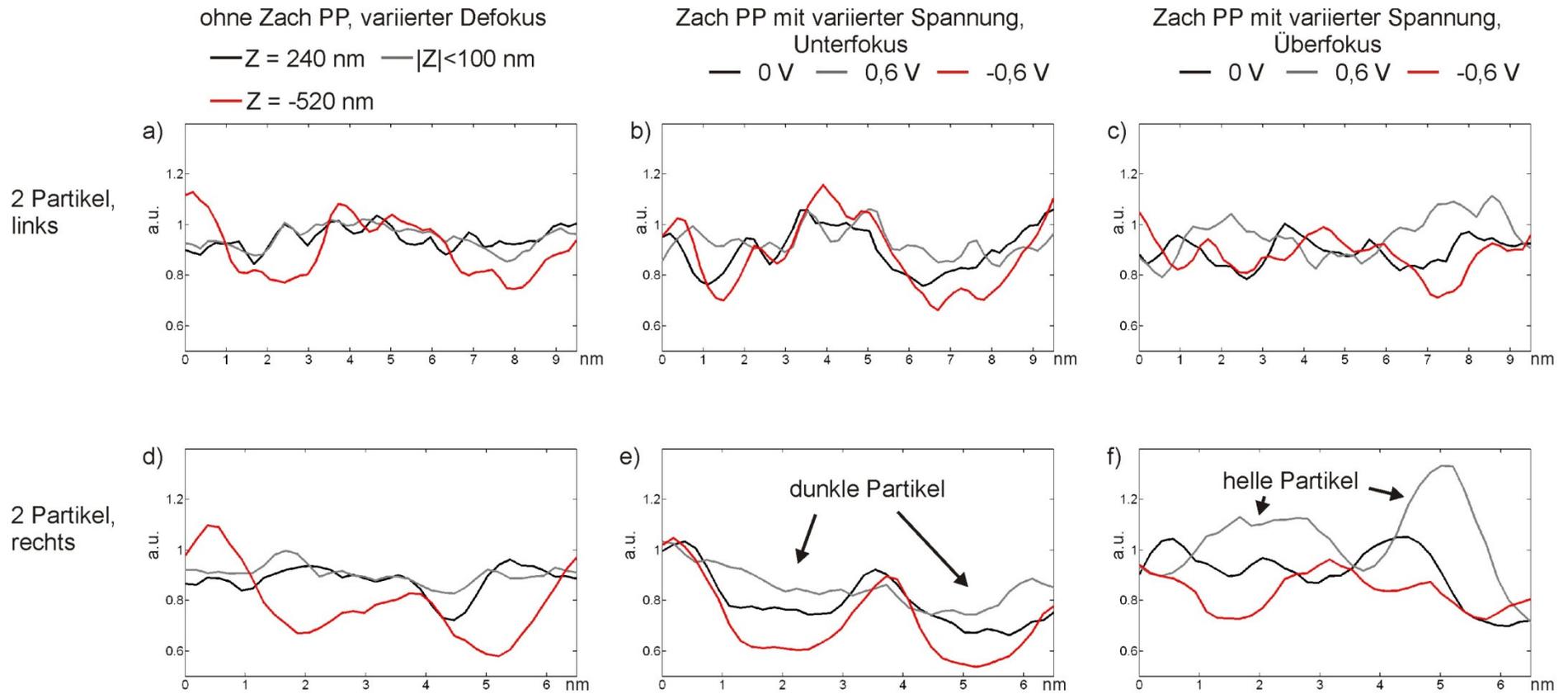


Abbildung 5.10: Linescans entlang je zwei Partikeln an zwei verschiedenen Probenstellen in 5.9j) bis r). Die Intensitäten wurden auf die mittlere Intensität eines Probenbereichs ohne Partikel normiert. Die obere Zeile zeigt den linken rot gestrichelten Bereich in 5.9k), die untere Zeile die rechte gestrichelte Linie in 5.9k). a) & d) Vergleich konventioneller TEM Aufnahmen bei unterschiedlichen Defokuswerten. Schwarz: $Z = 240 \text{ nm}$, grau: $|Z| < 100 \text{ nm}$, rot: $Z = -520 \text{ nm}$. b) & e) Vergleich von Zach PP Aufnahmen im Unterfokus ($Z = -400 \text{ nm}$) bei verschiedenen PP-Spannungen. Schwarz: 0 V , grau: $0,6 \text{ V}$, rot: $-0,6 \text{ V}$. c) & f) Vergleich von Zach PP Aufnahmen im Überfokus ($Z = 290 \text{ nm}$) bei verschiedenen PP-Spannungen. Schwarz: 0 V , grau: $0,6 \text{ V}$, rot: $-0,6 \text{ V}$.

In Abb. 5.10 sind Intensitätsprofile von Linescans über jeweils zwei Partikel in allen Detailansichten 5.9j) bis r) verglichen. Die Linescans wurden über 5 Pixel gemittelt und in verschiedene Richtungen durchgeführt. Zur Normierung der Profile wurde die mittlere Intensität eines Probenbereichs ohne Partikel rechts über dem großen Partikel in der rechten unteren Ecke verwendet.

Um die Profile gut vergleichen zu können, wurden jeweils die Linescans derselben Probenstelle in einer Zeile dargestellt. In der oberen Zeile sind die Linescan entlang der linken roten gestrichelten Linie in Abb. 5.9k) zu sehen. Abb. 5.10a) zeigt die Linescans aus j) in schwarz, k) in grau und l) in rot. Hierbei ist deutlich zu erkennen, dass nur im Unterfokusbild die beiden Partikel deutlich dunkel vor dem Hintergrund zu sehen sind. In Abb. 5.10b) sind die Linescans aus 5.9 m) in schwarz, n) in grau und o) in rot abgebildet. In allen drei Profilen sind die Partikel als Minima zu erkennen. Der schwächste Kontrast ist für $\varphi_{pp} = 0.45 \pi$ zu sehen, stärker bei $\varphi_{pp} = 0.25 \pi$ und der stärkste bei $\varphi_{pp} = 0.1 \pi$. Abb. 5.10c) zeigt Linescans aus den Abb. 5.9 p) in schwarz, q) in grau und r) in rot. Während die Partikel ohne angelegte Spannung kaum zu erkennen sind, zeigen sie bei positiver Spannung hellen und bei negativer Spannung dunklen Kontrast. Im Vergleich aller drei Abbildungen a) bis c) ist zu erkennen, dass die Kombination von Unterfokus und kleiner Phasenschiebung (rote Linie in b) den größten Kontrast liefert.

In der zweiten Zeile werden die Profile aus den Abb. 5.9j) bis r) entlang des rechten rot gestrichelten Linescans in 5.9k) gezeigt. Abb. 5.10d) zeigt die Profile aus j) in schwarz, k) in grau und l) in rot. Es ist wieder nur im Unterfokusbild deutlicher dunkler Partikelkontrast zu erkennen. In Abb. 5.10e) sind die Profile aus m) in schwarz, n) in grau und o) in rot zu sehen. Hierbei zeigen wieder alle drei Profile Minima an den Partikelstellen. Für $\varphi_{pp} = 0.1 \pi$ ist der Kontrast am stärksten, mit ansteigender Phasenschiebung $\varphi_{pp} = 0.25 \pi$ und $\varphi_{pp} = 0.45 \pi$ nimmt der Kontrast ab. Abb. 5.10f) zeigt die Profile aus p) in schwarz, q) in grau und r) in rot. Im Profil aus der Aufnahme ohne angelegte Spannung ist wieder kaum Partikelkontrast zu erkennen. Bei der negativen Spannung sind die Partikel dunkel zu sehen, bei der positiven Spannung zeigt sich sehr starker heller Kontrast. Im Vergleich aller 9 Abbildungsbedingungen zeigt sich an dieser Probenstelle vor allem an dem zweiten kleineren Partikel bei Überfokus kombiniert mit einer Phasenschiebung von $\varphi_{pp} = 0.45 \pi$ der größte Partikelkontrast. Im Vergleich der beiden Partikelstellen (obere und untere Zeile) ist zu erkennen, dass an der linken Stelle (obere Zeile) deutlich mehr Rauschen in den Intensitätsprofilen zu sehen ist, was auf eine Richtungsabhängigkeit der Bildqualität deutet.

Die Sichtbarkeit des Phasenkontrastes setzt sich hier zusammen aus der Phasenschiebung durch die Probe selbst, der Phasenschiebung durch den Defokuswert und der PP-Phasenschiebung. Hierbei ist natürlich zu beachten, dass diese Kombination stark abhängig ist von der Größe der betrachteten Goldpartikel, da sich mit ihr zum einen die Phasenschiebung durch die Probe, aber auch der zugehörige Frequenzbereich im Spektrum und somit der Kontrastübertrag durch die PCTF ändert.

Die Phasenschiebung durch die Nanopartikel kann unter Vernachlässigung von Phasenschiebungen auf Grund von dynamischer Elektronenbeugung mit Gl. 2.26 berechnet werden. Hierfür wird das MIP von Au bzw. von Au Nanopartikeln und deren Schichtdicken benötigt. Popescu et al. (2007) haben V_i für Au Nanopartikel in Abhängigkeit der Partikelgröße bestimmt. Hieraus ergibt sich für 2-3 nm große Partikel das MIP zu $V_i = 30,2 \text{ V}$. Die Au Nanopartikel bewirken also bei Annahme einer Kugelform bei einer Größe von 3 nm eine Phasenschiebung von etwa $0,25 \pi$ und bei 2 nm eine Phasenschiebung von $0,17 \pi$. Damit stellen die Partikel starke Phasenobjekte dar, wenn Objekte bis zu einer Phasenschiebung von maximal etwa $\pi/10$ als WPOs bezeichnet werden. Wenn man trotzdem die WPO Näherung als erste Näherung heranzieht, da die Phasenschiebung der Partikel nicht viel größer ist, kann man die Kontrastumkehr im Verlauf der PCTF im entsprechenden Frequenzbereich betrachten.

Abb. 5.11 zeigt die PCTFs für die beiden Zach PP Aufnahmen mit maximal dunklem und hellem Kontrast. Abb. 5.11a) zeigt die PCTF entsprechend der Abb. 5.9f) und o), die bei $Z = -400 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = 0,1 \pi$ aufgenommen wurde. Der rote Pfeil markiert die Frequenz $0,33 \text{ nm}^{-1}$, die der in den Linescans betrachteten Partikelgröße von etwa 3 nm entspricht. Das Spektrum eines Partikels setzt sich aus dieser sowie mehreren kleineren Frequenzen zusammen, weshalb die Frequenzen rechts von dem Pfeil in hellrot markiert sind. Dieser komplette Bereich wird kontrastübertragen mit negativem Vorzeichen.

In Abb. 5.11b) ist die PCTF zu Abb. 5.9h) und q) dargestellt. Die Parameter waren hier $Z = 290 \text{ nm}$ und $\varphi_{pp} = 0,45 \pi$. Mit dem roten Pfeil und dem hellroten Frequenzbereich ist wieder das Spektrum der Au Partikel markiert. Hier ist der Kontrastübertrag positiv, also umgekehrten Vorzeichens.

Im Vergleich mit den experimentellen Daten ist eine Übereinstimmung in der Kontrastumkehr festzustellen. In der Kontraststärke zeigen beide experimentellen Bilder mit 20-30 % maximalen Partikelkontrast in der aufgenommenen Bilder Serie mit variierenden Parametern. In der stark vereinfachten Betrachtung als WPOs zeigen die dunklen Partikel geringeren Kontrast als die hellen. Um eine genaue Beschreibung der Kontrastentstehung und auch Kontraststärke zu erhalten, müsste eine Simulation der Bildentstehung durchgeführt werden, bei der auch der Amplitudenkontrast berücksichtigt wird.

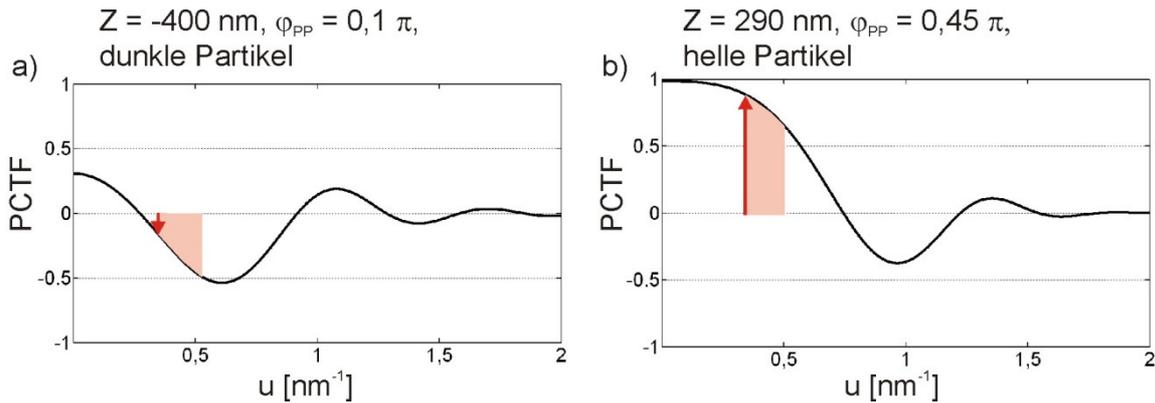


Abbildung 5.11: a) PCTF für $Z = -400 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,1 \pi$. Mit dem roten Pfeil ist $u = 0,33 \text{ nm}^{-1}$ entsprechend einer Partikelgröße von 3 nm , in hellrot die kleinsten Frequenzen des Spektrums der Partikel markiert. Der Kontrastübertrag ist negativ im markierten Bereich. b) PCTF für $Z = 290 \text{ nm}$ und $\varphi_{PP} = 0,45 \pi$. Der Kontrastbereich ist positiv im markierten Bereich.

e) Bleiselenid Nanopartikel

Als letztes Beispiel in diesem Kapitel sind PbSe Nanopartikel von 6 nm Größe auf einem dünnen aC Film gezeigt. Die Experimente wurden wieder am ZEISS 923 durchgeführt. Zunächst wurden konventionelle TEM Aufnahmen bei verschiedenen Defokuswerten erstellt, um die Kontrastverbesserung durch Defokussieren mit der Kontrastverbesserung durch die Zach PP vergleichen zu können. Abb. 5.12a) bis c) zeigen konventionelle Abbildungen der PbSe Nanopartikel bei verschiedenen Defokuswerten. Abb. 5.12a) wurde bei einem kleinen Defokuswert nahe des Gauss Fokus aufgenommen. In der rechten unteren Ecke ist ein großer Partikel zu erkennen, an dem keine Fresnelsäume zu sehen sind. Abb. 5.12b) wurde bei $Z = -940 \text{ nm}$ aufgenommen, was zu einer Kontrastverstärkung der Partikel im Vergleich zu 5.12a) führt. Der Kontrast ist jedoch verschmiert durch Delokalisierung aufgrund des hohen Defokuswertes. Die in Abb. 5.12c) gezeigte Aufnahme wurde bei einem Überfokus von 1980 nm erstellt, was zu einer noch größeren Delokalisierung als in Abb. 5.12b) und einer Umkehrung des Fresnelkontrast an dem großen Partikel führt. Die PbSe Partikel erscheinen mit umgekehrtem, also hellerem Kontrast als der aC Film.

Die Abb. 5.12d) bis f) wurden aufgenommen mit positionierter Zach PP bei $Z = 730 \text{ nm}$. Es wurde ein Phasenschiebungsoffset von $\pi/4$ bei 0 V angelegter Spannung bestimmt. In Abb. 5.12d) wurde eine Spannung von $-0,4 \text{ V}$ angelegt, woraus eine Phasenschiebung von 0π resultierte. Der Kontrast ist hier vergleichbar zur Abb. 5.12a). Durch die Zach PP sind zusätzliche Kontraste mit Vorzugsrichtung von links unten nach rechts oben im Bild zu sehen.

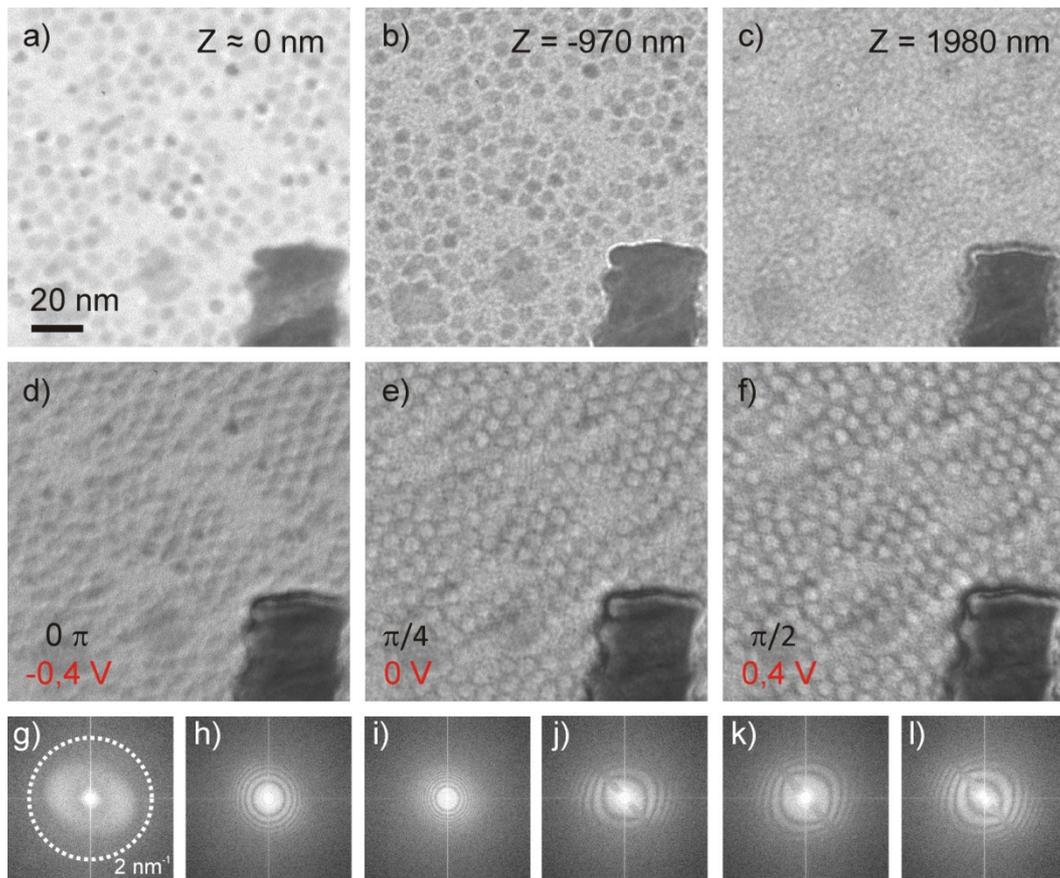


Abbildung 5.12: PbSe Nanopartikel von etwa 6 nm auf aC Film. a) bis c) Konventionelle TEM Aufnahmen bei a) Gauss Fokus, b) $Z = -970$ nm und c) $Z = 1980$ nm. d) bis f) Zach PP TEM Aufnahmen mit d) $\varphi_{PP} = 0$, e) $\varphi_{PP} = \pi/4$ f) $\varphi_{PP} = -\pi/4$. g) bis l) zugehörige Diffraktogramme.

In Abb. 5.12e) wurde keine Spannung angelegt, was zu einer Phasenschiebung von $\pi/4$ führte. Der Kontrast der PbSe Partikel ist nun hell im Vergleich zum Hintergrund. Abb. 5.12f) zeigt eine Aufnahme bei $\pi/2$ Phasenschiebung durch 0,4 V angelegte Spannung, welche den Kontrast deutlich verbessert. Die Fresnelsäume an dem großen Partikel in der Ecke ändern sich in 5.12d) bis f) erwartungsgemäß kaum für unveränderten Defokus.

Um die Kontrastverbesserung durch die Phasenplatte zu untersuchen, wurden Linescans über zwei Partikel in der Abb. 5.13 verglichen. Die Linescans wurden über 5 Pixel gemittelt um das Rauschen zu reduzieren. Zur Normierung wurde die mittlere Bildintensität (ohne das große dunkle Partikel in der Ecke) verwendet. Abb. 5.13a) vergleicht die Unterfokus Bildintensität ohne Phasenplatte mit der Zach PP Aufnahme bei $\pi/2$ Phasenschiebung. Der Kontrast der Partikel in der PP TEM Aufnahme ist verstärkt im Vergleich zum Unterfokus Bild. In Abb. 5.13b) sind zwei Zach PP Aufnahmen bei gleichem Defokus und unterschiedlichen Phasenschiebungen 0π und $\pi/2$ verglichen, was einen deutlichen Kontrastanstieg für $\pi/2$ zeigt.

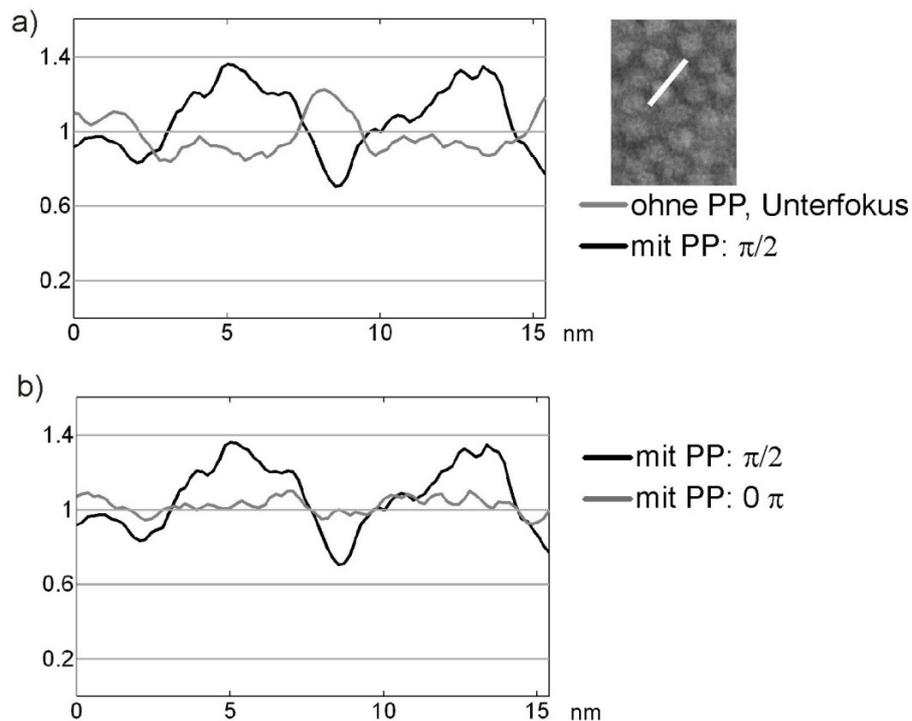


Abbildung 5.13: Linescans über zwei PbSe Partikel über 5 Pixel gemittelt und auf die mittlere Bildintensität normiert. a) Linescans aus Bild 5.12b) in grau und 5.12f) in schwarz. b) Linescans aus 5.12d) und f).

Um eine statistische Information über die Änderung des Partikelkontrasts für die verschiedenen Abbildungsbedingungen zu erhalten, wurden 12 beliebige Partikel analysiert. Die mittlere Intensität im inneren Bereich der Partikel wurde über mehrere Partikel gemittelt, auf die mittlere Bildintensität normiert und in allen Aufnahmen verglichen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.1 gezeigt. Die Partikel in Abb. 5.12a), b) und d) zeigen dunklen Kontrast im Vergleich zur mittleren Bildintensität. Die Werte größer als 1 aus den Abb. 5.12c), e) und f) entsprechen hellem Partikelkontrast. Der stärkste Partikelkontrast wurde in der PP TEM Aufnahme bei einer Phasenschiebung von $\pi/2$ gemessen.

Zugehörige Aufnahme	Durchschnittliche normierte Partikelintensität	Parameter
Abb. 5.12a)	0,92	ohne PP, Gauss Fokus
Abb. 5.12b)	0,90	ohne PP, Unterfokus
Abb. 5.12c)	1,02	ohne PP, Überfokus
Abb. 5.12d)	0,90	mit PP, 0π
Abb. 5.12e)	1,11	mit PP, $\pi/4$
Abb. 5.12f)	1,18	mit PP, $\pi/2$

Tabelle 5.1: Normierte PbSe Partikelintensität für verschiedene Parameter. Werte kleiner als eins entsprechen dunklen Partikeln, Werte größer als eins hellen Partikeln.

5.4 Diskussion

Mit den in diesem Kapitel präsentierten Ergebnissen konnte die Funktion der Zach Phasenplatte erstmals experimentell belegt werden (siehe auch [Schultheiß et al. 2010]). Das neue PP-Konzept kommt ohne einen abschattenden Ring aus, was eine erhebliche Verbesserung zur BPP darstellt und völlig neue Perspektiven auf zu untersuchende Proben eröffnet, wie z.B. in der Keilprobe in Kap. 5.3.1 deutlich wird. In den präsentierten Beispielen von Zach PP Aufnahmen konnten Kontrastverbesserungen mit beiden Vorzeichen demonstriert werden. Da die Phasenschiebung stark vom Abstand des NS von der PP Sitze abhängt, wurden die Aufnahmen meist im Defokus durchgeführt, sodass sich anhand von Thonringen die CTF und damit die verwendete Phasenschiebung bestimmen ließ. Im Allgemeinen ist es jedoch sinnvoll, so nahe wie möglich am Fokus zu arbeiten um die Delokalisierung zu minimieren und den besten Kontrast durch Variation der Phasenschiebung zu ermitteln.

Die jeweils optimalen Aufnahmeparameter hängen stark von der betrachteten Probe ab und von den gezeigten Beispielen lässt sich strenggenommen keines als WPO einstufen. Aus diesem Grund ist es von Vorteil durch Variation des Defokus sowie der Phasenschiebung die beste Kombination für maximalen Kontrast zu ermitteln.

Im Folgenden werden einige Besonderheiten der Zach PP diskutiert, zunächst der Einfluss des asymmetrischen Potentials sowohl auf einen NS endlicher Ausdehnung als auch auf gestreute Elektronen niedriger Raumfrequenzen. Anschließend wird die Haltbarkeit der PP diskutiert.

Schließlich folgt ein Vergleich des Potentials einer Zach PP mit dem Potentialverlauf einer anamorphotischen PP sowie eine Beschreibung möglicher Vorexperimente für anamorphotische PPs in einem Mikroskop mit konventioneller Optik.

5.4.1 Einfluss der asymmetrischen Phasenschiebung

Wie in Abb. 5.1b) zu sehen, ist das projizierte elektrostatische Potential und somit die resultierende Phasenschiebung stark inhomogen von der Spitze der Zach PP aus halbkreisförmig abfallend. Diese Inhomogenität hat nun zweierlei Auswirkungen. Zum einen bewirkt sie, dass ein nicht ideal punktförmiger, sondern leicht ausgedehnter NS über die Querschnittsfläche eine unterschiedliche Phasenschiebung erfährt. Des Weiteren erfahren die gestreuten Elektronen sehr niedriger Ortsfrequenzen im Bild links von der PP eine Phasenschiebung ähnlich der des Nullstrahls, sodass für diese eine andere relative Phasenschiebung als zu weiter entfernten Elektronen anderer Ortsfrequenzen erzeugt wird.

Zunächst wird die endliche Ausdehnung des Nullstrahls betrachtet. Der „full width at tenth maximum“ (FWTM) Durchmesser des Nullstrahls im ZEISS 923 mit FEG wird abgeschätzt auf etwa 750 nm. Über diesen Strahldurchmesser variiert nun die Phasenschiebung aufgrund des starken Gradienten im elektrostatischen Potential.

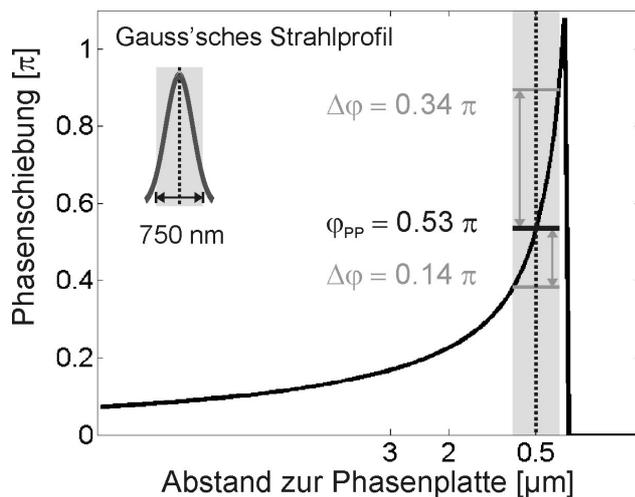


Abbildung 5.14: Phasenschiebung als Funktion des Abstands für eine angelegte Spannung von 1 V mit der Zach PP auf der rechten Seite. Der NS ist im Abstand von 0,5 μm vor der Spitze positioniert, was $\varphi_{PP} = 0,53 \pi$ entspricht. Grau schraffiert wird die Fläche eines ausgedehnten NS von 750 nm betrachtet. Die Abweichung der Phasenschiebung auf der PP Seite entspricht $0,34 \pi$ und auf der entgegengesetzten Seite bei kleinerem Gradienten $-0,14 \pi$. Im Gauss'schen

Strahlprofil links oben ist zu sehen, dass der Großteil der Elektronen in der Nähe des Zentrums verläuft, während nur ein Bruchteil in der Nähe des Scheibenrandes läuft.

In Abb. 5.14 ist diese Ausdehnung grafisch dargestellt. Die schwarze Linie zeigt die Phasenschiebung als Funktion des Abstandes des NS von der PP Spitze bei einer angelegten Spannung von 1 V. Während das Zentrum des NS im Abstand von 0,5 μm eine Phasenschiebung von $\varphi_{PP} = 0,53 \pi$ erfährt, weichen die Phasenschiebungen der Randelektronen davon deutlich ab. Auf der Seite der Phasenplatte, wo das Potential einen stärkeren Gradienten aufweist, ist $\Delta\varphi_{PP} = 0,34 \pi$, während auf der gegenüberliegenden Seite im niedrigeren Gradient $\Delta\varphi_{PP} = -0,14 \pi$ beträgt.

Um den Effekt von $\Delta\varphi_{PP}$ auf den Bildkontrast zu verstehen, wird ein Vergleich zum Effekt der zeitlichen Kohärenz gestellt. Dabei wird angenommen, dass für jede Phasenschiebung φ_{PP} ein Bild produziert wird und in der Bildebene alle diese Bilder aufaddiert werden, ebenso wie die Bilder bei unterschiedlichen Defokuswerten mit gegebenem defocus spread ΔZ .

Trotz der ähnlichen Beschreibung der beiden Effekte ist darauf hinzuweisen, dass sich die Auswirkungen auf das Bild grundsätzlich unterscheiden, da die zeitliche Inkohärenz zu einem Verlust höherer Ortsfrequenzen führt, während sich die Bilder bei unterschiedlichen Phasenschiebungen nicht im Muster unterscheiden. Die Unterschiede bestehen nur in der

lokalen Intensität im Sinne der Stärke des Kontrastübertrags, welcher durch die Variation von φ_{PP} beeinflusst wird. So erzeugen Elektronen, die abweichend von der optimalen Kontrastübertragung phasengeschoben werden, einen niedrigeren Kontrast als die zentralen Elektronen.

Um nun den Effekt zu quantifizieren, wird er mit der zeitlichen Kohärenz am ZEISS 923 mit $\Delta Z = 20$ nm verglichen. Entsprechend der Gl. 2.11 wirkt ΔZ auf die u^2 -abhängige Phasenschiebung in der Wellenaberrationsfunktion, die durch Variation des Defokuswertes erzeugt wird. Die Bildbeiträge unterschiedlicher Defokuswerte $Z' = Z + \epsilon$ werden mit einer Gauss Funktion mit der Standardabweichung ΔZ gewichtet:

$$f(\epsilon) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Delta Z} \exp\left(-\frac{\epsilon^2}{2\Delta Z^2}\right). \quad (5.1)$$

In Abb. 5.15 sind zusätzliche Phasenschiebungen $\Delta\varphi_{\Delta Z}$ aufgrund variierender Defokuswerte Z' über die zugehörige Gewichtung $f(\epsilon)$ für drei unterschiedliche Raumfrequenzen aufgetragen (schwarze Linien: gestrichelt = $0,5 \text{ nm}^{-1}$, durchgezogen = 1 nm^{-1} , gepunktet $1,5 \text{ nm}^{-1}$). Die Breite der Verteilung nimmt mit höheren Frequenzen wie erwartet zu, was zur Kontrastreduzierung bei höheren Frequenzen führt. Die Gauss-Verteilung ist schmal bei kleinen Ortsfrequenzen ($0,5 \text{ nm}^{-1}$) mit einer Phasenschiebung beim FWHM von nur $\pi/8$. Das heißt die Hälfte der beitragenden Elektronen erfährt eine zusätzliche Phasenschiebung von $|\Delta\varphi_{\Delta Z}| \leq \pi/16$.

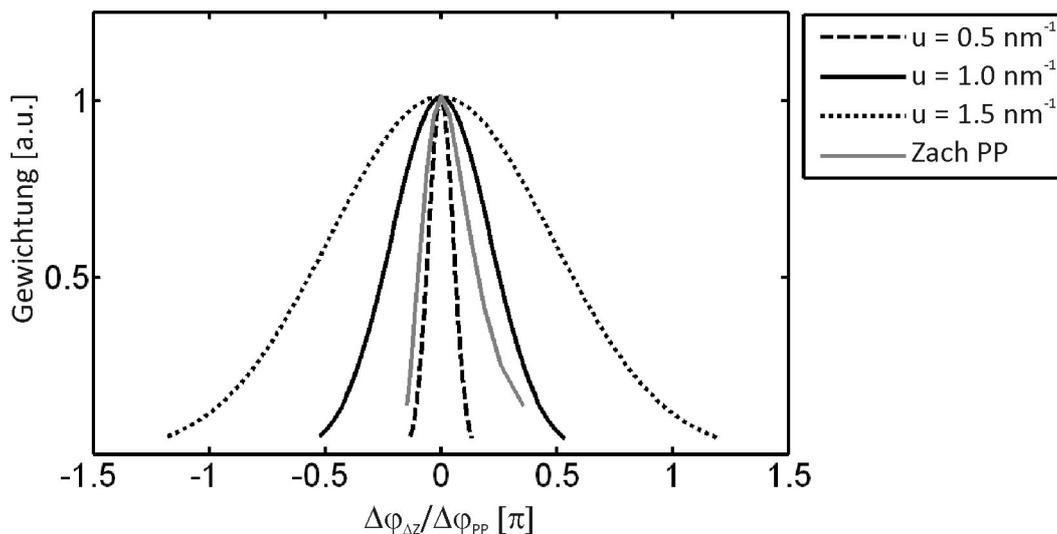


Abbildung 5.15: Verteilung der Phasenschiebungsvariationen aufgrund des defocus spreads sowie der Inhomogenität des PP Potentials. Die Verteilung ist gegen die Phasenschiebung aufgetragen. Schwarze gestrichelte Linie: Defokus spread Effekt für $0,5 \text{ nm}^{-1}$, schwarze durchgezogene Linie: 1 nm^{-1} und schwarze gepunktete Linie: $1,5 \text{ nm}^{-1}$. Graue Linie: Verteilung der Phasenschiebungsvariation im NS aufgrund des inhomogenen PP Potentials.

Der Effekt der Variation des PP Potentials auf den NS kann nun analog beschrieben werden. Der Bildbeitrag der Elektronen mit verschiedenen $\varphi'_{PP} = \varphi_{PP} \pm \Delta\varphi_{PP}$ erhält man durch Gewichtung mit einer entsprechenden Gausschen Intensitätsverteilung des Strahls als Funktion von $\Delta\varphi_{PP}$. Das Ergebnis ist als graue Linie in Abb. 5.15 dargestellt.

Die Asymmetrie der Kurve resultiert aus der Form des Potentials (siehe Abb. 5.14). In Abb. 5.15 ist nun zu erkennen, dass der Effekt des inhomogenen φ_{PP} von der Stärke vergleichbar ist mit dem ΔZ Effekt bei kleinen Raumfrequenzen. Die zeitliche Inkohärenz hat bei höheren Raumfrequenzen einen wesentlich stärkeren Effekt als $\Delta\varphi_{PP}$.

Um nun die Stärke der frequenzunabhängigen Dämpfung durch $\Delta\varphi_{PP}$ für verschiedene NS Durchmesser zu bestimmen, wurde eine CTF für schwache Phasenobjekte nur in Abhängigkeit von φ_{PP} betrachtet und die Höhe der Phasenkontrastreduktion (E_{PC}) für verschiedene FWTM berechnet:

$$E_{PC}(FWTM) = \iint_{-\infty}^{\infty} \sin(\varphi'_{PP}(x,y)) g(x,y) dx dy \quad (5.2)$$

mit der Gauss Verteilung:

$$g(x,y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(\sqrt{x^2+y^2})^2}{2\sigma^2}\right) \quad , \quad \sigma = \sqrt{\frac{FWTM^2}{\ln(10)}} \quad (5.3)$$

In Abb. 5.16 ist ein Plot der Kontraststärke für verschiedene NS Durchmesser aufgetragen. Für den angenommenen Durchmesser von 750 nm ist der Kontrast nur um etwa 5 % reduziert. Erst ab einem FWTM von 1 μm – wo die Abschattung des NS durch die PP Spitze beginnt – wird der Kontrast auf weniger als 90 % reduziert. Diese Betrachtungen zeigen, dass der Phasenkontrast kaum beeinflusst wird durch die Variation der Phasenschiebung innerhalb eines ausgedehnten NS.

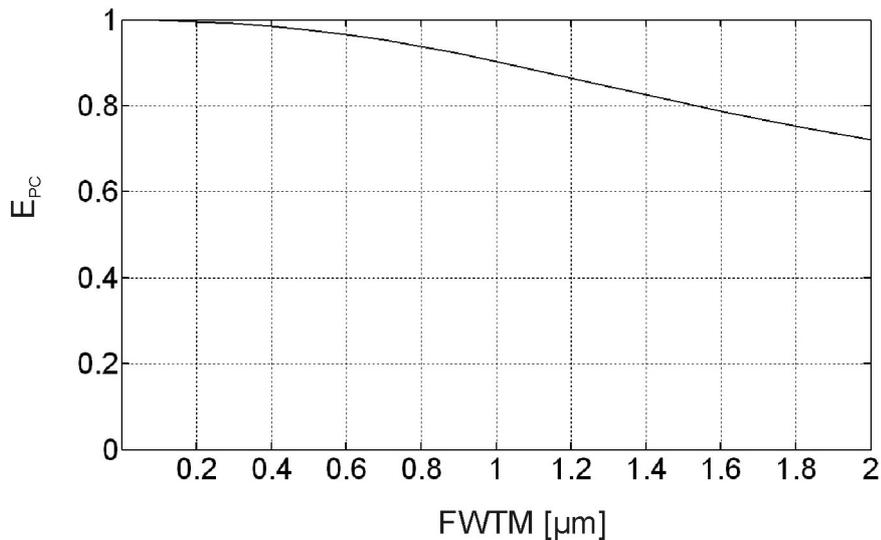


Abbildung 5.16: Reduktion des Phasenkontrasts als Funktion des NS Durchmessers gegeben durch dessen FWTM.

Der Einfluss des asymmetrischen Potentials und der PP Struktur selbst auf die gestreuten Elektronen niedriger Frequenzen setzt sich aus zwei Teilen zusammen. Als erstes werden die Frequenzen bis zum Einsetzen des PP Steps betrachtet. Ist der NS im Abstand von $0,5 \mu\text{m}$ zur Zach PP positioniert, so sind die gestreuten Elektronen (bei $f = 3 \text{ nm}$ und $\lambda = 3.35 \text{ pm}$) bis zu einer Frequenz von $0,05 \text{ nm}^{-1}$ stark durch das Potential beeinflusst. Die relative Phasenschiebung $\Delta\phi_{\text{PP}}$ durch die PP ist auf der PP zugewandten Seite von umgekehrten Vorzeichen als auf der PP abgewandten Seite. Für den PP-Anteil der CTF bewirkt dies eine Richtungsabhängigkeit (u_x, u_y) für die kleinsten Ortsfrequenzen mit einem soft cut-on für die PP abgewandte Seite und auf der entgegengesetzten Seite Kontrastübertrag anderen Vorzeichens für sehr kleine Raumfrequenzen. Dies wirkt sich in einem 3-dimensionalen Effekt ähnlich dem Hilbert-Kontrast aus.

Ab der Grenzfrequenz, im hier genannten Beispiel bei $u = 0,05 \text{ nm}^{-1}$, ab der der Steg der Phasenplatte einen Teil der gestreuten Elektronen verdeckt, setzt der SSB Effekt ein. Für die kleinsten betroffenen Ortsfrequenzen bis etwa $0,2 \text{ nm}^{-1}$ wird ein großer Teil der gestreuten Elektronen auf der PP Seite durch den Steg verdeckt, für größere Frequenzen nimmt der Anteil ab.

Mit dem Abstand zwischen NS und Zach PP ändert sich die Dominanz der Effekte – bei größeren Abständen ist der erste beschriebene Effekt stärker, bei kleineren Abständen nimmt der SSB Kontrast zu und es kann auch ein Teil des NS verdeckt werden.

In den aufgenommen Bildern war zu erkennen, dass sich starke Muster mit Vorzugsrichtung unabhängig von der PP Position zeigen. So sind bei festen PP Positionen und Defokuswerten

bei einem Spannungsvorzeichen Effekte zu sehen, bei Spannung mit entgegengesetztem Vorzeichen jedoch keine (siehe z.B. Abb. 5.8b) und c) bzw. 5.9 e) und f)). Die resultierenden streifenartigen Artefakte rühren aus dem kleinsten Ortsfrequenzbereich, können also durch eine Kombination der beschriebenen Effekte überlagert mit einer möglichen Aufladung an der offenen Spitze der Zach PP stammen. Da bei der Bestimmung der PP Eigenschaften in Kap. 5.2 sowie bei PP TEM Aufnahmen ohne angelegter Spannung ein Phasenschiebungs-Offset festgestellt wurde, ist davon auszugehen, dass sich die PP Spitze leicht auflädt, bzw. durch Leckströme zwischen den Elektroden durch Kontamination an der PP Spitze ein zusätzliches Feld erzeugt wird. Durch geeignete Kombination der Parameter können jedoch Abbildungsbedingungen gefunden werden, bei denen keine starke Vorzugsrichtung zu erkennen ist und der Kontrast maximiert wird.

5.4.2 Kontamination der Phasenplatte und Wiederverwertbarkeit

Wie auch bei der BPP kommt es durch Restmoleküle im Vakuum zu Kontaminationen hauptsächlich an der Spitze der Zach PP. Es bilden sich zunehmend Aufladungen, sodass die Haltbarkeit der Zach PP ebenso wie die der BPP auf den Bereich von einigen Tagen Betrieb im Mikroskop beschränkt ist. Die Besonderheit einer Zach PP besteht nun darin, dass nach Kontamination die Spitze mit dem fokussierten Ionenstrahl etwas gekürzt und nachpoliert werden und die PP anschließend weiterverwendet werden kann. Dies ist bei der BPP nicht möglich, da ein Nachschneiden der inneren Öffnung durch die Größe der strukturierten mittleren Elektrodenschicht begrenzt ist. Eine Zach PP kann mehrmals leicht verkürzt und anschließend wieder im Mikroskop weiterverwendet werden.

Da der Herstellungsprozess der elektrostatischen PPs sehr aufwendig ist, stellt die Wiederverwertbarkeit der Zach PP einen großen Vorteil dar. Zwar muss sie zum Bearbeiten ausgeschleust und ins FIB System transferiert werden, dies ist jedoch ein erheblich geringerer Aufwand als die Neuherstellung einer Phasenplatte.

Eine weitere Möglichkeit der Verlängerung der Betriebszeit stellt vermutlich die Heizung der PP dar, was die Kontamination erheblich reduzieren dürfte.

5.4.3 Analogie zum anamorphotischen Potential und mögliche Vorexperimente

Wie in Kapitel 3.6 zu sehen, besteht die APP in der zentralen Schicht aus vier unabhängigen Elektroden und kann dadurch in verschiedenen Moden betrieben werden. Will man nun eine APP im Zernike Modus verwenden, legt man an die mittleren beiden Elektroden eine Spannung an. In Abb. 5.17a) ist eine APP im Zernike Modus zu sehen. Die anamorphotische

Brennebene läuft durch den Spalt und der NS erfährt durch das Potential eine Phasenschiebung relativ zu den gestreuten Elektronen, die entlang der geerdeten Elektroden vorbei laufen.

In Abb. 5.17b) ist eine Doppel-Zach PP dargestellt, die aus zwei gegenüberliegenden Stegen besteht. Wird nun an beide Elektroden eine Spannung angelegt, bildet sich ein ähnliches Potential aus wie in der Mitte der APP. Mit Hilfe dieser Anordnung ist nun geplant, Vorexperimente zur APP durchzuführen, bei denen die Position des NS im Potential variiert und der Einfluss auf den Bildkontrast untersucht und mit simulierten Daten [Frindt 2010] verglichen werden kann.

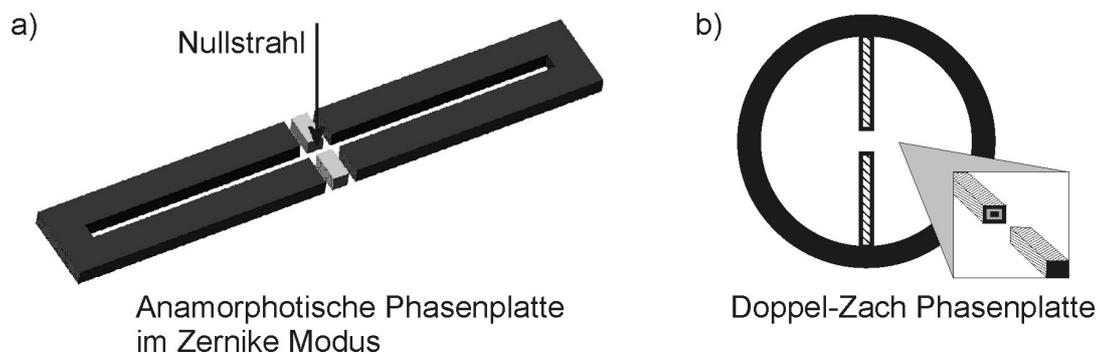


Abbildung 5.17: a) Anamorphotische PP im Zernike Modus [Frindt 2010] verglichen mit einer b) Doppel-Zach PP. Die resultierenden Potentiale ähneln sich stark, sodass mit einer Doppel-Zach PP Vorexperimente zur APP TEM durchgeführt werden können.

5.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die ersten experimentellen Tests mit einer Zach PP präsentiert. Die neue PP benötigt keine ringförmige Linse, die einen Frequenzbereich komplett abschattet, sondern ermöglicht PP TEM Aufnahmen mit Elektronen aller Ortsfrequenzen. Die kontrollierte Phasenschiebung durch die Zach PP in beide Richtungen konnte mit der Auswertung von Thonringen belegt werden.

Eine Reihe von Beispielen wurde gezeigt, bei denen der Kontrast durch eine zusätzliche Phasenschiebung deutlich verbessert werden konnte. Der Einfluss des inhomogenen Potentials auf einen ausgedehnten NS sowie auf gestreute Elektronen wurde diskutiert und es zeigt sich, dass eine geeignete Kombination der Parameter zu optimalem Kontrast sowie Minimierung von Artefakten führt.

Ein weiterer Vorteil der Zach PP ist die Wiederverwertbarkeit durch leichtes Kürzen und Nachpolieren der Spitze, wozu sie allerdings in ein FIB System transferiert werden muss. Da eine PP komplett ohne Abschattung zu wesentlich weniger Kontaminationen führen würde, ist die Entwicklung an der APP und zugehöriger Optik erstrebenswert. Mit einer Doppel-Zach PP sind Vorexperimente zur APP im Zernike Modus geplant.

6 Rekonstruktion der Wellenfunktion mit Phasenplatten

Transmissionselektronenmikroskopie

In der Arbeit von Gamm et al. [2010] wird ein neues Objektwellen Rekonstruktionsverfahren basierend auf PP TEM Bildern vorgeschlagen, mit welchem man aus lediglich drei Aufnahmen unterschiedlicher Phasenschiebung die Phase und Amplitude der Objektwelle rekonstruieren kann. In diesem Kapitel wird das Verfahren beschrieben und mit anderen Rekonstruktionsmethoden verglichen, sowie eine erste Rekonstruktion aus experimentellen elektrostatischen Phasenplattenaufnahmen präsentiert.

6.1 Motivation für die Wellenfunktionsrekonstruktion und bisher verwendete Verfahren

In einer TEM Aufnahme wird das Betragsquadrat der Bildwellenfunktion detektiert und somit geht deren Phaseninformation verloren. Des Weiteren stellt die Bildwelle eine durch das abbildende System im Transmissionselektronenmikroskop durch Aberrationen modifizierte Objektwelle dar, bei der die Phase und Amplitude frequenzabhängig moduliert zum Bild beitragen. Selbst bei einer konstanten WTF in einem C_s korrigierten Mikroskop und bei $Z = 0$ resultiert bei Verwendung einer $\pi/2$ PP ein konstanter Übertrag der Phase von 1 - jedoch auch ein Amplitudenkontrast Übertrag von 0. Die komplette Information aus Amplitude und Phase der Objektwelle zu erhalten ist somit eine generelle Schwierigkeit in der TEM, für dessen Lösung schon einige Verfahren vorgeschlagen wurden.

Eine in der Materialwissenschaft weit verbreitete Methode ist die Off-Axis Holographie [Tonomura et al. 1982, Lichte 1986]. Hierbei wird ein Interferenzmuster erzeugt zwischen einem Teil der Elektronen, der die Probe passiert hat, und einem weiteren Teil, der unbeeinflusst durch eine Vakuumregion durchläuft. Aus dem Interferenzmuster können dann die Phase und Amplitude rekonstruiert werden. Die Einschränkungen dieser Methode liegen in dem sehr kleinen Probenbereich, aus dem die Objektwelle rekonstruiert werden kann. Dieser Nachteil kann zwar mit einer Lorentzlinse kompensiert werden, dann leidet jedoch die Auflösung der Objektinformation darunter.

Eine weitere Rekonstruktionsmethode sind die Defokusserien [Coene et al. 1996, Thust et al. 1996, Koch 2008], bei der eine Serie von Aufnahmen mit unterschiedlichen Defokuswerten erstellt wird. Die genaue Kenntnis der Aufnahmeparameter und Aberrationen ist hierbei für die korrekte Rekonstruktion erforderlich.

Von Danev & Nagayama [2001, 2] wurde erstmals eine Rekonstruktionsmethode für PP TEM Aufnahmen vorgeschlagen. Diese ist jedoch auf WPOs beschränkt. Hierfür wird eine konventionelle TEM Aufnahme und eine PP TEM Aufnahme mit einer Phasenschiebung von $\pi/2$ benötigt, was die Möglichkeiten des Verfahrens stark einschränkt.

Von unserer Gruppe wurden neue Rekonstruktionsverfahren vorgeschlagen, die speziell für PP Aufnahmen konzipiert sind. Die vorgeschlagenen Methoden sind allgemeingültige Verfahren, die nicht auf WPOs oder lineare Bildentstehung beschränkt sind. Bei „realen“, also Nicht-WPO Objekten, kommt es zu einer Vermischung von Amplituden- und Phasenkontrast. Hierdurch wird die Interpretation der Bilder stark erschwert im Vergleich zur WPO Näherung, die einen direkten Zusammenhang zwischen dem elektronenoptischen Brechungsindex und dem Bildkontrast aufweist. Von Gamm et al. [2010] ist eine Rekonstruktion für ideale PPs (ohne Dämpfung der phasengeschobenen Elektronen) vorgeschlagen und von Dries et al. [2010] eine entsprechende Methode für Film PPs, die auch für eine asymmetrische Phasenschiebung von Hilbert-Phasenplatten erweitert wurde.

Mit Zach PP Aufnahmen wurde die erste experimentelle Anwendung der ersten Methode [Gamm et al. 2010] durchgeführt. Für die Rekonstruktion werden drei TEM Aufnahmen bei beliebigen unterschiedlichen Phasenschiebungen benötigt. Hierbei kann eine der drei eine konventionelle TEM Aufnahme mit $\varphi_{PP} = 0$ sein. Im Folgenden wird die im Realraum beschriebene Rekonstruktionsmethode erklärt, wie sie auch im experimentellen Beispiel verwendet wurde.

6.2 Phasenplattenbasiertes Rekonstruktionsverfahren im Realraum

Bei der neuen Rekonstruktionsmethode wird durch die Differenzen von PP TEM Aufnahmen zunächst die komplexe Bildwellenfunktion rekonstruiert und anschließend durch Korrektur der Aberrationen die komplexe Objektwellenfunktion berechnet. Um die Rekonstruktion anwenden zu können, werden drei Aufnahmen bei identischen Aberrationen und Aufnahmebedingungen wie z.B. Belichtungszeit benötigt, die bei unterschiedlichen Phasenschiebungen deutliche Kontrastunterschiede aufweisen. Da die Aberrationen am Ende korrigiert werden können, werden sie bei folgender Betrachtung zunächst vernachlässigt. Die Bildintensität im Realraum kann wie folgt beschrieben werden:

$$I(\vec{r}) = |f_0 - f_D(\mathbf{r})|^2 \quad (6.1)$$

mit der ungestreuten Elektronenwelle f_0 und dem gestreuten Anteil $f_D(\mathbf{r})$, der die Beiträge aller gestreuten Elektronen am Ort \mathbf{r} enthält. In den drei benötigten Aufnahmen unterschiedlicher Phasenschiebung kann diese im Prinzip beliebig gewählt werden, z.B. 0 , $\pi/2$ und $-\pi/2$. Die Phasenschiebungen sollten so gewählt werden, dass sich die zugehörigen Bilder möglichst stark im Kontrast unterscheiden, also die Differenzbilder möglichst viel Information enthalten.

Als nächstes werden die Differenzbilder zwischen den phasengeschobenen Bildern und der konventionellen Aufnahme berechnet, wobei die Phasenschiebung wie bei BPP und Zach PP TEM auf den ungestreuten Anteil aufmultipliziert wird. Unter der Annahme von Phasenschiebungen $\varphi_{PP} = 0, \pi/2$ und $-\pi/2$ beschreiben die folgenden Gleichungen die Vorgehensweise. Zuerst werden die Differenzbilder berechnet:

$$f(\mathbf{r}) = |f_0| - |f_D(\mathbf{r})|e^{i\varphi(\mathbf{r})} \quad f_{\pm\frac{\pi}{2}}(\mathbf{r}) = |f_0|e^{\pm i\frac{\pi}{2}} - |f_D(\mathbf{r})|e^{i\varphi(\mathbf{r})}$$

$$D_{0,\pm\frac{\pi}{2}}(\mathbf{r}) = f(\mathbf{r})f^*(\mathbf{r}) - f_{\pm\frac{\pi}{2}}(\mathbf{r})f_{\pm\frac{\pi}{2}}^*(\mathbf{r})$$

$$= |f_0||f_D(\mathbf{r})|(e^{i\varphi(\mathbf{r})}(1 \pm i) + e^{-i\varphi(\mathbf{r})}(1 \mp i)) \quad (6.2)$$

mit der Amplitude der ungestreuten Welle $|f_0|$ und der Amplitude und relativen Phase des gestreuten Anteils der Wellenfunktion $|f_D|$ und $\varphi(\mathbf{r})$. Hier ist schon direkt zu erkennen, dass sich durch die Differenzbildung die nichtlinearen Terme wegheben, also diejenigen, die durch Wechselwirkung der gestreuten Elektronen untereinander entstehen. Die Differenzgleichung enthält nur lineare Bildanteile, da weder die nichtlinearen, noch die zu den ungestreuten Elektronen inkohärenten Beiträge durch die PP Phasenschiebung beeinflusst werden, da diese auf den NS aufgeprägt wird.

Dieses Gleichungssystem kann nun gelöst werden.

$$\frac{1}{\gamma} (D_{0,-\frac{\pi}{2}} + iD_{0,+\frac{\pi}{2}}) = e^{i\varphi}(1 - i + i - 1) + e^{-i\varphi}(1 + i + i + 1) = 2e^{-i\varphi}(1 + i) \quad (6.3)$$

$$\frac{1}{\gamma} (iD_{0,-\frac{\pi}{2}} + D_{0,+\frac{\pi}{2}}) = e^{i\varphi}(i + 1 + 1 + i) + e^{-i\varphi}(i - 1 + 1 - i) = 2e^{i\varphi}(1 + i)$$

mit $\gamma = |f_0||f_D|$.

Es ergeben sich $\varphi(\mathbf{r})$ und $|f_D(\mathbf{r})|$ in Abhängigkeit von $|f_0|$:

$$e^{-i\varphi} = \sqrt{\frac{D_{0,-\frac{\pi}{2}} + iD_{0,+\frac{\pi}{2}}}{iD_{0,-\frac{\pi}{2}} + D_{0,+\frac{\pi}{2}}}} \rightarrow \varphi = \frac{1}{2} i \ln \left(\frac{D_{0,-\frac{\pi}{2}} + iD_{0,+\frac{\pi}{2}}}{iD_{0,-\frac{\pi}{2}} + D_{0,+\frac{\pi}{2}}} \right) \quad (6.4)$$

$$|f_D| = \frac{e^{-i\varphi}}{2(1+i)|f_0|} \left(iD_{0,-\frac{\pi}{2}} + D_{0,+\frac{\pi}{2}} \right).$$

Nur durch eine dritte Gleichung für $|f_0|$ ist es möglich, Phase und Amplitude der Bildwelle zu berechnen. Hierfür kann z.B. ein kleiner Vakuumbereich im Bild verwendet werden, um $|f_0|$ auf eins zu normieren und das komplette Datenset durch die Vakuumintensität zu teilen.

Die ermittelte Bildwellenfunktion wird nun WTF-korrigiert, wofür die Envelopen sowie die genauen Aberrationen benötigt werden.

6.3 Erstes experimentelles Beispiel: Rekonstruktion der Phase von Platin Nanopartikeln

Für ein erstes experimentelles Beispiel wurden Zach PP TEM Aufnahmen von Pt Nanopartikeln auf einem dünnen aC Film im ZEISS 923 aufgenommen. In Abb. 6.1a) bis c) sind Zach PP TEM Aufnahmen bei unterschiedlichen Spannungen zu sehen. Abb. 6.1a) wurde erstellt bei 0 V, b) bei 0,4 V und c) bei -0,4 V. Auf der rechten Seite des Bildes befindet sich eine Vakuumregion, mit der die Normierung der Bilder vorgenommen werden kann. In Abb. 6.1d) bis f) ist der in a) markierte Bereich aus den Aufnahmen a) bis c) vergrößert dargestellt. In den Abb. 6.1g) bis i) sind die zu a) bis c) zugehörigen Diffraktogramme zu sehen.

Die Aufnahmen wurden bei 80.000facher Vergrößerung mit 0,5 mrad Beleuchtungswinkel und einer Belichtungszeit von $t = 8$ s erstellt. Als erster Schritt für die Rekonstruktion müssen Verschiebungen zwischen den Bildern optimal korrigiert werden. Da ein automatisches Ausrichten mittels Kreuzkorrelation durch das niedrige SNR und die Phasenkontrastunterschiede häufig scheitert, erfolgt die Driftkorrektur manuell. Durch markante Bildstellen wie Probenkanten oder in allen Aufnahmen sichtbare Bilddetails ist die Ausrichtung mit einer Präzision von einem Pixel möglich.

Im nächsten Schritt werden die WTF gefittet, um die genauen Parameter zu bestimmen wie in Kapitel 4.1 beschrieben. Da in diesem Beispiel deutlich drei Minima in den Thonringen zu erkennen sind, kann die Bestimmung der Parameter mit sehr guter Genauigkeit erfolgen. Für den Defokus aller drei Aufnahmen a) bis c) ergibt sich ein Wert von $Z = 420$ nm. Die Phasenschiebungen wurden bestimmt zu a), d) und g) $\varphi_{PP} = -0,05 \pi$, b), e) und h) $\varphi_{PP} = 0,17$

π und c), f) und i) zu $\varphi_{PP} = -0,19 \pi$. Die Bildintensität wird anschließend auf die Vakuumintensität normiert.

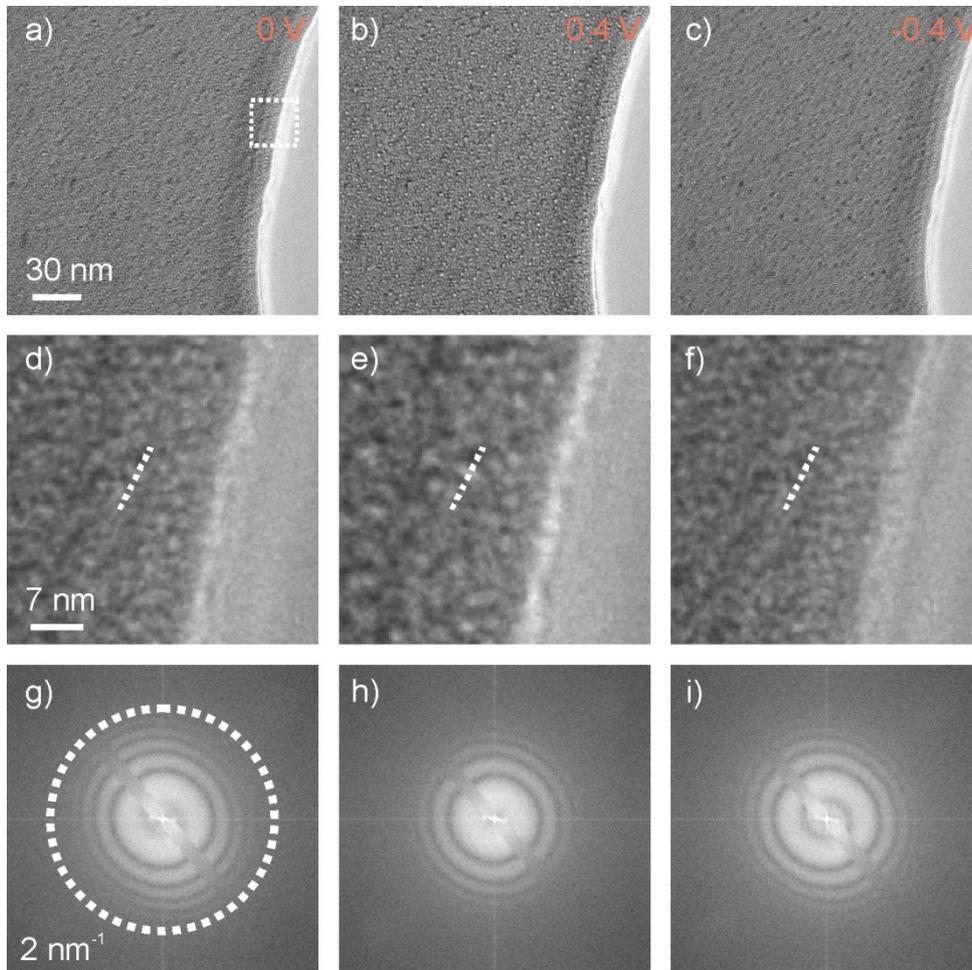


Abbildung 6.1: Zach PP TEM Aufnahmen von Pt Partikeln bei $Z = 420 \text{ nm}$. a) Ohne angelegte Spannung bei $\varphi_{PP} = -0,05 \pi$. b) Bei $0,4 \text{ V}$ und $\varphi_{PP} = 0,17 \pi$. c) Bei $-0,4 \text{ V}$ und $\varphi_{PP} = -0,19 \pi$. d) bis f) Vergrößerter Ausschnitt aus a) bis c), siehe Markierung in a). g) bis i) zu a) bis c) gehörige Diffraktogramme.

Aus den drei ausgerichteten und normierten Aufnahmen werden nun zwei Differenzbilder berechnet. Hierfür wurde die Intensität von Bild b) ($\varphi_{PP} = 0,17 \pi$) von a) ($\varphi_{PP} = -0,05 \pi$) und von Bild c) ($\varphi_{PP} = -0,19 \pi$) von a) ($\varphi_{PP} = -0,05 \pi$) abgezogen. Die Differenzbilder zeigen mit a) - b) 4:1 und a) - c) 3:1 ein ausreichendes SNR, was eine Voraussetzung für die Wellenfunktionsrekonstruktion ist. Mithilfe des Rekonstruktionsformalismus kann nun die komplexe Bildwellenfunktion berechnet werden, die von den Effekten der Objektivlinsen-

Aberrationen korrigiert werden kann. Diese werden durch die Wellentransferfunktion WTF beschrieben:

$$WTF = E(u) \cdot \exp \left(i \frac{\pi}{2} (C_s \lambda^3 u^4 + 2Z\lambda u^2) \right). \quad (6.5)$$

Hierfür muss zunächst die komplette Dämpfungsfunktion bestimmt werden, die sich aus räumlicher und zeitlicher Kohärenz zusammensetzt. Für letztere wurde aus den entsprechenden Mikroskopinstabilitäten und der Energieweite der Quelle ΔE ein defocus spread von $\Delta Z = 20$ nm bestimmt. Zur kompletten Beschreibung der Dämpfung wurde die Modulations-Transferfunktion der CCD Kamera bestimmt und in $E(u)$ einbezogen. Anschließend kann die Bildwellenfunktion im Fourierraum durch die WTF geteilt werden und es ergibt sich daraus die komplexe Objektwellenfunktion.

Das Ergebnis der Rekonstruktion wird in Abb. 6.2 präsentiert, das zwei benachbarte Pt Partikel als Beispiel zeigt. In Abb. 6.2a) sind Linescans entlang dieser beiden Pt Partikel in allen drei Bildern zu sehen (siehe gestrichelte Linie in Abb. 6.1d) bis f). Die Kontrastunterschiede des kleineren linken und größeren rechten Partikels sind deutlich zu erkennen.

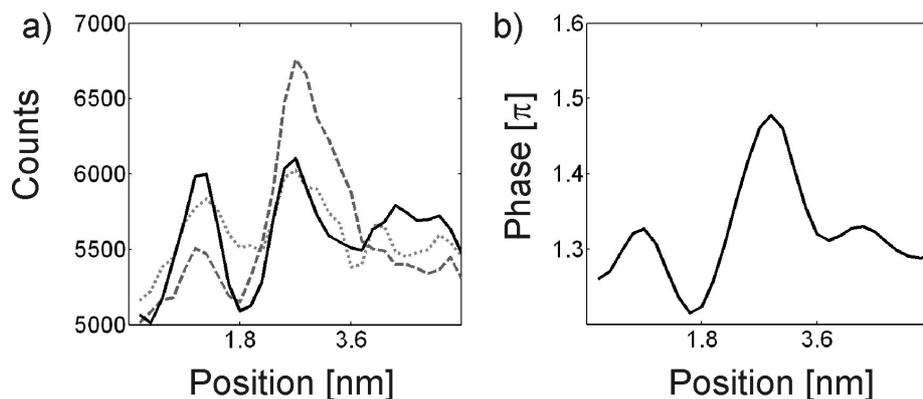


Abbildung 6.2: Linescans über dieselben zwei Pt Nanopartikel in drei verschiedenen Aufnahmen (siehe weiße gestrichelte Linien in Abb. 6.1d) bis f)). b) Rekonstruierte Phase der Objektwelle entlang der Pt Partikel.

Abb. 6.2b) zeigt die rekonstruierte Phase der Objektwellenfunktion an der Stelle der Linescans in Abb. 6.2a). Abb. 6.2b) zeigt die komplette Phase, die auch die Hintergrundphase (d.h. die beliebige Vakuumphase) und die Phasenverteilung des aC Filmes enthält. Die Phasenschiebung der Pt Partikel wird nun bestimmt durch die Differenz der Peak-Maxima zur Hintergrundphase in der Umgebung der Partikel. Für das kleinere linke Partikel ergibt sich eine Phasenschiebung von etwa $0,15 \pi$, für das größere rechte Partikel eine Phasenschiebung von $0,2 \pi$.

6.4 Diskussion

Das von Gamm et al. [2010] vorgeschlagene Phasenplatten-basierte Objektwellenrekonstruktionsverfahren konnte für Pt Nanopartikel auf aC Film erstmals erfolgreich angewendet werden. Die neue Methode ist vielversprechend, da sie bei allgemeinen Objekten ohne Beschränkung auf lineare Bildentstehung angewendet werden kann. Da für die Rekonstruktion nur drei Aufnahmen benötigt werden, stellt die Methode besonders für strahlempfindliche Proben eine erhebliche Verbesserung im Vergleich zur Defokus-Serien Rekonstruktion dar, da die benötigte Strahldosis deutlich geringer ist. Eine Besonderheit des neuen Verfahrens liegt in der Notwendigkeit der Kenntnis eines Bildbereiches zur Normierung, wie hier im Beispiel die Vakuumregion auf der rechten Seite. Dies kann die Anwendbarkeit der Methode in einigen Fällen beschränken.

Eine stärkere Einschränkung für die PP Wellenfunktionsrekonstruktion ist ein möglicher Beitrag zur Bildintensität, der inkohärent zu den ungestreuten Elektronen ist. Das gilt für alle inelastisch gestreuten Elektronen, da es zwischen gestreuten und ungestreuten Elektronen kein festes Phasenverhältnis gibt. Zwar kann durch inelastisch gestreute Elektronen ein Interferenzmuster produziert werden, wie von Potapov et al. [2006] in energiegefilterter Off-Axis Holographie gezeigt wurde. Da jedoch zero-loss und energy-loss Interferenzmuster inkohärent aufaddiert werden, können diese Beiträge nicht für die Phasenplatten Wellenfunktionsrekonstruktion benutzt werden. Die Rekonstruktion wird hierdurch nicht unmöglich, es könnte sich jedoch als schwierig erweisen, ein ausreichendes SNR zu erlangen.

6.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein neues Objektwellenrekonstruktionsverfahren vorgestellt, das auf PP TEM Aufnahmen beruht. Mit nur drei Aufnahmen bei unterschiedlichen beliebigen Phasenschiebungen kann die komplexe Objektwelle rekonstruiert werden, wenn ein Teil in der Aufnahme bekannt ist, wie z.B. ein kleiner Vakuumbereich.

Das neue Verfahren wurde erstmals experimentell angewendet an einer Pt Nanopartikel Probe. Aus der rekonstruierten Phase wurde die Phasenschiebung zweier Nanopartikel bestimmt.

Das Verfahren ist vielversprechend, da es weder auf lineare Bildentstehung, auf Objekte, die der WPO-Näherung entsprechen, noch auf eine feste Phasenschiebung von $\pi/2$ beschränkt ist.

7 Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

Erzeugung von Phasenkontrast durch physikalische Phasenplatten in der TEM ist durch die erfolgreiche Herstellung von elektrostatischen Phasenplatten in den Fokus weltweiter Forschungsaktivitäten gelangt. Insbesondere kann durch die Kombination einer Phasenplatte und eines Aberrationskorrektors eine aberrationsfreie Kontraststeigerung für kontrastarme Proben erreicht werden.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Entwicklung elektrostatischer Phasenplatten vorangetrieben und wichtige experimentelle Erfahrung gesammelt werden. Der Vorteil elektrostatischer Phasenplatten liegt darin, dass zum einen die Phasenschiebung variabel ist, also in Vorzeichen und Stärke an die untersuchte Probe angepasst werden kann. Zum anderen gibt es keine weitere Wechselwirkung der zur Aufnahme beitragenden Elektronen mit Material wie in Dünnfilm-Phasenplatten, was bei diesen zu Kohärenzverlusten führt. Die Schwachstelle vor allem der elektrostatischen Boersch Phasenplatte ist die Abschattung eines Teils der gestreuten Elektronen durch die Phasenplattenstruktur.

Der Herstellungsprozess von elektrostatischen Phasenplatten konnte erfolgreich so weiterentwickelt werden, dass Boersch Phasenplatten mit sehr kleinen Ring Außendurchmessern von $1,5\ \mu\text{m}$ und einer Ringbreite von $1\ \mu\text{m}$ hergestellt werden konnten. Hierdurch werden Phasenkontrast TEM Aufnahmen ermöglicht, bei denen lediglich ein kleinerer Ortsfrequenzbereich der gestreuten Elektronen abgeschattet wird.

Das FIB Schneiden der Phasenplatten Konturen verbunden mit anschließendem Entfernen der Sektoren unter Verwendung eines Mikrogreifers hat zwei Vorteile gegenüber dem flächigen Abtragen der Sektoren. Zum einen wird die Schneidezeit für eine Phasenplatte erheblich verkürzt, zum anderen bleiben auch keine Frässpäne an den Rändern stehen, die eine Quelle für mögliche Kurzschlüsse zwischen den Elektroden werden können.

Durch Variation der Prozessschritte konnten auch erfolgreich erstmals Prototypen von Zach Phasenplatten und anamorphotischen Phasenplatten hergestellt werden.

Um mit einer Boersch Phasenplatte überzeugende Phasenkontrast Aufnahmen zu erstellen, müssen die zu untersuchenden Probendetails durch Ortsfrequenzen darstellbar sein, die außerhalb der Ringelektrode liegen. Der in dieser Arbeit erreichte Außendurchmesser der Ringelektrode von $1,5\ \mu\text{m}$ ist mit dem momentanen Herstellungsprozess an der Grenze des Machbaren. Bei $120\ \text{keV}$ Elektronen und einer Objektivbrennweite von $3\ \text{mm}$ bedeuten diese Ringabmessungen, dass bei exakt symmetrischer Positionierung Informationen über

das Objekt mit Ortsfrequenzen zwischen $1/6,7 \text{ nm}^{-1}$ und $1/20,1 \text{ nm}^{-1}$ aus dem Bild gefiltert werden. Das schränkt die Wahl der sinnvollen Proben erheblich ein, da vor allem biologische Objekte oft in diesen Größenbereich fallen.

Ohne eine Feldemissionskathode ist die Vergrößerung bei Verwendung der Boersch Phasenplatte nach oben beschränkt. Dies ist dadurch begründet, dass der Beleuchtungswinkel für die in dieser Arbeit verwendeten ZEISS Transmissions-elektronenmikroskope vom Typ 912 und 923 aus Konvergenzgründen nicht größer als $0,5 \text{ mrad}$ gewählt werden kann und sich dadurch bei hoher Vergrößerung die erforderlichen Belichtungszeiten für ausreichendes Signal über die Mikroskopstabilität erweitern würden.

In der Kombination eines FEG Mikroskops mit einer Probe bestehend aus ausreichend kleinen Probedetails wie der untersuchten Platin Nanopartikel in Kapitel 4.2.2 ist die Boersch Phasenplatte ein geeignetes Hilfsmittel, um sowohl positiven als auch negativen Phasenkontrast zu erzeugen.

Eine vielversprechende Möglichkeit, den Einfluss der Frequenzfilterung durch den Phasenplatten Ring zu reduzieren, ist ein Transferdoublet mit Vergrößerungseinheit wie im Phase Contrast Aberration Corrected Electron Microscope. Durch die vergrößerte Objektivbrennweite ist der verdeckte Ortsfrequenzbereich erheblich reduziert. Hierdurch können auch größere Strukturen wie die in Kapitel 4.2.3 gezeigte Fettsäure-Synthetase abgebildet werden.

Eine deutliche Verbesserung bezüglich des Verlustes von Information über das Objekt kann mit Zach Phasenplatten erzielt werden. Die Zach Phasenplatte besteht aus einem Mikro-Koaxialkabel, das sehr nahe am Nullstrahl endet. Hierdurch kann ein elektrostatisches Potential ohne eine Ringelektrode erzeugt werden, die ein komplettes Ortsfrequenzband ausfiltert. Eine Zach Phasenplatte konnte in dieser Arbeit erstmals hergestellt und experimentell getestet werden. Hierbei konnte gezeigt werden, dass mit der neuen Phasenplatte eine konstante Phasenschiebung erzeugt werden kann und die Stärke der Phasenschiebung mit den aus Simulationen erwarteten Werten übereinstimmt.

In der mit beiden Phasenplatten untersuchten Schichtprobe (Kap. 4.2.2 und Kap. 5.3) wird der Vorteil des fehlenden Ringes direkt sichtbar: Inhomogenitäten im Bereich der aufgedampften Kohlenstoffschicht verschwinden beim Positionieren der Boersch Phasenplatte. In der Untersuchung mit der Zach Phasenplatte hingegen sind sie deutlich zu erkennen und mit hellem bzw. dunklem verstärkten Kontrast im Gegensatz zu den konventionellen Aufnahmen darzustellen. In mehreren Beispielen konnte eine Kontrastverbesserung mit variierender Phasenschiebung gezeigt werden.

Die Besonderheit des asymmetrischen Potentials der Zach Phasenplatte hat auf den ausgedehnten Nullstrahl kaum einen Effekt, wie in Kapitel 5.4 gezeigt werden konnte. Durch die asymmetrische relative Phasenschiebung der Elektronen kleinster Ortsfrequenzen in der

Nähe des Nullstrahls kann es jedoch bei bestimmten Kombinationen von Defokus und Phasenschiebung zu Hilbert-artigem plastischen Kontrasten kommen.

Wie auch bei der Boersch Phasenplatte kommt es bei der Zach Phasenplatte an der Spitze zur Kontamination durch Abscheidung von Restgasmolekülen, was die Haltbarkeitsdauer einschränkt. Die Zach Phasenplatte kann jedoch „recycelt“ werden, indem die Spitze mit der FIB leicht verkürzt oder nachpoliert wird. In jedem Fall ist eine Heizung der Phasenplatten zu empfehlen, wodurch die Kontamination verlangsamt wird.

In dieser Arbeit konnte auch erstmals eine neue Objektwellen Rekonstruktionsmethode experimentell getestet werden. Die hierfür benötigten drei Abbildungen unterschiedlicher Phasenschiebung wurden mit einer Zach Phasenplatte aufgenommen. Als Testprobe dienten Platin Nanopartikel, deren Phasenschiebung aus der rekonstruierten Wellenfunktion quantitativ bestimmt werden konnte.

Da bei dem neuen Verfahren nur drei Abbildungen benötigt werden, stellt es eine deutliche Verbesserung zur Defokusserien Rekonstruktion dar. Gegenüber der von Danev und Nagayama [2001,2] vorgeschlagenen Phasenplatten Rekonstruktionsmethode hat es mehrere Vorteile. Zum einen ist die Probe nicht auf ein schwaches Phasenobjekt eingeschränkt und zum anderen kann das Verfahren auch bei Proben mit nicht-linearer Bildentstehung angewendet werden.

7.2 Ausblick: Die komplett abschattungsfreie Phasenplatte

Bei der Idee der anamorphotischen Phasenplatte wird eine Phasenschiebung durch ein elektrostatisches Potential angestrebt, ohne dass die Elektronen in Kontakt mit einer Elektrodenstruktur kommen. Dies erfordert zwar eine zusätzliche Elektronenoptik, die ein gestauchtes Abbild der hinteren Brennebene erzeugt. Da solche anamorphotischen Ebenen jedoch in Korrektoren schon vorhanden sind, sollte eine Realisierung der entsprechenden Optik möglich sein.

Die Vorteile der anamorphotischen Phasenplatte sind offensichtlich. Es kommt zu keinem Verlust von Elektronen durch eine abschattende Struktur und die Kontamination der Phasenplatte wird vermutlich deutlich reduziert werden.

Daher ist zu hoffen, dass baldmöglichst ein Mikroskop mit entsprechender Optik zur Verfügung steht, damit die erfolgreich hergestellten Prototypen getestet werden können. Inzwischen sind Vorexperimente mit Doppel-Zach Phasenplatten geplant, deren Potential dem anamorphotischen Phasenplatten Potential im Zernike Modus sehr ähnelt.

Variablen und Konstanten

$(1-a(\mathbf{r}))$	Amplitudenfaktor der Austrittswelle
$A(\mathbf{u})$	Blendenfunktion
$B(\mathbf{u})$	Aberrationsfunktion
C_c	chromatische Aberrationskonstante
C_s	Öffnungsfehlerkonstante
$D(E)$	relativistischer Korrekturfaktor ($D(E) = 1,1$ für 120 keV Elektronen)
E	Elektronenenergie
e	Elektronenladung ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)
$E(\mathbf{u})$	Envelopenfunktion
E_0	Ruheenergie der Elektronen (511 keV)
$E_s(\mathbf{u})$	räumliche Einhüllende
$E_t(\mathbf{u})$	zeitliche Einhüllende
F	Brennweite der BPP
f	Brennweite der Objektivlinse
$f(\mathbf{r})$	Austrittswellenfunktion
$F(\mathbf{u})$	Fouriertransformierte der Austrittswellenfunktion
f_0	einfallende Welle / ungestreuter Wellenanteil der Austrittswelle
$f_g(\mathbf{r})$	gestreuter Anteil der Elektronen
$g(\mathbf{r})$	Bildfunktion
$G(\mathbf{u})$	Fouriertransformierte der Bildfunktion
$h(\mathbf{r})$	<i>point spread function</i>
$H(\mathbf{u})$	Wellentransferfunktion (WTF), Fouriertransformierte der <i>point spread function</i>
I	Strom
$I(\mathbf{r})$	Intensität einer Aufnahme
$I(\mathbf{u})$	Intensität des Diffraktogrammes
$I_{pp}(\mathbf{r})$	Intensität einer WPO-Aufnahme mit $\pi/2$ Phasenverschiebung
mag	eingestellte Mikroskopvergrößerung

p_{CCD}	Pixelgröße des CCD Chips
p_{mag}	Nachvergrößerung des Mikroskops
p_{size}	Pixelgröße eines Bildes
$\mathbf{r} = (x,y)$	Lateralkoordinaten
r_0	Radius der Objektivblende
r_a	äußerer Radius der Ringelektrodenstruktur einer BPP
r_i	Radius der inneren Öffnung einer BPP
r_R	Blendenradius der PP
r_{PP}	Auflösung für Scherzer-ähnlichen Defokus
r_{Sch}	Scherzerauflösung
t	Probendicke
t_i	Schichtdicken
U	Beschleunigungsspannung
u_0	Grenzfrequenz einer Objektivblende
u_a	Frequenz am äußeren Ringrand einer BPP
u_i	Frequenz am inneren Ringrand einer BPP
u_K	Kantenfrequenz bei der HPP
u_L	Frequenz am Lochrand der ZPP
u_N	Nyquestfrequenz
u_R	Frequenz am Rand der Objektivblende, bis zu der Kontrastübertrag möglich ist
u_{PP}	Grenzfrequenz beim 1. Nulldurchgang für Scherzer-ähnlichen Defokus
u_{Sch}	Grenzfrequenz beim 1. Nulldurchgang für Scherzerfokus
V_i	mittleres inneres Potential
Z	Defokus der Objektivlinse
Z_{PP}	Scherzer-ähnlicher Defokus für WPO-Aufnahmen mit $\pi/2$ Phasenschiebung
Z_{Sch}	Scherzerfokus
ΔE	Energiebreite der Elektronen
ΔI	Instabilität der Stromversorgung
ΔU	Instabilität der Spannungsversorgung
ΔZ	<i>defocus spread</i>

Φ_0	projiziertes elektrostatisches Potential
α	Semikonvergenzwinkel
$\chi(\mathbf{u})$	Wellenaberrationsfunktion
$\chi_{PP}(\mathbf{u})$	Wellenaberrationsfunktion mit Phasenplatte
$\phi(z)$	elektrostatisches Potential
ϕ_0	angelegte Spannung an der BPP
$\varphi(\mathbf{r})$	Phase der Austrittswelle
φ_{PP}	Phasenschiebung durch eine Phasenplatte
φ_{ZPP}	Phasenschiebung durch eine Zernike Phasenplatten
λ	Wellenlänge der Elektronen (3,35 pm für 120 kV Beschleunigungsspannung)
π	Kreiszahl (3,14)
$\rho(\mathbf{r},z)$	elektrostatisches Potential

Referenzen

- [Barton 2005] B. BARTON, Elektrostatische Phasenplatten für die Transmissionselektronenmikroskopie, *Diplomarbeit* (2005), Universität Heidelberg.
- [Barton 2008] B. BARTON, Development and Implementation of In-Focus Phase Contrast TEM for Materials and Life Sciences, *Dissertation* (2008), Universität Heidelberg.
- [Barton 2010] B. BARTON, K. SCHULTHEIB, M. MATIJEVIC, D. GERTHSEN, W. KÜHLBRANDT, Optimized In-focus Boersch Phase Contrast in a Dedicated TEM, *Abstract Microscopy and Microanalysis* (2010) Portland, USA.
- [Boersch 1947] H. BOERSCH, *Z. Naturforsch.* **2a** (1947) 615.
- [Cambie 2007] R. CAMBIE, K.H. DOWNING, D. TYPKE, R.M. GLAESER, JIAN JIN, *Ultramicroscopy* **107** (2007) 329.
- [Coene 1996] W.M.J. COENE, A. THUST, M. OP DE BEECK, D. VAN DYCK, *Ultramicroscopy* **64** (1996) 109.
- [Danev 2001, 1] R. DANEV, K. NAGAYAMA, *Ultramicroscopy* **88** (2001) 243.
- [Danev 2001, 2] R. DANEV, K. NAGAYAMA, *J. Phys. Soc. Jpn.* **70** (2001) 696.
- [Danev 2002] R. Danev, H. Okawara, N. Usuda, K. Kametani, K. Nagayama, *J. Biol. Phys.* **28** (2002) 627.
- [Danev 2004] R. DANEV, K. NAGAYAMA, *J. Phys. Soc. Jpn.* **73** (2004) 2718.
- [Danev 2008] R. DANEV, K. NAGAYAMA, *J. Struct. Biol.* **161** (2008) 211.
- [Danev 2009] R. DANEV, R.M. GLAESER, K. NAGAYAMA, *Ultramicroscopy* **109** (2009), 312.
- [Dries 2010] M. DRIES, K. SCHULTHEISS, B. GAMM, A. ROSENAUER, R.R. SCHROEDER, D. GERTHSEN, Object-wave reconstruction by carbon film-based Zernike- and Hilbert-phase plate Microscopy: A theoretical study not restricted to weak-phase objects, *Ultramicroscopy* (2010), submitted.

- [Frindt 2009] N. Frindt, Design and Imaging Properties of Isotropic and Anamorphic Electrostatic Phase Plates for the Transmission Electron Microscope, *Diplomarbeit* (2009), Universität Heidelberg.
- [Frindt 2010] N. FRINDT, K. SCHULTHEISS, B. GAMM, M. DRIES, J. ZACH, D. GERTHSEN, R.R. SCHRÖDER, The way to an ideal matter-free Zernike and Hilbert TEM phase plate: Anamorphic design and first experimental verification in isotropic optics, *Abstract Microscopy and Microanalysis* (2010) Portland, USA.
- [Gamm 2008] B. GAMM, K. SCHULTHEISS, D. GERTHSEN, R.R. SCHROEDER, *Ultramicroscopy* **108** (2008) 878.
- [Gamm 2010] B. GAMM, M. DRIES, K. SCHULTHEISS, H. BLANK, A. ROSENAUER, R.R. SCHRÖDER, D. GERTHSEN, Object Wave Reconstruction by Phase Plate Transmission Electron Microscopy, *Ultramicroscopy* (2010) in press, DOI: 10.1016/j.ultramic.2010.02.006.
- [Haider 1998, 1] M. HAIDER, H. ROSE, S. UHLEMANN, E. SCHWAN, B. KABIUS, K. URBAN, *Nature* **392** (1998) 768.
- [Haider 1998, 2] M. HAIDER, H. ROSE, S. UHLEMANN, E. SCHWAN, B. KABIUS, K. URBAN, *Ultramicroscopy* **75** (1998) 53.
- [Haider 1998, 3] M. HAIDER, H. ROSE, S. UHLEMANN, B. KABIUS, K. URBAN, *J. Electron Microsc.* **47** (1998) 395.
- [Koch 2008] C.T. KOCH, *Ultramicroscopy* **108** (2008) 141.
- [Lentzen 2004] M. LENTZEN, *Ultramicroscopy* **99** (2004) 211.
- [Lichte 1986] H. LICHTER, *Ultramicroscopy* **20** (1986) 293.
- [Majorovits 2002] E. MAJOROVITS, Assessing Phase Contrast Electron Microscopy with Electrostatic Boersch and Zernike-type Phase Plates, *Dissertation* (2002) Universität Heidelberg.
- [Majorovits 2007] E. MAJOROVITS, B. BARTON, K. SCHULTHEISS, F. PÉREZ-WILLARD, D. GERTHSEN, R.R. SCHRÖDER, *Ultramicroscopy* **107** (2007) 213.
- [Popescu 2007] R. POPESCU, E. MÜLLER, M. WANNER, D. GERTHSEN, *Phys. Rev. B* **76** (2007), 235411.

- [Potapov 2006] P. POTAPOV, H. LICHTÉ, J. VERBEECK, D. VAN DYCK, *Ultramicroscopy* **106** (2006), 1012.
- [Rose 1990] H. ROSE, *Optik* **85** (1990) 19.
- [Sauter 2004] Sauter S., Schwab C. Randelementmethoden, Teubner, Wiesbaden, 2004.
- [Scherzer 1949] O. SCHERZER, *J. Appl. Phys.* **20** (1949) 20.
- [Schröder 2007] R.R. SCHRÖDER, B. BARTON, H. ROSE, G. BENNER, *Proceedings. Microscopy Conference (2007)* 8.
- [Schultheiß 2005] K. SCHULTHEIß, Herstellung einer Boersch-Phasenplatte zur Erzeugung von Phasenkontrast in der Transmissionselektronenmikroskopie, *Diplomarbeit* (2005) Universität Karlsruhe (TH).
- [Schultheiß 2006] K. SCHULTHEIß, F. PÉREZ-WILLARD, B. BARTON, D. GERTHSEN, R.R. SCHROEDER, *Rev. Sci. Instr.* **77** (2006) 033701.
- [Schultheiß 2010] K. SCHULTHEIß, J. ZACH, B. GAMM, M. DRIES, N. FRINDT, R.R. SCHRÖDER, D. GERTHSEN, New electrostatic phase plate for phase-contrast transmission electron microscopy and its application for wave-function reconstruction, *Microscopy and Microanalysis* (2010), *Microsc. Microanal.*, submitted.
- [Shiue 2009] J. SHIUE, C.-S. CHANG, S.-H. HUANG, C.-H. HSU, J.-S. TSAI, W.H. CHANG, Y.-M. WU, Y.-C. LIN, P.-C. KUO, Y.-S. HUANG, Y. HWU, J.-J. KAI, F.-G. TSENG, F.-R. CHEN, *J. Electron Microsc.* **58** (2009), 137.
- [Thust 1996] A. THUST, W.M.J. COENE, M. OP DE BEECK, D. VAN DYCK, *Ultramicroscopy* **64** (1996) 211.
- [Tonomura 1982] A. TONOMURA, T. MATSUDA, H. TANABE, N. OSAKABE, J. ENDO, A. FUKUHARA, K. SHINAGAWA, H. FUJIWARA, *Phys. Rev. B* **25** (1982) 6799.
- [Urban 1999] K. URBAN, B. KABIUS, M. HAIDER, H. ROSE, *J. Electron Microsc.* **48** (1999) 821.
- [Wanner 2006] M. WANNER, D. BACH, D. GERTHSEN, R. WERNER, B. TESCHE, *Ultramicroscopy* **106** (2006), 341.
- [Williams 1996] D. B. WILLIAMS AND C. B. CARTER, *Transmission Electron Microscopy*, Plenum, New York, 1996.

- [Zach Patent] J. ZACH, patent pending: WO/2008/061603, PCT/EP2007/009289.
- [Zernike 1934] F. ZERNIKE, *Z. Phys.* **36** (1934) 848.

Danksagung

Zuerst möchte ich mich sehr herzlich bei Frau Gerthsen und Rasmus Schröder bedanken, die die Herausforderung dieses spannenden neuen Themengebiets der Phasenplatten angenommen und mir damit diese Arbeit ermöglicht haben. Mit der Betreuung war ich sehr zufrieden, da es immer Gelegenheit für Diskussionen von alten Problemen und neuen Ideen gab.

Vielen Dank an Björn Gamm! Durch seine neugierige und herausfordernde Art entstanden viele letztendlich sehr konstruktive Diskussionen und Ideen. Danke auch für das Korrekturlesen der Arbeit!

Bedanken möchte ich mich auch bei meinen anderen PP-Gruppenmitgliedern Manuel Dries, Nicole Frindt und Bastian Barton für die immer gute Zusammenarbeit!

Ein besonderes Dankeschön an Herrn Foutouhi, der uns eine Einweisung in die Arbeit am Transmissionselektronenmikroskop gegeben hat und bei Problemen immer sehr freundlich und hilfsbereit zur Stelle war, auch wenn er schweren Herzens mit ansehen musste, wie wir immer wieder am 912er „rumschraubten“.

Einen herzlichen Dank an Joachim Zach, Maximilian Haider und Harald Rose für das Interesse an der Arbeit und die Diskussionen zu der Realisierung von Zach Phasenplatten und den ersten Ergebnissen!

Für die Bereitstellung und Präparation der vielen TEM-Proben bedanke ich mich recht herzlich bei allen Beteiligten! Dies waren Manuel Dries, Holger Blank, Eric Prestat, Daniel Weissenberger, Marina Pfaff, Do vom LTI, Patricia Donnadiou von SIMAP in Grenoble, Erich Müller, Frau Kalhöfer, Heike Störmer und Bastian Barton, vielen Dank!

Ich möchte mich bei allen Lemmingen bedanken für das gute Arbeitsklima in der Gruppe, besonders auch bei Frau Sauter für Ihre Hilfsbereitschaft und freundliche Art!

Ein Dankeschön auch an die Heidelberger Gruppe am Bioquant für die Gastfreundschaft und Unterstützung bei der Arbeit dort.

Zum Schluss möchte ich meinem lieben Mann David für alles danken, ganz besonders aber für die unglaubliche Unterstützung in den letzten Monaten! Danke auch an meine Familie und Freunde!