
**TRANSMISSIONS-
RÖNTGENMIKROSKOPIE
MIT LABORQUELLEN
IM HARTEN RÖNTGENBEREICH**

DISSERTATION

vorgelegt von

Master of Science

Stefan Baumbach

geb. Dickl

aus Hutthurm

von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften der
Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Ingenieurwissenschaften
- Dr.-Ing. -

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Norbert Esser
Erstgutachterin: Prof. Dr. Birgit Kanngießer
Zweitgutachter: Prof. Dr. Thomas Wilhein

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 13.06.2016

Berlin 2016

Für Steffie und Leni

Kurzfassung

Ziel dieser Doktorarbeit ist ein Transmissions-Röntgenmikroskop mit Laborquellen für den harten Röntgenbereich zu entwickeln. Mit einem neuartigen Beleuchtungsverfahren, hebt sich dieses Mikroskop von den existierenden Transmissionsmikroskopen für harte Röntgenstrahlung ab. Die mit den etablierten Projektionsmikroskopen im harten Röntgenbereich erreichbare Auflösung von etwa einem Mikrometer, wird mit diesem Mikroskop deutlich verbessert.

Als Lichtquellen werden Mikrofokusröhren mit stationärem Target, bzw. einem flüssigen Metalltarget (charakteristische Strahlung bei 8,05 keV bzw. 9,25 keV) verwendet. Das Mikroskop benutzt einen neuartigen Röntgenkondensator - eine Polykapillaroptik - als Beleuchtungsapparat. Mit dieser Optik ist es möglich die Probe auf köhler-ähnliche Weise und damit homogen zu beleuchten. Weiterhin haben die hier verwendeten Kondensatorsysteme eine höhere numerische Apertur als das Objektiv. Somit ist neben der Hellfeld- auch die Dunkelfeldbildgebung möglich. Als Objektiv wird eine Zonenplatte aus Wolfram verwendet. Dazu werden zwei Mittenstop-Konzepte realisiert die ein Objektfeld von 30 μm , bzw. 50 μm ermöglichen. Mit der Kombination aus geeigneten Kondensoreigenschaften und dem Mittenstopkonzept wird zum ersten Mal die Dunkelfeldbildgebung mit einem Labor-Transmissionsmikroskop mit harter Röntgenstrahlung realisiert. Das Detektionssystem ist ein Röntgen-CCD mit hoher Effizienz. Das Mikroskop in seiner derzeitigen Konfiguration ist detektor-limitiert. Es wird eine Auflösung von etwa 200 nm in beiden bildgebenden Verfahren erzielt. Im Vergleich zum Hellfeldmodus wird im Dunkelfeldmodus die selbe Auflösung mit deutlich geringerer Vergrößerung und kürzerer Belichtungszeit erreicht. Im Verlauf dieser Arbeit wird die Entwicklung und die Charakterisierung aller verwendeten Komponenten beschrieben. Die Anwendbarkeit des Mikroskops wird anhand der Lokalisierung von Osteozyten-Lakunen in Hühnerknochen demonstriert.

Abstract

The aim of this thesis is the development of a transmission x-ray microscope with laboratory sources in the hard x-ray region. This microscope differs from existing transmission hard x-ray microscopes due to a novel illumination method. The resolution of the well established projection microscopes in the hard x-ray region is in the micro meter scale, which has been clearly enlarged with this setup.

As x-ray sources, micro focus tubes with a stationary target and a liquid-metall target (characteristic line at 8,05 keV and 9,25 keV respectively) are used. The microscope uses a novel x-ray condenser - a poly capillary - as illumination device. With this kind of optic, one is able to illuminate the sample in a Köhler-like way and therefore homogeneously. In addition, the condenser systems supply a higher numerical aperture than the objective lens. This leads to the possibility for dark-field imaging. The objective lens is a tungsten zone plate and two central stop concepts have been realized. This enables an object field of view of 30 μm and of 50 μm accordingly. The combination of condenser properties and with a suitable central stop concept leads for the first time to dark-field imaging in the lab with a transmission hard x-ray microscope. The detector system is a high efficient x-ray CCD. The microscope in current configuration is detector-limited. A resolution of about 200 nm is achieved in both imaging modes. Compared to bright-field imaging, dark-field imaging enables the same resolution power at much lower magnification and shorter exposure time. Within this work, the development of the microscope and the characterisation of all used components is described. The applicability of the microscope is demonstrated with the localisation of osteocyte-lacunae in chicken bone.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	iii
Abbildungsverzeichnis	vii
Tabellenverzeichnis	xiii
Nomenklatur	xv
1 Einleitung und Motivation	1
2 Grundlagen der Röntgenmikroskopie	7
2.1 Transmissions-Röntgenmikroskopie	7
2.1.1 Bildentstehung im Mikroskop	8
2.1.2 Kontrast und Auflösung	9
2.1.3 Hell- und Dunkelfeldmikroskopie	11
2.2 Erzeugung von harter Röntgenstrahlung mit Laborquellen	12
2.3 Wechselwirkung von Röntgenphotonen mit Materie	14
2.3.1 Brechungsindex, Phasenschub, Absorption	15
2.4 Optische Elemente	16
2.4.1 Zonenplatten	17
2.4.2 Polykapillaroptiken	19
3 Detektoren für Röntgenstrahlung	23
3.1 Ortsaufgelöste Detektoren	23
3.1.1 Röntgen-CCDs	23
3.1.2 Lumineszenzschirme	25
3.1.3 Dynamik, Effizienz, Rauschen, Auflösung	26
3.2 Energieaufgelöste Detektoren	27
3.3 Verwendete Detektoren	28
3.3.1 Detektor-Charakterisierung	29
4 Laborröntgenquellen	31
4.1 Elektronenkanone	32
4.2 Elektronenoptik	33
4.3 Mikrofokale Röntgenquelle iMOXS	34
4.3.1 Röntgenspektrum des Kupfertargets	35

4.3.2	Quellgröße	37
4.4	Mikrofokus Flüssig-Metall-Jet Röntgenquelle Excillum	38
4.4.1	Röntgenspektrum des Gallium-Indium Jets	39
4.4.2	Quellgrößen	42
4.5	Vergleich: iMOXS - Excillum Metall-Jet	43
5	Zonenplatte als Mikroskopobjektiv	45
5.1	Beugungswirkungsgrad	46
5.2	Herstellungsprozess	48
5.3	Daten der Zonenplatte	49
5.4	Monochromasie-Kriterium	50
5.5	Charakterisierung	52
6	Der Beleuchtungsapparat des Mikroskops	57
6.1	Der ideale Kondensator	58
6.2	Vorberechnungen	59
6.3	Kondensator-Charakterisierung	60
6.3.1	Spotgröße	60
6.3.2	Beleuchtungskanal und numerische Apertur	62
6.3.3	Energiefilter	63
6.3.4	Transmission und Intensitäts-Gain	64
6.3.5	Brillanz	66
6.3.6	Köhler-ähnliche Beleuchtungsgeometrie	67
6.4	Mittenstopkonzepte	68
6.4.1	Projektionsgeometrie	69
6.4.2	Lochkamerageometrie	70
6.5	Zusammenfassung	73
7	Das Labor-Transmissionsmikroskop für harte Röntgenstrahlung am BLiX	75
7.1	Überblick	75
7.2	Justagestrategie	77
7.3	Kondensatorvergleich	80
7.3.1	Objektausleuchtung	81
7.4	Nickelfolie als spektraler Filter	85
7.5	Bestimmung des linearen Absorptionskoeffizienten von Eisen	87
7.6	Auflösungsvermögen im Hellfeld	88
7.7	Auflösungsvermögen im Dunkelfeld	99
7.8	Abbildungsfehler	101
7.9	Vergleich: iMOXS - Excillum Metall-Jet	102
8	Detektion von Osteozyten-Lakunen in Hühnerknochen	105
8.1	Knochenaufbau	105
8.2	Fragestellungen	107
8.3	Ergebnisse	108
8.4	Vergleich mit Projektionsaufnahmen	109

9 Zusammenfassung und Diskussion	111
A Numerische Simulation propagierender Wellenfelder	115
Literaturverzeichnis	117

Abbildungsverzeichnis

2.1.1	Schematische Darstellung eines TXM.	7
2.1.2	Bildentstehung nach Abbe im 4f-Aufbau.	8
2.1.3	Schematische Darstellung eines Mikroskops in a) Hellfeld- und b) Dunkelfeldkonfiguration.	12
2.2.1	Schematische Darstellung eines Röntgenspektrums mit Bremsstrahlung und charakteristischen Linien.	13
2.4.1	Schematische Darstellung einer Zonenplatte in Front- und Seitenansicht.	17
2.4.2	Darstellung der Totalreflexion bei streifendem Einfall an der Grenzfläche zwischen Vakuum mit dem Brechungsindex n_1 und einem Medium mit dem Brechungsindex n_2 . Totalreflexion tritt unterhalb des kritischen Winkels auf.	20
2.4.3	Schematische Darstellung des Intensitätstransports mittels mehrfacher äußerer Totalreflexion an einer gebogenen Glaskapillare nach [18].	20
2.4.4	Schematische Darstellung einer Polykapillaroptik mit den charakteristischen Werten f_1 , L , f_2 , D_{in} und D_{out} . <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].</i>	22
3.1.1	Schematische Zeichnung eines MOS-Bauteils.	24
3.3.1	Foto der Princeton Instruments PI-LCX-1300 Röntgen-CCD-Kamera.	28
3.3.2	Detektoren für Charakterisierungsmessungen. a) Hamamatsu Flatpanel Szintillator, b) Amptek Si-PIN Photodiode, c) Phosphor-CCD-Detektorsystem.	29
3.3.3	Ergebnisse der Auflösungsmessung am Detektorsystem Phosphor-CCD mit zugehörigem Bildkontrast K . Linienbreiten: a) 12,5 μm , b) 7,5 μm , c) 5 μm und d) 3 μm	30
4.1.1	Links: Fermi-Dirac-Verteilung bei unterschiedlichen Temperaturen. Rechts: Stromdichte für Wolfram und LaB_6 bei steigender Temperatur. Berechnet nach Formel 4.1.	33
4.3.1	Foto der iMOXS Röntgenquelle.	34
4.3.2	Schematische Darstellung der iMOXS-Röntgenquelle.	34
4.3.3	Röntgenspektrum der Kupferanode.	35

4.3.4	Links: Gemessene charakteristische K_α - und K_β -Linienstrahlung von Kupfer bei steigender Beschleunigungsspannung U und jeweils maximal möglichem Filamentstrom. Rechts: Summe aller Photonen in der K_α -Linie bei steigender Beschleunigungsspannung U im Vergleich mit Werten aus [44].	36
4.3.5	Schema der Kantenprojektion zur Quellgrößenbestimmung.	37
4.3.6	Quellgrößenmessung an der iMOXS-Quelle. Links: Projektionsbild einer Kante zur Abschätzung der Quellgröße in x-Richtung. Vergrößerung: 11-fach. Rechts: Intensitätsverlauf der Kante bei unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen.	37
4.3.7	Quellgrößenmessung an der iMOXS-Quelle. Links: Projektionsbild einer Kante zur Abschätzung der Quellgröße in y-Richtung. Vergrößerung: 11-fach. Rechts: Intensitätsverlauf der Kante bei unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen.	38
4.4.1	Foto der Excillum Metall-Jet Röntgenquelle.	39
4.4.2	Schematische Darstellung der Flüssig-Metall-Jet Röntgenquelle Excillum.	40
4.4.3	Anregungsspektrum des Gallium/Indium Flüssig-Metall-Jets.	41
4.4.4	Links: Gallium K_α - und K_β -Linienintensität bei unterschiedlichen Position des Elektronenstrahls mit einem $80\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ Linienfokus. Rechts: Gallium K_α -Intensität in Ph/sek/W/ μsr bei verschiedenen z-Positionen des Elektronenstrahls. Gemessene Werte (blau) und Vergleichswerte des Herstellers (rot).	41
4.4.5	Projektion einer Kante zur Abschätzung der Quellgröße in x-Richtung und y-Richtung. Elektronenstrahlposition Links: $0\ \mu\text{m}$. Rechts: $60\ \mu\text{m}$. Man beachte die unterschiedliche Breite des vertikalen Kantenübergangs in den Bildern.	42
4.4.6	Quellgrößenabschätzung an der vertikalen Kante. Links: Kantenübergang bei verschiedenen z-Positionen des Elektronenstrahls. Rechts: Gemessene Quellgröße nach der 90/10-Methode am Kantenübergang.	42
4.4.7	Quellgrößenabschätzung an der horizontalen Kante. Links: Kantenübergang bei verschiedenen z-Positionen des Elektronenstrahls. Rechts: Gemessene Quellgröße nach der 90/10-Methode am Kantenübergang.	43
5.1.1	Theoretischer Beugungswirkungsgrad mit steigender Zonenhöhe einer Wolfram Zonenplatte bei 8 keV. Links: Isolierte Darstellungen für jeweils den absorbierenden Teil (rot) und den phasenschiebenden Teil (blau) des Brechungsindex. Rechts: Kombination aus Absorptions- und Phasenterm. Berechnet nach Formel 5.1.	46
5.1.2	BWG von Wolfram und Gold bei einer Zonenhöhe von $1\ \mu\text{m}$ zwischen 100 eV und 20 keV. Berechnet nach Formel 5.1.	47
5.2.1	Herstellungsprozess einer Zonenplatte mit hohem Aspektverhältnis mittels drei-fachem Maskenübertrag. Beschreibung im Fließtext.	48
5.4.1	Graphische Darstellung der unterschiedlichen Bildweiten b_1 und b_2 für die K_{α_1} - und K_{α_2} -Energien bei gleicher Gegenstandsweite g	50

5.4.2	Unterschied der Bildweite zwischen K_{α_1} - und K_{α_2} -Linie bei festen Abbildungsparametern (Abbildungsmaßstab, Gegenstandsweite) für die K_{α_1} -Strahlung.	51
5.5.1	Beugungseigenschaften der Zonenplatte bei a) 8,05 keV und b) 9,25 keV Photonenenergie.	53
5.5.2	Links: Point-Spread-Funktion (PSF) der Zonenplatte bzw. das Airy-Scheibchen. Rechts: zugehöriger Linienplot.	54
5.5.3	Links: Kontrast-Transfer-Funktion der Zonenplatte. Rechts: zugehöriger Linienplot. Im Linienplot ist neben den Simulationsdaten (blau) die theoretische CTF bei vollständig räumlich kohärenter Beleuchtung (rot) dargestellt.	54
6.3.1	a) Fokus von PKO-A für 8–9 keV Photonenenergie. b) Linienplot in x-Richtung. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	61
6.3.2	a) Fokus von PKO-B für 8–9 keV Photonenenergie. b) Linienplot in x-Richtung. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	61
6.3.3	Intensitätsverlauf des Fokuskanals in z-Richtung für PKO-A. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	62
6.3.4	Intensitätsverlauf des Fokuskanals in z-Richtung für PKO-B. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	62
6.3.5	Beleuchtungskegel von a) Kondensator PKO-A, Abstand zum Spot 478 mm und b) Kondensator PKO-B, Abstand zum Spot 702 mm. . .	63
6.3.6	Spektrale Verteilung am Kondensorausgang bei 50 kV, 40 kV und 30 kV Beschleunigungsspannung. Links: PKO-A Rechts: PKO-B . .	64
6.3.7	Schematische Darstellung der Transmissionsmessung einer Polykapillaroptik.	65
6.3.8	Intensität am Ausgang von Kondensator PKO-B bei Verschiebung des Elektronenstrahls gegenüber dem Metall-Jet.	67
6.3.9	Schematische Darstellung der lokalen Divergenz Θ und globalen Konvergenz α einer Polykapillaroptik.	68
6.4.1	Beleuchtungsstrahlengang im Mikroskop mit MS-Projektionsgeometrie. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	69
6.4.2	Schattenwurf des Mittenstops in der Projektionsgeometrie und Bild eines Goldgitters mit 1500 Linien/inch.	71
6.4.3	Beleuchtungsstrahlengang im Mikroskop mit MS-Lochkamerageometrie. Der Mittenstop (MS) ist am Kapillarausgang montiert. Das Pinhole nahe des Objekts erzeugt ein vergrößertes Abbild des MS auf dem Detektor mittels Lochkameraprinzip. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	71

6.4.4	a) Lochkameraabbildung des Mittenstops am Kondensorausgang. b) Von der Zonenplatte erzeugtes 110-fach vergrößertes Abbild eines Goldgitters im Schatten des Mittenstops. Die Skala in a) ist nur für die Lochkameraabbildung und in b) nur für die Zonenplattenabbildung gültig.	73
6.4.5	Foto des Mittenstops für a) Hellfeld und b) Dunkelfeld.	73
7.1.1	Foto des Mikroskops	76
7.2.1	Aufbau zur Vorjustage.	78
7.2.2	Justagehalter der Kondensoroptik.	78
7.2.3	Strahlkegel des Kondensors während der Justage von a) dejustiert bis d) justiert.	79
7.2.4	Strahlkegel des Kondensors mit 50 μm Pinhole nahe des Kondensorspots an leicht unterschiedlichen x- und y-Positionen des Pinholes.	79
7.2.5	Oben: Mittenstop in Lochkamerageometrie. Abbildung der Mittenstops bei a) geringer Bildweite und b) hoher Bildweite. Unten: Mittenstop in Projektionsgeometrie. Schattenwurf der Zonenplatten-Mittenstop-Einheit bei a) geringer Bildweite, b) hoher Bildweite.	80
7.3.1	Flatfeldaufnahmen mit PKO-A bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen und jeweils maximalen Röhrenströmen, Belichtungszeit 20 min. Röntgenquelle iMOXS. a) 50 kV (30 W), b) 40 kV (28 W), c) 30 kV (18 W), d) 20 kV (8 W).	81
7.3.2	Flatfeldaufnahmen mit PKO-B bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen und jeweils maximalen Röhrenströmen, Belichtungszeit 20 min. Röntgenquelle iMOXS. a) 50 kV (30 W), b) 40 kV (28 W), c) 30 kV (18 W), d) 20 kV (8 W).	82
7.3.3	Mittlere Intensität der Flat-Field-Aufnahmen aus Abbildung 7.3.1 und 7.3.2 für Kondensator PKO-A und PKO-B.	83
7.4.1	Transmission einer 15 μm dünnen Nickelfolie im Bereich 6 keV bis 10 keV. Daten von http://www.cxro.lbl.gov/	85
7.4.2	Aufnahmen eines Goldgitters mit 2000 LP/inch bei 8 keV. 171-fache Vergrößerung, Belichtungszeit 20 min, a) ohne und b) mit Nickelfilter. SNR=13 in a) und SNR=10 in b).	86
7.4.3	Linienplots zu Abbildung 7.4.2 a) (blau) und b) (rot) gemittelt über 25 Linien (gestrichelte Box). Kontrast in a) 60%, in b) 67%.	86
7.5.1	Aufnahmen von Eisenkügelchen $\leq 10 \mu\text{m}$ bei 8 keV. Vergrößerung: 120-fach, effektive Pixelgröße: 167 nm Belichtungszeit: 60 min. An den nummerierten Pfeilen wird die Messung des linearen Absorptionskoeffizienten durchgeführt. Werte dazu befinden sich in Tabelle 7.5.1.	87
7.6.1	Faltung einer Objektkante mit der PSF der Zonenplatte.	89
7.6.2	a) Objektkante mit stufenförmigen Verlauf. b) Bildkante nach Faltung mit der Zonenplatten-PSF. Der 10/90-Kantenübergang entspricht, im Rahmen der Simulationsauflösung der PSF, dem Auflösungsvermögen der Zonenplatte.	90

7.6.3	REM-Aufnahmen der in dieser Arbeit verwendeten Testobjekte. Siemensstern mit a) 128, b) 64, c) 32 Speichen und d) Logo des <i>Institute for X-Optics</i> an der Hochschule Koblenz. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Dr. Pambos Charalambous (www.zoneplates.com)</i>	91
7.6.4	9,25 keV-Röntgenaufnahmen: a) Siemensstern aus Abbildung 7.6.3 c). b) Logo des Institute for X-Optics der Hochschule Koblenz. Vergrößerung: 120-fach, Belichtungszeit: a) 90 min, b) 30 min, effektive Pixelgröße: 167 nm, verwendeter Kondensator: PKO-B.	92
7.6.5	9,25 keV-Röntgenbild eines Goldgitters mit 1500 LP/inch. Vergrößerung: 118-fach, Belichtungszeit: 1000 sek, effektive Pixelgröße: 169 nm, verwendeter Kondensator: PKO-B.	93
7.6.6	Linienplots 1 - 4 zu den markierten Bereichen in Abbildung 7.6.5, jeweils inklusive 10/90-Kantenübergang.	93
7.6.7	8 keV-Röntgenbild des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 c). Vergrößerung: a) 115-fach, b) 120-fach, Belichtungszeit: 60 min, effektive Pixelgröße: a) 174 nm, b) 166 nm, verwendeter Kondensator: a) PKO-B, b) PKO-A, Bildfeld: 30 μm	94
7.6.8	Linienplots 1 - 4 zu den markierten Bereichen in Abbildung 7.6.7, jeweils inklusive 10/90-Kantenübergang.	95
7.6.9	8 keV-Röntgenbild des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 b). Vergrößerung: 260-fach, Belichtungszeit: 400 min, effektive Pixelgröße: 77 nm, verwendeter Kondensator: PKO-A, Bildfeld: 30 μm . Der vergrößerte Ausschnitt zeigt die Mitte des Siemenssterns. An den markierten Bereichen wird die Kantenmethode durchgeführt. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	95
7.6.10	Linienplots 1 - 3 zu den markierten Bereichen in Abbildung 7.6.9 und Linienplot 4 aus dem vergrößerten Bereich aus Abbildung 7.6.11, jeweils inklusive 10/90-Kantenübergang.	96
7.6.11	8 keV-Röntgenbild des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 a). Vergrößerung: 260-fach, Belichtungszeit: 380 min, effektive Pixelgröße: 77 nm, verwendeter Kondensator: PKO-A, Bildfeld: 30 μm . In der schwarzen Box des vergrößerten Ausschnitt wird die Kantenmethode durchgeführt. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	96
7.6.12	a) und c): Linienplots über mehrere Perioden mit 1230 bzw. 352 nm Strukturgröße. b) und d): Zugehörige Fouriertransformationen in Raumfrequenzdarstellung.	97
7.6.13	Kontrast-Transferfunktion des Labormikroskops bei 260-fachen Vergrößerung und detektor-limitierter Auflösung.	97
7.7.1	8 keV-Dunkelfeldbilder der Siemenssterne aus Abbildung 7.6.3 b) und c). Vergrößerung: 136-fach, Belichtungszeit: 90 min, effektive Pixelgröße: 147 nm, verwendeter Kondensator: PKO-B. Abbildung b) <i>Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics</i> [10].	99

7.7.2	Betrag der Fouriertransformierten der Röntgenbilder des Siemenssterns mit 64 Speichen in a) Hellfeld- und b) Dunkelfeld-Modus mit jeweils gleicher effektiver Pixelgröße.	100
7.8.1	a) REM-Aufnahme der konzentrischen Kreise. <i>Mit freundlicher Genehmigung von Dr. Pambos Charalambous (www.zoneplates.com).</i> b) 8,05 keV-Röntgenbild, Vergrößerung: 120-fach, Belichtungszeit: 60 min, effektive Pixelgröße: 167 nm, verwendeter Kondensator: PKO-A.	102
7.9.1	a) 9,25 keV Röntgenbild eines 1500 LP/inch Goldgitters, Belichtungszeit: 1000 sek. b) 8,05 keV Röntgenbild eines 2000 LP/inch Goldgitters, Belichtungszeit: 960 sek. In beiden Aufnahmen wird Kondensator PKO-B und die MS-Lochkamerageometrie verwendet. In der schwarzen Box wird jeweils das SNR bestimmt.	103
7.9.2	Das Signal-Rausch-Verhältnis (SNR) als Funktion der Belichtungszeit, für quasi identische Aufnahmen mit der iMOXS- bzw. Excillum-Quelle.	103
8.1.1	Aufbau eines Röhrenknochens. <i>Bild mit freundlicher Genehmigung erhalten von U.S. National Cancer Institute's Surveillance, Epidemiology and End Results (SEER, http://training.seer.cancer.gov) 2016. In der Abbildung wurden die englischen Bezeichnungen der Knochenteile ins Deutsche übersetzt.</i>	106
8.3.1	Röntgenbilder der 50 µm dünnen Hühnerknochen. Pfeile zeigen auf Osteozyten-Lakunen. Aufgenommen mit dem Transmissions-Mikroskop bei 9,25 keV. Vergrößerung: 45-fach, effektive Pixelgröße: 444 nm, Belichtungszeit: 90 min.	108
8.4.1	Projektions-Röntgenbilder der 50 µm dünnen Hühnerknochen. Rechts: Gesamtaufnahme, Vergrößerung: 120-fach, effektive Pixelgröße: 417 nm, Belichtungszeit: 10 min. Links: Vergrößerte Ausschnitte (50 µm × 50 µm) aus den schwarz umrandeten Bereichen.	110

Tabellenverzeichnis

3.1.1	Standard Phosphor-Typen und deren Charakteristika.	25
3.3.1	Daten der verwendeten Detektoren.	30
4.3.1	Technische Daten der iMOXS-Röntgenquelle laut Hersteller.	35
4.3.2	Energien und Linienbreiten (FWHM) der K_α - und K_β -Linien von Kupfer [32, 33].	36
4.4.1	Energien und Linienbreiten (FWHM) der K_α - und K_β -Linien von Gallium und Indium [58, 102].	40
4.4.2	Technische Daten der Excillum-Röntgenquelle laut Hersteller.	43
4.5.1	Brillanzvergleich unterschiedlicher Röntgenröhrentypen. Die Werte für Stationäres Target und Flüssig-Metall-Jet entsprechen den gemessenen Werten für die iMOXS und Excillum-Quelle in den K_α -Linien. Die Werte für die rotierende Anode stammen aus [108].	44
5.3.1	Daten der verwendeten Zonenplatte.	49
5.3.2	Brennweite, DOF und NA der Zonenplatte für 8,05 und 9,25 keV.	50
6.2.1	Berechnungen zur Leistungsabschätzung einer Polykapillaroptik als Röntgen-Kondensator.	60
6.3.1	Transmissionswerte T von PKO-A und PKO-B bei 8,05 keV und 8,9 keV	65
6.3.2	Brillanz der Kondensoren PKO-A und PKO-B.	66
6.5.1	Charakteristische Werte von Kondensator PKO-A und PKO-B.	74
6.5.2	Mittenstop- und Objektfeld-Parameter für die Lochkamerageometrie.	74
7.3.1	Beleuchtungscontrast von Kondensator PKO-A und PKO-B bei unterschiedlicher Röhrenspannung (Röhrenleistung).	82
7.5.1	Ergebnisse zur Bestimmung des linearen Absorptionskoeffizienten von Eisen bei 8,05 keV.	88
7.6.1	Zusammenfassung der Auflösungsmessungen im Hellfeld.	98
7.8.1	Durchmesserbestimmung der innersten fünf Kreise aus Abbildung 7.8.1 b) an verschiedenen Winkelpositionen. Alle Längenangaben in μm	102

Nomenklatur

ASPW	Angular Spektrum of Plane Waves
AV	Aspektverhältnis
BliX	Berlin Laboratory for Innovative X-ray Technologies
BWG	Beugungswirkungsgrad
CCD	Charged Coupled Device
CMOS	Complementary Metal-Oxid-Semiconductor
CT	Computertomograph
CTF	Kontrast-Transferfunktion
DOF	Schärfentiefe
DPC	Differentieller Phasenkontrast
DQE	Detective Quantum Efficiency
EUV	Extrem Ultraviolett
FIB	Fokussierter Ionenstrahl
FWHM	Full Width at Half Maximum
IFG	Institute for Scientific Instruments GmbH
IXO	Institute for X-Optics
LaB ₆	Lanthanhexaborid
LP	Linienpaare
MCP	Micro-Channel-Plate
MOS	Metal-Oxid-Semiconductor
MS	Mittenstop
NA	Numerische Apertur
OLCN	Osteozyten-Lakunen-Canaliculi-Netzwerk
PIN	Positive-Intrinsic-Negative
PKO	Polykapillaroptik
PMMA	Polymethylmethacrylat
PSF	Punkt-Spreiz-Funktion
REM	Raster-Elektronenmikroskop
RIE	Reaktives Ionen Ätzen
SNR	Signal-Rausch-Verhältnis
SOFC	Solid Oxid Fuel Cell
STED	Stimulated Emission Depletion
STXM	Scanning-Transmissions-Röntgenmikroskop
TEM	Transmissions-Elektronenmikroskop
TXM	Transmissions-Röntgenmikroskop
XANES	X-ray Absorption Near Edge Spectrometry

Kapitel 1

Einleitung und Motivation

Das wichtigste optische Instrument ist unser Auge. Doch nur mit Hilfe der kontinuierlichen Bildverarbeitung des Gehirns, können wir uns im Raum orientieren, Gegenstände erkennen oder Entfernungen schätzen. Aufgrund der Fähigkeit der Akkommodation sind wir in der Lage, sowohl sehr weit entfernte Objekte, als auch sehr nahe gelegene Gegenstände zu betrachten. Dazu ändert sich der Krümmungsradius unserer Linse, je nach dem unter welchen Sehwinkel das Objekt betrachtet wird. Je näher man sich am Gegenstand befindet, umso größer ist der Sehwinkel und umso feinere Details können noch unterschieden werden. Bei einem durchschnittlichen Erwachsenen beträgt der minimale Abstand, bei dem ein Objekt mit entspanntem Auge betrachtet werden kann, in etwa 250 mm [41]. In dieser Entfernung können zwei Punkte mit einem Abstand von ca. 75 μm noch getrennt voneinander wahrgenommen werden [82]. Die Detailerkennbarkeit hängt zusätzlich stark vom Objektkontrast und von der Lichtsituation ab. Ohne optische Hilfsmittel ist es uns nicht möglich, beliebig kleine Objekte zu sehen. Das einfachste Hilfsmittel ist eine Lupe, also eine Sammellinse. Befindet sich der Gegenstand in einem Abstand kleiner als die Brennweite von der Linse entfernt, so entsteht ein vergrößertes, virtuelles Bild, das mit dem Auge betrachtet werden kann. Die Lupe erhöht dabei den Sehwinkel auf das Objekt und damit auch die Detailerkennbarkeit. Eine deutlich bessere Auflösung kann mit Hilfe eines Mikroskops realisiert werden.

Ein klassisches Lichtmikroskop basiert auf einer Vergrößerung in zwei Stufen [41]. Die Probe wird zunächst von einer Sammellinse abgebildet. Das Objekt befindet sich in einem Abstand größer als die Brennweite, jedoch kleiner als die doppelte Brennweite von der Linse und das erzeugte Abbild ist vergrößert und reell. Dieses Bild wird mit einer Lupe (dem Okular) ein weiteres Mal vergrößert. Das nun virtuelle Bild kann mit dem Auge betrachtet werden. Ein Mikroskop besitzt neben diesen Hauptkomponenten zusätzliche Optiken, die eine gezielte Beleuchtung der Probe ermöglichen und dadurch die Qualität der Abbildung verbessern. Diese Optikeinheit wird als Kondensator bezeichnet und besteht im einfachsten Fall aus einer Sammellinse, die die Lichtquelle in die Objektebene abbildet. In einem verbesserten Verfahren besteht die Beleuchtungseinheit aus einem Satz von Linsen, um eine gleichmäßigere Probenbeleuchtung zu erzielen. Eine homogene Objektbeleuchtung ist notwendig, da schon geringe Intensitätsschwankungen bei der Betrachtung des

mikroskopischen Bildes, störend wirken. Zusätzlich muss sichergestellt sein, dass eine hohe Photonendichte auf dem Objekt vorherrscht. Doch auch in einem Mikroskop ist die Auflösungsleistung begrenzt. Zunächst bestimmt die Optik der ersten Vergrößerungsstufe, das Objektiv, die Abbildungsqualität. Selbst bei nahezu perfekten, lichtstarken Linsen, ist das auflösungsbegrenzende Element das Licht selbst. Das Abbe-Limit besagt, dass die Auflösung in einem Mikroskop durch die Wellenlänge des verwendeten Lichts bestimmt wird und im Größenbereich der halben Wellenlänge liegt¹. Das System ist in diesem Fall beugungsbegrenzt. Dieser Theorie folgend, kann man mit Röntgenstrahlung, aufgrund der sehr kurzen Wellenlänge, eine höhere Auflösung erzielen als mit sichtbarem Licht. Der Bereich des elektromagnetischen Spektrums, der als Röntgenlicht bezeichnet wird, ist relativ groß. Man unterscheidet zwischen Extrem-Ultravioletter Strahlung (EUV), der sog. weichen und der harten Röntgenstrahlung. Genaue Grenzen gibt es dabei nicht und die Übergänge zwischen diesen Bereichen sind fließend. Die Silizium L-Absorptionskante liegt bspw. im EUV-Bereich bei 12,5 nm bzw. 99 eV, die Kohlenstoff K-Absorptionskante befindet sich im Übergang zwischen EUV- und weicher Röntgenstrahlung bei 4,37 nm bzw. 284 eV, wohingegen z.B. die Kupfer K-Absorptionskante bei 0,138 nm bzw. 8,98 keV im Bereich harter Röntgenstrahlung liegt [6]. Eine weitere Möglichkeit der hochauflösenden Bildgebung findet man in der Elektronenmikroskopie (Raster-Elektronen-Mikroskopie, REM und Transmissions-Elektronen-Mikroskopie, TEM). Aufgrund der extrem kurzen de-Broglie Wellenlänge von Elektronen bei sehr hohen Spannungen, wird mit solchen Mikroskopen eine Auflösungen in atomarer Größenordnung erzielt. Röntgenstrahlen haben gegenüber sichtbarem Licht und einem REM den Vorteil, dass sie Materie durchdringen können und somit ein Blick ins innere der Probe ermöglicht wird. Dies ist zwar auch in einem TEM möglich, die Probe darf, aufgrund der geringen Eindringtiefe der Elektronen, nur wenige 100 nm dick sein. Die Objektpräparation ist somit sehr aufwändig und nicht alle Objekte sind dafür geeignet. Die Mikroskopie mit Röntgenstrahlung findet sich in der Auflösungsleistung zwischen der klassischen Lichtmikroskopie und der Elektronenmikroskopie wieder. Die Auflösung ist besser als in einem konventionellen Lichtmikroskop und im Gegensatz zu REM oder TEM, können dicke und auch nasse Proben untersucht werden [88].

Ein Transmissions-Röntgenmikroskop (TXM) gleicht in seinem prinzipiellen Aufbau einem Transmissionsmikroskop für sichtbares Licht. Eine Kondensor-Optik sammelt das Licht der Quelle, beleuchtet das zu untersuchende Objekt und das dahinter liegende Objektiv bildet die Probe vergrößert ab. Da das menschliche Auge vollständig unempfindlich gegenüber Röntgenstrahlung ist, fällt hier die zweite Stufe der Vergrößerung durch das Okular weg und die Abbildung des Objekts erfolgt direkt auf einem zweidimensionalen Detektor. Das Fehlen der Nachvergrößerung durch ein Okular erfordert daher eine deutlich höhere Vergrößerung, als es in einem Mikroskop für sichtbares Licht erforderlich ist. Die Vergrößerung wird nur durch das Objektiv bestimmt. In der Röntgenmikroskopie ist dies eine diffraktive Optik, die sog. Zonenplatte. Dieses konzentrische Kreisgitter mit zum Rand hin kleiner

¹Die sog. STED-Mikroskopie (*engl.: Stimulated Emission Depletion*) erzielt eine Auflösung die deutlich kleiner ist als die verwendete Wellenlänge des Lichts [45].)

werdender Gitterkonstante erfüllt die Abbildungsgleichung und agiert als Linse.

Eine ausschlaggebende Komponente im Mikroskop ist das Kondensorsystem und muss an die Gegebenheiten der Röntgenquelle angepasst sein. Aufgrund des sehr intensiven und schmalbandigen Lichts von Synchrotronanlagen existieren dort viele TXM, denn die Mikroskopie fordert einen hohen Photonenfluss durch die Probe. Bezogen auf das Kondensorsystem ist der dort sehr häufig vorhandene hohe Grad an räumlicher Kohärenz eher nachteilig, da eine derartige Beleuchtung eine beugungsbegrenzte Abbildung der Quelle mit sich zieht. Der Kondensortspot sollte eine Größe von etwa 20 - 50 μm Durchmesser besitzen, da die zu untersuchenden Proben in der Regel diese Größe besitzen. Das Problem der zu hohen räumlichen Kohärenz kann mit einem sog. Gitter-Kondensor umgangen werden [110, 112]. Am National Synchrotron Research Center in Taiwan wird ein TXM bei einer Photonenenergie zwischen 8 und 11 keV betrieben. Das eingesetzte Kondensorsystem ist eine Monokapillare, die das Licht auf die Probe fokussiert [101]. Am Göttinger Röntgenmikroskop wird eine Kondensor-Zonenplatte eingesetzt [88]. Aufgrund der enormen Strahlungsleistung von Synchrotronanlagen, sind sehr hohe Auflösungen möglich. Es können Objektdetails bis zu einer Größe von 10 nm visualisiert werden [24]. Aufgrund der hohen Eindringtiefe in Materie von harter Röntgenstrahlung ist es schwieriger, geeignete Materialien für Kondensoren und Zonenplatten zu finden. Trotzdem ist auch die Röntgenbildgebung im harten Röntgenbereich sehr weit fortgeschritten und Synchrotron-Mikroskope erzielen eine 2D-Auflösung von 40 nm [27] oder sogar weniger als 30 nm [26, 119] und eine 3D-Auflösung in tomographischen Aufnahmen nahe 60 nm [120]. Der einzige Nachteil dieser Mikroskope ist die eingeschränkte Verfügbarkeit. Um an diesen Geräten Untersuchungen durchführen zu dürfen, muss ein langwieriges und kompliziertes Antragsverfahren durchlaufen werden. Dabei ist nicht garantiert, ob eine Forschergruppe die Erlaubnis erhält, für eine bestimmte Zeit an einem Synchrotron-Mikroskop arbeiten zu können. Falls eine Gruppe eine Strahlzeit zugewiesen bekommt, steht man unter Druck, das Experiment innerhalb eines sehr kurzen Zeitfensters erfolgreich abzuarbeiten. Bei eventuellen Problemen, Komplikationen oder Misserfolgen muss das Antragsverfahren erneut durchlaufen werden.

TXM für den weichen Röntgenbereich im Labor haben sich bereits seit den frühen 1990er Jahren etabliert, da die erforderlichen Photonenzahlen durch Laser-Plasma-Quellen oder Gasentladungslampen erreichbar sind. Auch dort sind Auflösungen nahe dem theoretischen Limit der Zonenplatte erreicht worden [12, 55, 91]. Die Belichtungszeiten sind zwar nicht so kurz wie an Synchrotronstrahlquellen, man bewegt sich trotzdem im Bereich weniger Minuten [61]. Gerade das Wasserfenster (der Wellenlängenbereich zwischen 2,3 nm und 4,4 nm) ist sehr attraktiv, da es bestens zur Untersuchung biologischer Proben in deren natürlichen Umgebung geeignet ist. An diesen Röntgenquellen werden meist Zonenplatten oder Multi-Layer-Spiegel als Kondensoren eingesetzt. Die Entwicklung solcher Labormikroskope ist bereits so weit fortgeschritten, dass empfindliche Proben mit Hilfe der Kryotechnik schockgefroren und in dieser Umgebung auch mikroskopiert werden können. Dadurch lässt sich ebenfalls die Dosis und somit die Strahlenbelastung reduzieren. Tomographische Aufnahmen sind ebenfalls möglich [14, 47].

Da harte Röntgenstrahlung eine höhere Eindringtiefe in Materie besitzt, kann man in diesem Wellenlängenbereich deutlich dickere Proben untersuchen als im EUV- oder weichen Röntgenbereich. Schwere Elemente können durchleuchtet werden und z.B. technische oder geologische Objekte liegen im Anwendungsbereich der harten Röntgenstrahlung. Die etablierten Labormikroskope im harten Röntgenbereich sind sog. Projektionsmikroskope. Sie werden mit Mikrofokus-Röntgenröhren betrieben und arbeiten ohne abbildende Optiken. Ein solches System besteht aus einer sehr kleinen, punktförmigen Quelle und einem Röntgendetektor. Zwischen diesen beiden Komponenten wird die zu untersuchende Probe platziert und abhängig vom Abstand Quelle-Objekt und Objekt-Detektor ein vergrößerter Schattenwurf des Objekts am Detektor registriert [43]. Mit diesem System kann auf vergleichsweise einfache Art die Phasenkontrastbildung umgesetzt werden [66]. Wird zusätzlich die tomographische Bildgebung implementiert, so werden diese Systeme als Mikro-Computertomographen (Mikro-CT's) bezeichnet. Die Auflösung dieser Mikroskope ist im Wesentlichen durch die Größe der Röntgenquelle bestimmt. Aus einer rein geometrischen Betrachtung wird deutlich, dass Strukturen kleiner als die Röntgenquelle nicht scharf abgebildet werden können. Die Herstellung von Röntgenröhren mit sehr kleinen Quellgrößen ist jedoch mit viel ingenieur-technischem Aufwand verbunden. Außerdem ist der Photonenfluss der Quelle bei kleinen Spots niedrig, da zu hohe Röhrenströme auf einer kleinen Quellfläche das Targetmaterial schmelzen würden. Eine technisch noch relativ gut realisierbare Quellgröße liegt in besten Fall bei ca. $1\ \mu\text{m}$ und somit auch die maximale Auflösung. Zwar gibt es eine Möglichkeit die Auflösung eines Projektionsmikroskops verbessern [11], bessere Auflösungen können jedoch mit Hilfe von Transmissionsmikroskopen mit einer Zonenplatte als Objektivlinse realisiert werden. Die einzige bekannte Firma die zur Zeit TXM's im harten Röntgenbereich für eine Laborumgebung herstellt, ist die Firma Zeiss-Xradia. Sie verwenden eine leistungsstarke Röntgenröhre mit rotierender Anode, eine Zonenplatte als Mikroobjektiv und einen hochauflösenden Röntgendetektor [105]. Das Kondensorsystem ist eine elliptisch geformte Monokapillare aus Glas [123]. Der Vorteil dieses Kondensors ist der sehr hohe Wirkungsgrad von ca. 80%. Nachteilig ist, dass eine elliptisch geformte Optik dem Abbildungsgesetz gehorcht und die Röntgenquelle in die Objektebene abbildet. Mögliche Unregelmäßigkeiten in der Intensitätsverteilung werden ebenfalls transferiert und eine ungleichmäßige Objektbeleuchtung ist die Folge. Ein weiterer Nachteil von Monokapillaren ist die extreme Empfindlichkeit gegenüber Positionsänderungen. Schon ein relativ geringer Versatz der Optik bzgl. der Quelle führt zu Abbildungsfehlern. Die von Monokapillaren erzeugte Hohlkegelbeleuchtung erschwert zusätzlich die Positionsbestimmung bei dejustierter Optik. Nichtsdestotrotz besitzt dieses Labormikroskop eine sehr gute räumliche Auflösung von etwa $50\ \text{nm}$ und ist ebenfalls in der Lage, tomographische Aufnahmen zu erstellen. Wegen der ähnlichen Auflösungsleistung dieses TXM (im Vergleich zu denen an Synchrotroneinrichtungen), ist die Anschaffung mit enormen Kosten verbunden und viele Universitäten oder Forschergruppen können dieses Gerät finanziell nicht stemmen.

Diese Doktorarbeit hat das Ziel, ein Transmissions-Röntgenmikroskop mit Laborquellen für den harten Röntgenbereich zu entwickeln. Mit Mikrofokus-Rönt-

genröhren, einem neuartigen Beleuchtungskonzept, einer hochauflösenden Zonenplatte aus Wolfram und einer benutzerfreundlichen Bedienung, hebt sich dieses Röntgenmikroskop von den bisher verfügbaren Labormikroskopen in diesem Wellenlängenbereich ab. Ein geeigneter Ort für ein solches Mikroskop ist das BLiX (Berlin Laboratory for innovative X-ray Technologie) in Berlin. Dort ist bereits ein TXM für das Wasserfenster fester Bestandteil der Einrichtung [93]. Das hier entwickelte Mikroskop soll das schon bestehende ergänzen und erweitert die Untersuchungsmöglichkeiten aufgrund des Unterschieds in der Photonenenergie. Als Röntgenquellen stehen einerseits eine 30 W-Röhre mit stationärem Target (Kupfer, 8,05 keV) und andererseits eine 200 W-Röhre mit einem flüssigen Metall-Jet als Target (Gallium, 9,25 keV) zur Verfügung. Ein wichtiges Merkmal des Mikroskops ist ein neuer Röntgenkondensator, eine Polykapillaroptik [9]. Polykapillaroptiken können Röntgenstrahlung sammeln und an einem bestimmten Ort mit hoher Intensität bündeln. Da sie nicht in der Lage sind, ein Bild eines Objekts nach dem Abbildungsgesetz zu erzeugen und zusätzlich sogar eine köhler-ähnliche Beleuchtungsgeometrie aufweisen, verspricht man sich eine gleichmäßige Objektbeleuchtung. Da Polykapillaroptiken meist eine höhere numerische Apertur als Zonenplatten besitzen, könnte es möglich sein, verschiedene bildgebende Verfahren mit einem einzigen Kondensator zu implementieren. Neben der klassischen Hellfeldbildgebung sollte damit die Dunkelfeldmikroskopie in einer Laborumgebung möglich sein. Diese Art der Bildgebung ermöglicht es, leichte Elemente oder auch sehr dünne Proben mit ausreichend Kontrast abzubilden. In dieser Arbeit wird nach den Grundlagen der Röntgenmikroskopie (Kapitel 2) die gesamte Entwicklungsphase sowie die Charakterisierung der einzelnen Komponenten (Kapitel 3 - 6) beschrieben und die Leistungsfähigkeit des Mikroskops anhand von Testobjekten (Gitter, Siemenssterne) dargestellt (Kapitel 7). In Kapitel 8 wird die Anwendbarkeit des Mikroskops demonstriert. Fragmente eines Hühnerknochens werden mit dem Ziel untersucht, die Osteozyten-Lakunen zu lokalisieren.

Kapitel 2

Grundlagen der Röntgenmikroskopie

Zur Vorbereitung auf das in dieser Doktorarbeit entwickelte Mikroskop behandelt dieses Kapitel einige grundlegende Zusammenhänge der Mikroskopie, die Entstehung von Röntgenstrahlung und deren Wechselwirkung mit Materie. Das Kapitel schließt mit einer theoretischen Betrachtung von optischen Elementen für den Röntgenbereich.

2.1 Transmissions-Röntgenmikroskopie

Ein Transmissions-Röntgenmikroskop (TXM) gleicht in seinem prinzipiellen Aufbau einem Mikroskop für sichtbares Licht. Dabei wird in seiner Art und Weise zunächst nicht unterschieden ob es sich um ein Labormikroskop oder ein Synchrotron-Mikroskop handelt. In der Betrachtung der einzelnen Komponenten und speziell im Beleuchtungssystem, dem Kondensator, muss darin sehr wohl unterschieden werden. Der grundlegende Aufbau eines solchen optischen Instruments ist in Abbildung 2.1.1 schematisch dargestellt. Die wesentlichen Komponenten des Mikroskops sind: Rönt-

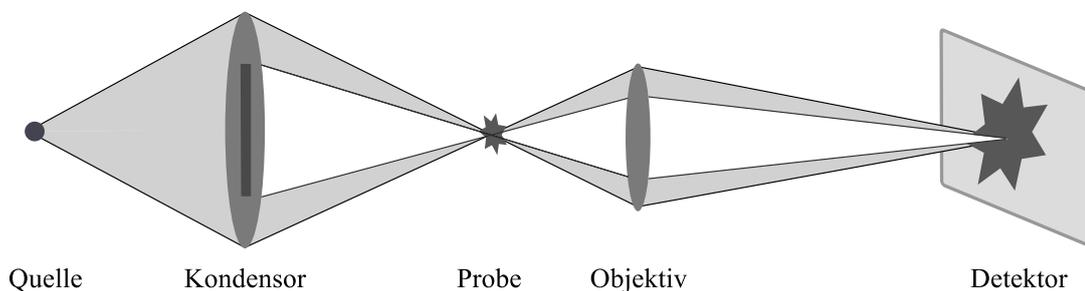


Abbildung 2.1.1: Schematische Darstellung eines TXM.

genquelle, Beleuchtungssystem, Objektiv und Detektor. Das Beleuchtungssystem hat die Aufgabe, so viel Licht wie möglich aus der Quelle zu sammeln und auf dem zu untersuchenden Objekt erneut zu fokussieren. Die Objektbeleuchtung soll dabei möglichst homogen sein. Zusätzlich wird das Auflösungsvermögen des Objektivs

verbessert, wenn die Probe aus unterschiedlichen Winkeln beleuchtet wird [6]. Um eine Abbildung der Probe auf einem zwei-dimensionalen Detektor zu erhalten, muss das durch das Objekt transmittierte Licht auf das Objektiv treffen. Das Objektiv erzeugt ein vergrößertes Bild der Probe nach dem Abbildungsgesetz auf der Kamera. Das analoge Bild wird dadurch digitalisiert und kann zu jedem beliebigen Zeitpunkt erneut betrachtet und analysiert werden. Ein wesentlicher Unterschied zu einem Transmissionsmikroskop für sichtbares Licht ist die Verwendung eines sog. Mittenstops (in Abbildung 2.1.1 innerhalb des Kondensors dargestellt). Ein sehr gut geeignetes Objektiv im Röntgenbereich ist eine diffraktive Linse. Die dabei auftretende nullte Beugungsordnung muss jedoch geblockt werden, da diese das eigentliche Bild der Probe aufgrund ihrer hohen Intensität überstrahlen würde. Der Mittenstop erzeugt dazu einen Schatten auf dem Detektor. Innerhalb dieses Schattens projiziert das Objektiv das vergrößerte Abbild des Objekts und das so entstandene Bild ist nun frei von unerwünschter Hintergrundintensität. Ein weiterer Unterschied ist das Fehlen eines Okulars. Im klassischen Lichtmikroskop wird damit das reelle Zwischenbild vergrößert mit dem Auge betrachtet. Aufgrund der vollständigen Unempfindlichkeit des menschlichen Auges gegenüber Röntgenstrahlung, muss das reelle Bild mit hoher Vergrößerung auf einem Röntgen-Detektor abgebildet werden. Erst durch die anschließende Darstellung auf einem Bildschirm kann das Röntgenbild betrachtet werden. Im weiteren Verlauf dieses Abschnitts wird die Bildentstehung im Mikroskop anhand der Abbe'schen Theorie erläutert und anschließend auf die Kontrast-Transferfunktion (CTF) und die Auflösung des abbildenden Systems eingegangen.

2.1.1 Bildentstehung im Mikroskop

In „*Die Lehre von der Bildentstehung im Mikroskop*“ beschreibt Ernst Abbe erstmals den Zusammenhang zwischen Bildentstehung und Auflösung im Mikroskop [1, 20]. Er behandelt das abzubildende Objekt als eine Ansammlung von beugenden Gittern. Anhand eines einfachen einzelnen Gitters wird im Folgenden seine Theorie dargestellt. Abbildung 2.1.2 zeigt den sog. 4f-Aufbau. Ein Gitter mit der Gitterperiode g steht in der objektseitigen Brennweite der ersten Linse und wird mit ebenen

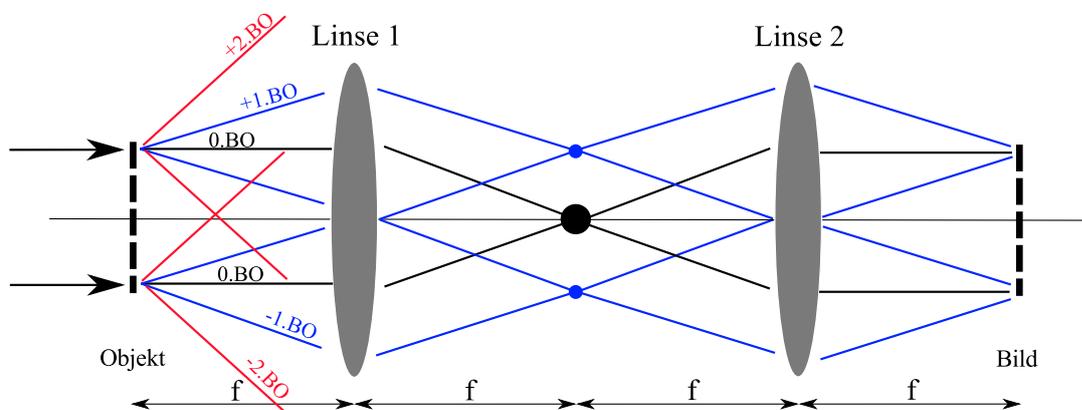


Abbildung 2.1.2: Bildentstehung nach Abbe im 4f-Aufbau.

Wellen beleuchtet. Dadurch entstehen neben der nullten Beugungsordnung höhere Ordnungen m unter einem Winkel α_m entsprechend der Bedingung:

$$\sin \alpha_m = \frac{m\lambda}{g}, \quad (2.1)$$

m repräsentiert dabei die verschiedenen Beugungsordnungen und λ die Wellenlänge. Die Ordnungen, die von Linse 1 erfasst werden, werden in die hintere Brennebene der Linse transformiert. Diese Ebene ist die Fourierebene¹ der Linse und man findet dort das Fraunhofer-Beugungsmuster des beleuchteten Objekts. Dort befinden sich nun einzelne Punktquellen, die durch Linse 2 zurück in ebene Wellenfronten transformiert werden. Am Bildort überlagern sich nach Formel 2.1 diese Wellenfronten und erzeugen ein Gitter mit der Gitterkonstanten g (das Bild des Objekts im Maßstab 1:1). Anders ausgedrückt, ist das von einem optischen System erzeugte Bild, die Fouriertransformierte der Fouriertransformierten des Objekts. Linse 1 transformiert das Objekt in den Frequenzraum und Linse 2 führt eine Rücktransformation in den Ortsraum durch. Aufgrund der anschaulichen Darstellung wird diese Tatsache anhand zweier Linsen verdeutlicht. All diese Überlegungen gelten ebenso für eine einzelne Linse. Abbildung 2.1.2 beinhaltet zusätzlich die zweite Beugungsordnung, welche aufgrund des größeren Winkels von Linse 1 nicht erfasst werden kann. Die zugehörige Raumfrequenzdarstellung fehlt in der Fourierebene und somit ebenfalls im Bild des Objekts. Da eine Linse aufgrund ihrer endlichen Ausdehnung nicht alle am Objekt gebeugten Wellen erfassen kann, ist die Abbildung eines Objekts durch jegliche Art optischer Systeme nie perfekt.

2.1.2 Kontrast und Auflösung

Obige Überlegungen führen nun zu der Frage, wie die Abbildungsqualität eines optischen Systems charakterisiert werden kann. In der Signaltheorie im Allgemeinen werden Systeme mit der sog. Impulsantwort-Funktion beschrieben. Diese Funktion ist die Antwort des Systems auf einen Dirac-Impuls. Für optische Systeme entspricht ein Dirac-Impuls einer unendlich kleinen und unendlich hellen Punktquelle. Nach [42] lässt sich das Bild eines inkohärent beleuchteten Objekts durch ein beugungsbegrenztes System (ohne Abbildungsfehler) über ein Faltungsintegral beschreiben:

$$I_b(u, v) = \iint_{-\infty}^{+\infty} |h(u - \xi, v - \eta)|^2 I_g(\xi, \eta) d\xi d\eta \quad (2.2)$$

$$h(u, v) = \frac{A}{\lambda z_i} \iint_{-\infty}^{+\infty} P(x, y) e^{-j \frac{2\pi}{\lambda z_i} (ux + vy)} dx dy. \quad (2.3)$$

Die Terme I_b und I_g beschreiben die Intensitätsverteilung in der Bild- bzw. in der Objektebene. $|h(u, v)|^2$ stellt die Intensitäts-Impulsantwort dar. Die Variablen u

¹Bei Beleuchtung mit ebenen Wellen ist die Brennebene zugleich die Fourierebene der Linse. Allgemeiner ausgedrückt lässt sich dieser Zusammenhang folgendermaßen beschreiben: Die Fourierebene einer Linse ist in der Regel in der Ebene in der sich das Bild der Quelle befindet [42].

und v , bzw. ξ und η , entsprechen den Bild- bzw. Objektkoordinaten. Die Pupillenfunktion der Linse wird durch $P(x, y)$ beschrieben. Bei genauerer Betrachtung von Formel 2.3 wird deutlich, dass die Intensitäts-Impulsantwort das Betrags-Quadrat der Fouriertransformierten der Pupillenfunktion der Linse ist. Sie ist das Fraunhofer-Beugungsmuster der Pupillenfunktion und in den meisten Fällen die Airy-Funktion. Jeder Objektpunkt findet sich somit im Bild als Airy-Scheibchen wieder. Die Impulsantwort wird oft als *Punkt-Spreiz-Funktion* (PSF) bezeichnet, da sie ausdrückt, in welchem Maß die Systemantwort von einem Dirac-Impuls abweicht. Somit lässt sich die Intensitätsverteilung in der Bildebene durch eine Faltung der Objektintensität mit der PSF beschreiben:

$$I_b = PSF * I_g \quad (2.4)$$

Für optische Instrumente ist es nützlich zu wissen, mit welchem Kontrast einzelne Raumfrequenzen übertragen werden. Der Begriff der Raumfrequenz lässt sich sehr gut über Abbildung 2.1.2 beschreiben. Raumfrequenzen f werden in der Einheit $[m^{-1}]$ dargestellt. Die Nebenmaxima (blau) ($+f$ und $-f$) in der Fourierebene in Abbildung 2.1.2 repräsentieren die Gitterperiode des beugenden Objekts in der ersten Beugungsordnung. Die Raumfrequenz eines sinus-förmigen Gitters entspricht $1/g$. Ein Gitter mit einer kleineren Periode würde Nebenmaxima erzeugen, die weiter von der optischen Achse entfernt sind und stellt somit eine höhere Raumfrequenz dar. Ein beliebiges Objekt kann als gewichtete Überlagerung von Gittern unterschiedlicher Gitterkonstante und Orientierung beschrieben werden. Im Fourierspektrum des Objekts findet man alle darin vorhandenen Raumfrequenzen wieder. Für die Mikroskopie ist entscheidend, mit welchem Kontrast (bzw. welcher Qualität) die einzelnen Raumfrequenzen des Objekts durch das optische System ins Bild übertragen werden. Der Kontrast K ist durch die minimale und maximale Intensität definiert als:

$$K = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (2.5)$$

Die sog. Kontrast-Transferfunktion stellt den Bildkontrast für jede Raumfrequenz dar und ist definiert als:

$$CTF = \mathcal{F} \{PSF\} \quad (2.6)$$

Das Operator \mathcal{F} symbolisiert die Fouriertransformation.

Mit oben beschriebenem Ansatz kann das gesamte optische System charakterisiert werden. Dazu sind Testobjekte mit optimalem Objektkontrast ($K = 1$) notwendig. Im Röntgenbereich ist dessen Herstellung jedoch kaum möglich, siehe Abschnitt 7.6. Eine sehr weit verbreitete Methode, ein optisches System zu charakterisieren, ist das sog. Rayleigh-Kriterium. Es besagt, dass zwei zueinander räumlich inkohärente Punkte genau dann im Bild noch aufgelöst werden können, wenn das Minimum der ersten Airy-Scheibe im Maximum der zweiten Airy-Scheibe liegt. Der Abstand δ der beiden Maxima beträgt in diesem Fall genau die erste Nullstelle einer Airy-Funktion und lässt sich nach Formel 2.7 berechnen:

$$\delta = 0,61 \frac{\lambda}{NA}. \quad (2.7)$$

Dabei entspricht der Term NA der numerischen Apertur der abbildenden Optik:

$$NA = n \cdot \sin(\alpha). \quad (2.8)$$

Der Winkel α stellt den halben Öffnungswinkel der Linse im Medium mit dem Brechungsindex n dar. Dieses Kriterium ist ein sehr guter Anhaltspunkt für das Auflösungsvermögen des Systems. Aus dem Rayleigh-Kriterium ist erkennbar, dass neben der verwendeten Wellenlänge die numerische Apertur der Optik das Auflösungsvermögen des Systems bestimmt. Das Rayleigh-Kriterium findet man in der CTF bei der Raumfrequenz die noch mit 10% Kontrast abgebildet wird [92].

2.1.3 Hell- und Dunkelfeldmikroskopie

Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden zwei bildgebende Verfahren umgesetzt: Hellfeld- und Dunkelfeldmikroskopie. Der Unterschied dieser beider Methoden liegt in der Art und Weise der Beleuchtung.

In einem Hellfeldmikroskop beleuchtet der Kondensator zunächst das Objekt. Die NA des Kondensators ist idealerweise so gewählt, dass sie der NA des Objektivs entspricht oder eine leicht größere NA aufweist [20]. Sowohl das durch die Probe transmittierte Licht, als auch das am Objekt gestreute Licht, trifft auf die Objektivlinse. Aufgrund der Dämpfung des Lichts an verschiedenen Objektpunkten (im einfachsten Fall durch ein absorbierendes Objekt) entsteht ein ortsabhängiger Kontrast im Bild und dadurch ein Abbild der Probe. Auch ohne Objekt erzeugt das Objektiv ein Bild der Objektbeleuchtung. Der Hintergrund ist daher hell und aus diesem Grund wird diese Art der Bildgebung als Hellfeldmikroskopie bezeichnet.

Bei der Dunkelfeldbildgebung muss die NA des Kondensators größer als die der abbildenden Linse sein. Zusätzlich muss durch geeignete Ringblenden oder Strahlblocker sichergestellt sein, dass kein direktes Licht von der Beleuchtungsoptik auf die Objektivlinse fällt. Nun trifft ausschließlich das am Objekt gestreute Licht auf die Linse. Objektkanten oder ein steiler Übergang zwischen verschiedenen Materialien mit unterschiedlichen Brechungsindizes werden durch eine helle Umrandung abgebildet. Da ohne streuendes Objekt kein Licht auf die Linse fällt, ist der Hintergrund dieser Methode dunkel. Daher die Bezeichnung Dunkelfeldmikroskopie. Dieses Verfahren gleicht einem Hochpassfilter, da nur hohe Raumfrequenzen in der Abbildung berücksichtigt werden.

Abbildung 2.1.3 zeigt schematisch beide Verfahren. Im Hellfeldmodus tragen auch die gestreuten Photonen zur Abbildung bei. Die Hintergrundbeleuchtung ist jedoch deutlich heller und überstrahlen das gestreute Licht im Vergleich zum Dunkelfeldmodus. In Kapitel 7 wird das hier entwickelte Mikroskop in beiden bildgebenden Verfahren vorgestellt und hinsichtlich der erzielbaren Auflösung gegenübergestellt.

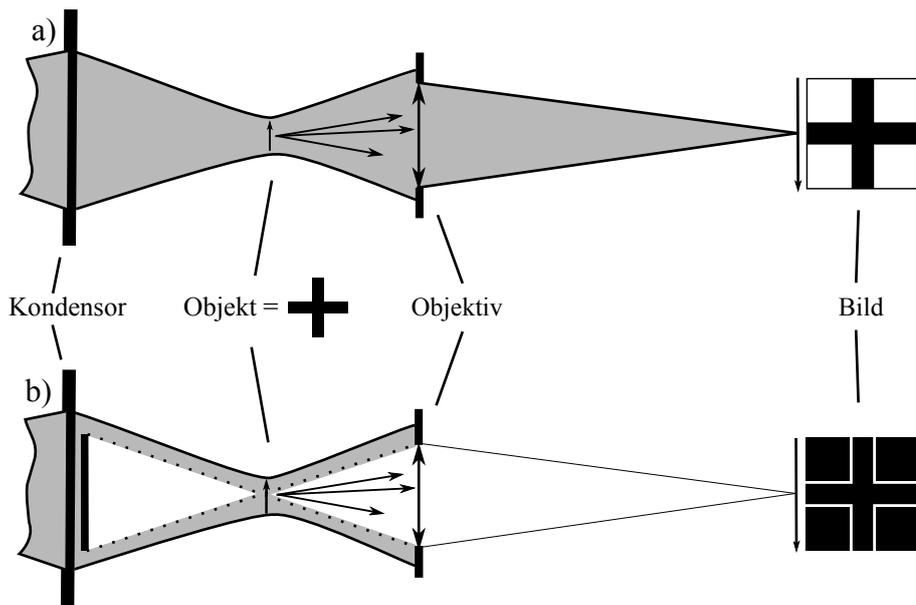


Abbildung 2.1.3: Schematische Darstellung eines Mikroskops in a) Hellfeld- und b) Dunkelfeldkonfiguration.

2.2 Erzeugung von harter Röntgenstrahlung mit Laborquellen

Dieser Abschnitt beschreibt die Erzeugung von Röntgenstrahlung durch eine Röntgenröhre anhand von Absorptions- und Emissionsprozessen. Der Aufbau einer Röntgenröhre beschränkt sich im Wesentlichen auf eine Kathode (Elektronenquelle) und eine Anode (Elektronentarget) in einer Vakuumumgebung. Die Elektronen aus der Kathode werden beschleunigt, treffen auf das Target und erzeugen in den Atomen des Targets elektromagnetische Strahlung. Es wird dabei zwischen charakteristischer Strahlung und Bremsstrahlung unterschieden.

Trifft ein einfallendes Elektron aus der Kathode (Primärelektron) mit ausreichender Energie auf ein gebundenes Elektron im Atom, so kann das Atom ionisiert werden. Um diesen Ionisierungsprozess zu ermöglichen, muss die kinetische Energie des Primärelektrons mindestens so groß sein wie die Bindungsenergie des Elektrons. Eine nun freie Stelle im Atom wird von einem Elektron eines höheren Energieniveaus wieder besetzt. Quantenmechanisch betrachtet oszilliert das Elektron beim Übergang in ein anderes Energieniveau zwischen Ausgangs- und Endzustand für eine bestimmte Zeit Δt [6]. Die Frequenz ν dieser Oszillation ist dabei proportional zur Energiedifferenz ΔE zwischen Ausgangs- und Endzustand und das erzeugte Wellenpaket besitzt genau diese Frequenz. Der Energieunterschied wird von der Kernladungszahl Z des Atoms bestimmt somit vom Anodenmaterial und wird als charakteristische Strahlung bezeichnet. Die Breite dieser Linienstrahlung hängt von der Dauer des Übergangs zwischen den beiden Energiezuständen ab. Je länger der Übergang andauert, umso länger ist das emittierte Wellenpaket und umso schmaler ist die Linienbreite, bzw. umso monochromatischer ist die Strahlung [6]. Die charakteristischen Linien

sind z.B. die K_α - und K_β -Linien. Bei den Linien der K-Serie werden die Elektronenlöcher des 1s-Orbitals nach den Auswahlregeln der Quantenmechanik von einem Elektron einer anderen Schale befüllt. Die K_{α_1} - und die K_{α_2} -Linie werden durch den Übergang eines Elektrons aus dem $2p_{3/2}$ - bzw. aus dem $2p_{1/2}$ -Orbital erzeugt. Der Elektronenübergang von der M-Schale erzeugt die K_β -Linien [33]. Neben den charakteristischen Linien wird in einer Röntgenröhre die sog. Bremsstrahlung erzeugt. Treffen die Primärelektronen auf das Targetmaterial, so erfahren diese beim Durchgang durch ein Atom aufgrund des Coulombfeld des Atomkerns eine negative Beschleunigung und werden dabei abgelenkt, bzw. gebremst. Das Primärelektron gibt dabei Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung ab, die nun nicht mehr diskret, sondern kontinuierlich ist. Die Energie des erzeugten Röntgenphotons wird durch die Stärke der negativen Beschleunigung bestimmt. Im Röntgenspektrum ist dies als breite Verteilung der Photonenenergie sichtbar. Die maximal erzeugbare Photonenenergie wird von der kinetischen Energie der Primärelektronen bestimmt und somit von der Beschleunigungsspannung der Röntgenröhre [30]:

$$E_{max} = h \cdot \nu_{max} = \frac{1}{2} \cdot m_e \cdot v^2 = e \cdot U. \quad (2.9)$$

Abbildung 2.2.1 skizziert das Spektrum einer Röntgenröhre mit den charakteristischen Linien und der Bremsstrahlung.

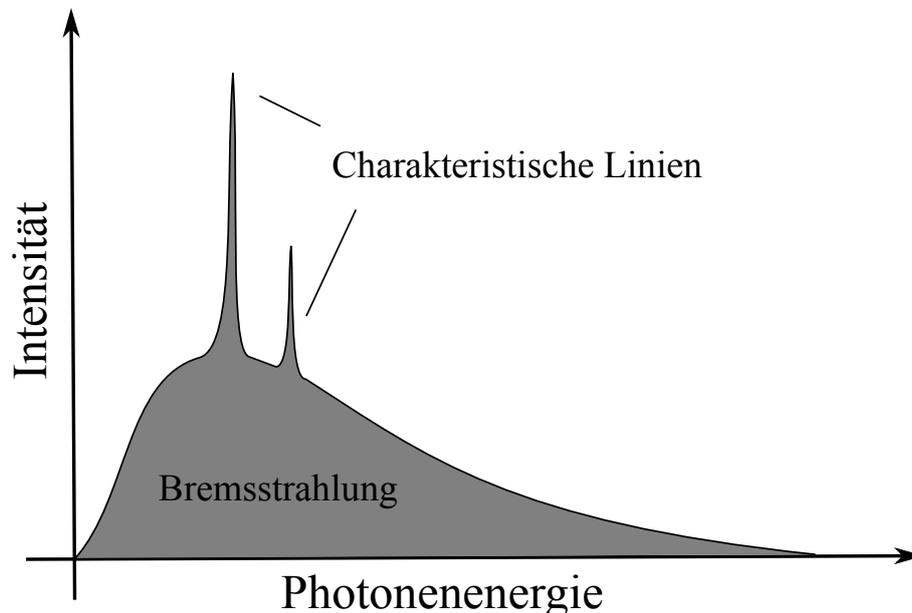


Abbildung 2.2.1: Schematische Darstellung eines Röntgenspektrums mit Bremsstrahlung und charakteristischen Linien.

2.3 Wechselwirkung von Röntgenphotonen mit Materie

Tritt ein Röntgenphoton mit einem Atom in Wechselwirkung, so kann es entweder gestreut oder absorbiert werden [52]. Dieser Abschnitt erläutert diese beiden Prozesse im Hinblick auf den daraus resultierenden komplexen Brechungsindex, der die Phasenänderung einer elektromagnetischen Welle sowie deren Absorption für jedes chemische Element in Abhängigkeit der Photonenenergie beschreibt. Im Folgenden wird das Streuverhalten eines Röntgenphotons mit Hilfe des sog. Streuwirkungsquerschnitts zunächst an einem freien Elektron und im weiteren Verlauf anhand eines einzelnen, bzw. an mehreren gebundenen Elektronen beschrieben.

Der Streuwirkungsquerschnitt σ ist definiert als das Verhältnis von mittlerer gestreuter Leistung \overline{P}_s , zur einfallenden Leistung pro Fläche $|\overline{S}_i|$ [6]. Trifft eine elektromagnetische Welle auf ein Elektron, frei oder gebunden, so wird das Elektron zur Dipolschwingung angeregt. Im zunächst einfacheren Fall eines freien Elektrons, ist das erzeugte elektrische Feld proportional zur Beschleunigung des Elektrons. Der Streuwirkungsquerschnitt σ und der Streuwirkungsquerschnitt pro Raumwinkeleinheit $d\sigma/d\Omega$ lassen daraus sich wie folgt darstellen [52]:

$$\sigma \equiv \frac{\overline{P}_{Streu}}{|\overline{S}_i|} = \frac{8\Pi}{3} r_e^2 \quad (2.10)$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_e^2 P \quad (2.11)$$

$$P = \frac{1}{2}(1 + \cos^2 \Theta) \quad (2.12)$$

wobei $r_e = 2.82 * 10^{-13}$ cm dem klassischen Elektronenradius, P dem Polarisationsfaktor einer unpolarisierten Quelle und Θ dem Streuwinkel entspricht.

Der Streuwirkungsquerschnitt an einem freien Elektron, die sog. Thomson-Streuung, ist unabhängig von der Frequenz der einfallenden Strahlung und somit für das gesamte elektromagnetische Spektrum gleich. Wird der Streuprozess an einem im Atom gebundenen Elektron betrachtet, so muss die Bindungsenergie bzw. die Rückstellkraft jedes einzelnen Elektrons berücksichtigt werden. Diese Rückstellkraft dämpft die Oszillation des Elektrons. Die Streuantwort des Elektrons hängt sehr stark von der Resonanzfrequenz ω_r des gebundenen Elektrons und der Frequenz der einfallenden Welle ω_i , bzw. von deren Differenz $\omega_i - \omega_r$ ab. Für den Streuwirkungsquerschnitt eines gebundenen Elektrons gilt [52]:

$$\sigma = \frac{8\Pi}{3} r_e^2 \frac{\omega_i^4}{(\omega_i^2 - \omega_r^2)^2 + (\gamma\omega_i)^2}, \quad (2.13)$$

wobei γ die Dämpfungskonstante repräsentiert. Im Falle das $\omega_i \ll \omega_r$ und $\gamma \rightarrow 0$ geht der Streuwirkungsquerschnitt in die Rayleigh-Streuung über [52]. Betrachtet man ein Atom mit Z Elektronen und einer bestimmten Elektronendichte $\rho(r)$, müssen die Beiträge jedes einzelnen Volumenelements im Atom phasenrichtig aufsummiert

werden, um die Streueigenschaften des Atoms bzgl. der einfallenden Welle darstellen zu können. Die gesamte Streulänge eines Atoms lässt sich über ein Volumenintegral folgendermaßen darstellen [52]:

$$-r_e f^0(Q) = -r_e \int \rho(r) e^{iQr} dr, \quad (2.14)$$

wobei $Q = (k_i - k_s)$ die Differenz der Wellenvektoren von einfallender und gestreuter Welle darstellt. Der Term $f^0(Q)$ wird als atomarer Formfaktor bezeichnet. Jedes Volumenelement dr liefert durch phasenrichtiges Addieren mit e^{iQr} einen Beitrag zur gestreuten Welle. Aus Gleichung 2.14 wird außerdem ersichtlich, dass die Streulänge eines Atoms durch die Fouriertransformierte der Ladungsverteilung des Atoms gegeben ist [6, 52]. Der atomare Formfaktor ist daher eine reelle Zahl. Sind die Richtungsvektoren von einfallender und gestreuter Welle gleich, so spricht man von Vorwärtstreuung und alle Volumenelemente addieren sich phasengleich. $f^0(Q = 0)$ entspricht in diesem Fall der Kernladungszahl Z . Im umgekehrten Fall, bei Photonenenergien deutlich oberhalb der Bindungsenergien im Atom, ist $f^0(Q \rightarrow \infty) = 0$ aufgrund gegenphasig gestreuter Wellen [52]. Die Antwort eines Atoms bei Wechselwirkung mit einem äußeren elektromagnetischen Feld ist sehr stark von dessen Photonenenergie abhängig. Der atomare Formfaktor benötigt daher einen Korrekturterm f' , der die frequenzabhängige atomare Streulänge, insbesondere in der Umgebung der Resonanzfrequenz, berücksichtigt. In Analogie zum harmonischen Oszillator liegt es nahe, einen Dämpfungsterm und somit einen Imaginärteil f'' im Korrekturterm zu berücksichtigen. Dieser Term repräsentiert die Absorption. Der atomare Formfaktor lautet nun [52]:

$$f(Q, \hbar\omega) = f^0(Q) + f'(\hbar\omega) + i f''(\hbar\omega) \quad (2.15)$$

Ein Prozess, der bei der Wechselwirkung eines Photons mit Materie entsteht, ist die photoelektrische Absorption. Ein Photon mit einer Energie größer als die Bindungsenergie eines Elektrons der innersten Schalen des Atoms kann das Elektron aus dem Atom entfernen. Die kinetische Energie dieses freien Elektrons entspricht der Differenz zwischen der Energie des Röntgenphotons und der Bindungsenergie des Elektrons. Die entstandene Elektronenlücke wird von einem Elektron der äußeren Schalen besetzt und ein Fluoreszenzphoton freigesetzt oder ein weiteres sog. Auger-Elektron erzeugt [6]. Wie oben erläutert, kann neben der photoelektrischen Absorption Streuung auftreten. Dabei muss man zwischen elastischer und inelastischer Streuung unterscheiden. Bei der elastischen bzw. kohärenten Streuung besitzt das erzeugte Photon die gleiche Energie wie das Photon welches die Streuung verursacht, z.B. die Rayleigh- oder Thomson-Streuung. Die sog. Compton-Streuung gehört zu den inelastischen Streuprozessen. Das initiale Photon gibt dabei seine Energie nur teilweise an das gestreute Photon. Das gestreute Photon besitzt eine niedrigere Photonenenergie. Der Energieunterschied ist vom Winkel zwischen einfallender und gestreuter Welle abhängig [68].

2.3.1 Brechungsindex, Phasenschub, Absorption

Die Überlegungen zum atomaren Formfaktor im vorherigen Abschnitt sind die Basis für eine allgemeine Definition des frequenzabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ im

Röntgenbereich. Im Vergleich zu sichtbarem Licht gibt es einen nicht vernachlässigbaren Imaginärteil β , welcher den Absorptionsgrad der Welle innerhalb des durchleuchteten Mediums beschreibt. Aufgrund der hohen Energien von Röntgenphotonen (typischerweise größer als die Resonanzfrequenzen der meisten Materialien) ist der Realteil von $n(\omega)$ um einen sehr geringen Betrag δ kleiner als Eins. Die allgemeine Form des Brechungsindex lautet [6]:

$$n(\omega) = 1 - \delta + i\beta. \quad (2.16)$$

Das zeitlich veränderliche monochromatische Wellenfeld im Medium mit dem Brechungsindex $n(\omega)$ lässt sich wie folgt beschreiben [6]:

$$E(r, t) = E_0 \cdot e^{-i(\omega t - n(\omega)kr)} = \underbrace{E_0 \cdot e^{-i(\omega t - kr)}}_{\text{Vakuum}} \cdot \underbrace{e^{-ik\delta r}}_{\text{Phasenschub}} \cdot \underbrace{e^{-k\beta r}}_{\text{Absorption}} \quad (2.17)$$

Der erste Term in Gleichung 2.17 stellt die Ausbreitung der Welle im Vakuum dar, der zweite Term beschreibt den Phasenschub und der letzte Term die Absorption des Wellenfeldes. Da nun der Phasenschub mit den Streueigenschaften und die Abschwächung mit der Absorptionseigenschaften des Materials verknüpft sind, lassen sich δ und β mittels des atomaren Formfaktor aus Gleichung 2.15 darstellen [52]:

$$\delta = \frac{2\pi\rho_a f^0(0)r_e}{k^2} \quad (2.18)$$

$$\beta = -\left(\frac{2\pi\rho_a r_e}{k^2}\right) f'' = \frac{\mu}{2k}. \quad (2.19)$$

Der Term ρ_a stellt hier die Atomdichte, also die Zahl der Atome pro Volumeneinheit dar und μ repräsentiert den material- und frequenzabhängigen Absorptionskoeffizienten. Nach einer Propagationsstrecke von μ^{-1} durch ein Medium, wird ein Intensitätsabfall auf $1/e$ der Eingangsintensität registriert und es folgt das Beer-Lambert'sche Gesetz:

$$I(r) = I_0 e^{-\mu r}. \quad (2.20)$$

Aufgrund der Tatsache, dass δ positiv ist, ist der Realteil des Brechungsindex kleiner Eins. Vakuum ist für Röntgenstrahlung daher das dichtere Medium, im Gegensatz zu Festkörpern oder Gasen. Totalreflexion findet in Folge dessen an der Grenzfläche zwischen Vakuum (oder Luft) und Materie statt. Der Grenzwinkel der Totalreflexion berechnet sich aus [6]:

$$\theta_k = \sqrt{2\delta}. \quad (2.21)$$

Aufgrund der sehr kleinen Werte von δ im Bereich 10^{-5} , beträgt dieser Grenzwinkel nur einige Milliradian. Trotzdem ist es dadurch möglich, optische Elemente auf Basis von Totalreflexion zu nutzen, wie in dieser Arbeit im weiteren Verlauf noch gezeigt wird.

2.4 Optische Elemente

In diesem Abschnitt werden die physikalischen Grundlagen der optischen Elemente behandelt, die für das in dieser Arbeit entwickelte Röntgenmikroskop relevant

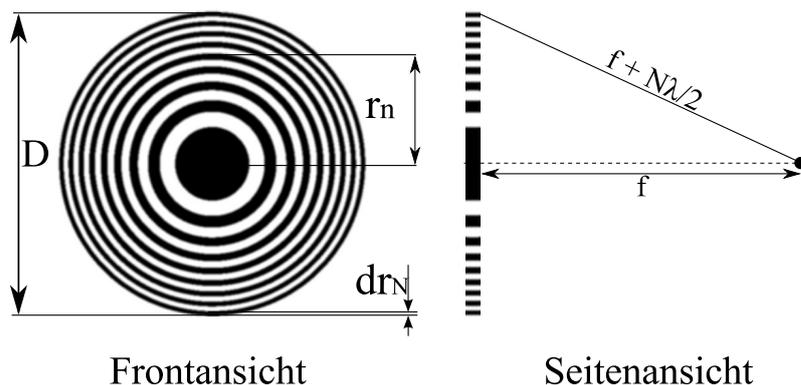


Abbildung 2.4.1: Schematische Darstellung einer Zonenplatte in Front- und Seitenansicht.

sind. Im konkreten Fall sind dies reflektive und diffraktive optische Elemente. Eine detaillierte Beschreibung und Charakterisierung dieser Optiken findet im weiteren Verlauf dieser Arbeit jeweils in einem eigenen Kapitel statt. Zunächst soll das dazu notwendige Basiswissen dieser Elemente abgehandelt werden.

2.4.1 Zonenplatten

Linsen die auf dem Prinzip der Lichtbrechung basieren sind in der Labor-Röntgenmikroskopie nicht sehr verbreitet. Der Grund liegt darin, dass der Realteil des Brechungsindex sehr nahe bei Eins liegt und nur eine geringe Brechkraft vorliegt. Die Folgen daraus sind sehr lange Brennweiten ($\sim 1\text{m}$), die es im Labor aus Platzgründen zu vermeiden gilt. Solche Linsen sind an Synchrotron-Einrichtungen zu finden [62]. Aus diesem Grund werden als bildgebene Elemente die sog. Fresnel'sche Zonenplatten verwendet, die auf dem Prinzip der Beugung basieren. Sie bestehen aus konzentrischen Amplituden- oder Phasengittern, deren Gitterkonstante nach außen hin abnimmt. Die Beugungswinkel nehmen zum Rand der Linse kontinuierlich zu und fokussieren die auftreffende Strahlung in einem Punkt. Benachbarte Steg-Lücke-Paare weisen einen Gangunterschied von $n \cdot \lambda$ auf, so dass die gebeugten Strahlen im Fokus konstruktiv interferieren können. Im Gegensatz zu Amplitudenzonenplatten, die die Hälfte der Strahlung absorbieren, drehen Phasenzonenplatten in jeder zweiten Zone die auftreffende Strahlung um einen Betrag von π in der Phase, so dass jede Zone einen konstruktiven Beitrag zum Fokus liefert. Die Effizienz solcher Zonenplatten ist deutlich höher als die von Amplitudenzonenplatten. Abbildung 2.4.1 zeigt schematisch die Vorder- und Seitenansicht einer Zonenplatte. Die Radien der einzelnen Zonen berechnen sich über den Satz des Pythagoras.

$$\begin{aligned}
 r_n^2 &= \left(f + \frac{n\lambda}{2}\right)^2 - f^2 \\
 \Rightarrow r_n^2 &= n\lambda f + n^2\lambda^2/4 \\
 \Rightarrow r_n &\simeq \sqrt{n\lambda f}
 \end{aligned}
 \tag{2.22}$$

Der Term $n^2\lambda^2/4$ beschreibt die sphärische Aberration und ist sehr viel kleiner als die Brennweite und kann für Zonenplatten mit sehr kleinen numerischen Aperturen

vernachlässigt werden [6, 96]. Über die Anzahl der Zonen N lässt sich die Breite der äußersten Zone dr_N berechnen, indem die Zone mit dem Radius r_N und der Radius der Zone r_{N-1} subtrahiert werden. Für die Brennweite f der Zonenplatte ergibt sich daraus folgende Näherung:

$$f(\lambda) \simeq \frac{D \cdot dr_N}{\lambda}, \quad (2.23)$$

wobei D dem Durchmesser der Zonenplatte entspricht. Da die Zonenplatte ein diffraktives Element darstellt, ist sie mit einer ausgeprägten chromatischen Aberration behaftet. Diese Eigenschaft hat Auswirkungen bzgl. der benötigten Monochromasie der verwendeten Strahlung. Ein entscheidendes Kriterium in diesem Zusammenhang ist die Schärfentiefe (engl.: Depth of Focus, DOF) der Zonenplatte. Die Intensität im Fokus reduziert sich bei einem Abstand von

$$\Delta z \simeq \pm \frac{1}{2} \cdot \frac{4 \cdot dr_N^2}{\lambda} \quad (2.24)$$

nur geringfügig und die Auflösung der Abbildung bleibt erhalten. Die chromatische Bandbreite der Beleuchtung hingegen ist nun so zu wählen, dass die verschiedenen Fokusslängen die DOF nicht überschreiten. Ein anderer Ansatz die Monochromasie-Bedingung zu beschreiben ist, fehlerhafte Beiträge im Fokus anderer Wellenlängen zu betrachten. Eine Wellenlänge, die sich um 1% von der Design-Wellenlänge der Zonenplatte unterscheidet, liefert bereits nach 50 Zonen einen destruktiven Beitrag zum Fokus [96]. Die spektrale Bandbreite der Beleuchtung darf deshalb nur so groß sein, dass an der äußersten Zone ein destruktiver Beitrag von weniger als 180° entsteht. Es lässt sich zeigen, dass mit einer relativen spektralen Bandbreite von

$$\frac{\Delta \lambda}{\lambda} \leq \frac{1}{N}, \quad (2.25)$$

das Monochromasie-Kriterium erfüllt ist [6]. Besitzt eine Zonenplatte mehr als 100 Zonen, so kann der diskrete Phasenhub jeder Zone über die gesamte Zonenplatte als kontinuierlich angenähert werden und die Linse erfüllt das Abbildungsgesetz [6]:

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{g} + \frac{1}{b}, \quad (2.26)$$

mit der Gegenstandsweite g und der Bildweite b . Aufgrund der Tatsache, dass das diffraktive Element sowohl positive, als auch negative Beugungsordnungen erzeugt, ist eine Zonenplatte Sammel- und Zerstreuungslinse zugleich. Weiterhin erzeugt sie Foki bei $\pm f/2, \pm f/3, \dots$ aufgrund der höheren Beugungsordnungen. Die Effizienz in den höheren Ordnungen ist im Vergleich zur ersten Ordnung deutlich geringer und bei Laboranwendungen meist nicht relevant. Ein weiterer Unterschied zu konventionellen Linsen ist, dass eine nullte Beugungsordnung existiert. Der größte Teil des auftreffenden Lichts passiert ungehindert die Optik. Eine Zonenplatte besitzt somit die Eigenschaften einer plan-parallelen Platte. Über die Fourierzerlegung findet man einen Ausdruck, der die Verhältnisse der Intensität in den einzelnen Beugungsordnungen I_m zur einfallenden Intensität I_0 beschreibt [6]. Das Verhältnis:

$$\eta_m = \frac{I_m}{I_0} = |c_m|^2 = \left| \frac{\sin(m\pi/2)}{m\pi} \right|^2 \quad (2.27)$$

wird als Beugungswirkungsgrad η_m bezeichnet. Für ein rechteckiges Zonenplattenprofil und abwechselnd vollständig transparente und absorbierende Zonen folgt für den Beugungswirkungsgrad (BWG) [6]:

$$\eta_m = \begin{cases} 1/4 & m = 0 \\ 1/m^2\pi^2 & m = \pm 1, \pm 3, \dots \\ 0 & m = \pm 2, \pm 4, \dots \end{cases} \quad (2.28)$$

Der BWG in den ersten Ordnungen ($m=\pm 1$) ist ca. 10% und sinkt mit steigenden Beugungsordnungen um den Faktor $1/m^2$. Verwendet man an Stelle der absorbierenden Zonen ein Material, das in der einfallende Welle einen Phasenschub um $\lambda/2$ erzeugt, so kann der BWG in der ersten Ordnung auf 40% erhöht werden.

Das Auflösungsvermögen einer Zonenplatte ist durch das Rayleigh-Kriterium gegeben und vereinfacht sich näherungsweise zu [6]:

$$\delta_{\text{Rayleigh}} = \frac{0,61\lambda}{NA} \simeq 1,22 \cdot dr_N \quad (2.29)$$

$$\text{mit: } NA \simeq \frac{\lambda}{2dr_N}, \quad (2.30)$$

wobei NA für den Ausdruck der numerischen Apertur der abbildenden Optik steht. Die Auflösung liegt im Bereich der Größe der äußersten Zone der Zonenplatte. Die Herstellung von Zonenplatte mit einem kleinen dr_N ist folglich der Schlüssel zur hochauflösenden Röntgenmikroskopie. Dies setzt gerade im Bereich der harten Röntgenstrahlung hohe Aspektverhältnisse voraus (das Verhältnis von Zonenhöhe zu Zonenbreite), um eine ausreichende Effizienz zu erreichen. In dieser Arbeit werden Zonenplatten mit einem Aspektverhältniss von 20:1 verwendet. Die äußerste Zone ist im konkreten Fall 20 mal höher als breit und erfordert ein hohes Maß an Stabilität. Bei geringeren Photonenenergien sind aufgrund der deutlich höheren Absorptionskoeffizienten, kleinere Aspektverhältnisse ausreichend und es können Zonenplatten mit feineren äußersten Zonen hergestellt werden [25]. Mehr zu diesem Thema und speziell zum Herstellungsverfahren der in dieser Arbeit verwendeten Zonenplatte ist in Kapitel 5 zu finden.

2.4.2 Polykapillaroptiken

Wird ein Photon an der Grenzfläche zwischen zwei Medien reflektiert, so invertiert sich die Komponente des Wellenvektors \vec{k} parallel zur Grenzflächennormale. Die Komponenten parallel zur Grenzfläche bleiben erhalten. Diese Tatsache wird im Brechungsgesetz von Snellius festgehalten. Analog zu den physikalischen Prinzipien des sichtbaren Lichts werden die Reflexionskoeffizienten von Röntgenstrahlung durch die Fresnel'schen Formeln beschrieben. Da der Brechungsindex für sehr hohe Energien einen Absorptionsterm aufweist (siehe Kapitel 2.3), ist die Reflektivität an einer einzelnen Grenzschicht im senkrechten Einfall sehr viel kleiner als Eins [6, 96]. Eine Ausnahme stellt dabei der Grenzfall der Totalreflexion im streifenden Einfall dar. Totalreflexion tritt auf, wenn Licht unterhalb des sog. kritischen Winkel von

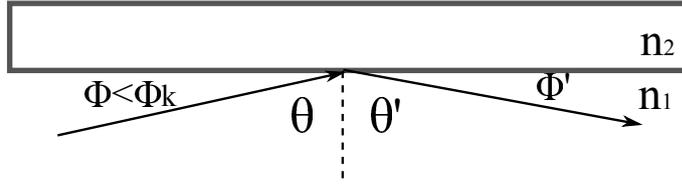


Abbildung 2.4.2: Darstellung der Totalreflexion bei streifendem Einfall an der Grenzfläche zwischen Vakuum mit dem Brechungsindex n_1 und einem Medium mit dem Brechungsindex n_2 . Totalreflexion tritt unterhalb des kritischen Winkels auf.

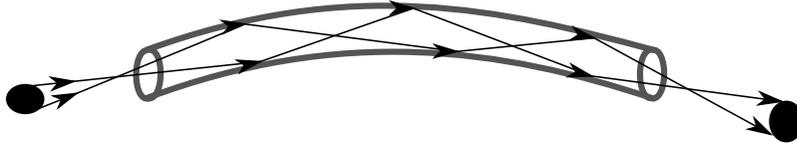


Abbildung 2.4.3: Schematische Darstellung des Intensitätstransports mittels mehrfacher äußerer Totalreflexion an einer gebogenen Glaskapillare nach [18].

einem optisch dichteren zu einem optisch dünneren Medium propagiert (siehe Abbildung 2.4.2). Mit Hilfe der Fresnel'schen Formeln lässt sich die Reflektivität im kritischen Winkel berechnen [6]:

$$R_{\theta_k} = \frac{1 - \frac{\sqrt{2\delta\beta}}{\delta+\beta}}{1 + \frac{\sqrt{2\delta\beta}}{\delta+\beta}}. \quad (2.31)$$

Diese physikalische Eigenschaft nutzen einige Optiken im Röntgenbereich. Dazu gehören u.a. Spiegel im streifenden Einfall, Spiegel in Kirkpatrick-Baez-Anordnung und elliptisch oder parabolisch-geformte Monokapillaren [123, 56]. Diese Systeme basieren auf einer Einzel-Reflexion. Es ist jedoch möglich, Strahlung innerhalb einer hohlen zylindrischen Glaskapillare auf Basis mehrerer Reflexionen zu transportieren (siehe Abbildung 2.4.3). Dadurch ist nicht nur ein Transport von Röntgenstrahlung möglich, sondern, durch eine leichte Krümmung der Kapillare, auch eine Änderung der Ausbreitungsrichtung. Solange der Winkel zwischen Röntgenstrahl und Kapillarwand kleiner als der kritische Winkel der Totalreflexion ist, kann der Strahl durch Mehrfachreflexion durch die Kapillare geführt werden. Diese Bedingung beschränkt den Durchmesser der Kapillare und den maximalen Krümmungsradius, bzw. die Kombination aus beiden [63]. Für 5 - 30 keV Photonen kann der kritische Winkel bei Reflexion an einer Glasoberfläche über folgende Beziehung genähert werden [73]:

$$\theta_k[mrad] \approx \frac{30\text{keV}}{E[\text{keV}]} \quad (2.32)$$

Werden nun sehr viele solcher Kapillaren zu einem Bündel gefasst und gekrümmt, spricht man von einer monolithischen Polykapillare. Einer der Vorteile dieser Anordnung ist, dass der globale Ablenkwinkel, den die Röntgenphotonen erfahren, in erster Näherung nicht mehr durch den kritischen Winkel der Totalreflexion bestimmt wird, sondern durch die Krümmung der Kapillaren [5]. Je nach Anwendungszweck gibt

es kollimierende Optiken, die paralleles Röntgenlicht sammeln und in einem Punkt konzentrieren und umgekehrt. In dieser Arbeit werden ausschließlich fokussierende Optiken verwendet. Die Kapillaren sind dabei so gekrümmt, dass die einzelnen Kapillaren am Eingang auf die punktförmige Röntgenquelle und die Kapillarenden am Ausgang auf den Spot zeigen und sich dort überlappen. An dieser Stelle sei erwähnt, dass in der Literatur oft von Polykapillarlinsen gesprochen wird. Diese Art der Optik ist jedoch nicht in der Lage, ein Bild eines Objekts nach dem Abbildungsgesetz zu erzeugen. Grund dafür sind die unterschiedlichen optischen Weglängen innerhalb der einzelnen Kapillaren und die damit verbundene, nicht korrelierte Phasenbeziehung zueinander. Um Zweideutigkeiten zu vermeiden, wird hier in diesem Zusammenhang nur der Begriff der Polykapillaroptyk verwendet.

Die charakteristischen Eigenschaften einer Polykapillaroptyk werden in den folgenden Parametern ausgedrückt: Eingangsarbeitsabstand f_1 , Kapillarlänge L , Ausgangsarbeitsabstand f_2 , Eingangsdurchmesser D_{in} und Ausgangsdurchmesser D_{out} . Anhand dieser Werte lässt sich näherungsweise der erfasste Raumwinkel am Eingang bestimmen sowie der für die Mikroskopie wichtige Wert der numerischen Apertur am Ausgang der Kapillare. Im weiteren Verlauf werden einige dieser charakteristischen Werte genauer spezifiziert. Zwischen dem Eingangsarbeitsabstand und der Größe der verwendeten Röntgenquelle Δs_Q sowie dem Ausgangsarbeitsabstand und der Größe des Kapillarspots Δs_K besteht folgender Zusammenhang [18, 74]:

$$\Delta s_Q = 2\theta_k f_1 + D_K \quad (2.33)$$

$$\Delta s_K = 2\theta_k f_2 + D_K \quad (2.34)$$

$$\Delta s_K / \Delta s_Q = f_2 / f_1, \quad (2.35)$$

wobei D_K dem Durchmesser der einzelnen Kapillaren entspricht und im Vergleich zum dominanteren ersten Term vernachlässigt werden kann. Gleichung 2.35 bestimmt die optimalen Parameter für die Herstellung einer Polykapillaroptyk bei gegebener Quellgröße, Photonenenergie und Spotgröße [18]. Aufgrund des energieabhängigen kritischen Winkels der Totalreflexion nimmt die Quellgröße mit steigender Photonenenergie ab. Der Ausgangsarbeitsabstand ist für alle Energien gleich, so dass am selben Ort für die unterschiedlichen Wellenlängen unterschiedlich große Kapillarspots entstehen. Da hinter jeder einzelnen Kapillare ein divergenter Strahl vorliegt, steigt mit zunehmendem Ausgangsarbeitsabstand f_2 die Spotgröße Δs_K . Eine Polykapillaroptyk mit langem Ausgangsarbeitsabstand hat daher einen größeren Spotdurchmesser als Kapillaren mit geringerem Ausgangsarbeitsabstand. In Abbildung 2.4.4 wird eine Polykapillaroptyk schematisch dargestellt.

Die Hauptanwendungsgebiete von Polykapillaroptyken sind z.B. Röntgen-Fluoreszenz-Messungen [16, 18, 65] oder XANES Messungen (*engl.: X-ray absorption near edge spectrometry*) [109]. Bei all diesen Experimenten ist die Qualität der Messung davon abhängig, wie viel Photonenfluss auf einer bestimmten Fläche auf der Probe erzeugt werden kann. Bei derartigen Versuchen ohne Optik wird ein Kollimator-Pinhole in der Nähe des Objekts verwendet, um das Material orts aufgelöst anzuregen. Mit Hilfe von z.B. Fluoreszenzmessungen kann damit die Materialzusammensetzung bestimmt werden. Aufgrund mechanischer Gegebenheiten ist ein gewisser Abstand zur Anregungsquelle (z.B. Röntgenröhre) nötig. Mit steigendem Abstand

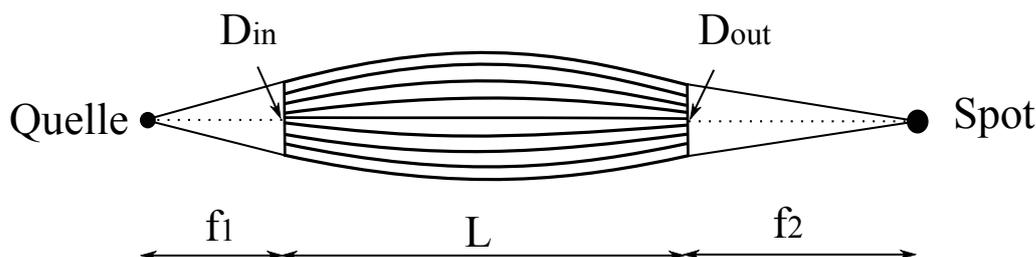


Abbildung 2.4.4: Schematische Darstellung einer Polykapillarroptik mit den charakteristischen Werten f_1 , L , f_2 , D_{in} und D_{out} . Mit freundlicher Genehmigung von *Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics* [10].

stinkt der Photonenfluss auf der Probe und längere Messzeiten sind die Folge. Eine Polykapillarroptik nutzt den notwendigen Abstand, um mit einer darauf angepassten Optik das Licht der Quelle zu sammeln, dieses auf einen wenige Mikrometer großen Spot auf dem Objekt zu konzentrieren und die Intensität auf der Probe zu erhöhen. Aus diesem Zusammenhang heraus hat sich eine weitere charakteristische Größe entwickelt, der Intensitäts-Gain. Dieser definiert das Verhältnis von Intensität auf der Probe im Spot der Polykapillarroptik zur Intensität bei einer Pinhole-Kollimation im selben Abstand. Der Pinholedurchmesser entspricht dabei der Größe des Kapillarspots. Nach [64] lässt sich dieser Gain folgendermaßen berechnen:

$$Gain = \left(\frac{D_{in}}{f_1} \right)^2 \cdot T \cdot \left(\frac{f_1 + L + f_2}{\Delta s_K} \right)^2. \quad (2.36)$$

Der Wert T entspricht dabei der Transmission der Optik und ist definiert als das Verhältnis der Anzahl der Photonen am Ausgang der Optik zur Anzahl der Photonen, die auf die Eingangsfläche der Optik treffen. Dieser Wert lässt sich experimentell relativ gut bestimmen. Für die Ermittlung des Intensität-Gains hat sich keine einheitliche Norm durchgesetzt und aus diesem Grund sollte bei der Angabe des Gains zwingend die zugehörige Messmethode erwähnt werden. In dieser Arbeit werden die Gain-Berechnungen nach Gleichung 2.36 durchgeführt. Die Transmission der Optik wird experimentell bestimmt. Eine genauere Beschreibung des Messvorgangs ist in Kapitel 6 zu finden. Die Transmission einer Polykapillarroptik sinkt für steigende Photonenenergien aufgrund des kleiner werdenden kritischen Winkels der Totalreflexion. Besonders an den stärker gekrümmten äußeren Kapillaren können hochenergetische Photonen diese nicht komplett passieren. Die Optik kann somit als Energiefilter verwendet werden, um z.B. die hohen Photonenenergien aus dem Bremsstrahlungsspektrum zu unterdrücken, ohne die charakteristische Linie zu blockieren. Von diesem Standpunkt aus betrachtet ist eine Polykapillarroptik ein spektraler Tiefpassfilter [64].

Die oben erwähnten typischen Parameter einer Polykapillarroptik werden in Kapitel 6 an den in dieser Arbeit verwendeten Optiken experimentell untersucht und gegenübergestellt.

Kapitel 3

Detektoren für Röntgenstrahlung

Gleichzeitig mit der Entdeckung der Röntgenstrahlung wuchs der Bedarf nach geeigneten Detektoren. Die damals übliche Methode, um ionisierende Strahlen sichtbar zu machen, waren lumineszierende Materialien, die Röntgenlicht in sichtbares Licht umwandelten. Der gravierende Nachteil dieser Schirme war, dass das Bild nicht konserviert, bzw. gespeichert werden konnte. Ausnahmen bildeten sog. Speicherphosphore, die zwar erst viel später entwickelt wurden, in der Röntgenmikroskopie jedoch keine Anwendung gefunden haben [113]. Schon am Abend der Entdeckung der X-Strahlen, verwendete W.C. Röntgen einen photographischen Film, um seine Ergebnisse zu dokumentieren. Zwar besitzen Photoemulsionen aufgrund ihrer geringen Korngröße eine sehr gute Auflösung, die Dynamik bzw. die Schwärzungskurve ist dabei stark nicht-linear. Die nass-chemische Entwicklung des Films würde außerdem zu immensem technischen Aufwand führen und eine Betrachtung der Aufnahme wäre erst lange nach der Belichtung möglich [92, 113]. Als geeignete Detektoren haben sich daher sehr viel später Röntgen-CCDs und Phosphore bzw. Szintillatoren in Kombination mit CCDs für sichtbares Licht durchgesetzt. Beide haben gute Eigenschaften, sowohl in der räumlichen Auflösung (geringe Pixel- bzw. Korngröße), als auch zeitlichen Auflösung (schnelle Abklingzeit des Phosphorleuchtens) sowie im Rauschverhalten und in der Dynamik.

Eine weitere Art von Detektoren bilden energie-dispersive Halbleiter. Sie werden in der Spektroskopie und Röntgenanalytik eingesetzt, um z.B. Fluoreszenzstrahlung einer bestimmten Photonenenergie zuzuordnen. Die element-spezifische Zusammensetzung der zu untersuchenden Probe kann damit analysiert werden. In dieser Arbeit wird dieser Detektor verwendet, um die spektrale Verteilung von Röntgenröhren zu bestimmen. Im folgenden Abschnitt werden die genannten Detektionssysteme kurz vorgestellt.

3.1 Ortsaufgelöste Detektoren

3.1.1 Röntgen-CCDs

Erste wissenschaftliche Veröffentlichungen zu CCDs (*engl.: charged coupled device*) gab es Anfang der 1970er Jahre von W. Boyle and G. Smith [21, 22]. CCD-Chips

bestehen aus mehreren MOS-Bauteilen (*engl.: metal oxide semiconductor*). Darin kann ein einfallendes Photon aufgrund des photoelektrischen Effekts, Elektronen-Loch-Paare erzeugen und diese in sog. Potentialtöpfen sammeln. Die systematische Aneinanderreihung solcher MOS-Bausteine in mehrere Reihen und Spalten, ergibt schließlich eine größere lichtempfindliche Fläche. Die ist in der Lage, für jede Einheit die gespeicherten Elektronen in einen Helligkeitswert zu übersetzen und letztlich ein Bild zu erzeugen. Eine Einheit wird daher als pixel (*engl.: picture element*) bezeichnet. In Abbildung 3.1.1 ist der schematische Aufbau eines MOS-Bausteins

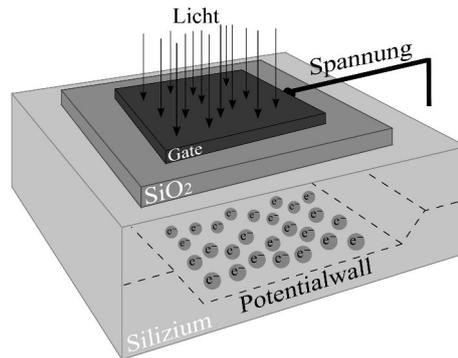


Abbildung 3.1.1: Schematische Zeichnung eines MOS-Bausteins.

dargestellt. Er besteht aus einem metallischen Kontakt (Gate), einer isolierenden Oxid-Schicht aus SiO_2 und Silizium als Halbleitermaterial. Ein einfallendes Photon mit einer Wellenlänge $< 1 \mu m$ bricht die kovalente Bindung zwischen benachbarten Siliziumatomen und erzeugt Elektronen-Loch-Paare in der p- oder n-dotierten Schicht [2]. Die Bandlücke, d.h. der Abstand zwischen Valenz- und Leitungsband, beträgt für Silizium 1,1 eV. Jedoch müssen für Röntgenstrahlung auch z.B. Stoßprozesse auf Sekundärelektronen mitberücksichtigt werden und es ist eine mittlere Energie von 3,7 eV notwendig, um ein Elektronen-Loch-Paar zu erzeugen [113, 83, 54]. Somit gilt:

$$n_{max} = \frac{h \cdot \nu}{3,7 \text{ eV}}, \quad (3.1)$$

wobei n_{max} der maximal erzeugten Elektronen-Loch-Paare im Silizium, h dem plank'schen Wirkungsquantum und ν der Frequenz des Photons entspricht. Die anliegende Gate-Spannung erzeugt eine Potentialbarriere, in der die Photoelektronen gesammelt werden. Durch geeignete Änderung der Spannungen an benachbarten MOS-Bausteinen, entsteht ein Ladungstransport, der ein Auslesen der einzelnen Speicherzellen ermöglicht. Dieses Prinzip des Ladungstransport wird als Ladungskoppelung (*engl.: charge coupling*) bezeichnet, und daher der Name CCD [98]. Zum Auslesen eines gesamten Bildes werden dabei zunächst zeilenweise die Pixelinformationen in ein serielles Register geschoben. Aus diesem Register kann anschließend jeder einzelne Potentialtopf nach einander ausgelesen werden. Die räumliche Zuordnung der Pixelwerte zum Gesamtbild erfolgt durch das Nummerieren der Potentialtöpfe beim Auslesen. Um einen Drift der Elektronen aus den Potentialtöpfen während des Auslesens zu verhindern, wurden sog. *buried channel CCDs* entwickelt. Hier befindet sich zwischen n-dotiertem Halbleiter und der Oxid-Schicht ein zusätzliches

p-dotiertes Material, welches das Potentialminimum lokal herab senkt, und deshalb weniger Photoelektronen in benachbarte Pixel driften können.

Das oben beschriebene Verfahren gilt für CCDs im sichtbaren Wellenlängenbereich, als auch für Röntgen-CCDs. Leichte Unterschiede sind bei CCDs für den EUV- und weichen Röntgenbereich vorhanden. Da in diesem Energiebereich der Absorptionsterm sehr stark ist, würde ein Großteil des Lichts schon auf der Gatestruktur sowie der Isolationsschicht absorbiert werden, bevor es in die Verarmungszone trifft. Aus diesem Grund hat man rückseitig-gedünnte CCDs entwickelt. Die Siliziumschicht ist dabei auf wenige Mikrometer gedünnt und der Chip wird von hinten beleuchtet [113]. Für CCDs im harten Röntgenbereich muss, aufgrund der hohen Photonenenergie, die Verarmungsschicht sehr groß sein, damit das Röntgenphoton eine genügend lange Strecke im Silizium zurücklegen kann, um den photoelektrischen Effekt auszulösen. Mit Hilfe von epitaxialem Silizium ist es möglich die Dotierungskonzentration zu senken und die Verarmungsschicht zu erhöhen. Diese CCDs werden als *Deep Depletion CCDs* bezeichnet.

3.1.2 Lumineszenzschirme

Eine weitere Möglichkeit Röntgenstrahlung zu detektieren, ist die Verwendung eines Lumineszenzschirms (Phosphor oder Szintillator). Wird ein solcher Schirm mit hochenergetischen Teilchen (Röntgenphotonen, Elektronen, Ionen...) beschossen, so wird die Anregungsenergie mittels Lumineszenz (Fluoreszenz und/oder Phosphoreszenz) in Form von sichtbarem Licht wieder abgegeben. Phosphore gibt es in verschiedenen Zusammensetzungen, die sich in Effizienz, abgestrahltem Wellenlängenmaximum oder der Abklingzeit unterscheiden. Tabelle 3.1.1 gibt einen kleinen Überblick

Tabelle 3.1.1: Standard Phosphor-Typen und deren Charakteristika.

Typ	Chem. Verbindung	Wellenlängenmaximum	Abklingzeit
P43	$Gd_2O_2S : Tb$	545 nm	1ms
P46	$Y_3Al_5O_{12} : Ce$	530 nm	300ns
P47	$Y_2SiO_5 : Ce, Tb$	400 nm	100ns

über einige Standard Phosphor-Typen. Die Effizienz eines Phosphorschirms hängt neben dem Typ, von Parametern wie der Korngröße oder der Schichtdicke ab. Beide Parameter beeinflussen das räumliche Auflösungsvermögen. Eine dicke Phosphorschicht von mehreren 10 μm liefert bspw. eine gute Effizienz, hat jedoch ein schlechtes Auflösungsvermögen aufgrund von Streu- und Re-Lumineszenzprozessen, die zu einer Verbreiterung der Impulsantwort des Systems führen. Es hat sich herausgestellt, dass der Phosphor-Typ P43 für viele bildgebende Anwendungen passende Eigenschaften besitzt. Er hat eine sehr gute Effizienz auch bei dünneren Schichten und das abgestrahlte Licht mit einer mittleren Wellenlänge von 545 nm passt zur Empfindlichkeitskurve vieler Detektoren [107]. Wegen der sehr geringen Abklingzeit,

sollte hingegen für zeit-aufgelöste Experimente Typ P46 oder P47 in Erwägung gezogen werden. Eine etwas andere Art von Leuchtschirmen sind sog. Szintillatoren die in kristalliner Form vorliegen. Sehr dünne, nadelartige Kristallstäbchen erzeugen sichtbares Licht in der selben Art und Weise wie Phosphore. Die Auflösung eines Szintillators wird durch den Durchmesser der Stäbchen bestimmt. Ein gängiges und erprobtes Szintillator-Material ist Thallium dotiertes Cäsium-Iodid (CsI:Tl). Mit sehr hoher Effizienz und einem Wellenlängenmaximum von 550 nm ist es ebenfalls gut geeignet für die meisten VIS-Detektoren.

Um die Intensitätsverteilung auf dem Leuchtschirm zu digitalisieren, wird der Schirm optisch auf einen CCD oder CMOS-Chip abgebildet. Dies kann entweder mit Hilfe eines Objektivs erfolgen, welches die Intensitätsverteilung des Leuchtschirms in die Chipenebene abbildet, oder der Schirm wird mit dem Chip gekoppelt, so dass die Fluoreszenzphotonen direkt auf die lichtempfindliche Fläche des Sensors gelenkt werden.

3.1.3 Dynamik, Effizienz, Rauschen, Auflösung

Die Anzahl der Photoelektronen, die in einem Pixel gespeichert werden können, ist proportional zur Pixelfläche. Entsprechend ist die Dynamik und die Empfindlichkeit des Detektors bei großen Pixeln höher als bei kleinen Pixeln [113]. Der Dynamikumfang ist gegeben durch [113]:

$$Dynamik = \frac{S_{max}}{S_{min}}, \quad (3.2)$$

wobei S_{max} der sog. *Full-Well-Capacity* also dem maximal und S_{min} dem minimal detektierbaren Signal entspricht. S_{min} muss größer oder gleich dem Rauschsignal sein. Bei Detektoren für den sichtbaren Wellenlängenbereich gleicht S_{min} dem Rauschsignal. Für Detektoren im Röntgenbereich ist die Anzahl der Rauschelektronen in einem Pixel kleiner als die Zahl der Elektronen, die pro einfallendes Photon generiert werden. S_{min} ist hier die Anzahl der Elektronen, die durch ein einzelnes Photon erzeugt und erfasst werden. In dieser Größe sind daher sowohl Rauschquellen (siehe unten), als auch die Konversionsrate des Sensors enthalten, da nicht alle erzeugten Elektronen im Silizium erfasst werden können. Eine weitere wichtige Größe ist die sog. *Detective Quantum Efficiency* (DQE). Sie beschreibt das Verhältnis des Signal-Rausch-Verhältnisses (SNR) des Detektors zum SNR der Quelle [122].

$$DQE = \left(\frac{SNR_{Detektor}}{SNR_{Quelle}} \right)^2 \quad (3.3)$$

Eine Aufnahme mit einem Detektor mit einer $DQE = 1$ ist nur durch das Photonenrauschen der Strahlungsquelle limitiert. Die Einführung des DQE-Werts hat einen praktischen Vorteil, da verschiedene Detektorsysteme miteinander verglichen werden können. Wie schon erwähnt, wird das minimal detektierbare Signal auch durch Rauschen bedingt. Die dominantesten Rauschquellen sind das Ausleserauschen und das Dunkelrauschen. Ersteres ist für jede Aufnahme konstant und wird durch den Ladungstransfer, die Elektronik und den AD-Wandlern bestimmt. Das

Dunkelrauschen hingegen ist das vom Detektor erzeugte Signal, bedingt durch thermische Bewegungen im Silizium. Die kovalente Bindung der Siliziumatome kann durch thermische Strahlung gebrochen werden. Daher werden ohne Belichtung des Chips Elektronen in den einzelnen Pixeln erzeugt. Die Anzahl der so generierten Elektronen steigt mit der Belichtungszeit. Dieser Effekt kann durch starke Kühlung des Detektors geschwächt werden. Außerdem wird im Anschluss an jede Belichtung ein sog. Dunkelbild mit der selben Belichtungszeit aufgenommen. Durch Subtraktion des Dunkelbilds vom Signalbild wird der Einfluss des thermischen Rauschens eliminiert. Trotzdem führt ein Detektor mit schlechtem (also hohem) Dunkelsignal dazu, dass die Empfindlichkeit stark reduziert wird, da ein schwaches Nutzsignal nicht vom Rauschsignal unterschieden werden kann. An diesem Punkt sei außerdem erwähnt, dass bei CCDs, gerade im Bereich der harten Röntgenstrahlung, der Effekt der Strahlenschäden nicht vernachlässigt werden darf. Nach [67] entstehen Strahlenschäden an CCDs z.B. durch das positive Aufladen der SiO_2 -Isolationsschicht des MOS-Bausteins. Dies führt zu Ladungsverschiebungen im Silizium und infolgedessen steigt das Dunkelsignal.

Eine wichtige Größe von Detektoren ist die räumliche Auflösung des Systems. Für jeden diskreten Detektor gilt das Nyquist-Theorem:

$$f_N = \frac{1}{2 \cdot \Delta}. \quad (3.4)$$

Die höchste darstellbare Raumfrequenz f_N auf dem Detektor ist durch den Kehrwert der doppelten Pixelgröße Δ gegeben. Bei der mikroskopischen Anwendung muss zusätzlich der Abbildungsmaßstab M berücksichtigt werden und aus Gleichung 3.4 wird:

$$f_{Neff} = \frac{M}{2 \cdot \Delta}. \quad (3.5)$$

Aus diesem Grund spricht man von einer effektiven Nyquistfrequenz, bzw. von einer effektiven Pixelgröße $\Delta_{eff} = \Delta/M$. Daher muss die Vergrößerung des Objekts so angepasst werden, dass der Detektor die kleinste Objektstruktur entsprechend der Nyquist-Bedingung noch auflösen kann.

3.2 Energieaufgelöste Detektoren

Für die Messung von Röntgenspektren können zwar oben beschriebene CCDs verwendet werden [4], zur Bestimmung der spektralen Verteilung des Lichts einer Röntgenröhre werden i.d.R. Silizium-PIN Photodioden verwendet. Entsprechend der Bezeichnung besteht der Detektor aus einer Siliziumschicht mit einer p- und n-dotierten Schicht sowie einer intrinsischen Zone. Wie im vorherigen Abschnitt schon erläutert, muss eine mittlere Energie von 3,7 eV aufgebracht werden, um ein Elektron-Loch-Paar im Silizium zu erzeugen. Ein einfallendes Röntgenphoton mit einer Energie von 8 keV erzeugt im Mittel $8000 \text{ eV} / 3,7 \text{ eV} = 2162$ Elektronen. Mit Hilfe einer angelegten hohen Spannung (100 V - 200 V) am Halbleiter werden diese Elektronen sehr schnell ausgelesen, verstärkt und einer Photonenenergie zugeordnet [31]. Photonen, die während des Ausleseprozesses auf den Detektor treffen, werden ignoriert.

Im Gegensatz dazu können zwei simultan erfasste Photonen nicht voneinander unterschieden werden und es wird eine sog. pile-up Linie (*pile-up*, engl.:*ansammeln*) erzeugt. Treffen bspw. zwei 8 keV Photonen gleichzeitig auf den Detektor, so wird ein einzelnes Photon mit einer Energie von 16 keV registriert, da doppelt so viele Elektronen erzeugt werden. Für die Messung an einer Röntgenröhre mit den intensiven charakteristischen Linien können diese Linien zur Energieachsenkalibrierung verwendet werden. Mit diesem Detektionsverfahren können Energieauflösungen im Bereich von ca. 150 eV, z.B. beim ^{55}Fe -Nuklid erzielt werden [31].

3.3 Verwendete Detektoren

In dieser Arbeit wird als Mikroskopkamera ein Röntgen-CCD der Firma Princeton Instruments Typ PI-LCX-1300 mit einer Pixelgröße von $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ verwendet. Mit Hilfe eines thermoelektrischen Peltier-Elements wird der Chip auf ca. $-50\ ^\circ\text{C}$ gekühlt und so das Dunkelrauschen reduziert. Die Kamera wird in einer Hochvakuumumgebung installiert, um zu verhindern, dass Wassermoleküle in der Luft am CCD gefrieren. Der Chip besitzt eine große Verarmungszone (Deep-Depletion), um eine hohe Effizienz für harte Röntgenphotonen zu erzielen. Er hat eine DQE von ca. 45% für 8 keV und von ca. 35% für 9,25 keV [116]. Für alle röntgen-mikroskopischen Aufnahmen dieser Arbeit wird diese Kamera verwendet. Zur Charakterisierung der

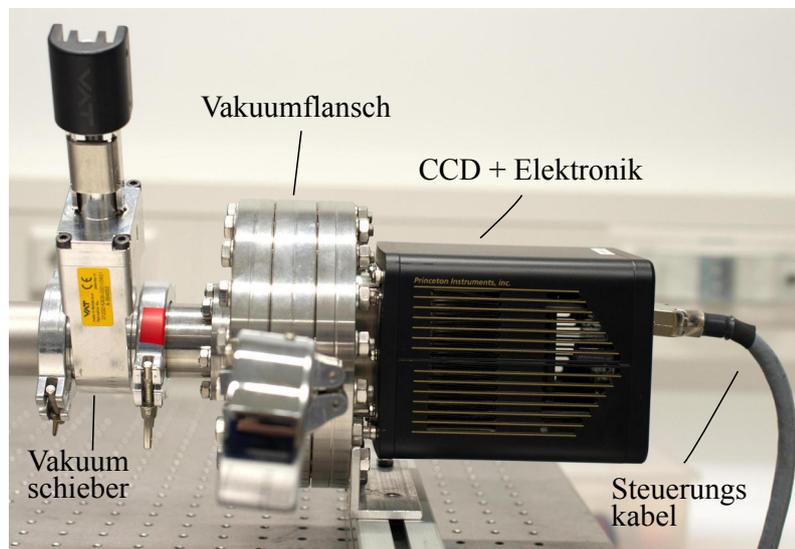


Abbildung 3.3.1: Foto der Princeton Instruments PI-LCX-1300 Röntgen-CCD-Kamera.

Kondensoroptik wird in dieser Arbeit ein Flatpaneldetektor (Szintillatorkristall direkt gekoppelt mit einem CMOS-Chip) der Firma Hamamatsu Typ C7921CA-02 verwendet. Der Sensor hat 1024×1024 Pixel mit einer Pixelgröße von $50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m}$. Da sich die Spotgrößen der Kondensoren sehr stark unterscheiden, reicht die Auflösung des Hamamatsu-Detektors für das zweite Kondensorsystem nicht aus. Dazu wird ein eigens erstelltes hochauflösendes Detektorsystem aus feinkörnigen

P43 Phosphor, einem Mikroskopobjektiv mit hoher Apertur und einer gekühlten CCD (Photometrics Slow Scan) für sichtbares Licht eingesetzt. Spektroskopische Messungen werden im Verlauf der Arbeit mit dem energie-dispersiven Detektor XR-100CR der Firma Amptek durchgeführt. Abbildungen 3.3.1 und 3.3.2 zeigen Fotos der verwendeten Detektoren.

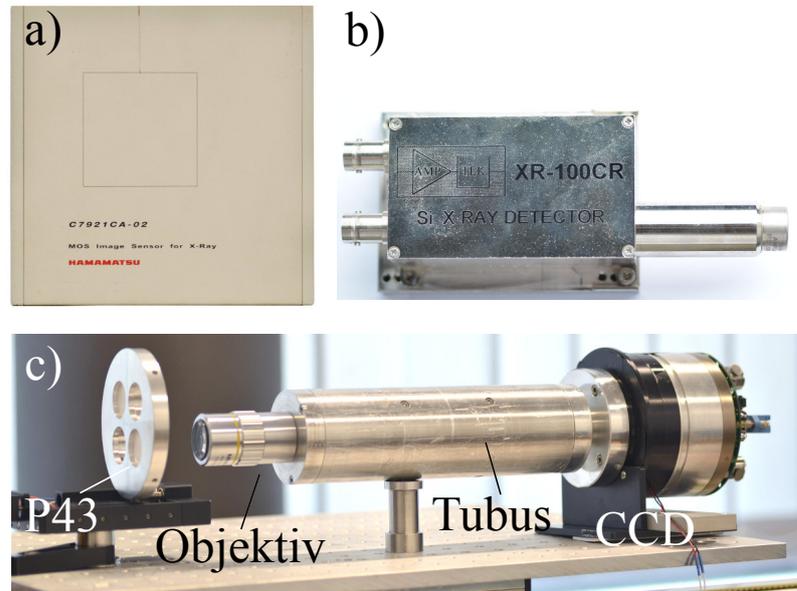


Abbildung 3.3.2: Detektoren für Charakterisierungsmessungen. a) Hamamatsu Flatpanel Szintillator, b) Amptek Si-PIN Photodiode, c) Phosphor-CCD-Detektorsystem.

3.3.1 Detektor-Charakterisierung

Das Detektorsystem Phosphor-CCD wird in der Arbeit verwendet, um eine Polykappillaroptik bzgl. ihrer Spotgröße zu untersuchen. Um das Auflösungsvermögen des Systems zu bestimmen, projiziert eine Mikrofokus Röntgenröhre ein Auflösungsobjekt aus Gold mit verschiedenen Linienbreiten auf den Phosphor. Das Target ist dabei näherungsweise in Kontakt mit dem Phosphor, so dass ein Abbildungsmaßstab von Eins vorliegt. Ein Mikroskopobjektiv mit einer numerischen Apertur von 0,28 bildet den Phosphor mit 15,5-fachen Vergrößerung auf den CCD mit einer Pixelgröße von $24\ \mu\text{m}$ ab. Es ergibt sich eine effektive Pixelgröße von $1,5\ \mu\text{m}$. Der Phosphor besitzt eine mittlere Korngröße von ca. $3\ \mu\text{m}$. Die Schichtdicke ist nicht bekannt und das Auflösungsvermögen wird über die Abbildungsqualität experimentell bestimmt. In Abbildung 3.3.3 ist das Resultat der Auflösungsmessung inklusive des gemessenen mittleren Bildkontrastes zu sehen. Sind die $5\ \mu\text{m}$ breiten Linien noch mit einem Kontrast von 10% deutlich zu erkennen, so können die $3\ \mu\text{m}$ Linien mit einem Kontrast von 4% gerade so noch aufgelöst werden. Hier sei erwähnt, dass die Größe der Röntgenquelle im Bereich von ca. $3\ \mu\text{m}$ liegt und damit das Messprinzip an seine Grenzen stößt. Da sich die gemessene Auflösung der mittleren Korngröße des Phosphors nähert, wird kein besseres Auflösungsvermögen erwartet. Ein Kontrast

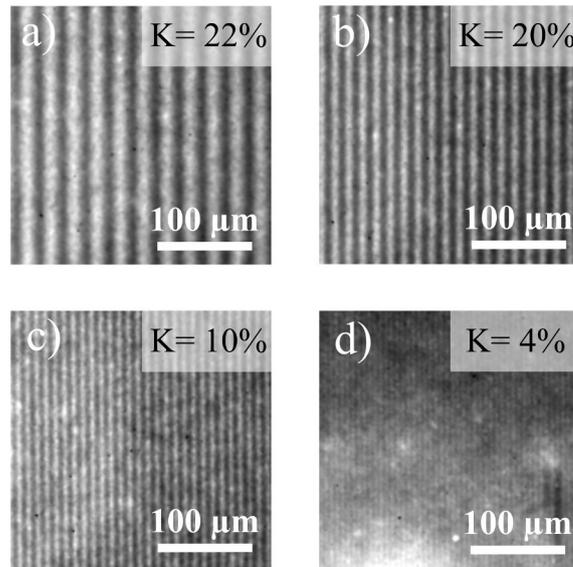


Abbildung 3.3.3: Ergebnisse der Auflösungsmessung am Detektorsystem Phosphor-CCD mit zugehörigem Bildkontrast K . Linienbreiten: a) $12,5 \mu\text{m}$, b) $7,5 \mu\text{m}$, c) $5 \mu\text{m}$ und d) $3 \mu\text{m}$.

von 10% bei einer Linienbreite von $5 \mu\text{m}$ reicht aus, um die angekündigte Charakterisierungsmessung der Polykapillaro-optik durchzuführen. Die Messung zeigt, dass die Auflösung des Systems durch den Phosphor bestimmt wird und die Kombination aus Objektiv und Kamera mit einer effektiven Pixelgröße von $1,5 \mu\text{m}$ die Gesamtauflösung nicht limitiert.

Da für den Hamamatsu Flatpaneldetektor die Pixelgröße und demnach die Auflösung bekannt ist, ist hier keine Charakterisierungsmessung notwendig. Die Princeton Instruments Röntgen-Kamera für das in dieser Arbeit entwickelte Mikroskop wird im Gesamtaufbau charakterisiert, bzw. die erzielbare mikroskopische Auflösung durch den Vergrößerungsmaßstab bestimmt. Die Ergebnisse dazu werden in Kapitel 7 vorgestellt. In Tabelle 3.3.1 erhält man zusammenfassend einen Überblick über die charakteristischen Daten der verwendeten Detektoren.

Tabelle 3.3.1: Daten der verwendeten Detektoren.

Detektor	Pixelanzahl	Pixelgröße	DQE
PI LCX 1300	1340 x 1300	$20 \mu\text{m}$	45%(8 keV) 35%(9 keV)
Hamamatsu Flat-Panel	1024 x 1024	$50 \mu\text{m}$	k.A.
Phosphor-CCD-System	612 x 612	$1,5 \mu\text{m}$	k.A.
Detektor	Typ	Fläche	Auflösung @ 5,9 keV
XR-100CR	Si-PIN	6mm^2	ca. 150 eV

Kapitel 4

Laborröntgenquellen

Die ersten kommerziell erhältlichen Röntgenröhren am Ende des 19. Jahrhunderts sind sog. Ionenröhren mit einer Kathode und Anode in einem evakuierten Glaskolben. Aufgrund eines nur geringen Vakuums sind ionisierte Teilchen im Glaskolben vorhanden, die durch das elektrische Feld beschleunigt werden und auf der Kathode Elektronen herausschlagen. Treffen diese Elektronen auf die Anode, werden dort Röntgenstrahlen erzeugt. Die wesentlichen Probleme dieser Anordnung liegen in der nur schwer regulierbaren Hochspannung, sowie des Röhrenstroms. Zusätzlich entsteht ein Abtrag des Kathodenmaterials und eine dadurch verbundene Ablagerung an der Glaswand [13]. Erst durch W.D. Coolidge im Jahr 1912 wird die Röntgenröhre technologisch modernisiert. Elektronen werden nun durch Glühemission aus einem Wolframdraht freigesetzt, indem das Filament bzw. die Kathode, durch einen angelegten Strom beheizt wird. Der wesentliche Vorteil dieser Anordnung ist die Möglichkeit der getrennten Regulierung von Hochspannung (Bremsstrahlungsmaximum) und Röhrenstrom (Strahlungsintensität) [52, 71]. Zusätzlich ist um den Glühfaden eine zylindrische Metallkappe mit negativem Potential angebracht, der sog. Wehneltzylinder. Die Feldlinien dieses Potentials bündeln die Elektronen in Richtung Anode. Im Grunde wird die von Coolidge entwickelte Technik bis heute verwendet. Der limitierende Faktor, damals wie heute, ist die Wärmeentwicklung im Anodenmaterial. Die kinetische Energie der Elektronen wird nur zu einem sehr geringen Teil (ca. 1%) in Röntgenphotonen umgewandelt. Ein besserer Abtransport der Wärme wird durch Kühlung der Anode erreicht, dennoch schmilzt auch hier das Anodenmaterial bei zu hohen Strömen. Das Wärmeproblem verstärkt sich zusätzlich bei sehr kleinen Elektronenstrahlspots und erst mit dem *Goetze-Linienfokus* sind kleinere Röntgenspots möglich, ohne die Röhrenleistung zu verringern. Ein weiterer technischer Fortschritt gelang mit der Erfindung der rotierenden Anode durch die Firma *Philips* im Jahr 1929. Durch fortlaufende Rotation der Anode wird die Hitze kontinuierlich vom Elektronenstrahl weg transportiert und dadurch eine deutliche Erhöhung der Röhrenleistung bei gleichzeitig kleinem Röntgenspot ermöglicht. Erst in diesem Jahrtausend gelang eine weitere grundlegende Erneuerung der Röhrentechnik mit der Flüssig-Metall-Quelle. Anstelle eines Festkörpertargets wird nun ein flüssiger Metall-Jet verwendet. Der Elektronenstrahl trifft ständig auf neues, regeneriertes, flüssiges Metall. Röntgenspots von wenigen Mikrometern bei gleichzeitiger

Röhrenleistung von ca. 200 W können mit diesem System erzeugt werden [46].

Dieses Kapitel beschreibt zunächst die Funktionsweise der Hauptkomponenten einer Röntgenröhre (Elektronenstrahlerzeugung und -fokussierung) und stellt anschließend die zwei verwendeten Röntgenquellen (iMOXS Mikrofokus und Excillum Metall-Jet) vor. Beide Strahlungsquellen werden bzgl. Spotgröße, Röntgenspektrum und Brillanz charakterisiert und schließlich gegenübergestellt.

Alle dargestellten gemessenen Spektren werden mit dem XR-100CR X-ray Detektor der Firma AmpTek in großem Abstand zur Quelle gemessen. Ein Blei-Pinhole mit 1,0 mm bzw 0,2 mm Durchmesser, direkt vor dem Detektor, verkleinert dabei den aufgefangenen Raumwinkel und ermöglicht eine Messung mit nur ca. 1% Totzeit des Detektors.

4.1 Elektronenkanone

Ein elementarer Bestandteil einer Röntgenröhre ist die Erzeugung von freien Elektronen und daher der erste notwendige Schritt zur Erzeugung von Röntgenstrahlen. Üblicherweise werden freie Elektronen erzeugt in dem z.B. ein Wolframdraht oder ein Lanthanhexaborid-Kristall (LaB_6) geheizt wird. Bei genügend hoher thermischer Energie können Elektronen aus dem Fermi-Niveau ins Vakuum-Niveau angehoben werden und die Kathode verlassen. Die thermische Anregung muss so hoch sein, dass die Elektronen die Austrittsarbeit überwinden können. Mit Hilfe eines elektrischen Feldes zwischen der Kathode und der Anode können diese freien Elektronen „abgesaugt“ werden. Dieser Effekt wird Glühemission, Thermionische Emission oder Richardson-Effekt genannt. Die Richardson-Gleichung [86, 106],

$$J = AT^2 e^{-W/kT}, \quad (4.1)$$

gibt dabei den Zusammenhang zwischen Kathodentemperatur T und der Stromdichte J an, wobei A für eine Materialkonstante, k für die Boltzmannkonstante und W für die Austrittsarbeit steht. In Abbildung 4.1.1-Links ist die Fermi-Dirac-Verteilung bei unterschiedlichen Temperaturen von 0 – 3000 K dargestellt. An der Stelle $E - E_{Fermi} = 0$, der Fermi-Energie, ist die Besetzungswahrscheinlichkeit für alle Fermionen (hier Elektronen) gleich $\frac{1}{2}$ und mit steigender potentieller Energie fällt die Besetzungswahrscheinlichkeit sehr schnell gegen Null. Betrachtet man den Bereich oberhalb des Vakuum-Niveaus (gestrichelte Linie in Abbildung 4.1.1-Links), so fällt auf, dass mehr freie Elektronen existieren, je größer die Temperatur ist. Eine hohe Stromdichte erreicht man kurz unterhalb der Schmelztemperatur des Materials. Ein typischer Wert für die Temperatur eines Wolframdrahtes liegt zwischen 2500 – 3000 K, die Schmelztemperatur liegt bei 3650 K. LaB_6 -Kristalle besitzen eine geringere Austrittsarbeit und es reicht eine Temperatur von 1400 – 2000 K für die Anregung der Elektronen ins Vakuum-Niveau [86]. Abbildung 4.1.1-Rechts zeigt die Stromdichte-Verteilung für Wolfram und LaB_6 , in Abhängigkeit der Temperatur.

Neben der oben besprochenen Heißkathoden-Emission können freie Elektronen über die sog. Feldemission, den Kaltkathodenröhren, erzeugt werden. Eine Wolframspitze mit einem Krümmungsradius von wenigen 100 nm emittiert Elektronen

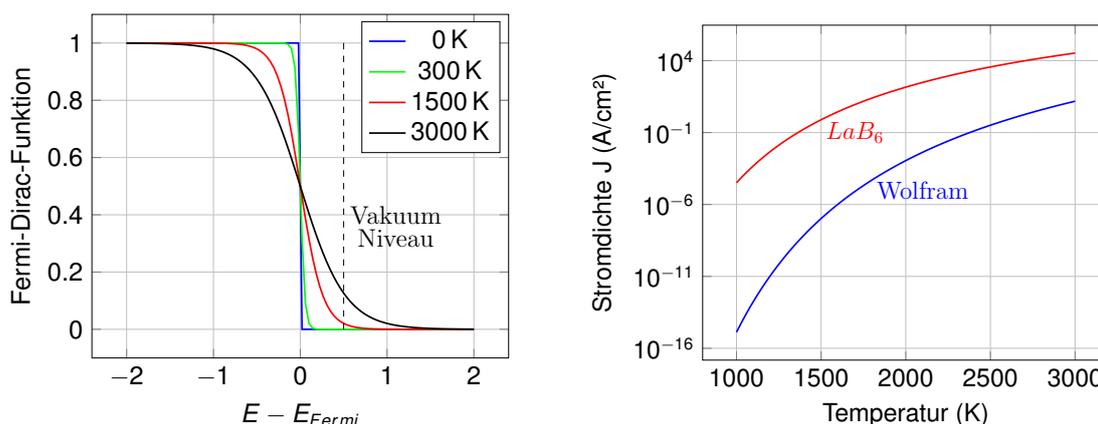


Abbildung 4.1.1: Links: Fermi-Dirac-Verteilung bei unterschiedlichen Temperaturen. Rechts: Stromdichte für Wolfram und LaB_6 bei steigender Temperatur. Berechnet nach Formel 4.1.

durch ein angelegtes elektrisches Feld. Elektronen können aus dem Fermi-Niveau mit Hilfe des Tunneleffekts austreten, da das angelegte Feld die zu überwindende Potentialbarriere verringert. Weitere Informationen zu Röntgenröhren mit Feldemissionskathoden findet man in [8, 53].

4.2 Elektronenoptik

Um die freien Elektronen abzulenken, zu formen bzw. zu fokussieren, wird eine Elektronenoptik benötigt. Im Gegensatz zu Photonen besitzen Elektronen eine elektrostatische Ladung. Ein elektrisches Feld ist daher in der Lage die Elektronen in eine andere Bahn zu lenken. Aufgrund der Tatsache, dass sich die Elektronen zusätzlich bewegen, induziert der Elektronenstrahl einen Strom, der sich mit Hilfe eines magnetischen Feldes ablenken lässt [34]. Die einfachste Form einer Elektronenoptik ist eine elektrostatische Linse, z.B. ein Wehneltzylinder. Diese zylindrische Kappe mit einer zentralen Apertur umschließt das Filament und besitzt ein zusätzliches negatives Potential. Das elektrische Feld bewirkt dabei, dass Elektronen, welche sich nicht auf der optischen Achse bewegen, eine rückstellende Kraft erfahren und zurück zur optischen Achse gelenkt werden. Somit erzeugen die Potentiallinien der elektrostatischen Linse einen konvergenten Elektronenstrahl und einen Fokus in einem definierten Abstand zum Filament [68]. Für sehr kleine Elektronenspots reichen elektrostatische Linsen nicht aus, stattdessen kommen Magnetlinsen zum Einsatz. In einer solchen Linse erzeugt eine stromdurchflossene Spule ein magnetisches Feld und jedes Elektron erfährt beim Durchgang durch die Linse die Lorentzkraft \vec{F} [34]:

$$\vec{F} = e(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}), \quad (4.2)$$

wobei e der elektrischen Ladung, \vec{v} der Geschwindigkeit des Elektrons, \vec{E} dem elektrischen Feld und \vec{B} dem magnetischen Fluss entspricht. Analog zur elektrostatischen Linse würde ein homogenes Magnetfeld nur eine Ablenkung bewirken. Entscheidend

ist die geometrische Form der Feldlinien. Zwar können Magnetlinsen deutlich kleinere Spots als elektrostatische Linsen erzeugen, benötigen im Gegenzug mehr Platz.

4.3 Mikrofokus Röntgenquelle iMOXS

Im Rahmen dieser Arbeit wird eine Mikrofokus-Röntgenquelle der Firma IFG-Berlin verwendet [17]. Die darin verbaute Röntgenröhre ist von der Firma rtw Röntgentechnik Dr. Warrikhoff. Die Quelle wird über eine externe Steuereinheit entweder über das Frontpanel, oder via USB-Schnittstelle, über einen PC angesteuert. Die Ansteuerung via PC hat den Vorteil, dass Aufwärmroutinen nach längeren Standzeiten automatisch ablaufen können und dadurch Schäden, besonders am Filament, vermieden werden. Die Röntgenquelle besitzt ein Wolframfilament und ein Kupfertarget auf der Anode. Die Kathode liegt dabei auf Masse und die Anode auf Hochspannung. Die Anode ist bei der iMOXS-Quelle ein Kupferblock, unabhängig vom Targetmaterial, da Kupfer sehr gute Wärmeleitfähigkeit besitzt und so die entstehende Wärme vom Target abtransportiert. Ein integrierter Lüfter wirkt der Wärmeentwicklung auf der Anode zusätzlich entgegen. Ein 100 μm dickes Berylliumfenster schließt das Vakuum ab und dient als Austrittsfenster für die Röntgenstrahlung. Die Röntgenröhre erfüllt die Strahlenschutzbestimmungen bei geschlossenem Verschluss. Abbildung 4.3.1 zeigt ein Foto der Röhre und Abbildung 4.3.2 den sche-

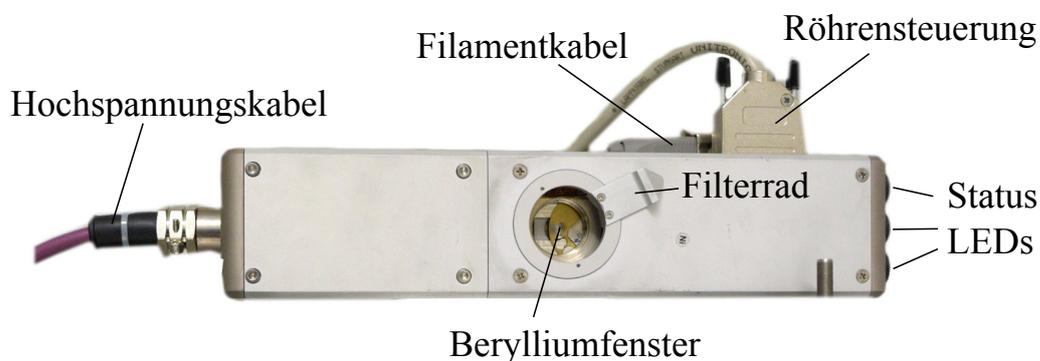


Abbildung 4.3.1: Foto der iMOXS Röntgenquelle.

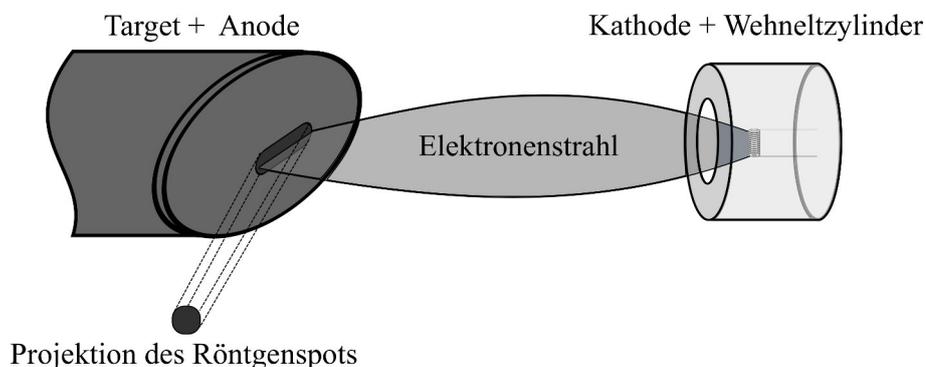


Abbildung 4.3.2: Schematische Darstellung der iMOXS-Röntgenquelle.

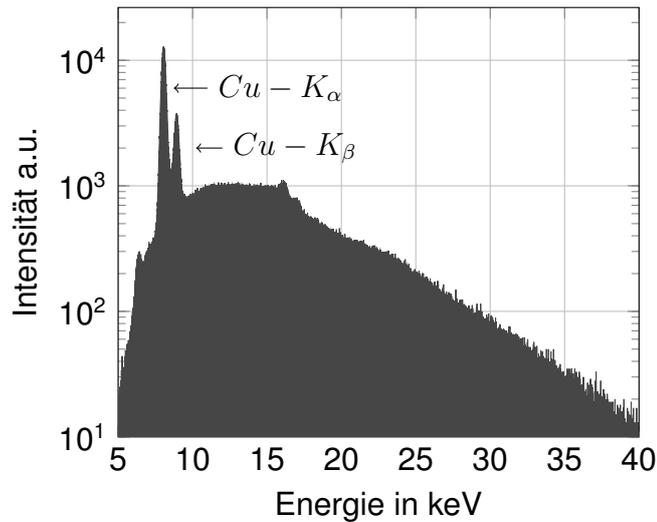


Abbildung 4.3.3: Röntgenspektrum der Kupferanode.

matischen Aufbau der Mikrofokusquelle. Elektronen aus der Kathode werden durch die Anodenspannung angesaugt und auf das Target beschleunigt. Ein Wehneltzylinder umschließt den Wolframdraht und erzeugt ein elektrostatisches Feld, das den Elektronenstrahl auf das Target fokussiert. Der Elektronenstrahl besitzt auf dem Kupfertarget unterschiedliche Ausdehnungen in horizontaler und vertikaler Richtung (Goetze-Liniefokus). Der Anodenwinkel von 12° erzeugt in Projektion wiederum eine symmetrische Ausdehnung des Röntgenspots. Tabelle 4.3.1 fasst die Herstellerdaten der Röhre zusammen.

Tabelle 4.3.1: Technische Daten der iMOXS-Röntgenquelle laut Hersteller.

Target(Anodenwinkel):	Kupfer (12°)
Abstrahlwinkel:	8°
max. Spannung:	50 kV
max. Leistung:	30 W
Spotgröße (x, y):	50 μm

4.3.1 Röntgenspektrum des Kupfertargets

Treffen Elektronen aus der Kathode auf das Target, so entstehen charakteristische Linien und Bremsstrahlung, siehe Kapitel 2.2. Abbildung 4.3.3 zeigt ein Röntgenspektrum mit den für Kupfer typischen Linien bei 8,05 keV, der K_α -Strahlung sowie der K_β -Linie bei 8,9 keV. Die für das Transmissionsmikroskop relevante Linie ist die K_α -Linie. Diese Linie setzt sich aus den $K_{\alpha-1}$ und $K_{\alpha-2}$ Übergängen zusammen und weist die höchste Photonenzahl auf. Eine Übersicht der Linien der K-Serie und der jeweiligen Linienbreite ist in Tabelle 4.3.2 zu finden. Die Zahl der emittierten

Tabelle 4.3.2: Energien und Linienbreiten (FWHM) der K_α - und K_β -Linien von Kupfer [32, 33].

	Energie (eV)	Linienbreite(eV)
K_{α_1} :	8047,83	2,29
K_{α_2} :	8027,85	3,34
K_{β_1} :	8905,49	3,64
K_{β_3} :	8903,10	3,43

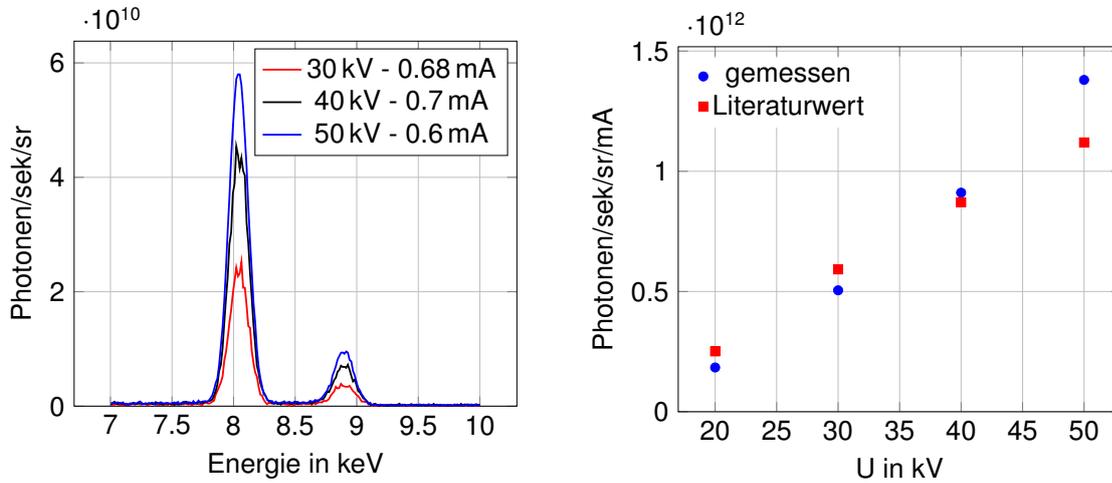


Abbildung 4.3.4: Links: Gemessene charakteristische K_α - und K_β -Linienstrahlung von Kupfer bei steigender Beschleunigungsspannung U und jeweils maximal möglichem Filamentstrom. Rechts: Summe aller Photonen in der K_α -Linie bei steigender Beschleunigungsspannung U im Vergleich mit Werten aus [44].

Photonen in den charakteristischen Linien steigt bei gleichbleibendem Strom mit der Größe der angelegten Beschleunigungsspannung. Zusätzlich wächst die Photonenanzahl linear mit dem Röhrenstrom. Für die unterschiedlichen Spannungen liegen jeweils Strombegrenzungen vor, um das Targetmaterial zu schonen bzw. zu schützen. Dementsprechend gibt es zu jedem Spannungswert einen maximalen Stromwert. Abbildung 4.3.4-Links zeigt die charakteristischen Linien von Kupfer bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen und den jeweils maximal möglichen Filamentströmen. Demnach werden bei einer Spannung von 50 kV und einem Strom von 600 μ A am meisten Photonen pro Sekunde und Raumwinkel in der K_α - und K_β -Linie erzeugt. Ein Vergleich der Photonenzahlen pro Sekunde, Raumwinkel und Milliampere mit Literaturwerten aus [44] liefert Abbildung 4.3.4-Rechts. Bei der Berechnung ist die Absorption von Luft bzw. Beryllium- oder PI-Folienfenstern berücksichtigt worden.

4.3.2 Quellgröße

Zur Untersuchung der räumlichen Ausdehnung des Röntgenspots wird eine Metallkante zwischen dem Spot und einem Röntgen-CCD positioniert (siehe Abbildung 4.3.5). Der Quellspot erzeugt dabei einen vergrößerten Schatten der Kante auf

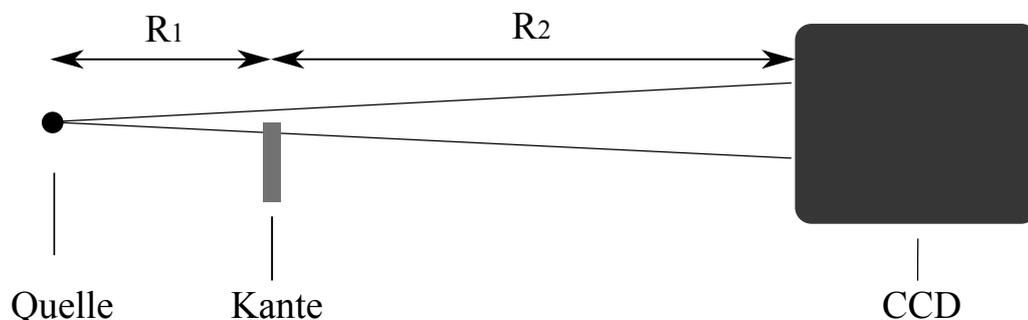


Abbildung 4.3.5: Schema der Kantenprojektion zur Quellgrößenbestimmung.

dem CCD, wobei die Pixelanzahl des Kantenübergangs im Bild einen Rückschluss auf die Quellgröße liefert. Der Abbildungsmaßstab M der Projektion ist gegeben durch:

$$M = \frac{R_1 + R_2}{R_1}. \quad (4.3)$$

Die Steilheit des Kantenübergangs von 10% bis 90% des Intensitätsunterschieds entspricht dabei der FWHM-Ausdehnung des Spots in entsprechend gemessener Richtung. Abbildung 4.3.6 und 4.3.7 zeigen die Intensitätsbilder der Kantenprojektion in x- und y-Richtung bei 11-facher Vergrößerung der Kante. Der Abbildungsmaßstab wird dabei so gewählt, dass die effektive Pixelgröße deutlich unter der zu erwartenden Auflösung durch den Röntgenspot liegt. Die Kantensteilheit wird daher ausschließlich durch die Quellgröße bestimmt.

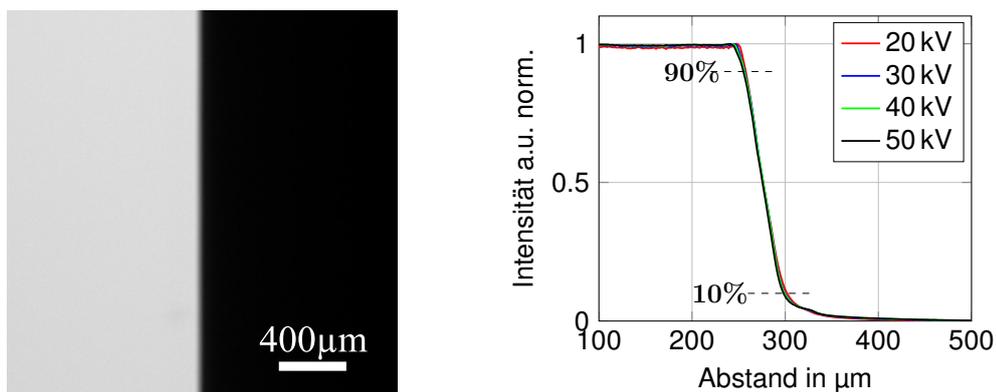


Abbildung 4.3.6: Quellgrößenmessung an der iMOXS-Quelle. Links: Projektionsbild einer Kante zur Abschätzung der Quellgröße in x-Richtung. Vergrößerung: 11-fach. Rechts: Intensitätsverlauf der Kante bei unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen.

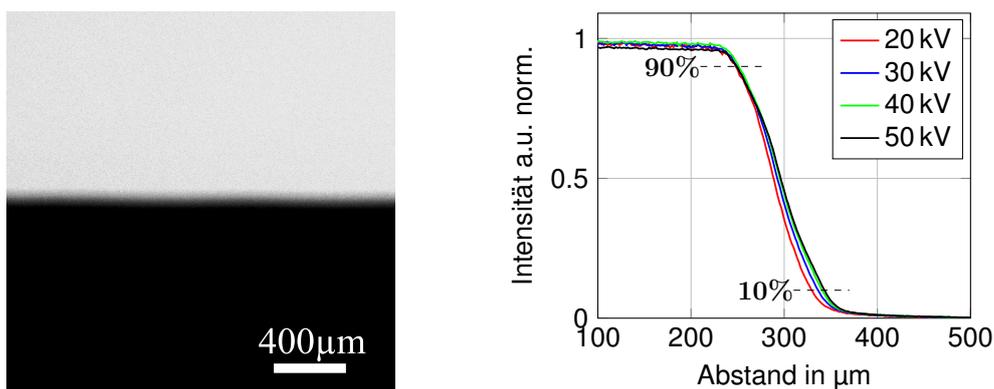


Abbildung 4.3.7: Quellgrößenmessung an der iMOXS-Quelle. Links: Projektionsbild einer Kante zur Abschätzung der Quellgröße in y-Richtung. Vergrößerung: 11-fach. Rechts: Intensitätsverlauf der Kante bei unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen.

Die Messung liefert eine Spotgröße von $50\ \mu\text{m}$ in x-Richtung und von $85\ \mu\text{m}$ in y-Richtung. Die Ausdehnung in y-Richtung weicht beträchtlich vom Wert des Herstellers ab, siehe Tabelle 4.3.1. Die Messung wird bei unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen durchgeführt, die Quellgröße in x- und y-Richtung bleibt jeweils unverändert.

4.4 Mikrofokus Flüssig-Metall-Jet Röntgenquelle Excillum

Die Mikrofokus Röntgenquelle der Firma Excillum besitzt ein gänzlich anderes Anodenkonzept [78, 79]. Die Röntgenröhre enthält kein Festkörpertarget, sondern einen flüssigen Metall-Jet. Das Metall wird aus einem Reservoir mit hohem Druck durch ein Düsensystem geleitet und dadurch ein sehr dünner Jet erzeugt. Ein fokussierter Elektronenstrahl generiert auf dem vorbei fließendem Target Röntgenstrahlung. Der Durchmesser des Jets beträgt $180\ \mu\text{m}$. Das Metall wird nach der Wechselwirkung mit dem Elektronenstrahl zurück ins Reservoir geleitet und regeneriert. Dieser Kreislauf wiederholt sich kontinuierlich. Im Gegensatz zur iMOXS-Quelle ist die Kathode ein LaB_6 -Kristall. Die durch Glühemission erzeugten Elektronen werden durch eine angelegte Hochspannung zwischen Kathode und Anodenlochblende beschleunigt, mit Hilfe von Spulen zentriert und durch eine Elektronenlinse auf dem Metall-Jet fokussiert. Wie eingangs schon erwähnt, begrenzt der Schmelzpunkt des Targetmaterials den Kathodenstrom und somit die Anzahl der erzeugten Röntgenphotonen sowie die Größe des Röntgenspots. Da Röntgenstrahlung kontinuierlich auf regeneriertem Metall erzeugt wird und das Target bereits in flüssiger Form vorliegt, kann der Röhrenstrom auf einem sehr kleinen Spot deutlich erhöht werden. Die hohe Jet-Geschwindigkeit von ca. $50\ \text{m s}^{-1}$ wirkt der stationären Wärmeentwicklung zusätzlich entgegen und transportiert die Hitze vom Röntgenspot weg. Das verwendete Metall ist eine Gallium-Indium-Legierung, die bei Raumtemperatur in flüssiger

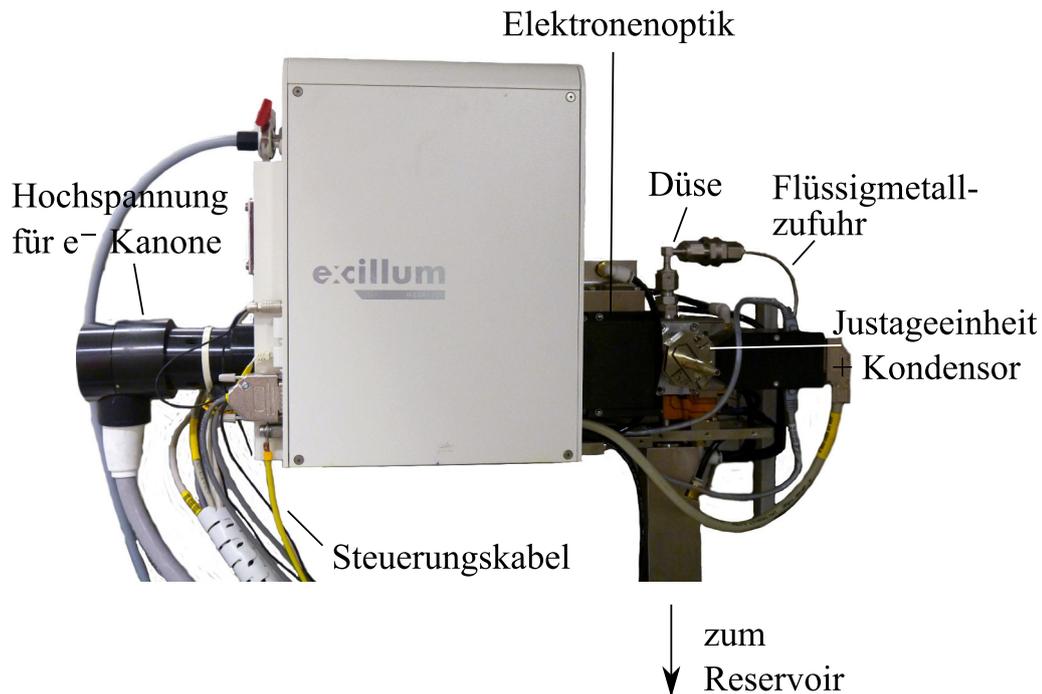


Abbildung 4.4.1: Foto der Excillum Metall-Jet Röntgenquelle.

Form vorliegt. In der aktuellen Version der Excillum-Quelle ist es möglich, einen Röntgenspot ($20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$) bei 200 W Leistung zu erzeugen. In Abbildung 4.4.1 ist ein Foto der Quelle und in Abbildung 4.4.2 der schematische Aufbau zu sehen.

4.4.1 Röntgenspektrum des Gallium-Indium Jets

Das Röntgenspektrum der Excillum-Quelle wird ebenfalls mit dem energie-dispersiven Detektor gemessen und ist in Abbildung 4.4.3 dargestellt. Neben den intensiven Gallium K_{α} - und K_{β} -Linien bei 9,25 keV bzw. 10,26 keV ist außerdem die Indium K_{α} -Linie bei 24,21 keV zu sehen. Eine Übersicht der Gallium und Indium K_{α} - und K_{β} -Linien mit den zugehörigen natürlichen Linienbreiten fasst Tabelle 4.4.1 zusammen.

Die Steuersoftware der Röhre ermöglicht eine Veränderung der Größe des Elektronenstrahlspots, so dass die Größe der Röntgenquelle variiert werden kann. Diese Einstellung limitiert dabei die maximal einstellbare Leistung. Mit einem Linienfokus des Elektronenstrahls von $80\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ ist die maximale Leistung von 200 W zulässig. Bei der höchstmöglichen Beschleunigungsspannung von 70 kV liegt somit ein Strom von 2,86 mA vor. Zusätzlich kann die Position des Elektronenstrahls, relativ zum Jet-Mittelpunkt, verändert werden. Aufgrund der Projektion des Elektronenstrahlspots auf dem runden Metall-Jet ändert sich die Größe der Röntgenquelle und zusätzlich die maximale Ausbeute an Ga- K_{α} Photonen. Abbildung 4.4.4-Links stellt die Intensitäten der Gallium Linien bei verschiedenen Positionen des Elektronenstrahls relativ zum Mittelpunkt des Jets dar und zeigt bei einer Verschiebung von etwa $40\ \mu\text{m}$ die intensivste Linie. Bei dieser Einstellung liegt eine Quellgröße

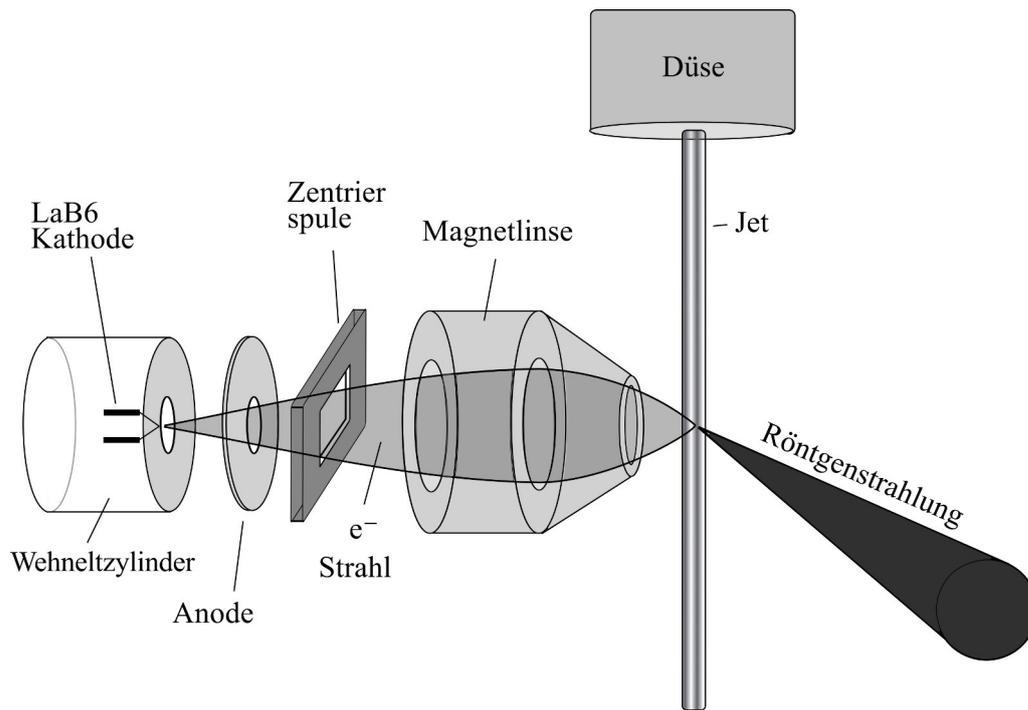


Abbildung 4.4.2: Schematische Darstellung der Flüssig-Metall-Jet Röntgenquelle Excillum.

von ca. $20\ \mu\text{m} \times 60\ \mu\text{m}$ vor. Aufgrund von Selbstabsorption im Metall-Jet ist die Photonenausbeute bei kleinen Verschiebungen geringer, wohingegen bei zu großem Versatz der äußere Rand des Elektronenstrahl den Jet nur noch tangiert und somit die Photonenausbeute abermals sinkt. In Abbildung 4.4.4-Rechts werden die gemessenen Photonenzahlen pro Sekunde, Watt und Mikrosterad mit den Werten des Hersteller verglichen. Die gemessenen Werte weichen im Durchschnitt um einen Faktor von 1,6 von denen des Herstellers ab.

Tabelle 4.4.1: Energien und Linienbreiten (FWHM) der K_{α} - und K_{β} -Linien von Gallium und Indium [58, 102].

	Energie (eV)	Linienbreite(eV)
GaK_{α_1} :	9251,74	2,59
GaK_{α_2} :	9224,82	2,66
GaK_{β_1} :	10 264,2	
InK_{α_1} :	24 209,7	10,56
InK_{α_2} :	24 002,0	10,63

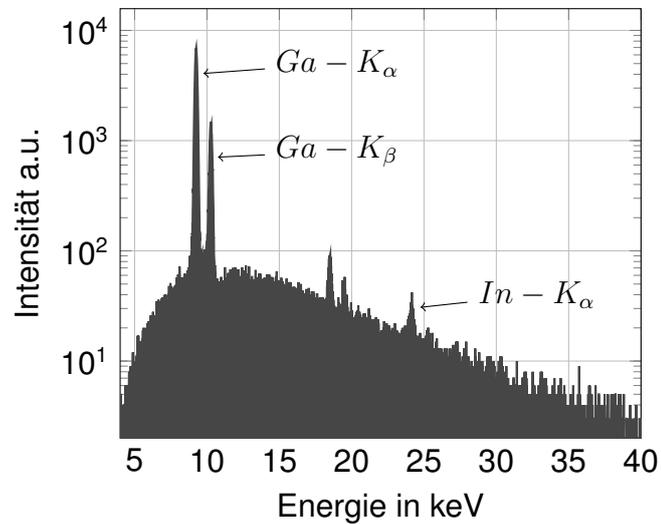


Abbildung 4.4.3: Anregungsspektrum des Gallium/Indium Flüssig-Metall-Jets.

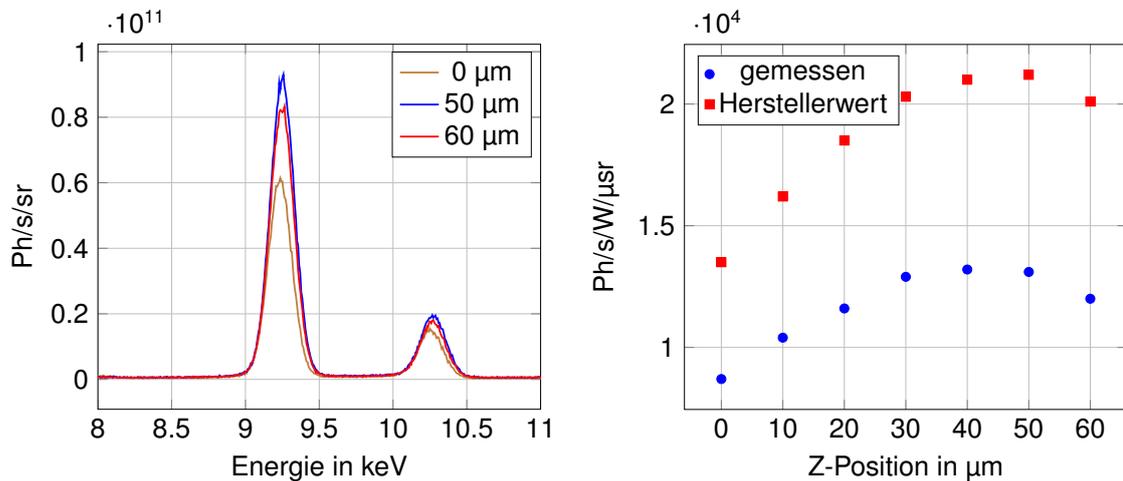


Abbildung 4.4.4: Links: Gallium K_{α} - und K_{β} -Linienintensität bei unterschiedlichen Position des Elektronenstrahls mit einem $80 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ Linienfokus. Rechts: Gallium K_{α} -Intensität in $\text{Ph/s/W}/\mu\text{sr}$ bei verschiedenen z-Positionen des Elektronenstrahls. Gemessene Werte (blau) und Vergleichswerte des Herstellers (rot).

4.4.2 Quellgrößen

Wie im letzten Abschnitt erwähnt, kann die Spotgröße des Elektronenstrahls verändert werden. Ein Linienfokus von $80\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ liefert bei einer Verschiebung von $40 - 50\ \mu\text{m}$ in z-Richtung die meisten Gallium K_α Photonen. Durch die Verschiebung ändert sich dabei die Größe des Röntgenspots aufgrund der Projektion des Elektronenstrahls auf dem runden Metall-Jet. Die Größe der Röntgenspots wird für jede Verschiebung mittels Kantenprojektion gemessen. Die Spotgröße in vertikaler Richtung bleibt dabei konstant und nur die horizontale Ausdehnung wird mit steigender Verschiebung größer. Abbildung 4.4.5 zeigt die Projektionsbilder der Kanten für x- und y-Richtung. Ein Vergleich der beiden Bilder in Abbildung 4.4.5 verdeutlicht



Abbildung 4.4.5: Projektion einer Kante zur Abschätzung der Quellgröße in x-Richtung und y-Richtung. Elektronenstrahlposition Links: $0\ \mu\text{m}$. Rechts: $60\ \mu\text{m}$. Man beachte die unterschiedliche Breite des vertikalen Kantenübergangs in den Bildern.

die Größenänderung des Röntgenspots. Während sich die Steilheit der horizontalen Kante (Quellspot in y-Richtung) nicht ändert, wird der Übergang an der vertikalen Kante (Quellspot in x-Richtung) bei einer Verschiebung von $60\ \mu\text{m}$ breiter. In Abbildungen 4.4.6 und 4.4.7 sind sowohl die Kantenübergänge, als auch die gemessenen Quellgrößen für die x- und y-Richtung dargestellt. Die technischen Daten der Röhre sind in Tabelle 4.4.2 zusammengefasst.

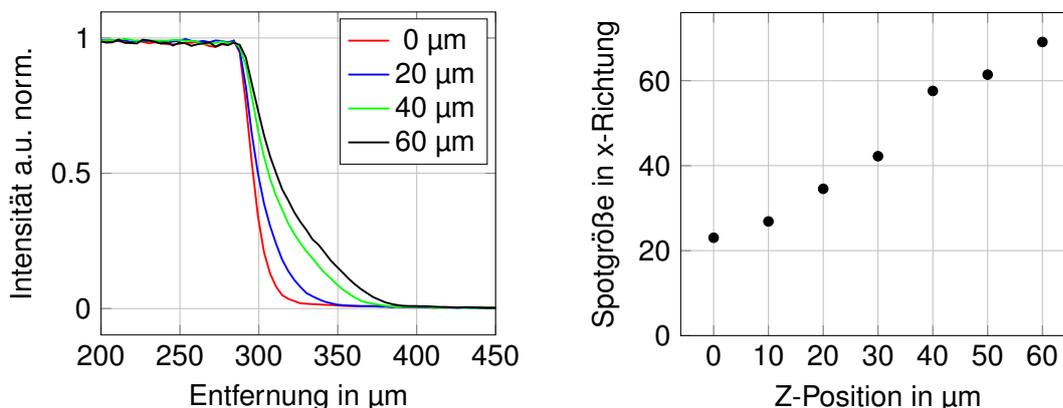


Abbildung 4.4.6: Quellgrößenabschätzung an der vertikalen Kante. Links: Kantenübergang bei verschiedenen z-Positionen des Elektronenstrahls. Rechts: Gemessene Quellgröße nach der 90/10-Methode am Kantenübergang.

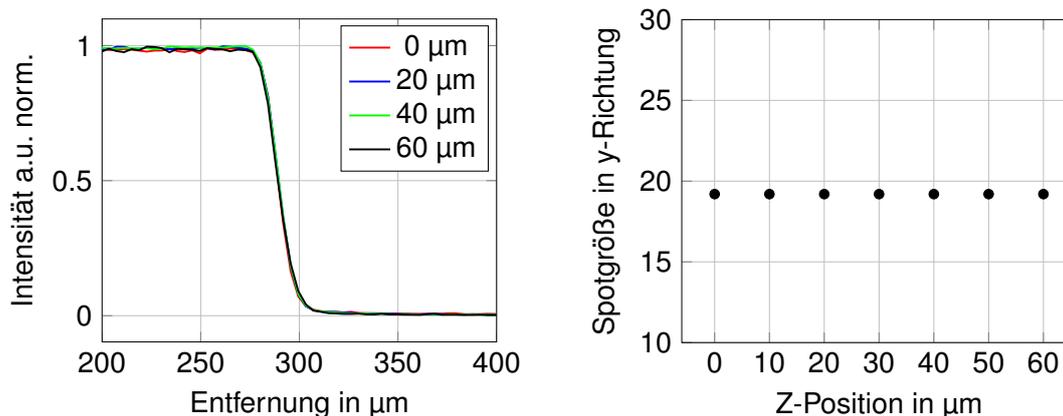


Abbildung 4.4.7: Quellgrößenabschätzung an der horizontalen Kante. Links: Kantenübergang bei verschiedenen z-Positionen des Elektronenstrahls. Rechts: Gemessene Quellgröße nach der 90/10-Methode am Kantenübergang.

Tabelle 4.4.2: Technische Daten der Excillum-Röntgenquelle laut Hersteller.

Target:	Gallium-Indium
Abstrahlwinkel:	10, 5°
max. Spannung:	70 kV
max. Leistung:	200 W
Spotgröße:	variabel

4.5 Vergleich: iMOXS - Excillum Metall-Jet

Bevor beide Quellen bzgl. Brillanz verglichen werden, sollten die Laborröntgenquellen auf ihre Handhabung, Bedienbarkeit und Kompaktheit gegenübergestellt werden. Die iMOXS-Quelle mit einer Abmessung von nur 440 mm \times 120 mm \times 350 mm (H \times B \times T) ist eine sehr kleine und leichte Quelle. Neben der eigentlichen Röhre besitzt sie einen integrierten Lüfter, einen mechanischen Verschluss zur Strahlauskopplung und optional ein Filtrerrad mit verschiedenen Reinelemente-Folien, z.B. Nickel zur Reduktion der Kupfer K_{β} -Linie. Bei der Inbetriebnahme ist lediglich auf eine korrekte Konditionierung der Röhre zu achten, ansonsten ist die Quelle sofort betriebsbereit. Das Frontpanel der Steuereinheit ist übersichtlich, ebenso die Benutzeroberfläche des mitgelieferten Programms zur Ansteuerung via PC. Insofern keine Beschädigungen an Kabeln oder dem Hochspannungsnetzteil vorhanden sind, läuft die Quelle sehr zuverlässig und ohne Leistungseinbrüche. Die Installation und Inbetriebnahme der Flüssig-Metall-Jet Quelle hingegen ist deutlich aufwändiger und bedarf einer fachmännischen Einweisung. Das Equipment besteht aus: Metall-Reservoir inklusive Hochdruckpumpe, Wasserkühlkreislauf, Elektronenkanone plus Elektronenoptik, Vakuumpumpen, Düsensystem für die Jet-Erzeugung und Notstromversorgung. Die Ansteuerungssoftware erlaubt dem Nutzer vielerlei Änderungen am System vorzunehmen, u.a. den Spannungs- und Stromwert der Röhre. Wei-

Tabelle 4.5.1: Brillanzvergleich unterschiedlicher Röntgenröhrentypen. Die Werte für Stationäres Target und Flüssig-Metall-Jet entsprechen den gemessenen Werten für die iMOXS und Excillum-Quelle in den K_α -Linien. Die Werte für die rotierende Anode stammen aus [108].

Röntgenquelle	Leistung (W)	Quellfläche (mm ²)	Brillanz (<i>Ph/sek/mm²/mrad²</i>)
Stationäres Target	30	$2,5 \times 10^{-3}$	$2,6 \times 10^8$
Flüssig-Metall-Jet	200	4×10^{-4}	$3,5 \times 10^9$
Rotierende Anode	1200	1×10^{-1}	$3,5 \times 10^9$

terhin kann der Nutzer die Fokusparameter der Elektronenoptik je nach Bedarf anpassen. Der empfindlichste Teil des Systems ist die Jet-Erzeugung. Eine verstopfte Düse führt zu einem Ausfall des Systems und es dauert i.d.R. mehrere Stunden bis die Quelle erneut betriebsfähig ist. Die iMOXS-Quelle ist somit deutlich kompakter und vergleichsweise wartungsarm. Der entscheidende Vorteil der Excillum-Quelle ist die Brillanz des erzeugten Röntgenspots. Die hohe Leistung, selbst bei sehr kleinen Spots, hebt diese Röntgenquelle von allen bisherigen Röhrenkonzepten ab. Zwar ist bei einer Röhre mit rotierender Anode eine Leistung von 1 kW problemlos möglich, der erzeugte Röntgenspot ist jedoch deutlich größer und hat auf die Quellgröße bezogen eine schlechtere Brillanz.

Drei verschiedene Röntgenröhren sind in Tabelle 4.5.1 gegenübergestellt. Die Brillanz der iMOXS-Quelle mit einem stationären Target, liegt ca. eine Größenordnung unter der Brillanz der Flüssig-Metall-Quelle und der rotierenden Anode. Der Brillanzwert für die Excillum-Quelle wurde mit den Photonenzahlen einer $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ gemessen und decken sich näherungsweise mit denen des Herstellers. Der Brillanzwert für die rotierende Anode stammt aus [108]. Es sollte hier angemerkt werden, dass der darin angegebene Brillanzwert nicht vollständig nachvollziehbar ist. Eine 6-fache höhere Leistung kann bei einer um 3 Größenordnungen höhere Quellfläche nicht die selbe Brillanz erzeugen. Eine eigens durchgeführte Messung sollte ein realistischeres Ergebnis liefern.

Die Leistungsfähigkeit der untersuchten Röntgenquellen im Bezug auf das Mikroskop lässt sich erst in Kombination mit dem verwendeten Kondensator beziffern. Denn dieser muss in der Lage sein, einen Nutzen aus der höheren Brillanz zu ziehen. Kein lineares optisches System ist in der Lage die Brillanz der Quelle zu verbessern [23]. Des weiteren nimmt für die Transmissions-Mikroskopie eine hohe räumlich kohärente Beleuchtung einen geringeren Stellenwert ein als ein hoher Photonenfluss durch die zu untersuchende Probe. In Kapitel 6 werden die verwendeten Kondensoren charakterisiert und bzgl. oben angedeuteten Bedingungen für die Mikroskopie untersucht.

Kapitel 5

Zonenplatte als Mikroskopobjektiv

Eine erste Fachpublikation über die fokussierenden Eigenschaften von konzentrischen Kreisgittern, stammt aus dem Jahr 1866 [38]¹. Diese optischen Gitter werden seither, in Anlehnung an ihren Erfinder Augustin Fresnel, als *Fresnel'sche Zonenplatten* bezeichnet. Noch im selben Jahrhundert gab es weitere Forschungsartikel zu diesem Thema [95, 114], wobei im darauf folgenden Jahrhundert eine Vielzahl an Publikationen zu den Eigenschaften und Anwendungen von Zonenplatten erschienen sind. Es kann neben der Nutzung als bildgebendes Element, z.B. als Interferometer, Fouriertransformator oder Sensorelement eingesetzt werden [35, 69, 77, 94, 97, 121]. Man erkannte sehr schnell, dass Zonenplatten auch als Linsen für kurzwellige Strahlung, z.B. EUV- oder Röntgenstrahlung, eingesetzt werden können, der Herstellungsprozess dies aufgrund zweier Gesichtspunkte zunächst jedoch nicht ermöglichte. Ein unumgänglicher Punkt ist nach wie vor die Verknüpfung von Durchmesser der Zonenplatte und der Breite der äußersten Zone. In der Mikroskopie werden kurze Brennweiten benötigt, um eine hohe Vergrößerung auf geringem Raum zu erzielen. Nach Gleichung 2.22 wird ersichtlich, dass für extrem kurze Wellenlängen der Durchmesser der Zonenplatte sehr klein ist. Eine holographische Herstellung, in einer Photoemulsion, mit Auflösungen von ca. einem Mikrometer, reicht aus diesem Grund nicht aus, um Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie herzustellen [7]. Der zweite Gesichtspunkt ist, dass für sichtbares Licht eine Menge an Materialien zur Verfügung stehen, die entweder vollständig absorbieren oder nur einen Phasenhub verursachen. Im Gegenzug stellte der komplexe Brechungsindex für Röntgenstrahlung, insbesondere der Bereich $>2\text{keV}$, anfangs ein Problem dar. Erst durch die Arbeit von Janos Kirz im Jahr 1974, wurde eine geeignete Kombination aus Material und Zonenhöhe in Bezug auf den Real- und Imaginärteil des Brechungsindex analysiert und auf den Herstellungsprozess angepasst, um gute Beugungswirkungsgrade (BWG) zu erzielen [115]. Ein Jahr später schaffte es eine Arbeitsgruppe aus Göttingen eine Zonenplatte für den weichen Röntgenbereich herzustellen und als Objektiv in einem Labormikroskop einzusetzen [75].

Um die Eigenschaften der in dieser Arbeit verwendeten Zonenplatte besser zu erläutern, wird in folgenden Abschnitten zunächst auf den BWG verschiedener Materialien eingegangen, um danach die Herstellung von Zonenplatten mit hohem

¹Fachpublikation in französischer Sprache.

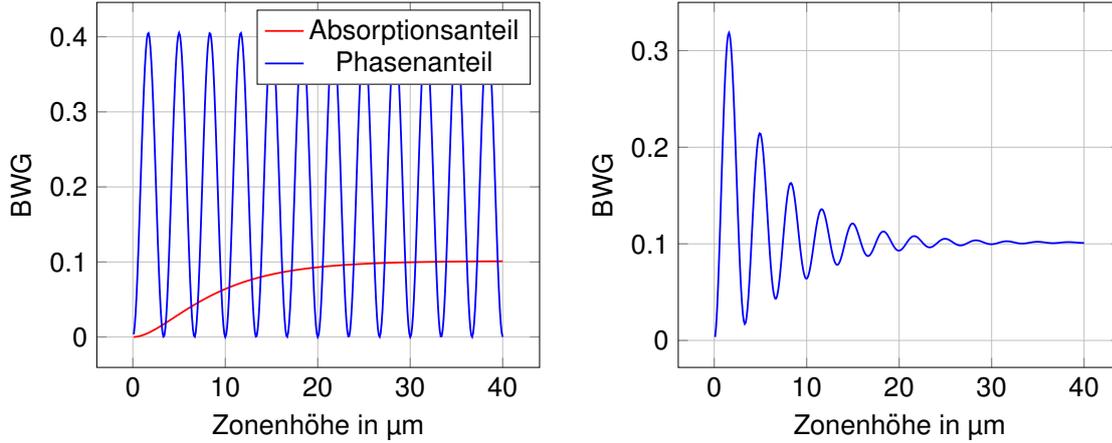


Abbildung 5.1.1: Theoretischer Beugungswirkungsgrad mit steigender Zonenhöhe einer Wolfram Zonenplatte bei 8 keV. Links: Isolierte Darstellungen für jeweils den absorbierenden Teil (rot) und den phasenschiebenden Teil (blau) des Brechungsindex. Rechts: Kombination aus Absorptions- und Phasenterm. Berechnet nach Formel 5.1.

Aspektverhältnis darzustellen. Im Anschluss daran werden die spektralen Eigenschaften von Labor-Röntgenröhren in Bezug auf die Verwendung einer Zonenplatte untersucht, deren Eignung als Mikroskop-Objektiv im Röntgenmikroskop diskutiert und die verwendete Zonenplatte anhand von Simulationsdaten charakterisiert. Für die mathematische Beschreibung von Zonenplatten wird auf Abschnitt 2.4.1 verwiesen.

5.1 Beugungswirkungsgrad

Für sehr kurzwellige Strahlung kann der ideale Fall von rein absorbierenden bzw. phasenschiebenden Zonen nicht angewendet werden. Die starke atomare Wechselwirkung und der damit verbundene komplexe Brechungsindex beinhalten eine Kombination aus Absorption und Phasenhub und beides kann nicht getrennt voneinander betrachtet werden. Die Gleichung 2.27 zur Berechnung des BWG aus Abschnitt 2.4.1 muss daher erweitert werden und es folgt [57, 89]:

$$\eta_m(\lambda) = \frac{\sin^2(Lm\pi)}{(m\pi)^2} [1 + e^{-4\pi\beta h/\lambda} - 2e^{-2\pi\beta h/\lambda} \cos(2\pi\delta h/\lambda)], \quad (5.1)$$

wobei L dem Strich-Periode-Verhältnis, m der Beugungsordnung und h der Zonenhöhe entspricht. Gerade bei hohen Photonenenergien überwiegt für viele Materialien der Realteil δ gegenüber dem Imaginärteil β des Brechungsindex. Dies hat den Vorteil, dass der schwache Absorptionsterm durch einen starken Phasenhub kompensiert werden kann. Abbildung 5.1.1-Links zeigt den BWG isoliert für δ (blau) und β (rot). Abbildung 5.1.1-Rechts stellt den tatsächlichen BWG einer Wolfram Zonenplatte, mit einem Strich-Periode-Verhältnis von 1:2 bei steigender Zonenhöhe dar. Der BWG hat in diesem Fall das Maximum von 32% bei einer Zonenhöhe von 1,6 μm. Bei einer Zonenhöhe von 1 μm liegt der theoretische Wert des BWG bei

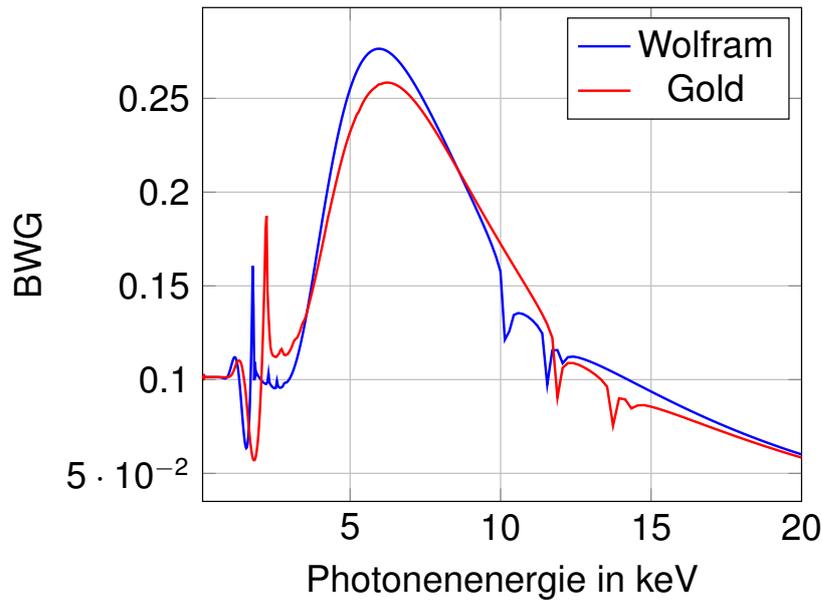


Abbildung 5.1.2: BWG von Wolfram und Gold bei einer Zonenhöhe von $1\ \mu\text{m}$ zwischen $100\ \text{eV}$ und $20\ \text{keV}$. Berechnet nach Formel 5.1.

23%. Oszilliert der BWG anfangs noch recht stark, so überwiegt mit wachsender Zonenhöhe der Absorptionsterm und er geht gegen den theoretischen Wert von 10% für vollständig opake Zonen. Dies bedeutet, dass schon bei geringen Zonenhöhen ein hoher BWG erzielt werden kann. Ein Laboraufbau zur experimentellen Bestimmung des BWG einer Zonenplatte ist in [15] beschrieben.

Neben Wolfram hat sich für harte Röntgenstrahlung Gold als Zonenmaterial durchgesetzt. Beides sind schwere Elemente, haben die gleiche Dichte von $19,3\ \text{g cm}^{-2}$ und eignen sich für einen großen Energiebereich als Zonenmaterial. Abbildung 5.1.2 zeigt den BWG für beide Elemente im Bereich von $100\ \text{eV}$ bis $20\ \text{keV}$. Die Unterschiede sind gering und man kann beide Metalle in dieser Hinsicht als gleichwertig betrachten. Dennoch hat Wolfram zwei nicht zu unterschätzende Vorteile gegenüber Gold [117]. Bei der Herstellung von Zonenplatten wird in der Regel eine Silizium-Nitrid-Membran (Si_3N_4) als Substratmaterial benutzt. Wolfram und Si_3N_4 haben einen ähnlichen linearen Expansions-Koeffizienten bei Raumtemperatur von $4,5$ bzw. $3,3\ \mu\text{m m}^{-1}\ \text{°C}^{-1}$, gegenüber Gold mit $14,2\ \mu\text{m m}^{-1}\ \text{°C}^{-1}$ [28, 29]. Die Gefahr, dass sich die Zonen vom Substrat bei einer starken Wärmeänderung (durch äußere Wärmebelastung oder der Wärmeentwicklung durch Röntgenstrahlung) abheben, besteht bei Wolfram aufgrund der ähnlichen Wärmeeigenschaften gegenüber dem Substrat nicht [117]. Der zweite Vorteil ist, dass die Zonenplattenstruktur in Wolfram durch reaktives Ionenätzen (RIE, *engl.: reactive ion etching*) direkt hergestellt werden kann und dadurch hohe Aspektverhältnisse möglich sind. Bei Gold kann dieses Ätzverfahren nicht angewandt werden. Man greift stattdessen auf die Galvanotechnik zurück.

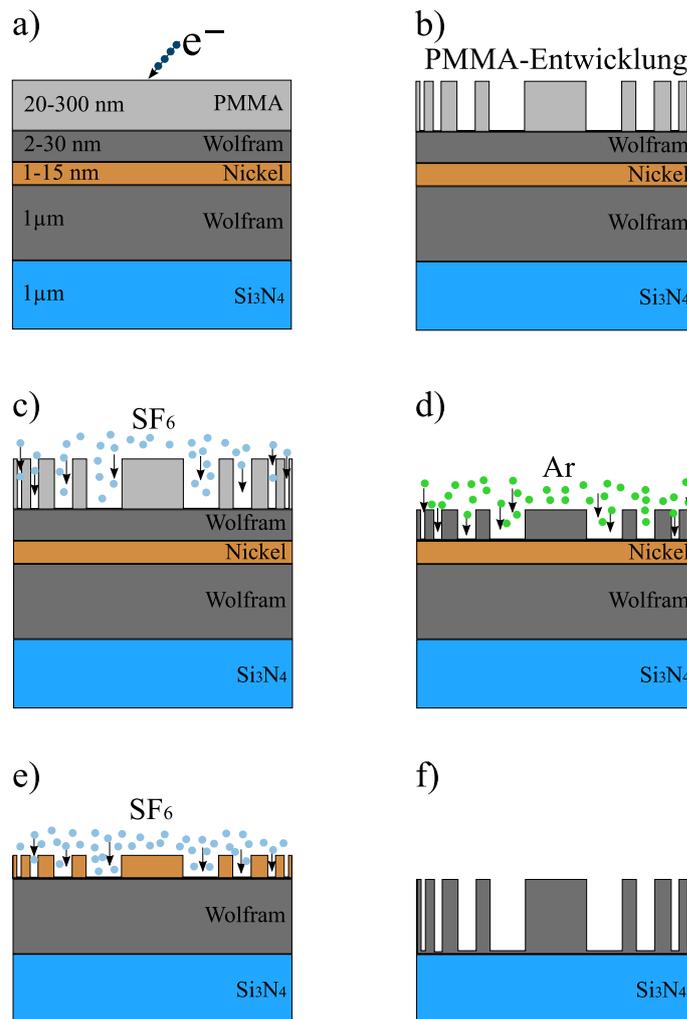


Abbildung 5.2.1: Herstellungsprozess einer Zonenplatte mit hohem Aspektverhältnis mittels drei-fachem Maskenübertrag. Beschreibung im Fließtext.

5.2 Herstellungsprozess

Die ersten Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie wurden holographisch [75] und später mittels Elektronenstrahl-Lithographie [40] hergestellt. In den letzten Jahren ist eine Methode entwickelt worden, bei der mit einem fokussiertem Ionenstrahl (FIB, *engl.: focussed ion beam*) die Strukturen direkt in das Zonenmaterial geschrieben werden konnten, ohne aufwändige Entwicklungs-, Ätz-, oder Plattierungsverfahren anzuwenden [80]. Das Aspektverhältnis (AV) ist der Quotient aus Zonenhöhe zur kleinsten Struktur innerhalb der Zonenplatte (die Breite der äußersten Zone). Die in dieser Arbeit verwendete Zonenplatte wurde durch Elektronenstrahl-Lithographie und abwechselnd mit dem Verfahren des reaktiven Ionenätzens und des Ionensputterns hergestellt. Abbildung 5.2.1 zeigt das Herstellungsverfahren in sechs Einzelschritten. Bei der Herstellung von Zonenplatten mit sehr hohen AV ist es erforderlich, dass eine stabile Hauptmaske erzeugt wird. Diese muss in der Lage sein, dem physikalisch-chemischen Ätzprozess über einen langen Zeitraum standzuhalten. Um

dies zu erreichen, wird zunächst, wie in Abbildung 5.2.1-a) gezeigt, ein Stapel verschiedener, unterschiedlich dicker Materialien auf dem Si_3N_4 -Substrat benötigt. Die erste Schicht auf dem Substrat ist das Zonenplattenmaterial, in diesem Fall 1 μm Wolfram, gefolgt von der späteren Hauptmaske aus Nickel von wenigen Nanometern Dicke. Auf der Nickelschicht befindet sich die zweite Hilfsmaske aus 2 nm - 30 nm dünnem Wolfram. Die oberste Schicht und erste Hilfsmaske bildet PMMA. In dieser Schicht wird elektronenstrahl-lithographisch die Zonenplattenstruktur belichtet und entwickelt (Abbildung 5.2.1-b). Damit eine möglichst stabile und vergleichsweise dicke Nickelmaske erzeugt werden kann, muss eine Zwischenmaske aus Wolfram erstellt werden. Dies geschieht über den RIE-Prozess mit Schwefelhexafluorid (SF_6) als Ätzgas. Das Verhältnis der Ätzraten für die Materialien PMMA und Wolfram beträgt 10:1 (Abbildung 5.2.1-c). Im nächsten Schritt wird die eigentliche Hauptmaske erzeugt. Damit die Maske in die Nickelschicht übertragen werden kann, muss ein Sputter-Prozess mit dem Edelgas Argon als Ionengas erfolgen. Argonatome werden durch ein Plasma ionisiert, treffen mit hoher kinetischer Energie auf das Target (Wolfram- und Nickelschicht) und schlagen dort Atome aus der Oberfläche heraus. Da die Abtragsrate zwischen Wolfram und Nickel einem Verhältnis von 2:1 entspricht, ist die Wolframschicht doppelt so dick wie die Nickelschicht (Abbildung 5.2.1-d). Der letzte Prozessschritt ist der Übertrag der Hauptmaske in das eigentliche Zonenplattenmaterial. Hier werden mittels RIE die Strukturen in Wolfram geätzt. Da Nickel für diesen Prozess sehr robust ist, beträgt das Verhältnis der Ätzraten in diesem Schritt 1:100. Es dauert mehrere Stunden bis diese Maske in die Wolframschicht übertragen und der Herstellungsprozess abgeschlossen ist (Abbildungen 5.2.1-e) und f). Diese detaillierten Prozess-Informationen werden vom Hersteller zur Verfügung gestellt [117].

5.3 Daten der Zonenplatte

Die hier benutzte Zonenplatte wird von der Firma www.zoneplates.com, unter der Leitung von Dr. Pambos Charalambous, nach in Abschnitt 5.2 vorgestellten Verfahren hergestellt. Tabelle 5.3.1 fasst die wichtigsten Parameter der Zonenplatte zusammen. Die optischen Daten der Linse bei 8,05 keV und 9,25 keV werden in Tabelle 5.3.2 gegenübergestellt.

Tabelle 5.3.1: Daten der verwendeten Zonenplatte.

\emptyset	dr_n	Zonenanzahl N	Zonenhöhe h	AV
100 μm	50 nm	500	1,0 μm	20

Tabelle 5.3.2: Brennweite, DOF und NA der Zonenplatte für 8,05 und 9,25 keV.

Photonenenergie [keV]	Brennweite [mm]	DOF [μm]	NA
8,05	32,5	$\pm 32 \mu\text{m}$	$1,5 \times 10^{-3}$
9,25	37,3	$\pm 37 \mu\text{m}$	$1,3 \times 10^{-3}$

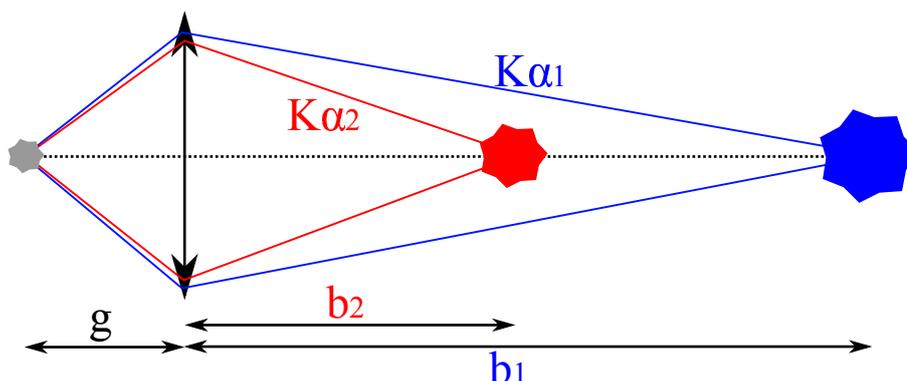


Abbildung 5.4.1: Graphische Darstellung der unterschiedlichen Bildweiten b_1 und b_2 für die K_{α_1} - und K_{α_2} -Energien bei gleicher Gegenstandsweite g .

5.4 Monochromasie-Kriterium

Die auf die Zonenplatte auftreffende Strahlung muss einen gewissen Grad an Monochromasie aufweisen, um den Einfluss des Farbfehlers auf ein akzeptables Minimum zu reduzieren. Nach Gleichung 2.25 in Abschnitt 2.4, muss der Quotient $\lambda/\Delta\lambda$, größer oder mindestens gleich der Anzahl der Zonen N sein, um die Wellenlängenabhängigkeit innerhalb dieser Bandbreite vernachlässigen zu können. Im Folgenden werden die charakteristischen Linien von Kupfer und Gallium mit Blick auf das Monochromasie-Kriterium untersucht und die Eignung in einem Labormikroskop mit Zonenplatte als Objektivlinse diskutiert.

Die Bandbreiten der K_{α_1} - und K_{α_2} -Linien von Kupfer stellt Tabelle 4.3.2 gegenüber. Für die Zonenplatte ergibt sich eine Brennweite von 32,455 mm bei der K_{α_1} -Linie, bzw. von 32,374 mm bei der K_{α_2} -Linie. Diese unterscheiden sich nur um etwa 80 μm . Diese geringe Differenz hat jedoch einen wesentlichen Einfluss auf die Abbildungsbedingungen im Mikroskop. Für die Brennweite bei der K_{α_1} -Linie werden Objekt- und Bildweite z.B. für eine 130-fache Vergrößerung berechnet und die Komponenten des Mikroskops daraufhin justiert. Aufgrund der unterschiedlichen Brennweite bei der K_{α_2} -Linie erzeugt diese ein Bild des Objekts in einem Abstand von etwa 1 m zum Bild der K_{α_1} -Linie. Die graphische Darstellung in Abbildung 5.4.1 verdeutlicht den Zusammenhang. Das Verhältnis zwischen Bildweitenunterschied und Schärfentiefe der Zonenplatte übersteigt daher mehrere Größenordnungen. In der Bildebene der K_{α_1} -Linie ist Hintergrundstrahlung aus der K_{α_2} -Linie vorhanden. Diese reduziert den Kontrast der Aufnahme. Aufgrund des großen Abstands ist trotzdem keine Abbildung in der Schärfenebene des K_{α_1} -Bildes zu erkennen. Abbil-

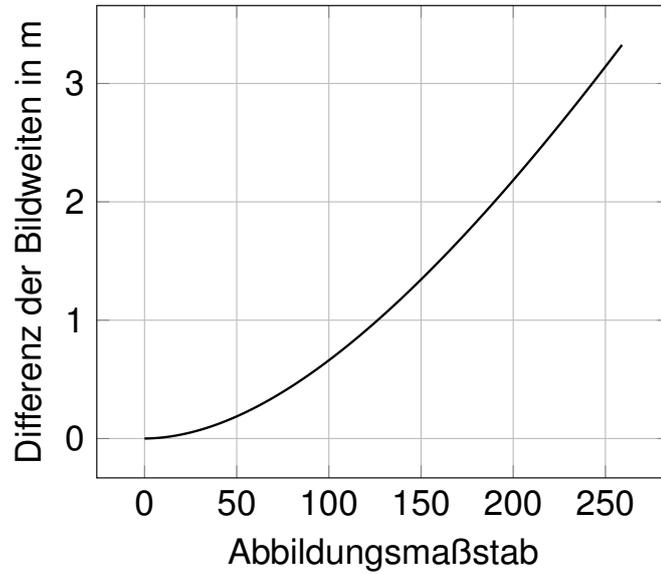


Abbildung 5.4.2: Unterschied der Bildweite zwischen K_{α_1} - und K_{α_2} -Linie bei festen Abbildungsparametern (Abbildungsmaßstab, Gegenstandweite) für die K_{α_1} -Strahlung.

Abbildung 5.4.2 zeigt den Zusammenhang zwischen Abbildungsmaßstab und dem Bildweitenunterschied für die K_{α_1} - und K_{α_2} -Linie bei festen Abbildungsparametern für die K_{α_1} -Strahlung. Die kleinste Differenz erhält man bei einem Abbildungsmaßstab von Null bei paralleler Beleuchtung. Dies entspricht in diesem Fall dem Unterschied der Brennweiten. Diese Konfiguration ist in einem Mikroskop nicht realistisch. Selbst bei einem hoch auflösenden Röntgendetektor mit einer Pixelgröße von wenigen Mikrometern und dem großzügigen Einhalten des Nyquist-Theorems muss man eine Vergrößerung von 65-fach erzeugen, um das theoretische Auflösungslimit der Linse zu erzielen. Der Bildweitenunterschied beträgt hier ca. 0,3 m und liegt immer noch mehr als 3 Größenordnungen über der Schärfentiefe der Zonenplatte. Außerdem besitzt die K_{α_2} -Linie nur etwa die Hälfte der Intensität der K_{α_1} -Linie [33].

Die selben Betrachtungen gelten auch für die Bremsstrahlung der Röntgenröhre. Der BWG sinkt ab einer Photonenenergie von 15 keV drastisch und die Zonenplatte wird transparent. Die Tatsache, dass die Bremsstrahlung nur einen Bruchteil der Intensität der charakteristischen Linie besitzt und der CCD-Detektor in diesem Energiebereich quasi keine DQE mehr aufweist, führt letztlich nur zu einem geringen Hintergrundsignal.

Diese Überlegungen und Berechnungen gelten sowohl für die Kupfer- als auch für die Gallium-Linien. Zur Berechnung der Monochromasie der charakteristischen Linienstrahlung einer Röntgenröhre muss deshalb nur die Linienbreite der K_{α_1} -Linie herangezogen werden und es folgt für die Monochromasie der Kupfer- und der Gallium-Linie:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{Kupfer}} = 3514 \quad (5.2)$$

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{Gallium}} = 3572 \quad (5.3)$$

Bei der hier verwendeten Zonenplatte mit 500 Zonen erfüllen somit beide Linien das Monochromasie-Kriterium. Die charakteristische Linienstrahlung ist folglich bestens für die Röntgenmikroskopie mit einer Zonenplatte als Objektivlinse geeignet. Jedoch liegt außerhalb des von der Zonenplatte erzeugten Bildes eine hohe Intensität vor, einerseits aufgrund der nullten Beugungsordnung und andererseits von den Beiträgen aus der K_β -Linie und der Bremsstrahlung. Damit das mikroskopische Bild frei von diesen störenden Einflüssen ist, müssen diese Störungen auf dem Detektor ausgeblendet werden. Das dafür entwickelte Mittenstopkonzept wird in Kapitel 6 vorgestellt.

5.5 Charakterisierung

In diesem Abschnitt wird die in dieser Arbeit verwendete Zonenplatte anhand von numerischen Simulationen charakterisiert. Die Systemantwort (PSF) und Kontrast-Transferfunktion (CTF) des Systems werden ermittelt. Die folgenden Daten werden mit dem ASPW-Algorithmus in C/C++-Code erzeugt. Eine ausführliche Beschreibung des Algorithmus ist im Anhang A zu finden.

In Abbildung 5.5.1 sind die Fokussiereigenschaften der verwendeten Zonenplatte bei 8,05 keV und 9,25 keV Photonenenergie im Querschnitt dargestellt. Die Zonenplatte wird jeweils von links mit ebenen Wellen beleuchtet. In beiden Bildern ist die konstruktive Interferenz der Lichtwellen im Fokus der 1. Beugungsordnung zu erkennen. In dieser Darstellung kaum sichtbar, in der Originalauflösung deutlich zu erkennen, sind die Foki der ungeraden höheren Ordnung.

Um die Systemantwort einer Optik zu ermitteln, muss sie mit einem Dirac-Impuls beleuchtet werden. Ein perfektes Abbildungssystem würde als Antwort wieder einen Dirac-Impuls erzeugen. Aufgrund von Abbildungsfehlern und der Tatsache, dass kein System das gesamte Licht der Quelle einfangen und sammeln kann, ist dies nur ein theoretisches Konstrukt. Die Systemantwort einer Zonenplatte wird ermittelt, indem die Optik mit ebenen Wellen beleuchtet und die Intensitätsverteilung in der Fokusebene analysiert wird. Da ebene Wellen einer unendlich weit entfernten Punktquelle entsprechen und die Zonenplatte vollständig räumlich kohärent beleuchten, entspricht dies einem Dirac-Impuls. Abbildung 5.5.2-Links zeigt die Intensitätsverteilung in der Fokusebene der 1. Beugungsordnung der Zonenplatte bei Beleuchtung mit ebenen Wellen. Abbildung 5.5.2-Rechts stellt den zugehörigen normierten Liniplot dar. Diese Simulation wird mit den realen Daten der Zonenplatte berechnet und ist sowohl für 8,05 keV als auch 9,25 keV gültig (vgl. mit Abschnitt 2.4). Der Abstand vom Hauptmaximum bis zur ersten Nullstelle der PSF beträgt 62 nm. Dies entspricht dem Rayleigh-Auflösungsvermögen der Optik und ist konsistent mit dem theoretischen Wert nach Formel 2.29.

Eine wichtige Größe bei der Charakterisierung von optischen Systemen ist die CTF. Mit ihr findet man eine Antwort auf die Frage mit welchem Kontrast eine bestimmte Raumfrequenz übertragen wird. Die CTF wird aus der Fouriertransformation der PSF berechnet. Der Kontrast in einem Bild berechnet sich aus den minimalen und maximalen Intensitätswerten (siehe Formel 2.5). Eine Dirac-Funktion als Impulsantwort wird (bei einer theoretisch perfekten Optik) im Fourierspektrum als

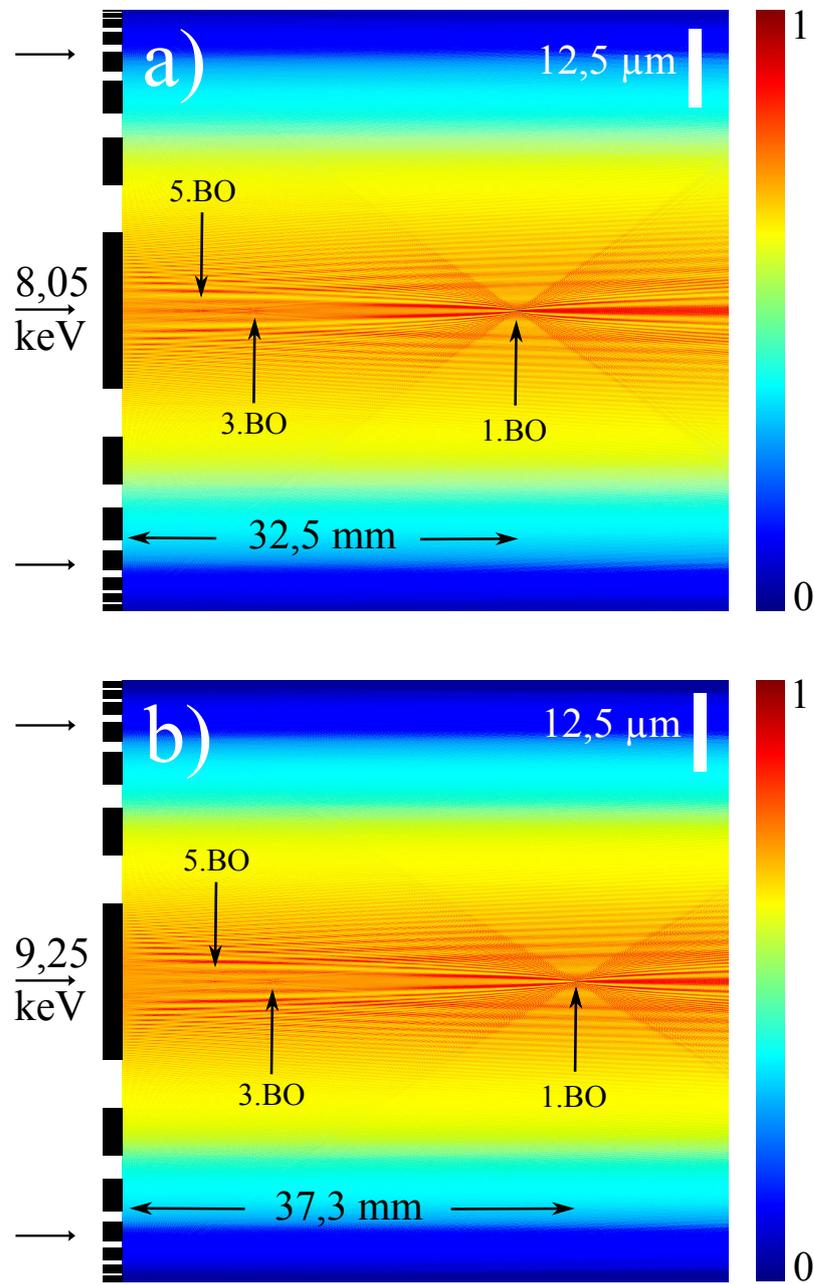


Abbildung 5.5.1: Beugungseigenschaften der Zonenplatte bei a) 8,05 keV und b) 9,25 keV Photonenenergie.

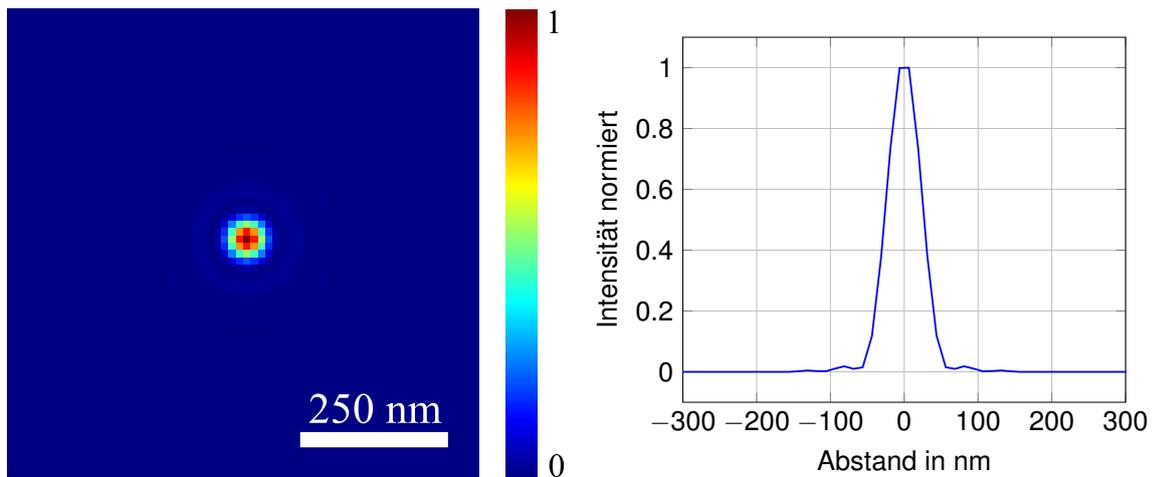


Abbildung 5.5.2: Links: Point-Spread-Funktion (PSF) der Zonenplatte bzw. das Airy-Scheibchen. Rechts: zugehöriger Liniplot.

konstante Funktion repräsentiert. Alle Raumfrequenzen werden dort mit perfektem Kontrast abgebildet. Im Falle einer realen Optik hingegen, geht der Kontrast im Bild bei der Abbildung höherer Raumfrequenzen gegen Null. Abbildung 5.5.3-Links zeigt die CTF der Zonenplatte, berechnet aus dem Betrag der Fouriertransformation der Impulsantwort. In Abbildung 5.5.3-Rechts ist die CTF als Liniplot dargestellt. Der steile Abfall der Transferfunktion nahe der Grenzfrequenz ist deutlich zu erken-

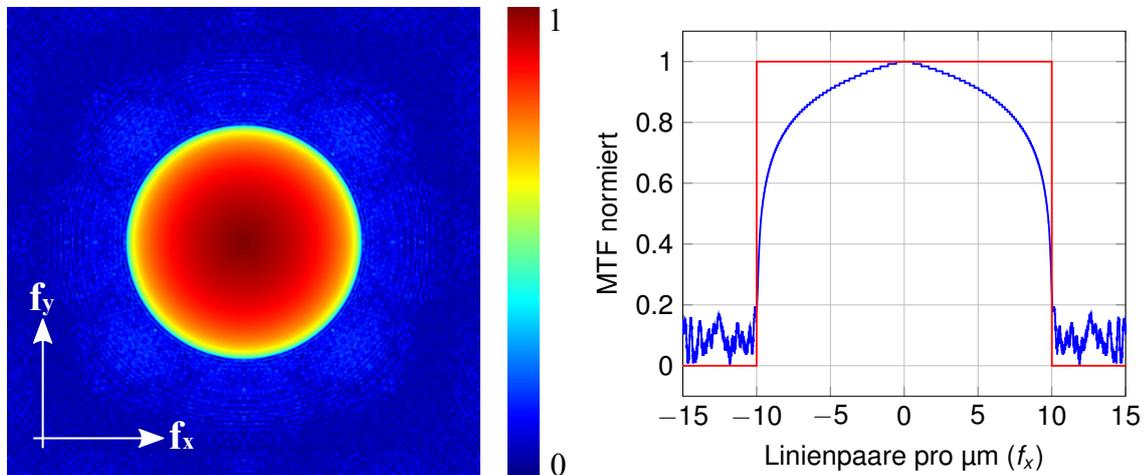


Abbildung 5.5.3: Links: Kontrast-Transfer-Funktion der Zonenplatte. Rechts: zugehöriger Liniplot. Im Liniplot ist neben den Simulationsdaten (blau) die theoretische CTF bei vollständig räumlich kohärenter Beleuchtung (rot) dargestellt.

nen. Bei einer vollständig räumlich kohärenten Beleuchtung (in dieser Simulation der Fall), ist die Übertragungsfunktion des optischen Systems die Fouriertransformierte der PSF [42]. Die PSF ist dabei die Fouriertransformierte der Pupillenfunktion der Linse. Diese entspricht bei den meisten Optiken einer kreisförmigen Blende, mit einer Transmission von Eins innerhalb der Blende und Null außerhalb. Die CTF ist in diesem Fall eine Rechteckfunktion. Die Darstellung in Abbildung 5.5.3-Rechts

weicht leicht von der idealen Rechteckform ab. Trotzdem ist die Grenzfrequenz von 10 LP/ μm zu erkennen. Dies entspricht einer Gitterkonstanten von 100 nm, welche am äußeren Rand der Zonenplatte zu finden ist. Aufgrund der riesigen Datenmengen, wird für die Simulation die Breite der äußersten Zone nur mit der doppelten Nyquist-Frequenz abgetastet. Ein Pixel in den Eingangsdaten für den Propagationsalgorithmus entspricht deshalb 12,5 nm. Um die gesamte Zonenplatte mit einem Durchmesser von 100 μm mit dieser Auflösung zu simulieren, ist folglich ein Eingangsbild von 8000×8000 Pixeln erforderlich. Der Unterschied zur theoretischen Funktion der CTF rührt somit aus den nicht aufgelösten Nebenmaxima der PSF.

Ein weiterer Einfluss auf das Auflösungsvermögen im Mikroskop hat das Verhältnis von Kondensor-Apertur zu Objektiv-Apertur [20]. Es lässt sich mathematisch darstellen, dass bei einem Faktor von 1,5 zugunsten der Kondensor-Apertur die beste Auflösungsleistung vorliegt. Die CTF und das Auflösungsvermögen des hier entwickelten Mikroskops werden im Gesamtaufbau experimentell charakterisiert.

Kapitel 6

Der Beleuchtungsapparat des Mikroskops

Neben dem Objektiv ist das Beleuchtungssystem, d.h. der Kondensator, eine wichtige Baugruppe im Mikroskop. Zusätzlich zu einer möglichst homogenen Intensitätsverteilung soll die Probe mit einer hohen Strahlungsdichte beleuchtet werden. Weiterhin bestimmt der Kondensator, ob verschiedene bildgebende Verfahren (z.B. Hellfeld oder Dunkelfeld) möglich sind. Mikroskope an Synchrotronstrahlquellen für den harten Röntgenbereich, als auch an Laborquellen, nutzen beispielsweise einzelne elliptisch geformte Glaskapillaren zur Objektbeleuchtung [27, 105]. Für Mikroskope im Bereich der weichen Röntgenstrahlung, z.B. an Laser-Plasmaquellen, werden u.a. Vielschicht-Spiegel oder Zonenplatten als Kondensatorsysteme eingesetzt. Jedes dieser Beleuchtungskonzepte erzeugt ein Bild der Quelle in der Objektebene nach dem Abbildungsgesetz. Dieses Verfahren wird kritische Beleuchtung genannt, da mögliche Unregelmäßigkeiten in der Intensitätsverteilung der Röntgenquelle in die Probenebene abgebildet werden. Eine homogene Beleuchtung des Objekts ist damit nicht zwangsläufig gewährleistet. In der Lichtmikroskopie wird dieses Problem mit der Köhler'schen Beleuchtung umgangen. Das Kondensatorsystem ist dort so gestaltet, dass jeder Punkt der Lichtquelle das gesamte Objektfeld beleuchtet und, unabhängig von der Intensitätsverteilung der Quelle, die Probe gleichförmig beleuchtet wird.

Die in dieser Arbeit verwendeten Kondensatorsysteme sind Polykapillaroptiken. Tausende sehr dünner, hohler und gebogener Glaskapillaren sammeln das Licht der Quelle und bündeln es in einem Punkt in einem bestimmten Abstand zum Kapillarausgang. Die Spotgröße wird über den kritischen Winkel der Totalreflexion und den Abstand zum Kapillarausgang bestimmt. Die charakteristischen Größen des Kondensators werden zusätzlich zu einem großen Teil durch den Herstellungsprozess bestimmt. Im Verlauf dieses Kapitels wird gezeigt, dass eine Polykapillaroptik (PKO) eine Köhler-ähnliche Beleuchtung liefert und dadurch ein gleichmäßig ausgeleuchtetes Objektfeld erwartet werden kann.

Dieses Kapitel beschreibt zunächst einen theoretischen, idealen Kondensator und stellt anschließend die beiden verwendeten Kondensoren PKO-A und PKO-B vor. Beide Optiken werden bzgl. spektraler Transmission, Spotgröße, numerische Apertur und Brillanz charakterisiert und miteinander verglichen. Zum Beleuchtungssystem

in einem Röntgenmikroskop gehört auch der sog. Mittenstop (MS). Um die nullte Beugungsordnung der Zonenplatte zu blocken, muss das Bild innerhalb eines Schattens auf dem Detektor erzeugt werden. In diesem Kapitel werden zwei Mittenstopkonzepte vorgestellt und experimentell umgesetzt.

6.1 Der ideale Kondensor

Aus dem Satz von Liouville folgt, dass in einem konservativen System das Volumen im Phasenraum (Impulskoordinaten) konstant bleibt. Die Dichte der einzelnen Punkte im Phasenraum kann sich entsprechend nur ändern, wenn sich gleichzeitig die Dichte im Ortsraum (Ortskoordinaten) verändert [68, 92]. Auch ein idealer Kondensor kann daher die Brillanz der Sekundärquelle (Kondensorspot) im Vergleich zur Röntgenquelle nicht erhöhen, sie bleibt im Idealfall nur erhalten. Aufgrund von Verlusten bei der Energieübertragung, ist die Brillanz im Kondensorspot i.d.R. kleiner als die der Lichtquelle selbst. Allein die Tatsache, dass kein Kondensor das in den gesamten Raum (4π) abgestrahlte Licht sammeln kann, bestätigt diese Behauptung. Für die Wahl eines geeigneten Kondensorsystems in einem Mikroskop muss diese Tatsache berücksichtigt werden. Das Ziel eines Kondensorsystems ist, möglichst viele Photonen aus der Quelle zu sammeln, in einem der Probe angepassten Bereich zu bündeln und das Mikroskopobjektiv mit angepasster bzw. etwas größerer Apertur zu beleuchten. Das System sollte eine möglichst hohe Effizienz aufweisen, um Energieverlusten entgegen zu wirken.

Somit muss ein idealer Kondensor folgende Bedingungen erfüllen: 1. Hohe numerische Apertur am Eingang, 2. eine dem Objektiv und dem bildgebenden Verfahren angepasste numerische Apertur am Ausgang, 3. eine gute Effizienz und 4. die Objektbeleuchtung sollte möglichst homogen sein.

Eine hohe Eingangsapertur ist nötig, um den größtmöglichen Raumwinkel der Quelle zu erfassen. Jeder Röntgenspot in einer Röhre strahlt in den gesamten Raum. Mechanische Bauteile der Röhre, wie z.B. das Austrittsfenster, begrenzen den erfassbaren Abstrahlwinkel und es ist generell nur ein Teil der erzeugten Röntgenstrahlung für den Nutzer zugänglich. Die iMOXS-Röhre hat einen Abstrahlwinkel von 8° und die Excillum-Quelle, in aktueller Konfiguration, einen Abstrahlwinkel von $10,5^\circ$. Gleichzeitig zu einer hohen Eingangsapertur sollte der Kondensor am Ausgang eine dem Objektiv angepasste numerische Apertur (NA) besitzen. Bei einer Zonenplatte ist die NA abhängig von der Beleuchtungswellenlänge und der äußersten Zonenbreite (vgl. Kapitel 2.4). Sie beträgt typischerweise einige 10 bis 100 mrad für weiche Röntgenstrahlung, bis hin zu wenigen Milliradian für harte Röntgenstrahlung. Dies entspricht einem vollen Akzeptanzwinkel von etwa $0,08^\circ$ bis 10° . Ein Vergleich mit den typischen Abstrahlwinkeln einer Röntgenröhre verdeutlicht das Problem. Bedingungen 1 + 2 sind gleichzeitig kaum erfüllbar und auf beiden Seiten müssen Abstriche hingenommen werden. Bedingung 3 fordert einen hohen Wirkungsgrad. Darunter versteht man das Verhältnis der Photonen, die auf die Optik treffen zu den nutzbaren Photonen nach dem Durchgang durch die Optik. Für PKOs hat sich der charakteristische Wert der Transmission durchgesetzt. Er beschreibt das Verhältnis der Summe aller Photonen in den einzelnen Kapillaren, zu der Anzahl der Photonen

auf der Eingangsfläche der Kapillare [64]. Die Transmission von PKOs ist zusätzlich abhängig von der Photonenenergie, aufgrund des kritischen Winkels der Totalreflexion. Ein Transmissionswert über 50% ist für PKOs nur schwer möglich. Allein das Verhältnis von Kapillarwand und dem Raum zwischen zwei Kapillarkanälen zum Kapillardurchmesser beträgt in etwa 50%. Zusätzlich muss der kritische Winkel der Totalreflexion erfüllt sein, damit die Photonen die Optik passieren können. Monokapillaren besitzen eine sehr hohe Transmission. Der Kondensorspot steht jedoch im Zusammenhang mit der Größe des Röntgenquelle durch das Abbildungsgesetz. Bei Polykapillaroptiken können dieselben Spotgrößen mit unterschiedlichen Quellgrößen der Röntgenröhre erzielt werden. Bei zu großen Röntgenquellen wird zwar weiterhin derselbe Kondensorspot erzielt, die Optik kann jedoch nicht den gesamten Raumwinkel der Quelle erfassen und das System wird ineffizient.

Ein idealer Kondensator besteht aus der bestmöglichen Kombination oben genannter Punkte. In den nächsten Abschnitten werden die verwendeten PKOs auf diese Kriterien untersucht.

6.2 Vorberechnungen

Der Photonenfluss einer Röntgenröhre sowie die durchschnittliche Beugungseffizienz einer Zonenplatte sind wissenschaftlich sehr gut erforscht und dokumentiert [6, 44]. Für Polykapillaroptiken als Kondensator in einem Transmissions-Röntgenmikroskop sind bisher nur die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit bekannt. Um eine Abschätzung über die zu erwartenden Belichtungszeiten abgeben zu können, werden in diesem Abschnitt erste Vorberechnungen anhand von durchschnittlichen Parametern einer PKO durchgeführt. Um den Einfluss der Leistung der verwendeten Röntgenröhre zu beachten, werden diese Berechnungen anhand drei unterschiedlicher Röhrentypen vorgestellt. Dazu zählen sowohl die zwei in dieser Arbeit verfügbaren Quellen, iMOXS und Excillum, als auch eine sehr leistungsstarke 1200 W Laborquelle mit rotierender Anode von der Firma Rigaku. Die Beugungseffizienz der Zonenplatte sowie deren numerischen Apertur werden in der Berechnung berücksichtigt. Grundlage für diese Berechnungen ist die Photonenzahl einer Röntgenröhre pro Sekunde, Raumwinkel und Milliampere. Nach [44] werden bei einer Beschleunigungsspannung von 50 kV $1,12 \times 10^{12}$ (Ph/s/sr/mA) in der Cu- K_α -Linie emittiert. Laut Polykapillarhersteller (Institute for Scientific Instruments GmbH (IFG)) ist der durchschnittlich erfassbare Öffnungswinkel am Eingang einer PKO in etwa 8 mrad und am Ausgang in etwa 5 mrad bei einer Transmission von etwa 10%. Die Effizienz der Zonenplatte wird bei einem Wert von 10% angesetzt, bei einer numerischen Apertur von $1,5 \times 10^{-3}$. Damit eine genügend hohe Anzahl an Pixeln am Detektor für die Bildaufnahme zur Verfügung stehen, wird von einem Bildkreisdurchmesser mit etwa 350 Pixeln ausgegangen (dies entsprechen 10^5 Pixel auf der Bildfläche). Bei der empirischen Bewertung der Bildqualität photographischer Aufnahmen hat sich herausgestellt, dass bei ca. 10^4 Photonen pro Pixel das Photonenrauschen vernachlässigt werden kann und ein qualitativ sehr gutes Bild vorliegt. Diese Angaben genügen, um in einem ersten Schritt abzuschätzen, welche Leistung von einer PKO als Kondensorsystem erwartet werden kann. Tabelle 6.2.1 stellt die Ergebnisse für

Tabelle 6.2.1: Berechnungen zur Leistungsabschätzung einer Polykapillaroptik als Röntgen-Kondensator.

	iMOXS	Excillum	Rigaku
max. Strom [mA]	0,6	2,8	30
Ph/s/sr aus Röhre	$6,7 \times 10^{11}$	$3,1 \times 10^{12}$	$3,4 \times 10^{13}$
Ph/s am PKO-Ausgang	$5,4 \times 10^8$	$2,5 \times 10^9$	$2,6 \times 10^{10}$
Ph/s nach Zonenplatte	$7,6 \times 10^4$	$3,6 \times 10^5$	$3,8 \times 10^6$
Ph/s/Pixel	0,7	3,5	38
Belichtungszeit [min]	219	46	4,4

die drei angesprochenen Röhrentypen dar. Es wird ersichtlich, dass das System besonders für die leistungsstarken Röhren Excillum und Rigaku in der Nähe der Leistungsfähigkeit von Labormikroskopen im Wasserfenster angesiedelt werden kann. Zum Vergleich: eine laserinduzierte Plasmaquelle im Wasserfenster erzeugt in etwa 2×10^{14} Photonen pro Sekunde, Raumwinkel und in der Ly_α -Linie [92]. Die Auswahl an Kondensorsystemen für den harten Röntgenbereich ist sehr beschränkt. Aufgrund mechanischer Gegebenheiten, hinsichtlich des minimalen Abstands einer Optik zum Quellspot einer Röntgenröhre, würde eine Kondensorzonenplatte einen deutlich kleineren Raumwinkel auffangen als eine Mono- oder Polykapillaroptik. Daher kommt sie als Kondensorsystem in nicht in Frage. Aufgrund der großen Akzeptanzwinkel von PKOs sind oben vorgestellte Berechnungen vielversprechend, um sie als Kondensoren in einem Transmissions-Mikroskop einzusetzen. Im Folgenden werden die beiden verwendeten Kondensoren charakterisiert. Eine Gegenüberstellung bzgl. der Leistungsfähigkeit im Mikroskop wird erst im Gesamtaufbau stattfinden, siehe Abschnitt 7.3.

6.3 Kondensator-Charakterisierung

In dieser Arbeit werden zwei PKOs der Firma IFG verwendet. Damit die Einflüsse von Quellgröße und Divergenzwinkel am Ausgang auf die Abbildungseigenschaften im Mikroskop untersucht werden können, unterscheiden sich die beiden Kapillaren in diesen Werten deutlich. Im weiteren Verlauf werden die typischen Größen der verwendeten Kondensoren experimentell charakterisiert und gegenübergestellt.

6.3.1 Spotgröße

Die Spotgrößen der beiden Kondensoren werden mit verschiedenen Messmethoden bestimmt. Es wird das in Abschnitt 3.3 vorgestellte Phosphor-CCD-System mit einer Pixelgröße von $1,5 \mu\text{m}$ verwendet, um die Spotgröße von Kondensator PKO-A zu bestimmen. Die kleine Pixelgröße ist erforderlich, da ein sehr kleiner Kondensatorspot erwartet wird. In Abbildung 6.3.1 ist der Spot dargestellt. Der Phosphor und

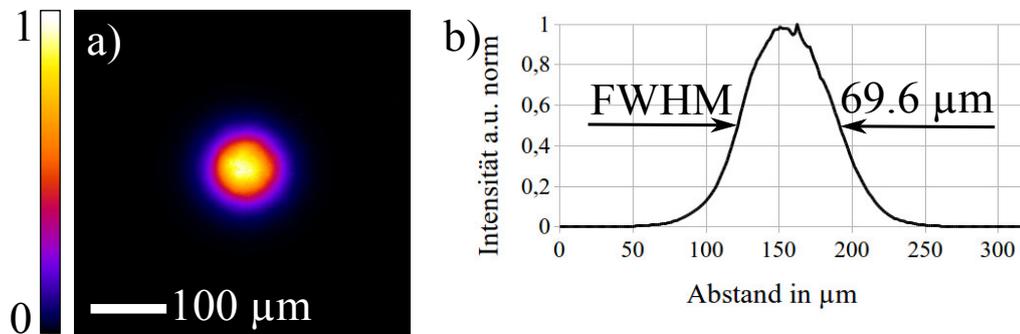


Abbildung 6.3.1: a) Fokus von PKO-A für 8–9 keV Photonenenergie. b) Liniplot in x-Richtung. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

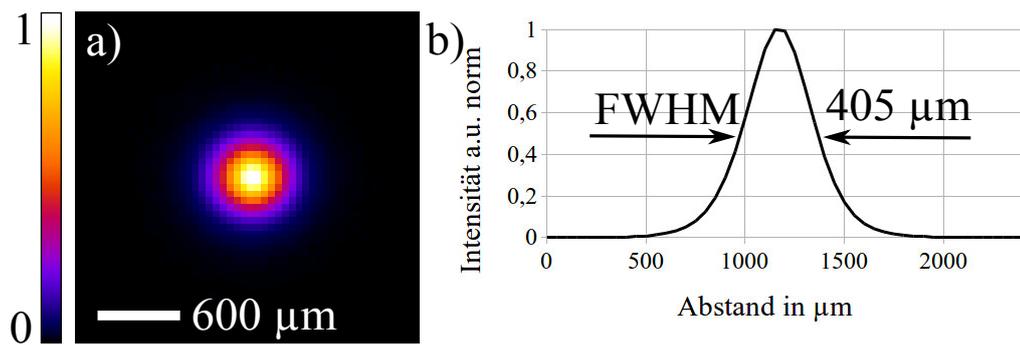


Abbildung 6.3.2: a) Fokus von PKO-B für 8–9 keV Photonenenergie. b) Liniplot in x-Richtung. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

der Szintillator registriert alle Photonenenergien der Röntgenquelle, da jedoch die Intensität der charakteristischen Strahlung die Bremsstrahlung um mindestens eine Größenordnung übersteigt, rührt das Leuchten des Phosphors hauptsächlich von den K_α - und K_β -Linien. Diese überdecken die intensitätsschwachen kleineren Spots der Bremsstrahlung. Der Unterschied des kritischen Winkels bei 8,05 keV und 8,9 keV, beträgt nur 0,36 mrad. Die Spotgrößen sind daher näherungsweise identisch. Die Spotgröße (FWHM) für diesen Kondensator beträgt ca. 70 μm .

Aufgrund des zu kleinen Objektfelds des Phosphor-CCD-Detektors wird für PKO-B der Flatpanel-Detektor (siehe Abschnitt 3.3) im Fokus des Kondensator positioniert und die Intensitätsverteilung aufgezeichnet. Aufgrund der zu erwartenden Spotgröße von mehr als 300 μm , reicht die Pixelgröße des Detektors aus, um eine hinreichend genau Aussage über die Abmessungen des Spots zu treffen. Ein Bild des Spots ist in Abbildung 6.3.2 zu sehen. Die Spotgröße (FWHM) beträgt im Mittel mehrerer Messungen 405 μm ¹.

6.3.2 Beleuchtungskanal und numerische Apertur

Um den gesamten Fokuskanal am Ausgang der Kapillaren in Strahlrichtung zu visualisieren, scannt der Flat-Panel-Detektor die Intensitätsverteilung in 270 μm Schritten entlang der optischen Achse. Abbildungen 6.3.3 und 6.3.4 zeigen die y-z-Ebene des Fokuskansals für PKO-A und PKO-B. In diesen beiden Abbildungen ist deutlich zu

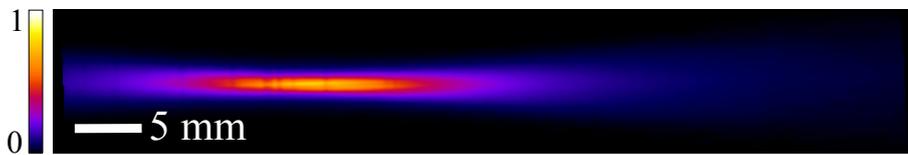


Abbildung 6.3.3: Intensitätsverlauf des Fokuskansals in z-Richtung für PKO-A. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

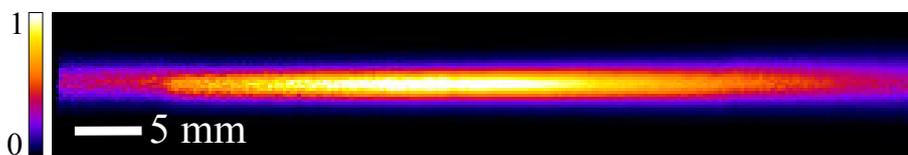


Abbildung 6.3.4: Intensitätsverlauf des Fokuskansals in z-Richtung für PKO-B. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

erkennen, dass die Optik mit kurzer Fokusslänge (PKO-A) eine deutlich höhere numerische Apertur besitzt, bei gleichzeitig geringerer Fokustiefe. Im Gegensatz dazu, ist bei PKO-B der Fokus in Strahlrichtung länger ausgedehnt und hat eine kleinere

¹Die in [10] angegebene Spotgröße von 350 μm beruht auf dem Ergebnis einer Einzelmessung. Aufgrund der relativ hohen Ungenauigkeit, von $\pm 50 \mu\text{m}$ (der Pixelgröße), wird die Messung mehrmals wiederholt und hier das nun genauere Ergebnis präsentiert.

numerische Apertur. Bei einer Polykapillaroptik tragen hauptsächlich die äußeren, stärker gebogenen Kapillaren zur Divergenz bei, da diese Einzelkapillaren durch die Krümmung zum Rand des Beleuchtungskegels zeigen. Im Vergleich zu abbildenden Optiken (z.B. Spiegel oder Linsen), sind bei beiden PKOs sehr große Fokustiefen vorhanden. Dies erweist sich in der späteren Justage des Objekts bzgl. des Kondensorspots als sehr hilfreich. Definiert man analog zur Schärfentiefe in der klassischen, geometrischen Optik eine Spottiefe für Polykapillaroptiken (die Ausdehnung in z-Richtung in der die Intensität auf einen Wert I_0/e abfällt), so ergibt sich für PKO-A ein Wert von $\pm 2,6$ mm und für PKO-B ein Wert von $\pm 8,8$ mm. Analog zur Teilchenphysik kann hier der Begriff der Emittianz eingeführt werden. Eine Polykapillaroptik ist nur in der Lage einen kleinen Spot erzeugen, wenn gleichzeitig eine hohe Divergenz vorliegt, und umgekehrt. Das Produkt aus beiden Faktoren, die Emittianz, ist immer gleich. Die mittlere NA für Kondensator PKO-A beträgt 18×10^{-3} und für Kondensator PKO-B 5×10^{-3} . Die gemessenen numerischen Aperturen, von der Ausgangsfläche des Kondensors bis zum Spot und die NA ab dem Spot, unterscheiden sich leicht. Die gesamte NA für eine Optik ist daher das gewichtete Mittel beider gemessener Werte. Maßgeblich für die Mikroskopie ist hauptsächlich der Öffnungswinkel der das Objektiv beleuchtet.

In Abbildung 6.3.5 sind die Intensitätsverteilungen der Strahlkegel senkrecht zur Ausbreitungsrichtung abgebildet. Der Strahlkegel für PKO-B ist sehr homogen, wobei mittig die höchste Intensität vorliegt. In diesem Bereich ist für sehr viele Strahlen der Winkel der Totalreflexion erfüllt. In der Strahlkegelaufnahme von PKO-A sieht man außerdem einzelne verstopfte oder defekte Kapillaren anhand der dunklen Flecken innerhalb des Kegels.

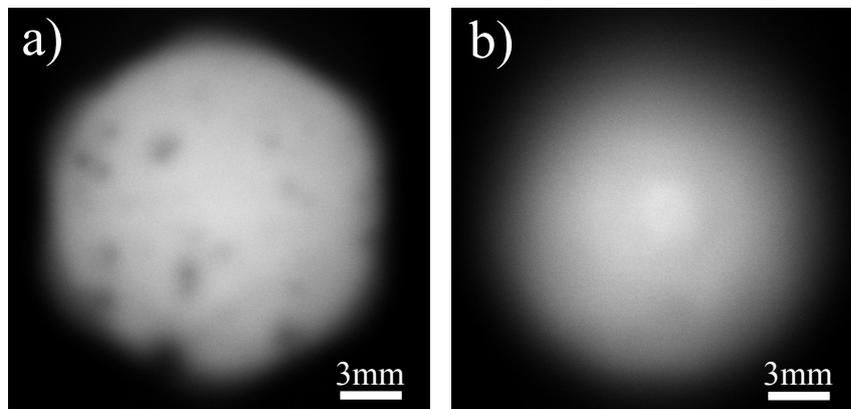


Abbildung 6.3.5: Beleuchtungskegel von a) Kondensator PKO-A, Abstand zum Spot 478 mm und b) Kondensator PKO-B, Abstand zum Spot 702 mm.

6.3.3 Energiefilter

Um festzustellen, für welche Photonenenergien der kritische Winkel der Totalreflexion erfüllt ist und somit vom Kondensator transportiert werden können, werden mit einem energie-dispersiven Detektor in einem großen Abstand zum Kapillarspot

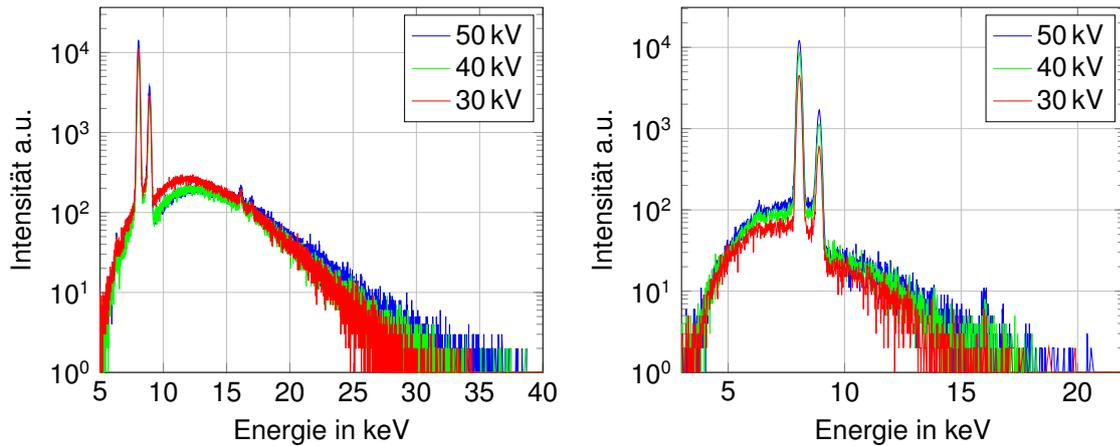


Abbildung 6.3.6: Spektrale Verteilung am Kondensorausgang bei 50 kV, 40 kV und 30 kV Beschleunigungsspannung. Links: PKO-A Rechts: PKO-B

Spektren aufgezeichnet. Das Ergebnis für unterschiedliche Röhrensparnungen mit der iMOXS-Quelle für PKO-A und PKO-B ist in 6.3.6 dargestellt. Dort ist zusehen, dass selbst bei der höchsten Röhrensparnung von 50 kV die maximal detektierte Bremsstrahlung eine Photonenenergie von ca. 20 keV für PKO-B, bzw. 35 keV für PKO-A besitzt, wobei am oberen Ende des Spektrums nur noch sehr wenige bzw. einzelne Photonen detektiert werden. PKOs agieren daher als spektraler Filter und unterdrücken die hohen Photonenenergien. Diese erfüllen für die einzelnen Kapillarkanäle die Bedingung für den Grenzwinkel der Totalreflexion nicht und werden somit von der Optik nicht transmittiert. Da die hohen Photonenenergien im Mikroskop keine Verwendung finden und nur störende Hintergrundsignale auf dem Detektor erzeugen, ist diese Filterung von Vorteil.

6.3.4 Transmission und Intensitäts-Gain

Ein wichtiger Parameter einer PKO ist deren Transmission T . Sie ist definiert durch das Verhältnis der Anzahl der Photonen, die aus der Optik austreten, zu den Photonen, die auf die Eingangsfläche treffen und ist abhängig von der Photonenenergie ν [64]:

$$T(\nu) = \frac{\text{Anzahl austretender Photonen}}{\text{Anzahl der Photonen auf der Eingangsfläche}}. \quad (6.1)$$

Experimentell wird die Transmissionsmessung nach dem Schema in Abbildung 6.3.7 durchgeführt. Um die Photonen auf der Eingangsfläche der Kapillare zu bestimmen, wird zunächst der Photonenfluss der Quelle im Raumwinkel Θ_{Quelle} vermessen und auf den erfassten Raumwinkel des Kondensors $\Theta_{Kondensor}$ umgerechnet. Ein 120 μm dicker Aluminiumfilter schwächt -aufgrund des kurzen Abstands- die Strahlung soweit ab, dass der Detektor nicht übersteuert. Im zweiten Schritt wird der Kondensor justiert und direkt am Ausgang der Kapillare die energie-aufgelöste Photonenanzahl gemessen. Der Abstand Quelle-Detektor ist bei beiden Messungen identisch, so dass Absorptionen an Luft nicht berücksichtigt werden müssen. Das Aluminiumfilter ist

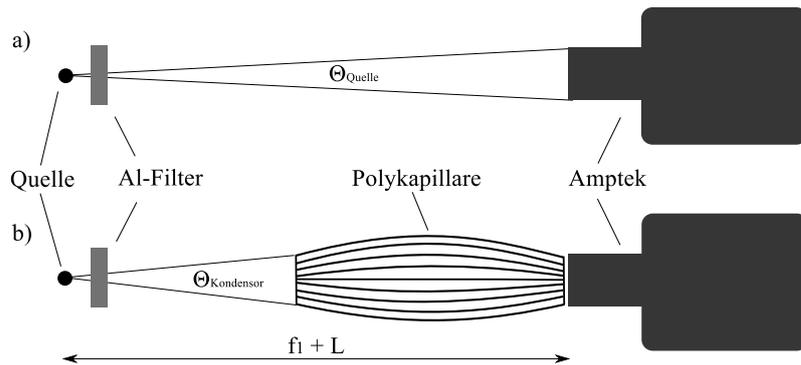


Abbildung 6.3.7: Schematische Darstellung der Transmissionsmessung einer Polykapillarroptik.

Tabelle 6.3.1: Transmissionswerte T von PKO-A und PKO-B bei 8,05 keV und 8,9 keV .

Kondensator	$T(8,05 \text{ keV})$	$T(8,9 \text{ keV})$
A	$9,5\% \pm 0,2\%$	$10,8\% \pm 0,7\%$
B	$12,1\% \pm 0,3\%$	$12,1\% \pm 0,2\%$

ebenfalls in jeder Messung vorhanden und wird in den Berechnungen nicht berücksichtigt. Das Verhältnis beider Ergebnisse nach obiger Formel, entspricht der Transmission der PKO. Die Transmissionsmessungen konnten aufgrund mechanischer Gegebenheiten an der Excillum-Quelle bei 9,25 keV nicht durchgeführt werden. Eine sehr gute Abschätzung des Transmissionswerts um 9 keV liefert jedoch die Kupfer K_β -Linie bei 8,9 keV. Tabelle 6.3.1 fasst die Ergebnisse zusammen. Für beide Kondensoren ist die Transmission in etwa gleich. PKO-A weist im Vergleich zu 8,05 keV, eine leicht erhöhte Transmission bei 8,9 keV auf. Polykapillarroptiken werden sehr häufig für z.B. Fluoreszenz-Messungen verwendet. Die zu untersuchende Probe wird im Kapillarspot positioniert und die generierte Fluoreszenzstrahlung detektiert. Damit können element-spezifische Untersuchungen getätigt werden. Derartige Messungen ohne PKO benutzen eine Kollimatorblende, um die Fluoreszenzstrahlung ortsaufgelöst an der Probe detektieren zu können. Da die Intensität der divergenten Röntgenstrahlen umgekehrt proportional zum Abstandsquadrat abnimmt, ist im Vergleich mit der Nutzung einer PKO weniger Anregungslicht vorhanden. Dieser Unterschied wird im sog. Intensitäts-Gain beschrieben. Mit den ermittelten Spotgrößen kann der Gain bei gegebener Transmission nach Formel 2.36 bestimmt werden. Für PKO-A folgt ein Intensitäts-Gain von 1047 und für PKO-B ein Gain von 1710 bei 8 keV^2 . Die Angabe eines Gains bei Nutzung einer Polykapillarroptik als Kondensator in

²An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass, aufgrund einer im Nachhinein festgestellten ungenauen Messmethode, die in [10] angegebenen Gainwerte, auf anderen Transmissionswerten beruhen ($T = 13\%$ für PKO-A. und $T = 7\%$ für PKO-B). Mit dem hier beschriebenen Messverfahren wurden die Transmissionswerte durch wiederholte Messungen bestätigt und der Gain korrigiert.

Tabelle 6.3.2: Brillanz der Kondensoren PKO-A und PKO-B.

Kondensator	Brillanz in $Ph/s/mrad^2/mm^2$	Verhältnis zur iMOXS-Brillanz
PKO-A	$1,8 \times 10^7$	1/14
PKO-B	$1,6 \times 10^7$	1/16

einem Mikroskop ist jedoch nicht sinnvoll. Oben beschriebener Vergleich der Intensität auf der Probe mit und ohne Kapillare findet in der Transmissions-Mikroskopie keine Anwendung, da das Objekt i.d.R. nicht ohne Kondensator beleuchtet wird. Die Effektivität eines Kondensators kann nur in Kombination mit dem verwendeten Objektiv im Mikroskop bestimmt werden. Ein ausführlicher Vergleich beider Kondensatorsysteme kann daher nur im Gesamtaufbau des Mikroskops getätigt werden, siehe Abschnitt 7.3.

6.3.5 Brillanz

Da gerade für Röntgenquellen der Begriff der Brillanz eingeführt wurde, um verschiedene Quellen miteinander vergleichen zu können, bietet sich an, die eingesetzten Kondensoren anhand ihrer Brillanz zu vermessen. Die Messung der Kondensatorbrillanz erfolgt mit Hilfe des energie-dispersiven Detektors in einem großen Abstand zum Kondensatorspot. Mit einer definierten Blende am Detektor kann der aufgefangene Raumwinkel genau bestimmt werden und unter Berücksichtigung aller im Strahlengang vorhandenen Folien oder Beryllium-Fenster sowie der Absorption an Luft, wird ein Brillanzwert in der Einheit $Ph/s/mm^2/mrad^2$ für die charakteristische Linie bestimmt. Die Brillanzmessung für beide Kondensoren wird an der iMOXS-Quelle durchgeführt und an der 8,05 keV-Linie ausgewertet (siehe Tabelle 6.3.2). Das Verhältnis zur Brillanz der Röhre wird dabei aus dem experimentell ermittelten Wert für die iMOXS-Quelle bestimmt (vgl. Tabelle 4.5.1). Beide Polypapillaroptiken weisen eine ähnliche Brillanz auf. Interpretiert man das Verhältnis zur Quell-Brillanz als Effizienzwert, so stehen PKOs nur geringfügig hinter Kondensatorzonenplatten für den weichen Röntgenbereich, die i.d.R. eine Beugungseffizienz um 10% aufweisen, z.B. 7,6% absolute Effizienz der Kondensatorzonenplatte in [100]. Aufgrund der schwierigeren Gegebenheiten im harten Röntgenbereich sind die hier erreichten Effizienzen dennoch hoch anzusiedeln, betrachtet man das System isoliert von der Zonenplatte und dessen numerischer Apertur.

Bezogen auf die Quellbrillanz und der Möglichkeit an der Excillum-Quelle verschiedene Spotgrößen zu realisieren, muss hier noch auf die Verwendung von PKO-B an der Metall-Jet-Quelle eingegangen werden³. In Kapitel 4 wird die Photonenabgabe durch die Änderung des Elektronenstrahls bzgl. des Metall-Jets untersucht. Ein maximaler Photonenfluss wird erzielt, wenn der Elektronenstrahl etwa 40 -

³Aufgrund der zeitlich beschränkten Verfügbarkeit wird die Excillum-Quelle nur mit PKO-B betrieben

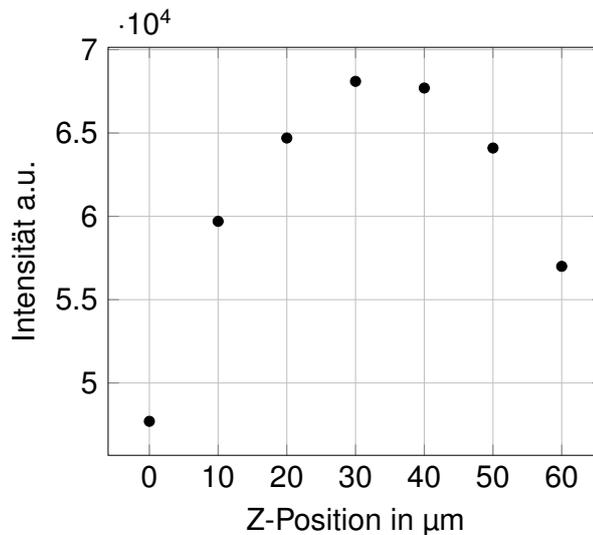


Abbildung 6.3.8: Intensität am Ausgang von Kondensator PKO-B bei Verschiebung des Elektronenstrahls gegenüber dem Metall-Jet.

50 μm gegenüber dem Jet-Mittelpunkt in Strahlrichtung verschoben wird. Um die höchste Ausbeute auch bei der Verwendung von PKO-B zu erzielen, wird die Position des Elektronenstrahls erneut verändert und die Photonenausbeute gemessen. Abbildung 6.3.8 stellt diese Auswertung graphisch dar. Darin zeigt sich, dass bei einer Position von 30 μm der Photonenfluss durch die Optik am Höchsten ist. Der Unterschied zum maximalen Fluss ohne PKO, lässt sich durch die Quellgröße erklären. Bei einem Strahlversatz von 30 μm beträgt die Größe des Röntgenspots auf dem Metall-Jet in etwa $42 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$. Bei steigendem Versatz steigt proportional dazu die Quellausdehnung in x-Richtung. Der Eingangs-Akzeptanzwinkel der PKO ist herstellenseitig auf eine Spotgröße von 50 μm optimiert. Da die Quellgröße ab einem Strahlversatz von etwa 35 μm diesen Wert übersteigt, wird, trotz einer höheren Photonenemission der gesamten Quelle, der Fluss durch den Kondensator geringer. In einem Transmissions-Mikroskop ist der Photonenfluss auf der Probe das entscheidende Kriterium. Geringe Quellgrößen auf dem Metall-Jet haben deshalb nur eine Bedeutung, wenn gleichzeitig dieselben Photonenzahlen erzeugt werden können, wie bei höheren Spotgrößen und die Polykapillarohtik für einen kleinen Röntgenspot ausgelegt wurde. Die Excillum-Quelle in Kombination mit Kondensator PKO-B wird aufgrund dieser Ergebnisse bei einem Strahlversatz von 30 μm betrieben.

6.3.6 Köhler-ähnliche Beleuchtungsgeometrie

Einen entscheidenden Vorteil von PKOs gegenüber den, meines Wissens, bisher entwickelten Kondensatorsystemen für Labor-Transmissions-Mikroskope im harten Röntgenbereich, liegt in der Art und Weise der Objektbeleuchtung. Dazu werden einzelne Kapillaren am Ausgang des Kondensators genauer betrachtet (siehe Abbildung 6.3.9). Aufgrund der herstellungsbedingten Krümmung, insbesondere der äußeren Kapillaren, liegt eine globale Konvergenz α vor. Dadurch wird die Strahlung aus den

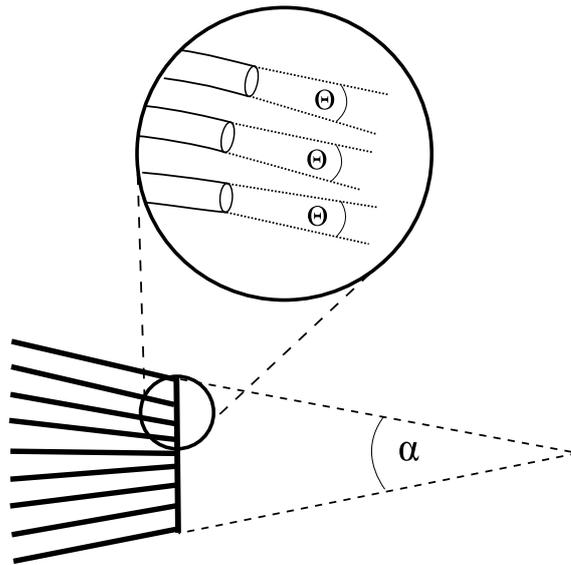


Abbildung 6.3.9: Schematische Darstellung der lokalen Divergenz Θ und globalen Konvergenz α einer Polykapillarroptik.

Einzelkapillaren fokussiert. Aufgrund des kritischen Winkels der Totalreflexion liegt jedoch für jede Einzelkapillare betrachtet eine, wenn auch sehr geringe, lokale Divergenz Θ vor. Es ist nicht abwegig zu behaupten, dass jeder Ausgangspunkt des Kondensors das gesamte Objekt beleuchtet. Eine ähnliche Beleuchtungsgeometrie wird in der Lichtmikroskopie bereits seit über hundert Jahren verwendet [59]. A. Köhler hat den Beleuchtungsstrahlengang so modifiziert, dass, unabhängig von der Intensitätsverteilung der Lichtquelle, das Objekt homogen beleuchtet wird. Zuvor wurde immer die Lichtquelle selbst in die Objektebene abgebildet und damit auch evtl. Unregelmäßigkeiten in der Intensität. Diese Art der Beleuchtung wird daher kritische Beleuchtung genannt und ist in Röntgenmikroskopen vorhanden, die ein Kondensorsystem verwenden, das dem Abbildungsgesetz gehorcht, z.B. Kondensorenzonenplatten, Multilayer-Spiegel, elliptische Monokapillaren. Da eine PKO nicht in der Lage ist, ein Bild eines Objekts zu erzeugen, findet keine Abbildung der Quelle in die Objektebene statt. Durch die oben beschriebene lokale Divergenz, liegt sogar eine köhler-ähnliche Beleuchtungsgeometrie vor und man verspricht sich dadurch eine uniforme Probenausleuchtung. Die nicht-abbildende Eigenschaft einer PKO hat weiterhin den Vorteil, dass die gleichen Spotgeometrien mit unterschiedlichen Quellgeometrien erzeugt werden können. Dies ist im Falle einer kritischen Beleuchtung ebenfalls nicht möglich.

6.4 Mittenstopkonzepte

Im Gegensatz zur klassischen Mikroskopie mit sichtbarem Licht und konventionellen Glaslinsen muss bei der Verwendung von Zonenplatten das Problem der störenden nullten Beugungsordnung bewältigt werden. Das diffraktive Objektiv erzeugt neben der gewünschten ersten Ordnung einerseits auch intensitätsschwache höhere Ordnun-

gen und andererseits das direkte Licht der nullten Ordnung. Erstere sind aufgrund der sehr geringen Beugungseffizienz bei Laboranwendungen kaum sichtbar. Letztere überstrahlen wegen des hohen Intensitätsanteils das mikroskopische Bild der ersten Ordnung. Die nullte Ordnung im Bild nicht erwünscht und man muss ein Konzept zur Abschottung dieser finden. Konkret bedeutet dies, dass auf dem Detektor ein Schatten erzeugt werden muss. Innerhalb dieses Schattens wird das mikroskopische Bild generiert. Das schattenerzeugende Element wird in der Regel als Mittenstop (MS) bezeichnet. Im Verlauf dieses Abschnitts werden zwei Mittenstopkonzepte entwickelt und vorgestellt.

6.4.1 Projektionsgeometrie

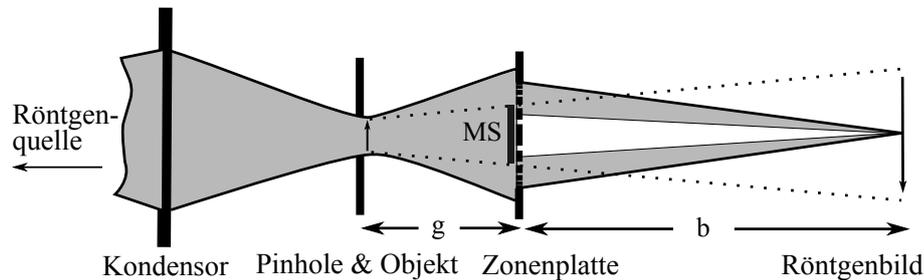


Abbildung 6.4.1: Beleuchtungsstrahlengang im Mikroskop mit MS-Projektionsgeometrie. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

Eine Methode, einen Schatten auf dem Detektor zu erzeugen, ist, ein vollständig absorbierendes Material auf der Zonenplatte zu befestigen. Abbildung 6.4.1 stellt dieses Konzept schematisch dar. Licht von der Quelle wird vom Kondensator gesammelt und hinter dem Ausgang der Kapillare gebündelt. Dieser gebündelte Spot erzeugt nun einen Schattenwurf des Mittenstops im Sinne einer geometrischen Projektion. Der Vergrößerungsmaßstab dieser Projektion ist abhängig vom Abstand Kondensatorspot-Mittenstop und Mittenstop-Detektor und somit von der Gegenstandsweite g und der Bildweite b . Der Abbildungsmaßstab M_{MS} dieser Projektion ist gegeben durch:

$$M_{MS} = \frac{|g| + |b|}{|g|}. \quad (6.2)$$

Die Dimensionierung des Mittenstops und somit auch das vergrößerte Abbild in Form eines Schattens, ist nun im Wesentlichen von drei Parametern abhängig. Erstens sollte die Fläche des Mittenstops nicht mehr als $1/4$ der Zonenplattenfläche betragen, um einen ausreichenden Photonenfluss auf dem Objektiv zu gewährleisten. Bei einem Zonenplattendurchmesser von $100 \mu\text{m}$ liegt dadurch der maximale MS-Durchmesser bei $50 \mu\text{m}$. Zweitens wird die Abbildungsqualität der Projektionsgeometrie maßgeblich vom Größenverhältnis der Projektionsquelle (Kondensatorspot) zum abzubildenden Objekt (Mittenstop) beeinflusst. Der MS wird nur scharf abgebildet, wenn die Projektionsquelle deutlich kleiner dimensioniert ist. Für beide PKOs ist der Kondensatorspot größer als der maximal mögliche Durchmesser des MS.

In Folge dessen wird ein Pinhole innerhalb des Kondensorspots benötigt, um die Randbedingungen der Projektion zu erfüllen. Drittens muss die Größe des Schattenwurfs auf dem Detektor mindestens oder besser etwas größer sein als das von der Zonenplatte erzeugte Bild der Probe. Die Vergrößerung des Objekts M_{Obj} durch die Zonenplatte folgt aus dem Abbildungsgesetz und lautet:

$$M_{Obj} = \frac{b}{g}. \quad (6.3)$$

Da in der Mikroskopie hohe Vergrößerungen erwünscht sind und somit die Bildweite b deutlich größer ist als die Gegenstandweite g gilt:

$$M_{MS} \simeq M_{Obj}. \quad (6.4)$$

Dadurch wird sichergestellt, dass das Verhältnis von der Größe des Mittenstops zur Bildgröße auf dem Detektor für beliebige Vergrößerungen konstant bleibt. Bei der Wahl des Pinhole-Durchmessers hat sich in mehreren Versuchen herausgestellt, dass ein Durchmesser von $30 \mu\text{m}$ bei einem MS-Durchmesser von $50 \mu\text{m}$ geeignet ist, um alle oben angesprochenen Bedingungen hinreichend zu erfüllen. Die Projektion des MS ist aufgrund des Größenverhältnisses zwischen Pinhole und MS immer noch mit einer Unschärfe im Randbereich versehen. Die MS-Abbildung ist trotzdem akzeptabel und kann mit diesen Parametern im Mikroskop verwendet werden. Folglich ist das Objektfeld des Mikroskops durch das Pinhole auf $30 \mu\text{m}$ begrenzt. Der Mittenstop wird ebenfalls vom Zonenplattenhersteller (www.zoneplates.com) gefertigt und zusammen mit passender Halterung als adaptives Element geliefert. Der Mittenstop wird auf dem Zonenplattenhalter befestigt und kann mit Hilfe dreier Stellschrauben relativ zur Zonenplatte positioniert werden. Diese Justage muss zwingend unter einem VIS-Mikroskop erfolgen. Der Mittenstop besteht aus $25 \mu\text{m}$ dickem Platin und hat einen Transmissionswert von $0,3 \cdot 10^{-4}$ für die Kupfer- K_α -Strahlung und von $0,7 \cdot 10^{-3}$ für die Gallium- K_α -Strahlung. Abbildung 6.4.2 zeigt beispielhaft den Schattenwurf des Mittenstops in Projektionsgeometrie und das vom Objektiv erzeugte Bild eines Goldgitters.

Mit diesem Mittenstopkonzept kann nur der Hellfeldmodus realisiert werden. Am Objekt gestreutes Licht, wird größten Teils vom MS auf der Zonenplatte absorbiert und kann nicht zur Bildentstehung beitragen. Im nächsten Teilabschnitt wird ein zweites MS-Konzept vorgestellt, mit dem sowohl Hell- als auch Dunkelfeldmikroskopie möglich ist.

6.4.2 Lochkamerageometrie

Transmissions-Mikroskope im weichen Röntgenbereich verwenden zumeist einen Kondensator mit abbildenden Eigenschaften. Diese Optiken gehorchen dem Abbildungsgesetz und es ist dabei naheliegend, am Kondensator den Mittenstop zu befestigen, um eine Hohlkegelbeleuchtung zu erzeugen. Der MS muss auch hier so dimensioniert werden, dass auf der Zonenplatte noch ausreichend Photonenfluss vorhanden ist und der Schatten auf dem Detektor die Bildgröße etwas übersteigt. Der Vorteil dieser Anordnung ist, dass nun das am Objekt gestreute Licht die Zonenplatte trifft und

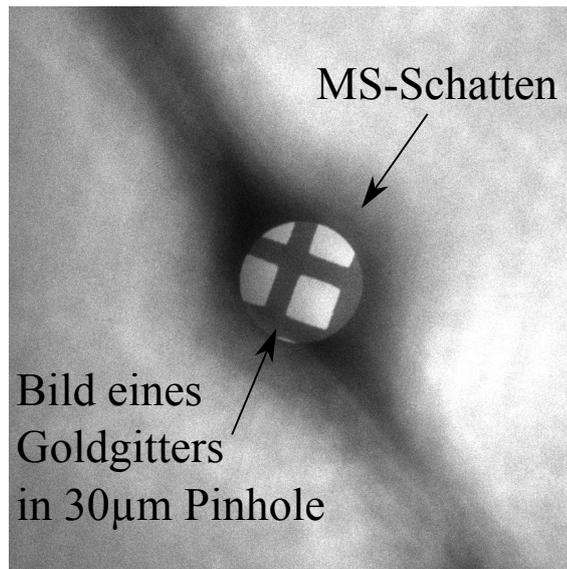


Abbildung 6.4.2: Schattenwurf des Mittenstops in der Projektionsgeometrie und Bild eines Goldgitters mit 1500 Linien/inch.

zur Bildentstehung beiträgt. Ist dabei zusätzlich die NA des Kondensors größer als die des Objektivs, können Dunkelfeldbilder generiert werden.

Eine Polykapillarroptik gehorcht nicht dem Abbildungsgesetz und der Strahlengang am Ausgang des Kondensors ist nicht vergleichbar mit dem einer abbildenden Optik. Um trotzdem die eben erwähnten Vorteile dieser Anordnung nutzen zu können, wird das Pinhole in der Nähe des Objekts als Projektionszentrum einer Lochkamera verwendet. Abbildung 6.4.3 zeigt ein Schema dieses Prinzips. Eine hin-

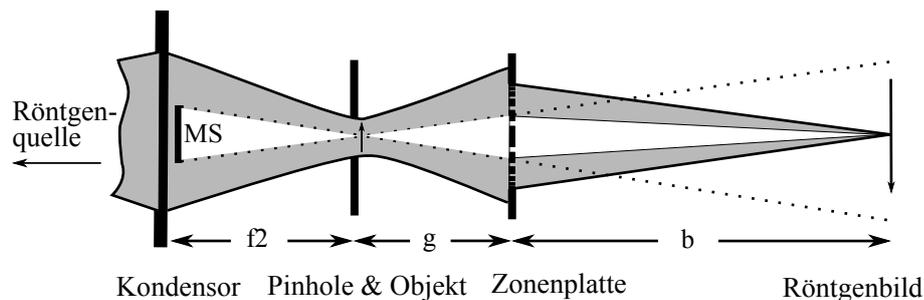


Abbildung 6.4.3: Beleuchtungsstrahlengang im Mikroskop mit MS-Lochkamerageometrie. Der Mittenstop (MS) ist am Kapillarausgang montiert. Das Pinhole nahe des Objekts erzeugt ein vergrößertes Abbild des MS auf dem Detektor mittels Lochkameraprinzip. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

reichend kleine Apertur besitzt die abbildenden Eigenschaften einer dünnen Linse und erzeugt ein Bild eines Objekts. Im konkreten Fall ist das Objekt der Ausgang der PKO, mit dem davor positionierten Mittenstop. Die Größe des Pinholes als auch die Größe des Mittenstops müssen den geometrischen und abbildenden Eigenschaften innerhalb des Mikroskops angepasst werden. Folglich müssen hier folgende

Parameter beachtet werden:

$$M_{MS} = \frac{|g| + |b|}{f_2} \quad (6.5)$$

$$M_{MS/ZP} = \frac{g}{f_2} \quad (6.6)$$

$$d_{MS} \times M_{MS} \leq d_{PH} \times M_{Obj}. \quad (6.7)$$

M_{MS} repräsentiert dabei den Abbildungsmaßstab des Mittenstops in der Detektorebene, $M_{MS/ZP}$ den Abbildungsmaßstab des Mittenstops in der Zonenplattenebene. Der Parameter d_{MS} stellt den Durchmesser des Mittenstops, d_{PH} den Durchmesser des Pinholes und f_2 den ausgangseitigen Arbeitsabstand des Kondensors dar. Das Hauptkriterium legt Formel 6.7 fest, mit der Bedingung, dass die Größe des Mikroskopbildes auf dem Detektor die Abbildung des Mittenstops nicht übersteigt. Formel 6.6 beachtet die Lochkameraabbildung in der Zonenplattenebene. Auch hier darf das Abbild des Mittenstops maximal die Hälfte des Zonenplattendurchmessers betragen. Die Schärfe einer Lochkameraabbildung ist durch die Größe der Apertur in Zusammenhang mit dem Abbildungsmaßstab gegeben. Wird eine Lochkamera, bspw. in der klassischen Fotografie, verwendet, so ist die Gegenstandsweite um einige Größenordnungen höher als die Bildweite. Der Unschärfekreis entspricht näherungsweise dem Durchmesser der Apertur. Im vorliegenden Fall ist in der Lochkameraanordnung die Gegenstandsweite (f_2) deutlich kleiner als die Bildweite ($g+b$). Der Unschärfekreis U skaliert daher mit der vergrößerten Abbildung und berechnet sich aus:

$$U = \frac{f_2 + |g| + |b|}{f_2} \times d_{PH} \quad (6.8)$$

Dieser Unschärfekreis übersteigt aufgrund der hohen Bildweite die Pixelgröße des Detektors und es entsteht ein unscharfer Rand in der Abbildung des Mittenstops. Diese Tatsache muss bei der Größenberechnung des Mittenstops berücksichtigt werden. Berechnet man für beide PKOs die geeignetsten Mittenstop- und Pinholeparameter, so folgt für Kondensator PKO-A ein MS-Durchmesser von ca. 40 μm und ein Pinhole-Durchmesser von 20 μm . Für PKO-B mit dem deutlich längeren Ausgangsarbeitsabstand folgt ein MS-Durchmesser von ca. 400 μm und ein Pinhole-Durchmesser von 50 μm . Aufgrund der Tatsache, dass das Bildfeld für PKO-A in dieser Anordnung sehr klein und ein Mittenstop mit solch kleinen Dimensionen schwer in der Handhabung ist, wird die Lochkamerageometrie nur mit PKO-B realisiert. Im Vergleich zur MS-Projektionsgeometrie wird mit diesem Konzept das Bildfeld von 30 μm auf 50 μm erhöht. Abbildung 6.4.4 a) zeigt das vom Pinhole erzeugte Lochkamerabild des MS. In dieser Anordnung wird der Mittenstop 12-fach vergrößert auf dem Detektor abgebildet. Der oben erläuterte unscharfe Rand aufgrund der Lochkamerageometrie ist ebenfalls zu erkennen. Die Größe des verschwommenen Randbereichs stimmt mit der Berechnung nach Formel 6.8 überein. Im Hintergrund ist außerdem die hexagonale Struktur der einzelnen Kapillarbündel zu sehen. In Abbildung 6.4.4 b) ist zusätzlich ein durch die Zonenplatte generiertes Bild eines Goldgitters auf dem Schatten des Mittenstops dargestellt.

Für die Dunkelfeldmikroskopie muss nun der MS soweit angepasst werden, dass der Schatten in der Zonenplattenebene mind. dem Durchmesser der Zonenplatte

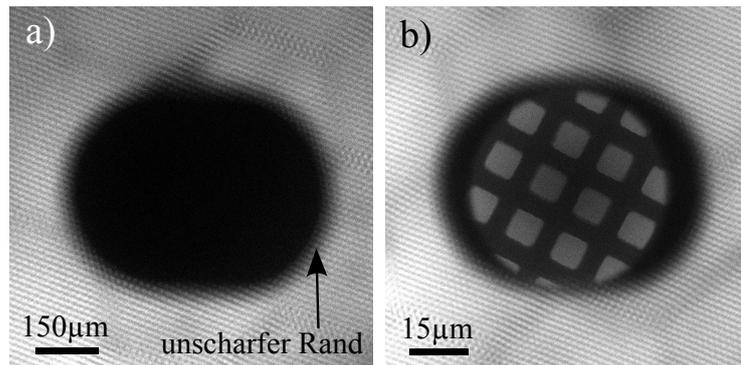


Abbildung 6.4.4: a) Lochkameraabbildung des Mittenstops am Kondensorausgang. b) Von der Zonenplatte erzeugtes 110-fach vergrößertes Abbild eines Goldgitters im Schatten des Mittenstops. Die Skala in a) ist nur für die Lochkameraabbildung und in b) nur für die Zonenplattenabbildung gültig.

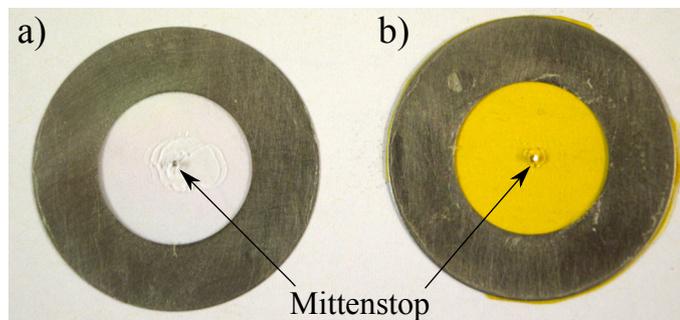


Abbildung 6.4.5: Foto des Mittenstops für a) Hellfeld und b) Dunkelfeld.

entspricht. Ein MS mit einem Durchmesser von $800\ \mu\text{m}$ würde diese Aufgabe gerade erfüllen. Um evtl. Justageungenauigkeiten zu umgehen, sollte jedoch ein MS- Durchmesser von mind. $1\ \text{mm}$ verwendet werden. In der Praxis wird, sowohl für Hell- als auch Dunkelfeld, ein ca. $0,5 - 1\ \text{mm}$ langes Stück Draht mit entsprechendem Durchmesser auf einer $200\ \text{nm}$ dünnen Silizium-Nitrit-Membran bzw. $25\ \mu\text{m}$ dünnen PI-Folie geklebt (siehe Abbildung 6.4.5). Zwar transmittiert die Silizium-Nitrit-Folie 8 und $9\ \text{keV}$ Röntgenstrahlung mit $99,8\%$ quasi vollständig, die Handhabung während des Klebevorgangs ist jedoch bei der PI-Folie deutlich vorteilhafter. Die nur geringfügig schlechtere Transmission von $98,5\%$ kann dabei vernachlässigt werden.

6.5 Zusammenfassung

Die in diesem Kapitel ermittelten Werte für die beiden Polykapillaroptiken fasst Tabelle 6.5.1 zusammen. Bezogen auf das Mittenstop-Konzept in Lochkamerageometrie, stellt Tabelle 6.5.2 die Parameter gegenüber. In der MS-Projektionsgeometrie wird für beide Kondensoren ein Mittenstop mit einem Durchmesser von $50\ \mu\text{m}$ auf der Zonenplatte verwendet.

Tabelle 6.5.1: Charakteristische Werte von Kondensator PKO-A und PKO-B.

PKO	f_1 [mm]	L [mm]	f_2 [mm]	Spot Δ [μm]	NA
A	32	61	30	70	18×10^{-3}
B	40	113	275	405	5×10^{-3}

Tabelle 6.5.2: Mittenstop- und Objektfeld-Parameter für die Lochkamerageometrie.

PKO	MS [μm]	Objektfeld [μm]
A	40	20
B	400	50

Kapitel 7

Das Labor-Transmissionsmikroskop für harte Röntgenstrahlung am BLiX

7.1 Überblick

Nachdem alle Komponenten des Mikroskops einzeln vorgestellt und charakterisiert wurden, stellt dieses Kapitel das Labormikroskop in seiner Gesamtheit dar. Justagestrategien werden präsentiert und ein Vergleich der Kondensorsysteme im Gesamtaufbau durchgeführt. Es wird der Einfluss eines Ni-Filters auf den Bildkontrast untersucht, der lineare Absorptionskoeffizient von Eisen bestimmt und die Auflösungsleistung des Mikroskops anhand von Siemenssternen im Hell- und Dunkelfeldmodus ermittelt. Mögliche Abbildungsfehler (Verzeichnung und Bildfeldwölbung) werden an Röntgenaufnahmen von konzentrischen Kreisen erfasst. Das Kapitel schließt mit einer Gegenüberstellung der beiden verwendeten Röntgenröhren, in Bezug auf die Leistungsfähigkeit des Mikroskops.

Alle hier gezeigten röntgenmikroskopischen Aufnahmen sind die Summe aus mehreren Einzelaufnahmen jeweils weniger Minuten bzw. Sekunden. Dadurch lässt sich einerseits virtuell die Limitierung durch die Dynamik des Detektors erhöhen und andererseits können Drifts lokalisiert und mit Hilfe von einfachen Translationen kompensiert werden. Bei allen Aufnahmen wird zusätzlich ein Dunkelbild akquiriert und anschließend von der eigentlichen Aufnahme subtrahiert, um das thermische Rauschen zu eliminieren.

Zunächst wird noch einmal ein kurzer Überblick über den Gesamtaufbau gegeben. Abbildung 7.1.1 zeigt ein Foto des Mikroskops. Röntgenröhre und Kondensoroptik bilden eine mechanische Einheit. Sie können sowohl relativ zueinander als auch insgesamt gegenüber den restlichen Komponenten justiert werden. Der Kondensor besitzt in seiner Fassung am Kapillareingang eine PI-Folie als Vakuumfenster. Die Kapillare selbst wird über eine Durchführung in das Kammersystem in das Vakuum eingekoppelt.

In der ersten Kammer befindet sich auf einer motorisierten x,y-Stage die Mittenstops für die Hell- und Dunkelfeld-Mikroskopie auf einer 300 nm dünnen Silizium-

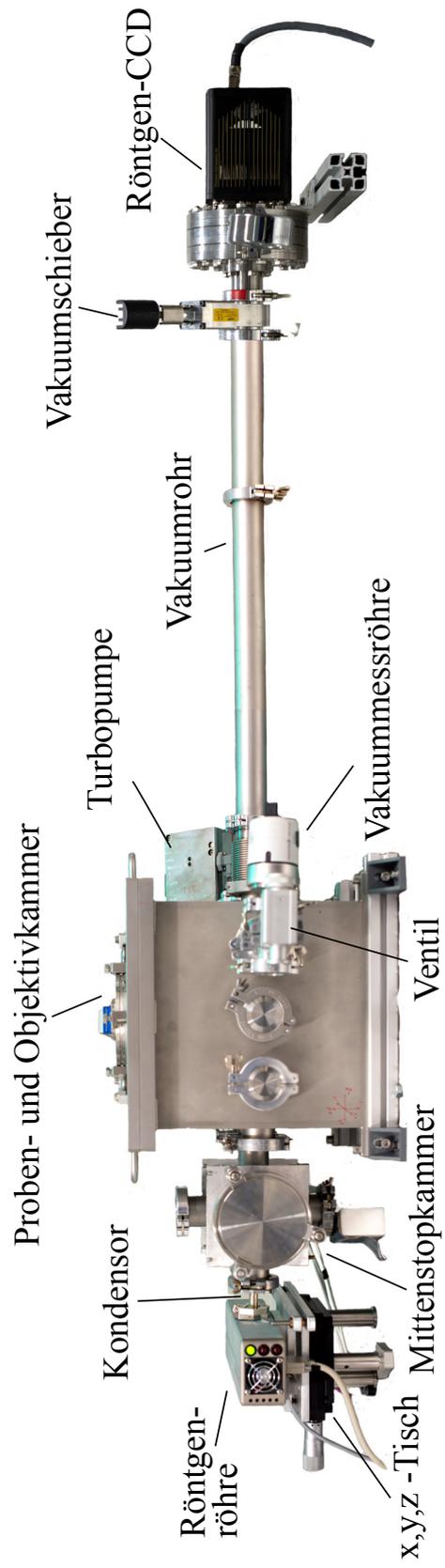


Abbildung 7.1.1: Foto des Mikroskops

Nitrit-Folie, in einem Abstand von ca. 5 mm zum Ausgang des Kondensors. In der zweiten Vakuumkammer befindet sich das Pinhole, das Objekt und die Zonenplatte jeweils auf elektrisch steuerbaren Stages. Pinhole- und Objektstisch können in x- und y-Richtung bewegt werden, wohingegen die Zonenplatte zusätzlich in z-Richtung verfahren werden kann. Proben- und Zonenplatten-Stage befinden sich auf einer mechanischen Einheit, die nach außen mit einer Lineardurchführung verbunden ist. So kann die Einheit Probe-Objektiv bzgl. des Kondensorspots justiert werden. Das Objektiv wird manuell über eine Mikrometerschraube in z-Richtung gegenüber der Probe vorjustiert. Sie dient auch dazu, die Zonenplatte so weit von der Probe zu entfernen, dass die Optik gefahrlos entfernt werden kann. Das Pinhole wird knapp vor dem Kondensorspot platziert. An dieser Kammer sind außerdem die Vorpumpe, eine Turbomolekularpumpe, Drucksensoren und Ventile angeflanscht. An der Rückseite der Kammer befindet sich ein T-Stück mit einem Durchführungsflansch für die elektrischen Kabel, zur Ansteuerung der Verfahrtsche und zur Befestigung der Turbomolekularpumpe. Der Röntgen-CCD ist über ein Vakuumrohr mit der zweiten Kammer verbunden und schließt die Vakuumumgebung ab. Zur Reduktion der Strahlungsabsorption würde ein Vorvakuum ausreichen. Da der CCD-Chip auf ca. -50°C gekühlt wird, muss der Druck im Bereich 10^{-5} Millibar liegen, um ein Gefrieren der in Luft vorhandenen Wassermoleküle am Chip zu vermeiden. Die Röntgenröhre, Verfahrtsche und der CCD werden über USB, bzw. DAQ (Data Acquisition Card) angesteuert. Lediglich die Position des Kondensors bzgl. der Quelle wird im Vorfeld manuell justiert.

Die erste Vakuumkammer entfällt bei der Nutzung von Kondensor PKO-A. Hier kann nur das MS-Konzept in Projektionsgeometrie verwendet werden und die Strahlungseinkopplung findet über ein Vakuumfenster im KF40-Flansch statt.

7.2 Justagestrategie

Da das Mikroskop aus mehreren Komponenten besteht, die aufeinander abgestimmt werden müssen, ist eine exakte Vorjustage der Ausgangspunkt für einen erfolgreichen Gesamtaufbau. Um dies zu realisieren, wird innerhalb der Kammer eine optische Achse mittels eines Lasers und eines Spiegels definiert (siehe Abbildung 7.2.1). Zwei Blenden von 1 - 2 mm Durchmesser innerhalb der KF40-Flansche an beiden Enden der Kammer legen die Achse fest und der Laser wird mittels Umlenkspiegel durch beide Blenden justiert. Diese Achse definiert die Position von Röhre, Mittenstop (falls MS-Konzept in Lochkamerageometrie angewandt wird), Pinhole, Objekt und Zonenplatte. Alle betreffenden Verfahrtsche werden nacheinander inklusive ihrer Komponenten justiert. Zur Kondensorjustage werden Pinhole, Zonenplatte und Objekt wieder entfernt. Das Wiedereinlegen in ihre Halter ist jedoch reproduzierbar.

Im nächsten Schritt wird der Kondensor an die Justageeinheit (siehe Abbildung 7.2.2) montiert und an der Röntgenröhre befestigt. Die CCD-Kamera ist zunächst am Kammerende angeflanscht. Die Kondensorjustage erfolgt über je zwei Schrauben für die x- und y-Achse. Abbildung 7.2.3 a) bis d) zeigt einen möglichen Verlauf der Justage. Der dunkle Fleck in der Mitte des Strahlkegels stellt den noch nicht exakt positionierten Mittenstop dar.

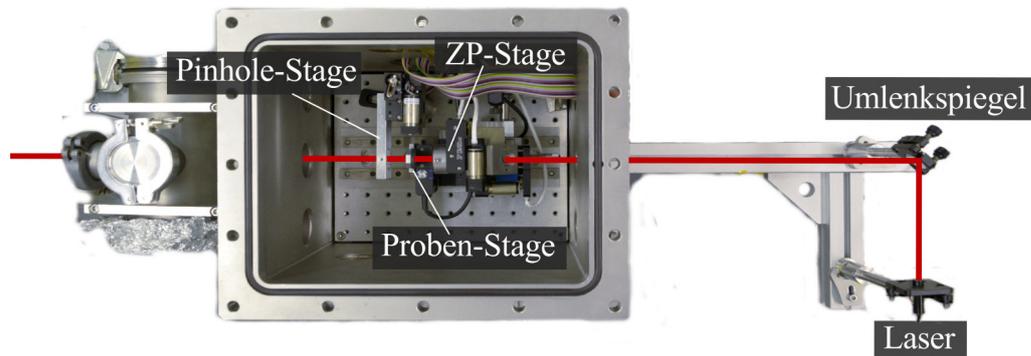


Abbildung 7.2.1: Aufbau zur Vorjustage.

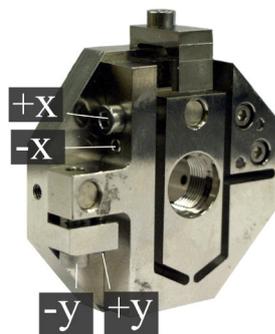


Abbildung 7.2.2: Justagehalter der Kondensoroptik.

Das Pinhole wird in der Nähe des Kondensorspots eingebaut und positioniert. Es dient zum einen zur Bildfeldbegrenzung und zum anderen bildet es die Ausgangsfläche der Polykapillaroptik vergrößert auf den CCD im Sinne einer Lochkamera ab. Für Kondensator PKO-A und dem Mittenstop auf der Zonenplatte muss ein Pinhole mit einem Durchmesser von $30\ \mu\text{m}$ verwendet werden. Bei Nutzung des Kondensators PKO-B und dem Mittenstop auf der Ausgangsfläche der PKO kann ein Pinhole mit $50\ \mu\text{m}$ Durchmesser benutzt werden. Für PKO-B wird beispielhaft dargestellt, wie sich unterschiedliche Pinholepositionen innerhalb des Kondensorspot auf die Intensitätsverteilung in der Kameraebene auswirken (siehe Abbildung 7.2.4). Bei Position b), bzw. c), in Abbildung 7.2.4 ist das Pinhole gut justiert. In dieser Darstellung ist außerdem die hexagonale Struktur der Optik aufgrund der Lochkameraabbildung des Pinholes zu erkennen.

Es folgt der Einbau des Objekts. Die Objektmitte wird lokalisiert, indem mittels Schrittmotoren, die Objektträger an beiden Seiten einer Achse erfasst werden und anschließend der Schrittweitenabstand halbiert wird. Wird dieser Vorgang abwechselnd für jede Achse zweimal wiederholt, ist die Objektmitte sehr genau erfasst. Bei der MS-Lochkamerageometrie wird der Mittenstop am Ausgang des Kondensors justiert (siehe Abbildung 7.2.5 a)) und anschließend die Zonenplatte eingebaut (siehe Abbildung 7.2.5 b)). Bei Nutzung des MS-Konzept in Projektionsgeometrie muss der Mittenstop gegenüber der Zonenplatte im Vorfeld unter einem VIS-Mikroskop positioniert werden. Im Röntgenmikroskop erfolgt der Einbau der Zonenplatten-

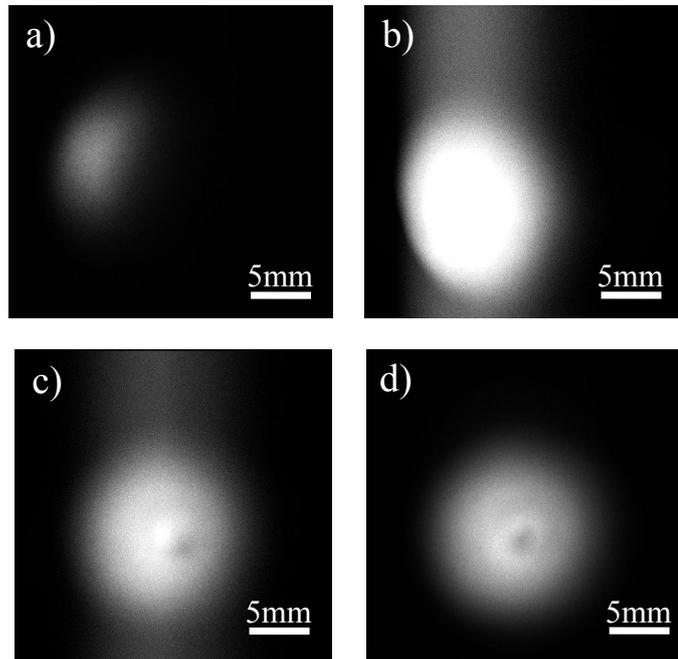


Abbildung 7.2.3: Strahlkegel des Kondensors während der Justage von a) dejustiert bis d) justiert.

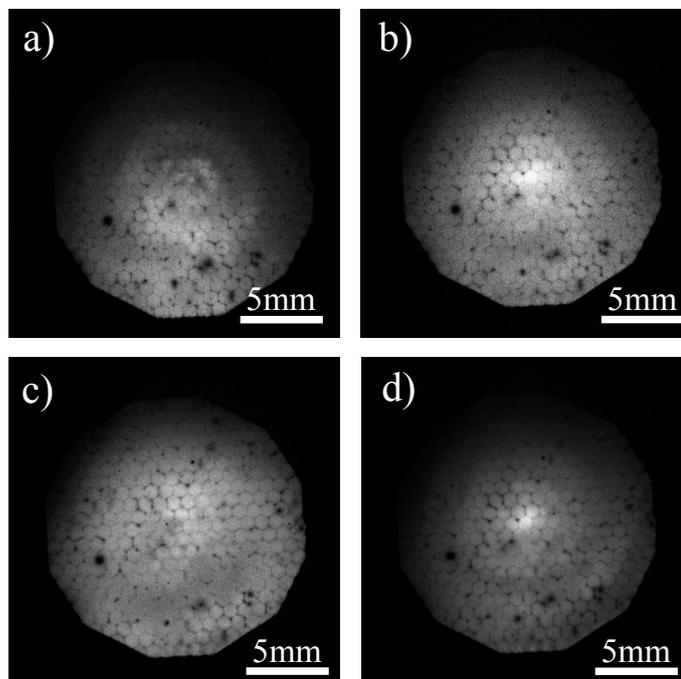


Abbildung 7.2.4: Strahlkegel des Kondensors mit 50 μm Pinhole nahe des Kondensator-Spots an leicht unterschiedlichen x- und y-Positionen des Pinholes.

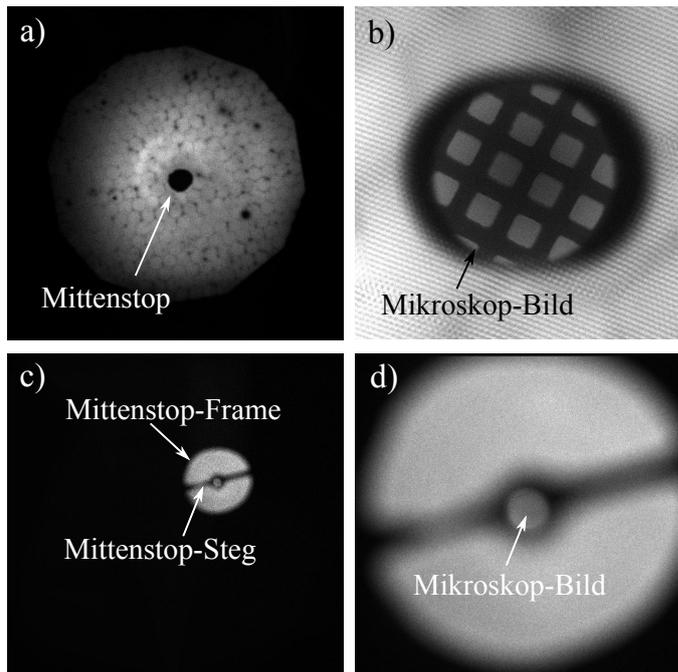


Abbildung 7.2.5: Oben: Mittenstop in Lochkammergeometrie. Abbildung der Mittenstops bei a) geringer Bildweite und b) hoher Bildweite. Unten: Mittenstop in Projektionsgeometrie. Schattenwurf der Zonenplatten-Mittenstop-Einheit bei a) geringer Bildweite, b) hoher Bildweite.

Mittenstop-Einheit auf der optische Achse. In Abbildung 7.2.5 c) und d) ist der Mittenstop-Frame und das mikroskopische Bild bei unterschiedlichen Bildweiten dargestellt. Zur Fokussierung wird die Zonenplatte in z-Richtung bewegt.

Das Mikroskop ist nun einsatzbereit. Die Vergrößerung kann durch Anbringen weiterer Vakuumrohre zwischen Kammer und CCD-Kamera erhöht werden. Das Objektiv muss bei jeder Veränderung am Aufbau nachfokussiert werden.

7.3 Kondensorenvergleich

In Kapitel 6 wurde bereits angedeutet, dass ein Vergleich der beiden verwendeten Kondensoren am sinnvollsten im Gesamtaufbau des Mikroskops durchgeführt werden sollte. Die Kondensoreigenschaften lassen sich sehr gut durch sog. Flatfield-Aufnahmen prüfen. Dazu wird das Mikroskop vollständig, aber ohne ein Objekt zu platzieren, aufgebaut, und Bilder der Objektbeleuchtung aufgenommen. Es bietet sich trotzdem an, zunächst ein einfaches Objekt, z.B. ein Goldgitter, zu verwenden. Nach erfolgreicher Justage der Zonenplatte wird die Objektebene scharf in die Detektorebene abgebildet und das Objekt kann entfernt oder an eine objekt-freie Position verfahren werden, um ausschließlich die Objektbeleuchtung abzubilden.

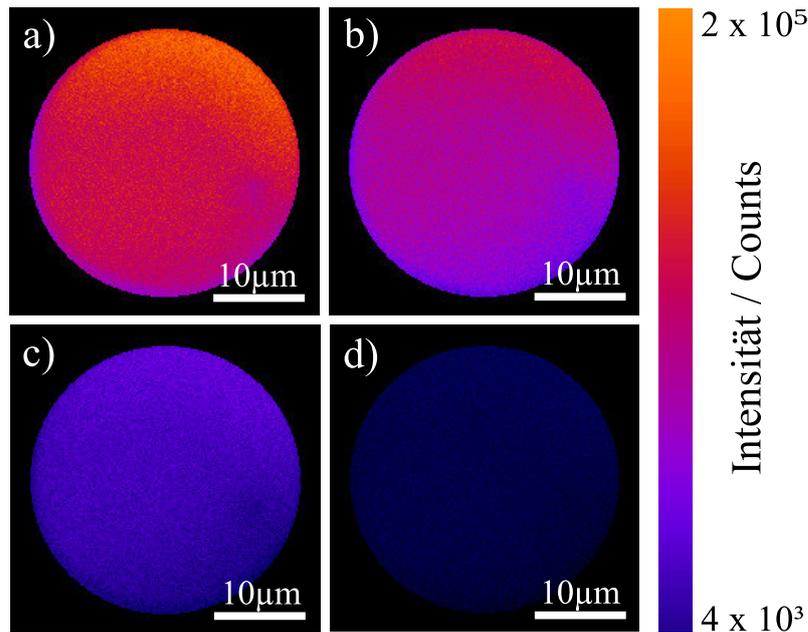


Abbildung 7.3.1: Flatfeldaufnahmen mit PKO-A bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen und jeweils maximalen Röhrenströmen, Belichtungszeit 20 min. Röntgenquelle iMOXS. a) 50 kV (30 W), b) 40 kV (28 W), c) 30 kV (18 W), d) 20 kV (8 W).

7.3.1 Objektausleuchtung

Abbildung 7.3.1 und 7.3.2 zeigen Aufnahmen der Objektausleuchtung (Flatfield) von Kondensator PKO-A und PKO-B, jeweils bei unterschiedlichen Beschleunigungsspannungen der Röntgenröhre und zugehörigem maximalen Röhrenstrom. Bei diesen Aufnahmen wird das Mittestopkonzept in Projektionsgeometrie verwendet (siehe Abbildung 6.4.1). Das Objektfeld hat eine Größe von $30 \mu\text{m}$ und der Mittenstop ist am Objektiv befestigt. In beiden Flatfield-Serien liegt näherungsweise der gleiche Vergrößerungsmaßstab vor, so dass ein Intensitätsvergleich durchgeführt werden kann. Es ist deutlich zu erkennen, dass das Objektfeld von beiden Kondensoren sehr homogen ausgeleuchtet wird. Ein leichter Intensitätsabfall vom rechten oberen Rand, bis zur linken unteren Bildkante für PKO-A ist sichtbar. Analog dazu, liegt ein Intensitätsabfall von der oberen linken Kante zur rechten unteren Kante bei PKO-B vor. Die Position des Pinholes vor dem Kondensatorspot ist ausschlaggebend und muss sehr genau auf der optischen Achse positioniert werden. Dies gilt insbesondere für PKO-A mit einem Spotdurchmesser von $70 \mu\text{m}$. Die Homogenität der Objektausleuchtung kann durch die Angabe des Beleuchtungscontrastes quantifiziert werden. Für jede Flatfield-Aufnahme wird die mittlere Intensität in einem 20×20 Pixel großen Feld an fünf Bildpositionen (Bildmitte, oberer und unterer sowie linker und rechter Bildrand) ermittelt. Der lokale Intensitätsunterschied von der Bildmitte zu den äußeren Bildpositionen wird jeweils in einen Kontrastwert umgesetzt und nach Formel 2.5 berechnet. Der gesamte Beleuchtungscontrast ist der Mittelwert aus diesen lokalen Kontrastmessungen. Tabelle 7.3.1 stellt die Ergebnisse für beide Kondensoren bei jeweils unterschiedlicher Röhrenspannung gegenüber. Für

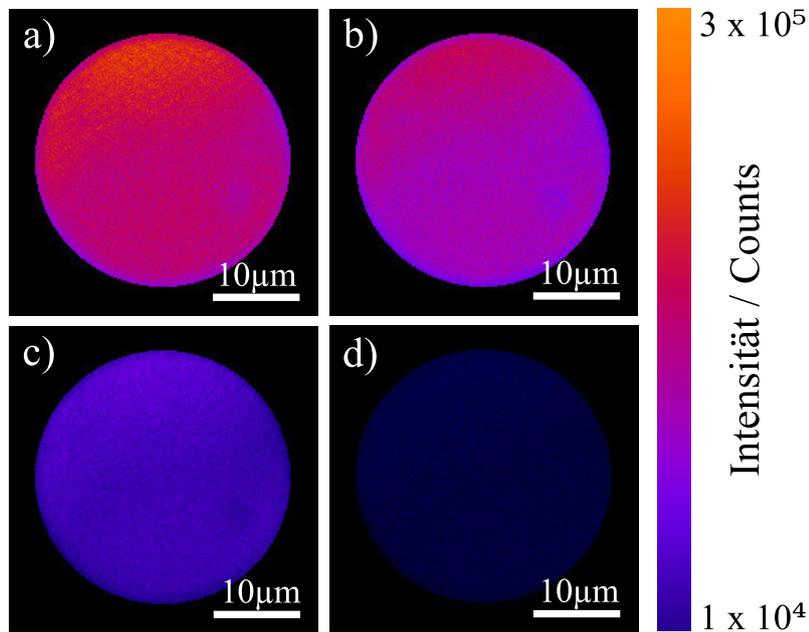


Abbildung 7.3.2: Flatfieldaufnahmen mit PKO-B bei verschiedenen Beschleunigungsspannungen und jeweils maximalen Röhrenströmen, Belichtungszeit 20 min. Röntgenquelle iMOXS. a) 50 kV (30 W), b) 40 kV (28 W), c) 30 kV (18 W), d) 20 kV (8 W).

Tabelle 7.3.1: Beleuchtungscontrast von Kondensator PKO-A und PKO-B bei unterschiedlicher Röhrenspannung (Röhrenleistung).

Kondensator	20 kV (8 W)	30 kV (18 W)	40 kV (28 W)	50 kV (30 W)
PKO-A	6,6%	7,4%	5,2%	4,6%
PKO-B	4,5%	4,3%	4,5%	4,4%

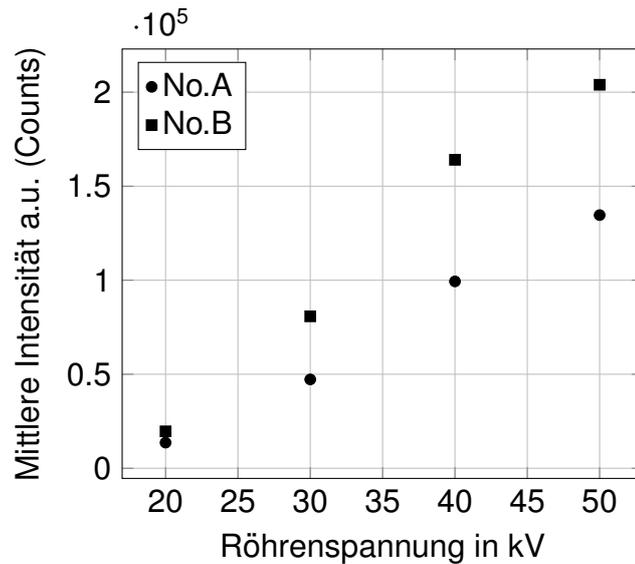


Abbildung 7.3.3: Mittlere Intensität der Flat-Field-Aufnahmen aus Abbildung 7.3.1 und 7.3.2 für Kondensator PKO-A und PKO-B.

beide Kondensorsysteme ist der Beleuchtungscontrast gering und das Flatfield daher sehr homogen. Das Beleuchtungssystem PKO-B hebt sich leicht von PKO-A ab. Grund dafür ist der verhältnismäßig große Spotdurchmesser von PKO-B ($405\ \mu\text{m}$) im Vergleich zum Pinhole-Durchmesser ($30\ \mu\text{m}$). Die Blende lässt nur einen sehr geringen Bereich der Intensitätsverteilung des Spots passieren. Die Justage des Pinholes ist daher unkritischer als bei Kondensator PKO-A. Das Pinhole muss lediglich innerhalb des Intensitätsmaximums positioniert werden. Die in Kapitel 6 beschriebene gleichförmige Objektbeleuchtung hat sich damit, aufgrund der köhler-ähnlichen Beleuchtungsgeometrie, bestätigt.

In allen Flatfield-Aufnahmen ist ein geringfügig dunkler Fleck zu erkennen. Da er in den Aufnahmen mit beiden Kondensorsystemen vorhanden ist, kann es sich dabei z.B. um Störungen auf dem Detektor handeln. Derartige Verunreinigungen in der Zonenplattenebene wären im Bild nicht sichtbar, denn es würde sich nur die Gesamthelligkeit im Bild ändern. Eine weitere Möglichkeit sind verstopfte oder defekte Kapillaren, sowohl bei Kondensator PKO-A als auch bei Kondensator PKO-B.

Ein Vergleich der Intensitäten, bzw. Counts, in den Flatfield-Aufnahmen, kann mit Hilfe der Skala am rechten Rand, der Abbildungen 7.3.1 und 7.3.2 abgeschätzt werden. Einen besseren Überblick liefert der Graph in Abbildung 7.3.3. Dort sind für jede Beschleunigungsspannung die mittleren Intensitäten innerhalb des Flatfields aufgetragen. Der Unterschied zwischen beiden Kondensorsystemen liegt bei voller Leistung von 30 W und 50 kV bei einem Faktor von 1,5 zugunsten von Kondensator PKO-B. Das Signal-Rausch-Verhältnis der Flatfield-Aufnahmen wird in der Bildmitte berechnet. Bei voller Röhrenleistung erhält man ein SNR von 24 für PKO-B bzw. 19 für PKO-A. Trotz der großen Unterschiede bzgl. aufgefangenem Raumwinkel am Eingang der Optik, der Spotgröße und der numerischen Apertur am Kondensorausgang, fällt der Unterschied in der Leistung als Mikroskop-Kondensator relativ gering aus. Bereits der Unterschied in der Transmission bei 8 keV der PKOs liegt bei einem

Faktor von 1,27 (12,1% zu 9,5%, vgl. Tabelle 6.3.1). Eine Schlussfolgerung daraus ist, dass die zur Bildentstehung beitragenden Photonen (unter Vernachlässigung von Streuung), ausschließlich aus den innersten Kanälen des Kondensors kommen. Zur globalen Konvergenz von Polykapillaroptiken tragen hauptsächlich die äußeren Kapillaren bei. Diese beleuchten zwar auch das Objekt, jedoch nicht die Zonenplatte und aufgrund dessen, tragen diese Photonen nicht zur Bildentstehung bei. Von dieser Betrachtung ausgenommen sind diejenigen Photonen, die am Objekt innerhalb des Akzeptanzwinkels der Zonenplatte gestreut werden. Diese Photonen beinhalten Informationen über hohe Raumfrequenzen des Objekts und sind unentbehrlich für die Dunkelfeldmikroskopie. Auch im Hellfeld tragen die gestreuten Photonen zu einem besseren Bildkontrast und Signal-Rausch-Verhältnis bei. Dies setzt voraus, dass der Mittenstop am Kondensorausgang befestigt ist und nicht an der Zonenplatte selbst. Trotz der Tatsache, dass hauptsächlich das Licht der inneren Kapillaren zur Bildformation beiträgt, sollte eine zu starke Ausgangsdivergenz und ein gleichzeitig kleiner Spot vermieden werden. Bei langen Ausgangsarbeitsabständen liegt eine geringere ausgangsseitige NA vor und eine größere Anzahl innerer Kapillaren liegt noch im Akzeptanzbereich der Zonenplatte. All diese Punkte haben auch Konsequenzen für die Mittenstopkonzepte. Bei Betrachtung des Mittenstops in Projektionsgeometrie können die wichtigen, gestreuten Photonen aus dem Licht der äußeren Kapillaren nicht genutzt werden, da sie vom MS absorbiert werden. Bei der Lochkamerageometrie hingegen blockiert der MS auch im Hellfeldmodus das Licht der Kapillarbündel, die den größten Beitrag zum Bild beisteuern. Je nach Dimensionierung des MS ist genau aus diesem Grund auch im Hellfeld ein etwas dunklerer Bereich in der Bildmitte vorhanden. Ein Vergleich der Bilder in Abbildung 6.4.2 (Projektionsgeometrie) und 6.4.4 b) (Lochkamerageometrie) veranschaulicht diese Tatsache. Bei einem Durchmesser einer einzelnen Kapillare von ca. 10 μm , blockiert der MS für Kondensator PKO-B mit einem MS-Durchmesser von ca. 0,4 mm in etwa 1000 Kapillaren. Eine Polykapillaroptik sollte in Ausgangsarbeitsabstand und Divergenz so designt werden, dass der MS nur wenige innere Kapillaren blockiert. Bei einer Anpassung des MS-Durchmesser für die Dunkelfeldbildgebung wird der eben beschriebene Nachteil für den Hellfeld-, zum Vorteil für den Dunkelfeldmodus. Kein direktes, sondern nur am Objekt gestreutes Licht trifft auf die Zonenplatte. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird gezeigt, dass zum ersten Mal ist ein Dunkelfeld-Transmissions-Röntgenmikroskop im harten Röntgenbereich in einer Laborumgebung realisiert worden ist. Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass beide vorgestellte Kondensoren als auch Mittenstopkonzepte, Vor- und Nachteile besitzen und je nach Art der Bildgebung das jeweilig bessere Modell zum Einsatz kommen sollte. Beide Kondensoren können hier nur in Verbindung mit der Projektionsgeometrie verglichen werden (siehe Abschnitt 6.4.2). In dieser Konfiguration wird deutlich, dass beide Beleuchtungssysteme näherungsweise die selbe Leistungsfähigkeit im Mikroskop aufweisen und daher gleichwertig sind.

7.4 Nickelfolie als spektraler Filter

Das Element Nickel liegt eine Ordnungszahl unterhalb von Kupfer und hat damit eine Absorptionskante für die Cu- K_β -Linie. Abbildung 7.4.1 zeigt diese Kante. Zusätz-

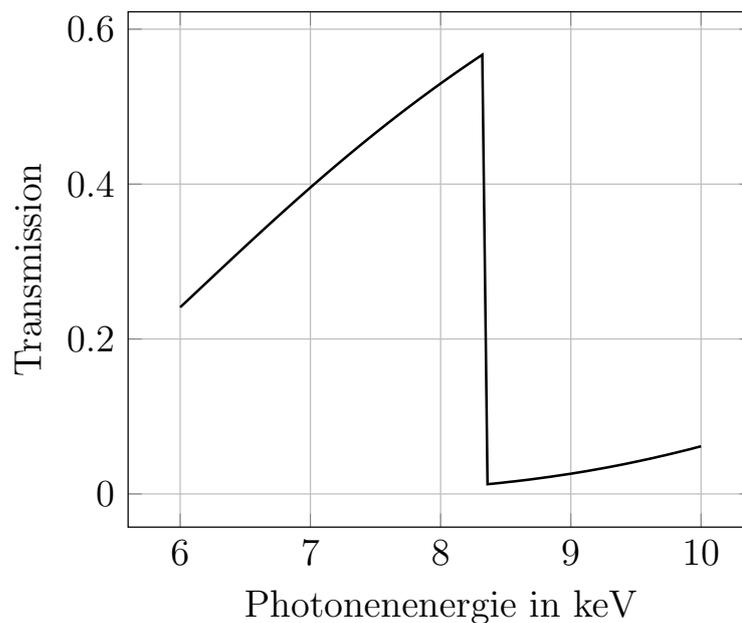


Abbildung 7.4.1: Transmission einer 15 μm dünnen Nickelfolie im Bereich 6 keV bis 10 keV. Daten von <http://www.cxro.lbl.gov/>

lich wird auch die Cu- K_α -Linie geschwächt. Die Verwendung eines Nickelfilters im Mikroskop, in Kombination mit der iMOXS-Quelle, wird in diesem Abschnitt untersucht. Abbildung 7.4.2 zeigt zwei Aufnahmen eines Goldgitters mit 2000 Lp/inch, mit und ohne Nickelfilter. Man erkennt den Helligkeitsunterschied der beiden Aufnahmen aufgrund der geschwächten Cu- K_α -Linie. Dieser Sachverhalt wird im Signal-Rauschverhältnis verdeutlicht. In Abbildung 7.4.2 a) liegt ein SNR von 13 vor, im Gegensatz zu b) mit einem SNR von 10. Die Verwendung des Ni-Filters wirkt sich jedoch positiv auf den Bildkontrast aus (siehe 7.4.3). Zwischen der Hintergrundintensität und der Intensität in den Gitterstegen liegt ein Kontrast von 60% für 7.4.2 a) und von 67% für 7.4.2 b) vor. Aufgrund der unterdrückten K_β -Linie wird weniger Hintergrundstrahlung im Bild überlagert und der Kontrast um 7% angehoben. Da in etwa 50% der 8 keV Strahlung absorbiert wird, ist der Einsatz eines Nickelfilters nur bei Proben mit sehr schwachem Objektcontrast zu empfehlen.

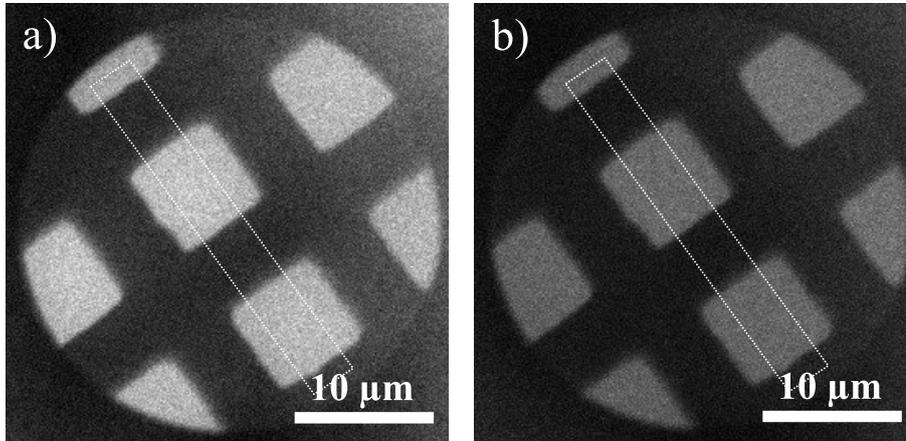


Abbildung 7.4.2: Aufnahmen eines Goldgitters mit 2000 LP/inch bei 8 keV. 171-fache Vergrößerung, Belichtungszeit 20 min, a) ohne und b) mit Nickelfilter. SNR=13 in a) und SNR=10 in b).

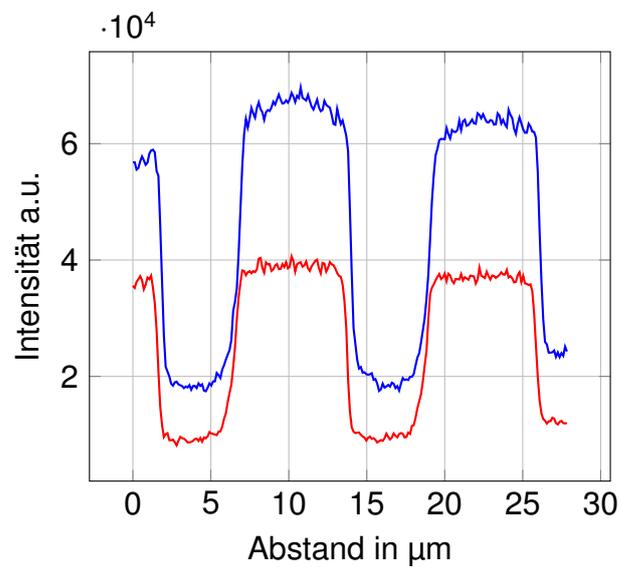


Abbildung 7.4.3: Linienplots zu Abbildung 7.4.2 a) (blau) und b) (rot) gemittelt über 25 Linien (gestrichelte Box). Kontrast in a) 60%, in b) 67%.

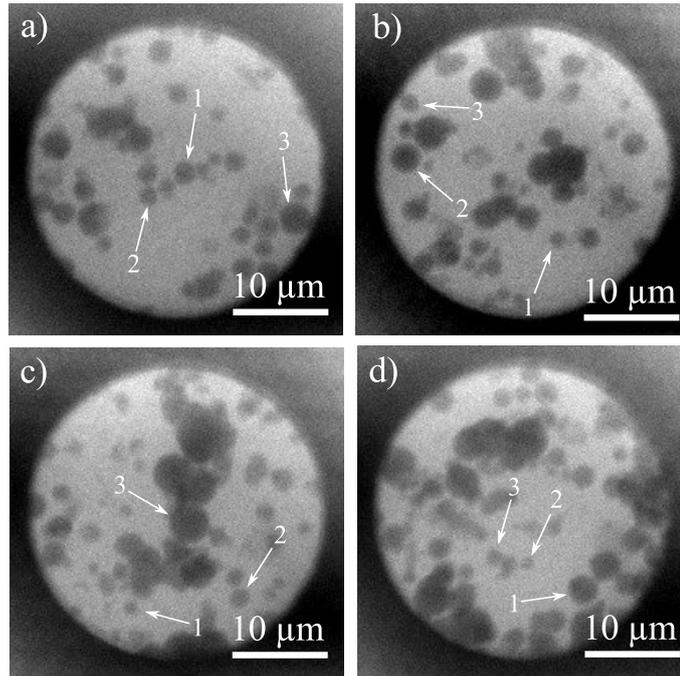


Abbildung 7.5.1: Aufnahmen von Eisenkügelchen $\leq 10 \mu\text{m}$ bei 8 keV. Vergrößerung: 120-fach, effektive Pixelgröße: 167 nm Belichtungszeit: 60 min. An den nummerierten Pfeilen wird die Messung des linearen Absorptionskoeffizienten durchgeführt. Werte dazu befinden sich in Tabelle 7.5.1.

7.5 Bestimmung des linearen Absorptionskoeffizienten von Eisen

Der Absorptionskoeffizient lässt sich über das Beer-Lambert'sche Gesetz bestimmen [52]:

$$\mu(\lambda) = \frac{\ln(I_T/I_0)}{-z} \quad (7.1)$$

Die transmittierte Intensität I_T , in Bezug zur einfallenden Intensität I_0 , hängt von der Dicke z des durchleuchteten Körpers und vom wellenlängenabhängigen linearen Absorptionskoeffizienten $\mu(\lambda)$ ab. Die Verwendung einer Zonenplatte als Objektiv liefert im Bild -ausgenommen von Hintergrundstrahlung höherer Photonenenergien- eine schmalbandige Wellenlängenverteilung. Es besteht folglich die Möglichkeit den linearen Absorptionskoeffizienten von Reinelementproben zu bestimmen. Im Bild wird zum einen die Dicke der Probe z vermessen als auch die Werte I_T und I_0 erfasst. Abbildung 7.5.1 zeigt vier Aufnahmen mehrerer Eisenkügelchen im Größenbereich $\leq 10 \mu\text{m}$. Die Bestimmung des Absorptionskoeffizienten wird an den nummerierten Bereichen durchgeführt. Der Durchmesser der Kügelchen z ermittelt sich über die effektive Pixelgröße und die Anzahl der Pixel einer Kugel. Der zugehörige Transmissionswert I_T wird in der Mitte der Kugel abgelesen und mit I_0 außerhalb der Kugel ins Verhältnis gesetzt. Mittels Gleichung 7.1 berechnet sich daraus der lineare Absorptionskoeffizient von Eisen bei 8,05 keV. Eine Aufstellung der Ergebnisse zeigt

Tabelle 7.5.1: Ergebnisse zur Bestimmung des linearen Absorptionskoeffizienten von Eisen bei 8,05 keV.

Bild	Nr.	I_0	I_T	Größe [μm]	μ [cm^{-1}]	
a)	1	30815	20831	1,8	2136	
	2	30122	23011	1,3	2019	
	3	30495	17618	2,7	2057	
b)	1	29412	22553	1,2	2275	
	2	29520	17484	2,7	1964	
	3	33324	23544	1,5	2315	
c)	1	30512	23856	1,0	2460	
	2	29705	22451	1,5	1866	
	3	31012	16365	3,5	1826	
d)	1	31488	18518	2,5	2123	
	2	32552	26301	1,0	2132	
	3	31824	25411	1,2	1929	
Mittelwert μ :		2092 cm^{-1}	Literaturwert μ :	2365 cm^{-1}	Abweichung:	11,5%

Tabelle 7.5.1. Dem Literaturwert von 2365 cm^{-1} steht ein gemessener Wert von 2092 cm^{-1} gegenüber. Die Abweichung von 11,5% lässt sich über die Hintergrundintensität durch die Cu- K_β -Linie erklären. Eine zweite Fehlerquelle dieser Messung ist die Bestimmung der Teilchengröße. Da bei verhältnismäßig geringem Abbildungsmaßstab gemessen wird, erstrecken sich viele Eisenkugeln über nur sehr wenige Pixel. Eine Abweichung des Kugeldurchmessers um bspw. zwei Pixel (334 nm) in Messung a) - 3 in Tabelle 7.5.1, verursacht eine Änderung des Absorptionskoeffizienten um 11%. Bei kleinen Kugeldurchmessern wirken sich kleine Messfehler gravierender aus.

7.6 Auflösungsvermögen im Hellfeld

Zur Bestimmung der Auflösungsgrenze des Mikroskops können mehrere Verfahren angewandt werden. Eine Möglichkeit ist bspw. die Kantenmethode. Im Abbild einer opaken Kante wird die Steilheit des Kantenübergangs in den Bereichen 10% bis 90% des Intensitätsunterschieds gemessen. Die Breite dieses Übergangs entspricht der Rayleigh-Auflösung [6]. Wie im Grundlagenkapitel bereits erwähnt, erzeugt jedes optische System ein verwaschenes Abbild der realen Objektstrukturen, abhängig von der PSF des optischen Systems. Das Abbild einer steilen Kante ist demnach das Resultat deren Faltung mit der PSF des Systems. In Abbildung 7.6.1 wird schematisch dargestellt, wie sich die Abbildung einer steilen Objektkante mit einer Linse auf das erzeugte Bild auswirkt. Für die Faltung wird die PSF der Zonenplatte aus den simulierten Daten von Kapitel 5 verwendet. In Abbildungen 7.6.2 a) und b) sind die zugehörigen Kantenplots visualisiert und der Kantenübergang zwischen 10% und 90% eingezeichnet. Er beträgt 71 nm und ist im Rahmen der Simulationsauflösung

der PSF von 12,5 nm pro Pixel, innerhalb der theoretischen Auflösung der Zonenplatte von 61 nm. Mit der PSF ist ein Rückschluss auf die Übertragungsfunktion des optischen Systems möglich. Die Abschätzung des Kantenübergangs ist daher ein zuverlässiges Auflösungskriterium und aufgrund der relativ einfachen experimentellen Umsetzung leicht durchzuführen. Folgende Überlegungen sollten bei dieser Methode trotzdem berücksichtigt werden: Betrachtet man die Fourier-Zerlegung einer steilen Kante, so werden dort nicht alle Raumfrequenzen in gleichem Maße gewichtet. Tiefe Raumfrequenzen haben eine höhere Gewichtung als hohe. Die Auflösungsgrenze liegt jedoch in den hohen Raumfrequenzen. Um diese feinen Ortsstrukturen, im Verhältnis zu den groben, gleichberechtigt zu betrachten, wird ein Objekt, das alle Ortsfrequenzen im selben Maße beinhaltet, benötigt. Ein solches Objekt ist ein sog. Siemensstern und wird in vielen optischen Anwendungen als bevorzugtes Testsample zur Auflösungsbestimmung verwendet. Es bietet zum einen die dargestellten Vorteile, zum anderen liegen all diese Ortsfrequenzen zusätzlich in unterschiedlicher Orientierung vor. Da gerade ein CCD nicht-linear bzgl. einer Verschiebung im Ort ist [113], kann mit einem Siemensstern die globale Auflösung des Systems bestimmt werden. Abbildung 7.6.3 a) - c) zeigt REM-Aufnahmen der hier verwendeten Siemenssterne. In a) sind die äußersten Strukturen ca. 800 nm breit und mit jedem ringförmigen Kreis, angedeutet durch die Stützstege, sinkt die Strukturbreite um 100 nm. Die Spitze der innersten Strukturen haben eine Breite von 100 nm. Die Strukturgrößen der anderen beiden Siemenssterne skaliert sich umgekehrt proportional mit der Anzahl der Speichen. Der Siemensstern in Abbildung 7.6.3 b) besitzt Strukturgrößen im Inneren von 200 nm und in c) von 400 nm. Der Außendurchmesser der Siemenssterne beträgt 32 μm und der Innendurchmesser 4 μm . Alle Testobjekte bestehen aus Wolfram mit einer Dicke von 1,5 μm . Sie sind, ebenso wie die Zonenplatte, nach im Abschnitt 5.2 vorgestelltem Verfahren von Herrn Pambos Charalambous hergestellt worden. Abbildungen 7.6.4, 7.6.7, 7.6.9 und 7.6.11 zeigen röntgen-mikroskopische Aufnahmen dieser Testobjekte, mit dem hier vorgestellten Mikroskop, sowohl bei 8 keV als auch bei 9,25 keV. Bevor anhand dieser Siemenssterne die Übertragungsfunktion des optischen Systems bestimmt wird, wird anhand der oben vorgestellten Kantenmethode die Auflösung bei unterschiedlichen Vergrößerungen abgeschätzt.

Abbildung 7.6.5 zeigt ein Röntgenbild eines Goldgitters mit 1500 LP/inch, aufgenommen bei 9,25 keV. An den markierten Bereichen werden jeweils Daten für einen Linienplot erhoben. Mit der *curve fitting*-Funktion des frei verfügbaren Programms

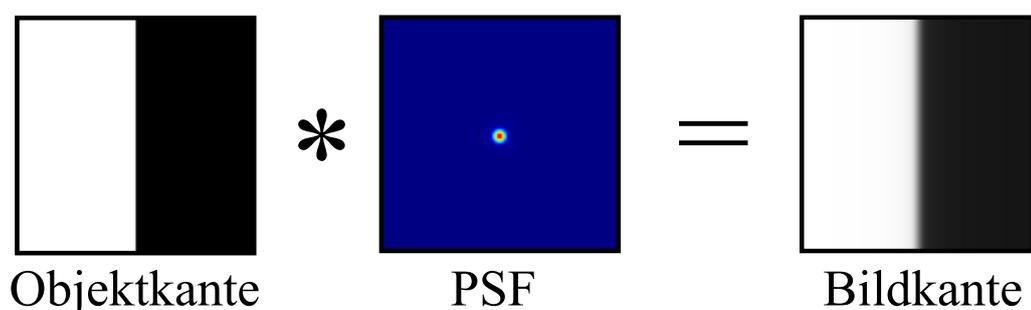


Abbildung 7.6.1: Faltung einer Objektkante mit der PSF der Zonenplatte.

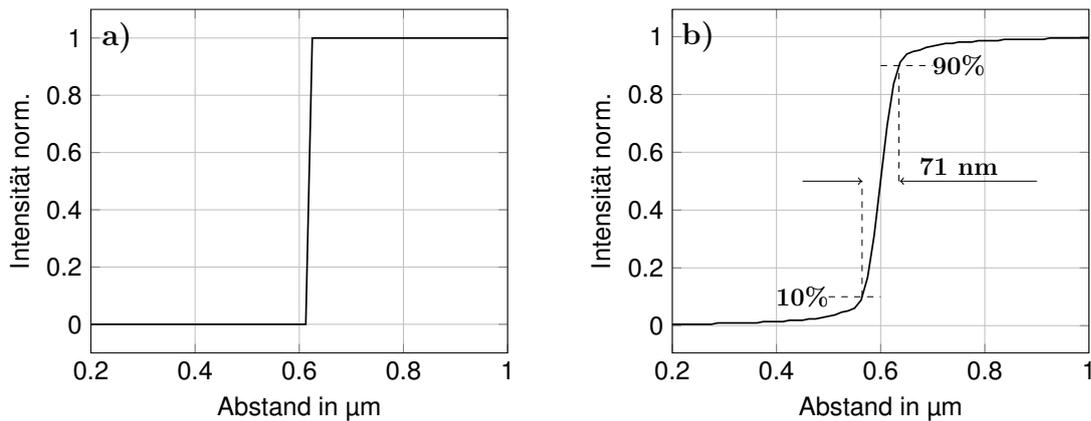


Abbildung 7.6.2: a) Objektkante mit stufenförmigen Verlauf. b) Bildkante nach Faltung mit der Zonenplatten-PSF. Der 10/90-Kantenübergang entspricht, im Rahmen der Simulationsauflösung der PSF, dem Auflösungsvermögen der Zonenplatte.

ImageJ wird eine Kurvenanpassung durchgeführt und der 10/90-Kantenübergang ermittelt. Abbildung 7.6.6 zeigt die Ergebnisse. An den Kanten 1 + 2 wird jeweils der gleiche Wert von 435 nm ermittelt, im Gegensatz zu den Plots 3 + 4 senkrecht dazu, mit einem 10/90-Übergang von 360 nm, bzw. 440 nm. Bildet man den Mittelwert aller Messungen, so erhält man nach Fehlerrechnung eine globale Auflösung von $418 \text{ nm} \pm 17 \text{ nm}$. Im Verhältnis zur effektiven Pixelgröße von 169 nm, entspricht dies einem Faktor von 2,5. Die Auflösung ist demnach nur marginal kleiner als die Auflösungsgrenze des Detektors von $2 \cdot 169 \text{ nm} = 338 \text{ nm}$ (dem Kehrwert der effektiven Nyquistfrequenz). Man kann davon ausgehen, dass die Gesamtauflösung in dieser Konfiguration hauptsächlich durch die maximale Auflösung der CCD-Kamera, bei gegebener Vergrößerung, bestimmt ist.

Um diese Aussage zu bestätigen, wird die Messung an weiteren Aufnahmen wiederholt. Abbildung 7.6.7 zeigt Röntgenbilder des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 c). Die Aufnahmen werden mit ähnlicher Vergrößerung aufgezeichnet und an den markierten Bereichen mit der Kantenmethode ausgewertet. Abbildung 7.6.8 stellt die Ergebnisse dar. Es folgt daraus eine mittlere Auflösung von $428 \text{ nm} \pm 16 \text{ nm}$ für die Aufnahme in Abbildung 7.6.7 a) und $386 \text{ nm} \pm 32 \text{ nm}$ für die Aufnahme in b). Auch hier sind die ermittelten Auflösungswerte marginal kleiner als die durch den Detektor und dem Abbildungsmaßstab vorgegebene Grenze. Dies bedeutet, dass solange das System detektor-limitiert ist, ein größerer Abbildungsmaßstab eine verbesserte Bildauflösung liefern muss, da in Folge dessen der Detektor höhere Raumfrequenzen darstellen kann.

Die Bildweite des Mikroskops und damit der Abbildungsmaßstab wird soweit wie möglich erhöht (begrenzt durch die Laborgröße). Mit einer Bildweite von ca. 8,5 m liegt eine Vergrößerung von 260-fach vor. Mit diesem Aufbau werden Röntgenbilder der Siemenssterne mit 64 bzw 128 Speichen aufgenommen und über die Kantenmethode die Auflösung des Systems bestimmt. Abbildung 7.6.9 zeigt ein Bild des Siemenssterns mit 64 Speichen, aufgenommen bei 8 keV und einer Vergrößerung von 260-fach. Die Linienplots zu den markierten Bereichen sind in Ab-

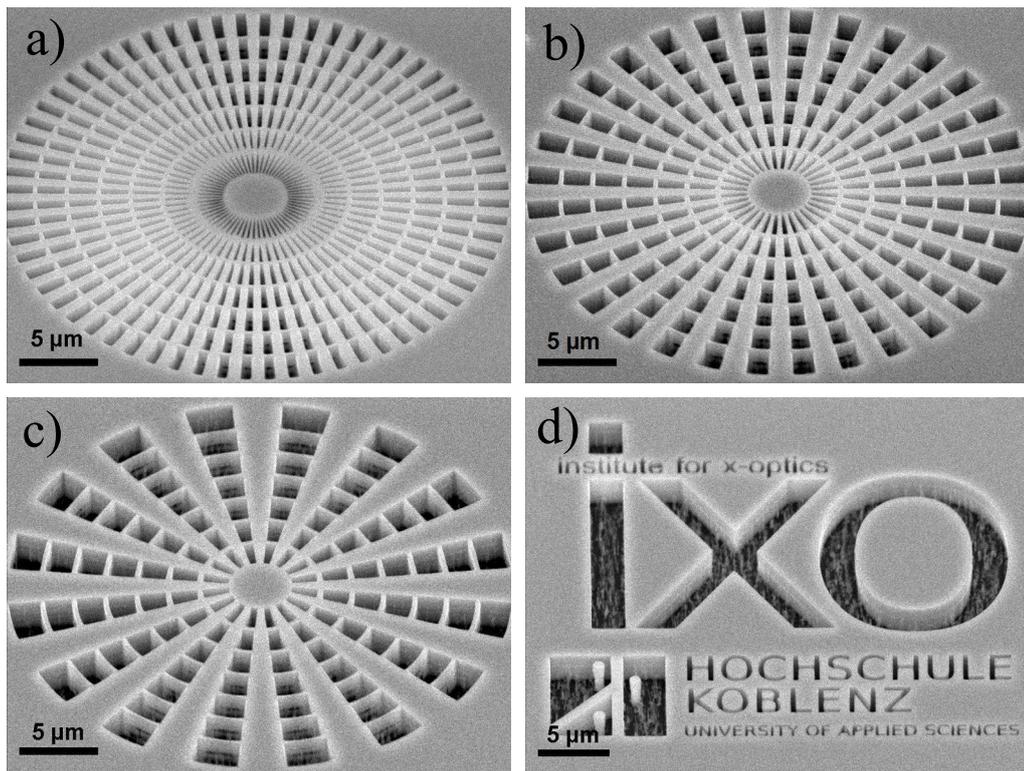


Abbildung 7.6.3: REM-Aufnahmen der in dieser Arbeit verwendeten Testobjekte. Siemenssterne mit a) 128, b) 64, c) 32 Speichen und d) Logo des *Institute for X-Optics* an der Hochschule Koblenz. Mit freundlicher Genehmigung von Dr. Pambos Charalambous (www.zoneplates.com).

bildung 7.6.10 (Plots 1 - 3) zu sehen. Im Mittel ergibt sich eine Auflösung von $214 \text{ nm} \pm 30 \text{ nm}$. Auffällig ist, dass die gemessenen Kantenübergänge sehr stark vom Ort und auch von der Orientierung der Kanten auf dem Detektor abhängig sind. Im vergrößerten Ausschnitt in Abbildung 7.6.9 ist die Richtungsabhängigkeit der Bildauflösung zu erkennen. Die auf 4 - 5 und 10 - 11 Uhr ausgerichteten Speichen sind bis zu ihren Spitzen aufgelöst, wo hingegen die Speichen in Richtung 2 - 3 bzw. 7 - 8 Uhr nicht mehr komplett sichtbar sind. Diese Richtungsabhängigkeit der Auflösung ist ebenfalls im Bild des Siemenssterns mit 128 Speichen zu erkennen (siehe Abbildung 7.6.11). Linienplot 4 in Abbildung 7.6.10 liefert dazu eine lokale Auflösung von 210 nm. Die Messung findet in der schwarzen Box des vergrößerten Ausschnitts in Abbildung 7.6.11 statt. Da in diesem Bereich sehr wenige Pixel für einen Kantenübergang zur Verfügung stehen, wird über mehrere Zeilen gemittelt. Der Auflösungswert bestätigt sich zwar an einigen Stellen im Bild des Siemenssterns, an anderen Bereichen ist die selbe Ortsfrequenz nicht mehr erkennbar.

Um die globale Auflösung des Systems zu charakterisieren, werden die Röntgenbilder der Siemenssterne mit 64 bzw. 128 Speichen verwendet, um die Kontrast-Transfer-Funktion (CTF) bei einer Vergrößerung von 260-fach zu ermitteln. Dies geschieht, indem ein radialer Plot über mehrere Speichen einerseits verwendet wird, um die exakte Ortsfrequenz zu bestimmen und andererseits, um den Kontrast dieser

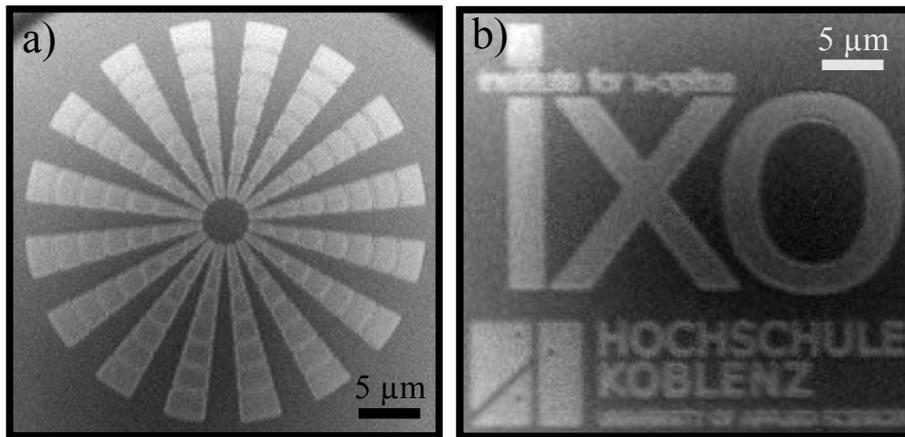


Abbildung 7.6.4: 9,25 keV-Röntgenaufnahmen: a) Siemensstern aus Abbildung 7.6.3 c). b) Logo des Institute for X-Optics der Hochschule Koblenz. Vergrößerung: 120-fach, Belichtungszeit: a) 90 min, b) 30 min, effektive Pixelgröße: 167 nm, verwendeter Kondensator: PKO-B.

Frequenz zu ermitteln. Diese Vorgehensweise wird an Plots mit unterschiedlichen Radien (und daher bei unterschiedlichen Strukturgrößen, bzw. Raumfrequenzen) durchgeführt. Abbildung 7.6.12 zeigt beispielhaft die Bestimmung der Ortsfrequenz an zwei verschiedenen Positionen. Um zu ermitteln, welche Ortsfrequenz an einem Plot vorliegt, wird dieser Fouriertransformiert. Da die Plots einen sinus-förmigen Verlauf andeuten, wird im Spektrum deren Frequenz als schmale Peaks angezeigt. Der Gleichanteil ist hier aufgrund der besseren Darstellung ausgeblendet. Da die effektive Pixelgröße der Aufnahmen bekannt ist, kann eine Frequenzachse definiert und die Raumfrequenz der Peaks bestimmt werden. Der Kontrast der jeweiligen Ortsfrequenz wird am Linienplot selbst bestimmt, indem zwischen jedem Maximum und Minimum an benachbarten Stegen der Kontrast über Formel 2.5 berechnet wird. Der Mittelwert aller Messungen eines Plots liefert den Kontrast der jeweiligen Raumfrequenz. Dieses Verfahren wird an unterschiedlichen Stellen in den Siemenssternen wiederholt. Das Ergebnis in Form der Kontrast-Transfer-Funktion zeigt Abbildung 7.6.13.

Es ist wichtig zu erwähnen, dass für die Messung der CTF ein Objektkontrast von Eins vorliegen sollte. Nur damit ist es möglich, eine allgemeingültige Aussage über den Bildkontrast der verschiedenen Ortsfrequenzen zu treffen. Da Wolfram mit einer Dicke von $1,5\ \mu\text{m}$ nur einen Kontrast von maximal 23% bei 8 keV liefern kann, stimmt die ermittelte CTF auch nur für Objekte mit ähnlichen Transmissionseigenschaften. Die Schwierigkeiten bei der Herstellung von Objekten mit starken Absorptionseigenschaften und gleichzeitig kleinen Strukturen wurden bereits in Kapitel 5 erläutert. Die CTF ist folglich auf das Maximum des Objektkontrasts von Wolfram normiert. Zwar kann nur ein CTF-Wert im Bereich unter 200 nm experimentell bestimmt werden, der steile Abfall der CTF hin zur maximalen Detektorauflösung von 154 nm ist dennoch zu erkennen. Es liegt bei hier maximal möglichen Abbildungsmaßstab, ebenfalls eine detektor-limitierte Ortsauflösung vor. Dies wird durch die Kantenmethode an den 260-fach vergrößerten Siemenssternen sichtbar. Das Verhält-

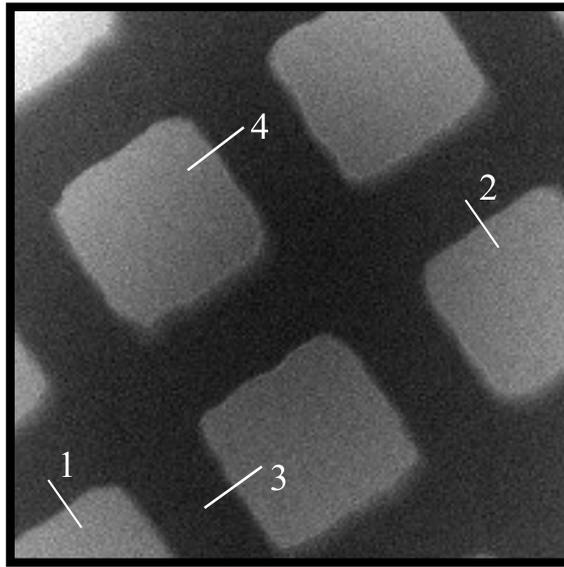


Abbildung 7.6.5: 9,25 keV-Röntgenbild eines Goldgitters mit 1500 LP/inch. Vergrößerung: 118-fach, Belichtungszeit: 1000 sek, effektive Pixelgröße: 169 nm, verwendeter Kondensator: PKO-B.

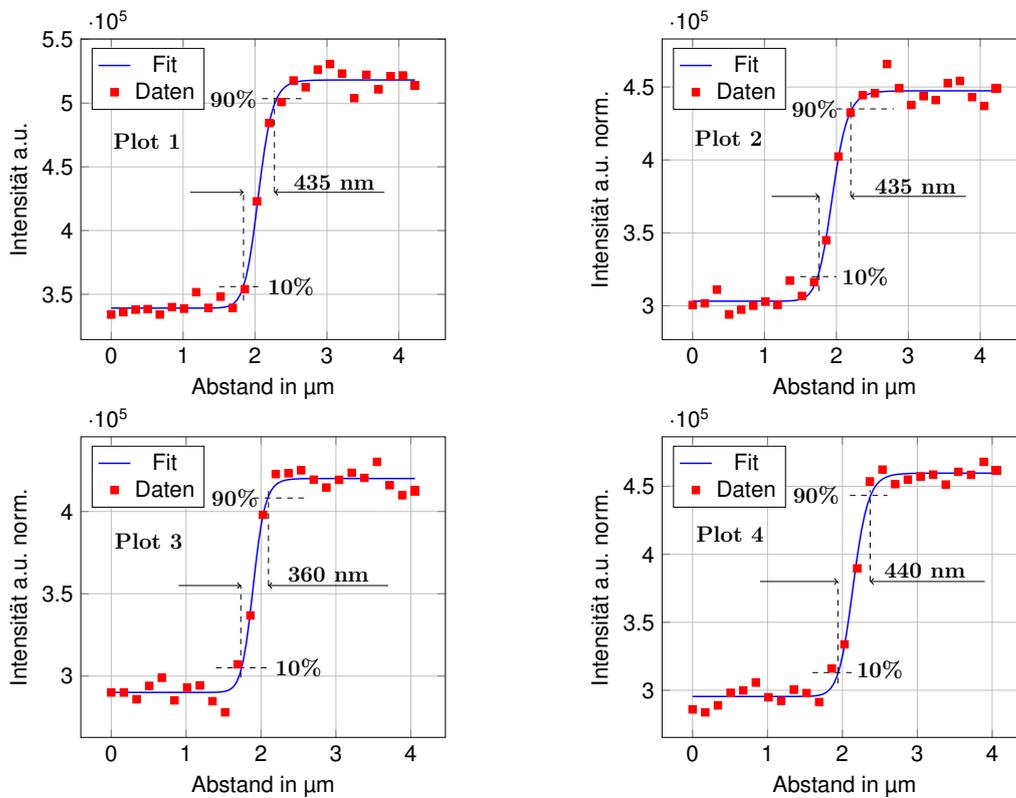


Abbildung 7.6.6: Linienplots 1 - 4 zu den markierten Bereichen in Abbildung 7.6.5, jeweils inklusive 10/90-Kantenübergang.

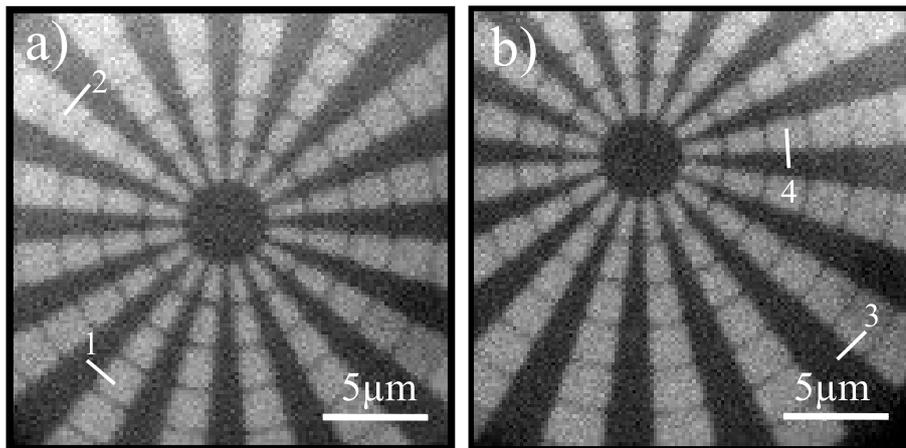


Abbildung 7.6.7: 8 keV-Röntgenbild des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 c). Vergrößerung: a) 115-fach, b) 120-fach, Belichtungszeit: 60 min, effektive Pixelgröße: a) 174 nm, b) 166 nm, verwendeter Kondensator: a) PKO-B, b) PKO-A, Bildfeld: 30 µm.

nis von Auflösungsgrenze zur Pixelgröße mit einem Faktor von 2,8 liegt nahe der Nyquistfrequenz des Detektors.

Zwei Probleme werden aus der hier beschriebenen Auflösungsmessung deutlich: Zum einen müsste ein perfektes Testobjekt (vollständig opak an den Stegen und transparent dazwischen) zur Messung verwendet werden, um eine allgemein gültige CTF zu erzeugen. Zum anderen muss die Vergrößerung so realisiert werden, dass die effektive Pixelgröße 3 - 4 mal kleiner ist, als das theoretische Abbildungslimit der Zonenplatte. Letzteres ist einfacher umzusetzen: Entweder mit noch höheren Bildweiten oder durch die Nutzung eines Detektorsystems mit kleineren Pixeln. Die Herstellung eines perfekten Testobjekts für den harten Röntgenbereich ist in Form einer einzelnen Kante durchaus möglich. Im Falle eines Siemenssterns mit sehr feinen inneren Strukturen ergeben sich die schon besprochenen Probleme. Andererseits hat auch die Kantenmethode konzeptuelle Fehler und ist, wie schon angedeutet, trotzdem ein einfaches und profanes Mittel die Auflösung eines optischen Systems zu charakterisieren. Siemenssterne wie hier in dieser Arbeit verwendet, haben nichts desto trotz einen sehr entscheidenden Vorteil. Anwendungsobjekte weisen i.d.R. keine ideal absorbierende Strukturen auf und besitzen teilweise sehr wenig Objektcontrast. Von diesem Gesichtspunkt aus betrachtet, wird das System mit derartigen Testobjekten näher an realen Gegebenheiten charakterisiert. Alle Ergebnisse der Auflösungsmessungen im Hellfeldmodus bei unterschiedlichen Vergrößerungen, sowohl bei 8,05 keV als auch bei 9,25 keV, werden nochmals in Tabelle 7.6.1 zusammengefasst.

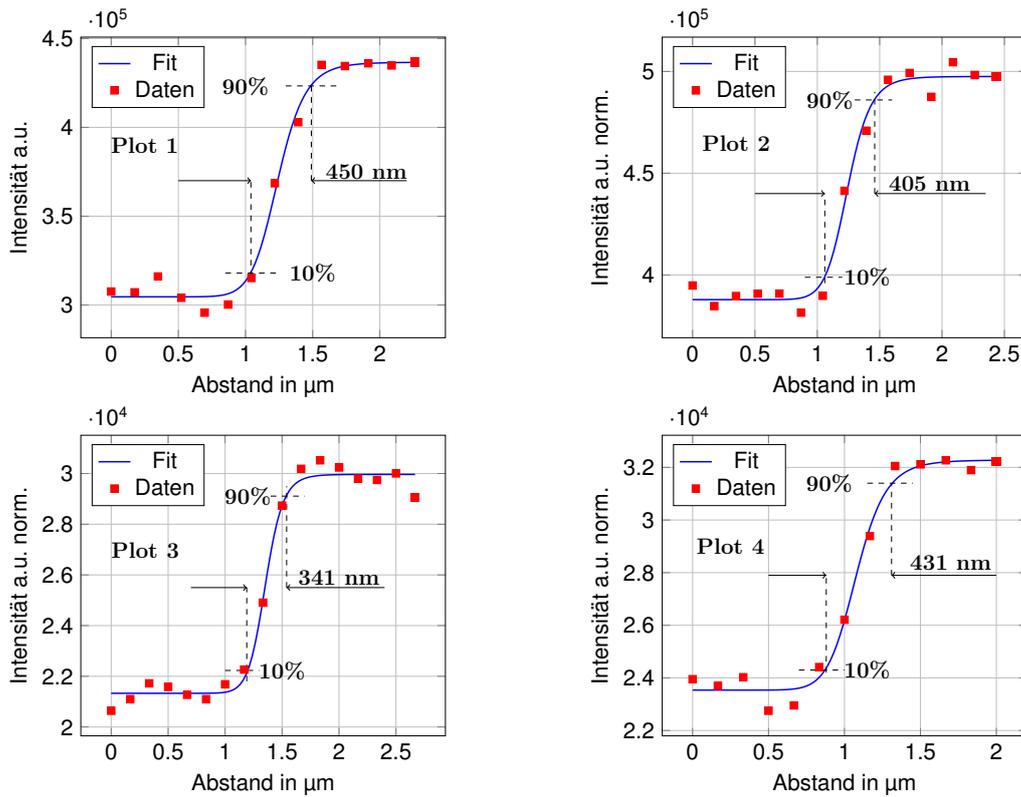


Abbildung 7.6.8: Linienplots 1 - 4 zu den markierten Bereichen in Abbildung 7.6.7, jeweils inklusive 10/90-Kantenübergang.

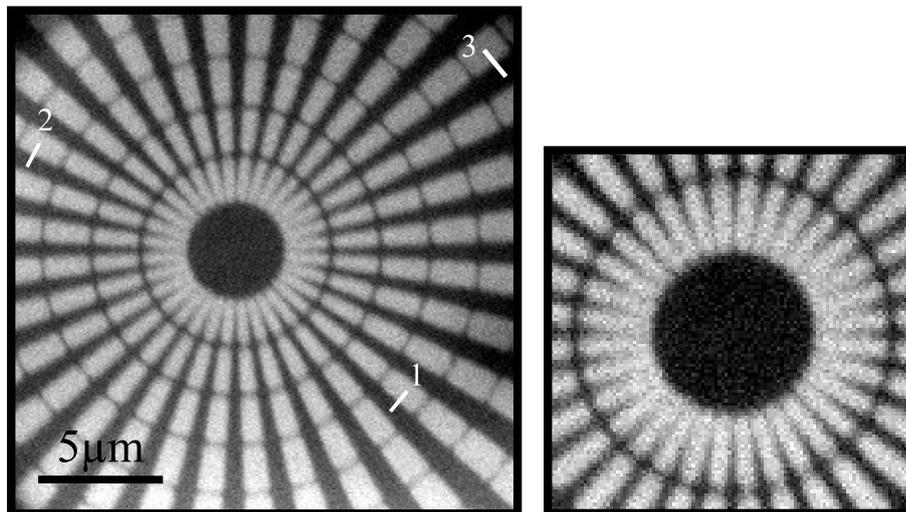


Abbildung 7.6.9: 8 keV-Röntgenbild des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 b). Vergrößerung: 260-fach, Belichtungszeit: 400 min, effektive Pixelgröße: 77 nm, verwendeter Kondensator: PKO-A, Bildfeld: 30 μm . Der vergrößerte Ausschnitt zeigt die Mitte des Siemenssterns. An den markierten Bereichen wird die Kantenmethode durchgeführt. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

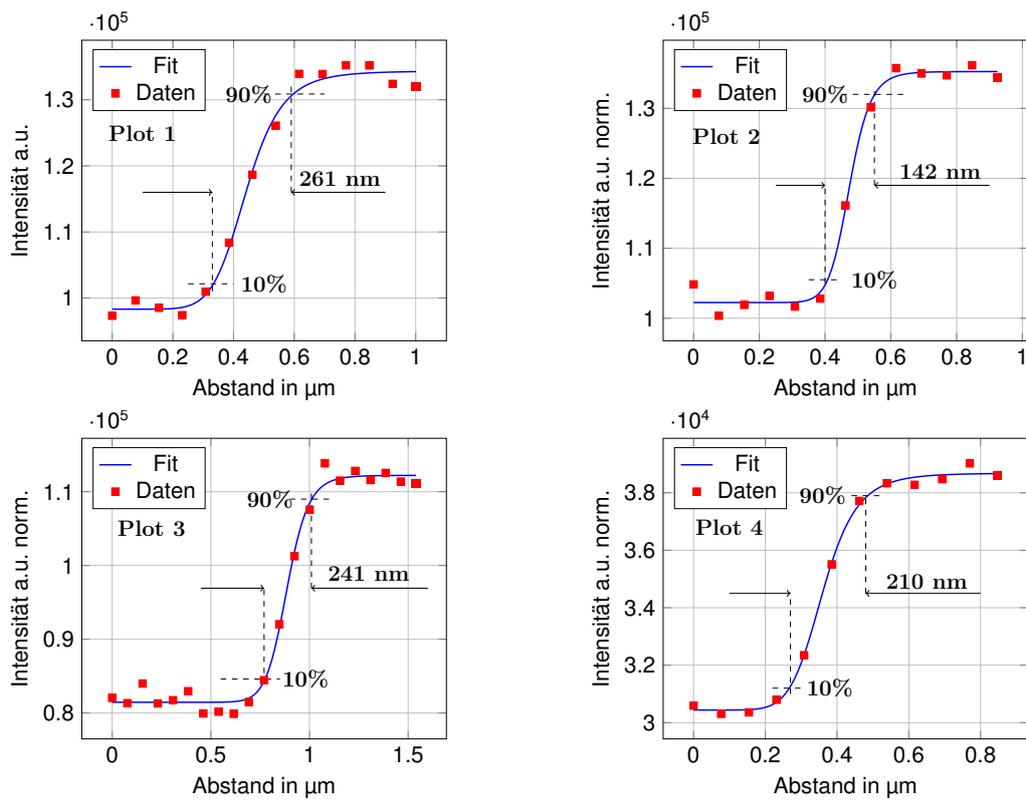


Abbildung 7.6.10: Linienplots 1 - 3 zu den markierten Bereichen in Abbildung 7.6.9 und Linienplot 4 aus dem vergrößerten Bereich aus Abbildung 7.6.11, jeweils inklusive 10/90-Kantenübergang.

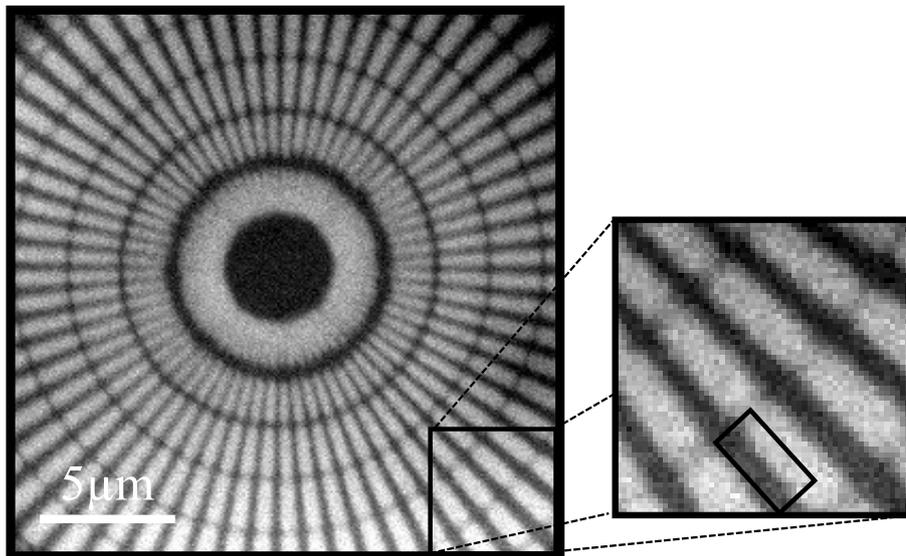


Abbildung 7.6.11: 8 keV-Röntgenbild des Siemenssterns aus Abbildung 7.6.3 a). Vergrößerung: 260-fach, Belichtungszeit: 380 min, effektive Pixelgröße: 77 nm, verwendeter Kondensator: PKO-A, Bildfeld: 30 μm . In der schwarzen Box des vergrößerten Ausschnitt wird die Kantenmethode durchgeführt. *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics [10].*

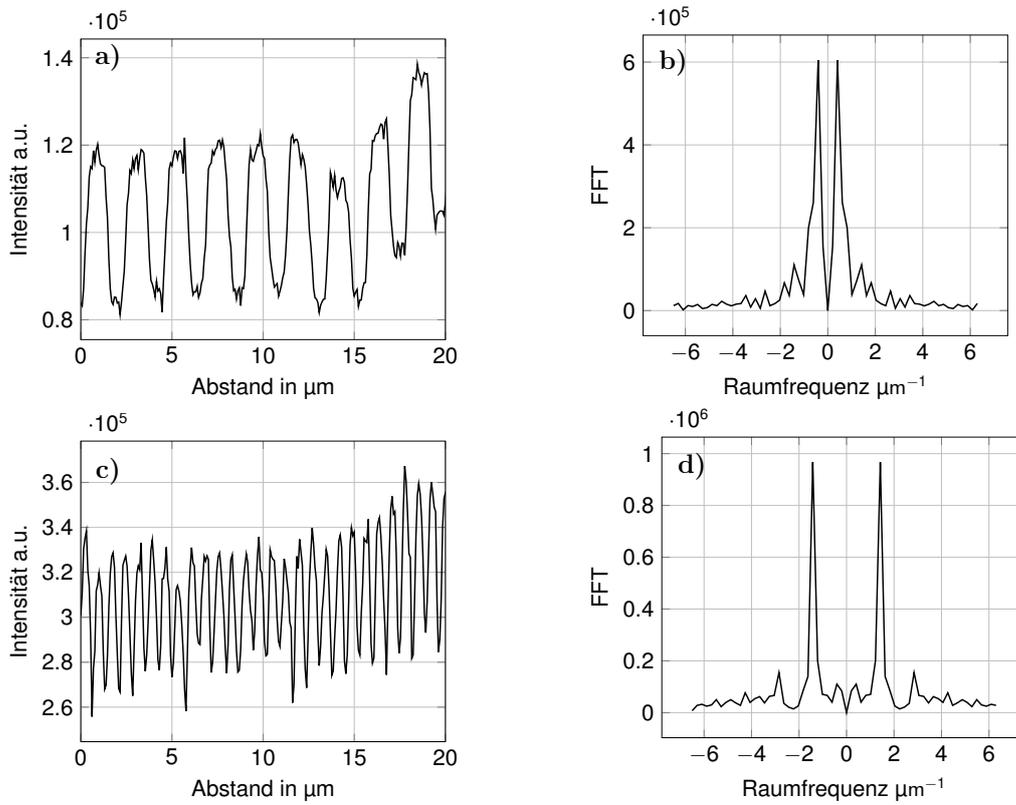


Abbildung 7.6.12: a) und c): Linienplots über mehrere Perioden mit 1230 bzw. 352 nm Strukturgröße. b) und d): Zugehörige Fouriertransformationen in Raumfrequenzdarstellung.

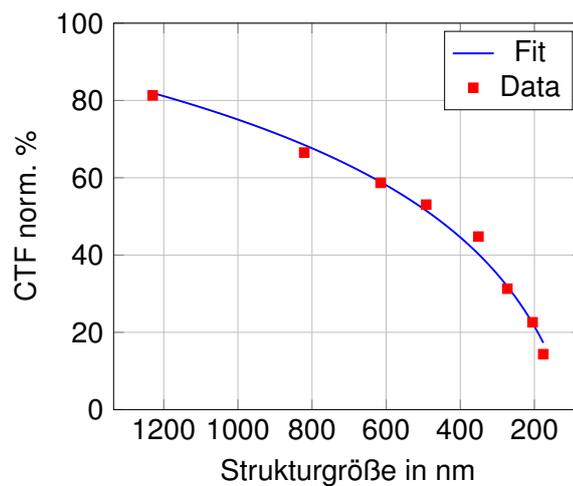


Abbildung 7.6.13: Kontrast-Transferfunktion des Labormikroskops bei 260-fachen Vergrößerung und detektor-limitierter Auflösung.

Tabelle 7.6.1: Zusammenfassung der Auflösungsmessungen im Hellfeld.

keV	Objekt	Vergrößerung	mittl. Auflösung [nm]	Unsicherheit [nm]
9,25	Au-Mesh	118	418	± 17
8,05	SiSt 32 Sp.	115	428	± 16
8,05	SiSt 32 Sp.	120	386	± 32
8,05	SiSt 64 Sp.	260	214	± 30
8,05	SiSt 128 Sp.	260	210	k.A.

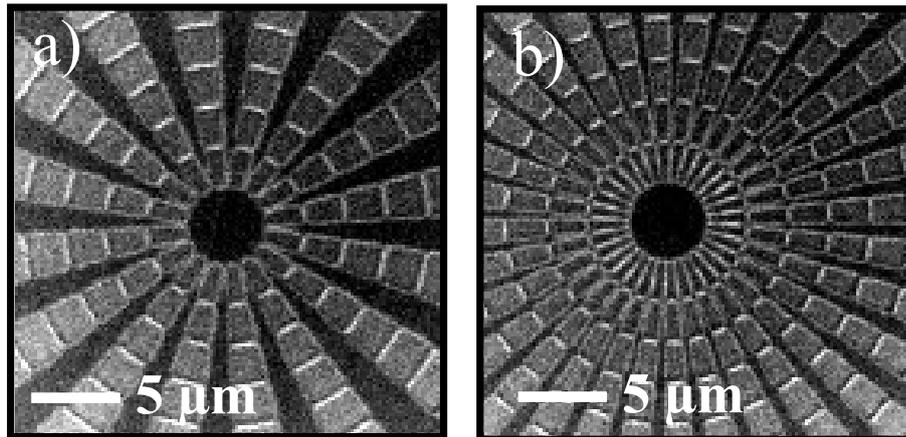


Abbildung 7.7.1: 8 keV-Dunkelfeldbilder der Siemenssterne aus Abbildung 7.6.3 b) und c). Vergrößerung: 136-fach, Belichtungszeit: 90 min, effektive Pixelgröße: 147 nm, verwendeter Kondensator: PKO-B. Abbildung b) *Mit freundlicher Genehmigung von Review of Scientific Instruments, American Institute of Physics* [10].

7.7 Auflösungsvermögen im Dunkelfeld

In diesem Abschnitt wird das Auflösungsvermögen im Dunkelfeldmodus bestimmt. Durch geeignete Wahl der Mittenstopgröße am Kondensorausgang wird verhindert, dass direktes Licht von der Kondensoroptik auf die Zonenplatte trifft. Diese fokussiert nur bei Anwesenheit eines streuenden Objekts Licht in die Bildebene. Aufgrund dessen werden Objektkanten hell und der Hintergrund dunkel dargestellt. Abbildung 7.7.1 zeigt zwei Röntgenbilder im Dunkelfeld, aufgenommen mit der iMOXS-Quelle. Im Vergleich zu den Hellfeldbildern der identischen Siemenssterne aus dem vorangegangenen Abschnitt, werden die kreisförmig angeordneten Stützstege sowie die Ränder der Speichen nun hell dargestellt. Dieser zunächst visuelle Unterschied zwischen Hell- und Dunkelfeldbildern ist ausschlaggebend bzgl. der erreichbaren Auflösung in den jeweiligen Systemen. Alle Objektfeatures spiegeln sich in Raumfrequenzen unterschiedlicher Größe wider. Nur die Raumfrequenz Null repräsentiert ausschließlich die Hintergrundhelligkeit des Bildes und beinhaltet keinerlei Informationen über das Objekt. In der Dunkelfeldmikroskopie wird diese Frequenz bewusst ausgeblendet und der Hintergrund des Bildes bleibt dunkel. Dies hat zwei entscheidende Vorteile. Einerseits werden nun auch kontrastschwache Objektstrukturen im Bild sichtbar. Selbst geringe Intensitätsunterschiede erzeugen einen hohen Kontrast auf dunklem Hintergrund. Andererseits ist im Vergleich zum Hellfeldmodus eine höhere Ortsauflösung vorhanden. Vergleicht man die Aufnahmen in den Abbildungen 7.6.9 und 7.7.1 b), so wird diese Tatsache deutlich. Im Hellfeldbild des Siemenssterns mit 64 Speichen sind die innersten Objektstrukturen gerade noch erkennbar. Wohingegen im Dunkelfeldbild des selben Siemenssterns die innersten Stege komplett aufgelöst sind. Die Vergrößerung und dadurch auch die Detektorauflösung, ist im Dunkelfeldbild jedoch nur halb so groß. Bei einer effektiven Pixelgröße von 147 nm können Objektstrukturen mit einer Größe von 200 nm vollständig aufgelöst werden. Der limitierende Faktor bei detektorbegrenzter Auflösung ist aus diesem Grund die

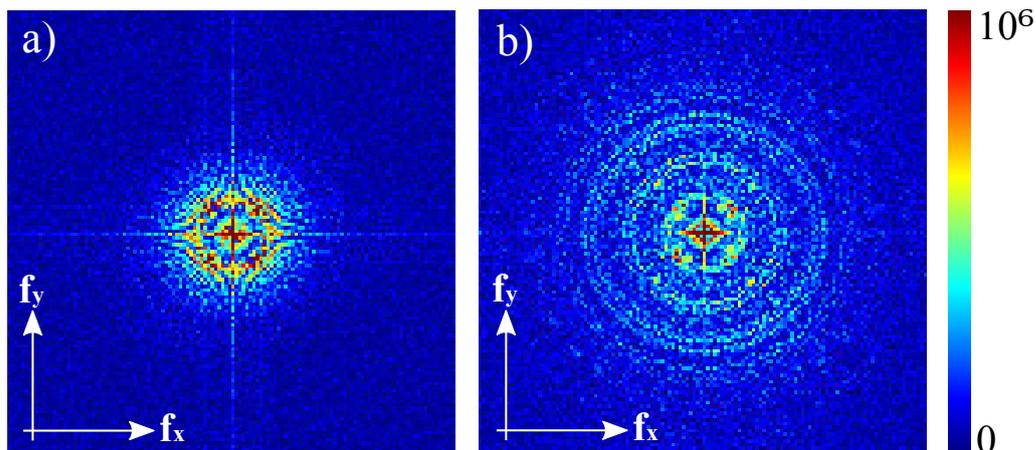


Abbildung 7.7.2: Betrag der Fouriertransformierten der Röntgenbilder des Siemenssterns mit 64 Speichen in a) Hellfeld- und b) Dunkelfeld-Modus mit jeweils gleicher effektiver Pixelgröße.

Größe des Beugungseffekts selbst. Ist der im Bild helle Saum an der Objektkante größer als die effektive Pixelgröße, so kann die beugende Struktur im Dunkelfeldmodus aufgelöst werden. Ein wichtiger Punkt ist außerdem, dass die Belichtungszeit aufgrund der halben Vergrößerung (entspricht $1/4$ der Bildfläche) um einen Faktor von etwa 4 reduziert ist. Abbildung 7.7.2 zeigt jeweils den Betrag der Fouriertransformierten (FFT) der Röntgenbilder eines Siemenssterns (64 Speichen) im Hell- bzw. im Dunkelfeldmodus. Es ist deutlich zu erkennen, dass in Abbildung 7.7.2 b) höhere Raumfrequenzen vertreten sind als in a). Der Grund dafür liegt einerseits in der Hochpass-Funktion einer Dunkelfeldanordnung, wonach nur die Kanten des Objekts sichtbar sind. Andererseits liegen in den hohen Frequenzen auch Informationen über die kleineren Objektstrukturen, die hier noch aufgelöst werden können.

Dunkelfeldmikroskopie ist außerdem perfekt geeignet, um dünne Proben oder auch Materialien mit geringer Kernladungszahl, bzw. schwachen Absorptionskoeffizienten abzubilden. Der Phasenschub des Lichts spielt hierbei eine entscheidende Rolle. Gerade im Bereich der harten Röntgenstrahlung überwiegt der Phasen- gegenüber dem Absorptionsterm im komplexen Brechungsindex. Aus diesem Grund nimmt die Phasenkontrastbildgebung für hohe Photonenenergien einen wichtigen Stellenwert ein. Zwar ist die Dunkelfeldmikroskopie keine reine Form der Phasenkontrastbildgebung, dennoch wird überwiegend Beugung an den Objektstrukturen aufgrund des Phasenhubs erzeugt und dadurch eine Intensitätsänderung in der Bildebene hervorgerufen. Eine beliebte und oft implementierte Methode bei Transmissions-Röntgenmikroskopen ist die Zernike-Phasenkontrastbildgebung [124, 125, 126, 127]. In der bildseitigen Brennebene des Objektivs wird ein sog. Phasenring platziert, der das direkte bzw. ungebeugte Licht um einen Betrag von $\pi/2$ oder $3\pi/2$ in der Phase schiebt. Der bei Phasenobjekten ursprünglich vorhandene Phasenunterschied zwischen ungebeugtem und gestreutem Licht von etwa $\pi/2$ wird dadurch kompensiert und in Form einer Intensitätsmodulation (Kontrast) im Bild sichtbar [72]. Gerade bei sehr schwach absorbierenden Objekten bewirkt dieses Verfahren eine gute Kontrastverstärkung [105, 3]. Die Schwierigkeiten dieser Methode liegen im Phasen-

ring selbst. Erstens ist die Herstellung eines dünnen Rings mit definierter Dicke, um einen exakten Phasenhub zu erzeugen, relativ aufwändig. Zweitens stimmt der Phasenschub nur für ein Material bzw. einige wenige Materialien, so dass im Idealfall ein Satz Phasenringe für unterschiedliche Proben bereitgestellt werden sollte. Weiterhin kann nicht ausgeschlossen werden, dass auch ein Teil des gestreuten Lichts auf den Ring trifft und dadurch unerwünschte Lichtsäume um Objektkanten im Bild entstehen. Dieser sog. Halo-Effekt erschwert die Interpretation eines Phasenkontrastbildes und führt zu einer falscher Probendarstellung. Bei der hier vorgestellten Dunkelfeldmethode, mit einem Mittenstop am Ausgang der PKO entfallen viele der eben erwähnten Probleme. Die Handhabung des Mittenstops ist aufgrund der größeren Abmessungen deutlich leichter. Die Dicke muss nur so gewählt werden, dass die Strahlung vollständig absorbiert wird, ist unabhängig vom Probenmaterial und universell einsetzbar. Dunkelfeldmikroskopie auf Basis eines Transmissions-Mikroskops wurde bereits an Synchrotronstrahlquellen implementiert [118]. Dort muss beim Wechsel von Hell- nach Dunkelfeld, entweder der gesamte Kondensor getauscht werden, so dass die Zonenplatte innerhalb des Hohlkegels der Beleuchtung liegt. Oder es verhindert ein sog. Ring-Stop, dass direktes Licht vom Kondensor zur Bildentstehung beiträgt. Die hier vorgestellte Methode ist deutlich einfacher zu implementieren, da nur ein Wechsel des Mittenstops, ohne Neujustage des Kondensors, den Aufnahme-modus ändert. In Scanning-Transmissions-Röntgen-Mikroskopen (STXM) oder auch in sog. Grating Interferometern ist die Dunkelfeldbildgebung schon länger etabliert. Insbesondere bei STXM können Hell- oder Dunkelfeld sowie der Differentielle Phasenkontrast (DPC) mit einer einzigen Scannprozedur aufgenommen werden. Nähere Informationen zur Umsetzung dieser Verfahren sind in [51, 70, 84, 99] dokumentiert.

Zusammengefasst lässt sich feststellen, dass das Dunkelfeldprinzip eine vergleichsweise leicht und auch kostengünstige Methode ist, ein phasenkontrast-ähnliches Verfahren zu implementieren. Außerdem lässt sich mit einer Polykapillaro-optik das notwendige Mittenstopkonzept relativ einfach umsetzen. Mit dem hier vorstellten Dunkelfeldmodus können bei deutlich geringer Vergrößerung, kleinere Objektfeatures als im Hellfeldmodus bei kürzerer Belichtungszeit visualisiert werden [10].

7.8 Abbildungsfehler

Ein sehr gut geeignetes Testobjekt zur Bestimmung von Seidel'schen Aberrationen sind konzentrische Kreise. Leidet das abbildende System unter Verzeichnung oder Bildfeldwölbung, so werden diese Kreise nicht als solche im Bild wiedergegeben. Eine REM-Aufnahme des verwendeten Testobjekts ist in Abbildung 7.6.3 d) zu finden. Das zugehörige Röntgen-Mikroskopische Bild zeigt Abbildung 7.8.1. Um oben genannte Abbildungsfehler aus diesem Bild abzuleiten, werden an den innersten fünf Kreisen deren Durchmesser bei 0° , 45° , 90° , 135° und 180° ausgewertet. Tabelle 7.8.1 fasst die Ergebnisse zusammen. Die Messergebnisse für die einzelnen Kreisdurchmesser unterscheiden sich nur im Bereich der Auflösung des Systems, gegeben durch die doppelte effektive Pixelgröße von 334 nm. Die Kreisdurchmesser sind über das gesamte Bild konstant und Verzeichnung oder Bildfeldwölbung kann nicht festgestellt werden. Abbildungsfehler wie Astigmatismus, Koma oder sphäri-

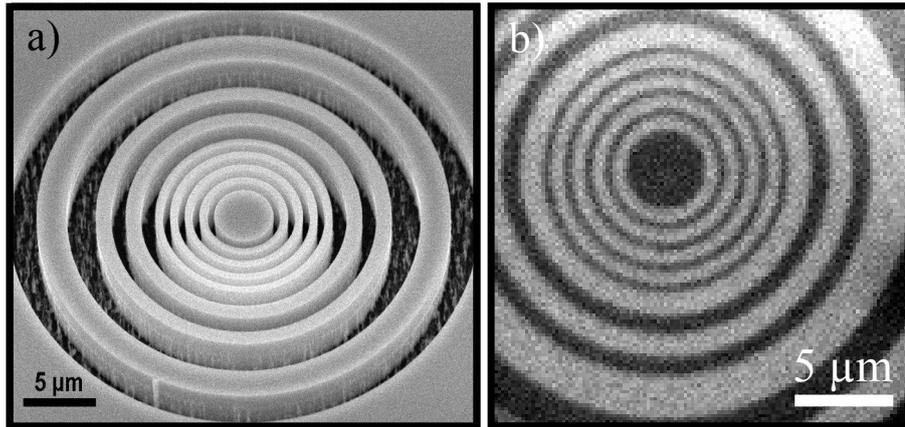


Abbildung 7.8.1: a) REM-Aufnahme der konzentrischen Kreise. *Mit freundlicher Genehmigung von Dr. Pambos Charalambous (www.zoneplates.com).* b) 8,05 keV-Röntgenbild, Vergrößerung: 120-fach, Belichtungszeit: 60 min, effektive Pixelgröße: 167 nm, verwendeter Kondensator: PKO-A.

Tabelle 7.8.1: Durchmesserbestimmung der innersten fünf Kreise aus Abbildung 7.8.1 b) an verschiedenen Winkelpositionen. Alle Längenangaben in µm.

Grad	Kreis 1	Kreis 2	Kreis 3	Kreis 4	Kreis 5
0	4,51	6,68	8,85	10,67	13,03
45	4,68	6,51	8,68	10,86	12,69
90	4,84	6,85	8,68	11,02	12,86
135	4,51	6,68	8,52	10,69	12,53
180	4,34	6,68	8,68	10,69	12,69
Mittelwert	4,58	6,68	8,68	10,79	12,76
StdAbw	0,17	0,11	0,11	0,13	0,17

sche Aberration können mit diesem Verfahren nicht bestimmt werden. Der Einsatz eines Wellenfront-Sensor ist dazu notwendig [76].

7.9 Vergleich: iMOXS - Excillum Metall-Jet

Da sich die beiden verwendeten Röntgenquellen deutlich in ihren Leistungen unterscheiden, werden in diesem Abschnitt beide Quellen bzgl. der Nutzung in einem Labor-Röntgen-Mikroskop miteinander verglichen. Dazu wird das Signal-Rausch-Verhältnis (SNR) zu verschiedenen Zeitpunkten in Röntgenaufnahmen mit näherungsweise den selben Rahmenbedingungen (Vergrößerung, Kondensator (PKO-B), Mittenstopkonzept) ausgewertet. Auch der Transmissionswert von Kondensator PKO-B ist identisch für 8+9 keV (siehe Abschnitt 6.3.4). Grundlage für den Vergleich bilden die Aufnahmen in Abbildung 7.9.1. Die Bilder werden aus jeweils mehreren Belichtungen mit 10 bzw. 120 Sekunden pro Aufnahme summiert. Nach jeder neu-

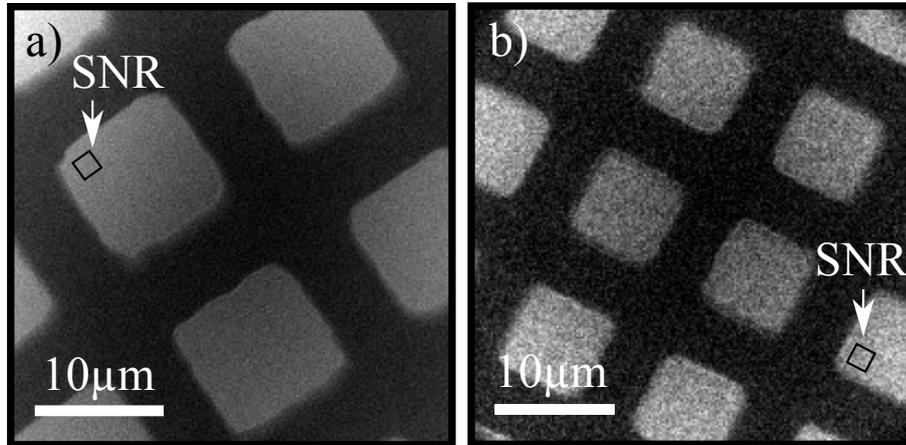


Abbildung 7.9.1: a) 9,25 keV Röntgenbild eines 1500 LP/inch Goldgitters, Belichtungszeit: 1000 sek. b) 8,05 keV Röntgenbild eines 2000 LP/inch Goldgitters, Belichtungszeit: 960 sek. In beiden Aufnahmen wird Kondensator PKO-B und die MS-Lochkamerageometrie verwendet. In der schwarzen Box wird jeweils das SNR bestimmt.

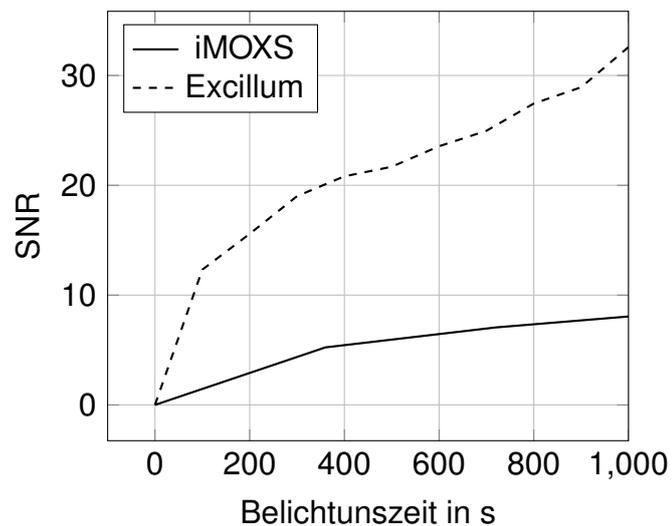


Abbildung 7.9.2: Das Signal-Rausch-Verhältnis (SNR) als Funktion der Belichtungszeit, für quasi identische Aufnahmen mit der iMOXS- bzw. Excillum-Quelle.

en Belichtung wird das SNR innerhalb des gleichen Bildbereichs ausgewertet. Das Resultat ist das SNR als Funktion der Zeit für die iMOXS- und Excillum-Quelle (siehe Graph in Abbildung 7.9.2). Nach einer Belichtungszeit von 1000 s liegt im 9,25 keV-Röntgenbild ein SNR von 33 vor. Im Gegensatz zum 8,05 keV-Röntgenbild mit der iMOXS-Quelle, ein SNR von 8. Die Leistungsfähigkeit des Mikroskops mit der Excillum-Quelle ist in etwa 4-mal höher als mit der iMOXS Röntgenröhre. Der Unterschied in der Leistung beider Röhren liegt bei einem Faktor von $200 \text{ W} / 30 \text{ W} = 6,7$. Das sich dieser Wert nicht komplett im SNR abzeichnet, liegt an folgenden Gründen: Der Detektor ist bei 9,25 keV weniger empfindlich als bei 8,05 keV (vgl. mit Tabelle 3.3.1), was einem Faktor von 1,29 entspricht. Zusätzlich ist die numerische Apertur der Zonenplatte von der Wellenlänge abhängig und bei 9,25 keV kleiner als bei 8,05 keV. Dieser Unterschied entspricht nochmals einem Faktor von 1,15. Werden diese beiden Faktoren zum Quellvergleich herangezogen, so kann das SNR maximal um einen Faktor von 4,5 verbessert werden. Gemessener und theoretischer Wert sind daher fast identisch. Dass der Faktor von 6,7 im SNR nicht erreicht wird, hängt vom Detektor und von der numerischen Apertur der Zonenplatte ab. Bei der Nutzung einer Röntgenröhre mit identischem Targetmaterial und gleichzeitig höherer Leistung kann die Leistungsfähigkeit des Mikroskops verbessert und die Belichtungszeiten reduziert werden.

Kapitel 8

Detektion von Osteozyten-Lakunen in Hühnerknochen

Dieses Kapitel stellt ein Anwendungsgebiet für das entwickelte Labor-Transmissions-Röntgenmikroskop vor. Die von der Charité Berlin zur Verfügung gestellten Knochenproben werden mit dem Ziel untersucht, Osteozyten-Lakunen zu lokalisieren. Bevor die Ergebnisse vorgestellt werden, wird zunächst auf die Knochenstruktur und die Bedeutung von Osteozyten-Lakunen im hierarchisch aufgebauten Knochenverbund eingegangen. Dieselben Probenfragmente werden zusätzlich mit einem Projektionsmikroskop untersucht und mit den Ergebnissen des Transmissionsmikroskops verglichen.

8.1 Knochenaufbau

Knochen sind, im Gegensatz zur landläufigen Auffassung, ein lebendiges Gewebe und bestehen aus einem hierarchisch organisiertem Verbund, der robust und hart und gleichzeitig sehr leicht ist [60, 85]. Er ist dabei so optimiert, dass er eine bemerkenswerte mechanische Leistung vollbringt, die Fortbewegung ermöglicht, innere Organe schützt und u.a. den Kalziumhaushalt reguliert [36, 85]. Der Verbund unterscheidet sich in seiner Zusammensetzung, zunächst ohne Betrachtung dessen Funktion, in den physikalischen Abmessungen. Somit kann der Knochen in Makro-, Mikro-, Sub-Mikro-, Nano- und Sub-Nano-Strukturen aufgeteilt werden [87]. In der Makrostruktur wird der Knochen als Ganzes betrachtet und nur zwischen der Knochenrinde (Kortikalis oder engl.: *cortical bone*) und der sog. Spongiosa (engl.: *cancelous bone, trabecular bone oder spongy bone*) unterschieden. Abbildung 8.1.1 zeigt den schematischen Aufbau von Kortikalis und Spongiosa eines Röhrenknochens. Die mechanischen Eigenschaften beider Typen sind stark von der Art des Knochens (z.B. Oberschenkel- oder Kieferknochen) abhängig und können sich sogar innerhalb eines Knochens unterscheiden. Die Spongiosa wird aus einem unregelmäßigen Geflecht von Lamellen, den Trabekeln, gebildet, wohingegen die Kortikalis aus einem Verbund von regelmäßigen, zylindrisch geformten Lamellen besteht. Eine zuverlässige

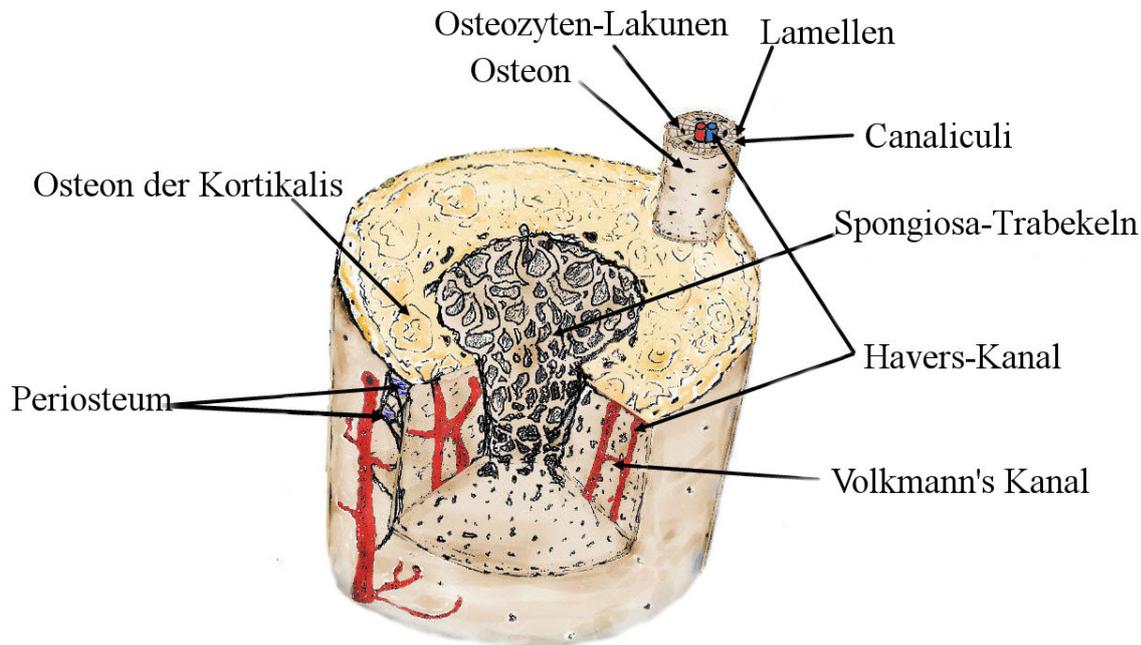


Abbildung 8.1.1: Aufbau eines Röhrenknochens. *Bild mit freundlicher Genehmigung erhalten von U.S. National Cancer Institute's Surveillance, Epidemiology and End Results (SEER, <http://training.seer.cancer.gov>) 2016. In der Abbildung wurden die englischen Bezeichnungen der Knochenteile ins Deutsche übersetzt.*

Unterscheidung zwischen Kortikalis und Spongiosa kann nur auf der mikro- bzw. sub-mikrostrukturellen Ebene erfolgen [87]. Auf mikro-struktureller Ebene bildet das Osteon, oder Havers-System, die grundlegende funktionelle Einheit der Kortikalis [48]. Ein Osteon besteht aus der konzentrischen Anordnung von Lamellen um den Havers-Kanal. Es beinhaltet Blutgefäße und Nerven und der sog. Volkmann's Kanal verbindet zwei Havers-Kanäle miteinander. Ein Osteon hat einen Durchmesser von ca. 250 μm und verläuft parallel zur Längsachse des Knochens [87]. Die Abgrenzung zu den benachbarten Osteonen findet durch die sog. Zement-Linie statt. In der Sub-Mikrostruktur wird eine einzelne Lamelle dargestellt. Sie sind ca. 3 - 7 μm dick und bestehen aus mineralisierten Collagenfasern. Bei einem Osteon sind diese Fasern in jeder Lamelle parallel angeordnet [87]. Es gibt jedoch auch deutlich komplexere Anordnungen der Collagenfasern innerhalb einer Lamelle. Eine detaillierte Beschreibung dazu findet man in [37, 90, 111]. Bei Betrachtung der Collagenfasern (einige hundert Nanometer bis 1 μm dick) befindet man sich bereits in der Nanostruktur des Knochens. In der Sub-Nanostruktur wird die Zusammensetzung einer Faser aus einzelnen Fibrillen, Mineralkristallen und Proteinen veranschaulicht, die in einer Größenordnung von bis zu 10 nm liegen [87].

Ein sehr wichtiger Prozess und gleichzeitig Gegenstand biomedizinischer Forschung ist die Knochenbildung (engl.: *modeling*), bzw. der Knochenumbau (engl.: *remodeling*). Knochen bestehen aus Zellen und einer extrazellulären Matrix. Die meisten vorkommenden Zellen sind Osteoklasten und Osteoblasten. Letztere differenzie-

ren sich entweder zu Osteozyten oder den sog. Abdeckzellen (engl.: *lining cells*) [85] oder erleben den programmierten Zelltod [19]. Osteoklasten sind mehr-kernige Zellen und im Remodelierungsprozess für die Resorption (Auflösen bzw. Abtragen der anorganischen und organischen Knochenmatrix) verantwortlich [48]. Im Gegensatz dazu, formen die ein-kernigen Osteoblasten eine neue Knochenmatrix, das Osteoid. Nach [85] läuft der gesamte Remodelierungsprozess in vier Hauptschritten ab: 1. Abdeckzellen aktivieren Vorläuferzellen, die sich zu Osteoklasten formieren. 2. Osteoklasten beginnen mit dem Resorptionsprozess. 3. Osteoklasten ziehen sich zurück und es beginnt die Oberflächenpräparation der Knochenmatrix durch Osteoblasten. 4. Erzeugung neuer Knochenmatrix und deren Ablagerung durch Osteoblasten. Abdeckzellen erzeugen eine schützende Oberflächenhülle und verbleiben dort bis zum nächsten Remodelierungszyklus.

Ein Osteoblast kann im Zuge dieses Prozesses zu einem Osteozyt differenzieren, wenn dieses vollständig durch die extrazelluläre Matrix umhüllt wird [85]. Osteozyten sind die am meisten vorkommenden Knochenzellen und werden von kleinen Höhlen, den Lakunen, umhüllt. Diese sind über sehr feine Kanäle, den Canaliculi, miteinander verbunden. Sie sind außerdem im Remodelierungsprozess involviert, da sie aufgrund der Fähigkeit biologische und mechanische Signale wahrnehmen zu können, das Gleichgewicht zwischen Osteoklasten und Osteoblasten während des Knochenauf- und abbaus steuern [48, 49]. Das System aus Lakuna und Canaliculi ist außerdem für die Mineralisierung der Knochenmatrix verantwortlich. Gerade bei alterndem Knochengewebe steigt das Mineralisierungs-Level. Der Austausch von Mineralien, von der extrazellulären Flüssigkeit in die extrazelluläre Matrix, erfolgt ausschließlich über das Havers-System oder über das Osteozyten-Lakunen-Canaliculi-Netzwerk (OLCN) [49]. Das OLCN hat somit zwei Hauptaufgaben zeitgleich zu erfüllen [19]: 1. Regulierung der Mineralisierung und 2. Bildung von dendritischen Verbindungen.

8.2 Fragestellungen

Das OLCN birgt für Mediziner und Biologen nach wie vor offene oder nicht vollständig geklärte Fragen. Dazu gehören z.B. Details über die Funktionalität der Wahrnehmung biomechanischer Signale oder der Einfluss von Osteozyten bei Knochenkrankheiten [48]. Weiterhin ist neben der Osteozyten-Dichte für einen schnellen und einfachen Zugang zu Mineralreserven, auch der Abstand des extrazellulären Gewebes zum OLCN von entscheidender Bedeutung [48]. In [49] wurde bspw. die räumliche Verteilung der Massendichte um die Lakunen und Canaliculi herum untersucht. Dies hatte das Ziel, den Einfluss auf die Massendichte bei alterndem Knochengewebe zu erforschen. Bei sehr vielen Fragestellungen ist man auf eine sehr hohe räumliche Auflösung angewiesen, da die Abmessungen der Canaliculi in menschlichem Knochen im Bereich von 200 - 900 nm liegen [48]. Geeignete mikroskopische Messverfahren sind z.B. REM oder TEM, STED oder die Röntgenmikroskopie. Der Vorteil von röntgen-optischen Verfahren ist, dass die Probe durchleuchtet werden kann und eine aufwändige Probenpräparation, wie z.B. für das TEM, nicht erforderlich ist. Bei jedem Verfahren wird die 3-dimensionale Bildgebung bevorzugt. Aufgrund

der hervorragenden Strahlungsleistung eignen sich Synchrotron-Strahlquellen sehr gut für tomographische Verfahren. In Kombination mit der Röntgenprojektions-Mikroskopie können dort nano-CT's mit hoher Auflösung im Bereich kleiner als 100 nm installiert werden. Mit entsprechenden Instrumenten wurden bereits umfangreiche Untersuchungen am OLCN erfolgreich durchgeführt [49, 60].

8.3 Ergebnisse

Mit dem hier vorgestellten Labor-Röntgenmikroskop wird gezeigt, dass eine Untersuchung am Osteozyten-Lakunen-System eines Knochens in einer Laborumgebung möglich ist. Zwar ist die erreichbare Auflösung noch nicht soweit fortgeschritten, dass auch die Canaliculi abgebildet werden können, in zukünftigen Versionen des Mikroskops sollte dies jedoch möglich sein (siehe Kapitel 9). Als Objekte werden Fragmente des Oberschenkelknochens eines Huhns untersucht. Abbildung 8.3.1 zeigt die Aufnahmen in denen Osteozyten-Lakunen (OL) detektiert worden sind. Diese

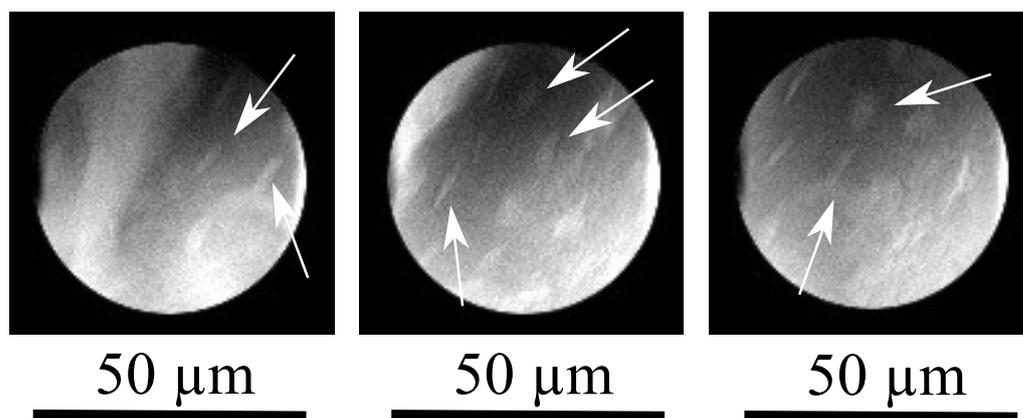


Abbildung 8.3.1: Röntgenbilder der 50 µm dünnen Hühnerknochen. Pfeile zeigen auf Osteozyten-Lakunen. Aufgenommen mit dem Transmissions-Mikroskop bei 9,25 keV. Vergrößerung: 45-fach, effektive Pixelgröße: 444 nm, Belichtungszeit: 90 min.

Bilder sind mit der Excillum-Quelle bei 9,25 keV aufgenommen worden. Der im Vorfeld zu erwartende geringe Objektcontrast wird in den Aufnahmen bestätigt. Die gemessene durchschnittliche Längsausdehnung der OL beträgt ca. 7 µm bei einer Breite von ca. 2 µm. Nimmt man die Breite der OL auch als Maß für die Tiefenausdehnung, so ergibt sich ein Objektcontrast von nur etwa 2%. Im reinen Hellfeld, bzw. Absorptionscontrast-Verfahren, ist es nur schwer möglich, einen guten Bildcontrast zwischen Knochen und Lakunen zu erzeugen. In [3] werden Aufnahmen einer Maus-Kortikalis am Stanford Synchrotron Radiation Laboratory (SSRL) bei 8 keV demonstriert. Der dort ebenfalls angesprochene schwache Absorptionscontrast wird mit einem Phasencontrastverfahren angehoben und so die Sichtbarkeit der OL verbessert. Der geringe Objektcontrast hat eine ausgesprochen lange Belichtungszeit zur Folge, um das Photonen- und Detektor-Rauschen so gering wie möglich zu halten. Selbst bei einer relativ geringen Vergrößerung von 45-fach beträgt die Belichtungszeit in den Aufnahmen in Abbildung 8.3.1 90 Minuten. Um die Dynamik

des Detektors zu erhöhen und aufgrund der hohen Strahlungsintensität außerhalb des eigentlichen Mikroskopbildes, wird die Gesamtaufnahme aus der Summe einzelner Aufnahmen mit einer Belichtungszeit von nur wenigen Sekunden gebildet. Im Resultat wird außerdem das Dunkelbild des Detektors subtrahiert und eine Flatfield-Korrektur durchgeführt.

8.4 Vergleich mit Projektionsaufnahmen

Mit einem Projektionsmikroskop werden Röntgenbilder desselben Objekts aufgenommen, um die oben vorgestellten Ergebnisse mit einem gängigen Labormikroskop im harten Röntgenbereich zu vergleichen. Der Aufbau besteht aus einer punktförmigen Röntgenquelle und einem Detektor. Zwischen diesen beiden wird die Probe platziert und abhängig vom Abstand Quelle-Objekt und Objekt-Detektor eine geometrische Vergrößerung erzielt. Auf dem Detektor wird folglich ein Schattenwurf des Objekts registriert. Der Vergrößerungsmaßstab berechnet sich nach Formel 4.3. Die Auflösung dieser Apparatur hängt im Wesentlichen von der Größe der Röntgenquelle ab. Kleinere Objektstrukturen können aus rein geometrischen Gründen nicht scharf abgebildet werden. Für das hier verwendete Projektionsmikroskop wird eine Röntgenquelle mit einem Transmissionstarget aus Kupfer mit einer Quellgröße von ca. 3 - 5 μm verwendet. Die oben gezeigten OL mit einer Längenausdehnung von etwa 7 μm liegen daher bereits an der theoretischen Auflösungsgrenze. Für das Projektionsmikroskop wird der Flat-Panel-Detektor (siehe Abbildung 3.3.2 a)), mit einer Pixelgröße von 50 μm verwendet. Um die selbe effektive Pixelgröße (444 nm) wie in den Röntgenaufnahmen mit dem Transmissions-Mikroskop zu erzielen, ist eine Vergrößerung von etwa 120-fach erforderlich. Abbildung 8.4.1 zeigt eine Aufnahme des 50 μm dünnen Knochenschnitts. Um einen Größenvergleich zu den Röntgenaufnahmen aus Abbildung 8.3.1 herzustellen, sind zwei 50 $\mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ große Bereiche vergrößert dargestellt. Eine eindeutige Erkennung der Osteozyten-Lakunen ist dort nicht gegeben. Das Projektionsmikroskop stößt an seine Grenzen. Auch ein besseres Detektorsystem würde hier keine Auflösungsverbesserung erzielen, da das verwendete Projektionsmikroskop nicht detektor-limitiert ist und die kleinste Struktur durch die Quellgröße bestimmt wird. Daher hat das in dieser Arbeit entwickelte Labor-Röntgenmikroskop, bei gleicher effektiver Pixelgröße des Detektors eine bessere Auflösungsleistung und biomedizinische Untersuchungen an Osteozyten-Lakunen sind realisierbar. Eine höhere Detektorauflösung sollte dennoch dringend angestrebt werden, um auch die Canaliculi sichtbar zu machen. Es wird damit ermöglicht, eine große Bandbreite an biomedizinischer Fragestellungen untersuchen zu können.

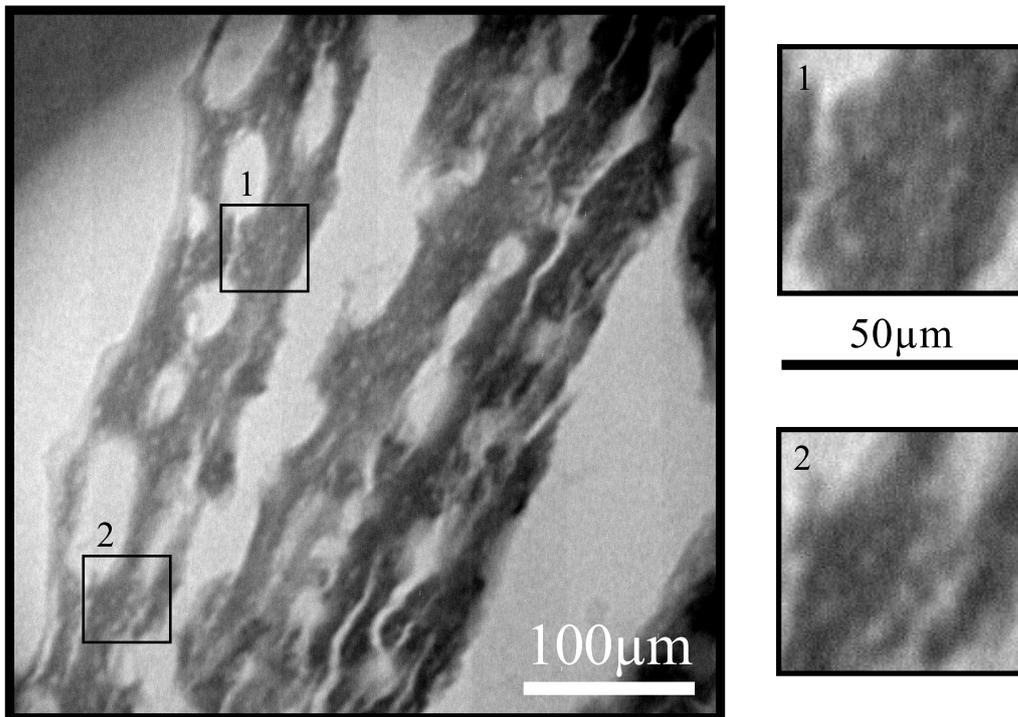


Abbildung 8.4.1: Projektions-Röntgenbilder der 50 µm dünnen Hühnerknochen. Rechts: Gesamtaufnahme, Vergrößerung: 120-fach, effektive Pixelgröße: 417 nm, Belichtungszeit: 10 min. Links: Vergrößerte Ausschnitte (50 µm × 50 µm) aus den schwarz umrandeten Bereichen.

Kapitel 9

Zusammenfassung und Diskussion

In dieser Arbeit wurde ein Transmission-Röntgenmikroskop in einer Laborumgebung für den harten Röntgenbereich entwickelt. Alle Komponenten des Mikroskops wurden charakterisiert und für den Einsatz im Mikroskop untersucht. Die verwendeten Lichtquellen waren Mikrofokus-Röhren mit stationärem Kupfertarget, bzw. einem flüssigen Target aus einer Gallium-Indium-Legierung. Als neues Kondensoren-system im Röntgenbereich wurden Polykapillaroptiken verwendet. Ein Vorteil dieser Optiken ist, dass sie kein Bild der Quelle in der Probenebene erzeugen und zusätzlich eine köhler-ähnliche Beleuchtung aufweisen. Die für die Mikroskopie geforderte homogene Objektbeleuchtung wurde mit diesen Kondensoren erfüllt. Zwei Kondensoren wurden gegenübergestellt und miteinander verglichen. Trotz stark unterschiedlicher Parameter ist die Leistungsfähigkeit beider Kondensoren im Mikroskop sehr ähnlich. Diese Kondensoroptiken besitzen außerdem eine höhere numerische Apertur als das verwendete Objektiv. Die Dunkelfeldbildgebung ist deshalb mit diesem Beleuchtungsverfahren möglich. Beide Kondensoren weisen eine lange Ausdehnung des Spots in Strahlrichtung auf. Dies hat eine vereinfachte Objektjustage zur Folge und ist ein weiteres positives Merkmal, im Vergleich zu abbildenden Kondensoren-systemen. Ein zusätzlicher Vorteil von Polykapillaroptiken ist eine einfache und stabile Justage. Als Mikroskopobjektiv ist eine Zonenplatte aus Wolfram mit hohem Aspektverhältnis eingesetzt worden. Mit Hilfe zweier unterschiedlicher Mittenstopgeometrien wird die nullte Beugungsordnung der Zonenplatte geblockt und ein Schatten auf dem Detektor erzeugt. In der Projektionsgeometrie ist ein Objektfeld von 30 μm Durchmesser möglich, wohingegen in der Lochkamera-geometrie die Objektfeldgröße auf 50 μm erhöht wurde. Mit beiden Verfahren ist die Hellfeldbildgebung realisierbar. Bei der Lochkameraanordnung konnte zusätzlich die Dunkelfeldmikroskopie implementiert werden. Damit wurde zum ersten Mal die Dunkelfeldbildgebung mit einem Labor-Transmissionmikroskop im harten Röntgenbereich umgesetzt. Der eingesetzte Detektor war ein Röntgen-CCD. Das theoretische Auflösungs-limit der Zonenplatte konnte mit diesem Detektor nicht erreicht werden und das System war dadurch detektor-limitiert. Im Hellfeldmodus wurde eine Auflösung von 210 nm bei 260-facher Vergrößerung und einer Belichtungszeit von 380 Minuten erzielt. Im Dunkelfeldmodus konnten 200 nm Strukturen bei 136-facher Vergrößerung und einer Belichtungszeit von 90 Minuten vollständig aufgelöst werden.

Im Dunkelfeldbetrieb wird somit bei geringerem Abbildungsmaßstab und kürzerer Belichtungszeit das gleiche Auflösungsvermögen wie im Hellfeldmodus erzielt. An 8 keV-Röntgenbildern von Eisenkügelchen konnte der lineare Absorptionskoeffizient von Eisen mit einer Abweichung von 11,5% vom Literaturwert bestimmt werden. Es hat sich herausgestellt, dass der Einsatz eines Nickelfilters zur Reduktion der Kupfer- K_{β} -Linie, den Bildkontrast in den Röntgenaufnahmen erhöht. Mit einem geeigneten Testobjekt wurde das System nach Abbildungsfehlern untersucht. Es konnte weder Verzeichnung noch Bildfeldwölbung festgestellt werden. Im Mikroskopbetrieb lieferte die Excillum Metall-Jet-Röhre im Vergleich zum iMOXS-System eine etwa 4-mal höhere Leistung. Dieser Wert deckt sich mit dem Unterschied in der elektrischen Leistung, wenn der Wirkungsgrad des Detektors und die numerische Apertur der Zonenplatte bei den verschiedenen Photonenenergien berücksichtigt wird. Die Anwendbarkeit des Mikroskops wurde an Fragmenten eines Hühnerknochens demonstriert und Osteozyten-Lakunen innerhalb des Knochens lokalisiert. Die selben Knochenstücke wurden mit einem Projektionsmikroskop untersucht. Trotz gleicher Detektorauflösung konnten dort keine Osteozyten-Lakunen identifiziert werden.

Dieses Labormikroskop besitzt eine mind. 5-fach höhere Auflösungen als die etablierten Projektionsmikroskope im harten Röntgenbereich. Es wurde gezeigt, dass selbst mit Mikrofokusröhren im Labor eine Auflösung im Nanometerbereich möglich ist. Ein weiteres Merkmal des hier entwickelten Mikroskops ist dessen Verfügbarkeit. Das Röntgenmikroskop befindet sich am BLiX in Berlin und steht potentiellen Nutzern nach Rücksprache zur Verfügung. Die derzeitige Auflösungsleistung des Röntgenmikroskops ist in jedem Fall sehr gut für erste Voruntersuchungen an z.B biologischen oder technischen Proben geeignet.

Die Anwendbarkeit des hier vorgestellten Mikroskops ist im Wesentlichen durch die langen Belichtungszeiten beschränkt. Da sehr kleine Röntgenspots für die Transmissionmikroskopie nicht zwingend erforderlich sind, könnte eine leistungsstarke Röhre mit rotierender Anode verwendet werden. Die Firma Rigaku bietet eine 1200 W starke Röhre mit einer Spotgröße von 70 μm an. Unter Beachtung des größeren Quellspots, im Vergleich zum iMOXS-System, und einem evtl. größeren Eingangsarbeitsabstand für den Kondensator, sollte mit dieser Quelle eine 35-mal kürzere Belichtungszeit möglich sein. Die Siemenssternaufnahmen mit höchster Vergrößerung aus Kapitel 7 könnten mit dieser Quelle mit einer Belichtungszeit von rund 10 Minuten akquiriert werden.

Die größte Herausforderung bei zukünftigen Weiterentwicklungen an diesem Mikroskop stellt das Detektorsystem dar. Ein mögliches System könnte durch hochauflösende Phosphorschirme, lichtstarke Objektive für den sichtbaren Wellenlängenbereich, einem Verstärkungssystem (Micro-Channel-Plate, MCP) und einer gekühlten CMOS-Kamera ermöglicht werden. Eine geeignete CMOS-Kamera mit kleinen Pixeln, der Möglichkeit einer starken Kühlung und sehr guten Effizienz, ist bspw. eine Kamera der Firma Andor Typ Zyla sCMOS. Das Attribut sCMOS steht für „Scientific CMOS“ und ist eine von den Firmen Andor, Fairchild Imaging und PCO AG entwickelte neue Chiptechnologie [50]. Darin sind die insbesondere für wissenschaftlichen Anwendungen so wichtigen Eigenschaften wie z.B. hohe Dynamik, hoher Quantenwirkungsgrad, geringes Ausleserauschen und kleine Pixelgröße vereint [50].

Mit leistungsstärkeren Quellen und einer höheren räumlichen Auflösung erhöht sich auch die Bandbreite an Anwendungsobjekten. Ein Anwendungsgebiet ist z.B. die Untersuchung von Festoxidbrennstoffzellen (*engl.: solid oxid fuel cell, SOFC*). SOFCs wandeln chemische in elektrische Energie um. Dieser Prozess findet durch das Zusammenspiel von Kathode, Elektrolyt und dem Brenngas statt. Um die Leistung dieses Prozesses zu verbessern, sind Kenntnisse über Größe und Verteilung von porösen Nanostrukturen in einem SOFC notwendig. In [104] wurden dazu bereits Untersuchungen an einem Labormikroskop durchgeführt. Eine weitere Anwendungsmöglichkeit ist die Untersuchung von ICs (*engl.: integrated circuit*) [103]. An der European Synchrotron Radiation Facility wurden bei 4 keV Röntgenbilder von Kupferverbindungen eines Mikroprozessors aufgenommen [72]. Damit konnten defekte Stellen in den Kupferdrähten lokalisiert werden, die aufgrund von hohen Stromdichten während des Prozessorbetriebs entstehen können. An der Advanced Photon Source wurden biologische Proben mit einem TXM untersucht. Dazu gehörte u.a. die Abbildung von gezüchteten Mäusezellen zusammen mit Goldpartikeln [27]. Am Stanford Synchrotron Radiation Laboratory wurde eine mit Quecksilber behaftete Schlickgraswurzel bei 9 keV erforscht [3]. Man verspricht sich dadurch mehr Einblick über die Quecksilberaufnahme der Wurzeln in kontaminierten Gebieten. Die selbe Arbeitsgruppe untersuchte bei 8 keV Hefezellen, die in einer Selen-Umgebung gezüchtet worden sind. Da diese Art der Hefe ein wichtiger Bestandteil in der Nahrungsergänzungsmittel-Industrie darstellt, ist die Verteilung von Selen innerhalb der Zellen von großem Interesse [3].

Ein Problem bei Röntgenmikroskopen ist, dass in der 2D-Projektion mehrere Schichten überlagert dargestellt werden. Eine Interpretation der Aufnahme wird aufgrund dessen erschwert. Abhilfe schafft an dieser Stelle die Tomographie, bei der mehrere Aufnahmen des Objekts aus verschiedenen Winkeln zu einem 3D-Modell zusammengeführt werden können. Wichtig dabei ist, dass die Schärfentiefe des Objektivs der Dicke des Objekts angepasst ist. Zonenplatten im harten Röntgenbereich besitzen eine vergleichsweise hohe Schärfentiefe von etwa $\pm 35 \mu\text{m}$ oder sogar mehr. Liegt die Probendicke innerhalb der Schärfentiefe, so werden fehlerhafte Rekonstruktionen im 3D-Modell vermieden. Die Transmissions-Röntgenmikroskopie mit Laborröntgenröhren ist aus diesem Grund sehr gut für die Tomographie geeignet.

Anhang A

Numerische Simulation propagierender Wellenfelder

Die Simulationsergebnisse in Kapitel 5 wurden mit dem ASPW-Algorithmus erstellt. ASPW ist die Abkürzung für *engl.: Angular Spectrum of Plane Waves*. Dieser Algorithmus ist in Lage über die FFT (*engl.: Fast Fourier Transformation*) numerische Wellenfeldberechnungen sehr schnell durchzuführen. Im folgenden wird das Konzept kurz vorgestellt.

Monochromatische Wellenfelder $U(x,y,z)$ gehorchen der Helmholtzgleichung [81]:

$$(\nabla^2 + k^2)U(x, y, z) = 0, \quad (\text{A.1})$$

wobei $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ dem Betrag des Wellenvektors entspricht und der ∇ -Operator einen Vektor darstellt, der die partiellen Ableitungsoperatoren $\frac{\partial}{\partial x}$, $\frac{\partial}{\partial y}$, $\frac{\partial}{\partial z}$ enthält. Betrachtet man nun zunächst das skalare Feld $U(x,y,z)$ am Ursprung der Ausbreitung bei $z=0$, so lässt sich das Feld $U(x,y,0)$ durch seine Fouriertransformierte wie folgt darstellen:

$$U(x, y, 0) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} A(f_x, f_y, 0) e^{i2\pi(f_x x + f_y y)} df_x df_y. \quad (\text{A.2})$$

Dabei stellt $A(f_x, f_y, 0)$ die Fouriertransformierte von $U(x,y,0)$ dar und f_x und f_y entsprechen den Raumfrequenzen in x- und y-Richtung. Eine genauere Betrachtung von Gleichung A.2 lässt erkennen, dass $U(x,y,0)$ in einzelne ebene Wellenfelder

$$E(x, y, z) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} = e^{i(k_x x + k_y y + k_z z)} \quad (\text{A.3})$$

mit unterschiedlicher Ausbreitungsrichtung zerlegt wird. Die Richtung der Wellenausbreitung für jede einzelne ebene Wellenfront wird durch den Wellenvektor \vec{k} und somit durch die Richtungskosinuse (α, β, γ) festgelegt. Für die Komponenten des Wellenvektors (k_x, k_y) gilt folgender Zusammenhang [42]:

$$k_x = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \alpha = 2\pi \cdot f_x \quad (\text{A.4})$$

$$k_y = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \beta = 2\pi \cdot f_y \quad (\text{A.5})$$

Aus der Definition des Richtungskosinus $\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2 = 1$ folgt für γ :

$$\gamma = \sqrt{1 - \alpha^2 - \beta^2} = \sqrt{1 - (\lambda f_x)^2 - (\lambda f_y)^2}. \quad (\text{A.6})$$

Diese Überlegungen führen dazu, dass das Feld $U(x,y,z)$ an jeder beliebigen Stelle $z > 0$ mit

$$U(x, y, z) = \int \int_{-\infty}^{+\infty} A(f_x, f_y, 0) e^{i2\pi(f_x x + f_y y)} e^{i\frac{2\pi}{\lambda} z \sqrt{1 - (\lambda f_x)^2 - (\lambda f_y)^2}} df_x df_y \quad (\text{A.7})$$

berechnet werden kann, wenn das Wellenfeld an der Stelle $z = 0$ gegeben ist und der Propagations-Operator $H(f_x, f_y)$:

$$H(f_x, f_y) = e^{i\frac{2\pi}{\lambda} z \sqrt{1 - (\lambda f_x)^2 - (\lambda f_y)^2}}, \quad (\text{A.8})$$

auf die Fouriertransformierte von $U(x,y,0)$ angewandt wird [42]. Ist die sich ausbreitende Welle paraxial, so kann der Operator $H(f_x, f_y)$ mit der Fresnel-Approximation vereinfacht werden und es folgt [42]:

$$H_F(f_x, f_y) = e^{i\frac{2\pi}{\lambda} z} \cdot e^{-i\pi\lambda z(f_x^2 + f_y^2)}. \quad (\text{A.9})$$

Die numerische Implementation des ASPW-Formalismus im C/C++ - Code erfolgt daher nach folgendem Schema:

$$U(x, y, z) = \mathcal{F}^{-1} \{ H_F(f_x, f_y) \cdot \mathcal{F} \{ U(x, y, 0) \} \}. \quad (\text{A.10})$$

Das Wellenfeld am Ort $z = 0$ wird fouriertransformiert, mit dem Propagations-Operator H_F multipliziert und anschließend zurück in den Ortsraum transformiert. Die Fouriertransformation wurde dabei mit Hilfe der frei zugänglichen C-Bibliothek *fftw* (*engl.: the fastest fourier transform in the west*) [39] durchgeführt.

Literaturverzeichnis

- [1] ABBE, Ernst: *Die Lehre von der Bildentstehung im Mikroskop*. F. Vieweg, 1910
- [2] AIKENS, Richard S.: Charge-Coupled Devices for Quantitative Electronic Imaging. In: *I.A.P.P.P. Communications* (1991), Nr. 44
- [3] ANDREWS, J.C. ; BRENNAN, S. ; LIU, Y. ; PIANETTA, P. ; ALMEIDA, E.A.C. ; MEULEN, M.C.H. van d. ; WU, Z. ; MESTER, Z. ; OUERDANE, L. ; GELB, J. ; FESER, M. ; J.RUDATI ; TKACHUK, A. ; YUN, W.: Full-field transmission x-ray microscopy for bio-imaging. In: *Journal of Physics: Conference Series* 186 (2009). <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/186/1/012081>. – DOI 10.1088/1742-6596/186/1/012081
- [4] ANKLAMM, Lars-Christian: *Ein hocheffizientes von-Hamos-Spektrometer für Röntgenemissionsspektroskopie im Labor*, Technische Universität Berlin, Diss., 2014
- [5] ARKAD'EV, V.A. ; KOLOMIITSEV, A.I. ; KUMAKHOV, M.A. ; PONOMAREV, Yu. ; KHODEEV, I.A. ; CHERTOV, Yu.P. ; SHAKHPARONOV, I.M.: Wide-band x-ray optics with a large angular aperture. In: *Soviet Physics Uspekhi* 32 (1989), Nr. 3, S. 271–276
- [6] ATTWOOD, David T.: *Soft X-Rays and Extrem Ultraviolet Radiation, Principles and Applications*. Cambridge University Press, 2000
- [7] BAEZ, Albert V.: Fresnel Zone Plates for Optical Image Formation Using Extrem Ultraviolet and Soft X Radiation. In: *Journal of the Optical Society of America* 51 (1961), April, Nr. 4, S. 405–412
- [8] BATURIN, A.S. ; TRUFANOV, A.I. ; CHADEAV, N.N. ; SHESHIN, E.P.: Field emission gun for X-ray tubes. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment* 558 (2006), S. 253–255
- [9] BAUMBACH, S. ; KANNGIESSER, B. ; MALZER, W. ; STIEL, H. ; BJEUMIKHOVA, S. ; WILHEIN, T.: Setup of an 8 keV laboratory transmission x-ray microscope. In: *Journal of Physics: Conference Series* (2014). <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/499/1/012005>. – DOI 10.1088/1742-6596/499/1/012005

- [10] BAUMBACH, S. ; KANNGIESSER, B. ; MALZER, W. ; STIEL, H. ; WILHEIN, T.: A laboratory 8 keV transmission full-field x-ray microscope with a polycapillary as condenser for bright and dark field imaging. In: *Review of Scientific Instruments* 86 (2015), Nr. 8
- [11] BAUMBACH, S. ; WILHEIN, T.: The use of zoneplate for point projection imaging. In: *Journal of Physics: Conference Series* (2013). <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/463/1/012014>. – DOI 10.1088/1742-6596/463/1/012014
- [12] BENK, M. ; BERGMANN, K. ; SCHÄFER, D. ; WILHEIN, T.: Compact soft x-ray microscope using a gas-discharge light source. In: *Optics Letters* 33 (2008), Nr. 20, S. 2359–2361
- [13] BERGER, H. ; BISCHOFF, K. ; GELLINEK, W. ; JENSEN, F. ; WACHSMANN, F.: *Handbuch der medizinischen Radiologie, Physikalische Grundlagen und Technik*. Springer Berlin Heidelberg New York, 1965
- [14] BERTILSON, Michael B. ; HOFSTEN, Olov von ; VOGT, Ulrich ; HOLMBERG, Anders ; HERTZ, Hans M.: High-resolution computed tomography with a compact soft x-ray microscope. In: *Optics Express* 17 (2009), Nr. 13, S. 11057 – 11065
- [15] BERTILSON, Michael C. ; TAKMAN, Per A. ; HOLMBERG, Anders ; VOGT, Ulrich ; HERTZ, Hans M.: Laboratory arrangement for soft x-ray zone plate efficiency measurements. In: *Review of Scientific Instruments* 78 (2007). <http://dx.doi.org/10.1063/1.2472590>. – DOI 10.1063/1.2472590
- [16] BILDERBACK, Donald H.: Review of capillary x-ray optics from the 2nd International Capillary Optics Meeting. In: *X-Ray Spectrometry* 32 (2003), S. 195–207
- [17] BJEUMIKHOV, A. ; ARKADIEV, V. ; EGGERT, F. ; HODOROABA, V-D. ; LANGHOFF, N. ; PROCOP, M. ; RABE, J. ; WEDELL, R.: A new microfocus x-ray source, iMOXS, for highly sensitive XRF analysis in scanning electron microscopes. In: *X-Ray Spectrometry* 34 (2005), S. 493–497
- [18] BJEUMIKHOV, A ; BJEUMIKHOVA, S. ; WEDELL, R.: Capillary Optics in X-Ray Analytics. In: *Particle & Particle Systems Characterization* 22 (2005), S. 384–390
- [19] BONEWALD, Lynda F.: The Amazing Osteocyte. In: *Journal of Bone and Mineral Research* 26 (2011), Nr. 2, S. 229–238
- [20] BORN, Max ; WOLF, Emil: *Principles of Optics*. 7th (expanded). Cambridge University Press, 1999
- [21] BOYLE, W.S. ; SMITH, G.E.: Charge Coupled Semiconductor Devices. In: *The Bell System Technical Journal* (1970), April, S. 587–593

- [22] BOYLE, W.S. ; SMITH, G.E.: Experimental Verification of the Charge Coupled Device Concept. In: *The Bell System Technical Journal* (1970), April, S. 593–600
- [23] BRADY, David J.: *Optical Imaging and Spectroscopy*. John Wiley & Sons, Ltd, 2009
- [24] CHAO, W. ; FISCHER, P. ; TYLISZCZAK, T. ; REKAWA, S. ; ANDERSON, E. ; NAULLEAU, P.: Real space soft x-ray imaging at 10 nm spatial resolution. In: *Optics Express* 20 (2012), Nr. 9
- [25] CHAO, Weilun ; FISCHER, Peter ; TYLISZCZAK, T ; REKAWA, Senajith ; ANDERSON, Erik ; NAULLEAU, Patrick: Real space soft x-ray imaging at 10 nm spatial resolution. In: *Optics express* 20 (2012), Nr. 9, S. 9777–9783
- [26] CHEN, Yu-Tung ; LO, Tsung-Nan ; CHU, Yong S. ; YI, Jaemock ; JUN-YUE WANG, Chi-Jen L. ; WANG, Cheng-Liang ; CHIU, Chen-Wei ; HUA, Tzu-En ; HWU, Yeukunang ; SHEN, Qun ; YIN, Gung-Chian ; LIANG, Ken S. ; LIN, Hong-Ming ; JE, Jung H. ; MARGARITONDO, Giorgio: Full-field hard x-ray microscopy below 30 nm: a challenging nanofabrication achievement. In: *Nanotechnology* 19 (2008), S. 395302+05
- [27] CHU, Y.S. ; YI, J.M. ; CARLO, F. D. ; SHEN, Q. ; LEE, Wah-Keat ; WU, H.J. ; WANG, C. ; WANG, J.Y. ; LUI, C.J. ; WANG, C.H. ; WU, S.R. ; CHIEN, C.C. ; Y.H.WU ; TKACHUK, A. ; YUN, W. ; FESER, M. ; LIANG, K.S. ; YANG, C.S. ; JE, J.H. ; MARGARITONDO, G.: Hard-x-ray microscopy with Fresnel zone plates reaches 40 nm Rayleigh resolution. In: *Applied Physics Letters* (2008)
- [28] CL, Tien ; TW, Lin: Thermal expansion coefficient and thermomechanical properties of SiN(x) thin films prepared by plasma-enhanced chemical vapor deposition. In: *Applied Optics* 51 (2012), Nr. 20
- [29] DEAN, John A.: *Lange's Handbook of Chemistry*. 15. McGraw-Hill, Inc., 1999
- [30] DEMTRÖDER, Wolfgang: *Experimentalphysik 3, Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer Berlin Heidelberg New York, 2000
- [31] DETECTOR/ <http://www.amptek.com/products/xr-100cr-si-pin-x-ray>: *Amp-tek XR 100CR: Si-PIN X-ray Detector*, <http://www.amptek.com/products/xr-100cr-si-pin-x-ray-detector/>
- [32] DEUTSCH, M. ; AL. et.: X-Ray Spectrometry of Copper: New Results on an Old Subject. In: *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* 109 (2004), Nr. 1
- [33] DEUTSCH, M. ; ET.AL.: K-alpha und K-beta x-ray emission spectra of copper. In: *Physical Review A: Atomic, Molecular, and Optical Physics* 51 (1995), Nr. 1

- [34] EGERTON, Ray F.: *Physical Principles of Electron Microscopy*. Springer Science+Business Media Inc, 2005
- [35] FERRIERE, R. ; GOEDGEBUER, J.P.: A spatially coherent achromatic fourier transformer. In: *Optics Communications* 42 (1982), July, Nr. 4, S. 223–225
- [36] FRATZL, P. ; GUPTA, H.S. ; PASCHALIS, E.P. ; ROSCHGER, P.: Structure and mechanical quality of the collagen-mineral nano-composite in bone. In: *Journal of Materials Chemistry* 14 (2004), S. 2115–2123
- [37] FRATZL, Peter ; WEINKAMER, Richard: Nature’s hierarchical materials. In: *Progress in Material Science* 52 (2007), S. 1263–1334
- [38] FRESNEL, Augustin: Calcul de L’intensité de la lumière au centre de l’ombre d’un écran et d’une ouverture circulaires éclairé par un point radieux. In: *Oeuvres Complètes d’ Augustin Fresnel* 1 (1866), S. 365–372. – 1
- [39] FRIGO, Matteo ; JOHNSON, Steven G.: The Fastest Fourier Transform in the West / Massachusetts Institute of Technology. 1997 (MIT-LCS-TR-728). – Forschungsbericht
- [40] FUJITA, T. ; NISHIHARA, H. ; KOYAMA, J.: Blazed ggrating and Fresnel lenses fabricated by electron-beam lithography. In: *Optics Letters* 7 (1982), Nr. 12, S. 578–580
- [41] GERLACH, Dieter: *Das Lichtmikroskop*. Georg Thieme Verlag, 1976
- [42] GOODMAN, Joseph W.: *Introduction to Fourier Optics*. Second. McGraw-Hill Companies, Inc, 1996
- [43] GUREYEV, T.E. ; WILKINS, S. W.: On x-ray phase imaging with a point source. In: *Journal of the Optical Society of America A, Optics and Image Science* 15 (1998), Nr. 3, S. 579 – 585
- [44] GÖRGL, R. ; WOBRAUSCHEK, P. ; STRELI, Ch. ; AIGINGER, H. ; BENEDIKT, M.: Energy-Dispersive Measurement and Comparison of Different Spectra from Diffraction X-Ray Tubes. In: *X-ray Spectrometry* 24 (1995), S. 157–162
- [45] HELL, Stefan W. ; WICHMANN, Jan: Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy. In: *Optics Letters* 19 (1994), Nr. 11, S. 780 – 782
- [46] HEMBERG, O. ; OTENDAL, M. ; HERTZ, H.M.: Liquid-metal-jet anode electron impact x-ray source. In: *Applied Physics Letters* 83 (2003), Nr. 7
- [47] HERTZ, H.M. ; HOFSTEN, O. von ; BERTILSON, M. ; VOGT, U. ; HOLMBERG, A. ; REINSPACH, J. ; MARTZ, D. ; SELIN, M. ; CHRISTAKOU, A.E. ; JERLSTRÖM-HULTQVIST, J. ; SVÄRD, S.: Laboratory cryo soft X-ray microscopy. In: *Journal of Structural Biology* 177 (2012), Nr. 2, S. 267 – 272

- [48] HESSE, Bernhard: *Characterisation of tissue properties on the sub-micron scale in human bone by means of Synchrotron Radiation*, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2014
- [49] HESSE, Bernhard ; VARGA, Peter ; LANGER, Max ; PACUREANU, Alexandra ; SCHROF, Susanne ; MÄNNICKE, Nils ; SUHONEN, Heikki ; MAURER, Peter ; CLOETENS, Peter ; PEYRIN, Françoise ; RAUM, Kay: Canalicular Network Morphology is the Major Determinant of the Spatial Distribution of Mass Density in Human Bone Tissue: Evidence by Means of Synchrotron Radiation Phase-Contrast nano-CT. In: *Journal of Bone and Mineral Research* 30 (2015), Nr. 2, S. 346–356
- [50] HOLST, Gerhard: sCMOS - Die eierlegende Wollmilchsau der Bildsensorik? In: *Optik & Photonik* 4 (2009), Oktober, Nr. 3, S. 37–39
- [51] HORNBERGER, B. ; JONGE, M.D. de ; FESER, M. ; HOLL, P. ; C, Holzner ; JACOBSEN, C. ; LEGNINI, D. ; PATERSON, D. ; REHAK, P. ; STRÜDER, L. ; VOGT, S.: Differential phase contrast with a segmented detector in scanning X-ray microprobe. In: *Journal of Synchrotron Radiation* 15 (2008), S. 355–362
- [52] JENS ALS-NIELSEN, Des M.: *Elements of Modern X-Ray Physics*. John Wiley & Sons, Ltd, 2001
- [53] JEONG, Jin-Woo ; KIM, Jae-Woo ; KANG, Jun-Tae ; CHOI, Sungyoul ; AHN, Sengjoon ; SONG, Yoon-Ho: A vacuum-sealed compact x-ray tube based on focused carbon nanotube field-emission electrons. In: *Nanotechnology* (2013)
- [54] KEISTER, Jeffrey W.: Silicon Photodiodes for Absolute Soft X-ray Radiometry. In: *SPIE Solar Physics and Space Weather Instrumentation II* 6689 (2007)
- [55] KIM, Kyong W. ; KWON, Youngman ; NAM, Ki-Yong ; LIM, Jong-Hyeok ; KIM, Kyu-Gyum ; CHON, Kwon S. ; KIM, Byoung H. ; KIM, Dong E. ; KIM, JinGon ; AHN, Byoung N. ; SHIN, Hyun J. ; RAH, Seungyu ; KIM, Ki-Ho ; CHAE, Jin S. ; GWEON, Dae G. ; KANG, Dong W. ; KANG, Sung H. ; MIN, Jin Y. ; CHOI, Kyu-Sil ; YOON, Seong E. ; KIM, Eun-A ; NAMBA, Yoshiharu ; YOON, Kwon-Ha: Compact soft x-ray transmission microscopy with sub-50 nm spatial resolution. In: *Physics in Medicine and Biology* 51 (2006), Nr. 6, S. N99
- [56] KIRKPATRICK, P. ; BAEZ, A.V.: Formation of Optical Image by X-Rays. In: *Journal of the Optical Society of America* 38 (1948), S. 766–773
- [57] KIRZ, Janos: Phase zone plates for x rays and the extreme uv. In: *Journal of the Opti* 64 (1974), March, Nr. 3, S. 301–309
- [58] KRAUSE, M.O. ; OLIVER, J.H.: Natural Widths of Atomic K and L Shell Levels K-alpha X-Ray Lines and Several KLL Auger Lines. In: *Journal of Physics and Chemical Reference Data* 8 (1979), Nr. 2

- [59] KÖHLER, A.: Gedanken zu einem neuen Beleuchtungsverfahren für mikro-photographische Zwecke. In: *Zeitschrift für wissenschaftliche Mikroskopie* 10 (1893), S. 413–420
- [60] LANGER, Max ; PACUREANU, Alexandra ; SUHONEN, Heikki ; GRIMAL, Quentin ; CLOETENS, Peter ; PEYRIN, Françoise: X-Ray Phase Nanotomography Resolves the 3D Human Bone Ultrastructure. In: *Public Library of Science (PLoS) One* 7 (2012)
- [61] LEGALL, H. ; BLOBEL, G. ; STIEL, H. ; SANDNER, W. ; SEIM, C. ; TAKMAN, P. ; MARTZ, D. H. ; SELIN, M. ; VOGT, U. ; HERTZ, H. M. ; ESSER, D. ; SIPMA, H. ; LUTTMANN, J. ; HÖFER, M. ; HOFFMANN, H. D. ; YULIN, S. ; FEIGL, T. ; REHBEIN, S. ; GUTTMANN, P. ; SCHNEIDER, G. ; WIESEMANN, U. ; WIRTZ, M. ; DIETE, W.: Compact x-ray microscope for the water window based on a high brightness laser plasma source. In: *Optics Express* 20 (2012), Nr. 16, S. 18362 – 18369
- [62] LENGELER, B ; SCHROER, CG ; RICHWIN, M ; TÜMMLER, J ; DRAKOPOULOS, M ; SNIGIREV, A ; SNIGIREVA, I: A microscope for hard x rays based on parabolic compound refractive lenses. In: *Applied Physics Letters* 74 (1999), Nr. 26, S. 3924–3926
- [63] MACDONALD, C.A. ; OWENS, S.M. ; GIBSON, W.M.: Polycapillary X-ray optics for microdiffraction. In: *Journal of Applied Crystallography* 32 (1999), S. 160–167
- [64] MACDONALD, Carolyn A.: Focussing Polycapillary Optics and Their Applications. In: *X-Ray Optics and Instrumentation* (2010)
- [65] MANTOUVALOU, Ioanna ; LANGE, Kathrin ; WOLFF, Timo ; GRÖTZSCH, Daniel ; LÜHL, Lars ; HASCHKE, Michael ; HAHN, Oliver ; KANNGIESSER, Birgit: A compact micro X-ray fluorescence spectrometer with X-ray tube excitation for archaeometric applications. In: *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 25 (2010), S. 554–561
- [66] MAYO, S.C. ; DAVIS, T.J. ; GUREYEV, T.E. ; MILLER, P.R. ; PAGANIN, D. ; POGANY, A. ; STEVENSON, A.W. ; WILKINS, S.W.: X-ray phase contrast microscopy and microtomography. In: *Optics Express* 11 (2003), Nr. 19, S. 2289 – 2003
- [67] MEIDINGER, Norbert: *Strahlenhärte von Röntgen-Sperrschicht-CCD-Dektoren*, Technische Universität München, Fakultät für Physik, Diss., 2003
- [68] MESCHÉDE, Dieter: *Gerthsen Physik*. Springer Berlin Heidelberg New York Tokyo, 2004
- [69] MORENO, V. ; PÉREZ, M. V. ; LIÑARES, J.: Zone plates with initial phase shift for optical sensing. In: *Journal of Modern Optics* 39 (1992), Nr. 10, S. 2039–2052

- [70] MORRISON, G.R. ; BROWNE, M.T.: Dark-field imaging with the scanning transmission x-ray microscope. In: *Review of Scientific Instruments* 63 (1992), Nr. 1
- [71] NASCIMENTO, Marcio Luis F.: Brief history of X-ray tube patents. In: *World Patent Information* 37 (2014)
- [72] NEUHÄUSLER, U. ; SCHNEIDER, G. ; LUDWIG, W. ; MEYER, M.A. ; ZSCHECH, E. ; HAMBACH, D.: X-ray microscopy in Zernike phase contrast mode at 4 keV photon energy with 60 nm resolution. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 36 (2003), S. A79–A82
- [73] N.GAO ; JANSSENS, K.: *Polycapillary X-ray Optics*. John Wiley & Sons, Ltd, 2004
- [74] N.GAO ; PONOMAREV, I.Y.: Polycapillary x-ray optics: manufacturing status, characterisation and the future of the technology. In: *X-ray Spectrometry* 32 (2003), S. 186–194
- [75] NIEMANN, B. ; RUDOLPH, D. ; SCHMAHL, G.: Soft x-ray imaging zone plates with large zone numbers for microscopic and spectroscopic applications. In: *Optics Communications* 12 (1974), October, Nr. 2, S. 160–163
- [76] NISIUS, Thomas: *Wavefront Sensors for EUV and X-rays*, University of Applied Sciences Koblenz, RheinAhrCampus Remagen, Diplomarbeit, 2006
- [77] OJEDA-CASTAÑEDA, Jorge (Hrsg.) ; GÓMEZ-REINO, Carlos (Hrsg.): *MS. Bd. 128: Selected Papers on Zone Plates*. SPIE Milestone Series, 1996
- [78] OTENDAL, M. ; TUOHIMAA, T. ; VOGT, U. ; HERTZ, H.M.: A 9 keV electron-impact liquid-gallium-jet x-ray source. In: *Review of Scientific Instruments* 79 (2008), Nr. 1
- [79] OTENDAL, Mikael: *A Compact High-Brightness Liquid-Metal-Jet X-Ray Source*, Royal Institute of Technology Stockholm, Diss., 2006
- [80] OVERBUSCHMANN, J. ; HENGSTER, J. ; IRSEN, S. ; WILHEIN, T.: Fabrication of Fresnel zone plates by ion-beam lithography and applications as objective lenses in extreme ultraviolet microscopy at 13 nm wavelength. In: *Optics Letters* 37 (2012), S. 5100–5102
- [81] PAGANIN, David M.: *Coherent X-ray Optics*. Oxford University Press, 2006
- [82] PEDROTTI, F. ; PEDROTTI, L. ; BAUSCH, W. ; SCHMIDT, H.: *Optik für Ingenieure*. Springer Berlin Heidelberg, 2005
- [83] PEHL, R.H. ; GOULDING, F.S. ; LANDIS, D.A. ; LENZLINGER, M.: Accurate determination of the ionization energy in Semiconductor detectors. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment* 59 (1967), October, S. 45–55

- [84] PFEIFFER, F. ; BECH, M. ; BUNK, O. ; KRAFT, P. ; EIKENBERRY, E.F. ; BRÖNNIMANN, Ch. ; GRÜNZWEIG, C. ; DAVID, C.: Hard-X-ray dark-field imaging using a grating Interferometer. In: *Nature Materials* 7 (2008)
- [85] RAUNER, Martina ; SIPOS, Wolfgang ; PIETSCHMANN, Peter: Osteoimmunology. In: *International Archives of Allergy and Immunology* 143 (2006), S. 31–48
- [86] REIMER, Ludwig: *Springer Series in Optical Sciences*. Bd. 45: *Scanning Electron Microscopy*. Springer Berlin Heidelberg New York, 1985
- [87] RHO, Jae-Young ; KUHN-SPEARING, Liisa ; ZIOUPOS, Peter: Mechanical properties and the hierarchical structure of bone. In: *Medical Engineering and Physics* 20 (1998), S. 92–102
- [88] SCHMAHL, G. (Hrsg.) ; RUDOLPH, D. (Hrsg.): *X-Ray Microscopy*. Bd. 43. Springer Berlin Heidelberg New York Tokyo, 1984
- [89] SCHNOPPER, H.W. ; SPEYBROECK, L.P. V. ; DELVAILLE, J.P. ; EPSTEIN, A. ; KÄLLNE, E. ; BACHRACH, R.Z. ; DIJKSTRA, J. ; LANTWARD, L.: Diffraction grating transmission efficiencies for XUV and soft x rays. In: *Applied Optics* 16 (1977), April, Nr. 4
- [90] SCHROF, Susanne ; VARGA, Peter ; GALVIS, Leonardo ; RAUM, Kay ; MASIC, Admir: 3D Raman mapping of the collagen fibril orientation in human osteonal lamellae. In: *Journal of Structural Biology* 187 (2014), S. 266–275
- [91] SCHÄFER, D. ; NISIUS, T. ; FRÜKE, R. ; RAUSCH, S. ; WIELAND, M. ; VOGT, U. ; WILHEIN, T.: Compact x-ray microscopes for EUV and soft-x-radiation with spectral imaging capabilities. In: *Proc. SPIE* 6317 (2006), S. 631704–631704–9
- [92] SCHÄFER, David: *Entwicklung eines Transmissionsmikroskops für weiche Röntgenstrahlung und die Anwendung an Laborquellen*, Julius-Maximilian-Universität Würzburg, Diss., 2010
- [93] SEIM, Christian: *Laboratory Full-Field Transmission X-Ray Microscopy and Applications in Life Science*, Technical University of Berlin, Diss., 2014
- [94] SMARTT, Raymond N.: Zone Plate Interferometer. In: *Applied Optics* 13 (1974), May, Nr. 5, S. 1093–1099
- [95] SORET, J. L.: Ueber die durch Kreisgitter erzeugten Diffractionsphänomene. In: *Annalen der Physik und Chemie* 156 (1875), S. 99–113
- [96] SPILLER, Eberhard: *Soft X-Ray Optics*. SPIE Optical Engineering Press, 1994
- [97] STIGLIANI, D. J.: Resolving Power of a Zone Plate. In: *Journal of the Optical Society of America* 57 (1967), May, Nr. 5, S. 610–613

- [98] STRÜDER, L. ; HOLL, P. ; LUTZ, G. ; KEMMER, J.: Development of fully depletable CCDs for high energy physics applications. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics* 257 (1987), S. 594–602
- [99] SUZUKI, Yoshio ; UCHIDA, Fumihiko: Dark-field imaging in hard x-ray scanning microscopy. In: *Review of Scientific Instruments* 66 (1995), Nr. 2
- [100] TAKMAN, Per: *Compact Soft X-Ray Microscopy: Sources, Optics and Instrumentation*, Department of Applied Physics, Royal Institute of Technology Stockholm, Sweden, Diss., 2007
- [101] TANG, Mau-Tsu ; YIN, Gung-Chian ; SONG, Yen-Fang ; CHEN, Jian-Hua ; TSANG, King-Long ; LIANG, Keng S. ; CHEN, Fu-Rong ; DUEWER, Fred ; YUN, Wenbing: Hard X-ray Microscopy with Sub-30 nm Spatial Resolution at NSRRC. In: *Proc. 8th International Conference on X-ray Microscopy, IPAP Conf. Series 7* (2006)
- [102] THOMPSON, A. ; ATTWOOD, D. ; GULIKSON, E. ; AL. et.: *X-Ray Data Booklet*. September 2009
- [103] TIAN, Yangchao ; LI, Wenjie ; CHEN, Jie ; LUI, Longhua ; LIU, Gang ; TKACHUK, Andrei ; TIAN, Jinping ; XIONG, Ying ; GELB, Jeff ; HSU, George ; YUN, Wenbing: High resolution hard x-ray microscope on a second generation synchrotron source. In: *Review of Scientific Instruments* 79 (2008), Nr. 10
- [104] TKACHUK, Andrei ; DUEWER, Fred ; CUI, Hongtao ; FESER, Michael ; WANG, Steve ; YUN, Wenbing: X-ray computed tomography in Zernike phase contrast mode at 8 keV with 50-nm resolution using Cu rotating anode X-ray source. In: *Zeitschrift fuer Kristallographie* 222 (2007), Nr. 11, S. 650 – 655
- [105] TKACHUK, Andrei ; FESER, Michael ; CUI, Hongtao ; DUEWER, Fred ; CHANG, Hauyee ; YUN, Wenbing: High-resolution x-ray tomography using laboratory sources. In: *Proc. of SPIE: Developments in X-Ray Tomography* 6318 (2006)
- [106] TUOHIMAA, Tomi: *Liquid-Jet-Target Microfocus X-Ray Sources: Electron Guns, Optics and Phase-Contrast Imaging*, Department of Applied Physics, Royal Institute of Technology Stockholm, Sweden, Diss., 2008
- [107] TYRRELL, Glenn C.: Phosphors and scintillators in radiation imaging detectors. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment* 546 (2005), S. 180–187
- [108] VERMAN, Boris ; JIANG, Licai ; KIM, Bonglea: Microfocusing source and multilayer optics based x-ray diffraction systems. In: *The Rigaku Journal* 19 (2002), Nr. 1

- [109] VINCZE, L. ; WEI, F. ; PROOST, K. ; VEKEMANS, B. ; JANSSENS, K. ; HE, Y. ; YAN, Y. ; FALKENBERG., G.: Suitability of polycapillary optics for focusing of monochromatic synchrotron Radiation as used in trace level micro-XANES measurements. In: *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 17 (2002), S. 177–182
- [110] VOGT, U. ; LINDBLOM, M. ; CHARALAMBOUS, P. ; KAULICH, B. ; WILHEIN, T.: Condenser for Koehler-like illumination in transmission x-ray microscopes at undulator sources. In: *Optics Letters* 31 (2006), Nr. 10, S. 1465 – 1467
- [111] WEINER, S. ; WAGNER, H.D.: The material bone: Structure-Mechanical Function Relations. In: *Annual Review of Materials Science* 28 (1998), S. 271–298
- [112] WESSELS, P. ; EWALD, J. ; WIELAND, M. ; NISIUS, T. ; ABBATI, G. ; BAUMBACH, S. ; OVERBUSCHMANN, J. ; VOGEL, A. ; NEUMANN, A. ; VIEFHAUS, J. ; OEPEN, H. P. ; MEIER, G. ; WILHEIN, T. ; DRESCHER, M.: Time-resolved soft X-ray microscopy of magnetic nanostructures at the P04 beamline at PETRA III. In: *Journal of Physics: Conference Series* 499 (2014)
- [113] WILHEIN, Thomas: *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendung im Bereich weicher Röntgenstrahlung*, Universität Göttingen, Diss., 1994
- [114] WOOD, R. W.: Phase-Reversal Zone-Plates, and Diffraction Telescopes. In: *Philosophical Magazine* 45 (1898), June, Nr. 277, S. 511–523
- [115] WU, Syue-Ren ; HWU, Yeukuang ; MARGARITONDO, Giorgio: Hard-X-ray Zone Plates: Recent Progress. In: *Materials* 5 (2012), September, S. 1752–1773
- [116] WWW.PRINCETONINSTRUMENTS.COM: *Princeton Instruments PI-LCX:1300 Rev C1*
- [117] WWW.ZONEPLATES.COM: *Status of nanofabrication at zoneplates.com*, 2005. – Poster zur Conference on X-ray Microscopy von Dr. Pambos Charalambous
- [118] YIN, Gung-Chian ; DUEWER, Fred ; ZENG, Xianghui ; LYON, Alan ; YUN, Wenbing ; CHEN, Fu-Rong ; LIANG, K.S.: Dark Field Image of Full-Field Transmission Hard X-ray Microscope in 8-11 keV. In: *Proc.of SPIE: Advances in X-Ray / EUV Optics, Components and Applications* 6317 (2006)
- [119] YIN, Gung-Chian ; SONG, Yen-Fang ; TANG, Mau-Tsu ; CHEN, Fu-Rong ; LIANG, Keng S. ; DUEWER, Frederick W. ; FESER, Michael ; YUN, Wenbing ; SHIEH, Han-Ping D.: 30nm resolution x-ray imaging at 8keV using third order diffraction of a zone plate lens objective in a transmission microscope. In: *Applied Physics Letters* 89 (2006), Nr. 22
- [120] YIN, Gung-Chian ; TANG, Mau-Tsu ; SONG, Yen-Fang ; CHEN, Fu-Rong ; LIANG, Keng S. ; DUEWER, Fred ; YUN, Wenbing ; KO, Chen-Hao ; SHIEH, Han-Ping D.: Energy-tunable transmission x-ray microscope for differential

- contrast imaging with near 60 nm resolution tomography. In: *Applied Physics Letters* 88 (2006)
- [121] YOUNG, M.: Zone Plates and their Aberrations. In: *Journal of the Optical Society of America* 62 (1972), August, Nr. 8, S. 972–976
- [122] ZANELLA, G. ; ZANNONI, R.: The detective quantum efficiency of an imaging detector. In: *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors, and Associated Equipment* 359 (1995), S. 474–477
- [123] ZENG, Xianghui ; DUEWER, Fred ; FESER, Michael ; HUANG, Carson ; LYON, Alan ; TKACHUK, Andrei ; YUN, Wenbing: Ellipsoidal and parabolic glass capillaries as condenser for x-ray microscopes. In: *Applied Optics* 47 (2008), Nr. 13
- [124] ZERNIKE, F.: Das Phasenkontrastverfahren bei der mikroskopischen Beobachtung. In: *Z. Tech. Phys* 16 (1935), S. 454–457
- [125] ZERNIKE, F.: Phase contrast, a new method for the microscopic observation of transparent objects. Part 1. In: *Physica IX* 7 (1942)
- [126] ZERNIKE, F.: Phase contrast, a new method for the microscopic observation of transparent objects. Part 2. In: *Physica IX* 10 (1942)
- [127] ZERNIKE, F.: How I discovered phase contrast. In: *Science, New Series* 121 (1955), March, Nr. 3141

Danksagung

Zuletzt möchte ich die Gelegenheit nutzen um mich bei einigen Menschen zu bedanken.

Vor allem möchte ich mich bei meinen Gutachtern Prof. Dr. Birgit Kanngießer und Prof. Dr. Thomas Wilhein bedanken. Sie haben mir die Arbeit ermöglicht und mich großartig unterstützt. Danke an Birgit, dass du mich als Doktorand aufgenommen hast. Weiterhin ein großes Danke an die gesamte Arbeitsgruppe der AG Kanngießer. Ein besonderer Dank gilt Daniel, Aurélie, Christian, Julius, Wolfgang und Holger. Ihr habt mich sehr herzlich aufgenommen und es war wirklich eine wunderbare Zeit bei euch.

Während meiner Promotion war ich an der Hochschule Koblenz am Standort Remagen angestellt. Die Finanzierung dieser Stelle als wissenschaftlicher Mitarbeiter hat mir Thomas Wilhein ermöglicht. Dafür möchte ich mich sehr herzlich bei dir bedanken, denn ohne deinen Einsatz wäre diese Promotion nicht möglich geworden. Meinen Kollegen Johannes, Rino, Konstantin und Martin möchte ich besonders danken. Ich hatte mit euch sehr viel Spaß. Die vielen Diskussionen und besonders ihr werdet mir fehlen.

Danke an Steffie, Aharon und Stefan fürs Korrekturlesen der Arbeit.

Danke an all meine Freunde in Köln und auf der Hilm. Ich vermisse euch.

Ich möchte meinen Eltern und Geschwistern danken, dass ihr mich bei allem was ich mache unterstützt.

Ein ganz großes Danke möchte ich meiner Frau Steffie und unserer Tochter Leni aussprechen. Ihr musstet während der Arbeit sehr oft auf mich verzichten und es war nicht immer einfach. Danke, dass ihr mir den Rücken freigehalten habt. Ich liebe Euch.