

**Konzeption und Aufbau einer
Nanofokus Labor CT Anlage in Reflexionsgeometrie
auf Basis eines Rasterelektronenmikroskops**

Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades
der Julius-Maximilians-Universität Würzburg

vorgelegt von

Philipp Stahlhut

aus Rinteln

Würzburg, 2022



Eingereicht am:
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Randolph Hanke
 2. Gutachter: Dr. Martin Kamp
- der Dissertation

Vorsitzender: Prof. Dr. Peter Michael Jakob

1. Prüfer: Prof. Dr. Randolph Hanke
2. Prüfer: Dr. Martin Kamp
3. Prüfer: Prof. Dr. Matthias Kadler

im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 27.01.2023

Doktorurkunde ausgehändigt am:

It's actually not that hard
as soon as you figure out how it works.

- unknown PHD student after
submitting his thesis

Abstract

The presented thesis discusses the conceptual design and realization of a computed tomography system for material analysis based on a scanning electron microscope with a spatial resolution in the nanometer range. A focused electron beam accelerated through a field of 30 kV aimed at a microstructured tungsten needle with a tip radius of up to 50 nm creates a small X-ray focal spot enabling high-resolution projections of an object via geometric magnification. By rotating the object, projections from different angles are recorded and combined into a 3-dimensional image using a special reconstruction algorithm.

When assessing the individual components of the device, particular attention is paid to the structure, shape and the electrochemical manufacturing process of the X-ray source. Sufficiently accurate positioning of the sample and the X-ray focal spot is realized via piezo axes, while the stability of the focal spot is optimized via the electron optics of the scanning electron microscope and the shape of the source needle.

The spatial resolution is estimated via the line spread function at material edges. For a tungsten block source, this results in a spatial resolution of 325 nm – 400 nm in 3D, while the source spot of a tungsten needle increases the spatial resolution of the system to 65 nm – 90 nm in 2D and 170 nm – 300 nm in 3D for measurements on an AlCu29 test object. In addition, the effects of the phase contrast characteristics of the X-ray source on the reconstructed images after applying a Paganin phase retrieval filter are discussed. It is shown that by applying the filter, an improved signal-to-noise ratio can be achieved at the expense of spatial image resolution.

Comparable measurements with a commercially available X-ray microscope shows the strengths of the presented system when investigating strongly absorbing samples. The compact design allows development towards a nanoCT-module as an upgrade option for scanning electron microscopes, reaching a similar resolution as the nanoCT-devices that are commercially available up to now but at reduced costs.

Kurzfassung

In der vorliegenden Arbeit werden die Konzeption und Realisierung eines Computertomographen zur Materialanalyse auf Basis eines Rasterelektronenmikroskops mit einem räumlichen Auflösungsvermögen im Nanometerbereich diskutiert. Durch einen fokussierten Elektronenstrahl, der mit einer Beschleunigungsspannung von 30 kV auf eine mikrostrukturierte Wolframnadel mit einem Spitzenradius von bis zu 50 nm gezielt wird, entsteht ein kleiner Röntgenbrennfleck über den mit geometrischer Vergrößerung hochauflösende Projektionen eines zu untersuchenden Objekts erzeugt werden. Durch Rotation des Testobjekts werden Projektionen aus verschiedenen Blickwinkeln aufgenommen und über einen speziellen Rekonstruktionsalgorithmus zu einem 3-dimensionalen Bild zusammengefügt.

Bei der Beurteilung der Einzelkomponenten des Geräts wird insbesondere auf Struktur, Form und den elektrochemischen Herstellungsprozess der Röntgenquelle eingegangen. Eine ausreichend genaue Positionierung von Messobjekt und Röntgenbrennfleck wird über Piezoachsen realisiert, während die Stabilität des Röntgenbrennflecks über die Elektronenoptik des Rasterelektronenmikroskops und die Form der Quellnadel optimiert wird.

Das räumliche Auflösungsvermögen wird über die Linienspreizfunktion an Materialkanten abgeschätzt. Für eine Wolfram-Block-Quelle ergibt sich dabei ein Auflösungsvermögen von 325 nm – 400 nm in 3D, während der Quellfleck einer Wolframnadel das Auflösungsvermögen der Anlage auf 65 nm – 90 nm in 2D und 170 nm – 300 nm in 3D bei Messungen an einem AlCu₂₉-Testobjekt anhebt. Außerdem werden die Auswirkungen der Phasenkontrastcharakteristik der Röntgenquelle auf die rekonstruierten Bilder nach Anwendung eines Paganin-Filters diskutiert. Dabei zeigt sich, dass durch Anwendung des Filters ein verbessertes Signal-zu-Rausch-Verhältnis auf Kosten der räumlichen Bildauflösung erzielt werden kann.

Eine Vergleichsmessung mit einem kommerziell verfügbaren Röntgenmikroskop zeigt die Stärken des vorgestellten Systems bei Untersuchung von stark absorbierenden Messobjekten. Das kompakte Design erlaubt eine Weiterentwicklung in Richtung eines nanoCT-Moduls als Upgrade Option für Rasterelektronenmikroskope im Gegensatz zu den weitaus teureren bisher verbreiteten nanoCT-Geräten.

Inhaltsverzeichnis

1	Hochauflösende Mikroskopie und 3D Bildgebung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Erzeugung von Röntgenstrahlung	5
2.1.1	Bremsstrahlung	6
2.1.2	Charakteristische Strahlung	8
2.2	Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie	9
2.2.1	Rayleigh-Streuung	10
2.2.2	Photoeffekt	10
2.2.3	Compton-Streuung	12
2.2.4	Phasenkontrast	12
2.3	Röntgendetektion	14
2.4	Elektronenmikroskopie	17
2.4.1	Kathoden	17
2.4.2	Elektronensignale	19
2.5	Mikromanipulatoren	20
2.6	Bildverarbeitung	21
2.6.1	Auflösungsvermögen	21
2.6.2	Bildrauschen	22
2.6.3	Rekonstruktionsmethoden	23
3	Design der Röntgenquelle für geometrische Vergrößerung	27
3.1	Geometrische Vergrößerung	27
3.2	Grundlegende Quelleigenschaften	29
3.2.1	Transmissionstarget	30
3.2.2	Reflexionstarget	31
3.3	Target Form	33
3.4	Elektrochemischer Herstellungsprozess	36
3.5	Materialauswahl	42
3.6	Stabilisierung und Ausrichtung der Strahlgeometrie	44
3.6.1	Mechanische Stabilität	46

3.6.2	Elektromagnetische Stabilität	46
3.6.3	Thermische Stabilität	50
3.7	Alternative Herstellungsprozesse	51
4	REM basierte NanoCT mittels geometrischer Vergrößerung	53
4.1	Grundlegender Aufbau	53
4.1.1	Strahlcharakteristika	56
4.1.2	Detektoren	58
4.2	2D-Bildgebung	60
4.2.1	Auflösung und Detailerkennbarkeit	60
4.2.2	Sekundäre Brennflecke und Streuung	64
4.3	3D-Bildgebung	66
4.3.1	Material und Methoden	66
4.3.2	Auflösung und Detailerkennbarkeit	68
4.4	Diskussion	73
5	Zusammenfassung und Ausblick	77
	Literaturverzeichnis	89
	Danksagung	91

Kapitel 1

Hochauflösende Mikroskopie und 3D Bildgebung

Die Mikroskopie stellt seit über 300 Jahren eine der elementaren Analysemethoden in der naturwissenschaftlichen und industriellen Forschung und Entwicklung dar. Aufgrund ihrer Bedeutsamkeit ist die Mikroskopie seit der Geburt der modernen Wissenschaft einer stetigen Weiterentwicklung unterworfen. Das in der Bildgebung maximal erreichbare räumliche Auflösungsvermögen stellt bei der Beschreibung eines jeden Mikroskops einen bedeutenden Faktor dar. Für die optische Mikroskopie ist mittlerweile oft nicht mehr alleine die Qualität der Optik der limitierende Faktor für die Detailerkennbarkeit, sondern die Welleneigenschaften des zur Bildgebung verwendeten Lichts. Das räumliche Auflösungsvermögen ist über das von der Wellenlänge des verwendeten Lichts gesetzte Abbe-Limit eingeschränkt [1]. Um bessere Auflösungen als in einem durch das Abbe-Limit begrenzten Mikroskop zu erreichen, muss entweder das Abbe-Limit umgangen oder eine kleinere Wellenlänge verwendet werden. In vielen Fällen ist aber nicht allein das Auflösungsvermögen entscheidend, um ein tieferes Verständnis der untersuchten Strukturen zu erlangen. Mikroskopiemethoden werden daher, wenn möglich, im Hinblick auf 3-dimensionale Bildgebung weiterentwickelt.

Im Bereich der Lichtmikroskopie sei hier beispielsweise die Fluoreszenzmikroskopie genannt, bei der das Abbe-Limit über die Anfärbung in erster Linie biologischer Proben mit fluoreszierenden Materialien durch Techniken wie structured illumination microscopy (SIM), stimulated emission depletion (STED), fluoreszenz photoactivated localization microscopy (FPALM) oder stochastic optical reconstruction microscopy (STORM) umgangen wird [59]. Diese Techniken lassen sich mit konfokaler Mikroskopie kombinieren, bei der mehrere Fokusebenen durchrastert werden. Die defokussierten Signale werden dabei über eine Lochblende geblockt. So kann beispielsweise mit single-molecule localization microscopy (SMLM) und einem speziellen spinning disk confocal (SDC) Aufbau 3-dimensionale Bildgebung bis zu einem

räumlichen Auflösungsvermögen von 20 nm - 80 nm mit sichtbarem Licht erreicht werden [81].

Mit der Entwicklung des Elektronenmikroskops (EM) im Jahre 1938 wurde für die hochauflösende Bildgebung innerhalb des Abbe-Limits ein neuer Wellenlängenbereich eröffnet [5]. Im Gegensatz zu sichtbarem Licht mit einer Wellenlänge zwischen 400 nm und 750 nm erlaubt die Elektronenmikroskopie über den Welle-Teilchendualismus Bildgebung mit Wellenlängen < 1 nm zu betreiben. Die Wellenlänge von nicht relativistischen Elektronen

$$\lambda_e = h / \sqrt{2m_e e \cdot U_{EHT}}$$

wird nach de Broglie [20] hier über eine Beschleunigungsspannung U_{EHT} eingestellt, h bezeichnet in der angegebenen Formel das Plancksche Wirkungsquantum, e die Elementarladung und m_e die Ruhemasse des Elektrons. Rasterelektronenmikroskope (REM) sind im aktuellen Stand der Entwicklung noch nicht beugungsbegrenzt, stattdessen beschränken die Größe der Elektroneninteraktionszone, Aberration und Charakteristika der Elektronenquelle das Auflösungsvermögen auf ~ 1 Nanometer [11, 21]. Eine weitere Verbesserung des Auflösungsvermögens kann beispielsweise durch Verringerung der Interaktionszone in dünnen Proben wie bei der Rastertransmissionselektronenmikroskopie (STEM) oder Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) erreicht werden. Mit einer Ionenfeinstrahlanlage ('focused-ion-beam' FIB) oder einem Diamantmesser lässt sich REM gestützte hochauflösende destruktive 3D-Bildgebung (FIB-Tomographie) bis zu einer isotropen räumlichen Auflösung von 5 nm - 10 nm durchführen [41, 63, 62]. Ein Strahl aus beschleunigten Elektronen wird bei Raumdruck stark zerstreut und abgebremst. Elektronenmikroskopie muss daher im Vakuum stattfinden, ein Umstand der in zusätzlichen Herausforderungen bei der Probenpräparation und Einschränkungen in der Probenauswahl resultiert.

Röntgenstrahlung ist Photonenstrahlung und weist kürzere Wellenlängen im Vergleich zu sichtbarem Licht auf und ermöglicht höhere Auflösungen als bei durch Abbe-Limit begrenzte Lichtmikroskope. Im Gegensatz zu Fluoreszenzmikroskopie, bei der in erster Linie markierbare und für sichtbares Licht transmissive Materialien verwendet werden können, erlaubt Röntgenbildgebung eine Erweiterung auf ein breites für Materialwissenschaften äußerst interessantes Probenspektrum. Die Absorption von Röntgenstrahlung in einem gegebenen Material ist von seiner Dicke, Kernladungszahl und Dichte abhängig, sodass sich mit einem Projektionsbild bereits erste Rückschlüsse auf die innere Struktur eines Probenkörpers ziehen lassen. In der Röntgencomputertomographie (CT) können Projektionen des selben Probenkörpers aus verschiedenen Blickwinkeln aufgenommen und zu einem dreidimensionalen Bild rekonstruiert werden [45].

Hohe räumliche Auflösungen lassen sich in der Röntgenmikroskopie wie auch bei sichtbarem Licht mit refraktiven Linsensystemen erreichen [89]. Das für refraktive

Optiken im Röntgenbereich generell ungünstige Verhältnis von Brechungsindex δ und Schwächungsindex β im komplexen Brechungsindex $n = 1 - \delta - i\beta$ beschränkt refraktive Röntgenoptiken durch ihre starke Strahlschwächung in erster Linie auf die ohnehin lichtstarken Synchrotronanwendungen [66, 80, 83].

Auf Fresnelzonenplatten basierende Linsensysteme finden in der Röntgenmikroskopie sowohl in großen Strahllinienlaboren als auch in kleineren Laborsystemen Anwendung [64, 91]. Fresnelzonenlinsen bestehen aus einem konzentrischen Muster von transparenten und opaken Zonen, ähnlich zu den refraktiven Linsen sind diese nur für eine spezifische Photonenenergie ausgelegt. Die Linseneffizienz hängt maßgeblich von der Absorptionskraft der opaken Linsenzonen ab, was Bildgebung mit höher-energetischer durchdringender Röntgenstrahlung problematisch macht, da Zonenplatten mit größerem Höhe-zu-Breite Seitenverhältnis ('zone-height-to-width aspect ratio') zunehmend schwieriger herzustellen sind [93]. Abhängig vom System und der darin verwendeten Photonenenergie können räumliche Auflösungen unter 20 nm erzielt werden, in der kommerziell verfügbaren X-radia Ultra Reihe von Zeiss wird beispielsweise seitens des Herstellers auf ein räumliches Auflösungsvermögen von bis zu 50 nm in 3D bei einer für diese Systeme verhältnismäßig hohen Photonenenergie von 5,4 keV berichtet [16, 95].

Die Entwicklung des EMs führte, durch die Verfügbarkeit eines kontrollierten und fokussierten Elektronenstrahls, direkt zu ersten Konzepten eines Röntgen-Schattenmikroskops [6]. Die hohe Auflösung der über geometrische Vergrößerung erzeugten Projektionen werden in diesen Systemen über einen durch den fokussierten Elektronenstrahl erzeugten besonders kleinen Röntgenbrennfleck ermöglicht. Diese Art der Systeme wurde besonders in Hinblick auf Anwendungen in der Medizin und zerstörungsfreier Prüfung seit dem Bau der ersten Prototypen bis heute stetig weiterentwickelt [39].

Die Leistungsfähigkeit in 2D für diese Art von Röntgenanwendungen variieren stark zwischen den präzisen und intensiven Strahlenbündeln von Synchrotronquellen, mit denen räumliche Auflösungsvermögen unter 20 nm erreichbar sind und den vergleichsweise schwachen Laborquellen, bei denen zusätzlich zu längeren Messzeiten bei vergleichbaren Anwendungen bisher 'nur' räumliche Auflösungsvermögen von >50 nm erreicht werden [56, 65, 73, 79, 85]. Auf der andern Seite zeichnen sich Laborquellen in erster Linie durch ihre Bezahlbarkeit und Zugänglichkeit speziell für analytische Routineuntersuchungen wie beispielsweise Qualitätskontrolle aus. Die vergleichsweise lichtstarken über Fresnelzonenplatten fokussierten Röntgenmikroskope sind über ihre Photonenenergie beschränkt, wodurch sich Schwierigkeiten bei der Bildgebung von stark absorbierenden Materialstücken ergeben können. In Nanofokusröhren, die sich der geometrischen Vergrößerung bedienen, kann dagegen das gesamte Spektrum der kleinen Röntgenquelle ausgenutzt werden, um größere Flexibilität in der Probenauswahl zu gewährleisten. Durch das Fehlen von optischen Ele-

menten im Strahlengang können die Hauptphotonenenergien dieser Anlagen durch Tausch des Quellmaterials außerdem leicht angepasst werden.

Zielsetzung dieser Arbeit ist es, eine nanoC-Anlage zu entwickeln, die in Anlehnung an frühe Röntgen-Schattenmikroskopie den fokussierten Elektronenstrahl eines REMs ausnutzt, um über einen kleinen Röntgenbrennfleck hohe räumliche Auflösungsvermögen mit geometrischer Vergrößerung zu erreichen. Die Probenkammern von großen REMs sind in der Regel mit mehreren Flanschen ausgestattet, die nicht nur den Einbau eines Strahlaustrittsfensters ohne Weiteres erlauben, sondern auch genügend Raum für weitere Detektoren wie einen Rückstreuelektronendetektor (BSD) oder einen Energiedispersiven Röntgendetektor (EDX) und Zusatzmodule wie eine FIB, ein Gasinjektionssystem (GIS) oder eine Omniprobe zur vertieften Materialanalytik lässt. Es bietet sich daher an, nicht nur eine Labor-nanoCT-Anlage als Einzelgerät zu bauen, sondern auch das Potential, ein Modul zu entwickeln, mit dem sich ausreichend große REMs nachrüsten lassen können. Labore mit hochauflösenden REMs bieten in der Regel eine ausreichende Infrastruktur, aber nicht notwendigerweise den Platz, um eine separate Labor nanoCT-Anlage zu beherbergen. Unter der Voraussetzung, dass ein hochauflösendes REM vorhanden ist, lässt sich über das vorgestellte Konzept eine nanoCT-Anlage in Laboren für bisher unerreicht wenig Geld- und Platzbedarf nachrüsten.

In Kapitel 2 werden die wichtigsten Grundlagen und Konzepte eingeführt. Kapitel 3 befasst sich mit geometrischer Vergrößerung und wie dafür eine Röntgenquelle für ein hohes räumliches Auflösungsvermögen hergestellt werden kann. In Kapitel 4 wird die technische Realisierung des Systems bis zur ersten hochauflösenden nanoCT diskutiert. Die wichtigsten dabei erlangten Ergebnisse und Erkenntnisse werden in Kapitel 5 abschließend zusammengefasst.

Kapitel 2

Grundlagen

Im Fokus dieses Kapitels liegen die grundlegenden physikalischen Effekte und kommerziell verfügbaren Technologien, die zum Verständnis der später getroffenen Entscheidungen bei der Material- und Methodenauswahl nötig sind. Insbesondere werden die physikalischen Effekte, die zur Streuung und Absorption von Elektronen- und Röntgenstrahlung führen und die Ursprünge der dabei entstehenden potenziell nutzbaren bzw. störenden Signale besprochen. Außerdem wird der aktuelle Entwicklungsstand von Rasterelektronenmikroskopen, Mikromanipulatoren und photonenzählenden Röntgendetektoren als wichtigste Einzelkomponenten angerissen, aus denen die vorgestellte Anlage zusammengesetzt wurde. Abschließend erfolgt eine Darstellung, wie die Bildqualität der ersten hochaufgelösten 2D Projektionen und 3D Rekonstruktionsschnitte abgeschätzt werden kann, sowie ein Verweis auf die speziell auf die Charakteristika dieser Anlage angepassten Rekonstruktionsmethoden und deren mathematische Grundlage.

2.1 Erzeugung von Röntgenstrahlung

Röntgenstrahlung ist ein Teil des hochenergetischen Bereichs des elektromagnetischen Spektrums. In der diagnostischen Medizin und zerstörungsfreien Materialprüfung sind die transmissiven Eigenschaften der Röntgenphotonen seit ihrer Entdeckung ein wichtiger Bestandteil. Die kurze Wellenlänge der Röntgenphotonen im Vergleich zu optischen Photonen erlaubt zudem durch die deutlich geringere Beugungsgrenze weitaus höhere Vergrößerung und räumliches Auflösungsvermögen in der Mikroskopie. Röntgenbildgebung ist nur ein kleiner Teil des weiten Anwendungsbereichs für diese Art von Strahlung, ihr Ursprung ist jedoch grundsätzlich entweder durch Elektronen induzierte Abläufe in der Atomhülle des Quellmaterials (klassische Röntgenröhre) oder die Beschleunigung geladener Teilchen auf relativis-

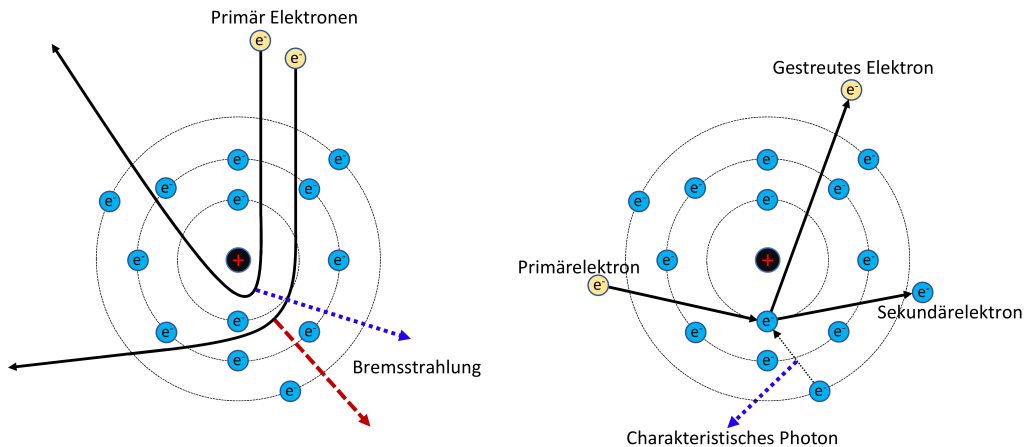


Abbildung 2.1: Links: Bremsstrahlung kann durch die Ablenkung eines einfallenden Elektrons im Coulombfeld eines Atomkerns erzeugt werden. Die Elektronen verlieren dabei kinetische Energie in Abhängigkeit von der Intensität dieser Interaktion und strahlen die verlorene Energie in Form eines Bremsstrahlungsphotons ab. Das emittierte Spektrum ist daher kontinuierlich. **Rechts:** Charakteristische Röntgenstrahlung wird durch Stoßionisation und nachfolgender Relaxation der Atomhülle erzeugt. Das erzeugte Photon besitzt die Energiedifferenz der Bindungsenergien der bei der Relaxation beteiligten Zustände.

tische Geschwindigkeiten (Synchrotron). Dabei gibt es zwei Mechanismen, die zur Entstehung von Röntgenstrahlung beitragen können, siehe Abbildung 2.1 [54]:

- Bremsstrahlung wird durch die Beschleunigung eines geladenen Teilchens in einem elektrischen und/oder magnetischen Feld bzw. dem Coulombfeld eines Atomkerns erzeugt.
- Charakteristische Röntgenstrahlung wird durch die Relaxation eines angeregten Atoms unter Aussendung eines Röntgenfluoreszenzphotons erzeugt.

2.1.1 Bremsstrahlung

Bei der Abbremsung geladener Teilchen in elektrischen Feldern wird Röntgen-Bremsstrahlung emittiert. Erfolgt diese Interaktion an einem Atom, hängen Art und Stärke der Interaktion maßgeblich vom Abstand zwischen Atomkern (mit dem Atomradius r_{atom}) und der Bahnrichtung des Elektrons ab, dem Stoßparameter s . Bei sehr großem s ($s \gg r_{atom}$) finden in erster Linie Interaktionen mit der Atomhülle durch elastische Streuung sowie inelastische Stöße unter Emission langsamer Sekundärelektronen (SE) statt. Bei kleinerem s erfolgen inelastische Stöße mit einzelnen Hüllenelektronen unter Emission schneller SE ($s \sim r_{atom}$), sowie Interaktionen mit

2.1. Erzeugung von Röntgenstrahlung

dem Coulombfeld des Kerns ($s \ll r_{atom}$) durch elastische und inelastische Coulomb-Streuung. Die bei der inelastischen Coulomb-Streuung verlorene kinetische Energie eines Elektrons wird dabei in Form eines Bremsstrahlungsphotons abgestrahlt [51]. Elektronen mit der elektrischen Elementarladung e , die eine Beschleunigungsspannung U_{EHT} durchlaufen haben, besitzen eine kinetische Energie $E_{kin} = eU_{EHT}$. Treffen diese auf das Material eine Röntgenanode (Targetmaterial), entsteht selbst bei reinen Targetmaterialien wegen des bei jeder Interaktion zufälligen Stoßparameters ein kontinuierliches Bremsspektrum. Die minimale Wellenlänge λ_{min} des emittierten Spektrums entspricht dabei nach dem Duane-Hunt-Gesetz

$$\lambda_{min} = \frac{hc}{E_{kin}} = \frac{hc}{eU_{EHT}},$$

h bezeichnet hier das Plancksche Wirkungsquantum und c die Vakuumlichtgeschwindigkeit [52].

Das totale Bremsvermögen S_{tot} von Elektronen in Materie ist wie folgt definiert

$$S_{tot} = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{tot} = S_{col} + S_{rad},$$

mit dem Stoßbremsvermögen für Elektronen S_{col}

$$S_{col} = 2\pi \cdot \rho \cdot r_e^2 \cdot m_0 c^2 \cdot \frac{Z}{u \cdot A \cdot \beta^2} R_{col}$$

und dem Strahlungsbremsvermögen S_{rad}

$$S_{rad} = \rho \cdot r_e^2 \cdot \alpha \cdot E_{tot} \frac{Z^2}{A \cdot u} \cdot (R_{rad,n} + Z^{-1} R_{rad,e}),$$

dabei bezeichnet ρ die Absorberdichte, r_e den klassischen Elektronenradius, $m_0 c^2$ die Ruhemasse des Elektrons, u die atomare Masseneinheit, Z die Ordnungszahl des Absorbers, A die Nukleonenzahl des Absorbers, $\beta = v/c$ die relative Geschwindigkeit, R_{col} die Restfunktion des Wirkungsquerschnittes, α die Feinstrukturkonstante, E_{tot} die Gesamtenergie des Elektrons bestehend aus kinetischer Energie E_{kin} und Ruheenergie E_0 und die Funktionen der skalierten Wirkungsquerschnitte für die Bremsung der einlaufenden Elektronen durch Bremsstrahlung im elektrischen Kernfeld $R_{rad,n}$ und Coulombfeld eines Elektrons $R_{rad,e}$ [88]. Für Elektronenenergien $< 100 \text{ keV}$ gilt hier $R_{rad,e} \ll R_{rad,n}$. In einer klassischen Röntgenröhre werden etwa 99% der Elektronen Stoßgebremst und 1% der Elektronen Strahlungsgebremst [92].

Bewegen sich Elektronen durch ein Material, ändern sie bei jeder Interaktion ihre Richtung und verlieren dabei im Mittel nur einen Teil ihrer kinetischen Energie. Die

mittlere Bahnlänge L von Elektronen im Material lässt sich näherungsweise über die Reichweite R wie folgt angeben:

$$L = \int_{x=0}^R dx = \int_{dE=0}^{E_0} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{tot}^{-1} dE = \int_{dE=0}^{E_0} \left(\frac{1}{S_{tot}} \right) dE$$

Aufgrund der verschiedenen Streuereignisse, die ein Elektron vom Eintritt in das Material bis zum letzten Streuereignis erfährt, ist die mittlere Eindringtiefe bzw. praktische Reichweite R_P der Elektronen stets kleiner als die mittlere Bahnlänge und kann über den Umwegfaktor $X = \frac{L}{R_P}$ abgeschätzt werden [46].

Für $U_{EHT} < 0,5 \text{ MeV}$ und wenn keine Elektronen durch das Anodenmaterial transmittiert werden, lässt sich die Röntgenstrahlleistung in Abhängigkeit von der aufgenommen elektrischen Leistung über einen Umwandlungsfaktor nach [54] wie folgt abschätzen:

$$\eta = 1,1 \cdot 10^{-9} \text{ V}^{-1} \cdot Z \cdot U_{EHT}$$

Bremsstrahlungsemission kann auch durch das Einbringen magnetischer Felder im Strahlengang relativistischer Elektronen induziert werden. In solchen Linearbeschleunigern oder Synchrotronen wird die Wellenlänge λ der emittierten Strahlung und deren Bandbreite $(\frac{\Delta\lambda}{\lambda})_{0,1\%}$ über die Bauweise der Systeme gezielt eingestellt [47]. Strahlenbündel aus Synchrotronen und Linearbeschleunigern weisen mit einer geringen Bandbreite, einem hohen Photonenfluss $\gamma / \Delta t$, geringer Quellgröße Q_A und kleinem Strahlwinkel Ω die wichtigsten Strahlcharakteristika auf, mit der sich eine zum Zwecke der Analytik hochwertige Quelle beschreiben lässt. Diese Größen werden daher oft zu einem Kennwert, der sogenannten Brillanz B , zusammengefasst um die Qualität eines Röntgenstrahls zu quantifizieren [2]:

$$B = \frac{\gamma / \Delta t}{Q_A \cdot \Omega \cdot (\frac{\Delta\lambda}{\lambda})_{0,1\%}}$$

2.1.2 Charakteristische Strahlung

Stoßen Elektronen an Hüllenelektronen unter Emission schneller SE im Stoßparameterbereich ($s \sim r_{atom}$), erfolgt eine Ionisation des Atoms in einer der inneren Schalen (K,L,M...). Das System relaxiert durch Auffüllen dieser leeren Zustände aus höherliegenden Energieniveaus, dabei kann ein Photon mit einer Energie emittiert werden, die der Energiedifferenz der beteiligten Energieniveaus entspricht. Es folgt die Emission eines diskreten Linienspektrums, das charakteristisch für das emittierende Atom ist, man spricht daher von charakteristischer Röntgenstrahlung. Um ein inneres Hüllenelektron aus seiner Schale herauszulösen, muss E_{kin} die kritische Anregungsenergie E_c des Hüllenelektrons überschreiten. E_c ist hierbei in der Regel nur geringfügig größer als die aus der Schale emittierte Photonenenergie [31]. Für Elektronenübergänge wird in dieser Arbeit die Siegbahn-Notation verwendet [90].

2.2. Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Der Wirkungsquerschnitt $Q(E_{kin})$ für eine solche Anregung kann beschrieben werden durch

$$Q(E_{kin}) \propto \frac{1}{E_c^2} \cdot \frac{\ln(\hat{U})}{\hat{U}}$$

$\hat{U} = E_{kin}/E_c$ beschreibt hier das Überspannungsverhältnis. Die Funktion des Wirkungsquerschnitts besitzt ein Maximum bei einem Überspannungsverhältnis von $\hat{U} \approx 2,7$.

2.2 Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Ein Röntgenstrahl mit der anfänglichen Intensität I_0 , der Materie durchdringt, erfährt eine von der zurückgelegten Strecke x abhängige exponentielle Abschwächung. Die Restintensität I_d nach einer Transmission durch ein homogenes Werkstück der Dicke d wird durch das Lambert-Beer-Gesetz beschrieben [58]:

$$I_d = I_0 \cdot e^{-\mu d}$$

Der Schwächungskoeffizient μ ist hierbei abhängig von der Photonenenergie E des Röntgenstrahls, sowie der Ordnungszahl Z und der Dichte ρ des Absorbers entlang des Strahlsegmentes $d\eta$. Für ein inhomogenes Werkstück ergibt sich:

$$\sum_E I(d, E) = \sum_E I_0(E) \cdot e^{-\int_0^d \mu(E, Z, \rho) \cdot d\eta}$$

Die Abnahme der Strahlintensität ist auf einen oder mehrere Wechselwirkungsprozesse zurückzuführen, deren Signifikanz im Einzelnen von der Photonenenergie in steigender Reihenfolge der Aufzählung von niedrigen E zu hohen E abhängt:

1. Rayleigh-Streuung
2. Photoeffekt
3. Compton-Streuung
4. Paarbildung
5. Kernphotoeffekt

Der Schwächungskoeffizient lässt sich respektive in diese Einzelkomponenten aufteilen und als Summe darstellen:

$$\begin{aligned} \mu(E, Z, \rho) = & \mu_{Rayleigh}(E, Z, \rho) + \mu_{Photo}(E, Z, \rho) + \mu_{Compton}(E, Z, \rho) \\ & + \mu_{Paar}(E, Z, \rho) + \mu_{Kern}(E, Z, \rho) \end{aligned}$$

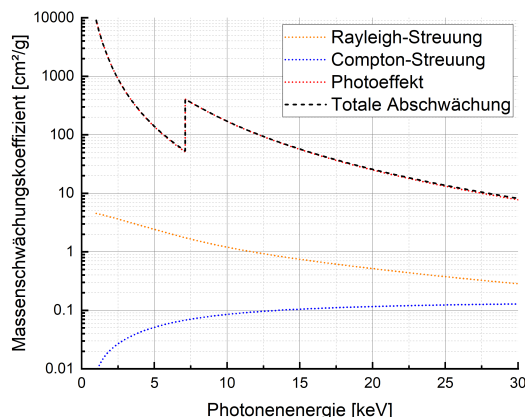


Abbildung 2.2: Totaler Massenschwächungskoeffizient μ/ρ [cm^2/g] und die spezifische Abschwächung durch Rayleigh-Streuung, Compton-Streuung und Photoeffekt von Fe, dem Material des Strahlenschutzkastens des vorgestellten Geräts für den relevanten Energiebereich [14, 15].

Da die Einzelkomponenten alle proportional zu ρ sind, wird in der Literatur in der Regel der dichteunabhängige Massenschwächungskoeffizient μ/ρ [cm^2/g] angegeben [14, 15], siehe Abbildung 2.2. Die Paar- und Triplettbildung sowie der Kernphotoeffekt werden erst bei $E > 1,022 MeV$ bzw. $E > 6 MeV$ relevant, weshalb auf eine weitere Betrachtung dieser Wechselwirkungsprozesse im Folgenden verzichtet wird [52]. Für eine schematische Darstellung der relevanten Prozesse siehe Abbildung 2.3.

2.2.1 Rayleigh-Streuung

Bei niedrigen Photonenenergien $E < 20 keV$ kann es vermehrt zu einer klassischen Streuung zwischen dem einfallenden Photon und einem fest gebundenen Hüllenelektron kommen. Die Hüllenelektronen des Wechselwirkungsatoms werden dabei kurzzeitig zu einer kollektiven Schwingung angeregt. Die aufgenommene Energie wird bei diesem Prozess in Form eines Photons mit derselben Energie phasenkohärent zum primären Photon wieder abgestrahlt. Man spricht deshalb auch von kohärenter Streuung.

2.2.2 Photoeffekt

Der Photoeffekt oder auch photoelektrische Absorption ist in dem für diese Arbeit interessanten Energiebereich von $E = 5 keV$ bis $E = 30 keV$ für die meisten Elemente der dominierende Wechselwirkungsprozess. Eine sogenannte Photoionisation kann

2.2. Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

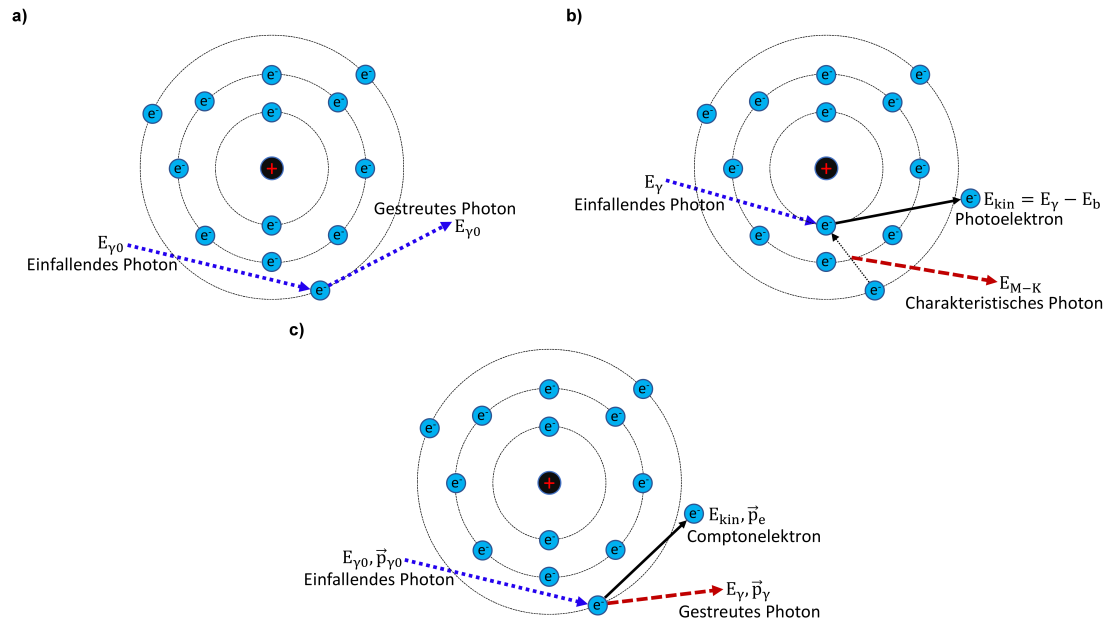


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der drei für Photonenenergien $E < 30 \text{ keV}$ relevanten Wechselwirkungsprozesse ionisierender Photonenstrahlung mit Materie. **a)** Klassische Streuung eines Photons an einem Hüllenelektron. Das gestreute Photon ist phasenkohärent zum einfallenden Photon und besitzt die gleiche Energie. **b)** Photoionisation an einem inneren Hüllenelektron. Die Atomhülle wird durch die Absorption des primären Photons ionisiert. Durch Relaxation der Atomhülle kann ein charakteristisches Röntgenphoton emittiert werden. **c)** Compton-Streuung an einem schwach gebundenen Hüllenelektron. Die Atomhülle wird ionisiert. Das primäre Photon gibt dabei einen Teil seiner Energie ab und ändert seine Flugrichtung.

stattfinden, wenn die Photonenenergie E größer als die Bindungsenergie E_b eines inneren Hüllenelektrons ist. Das Photon wird bei diesem Prozess absorbiert, worauf das Elektron die Atomhülle mit einer kinetischen Energie von $E_{kin} = E - E_b$ verlässt. Der vakante Zustand des Photoelektrons kann analog zu Abbildung 2.1 durch Relaxation unter Emission eines charakteristischen Röntgenphotons (oder Augerelektrons, siehe Abschnitt 2.4.2) wieder besetzt werden. Die Wahrscheinlichkeit für eine Photoabsorption geht bei $E = E_b$ sprunghaft auf ein Maximum, man spricht dabei beispielsweise von einer K-Absorptionskante, wenn die Ionisationsenergie der K-Schale der Atomhülle erreicht wird, siehe Abbildung 2.2.

2.2.3 Compton-Streuung

Bei steigenden Photonenenergien nimmt die Wahrscheinlichkeit für eine Compton-Streuung zu, für leichte Elemente wie beispielsweise Beryllium ist der Comptoneffekt für Photonenenergien $E \gtrsim 14 \text{ keV}$ bereits der dominierende Wechselwirkungsprozess. Mit zunehmender Ordnungszahl verschiebt sich diese Grenze zu höheren E . Während der Absorptionskoeffizient im Bereich des Photoeffekts - abgesehen von den Absorptionskanten - $\propto E^{-3}$ abfällt, geht die Absorptionskurve auf eine $\propto E^{-1}$ Abhängigkeit über. Die Verwendung unterschiedlicher Anodenmaterialien mit voneinander abweichenden charakteristischen Linien hat folglich im Bereich des Photoeffekts eine deutlich größere Auswirkung auf den Kontrast des projizierten Bildes, als wenn bereits im Bereich des Comptoneffekts gemessen wird.

Comptonstöße finden bei inelastischen Wechselwirkungen von Photonen mit schwach gebundenen Hüllenelektronen statt. Das Photon überträgt dabei im Gegensatz zur Photoionisation nur einen Teil seiner Energie an das Elektron und setzt seinen Weg danach mit geringerer Energie in veränderter Richtung fort. Die Atomhülle wird durch das Verlassen des gestoßenen Elektrons 1-fach ionisiert.

2.2.4 Phasenkontrast

Bei hochauflösender Bildgebung müssen die Beugungseffekte, denen ein Wellenfeldes $\Psi(x, y, z, t)$ unterworfen ist, mitberücksichtigt werden. Besonders relevant für die Bildgebung mit der in dieser Arbeit vorgestellten Anlage ist der Phasenkontrast, eine durch Interferenzeffekte hervorgerufene Kontrastüberhöhung an Materialkanten. Für eine Welle mit der Frequenz ω die durch die Wellenfunktion $\psi(x, y, z)$ gegeben ist

$$\Psi(x, y, z, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty \psi(x, y, z) e^{-i\omega t} d\omega,$$

kann die Beugung an einem Spalt mit der Breite b über die Fresnel-Kirchhoffsche Beugungstheorie beschrieben werden [23]. Nach dem Huygenschen Prinzip kann jeder Punkt einer Wellenfront als Ausgangspunkt für neue Elementarwellen verstanden werden. Die zur Bildgebung beitragende Wellenfront beinhaltet damit diese miteinander interferierenden Elementarwellen. Eine solche Wellenfront kann mithilfe des Fresnel-Kirchhoffschen Beugungsintegrals im Nahfeld am Beobachtungspunkt $z_1 \ll b^2/\lambda$ in der Beobachtungsebene (x, y) mit der Fresnel-Näherung über

$$\psi(x, y, z = z_1) = \frac{-ie^{ikz_1}}{z_1\lambda} \int \int_{-\infty}^{\infty} \psi(x_0, y_0, z = 0) e^{\left\{ \frac{ik}{2z_1} [(x-x_0)^2 + (y-y_0)^2] \right\}} dx_0 dy_0$$

ausgedrückt werden, während bei einem Beobachtungspunkt $z_1 \gg b^2/\lambda$ im Fernfeld eine Vereinfachung zur Fraunhofer-Beugung erfolgen kann

2.2. Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

$$\psi(x, y, z = z_1) = \frac{-ie^{ikz_1}}{z_1\lambda} e^{\left[\frac{ik}{2z_1}(x^2+y^2)\right]} \int \int_{-\infty}^{\infty} \psi(x_0, y_0, z = 0) e^{\left[\frac{-ik}{z_1}(xx_0+yy_0)\right]} dx_0 dy_0,$$

dabei ist $\vec{k} = \{k_x, k_y, k_z\}$ der Ausbreitungsvektor

$$|\vec{k}| = k = \frac{2\pi}{\lambda}.$$

Die Streuung einer solchen Welle an einem Objekt mit dem Brechungsindex

$$n = 1 - \delta + i\beta$$

wird über die inhomogene Helmholtzgleichung beschrieben

$$[\nabla^2 + k^2 n^2(x, y, z)] \psi(x, y, z) = 0,$$

der Brechungsindex n setzt sich dabei aus den beiden realen Größen für die Absorption β und dem in der Welle induzierten Phasenschub δ zusammen. Unter der Annahme einer ebenen Wellenfront, die durch ein lokalisiertes Objekt gestört wird und deren Projektion auf einer Detektorebene (x, y) senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung z aufgenommen wird, reduziert sich die Helmholtzgleichung zu

$$\left[2ik \frac{\delta}{\delta z} + \nabla_{x,y}^2 + k^2 (n^2(x, y, z) - 1) \right] \bar{\psi}(x, y, z) = 0$$

mit dem gestörten Wellenfeld $\bar{\psi}(x, y, z)$ und dem Phasenfaktor e^{ikz} [70]

$$\psi(x, y, z) = \bar{\psi}(x, y, z) e^{ikz}.$$

Die durch den Detektor gezählte Intensität entspricht

$$I(x, y, z = z_1) = |\psi(x, y, z_1)|^2,$$

wobei sich mit dem Fresnel Scaling Theorem das Verhältnis

$$I_K(x, y, z = z_1) = \frac{1}{M^2} I_P \left(\frac{x}{M}, \frac{y}{M}, \frac{z_1}{M} \right)$$

zwischen der Intensität in Parallelstrahlgeometrie I_P und Kegelstrahlgeometrie I_K über die Vergrößerung M herstellen lässt.

Interferenzeffekte induzieren im Fernfeld einen zusätzlichen Sprung in der Intensität an den Phasengrenzen des Probenmaterials, dadurch können verschiedene Materialien mit ähnlichem μ allein über den Phasenschub unterscheiden werden. Gleichzeitig entsprechen die Grauwerte nicht der tatsächlichen von den Strahlen

transmittierten Dicke $T(x, y)$. Um ein von Beugungseffekten weniger beeinflusstes Bild zu erhalten, wäre eine Beobachtung im Nahfeld bei $z = 0$ erforderlich. Ist eine physikalische Messung im Nahfeld nicht möglich, kann dieses Problem nur mathematisch gelöst werden, jedoch geht die Phaseninformation der Welle durch die Messung der Intensität verloren. Eine näherungsweise Rückgewinnung der Phaseninformation ist über einen Paganin-Phasenfilter möglich

$$T(x, y) \approx -\frac{1}{\mu} \ln \left\{ \mathcal{F}^{-1} \left[\mu \frac{\mathcal{F} [M^2 I_d(M \cdot x, M \cdot y, z = z_1)]}{I_0 z_1 \delta \left(|\vec{k}_{x,y}|^2 + \mu \right)} \right] \right\},$$

diese Funktion kann als eine mathematische Linse verstanden werden, die das Bild zur Objektebene defokussiert [71]. Da es sich hierbei aber um eine Näherung handelt, besitzt diese Linse eine intrinsische Unschärfe und verringert nach Anwendung entsprechend das Auflösungsvermögen des resultierenden Bildes, siehe Abschnitt 2.6.1.

2.3 Röntgendetektion

Laborgebundene Röntgenmikroskope auf Basis geometrischer Vergrößerung weisen aufgrund der sehr kleinen Röntgenquelle einen geringen Photonenfluss auf. Das Detektorsystem einer solchen Anlage sollte also in der Lage sein, auch sehr schwache Signale zuverlässig detektieren zu können. Das Absorptionsvermögen und die Zerfallsrate angeregter Zustände des Testvolumens sind wichtige Faktoren von denen die Detektionseffizienz ionisierender Photonen abhängt [53]. Photonenzählende Halbleiterdetektoren können gleichzeitig eine hohe Sensoreffizienz als auch eine geringe Pixelgröße $< 100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ bieten, die für ein hohes Auflösungsvermögen bei projektiver Vergrößerung wünschenswert ist.

Es wird dabei zwischen direkt und indirekt konvertierenden Detektoren unterschieden. Bei indirekt konvertierenden Detektoren werden die eingehenden Röntgenphotonen über Szintillation zunächst in sichtbare Photonen umgewandelt, welche dann über eine Photodiode gezählt werden, siehe Abbildung 2.4. Die Abstrahlung der sichtbaren Photonen erfolgt isotrop. Um eine übermäßige Anregung benachbarter Pixel relativ zum Eingangssignal - so genanntes Nebenleuchten - zu reduzieren, wird jedem Pixel ein separater Szintillatorkristall zugeordnet. Der Effekt des Nebenleuchtens wirkt sich direkt auf das räumliche Auflösungsvermögen des Gesamtsystems aus. Über das Einbringen zusätzlicher Materialien in die Zwischenräume der Einzelkristalle kann auf Kosten der effektiven Sensorfläche die Wahrscheinlichkeit für eine Totalreflexion erhöht werden. Die Anforderungen an das Szintillatormaterial für einen indirekt konvertierenden Detektor sind neben einer hohen spezifischen Dichte und Ordnungszahl, eine starke Fluoreszenz, optische Transparenz und Ein-

2.3. Röntgendetektion

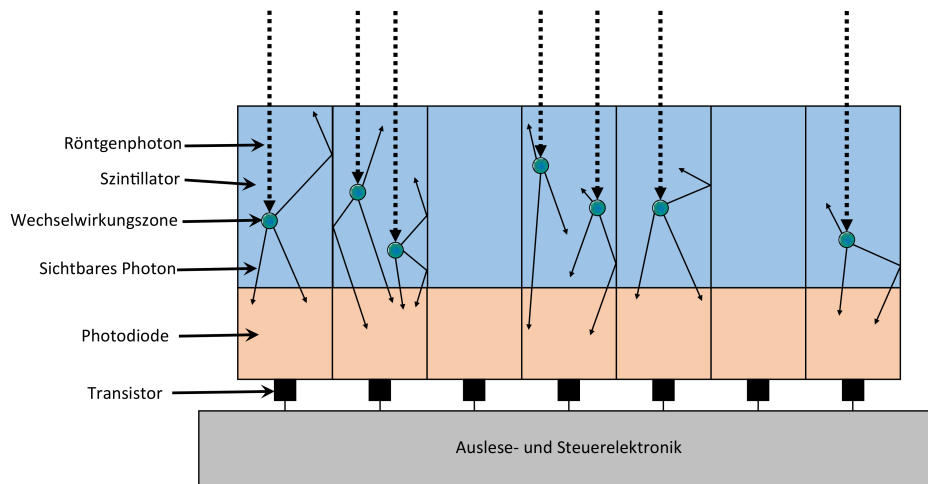


Abbildung 2.4: Der indirekt konvertierende Halbleiterdetektor wandelt eingehende Röntgenphotonen über einen Szintillator zunächst in Photonen des sichtbaren Spektrums um. Die in der Wechselwirkungszone erzeugten Photonen strahlen isotrop ab. Um die Anregung benachbarter Pixel (Nebenleuchten) zu minimieren, wird der Szintillator als Nadelstruktur hergestellt, um eine Totalreflexion am Pixelrand zu begünstigen. Die sichtbaren Photonen werden von der Photodiode in eine elektrische Ladung umgesetzt und von dort über einen Transistor als Signal ausgelesen.

grenzung der optischen Photonen [74]. Die Relaxationszeiten hängen hier stark von der Wahl des Szintillatormaterials ab.

Das Sensorvolumen eines direkt konvertierenden Halbleiterdetektors besteht aus einer Pixelmatrix von Szintillatorkristallen, an den eine Vorspannung angelegt ist, mit dieser werden die durch ionisierende Photonen erzeugten Elektron-Loch-Paare im Szintillator getrennt und in einer Pixelkathode ausgezählt, siehe Abbildung 2.5 [60]. Über die Anzahl der detektierten Ladungsträger pro Photoneninteraktion ist es möglich, eine Aussage über die Energie des eintreffenden Photons zu treffen [33]. Wie bei dem indirekt konvertierenden Detektor sind Materialien mit hoher Dichte und Atomgewicht aufgrund ihres höheren Absorptionsvermögens zu bevorzugen, in diesem Falle spielt jedoch die Ladungsträgermobilität der Sensorfläche für Elektron-Lochpaare und die daraus resultierende Relaxationszeit ebenfalls eine große Rolle. Erstreckt sich die Interaktionszone eines einfallenden Photons über mehrere Kristalle der Pixelmatrix entsteht 'charge-sharing', die dabei erzeugten Ladungsträger werden auf mehreren Pixelkathoden detektiert, siehe Abbildung 2.6 [48]. Der Effekt des charge-sharings beeinträchtigt somit sowohl die Energieauflösung des Detektors als auch das räumliche Auflösungsvermögen der Projektionen und sollte somit bestmöglich korrigiert oder durch die Detektorbauweise reduziert werden [24].

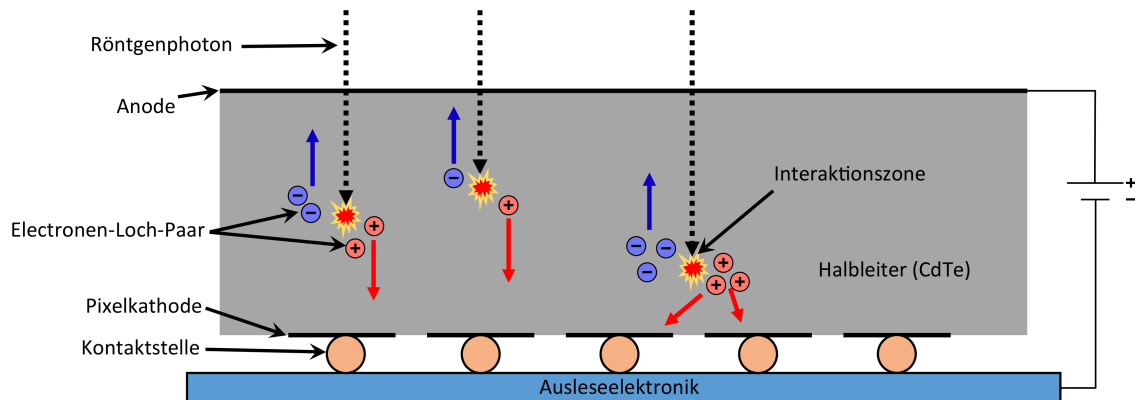


Abbildung 2.5: Im direkt konvertierenden Halbleiterdetektor werden durch eine angelegte Spannung die im Szintillator durch Röntgenphotonen erzeugten Elektron-Loch-Paare getrennt bevor sie rekombinieren können. Die Ladungsträger werden von einer Pixelkathode ausgelesen und als Signal an die Ausleseelektronik weitergegeben. Der Effekt, durch den Ladungsträger von benachbarten Pixeln gezählt werden, wird als 'charge-sharing' bezeichnet.

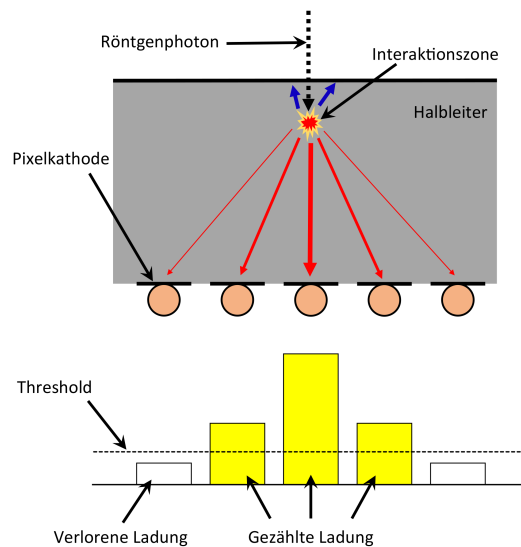


Abbildung 2.6: Charge-sharing in direkt konvertierenden Halbleiterdetektoren. Durch das einfallende Röntgenphoton werden mehrere Ladungsträger erzeugt, die sich auf unterschiedliche Pixelkathoden verteilen können. Eine Erhöhung der Threshold Spannung reduziert sowohl das Grundrauschen des Detektors, als auch das charge-sharing, es geht allerdings auch ein Teil des Signals verloren.

Typische Halbleitermaterialien für direkt konvertierende Detektoren sind Si oder CdTe, wie sie auch in dieser Arbeit verwendet wurden. Es gibt jedoch eine breite Anzahl an möglichen Sensormaterialien und Dicken für die Detektion korrespondierender ionisierender Strahlung und deren mittleren freien Weglängen [94]. Im Gegensatz zu indirekt konvertierenden Systemen weisen direkt konvertierende Detektoren eine bessere Quanteneffizienz auf, die Relaxationszeiten sind im Mittel bei geringerer Varianz vergleichbar. Ihr größter Nachteil ist neben den höheren Anschaffungskosten, dass bei hohen Photonenströmen eine Polarisierung des Sensormaterials auftritt, wodurch das elektrische Feld im Sensormaterial inhomogen wird [75].

Direkt konvertierende Detektoren stellen damit aufgrund ihrer hohen Quanteneffizienz eine ideale Basis für die hier beschriebene Anlage dar, während deren größter Nachteil für eine intensitätsschwache Nanofokusröhre wie sie in dieser Arbeit beschrieben wird praktisch keine Relevanz hat.

2.4 Elektronenmikroskopie

Für sehr kleine Röntgenquellen, deren Ort sich während einer Messung kaum ändern darf, ist eine Elektronenquelle mit geringem wohl definiertem Emissionsvolumen und Langzeitstabilität unabdingbar [65, 86]. Entwicklungen an Röntgenmikroskopen wie beispielsweise der Nanotube N3 60 kV - 160 kV Serie (Excillum Schweden) haben gezeigt, dass Elektronenoptiken eine wichtige Rolle für einen präzisen und stabilen Röntgenbrennfleck spielen [7]. Beide Faktoren lassen sich ebenso über Quelle und Elektronenoptik eines Rasterelektronenmikroskops (REM) erfüllen und bieten so Raum für ein nanoCT-System als ergänzbares Modul für diese Geräte. Es ist daher kaum verwunderlich, dass die Idee und Entwicklung von projektiven Röntgenmikroskopen eng mit der Entwicklung der Rasterelektronenmikroskopie verknüpft ist [5, 6, 19, 97].

2.4.1 Kathoden

Als REM-Elektronenquellen haben sich über die Zeit verschiedene Konzepte durchgesetzt. Bei preisgünstigen Geräten wird wie in den ersten REMs nach wie vor eine Variante der thermoionischen Wolfram Haarnadelkathode verwendet. Bei diesem Filament handelt es sich um einen V-förmigen $\sim 100 \mu\text{m}$ dünnen Draht, der über den Kathodenstrom auf Temperaturen $> 2800 \text{ K}$ aufgeheizt wird [40, 96]. Bei thermoionischen Quellen wie dieser wird eine Elektronenwolke in erster Linie durch das Überschreiten der Austrittsarbeit (4,5 eV) der Elektronen über die hohe Temperatur der Kathode erzeugt. Durch Anlegen einer Spannung zwischen Kathode und dem darunter liegenden Wehnelt-Zylinder wird die Elektronenwolke des Filaments grob gebündelt, über die Beschleunigungsspannung (EHT) zur Anode extrahiert und in

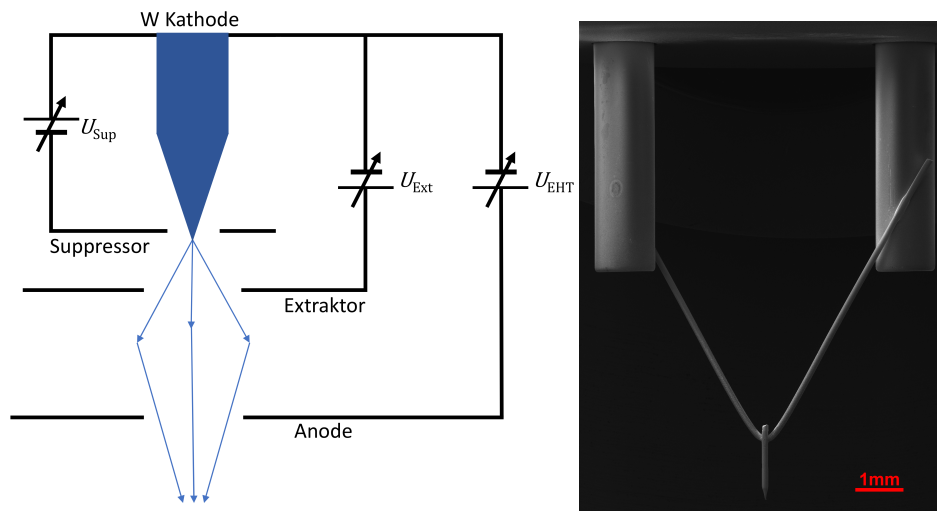


Abbildung 2.7: Links: Schematische Darstellung einer Wolfram-Feldemissionskathode. Über die Extraktorspannung wird ein starkes elektrisches Feld an der Kathodenspitze erzeugt. Die Austrittsarbeit der Elektronen wird bei einem kalten Feldemitter alleine über das Extraktorfeld oder bei einem thermischen Feldemitter in Kombination mit einer Erhitzung der Kathode überwunden, eine Suppressor Spannung dient bei Letzterem zur Abschirmung thermischer Elektronen abseits der Spitze. Die Elektronen werden nach der Extraktion über eine Beschleunigungsspannung U_{EHT} zur Anode hin beschleunigt. Rechts: REM SE-Bild einer Denka TFE Kathode bei $U_{\text{EHT}} = 15 \text{ kV}$.

die Elektronenoptik geleitet. Der daraus resultierende Elektronenstrom steigt mit dem Kathodenstrom bis zu einem Sättigungspunkt, ab dem der Elektronenstrom nur noch geringfügig mit steigendem Kathodenstrom zunimmt. Die Lebensdauern von Haarnadel-Filamenten belaufen sich auf einen Zeitraum von Wochen bis wenigen Monaten. Die Abstrahlcharakteristik variiert zwischen verschiedenen Kathoden sowie im Laufe eines Kathodenzyklus. Beides macht diese Anodenform unattraktiv zum Bau von Röntgenmikroskopen mit kleinen Röntgenbrennflecken und langen Messzeiten. Wolfram-Filamente erfordern ein vergleichsweise geringes Kathodenvakuum, was diese Kathoden wiederum interessant für Aufbauten macht in denen ein aufwändiges Vakuumsystem hinderlich wäre.

LaB_6 wird für Elektronenquellen oft als Kathodenmaterial aufgrund seiner geringeren Austrittsarbeit ($2,4 \text{ eV}$) als Alternative zu Wolfram verwendet. LaB_6 -Kathoden liefern im Vergleich zu Wolfram-Filamenten einen 5x - 10x höheren Strom, besitzen eine längere Lebensdauer und erzeugen einen kleineren Elektronenbrennfleck. Eine Kontaminierung des Kathodenmaterials tritt bei diesem Material jedoch selbst bei hohen Temperaturen vermehrt auf, wodurch Langzeitstabilität und Lebenszeit beeinträchtigt sind und vergleichbar hohe Anforderungen an das Vakuumsystem gestellt werden müssen [12, 18].

Wolfram-Feldemissionskathoden hingegen bestehen aus einem Einkristall mit scharfer Spitze und weisen im Vergleich zu Haarnadelkathoden mit ~ 6 Jahren längere Lebensdauern und größere Helligkeiten auf [37]. Die Extraktorspannung verursacht an der Kathodenspitze ein starkes elektrisches Feld, wodurch die Elektronen durch die Potentialbarriere des Kathodenmaterials tunneln können [68], siehe Abbildung 2.7. Die Austrittsarbeit für Elektronen wird bei einem thermischen Feldemitter (TFE) durch eine Kombination aus Extraktorfeld und einer Erhitzung der Kathode über die Schottky-Emission überwunden, während ein kalter Feldemitter (KFE), der bei Raumtemperatur betrieben wird, ein entsprechend größeres Extraktorfeld benötigt. KFE können den höchsten Emissionsstrom der hier besprochenen Elektronenquellen liefern, sind jedoch aufgrund der geringen Betriebstemperatur anfällig für Kontamination und benötigen daher regelmäßige Regenerationsperioden. TFE benötigen nach Hochfahren der Kathode im Vergleich zum KFE eine längere Zeit um einen stabilen Elektronenstrahl zu generieren. Die höhere Temperatur eines TFE reduziert jedoch die Kontamination der Kathode über Zeit und resultiert somit in einer besseren Langzeitstabilität der Quelle. FE-Kathoden können einen mehr als 50x größeren Emissionsstrom im Vergleich zu herkömmlichen Wolfram-Filamenten liefern. Während der Gesamtlaufzeit einer FE-Kathode steigt die minimale Brennfleckgröße bei gleichzeitig sinkendem Strahlsstrom.

In Hinsicht auf den Bau einer Nanofokusröhre wird in dieser Arbeit auf einen TFE zurückgegriffen. Damit lassen sich lange Operationszeiten unter konstanten Bedingungen bei hoher Strahlstabilität und -präzision garantieren. Die Entwicklung und Evaluierung neuer Kathodenmaterialien und -konzepte ist nach wie vor ein Thema der aktuellen Forschung und sollte anhand der in dieser und folgenden Arbeiten zu diesem System diskutierten relevanten Parameter beobachtet werden [57].

2.4.2 Elektronensignale

Die Bildgebung in der Rasterelektronenmikroskopie erfolgt durch einen Elektronenstrahl, der über eine frei einstellbare U_{EHT} zwischen 0,1 kV und 30 kV beschleunigt und auf eine Probe fokussiert wird. Das Objekt wird durch den Elektronenstrahl in einem vom Nutzer vorgegebenen Bereich Pixel für Pixel abgerastert. Neben den zuvor diskutierten Materialinteraktionen, die zur Erzeugung von Röntgenstrahlen führen, werden verschiedene Elektronensignale in dem vom Elektronenstrahl bezielten Material erzeugt, dabei wird zwischen primären und sekundären Elektronen unterschieden, siehe Abbildung 2.8.

Primärelektronen werden durch elastische und inelastische Streuprozesse bei Interaktion der eingehenden Elektronen mit dem Coulombfeld der Kerne des Zielmaterials abgelenkt. Die Stärke und Wahrscheinlichkeit einer solchen Interaktion hängt im hohen Maße von der Kernladungszahl ab und beeinflusst entsprechend die Signale der transmittierten Elektronen (TE) und rückgestreuten Elektronen ('back-

scattered-electrons' BSE) [77]. TE und BSE Signale geben daher Informationen über die Materialzusammensetzung einer Probe preis.

SE werden durch direkte Interaktionen der eingehenden Primärelektronen mit den Elektronen des Zielmaterials erzeugt. Stöße mit schwach gebundenen Elektronen im Valenz- und Leitungsband des Zielmaterials setzen langsame Sekundärelektronen mit Energien um 50 eV frei. Diese bilden das intensivste Signal bei einer Oberflächenanalyse in der Rasterelektronenmikroskopie. Die Detektion langsamer SE wird durch das Anlegen einer Kollektorspannung am Detektor möglich. SE-Signale zeigen abhängig vom Beobachtungswinkel des SE-Detektors in erster Linie die Oberflächenstruktur und Topographie des Probenmaterials. Schnelle Sekundärelektronen werden durch Primärelektronen induzierte Ionisation stärker gebundener Elektronenzustände erzeugt, Auger-Elektronen können dabei durch Elektronenrekombination aus höheren Schalen anstelle von charakteristischer Röntgenstrahlung freigesetzt werden. Beide Signale mischen sich mit ausgehenden BSE-Signalen.

Eine Erhöhung der EHT steigert zwar theoretisch das maximale Auflösungsvermögen eines REM-Bildes, da sich der Elektronenstrahl zu kleineren Brennflecken fokussieren lässt, schnellere Elektronen besitzen aber gleichzeitig eine höhere R_P im Material, wodurch jedes Pixelsignal in einem größeren Volumen erzeugt wird. In SE- und BSE-Signale mischt sich bei steigender EHT also mehr Tiefeninformation einer Probe bei zunehmend verwaschenen Pixeln. Bei der Detektion von TE wird die Größe des Interaktionsvolumen durch Beobachtung sehr dünner Proben limitiert, daher werden bei der TE-Bildgebung generell höhere räumliche Auflösungsvermögen erreicht als in der REM-Bildgebung.

All diese vom Material ausgesendeten Signale können zu Positionskorrekturen und Materialanalyse während der Aufnahme eines CT-Datensatzes herangezogen werden. Gleichzeitig ist zu beachten, dass durch Elektronenemission der Röntgenquelle lokale elektrostatische Ladungszonen im CT-Objekt erzeugt werden können, die wiederum einen negativen Einfluss auf die Elektronenstrahlstabilität haben. Ebenso ist die geometrische Anordnung zwischen Röntgenquelle, Messobjekt und SE-Detektor von Bedeutung, da es bei ungünstiger Anordnung zu einer Abschirmung des SE-Signals der Röntgenquelle durch das Messobjekt kommen kann.

2.5 Mikromanipulatoren

FE-SEMs sind in der Regel mit zahlreichen Ports für zusätzliche Analysemethoden und Detektoren ausgestattet (vgl. Kapitel 1), um die Art der Nutzbarkeit dieser Ports flexibel zu halten, benötigen Manipulatorachsen in FE-SEMs eine hohe Achsenreichweite, um die Proben auf die optimalen Positionen für die jeweiligen Anwendungen fahren zu können. Standardmäßig werden hierfür auf Schnecken laufende servobetriebene Achsen mit einer Genauigkeit von ~ 500 nm verbaut [42]. Die

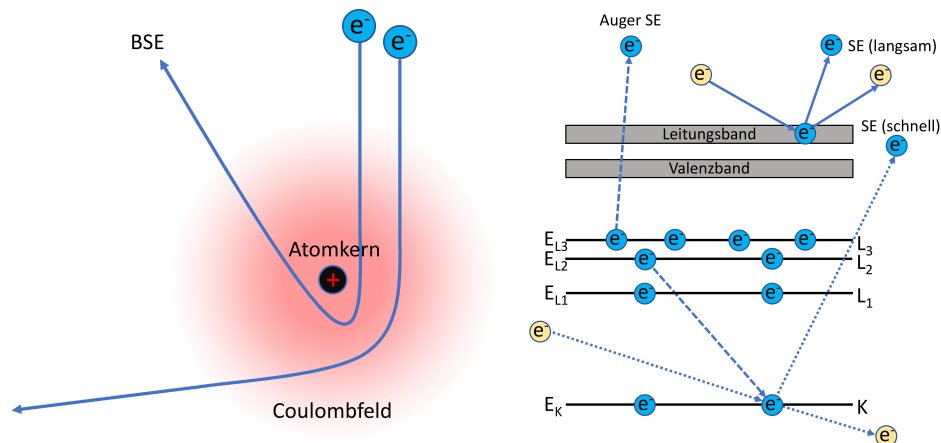


Abbildung 2.8: Links: Entstehung des Rückstreuelektronensignals (BSE-Signal). Eingehende Primärelektronen werden durch das Coulombfeld der Atomkerne des Zielmaterials abgelenkt. **Rechts:** Langsame Sekundärelektronen (SE langsam) werden durch Stöße der Primärelektronen (gelb) mit dem Valenz- oder Leitungsband des Zielmaterials erzeugt (durchgezogene Pfeile). Schnelle Sekundärelektronen (SE schnell) entstehen bei Ionisation innerer Schalelektronen des Materials (gepunktete Pfeile). Augerelektronen (Auger SE) können bei der Wiederauffüllung tieferer freier Zustände mit einer weiteren Ionisation des Materials emittiert werden.

mechanische Ungenauigkeit und Instabilitäten der Achsen werden für genauere Positionsfindung optisch über das Elektronenbild korrigiert. Diese Art der Korrektur kann in einer Nanofokusröhre jedoch zu einer Störung der Röntgenstrahlgeometrie führen (vgl. Abschnitt 3.6), weshalb für die vorgestellte Anlage auf Piezoachsen ausgewichen wird [17]. Piezoachsen werden über den indirekten piezoelektrischen Effekt gesteuert. Über diesen Effekt werden Asymmetrien in Ionenkristallen ausgenutzt, um durch Anlegung einer externen Spannung eine Verformung von an Schrittachsen gekoppelte Piezokristalle zu erzwingen [55]. Mikromanipulatoren dieser Bauweise erreichen damit eine höhere Präzision im Bereich von wenigen Nanometern auf Kosten der Operationsreichweite.

2.6 Bildverarbeitung

2.6.1 Auflösungsvermögen

Die endgültige Detailerkennbarkeit in einer Projektion hängt in der Regel von allen an der Bildgebung beteiligten Komponenten ab. Die Signalqualität resultiert also nicht allein aus der Größe des Quellflecks bzw. Fokuspunktes, sondern kann beispielsweise auch durch Linsenfehler und weitere Objekte im Strahlengang beein-

flusst werden. Die Abtastrate des Detektors und die Eigenschaften der Sensorfläche durch Effekte wie charge-sharing oder Nebenleuchten, wirken sich ebenfalls negativ auf die Signalqualität aus. Die 'Fehler' der einzelnen Komponenten pflanzen sich bis zur Bilderzeugung fort, man spricht dabei von einer Modulationstransferfunktion MTF . Betrachtet man das Bild B als eine Faltung der Objektfunktion $F(x, y)$ und der Impulsantworten $H_{1,2,3\dots}$ auf einen Dirac-Stoß der einzelnen abbildenden Elemente, kann nach [13] die MTF des gesamten Systems MTF_{System} im Frequenzraum als Multiplikation seiner Einzelkomponenten verstanden werden:

$$MTF_{System} = MTF_{Quelle} \cdot MTF_{Abtastrate} \cdot MTF_{Sensorschicht} \cdot MTF_{Paganin-Filter\dots}$$

Für ein nicht perfektes System ist dessen Antwort auf einen Dirac-Stoß ein entsprechend verschmierter Peak, der über eine PSF (point-spread-function) beschrieben werden kann. Über die Breite der PSF auf halber Höhe lässt sich die Bildauflösung ablesen [67]. Analog zu [29] wird auch in dieser Arbeit das Auflösungsvermögen einer Aufnahme über die Linienverwaschung einer Sprung-Antwort des Systems auf ein Kantensignal abgeschätzt. In Anlehnung an das Rayleigh-Kriterium [23], bei dem zwei getrennte Signale noch als solche erkennbar gelten sobald das Minimum zwischen beiden Signalpeaks maximal $\sim 80\%$ der Intensität der Hauptpeaks besitzt, wird dafür die Verbreiterung einer Kante zwischen 10% und 90% ihrer Intensität gemessen. Aus Mangel eines Testphantoms mit ideal scharfen Kanten erfolgt diese Abschätzung in den CT-Rekonstruktionen an Phasenübergängen zwischen verschiedenen Materialien. Die angegebenen Werte für das Auflösungsvermögen im Folgenden sind also Mindestwerte, da die verwendeten Kanten selbst eine eigene Unschärfe besitzen.

2.6.2 Bildrauschen

Photonenzählende Detektoren, wie sie in der Röntgenbildgebung häufig verwendet werden, besitzen ein intrinsisches Quantenrauschen, welches die Detektion eines Signals beeinträchtigt. Das Signal-Rausch-Verhältnis ('signal-to-noise-ratio' SNR) verknüpft den Mittelwert eines detektierten Signals τ mit seiner Standardabweichung σ zu

$$SNR = \frac{\tau}{\sigma}$$

und stellt damit einen wichtigen Wert zur Beurteilung der Bildqualität da. Für den Mittelwert poissonverteilter Röntgenphotonen $\langle n \rangle$ gilt

$$SNR = \sqrt{\langle n \rangle},$$

das SNR verbessert sich also mit steigender Photonenzahl. Gerade bei Mikrofokusröhren mit geringer Brennfleckintensität führt das zu einem schwierigen Balanceakt zwischen totaler Belichtungszeit, Brennfleckgröße (i. e. Auflösung) und SNR.

Zur Evaluierung wie gut der Kontrastunterschied zweier Signale I_1 und I_2 zwischen dem Quantenrauschen des Detektors noch auszumachen ist, dient das Kontrast-Rausch-Verhältnis ('contrast-to-noise-ratio' CNR) per Definition über [9]:

$$CNR = \frac{I_1 - I_2}{\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}$$

2.6.3 Rekonstruktionsmethoden

Eine Zusammensetzung von mehreren projizierten Bildern $B(\chi)$ des selben Objekts aus unterschiedlichen Blickrichtungen φ auf eine Objektfunktion $F(x, y)$ liegt der Radon-Transformation zu Grunde [13, 76]

$$S(\varphi, \chi) = \int_0^d \mu(\chi, \eta) d\eta$$

und wird als Sinogramm $S(\varphi, \chi)$ bezeichnet, wobei die Transformation der Strahlkoordinaten χ, η zu den Objektkoordinaten x, y gegeben ist durch

$$\begin{aligned} F(x, y) &= \mu(\chi(x, y), \eta(x, y)) \\ &= \mu(x \cos(\varphi) + y \sin(\varphi), -x \sin(\varphi) + y \cos(\varphi)), \end{aligned}$$

siehe Abbildung 2.9. Die zweidimensionale Radontransformation \mathcal{R}_2 der Objektfunktion führt zu

$$S(\varphi, \chi) = \mathcal{R}_2\{F(x, y)\}.$$

Mit dem Projektions-Schicht-Theorem (Fourier slice theorem) kann eine inverse Radontransformation durchgeführt werden. Hierfür wird zunächst eine eindimensionale Fouriertransformierte \hat{S} des Sinogramms erzeugt

$$S(\varphi, \chi) \xrightarrow{\mathcal{F}_1} \hat{S}(\varphi, q)$$

mit einer Koordinatentransformation dieser in kartesische Koordinaten $u = q \cos(\varphi)$, $v = q \sin(\varphi)$ lässt sich zeigen, dass

$$\hat{F}(u, v) = \hat{S}(\varphi, q).$$

Nach einer inversen zweidimensionalen Fouriertransformation von \hat{F} ergibt sich die Objektfunktion F

$$\hat{F}(u, v) \xrightarrow{\mathcal{F}_2^{-1}} F(x, y).$$

Daraus lässt sich als eine Standard-Rekonstruktionsmethode, die gefilterte Rückprojektion (filtered-back-projection), in 2 Dimensionen und analog in 3 Dimensionen herleiten [13]

$$F(x, y) = \int_0^\pi \int_\infty^\infty \hat{S}(\varphi, q) e^{2\pi i q x} |q| dq d\varphi$$

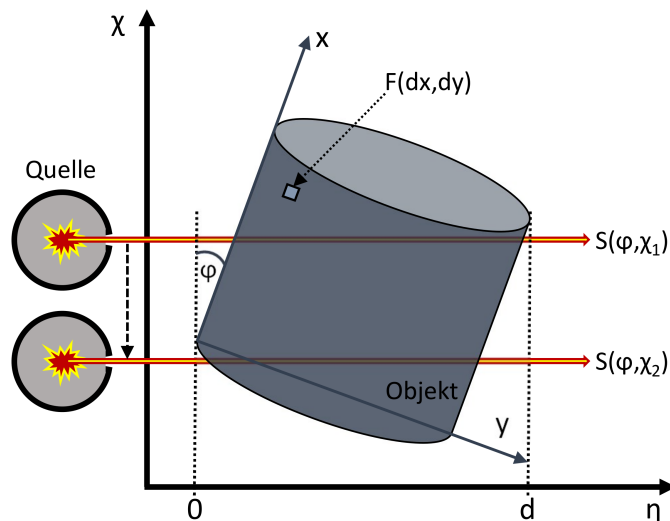


Abbildung 2.9: Für die Radontransformation wird von einem aus Sicht der Quelle rotierenden Objekt mit den Objektkoordinaten x, y ausgegangen. Die Quelle sendet ein lineares Strahlenbündel aus und wird entlang eines festen Quelle-Detektor-Achsensystems χ, η bewegt. Nach Transmission eines Strahlenbündels durch ein um den Winkel φ rotierendes Objekt, erfährt dieses eine Abschwächung abhängig vom Schwächungskoeffizienten $\mu(\chi, \eta)$ und der Dicke d , resultierend in einem Sinogramm $S(\varphi, \chi)$.

$$F(x, y, z) = \frac{1}{2} \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\phi=0}^{\pi} \int_{q=-\infty}^{\infty} \hat{S}(\varphi, \phi, q) e^{2\pi i q x} dq \sin(\phi) d\phi d\varphi.$$

Die gefilterte Rückprojektion für parallele Strahlen kann von hier aus durch einen zusätzlichen Integrationsweg über die Detektorfläche und adäquate Koordinatentransformationen (Transformation zu Polarkoordinaten) in eine Kegelstrahlsymmetrie umgeformt werden [34].

Die vorgestellte Anlage weist aufgrund seiner kleinen Quelle einen sehr geringen Photonenfluss auf. Daraus resultieren lange Belichtungszeiten bei geringem SNR. Es ist daher eine Minimierung der erforderlichen Anzahl an Projektionen für eine Rekonstruktion gewünscht um die gesamte Aufnahmezeit pro Datensatz zu reduzieren. Weiterhin müssen die in Abschnitt 3.6 diskutierten übrig gebliebenen Instabilitäten beim Rekonstruieren berücksichtigt werden. Unkorrigierte Varianzen in der Aufnahmegeometrie können signifikante Verzerrungen im rekonstruierten Volumen erzeugen. Es wurden daher spezielle Rekonstruktionsalgorithmen entwickelt und zusammengestellt, um diese Schwächen des Systems bestmöglich zu kompensieren. Rekonstruktion steht jedoch nicht im Fokus dieser Arbeit, es soll daher nur oberflächlich auf diese Methoden verwiesen werden, die zum größten Teil von Kilian Dremel und Jonas Dittman im Rahmen ihrer eigenen Arbeit entwickelt wurden [25, 28].

Neben der gewöhnlichen gefilterten Rückprojektion für Kegelstrahlgeometrien [34] werden auch iterative Rekonstruktionsmethoden genutzt, um Artefakte, die durch geringes SNR und CTs mit geringem Sichtfeld und Unterbestimmtheit erzeugt werden, zu reduzieren. Für die Daten der vorgestellten Anlage wurde eine über Total-Variation ('total-variation' TV) regularisierte gleichzeitige algebraische Rekonstruktionstechnik ('simultaneous-algebraic-reconstruction-technique' SART) benutzt, um deren Limitationen zu überwinden [3, 26, 82]. Zur Verbesserung des SNR, wurde über die Projektionen ein Paganin-Faltungs-Filter gelegt [71].

Um die durch Instabilitäten erzeugten Varianzen in der Strahlgeometrie zu korrigieren, wurde eine alternierende iterative Rekonstruktion und Bildkorrelation der rückprojizierten und gemessenen Daten durchgeführt [27, 44, 65]. Dies wird hier durch Minimierung der aufsummierten absoluten Werte der Differenz zwischen den gemessenen Werten $B(x, y)$ und einem vorwärts projizierten Bild $B^\sim(x + \Delta x, y + \Delta y)$ erreicht:

$$\underset{\Delta i, \Delta j}{\operatorname{argmin}} \sum_{i, j}^M | B(x, y) - B^\sim(x + \Delta x, y + \Delta y) | .$$

Die Abweichungen $\Delta x, \Delta y$ geben die direkten Geometrieverschiebungen an, die dann zur Korrektur der Geometriedaten für die iterative Rekonstruktion verwendet werden können. Diese Korrektur wird für jede einzelne Projektion durchgeführt und erlaubt so eine unabhängige Geometriekorrektur für jedes Bild des Datensatzes.

Kapitel 3

Design der Röntgenquelle für geometrische Vergrößerung

Aktuelle Entwicklungen von Nanofokusröhren im Projektionsbetrieb bedienen sich an verschiedenen Quellformen und Strahlgeometrien. Für Nanofokus-Röntgenröhren, die sich dem Prinzip der geometrischen Vergrößerung bedienen, soll hier zunächst auf zwei verschiedene Strahlgeometrien eingegangen werden, die sich bei Verwendung eines REMs als Quelle für einen fokussierten Strahl beschleunigter Elektronen anbieten. Nach diesen Geometrien richten sich die Charakteristika und Anwendungsschwerpunkte des Geräts.

Der erste Abschnitt dieses Kapitels beschreibt die grundlegenden Anforderungen an die Eigenschaften der Röntgenquelle. Darauf aufbauend wird ein flexibler Herstellungsprozess vorgestellt, mit dem sich ein adäquates Nadel-Reflexionstarget über elektrochemisches Ätzen formen lässt [35] und über den sich dessen genaue Form über die Prozessparameter den Anforderungen entsprechend anpassen lässt. Anschließend werden verschiedene Maßnahmen besprochen, die eine Langzeitstabilität des Röntgenbrennflecks garantieren können. Um Nadeltargets mit vergleichbaren Formen aus Materialien herstellen zu können, die sich mit dem vorgestellten Ätzprozess nur unzureichend formen lassen, wird zum Ende des Kapitels noch auf alternative Herstellungsprozesse verwiesen.

3.1 Geometrische Vergrößerung

Geometrische Vergrößerung beruht auf dem Prinzip eines vergrößerten Schattens eines Objekts auf der Detektorebene. Das Objekt steht hierbei in einem von der Quelle erzeugten kegelförmigen Strahlengang. Optische Elemente wie Spiegel und Linsen befinden sich nicht im Strahlengang, wodurch die Effektivität der einzelnen Photo-

nenenergien des Quellspektrums zur Bildgebung in erster Linie von der spektralen Empfindlichkeit des Detektorsensors abhängt.

Die Stärke der Vergrößerung M wird durch das Verhältnis zwischen dem Abstand von Quelle und Detektor $z_1 + z_2$ ('source-detector-distance' SDD) und dem Abstand von Quelle und Objekt z_1 ('source-object-distance' SOD) bestimmt, wobei z_2 der Abstand zwischen Objekt und Detektor ist ('object-detector-distance' ODD), siehe Abbildung 3.1a)

$$M = \frac{SDD}{SOD} = \frac{z_1 + z_2}{z_1}.$$

Nach aktuellem Stand der Technik erreichen laborgebundene Projektionssysteme keine Auflösungen, die in die Nähe der Beugungsgrenze der verwendeten Strahlung kommen, daher ist die Auflösung hier durch zwei andere Hauptbedingungen $R_{1,2}$ begrenzt.

Die Sensorflächen moderner Röntgendetektoren bestehen aus einer Pixelmatrix, die physikalische Pixelgröße P_P hängt über die Vergrößerung mit der effektiven Pixelgröße P_E zusammen:

$$P_E = \frac{P_P}{M}$$

Diese Größe entspricht der Abtastrate und zugleich der ersten Auflösungsgrenze R_1 . Kommt es zu einer signifikanten Signalausbreitung im Sensor, indem ein detektiertes Signal auf benachbarte Pixel Einfluss nimmt, muss die physikalische Pixelgröße durch die PSF des Detektors ersetzt werden. Letztere variiert mit den Eigenschaften des Detektors, als auch mit dem verwendeten Energiethreshold und der detektierten Photonenenergie [22].

Die zweite Auflösungsgrenze R_2 wird über s und s' bestimmt, da diese bei der Abbildung eines Objekts einen Halbschatten in der Detektorebene erzeugen

$$R_2 \cdot M = s' = s \cdot \frac{z_2}{z_1} = s \cdot (M - 1) = s \cdot \left(\frac{P_P}{P_E} - 1 \right).$$

Trägt man beide Grenzen gegen die effektive Pixelgröße auf, ergibt sich im Schnittpunkt beider Achsen eine optimale Abtastrate P_{Opt} bzw. optimale Vergrößerung M_{Opt}

$$P_{Opt} = \frac{P_P}{M_{Opt}}$$

$$M_{Opt} = \frac{P_P}{s} + 1.$$

Es zeigt sich, dass oberhalb der optimalen Vergrößerung die Größe der Quelle der limitierende Faktor für die Auflösung darstellt, wohingegen bei kleineren Vergrößerungen die physikalische Pixelgröße entscheidend ist, siehe Abbildung 3.1b). Für

3.2. Grundlegende Quelleigenschaften

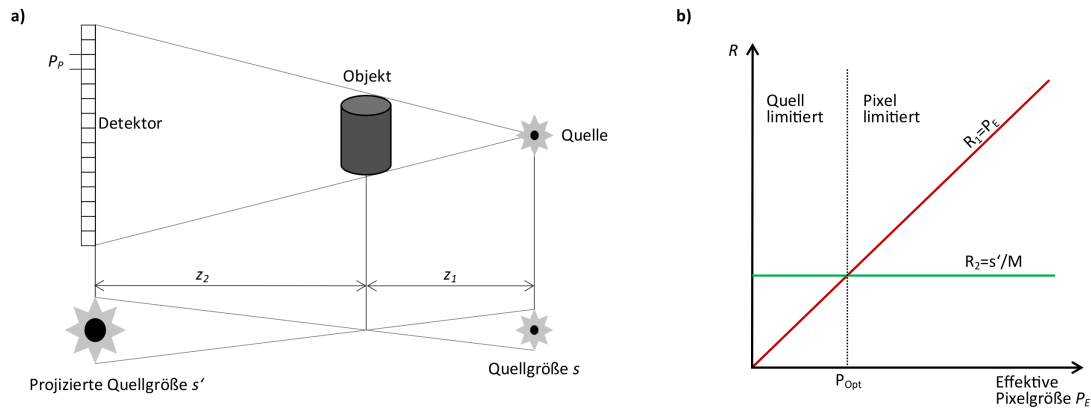


Abbildung 3.1: **a)** Das Prinzip der geometrischen Vergrößerung unter Verwendung eines Detektors mit einem Pixelmatrix Sensor. Sowohl die Projektion s' der Quelle s auf die Bildebene, als auch die physikalische Pixelgröße des Detektors P_P haben einen Einfluss auf die Bildauflösung. **b)** Graphische Auftragung der detektorseitigen Auflösungsgrenze R_1 und der quellseitigen Auflösungsgrenze R_2 gegen die effektive Pixelgröße P_E bzw. inverse Vergrößerung. Es ergibt sich abhängig von der Vergrößerung entweder eine durch die Quelle oder durch den Detektor bestimmte Auflösungsgrenze. Im Schnittpunkt beider Achsen lässt sich eine optimale Abtastrate P_{Opt} für das System ablesen [61, 87].

Vergrößerungen $> M_{Opt}$ tritt keine Verbesserung des räumlichen Auflösungsvermögens mehr auf, während die Ausnutzung des Strahlenbündels durch die Begrenzung der SDD ineffizienter wird. Die Eigenschaften der Röntgenquelle sind also entscheidend dafür, ein möglichst hohes Auflösungsvermögen zu erreichen. Im Folgenden soll daher genauer auf den Designprozess der Röntgenquelle eingegangen werden, die das Herzstück der Anlage darstellt.

3.2 Grundlegende Quelleigenschaften

Wie bei einer klassischen Röntgenröhre wird bei der vorgestellten Anlage ein Strahl beschleunigter Elektronen auf ein Stück Metall im festen Aggregatzustand (Target) gerichtet. Ein einfallendes Elektron gibt bei seiner Wechselwirkung mit dem Targetmaterial, wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, entweder seine gesamte Energie bei der Erzeugung von charakteristischer Röntgenstrahlung oder sukzessive in Form von Wärme mit der Erzeugung von Bremsstrahlung ab. Wie in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt, weist die in dieser Wechselwirkungszone erzeugte Röntgenstrahlung daher über ihr gesamtes Volumen kein homogenes Intensitätsprofil und Energiespektrum auf. Zudem kann eine Strahlaufhärtung bzw. Eigenfilterung des Energiespektrums stattfinden, da die Röntgenphotonen, die in den tieferen Schichten des Targets

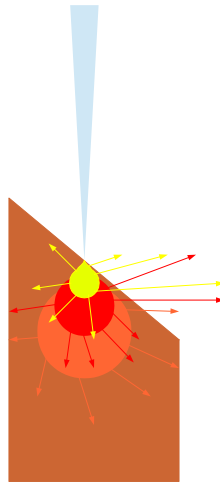


Abbildung 3.2: Querschnitt eines klassischen Röntgentargets. Ein Strahl aus beschleunigten Elektronen (blau) wird auf ein Targetmaterial (braun) fokussiert. Der erzeugte Röntgenbrennfleck weist nahe der Einschlagstelle der Elektronen eine höhere Intensität auf (gelb), als tiefer im Targetmaterial (rot und orange). Die Übergänge sind fließend. Es findet zudem eine Eigenfilterung der Röntgenstrahlung im Targetmaterial statt. Größe und Intensitätsprofil des beobachteten Röntgenbrennflecks hängt von der Form des Röntgentargets und dem Beobachtungswinkel ab.

erzeugt werden, eine größere Strecke durch das Targetmaterial zurücklegen müssen [36]. Größe, Form und Intensität des beobachteten Röntgenbrennflecks wird dabei durch die mittlere freie Weglänge der Elektronen im Targetmaterial definiert, die Ausdehnung der Fläche auf der die Elektronen auftreffen, als auch durch die Form des Targets und dem Winkel unter dem die Betrachtung des Brennflecks stattfindet.

Wird die Brennfleckgröße durch den Beobachtungswinkel reguliert, entsteht durch Abschattung und Eigenfilterung ein inhomogener und asymmetrischer, aber vergleichsweise intensiver Brennfleck auf Kosten der erreichbaren räumlichen Auflösung im rekonstruierten Volumen [79]. Die Größe der Wechselwirkungszone lässt sich jedoch auch durch seine physikalische Ausdehnung, beispielsweise über ein dünnes Schichttarget in Transmissionsgeometrie oder ein Nadeltarget in klassischer Reflexionsgeometrie, limitieren.

3.2.1 Transmissionstarget

Für ein Transmissionstarget wird eine dünne Schicht des Targetmaterials auf eine für Röntgenlicht durchlässige Oberfläche aufgebracht. Wie in Abbildung 3.3 dargestellt dient dieses Objekt zugleich als Strahlaustrittsfenster. Je dünner die Schicht des Targetmaterials, desto kleiner der resultierende Röntgenbrennfleck und je kleiner ist auch dessen Intensität. Diese Strahlgeometrie eignet sich vor Allem für Anlagen, die

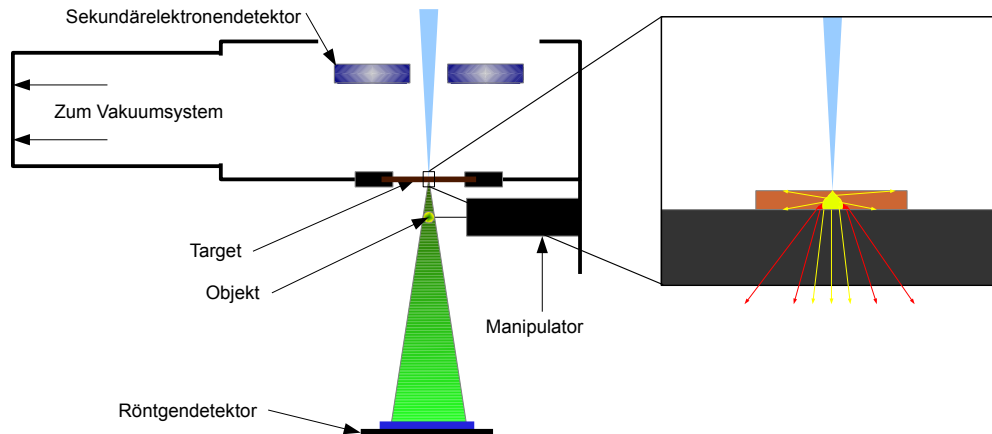


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Probenkammer einer Mikrofokusröhre mit Dünnschicht-Transmissionstarget. Der Elektronenstrahl eines REMs (blau) wird durch eine Elektronenoptik auf das Röntgentarget fokussiert, dort wird das Interaktionsvolumen der Elektronen über die Dicke des Targets limitiert. Das Target stellt eine dünne Schicht dar, die direkt auf ein Material aufgebracht wurde das gleichzeitig als Strahlaustrittsfenster dient, Objekt und Detektor befinden sich außerhalb der Vakuumkammer. Es ergibt sich eine Kegelstrahlgeometrie, mit der die Projektion des durchstrahlten Prüfkörpers auf der Detektorfläche vergrößert dargestellt wird. Die Positionierung des Objekts im Strahlengang erfolgt über einen Mikromanipulator. Für eine Laminographie kann der Detektor parallel zum Objekt bewegt werden.

lineare Laminographie als dreidimensionale Bildgebungsmethode verwenden [29, 30]. Um eine hohe Vergrößerung zu erreichen und gleichzeitig eine möglichst hohe Photonendichte auf dem Detektor zu erhalten, ist es erwünscht den SOD zu minimieren, da die Photonendichte am Detektor mit dem Quadrat des Abstands zwischen Detektor und Quelle abnimmt. Ist nun die Zielsetzung der Bau einer Anlage zur 3D Bildgebung mit rotierendem Objekt, erlegt dieses Design dem SOD jedoch gewisse Einschränkungen auf, zum einen durch die Dicke des Strahlaustrittsfensters, welches sich hier zwischen Objekt und Quelle befindet und zum anderen durch die Form des Objekts. Letzteres Problem ist leicht an einem Beispiel zu verstehen in dem ein Objekt an der Spitze eines Kegels untersucht werden soll. Kurz gesagt, die Form der gesamten Probe sowie deren Anbringung ist hier ein wichtiger zu berücksichtigender Faktor für die Probenauswahl sowie deren Präparation.

3.2.2 Reflexionstarget

Eine Möglichkeit, die im Abschnitt 3.2.1 angesprochenen Einschränkungen zu umgehen, ist auf eine Reflexionsgeometrie zurückzugreifen, mit einer Targetform die abseits der Region von Interesse mehr Spielraum für die volle Rotation eines grö-

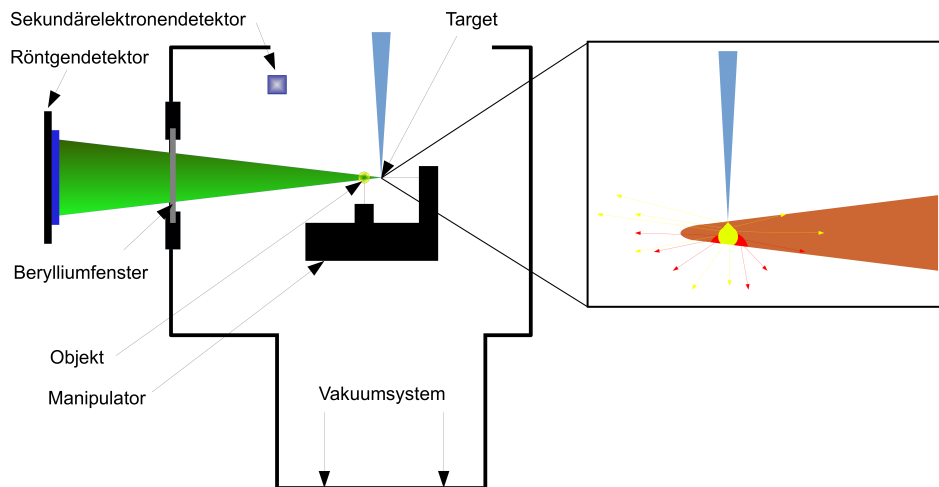


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Probenkammer einer Mikrofokusröhre mit Nadel-Reflexionstarget. Der Elektronenstrahl eines REMs (blau) wird über eine Elektronenoptik auf das Röntgentarget fokussiert, dort wird das Interaktionsvolumen der Elektronen über die physikalische Ausdehnung der Nadelspitze limitiert. Target und Objekt befinden sich innerhalb der Vakuumschicht und können über einen Mikromanipulator unabhängig voneinander bewegt werden. Zusammen mit dem Detektor ergibt sich eine Kegelstrahlgeometrie, über die die Projektion des durchstrahlten Prüfkörpers auf der Detektorfläche vergrößert dargestellt wird [86, 85].

ßeren Objektes lässt. Das Strahlaustrittsfenster befindet sich bei dieser Geometrie zwischen Objekt und Detektor, siehe Abbildung 3.4. Dadurch, dass sich das Objekt bei diesem Design während der Aufnahme in einer Vakuumschicht befindet und periodisch dem primären Elektronenstrahl ausgesetzt oder zumindest von gestreuten Elektronen getroffen wird, ergeben sich im Gegensatz zur Transmissionsgeometrie Zusatzbedingungen im Bereich Objektpräparation und -eigenschaften. Die Anforderungen an das Objekt gleichen in erster Linie dem Standard für gewöhnliche Rasterelektronenmikroskopie: Die Objekte müssen leitfähig sein oder durch einen Sputterprozess eine oberflächliche Leitfähigkeit erhalten und falls notwendig, durch einen schonenden Prozess entwässert werden. Dies beinhaltet auch eine Fixierung von biologischem Material. Letzteres ist zunächst nicht sonderlich relevant, da die hier vorgestellte Anlage ohnehin zu lange Belichtungszeiten aufweist, um in situ Untersuchungen zu erlauben.

Das typische Design für ein REM basiert auf einer vertikalen Elektronensäule oberhalb einer Probenkammer. Unterhalb der Probenkammer befindet sich das Vakuumsystem, sowie ein Großteil der Steuerelektronik. Diese Strahlgeometrie erlaubt im Gegensatz zur Transmissionsgeometrie ein handelsübliches REM als Basis für den Aufbau der Anlage zu verwenden, dabei kann der SE-Detektor, der zur Standardausstattung eines REMs gehört, in den Messprozess mit eingebunden werden.

3.3 Target Form

Wird die Anlage im Vergrößerungsbereich der quelllimitierten Auflösungsbergrenzung betrieben, muss sowohl die physikalische Ausdehnung des Brennflecks als auch seine Form berücksichtigt werden, um seinen Einfluss auf das Auflösungsvermögen in 3D beurteilen zu können. Besitzt ein Brennfleck beispielsweise eine geringe Ausdehnung in x-Richtung und eine große Ausdehnung in y-Richtung, können folglich auf der Bildebene in x-Richtung weitaus kleinere Strukturen aufgelöst werden als in y-Richtung. Eine Eigenschaft, die sich auf die Voxelauflösung im rekonstruierten 3D-Volumen fortpflanzt.

Abbildung 3.5 zeigt eine mit der Software Casino durchgeführte Simulation der Interaktionszone von Elektronen in Wolfram durch einen Strahl mit einer Energie von 30 keV und einer Dicke von 10 nm. Sie zeigt, dass Streueignisse und somit die Erzeugung von Röntgenstrahlen in dieser Konfiguration noch in einer Entfernung von bis zu 1 μm vom Eintrittspunkt der Elektronen aus möglich ist. Auch wenn oft von einer Interaktionsbirne die Rede ist, lässt sich die Interaktionszone an der Oberfläche nur begrenzt verkleinern, da Elektronen zu einem signifikanten Teil in einem größeren Abstand aus dem Material als BSE wieder herausgestreut werden und dabei oberflächennahe Röntgenphotonen erzeugen. Aus diesem Grund lässt sich ein Röntgenbrennfleck durch Anwinkeln der Oberfläche und subsequenter Brennfleckverkleinerung durch Abschattung nicht ohne weiteres unter einen konfigurationsabhängigen Minimalwert verkleinern.

Die Interaktionszone kann jedoch auch durch die schlichte physische Ausdehnung des Targets reduziert werden. Abbildung 3.6 zeigt Casino Simulationen der Interaktionszonen von Elektronen mit einer Wolframkugel von 100 nm Durchmesser bei einem Elektronenbrennfleckdurchmesser von 10 nm und 100 nm. Es wird deutlich, dass die Größe des einfallenden Elektronenbrennflecks hier einen direkten Einfluss auf die Form des resultierenden Röntgenbrennflecks hat, siehe Abbildung 3.7. Für einen Röntgenbrennfleck, der in Hinsicht auf seine Ausdehnung und seines Intensitätsprofils möglichst nahe an einer Rotationssymmetrie ist, bietet sich eine Kugel als Interaktionsvolumen an. Wird der Elektronenbrennfleck klein gegenüber dem Kugeldurchmesser, bildet sich ein fächerförmiger Röntgenbrennfleck, ist der Elektronenbrennfleck in seiner Ausdehnung nahe dem Kugeldurchmesser, weist der re-

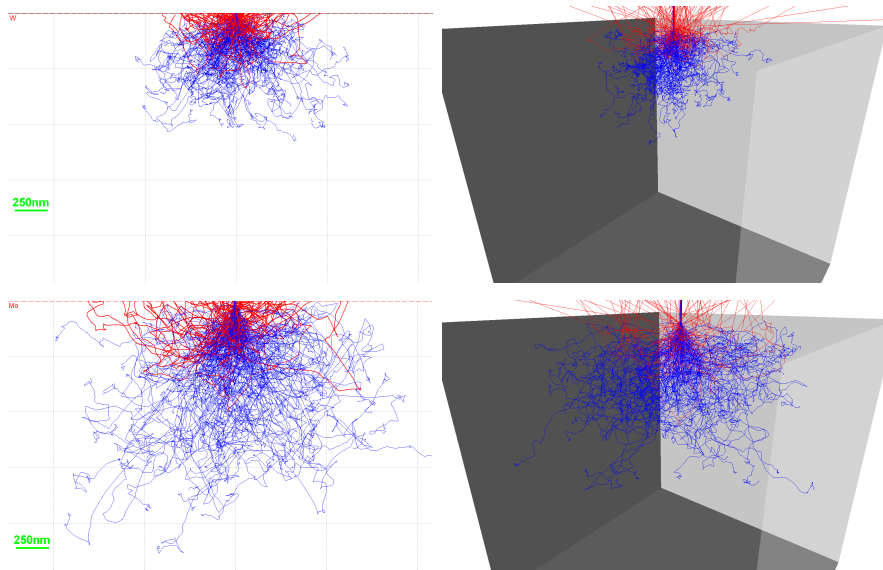


Abbildung 3.5: Casino Simulation von elastischen und inelastischen Elektronen-Streuereignissen in einem Wolfram Würfel (oben) und einem Molybdän Würfel (unten) mit jeweils $3,5 \mu\text{m}$ Kantenlänge. Es wurden $1 \cdot 10^5$ Elektronen für $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ bei einem Elektronenbrennfleckdurchmesser von 20 nm simuliert. Die blauen Linien zeigen Elektronen, die im Material verbleiben, die roten Linien zeigen den Pfad von Elektronen, die von dem Material aus zurückgestreut werden. Die Simulation verdeutlicht den Bereich in dem unter den gegebenen Parametern Röntgenstrahlung erzeugt werden kann.

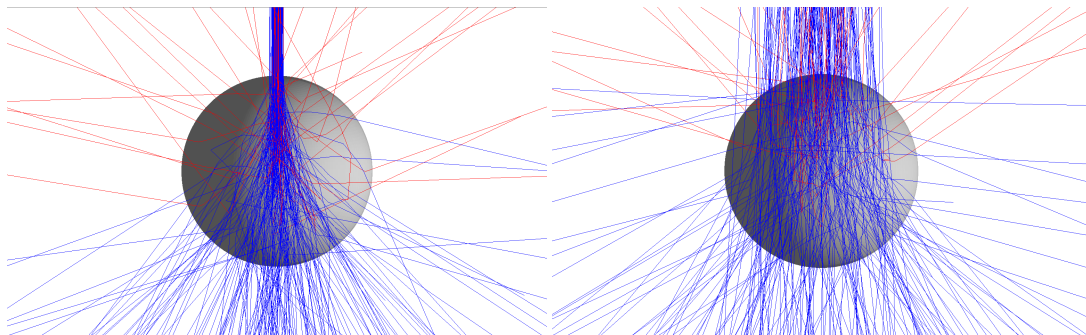


Abbildung 3.6: Casino Simulation der Pfade von Elektronen durch eine Wolframkugel mit 50 nm Radius. Es wurden $1 \cdot 10^5$ Elektronen für $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ bei einem Elektronenbrennfleckdurchmesser von 10 nm (links) und 100 nm (rechts) simuliert. Die roten Linien zeigen Elektronen, die ihre Flugrichtung nach allen Interaktionen um mehr als 180° ändern. Ein kleinerer Elektronenbrennfleck erzeugt ein deutlich kleineres, jedoch fächerförmiges Interaktionsvolumen. Dies sorgt im quellbegrenzten Auflösungsbereich für eine ungleichmäßige Ausleuchtung ohne in der Ebene senkrecht zum Elektronenstrahl signifikant an Auflösung zu gewinnen, da sich die Interaktionszone im unteren Teil des Targets noch stark ausweitet.

3.3. Target Form

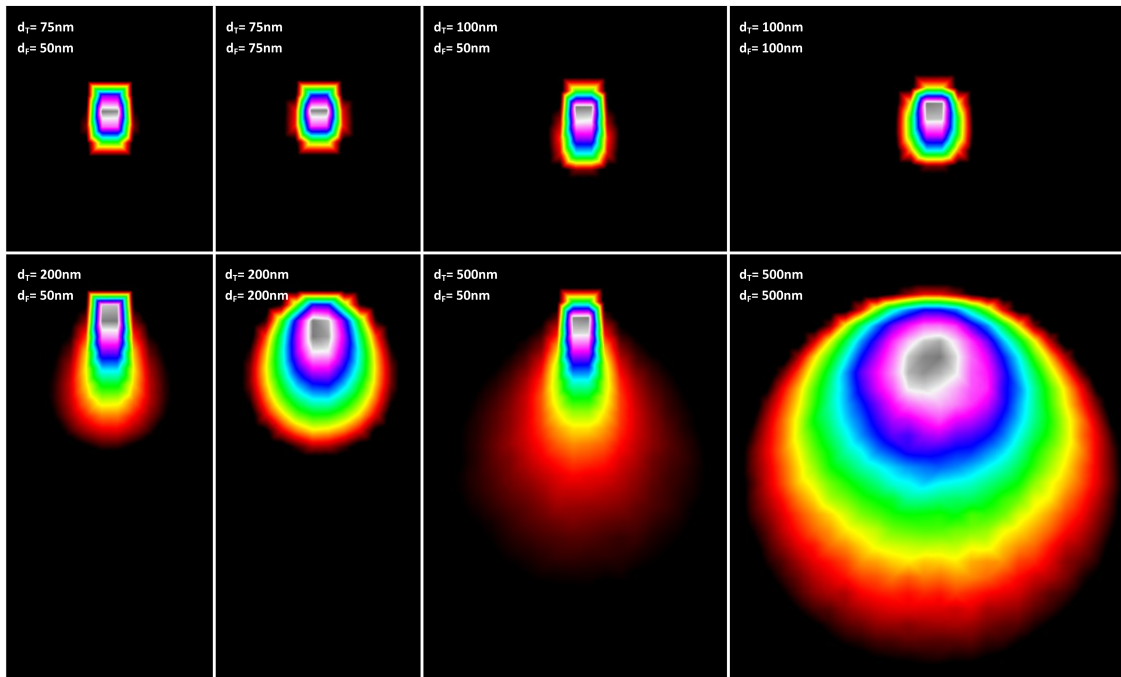


Abbildung 3.7: Mit Casino simulierte Röntgenbrennfleckformen in Wolframbügeln mit verschiedenen Durchmessern d_T . Es wurden $1 \cdot 10^5$ Elektronen für $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ bei verschiedenen Elektronenbrennfleckdurchmessern d_F simuliert. Die Farben symbolisieren die Röntgenintensität. Die Einzelbilder sind aufgrund der Übersichtlichkeit nicht einheitlich zueinander skaliert. Die Simulationen zeigen, dass sowohl d_T als auch d_F aufeinander abgestimmt werden müssen, um einen möglichst runden Röntgenbrennfleck zu erzeugen. Bei kleinen $d_T < 100 \text{ nm}$ gehen die Brennflecke in eine rechteckige Form über, während größere Interaktionszonen ein mehr und mehr asymmetrisches Intensitätsprofil aufweisen.

sultierende Röntgenbrennfleck bei zunehmendem Kugeldurchmesser $> 100 \text{ nm}$ ein mehr und mehr asymmetrisches Intensitätsprofil auf, während bei kleineren Kugeln der Brennfleck aufgrund der geringen Anzahl an Interaktionen im Randbereich der Kugel u.A. wegen der geringen Zahl an BSEs in eine rechteckige Form übergeht.

Eine Möglichkeit ein Interaktionsvolumen in Form einer Kugel aus Sicht des Detektors zu erreichen ist, eine Nadel wie in Abbildung 3.4 zu verwenden. Die Nadel verjüngt sich zunächst mit einem Winkel α und endet in einer Spitze mit dem Targetradius r_T . Die Größe des resultierenden Röntgenbrennflecks s kann so über die Zielposition des Elektronenstrahls auf der Nadel gewählt werden, siehe Abbildung 3.8. Zwischen Brennfleck und Detektor kann es dabei durch dazwischen liegendes Material zu Eigenfilterung kommen. Wird ein Brennfleck durch vorliegendes Targetmaterial abgeschirmt, erhält dieser eine asymmetrische Form sofern die Nadel nicht ideal senkrecht auf die Bildebene zeigt. Als Ziel des Elektronenstrahls genau

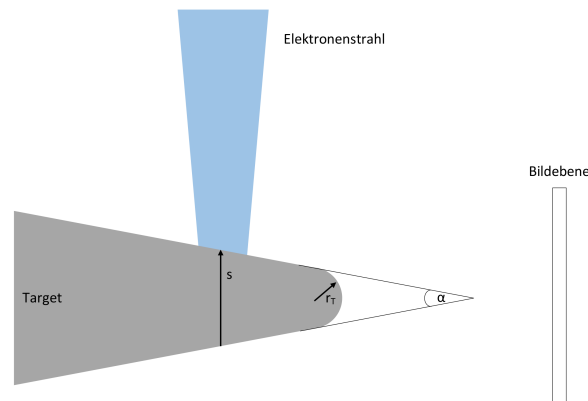


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Erzeugung eines Röntgenbrennflecks des Durchmessers s in einem Nadeltarget mit einem Spitzenradius r_T und einem Verjüngungswinkel α . Die Menge und Art der Abschattung des erzeugten Brennflecks wird von der Dicke des Targetmaterials zwischen Brennfleck und Bildebene beeinflusst. Dadurch dass die Nadel sich zur Spitze hin verjüngt, lässt sich ein Brennfleck mit variablem Durchmesser bis zu einem Minimum von $2r_T$ einstellen, allerdings auf Kosten unterschiedlich starker Abschattung.

die Spitze der Nadel zu wählen ist daher wünschenswert, erfordert aber, dass eine Nadel passend für die gewünschte Brennfleckgröße vorliegt. Im Folgenden wird ein Herstellungsprozess vorgestellt, mit dem sich Nadeln mit den passenden Parametern herstellen lassen.

3.4 Elektrochemischer Herstellungsprozess

Elektrochemisches Ätzen mit Wechselstrom stellt eine Möglichkeit dar, aus Metalldrähten Nadeln mit spezifischen geometrischen Parametern zu erzeugen. Die chemischen Grundlagen für diesen Prozess sollen dabei nur angerissen werden, eine detailliertere Beschreibung der Grundlagen kann in folgender Literatur nachgelesen werden [35, 84]. Der Prozess bedient sich der periodischen Oxidation und Reduktion von Metallen in Elektrolyten über ein galvanisches Element. Wie einfach sich ein Metall oxidieren oder reduzieren lässt, hängt von seiner Position in der elektrochemischen Spannungsreihe ab, siehe Tabelle 3.1. Je höher ein Metall in dieser Reihe steht, um so leichter lässt es sich oxidieren (unedle Metalle). Umgekehrt lassen sich Metalle im unteren Bereich der Reihe schwerer oxidieren, aber leichter reduzieren (edle Metalle). Für eine periodische Oxidation und Reduktion sind also Metalle in der Mitte der elektrochemischen Spannungsreihe besonders geeignet. Die Potentiale einiger Metalle können sich durch eine Veränderung des pH-Werts des Elektrolyts verschieben. Befinden sich zwei ungleiche Metallelektroden in einem Elektrolyt, wird

3.4. Elektrochemischer Herstellungsprozess

Tabelle 3.1: Spannungsreihe einiger Metalle in saurer Umgebung bei einer Temperatur von 25°C und einer Aktivität von $a_{\text{H}^+} = 1 \text{ mol/l}$ [43].

Red.	\rightleftharpoons	Ox.	$\varepsilon_0[\text{V}]$
Li	\rightleftharpoons	$\text{Li}^+ + \text{e}^-$	-3,04
Al	\rightleftharpoons	$\text{Al}^{3+} + 3\text{e}^-$	-1,68
Zr	\rightleftharpoons	$\text{Zr}^{4+} + 4\text{e}^-$	-1,55
Zn	\rightleftharpoons	$\text{Zn}^{2+} + 2\text{e}^-$	-0,76
Fe	\rightleftharpoons	$\text{Fe}^{2+} + 2\text{e}^-$	-0,44
Sn	\rightleftharpoons	$\text{Sn}^{2+} + 2\text{e}^-$	-0,14
Pb	\rightleftharpoons	$\text{Pb}^{2+} + 2\text{e}^-$	-0,13
$\text{W} + 9\text{H}_2\text{O}$	\rightleftharpoons	$\text{WO}_3 + 6\text{H}_3\text{O}^+ + 6\text{e}^-$	-0,09
$\text{Mo} + 9\text{H}_2\text{O}$	\rightleftharpoons	$\text{MoO}_3 + 6\text{H}_3\text{O}^+ + 6\text{e}^-$	0,00
H_2	\rightleftharpoons	$2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$	0,00
Cu	\rightleftharpoons	$\text{Cu}^{2+} + 2\text{e}^-$	0,34
Rh	\rightleftharpoons	$\text{Rh}^{3+} + 3\text{e}^-$	0,76
Ag	\rightleftharpoons	$\text{Ag}^+ + \text{e}^-$	0,80
Pd	\rightleftharpoons	$\text{Pd}^{2+} + 2\text{e}^-$	0,92
Pt	\rightleftharpoons	$\text{Pt}^{2+} + 2\text{e}^-$	1,19
Au	\rightleftharpoons	$\text{Au}^{3+} + 3\text{e}^-$	1,50

das unedlere Metall oxidiert während das edlere, falls möglich, reduziert wird siehe Abbildung 3.11, die entstandenen Oxidionen können dabei in Lösung gehen. Durch Anlegen einer Spannung zwischen den beiden Elektroden lässt sich der Prozess entweder weiter beschleunigen oder gar umkehren.

Befinden sich im Elektrolyt zwei Drahtelektroden aus unterschiedlichen Metallen oder wird eine entsprechende Gleichspannung angelegt, beginnt ein Draht sich entlang seiner Länge unter Gasentwicklung aufzulösen. Die Bewegung der Metalloxidionen im Elektrolyt wird hierbei hauptsächlich durch den Gradienten des elektrischen Feldes gesteuert. Der Draht verjüngt sich im Idealfall gleichmäßig, in der Realität jedoch treten mit der Zeit Unregelmäßigkeiten durch die Mikrostruktur des Metalls zutage, wodurch sich der Draht an den entsprechenden Stellen schneller verjüngt und schließlich an diesen auseinander bricht, siehe Abbildung 3.9.

Wird die Gleichspannungsquelle durch das Wechselstromsignal eines Funktionsgenerators ersetzt, lässt sich die Auflösungsrate in gewissen Sektionen des Drahtes beeinflussen, siehe Abbildung 3.11. Gehen Metalloxidionen während einer Hälfte der Wechselstromphase durch Oxidation in Lösung, besteht nun die Wahrscheinlichkeit, dass diese sich während der zweiten Hälfte der Wechselstromphase durch Reduktion wieder an den Metalldraht anlagern, vorausgesetzt das Milieu des Elektrolyten und die angelegte Spannung lässt beide Prozesse zu. Die Gasblasen, die während des

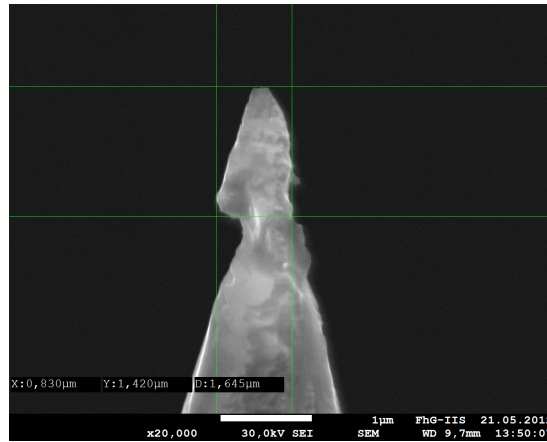


Abbildung 3.9: REM SE-Bild einer geätzten W Spitze bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$. Über den elektrochemischen Ätzprozess hergestellte Spitzen können Unregelmäßigkeiten aufweisen, da sich bestimmte Bereiche aufgrund der Mikrostruktur des Materials schneller bzw. langsamer auflösen.

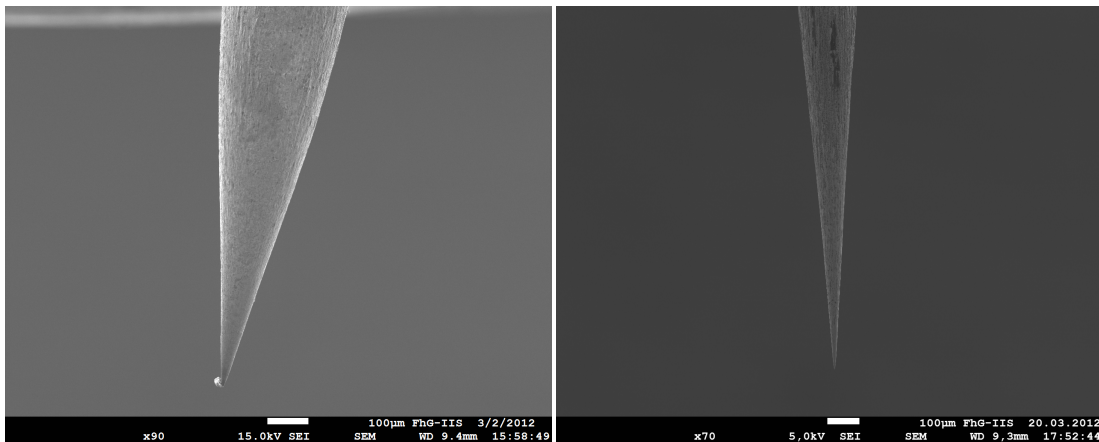
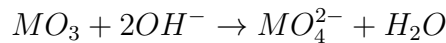


Abbildung 3.10: Der Winkel α , auf den die Spitze zuläuft, lässt sich über die Viskosität des Elektrolyts beeinflussen. Da bei geringerer Viskosität kleinere Blasen entstehen, ist so die Reaktion des Aufwärtsstroms auf das Wechselstromsignal prompter, Metalloxidionen können so pro Spannungsphase eine größere Strecke nach oben zurücklegen. **Links:** REM SE-Bild einer W-Spitze, die in Natronlauge geätzt wurde bei $U_{EHT} = 15 \text{ kV}$. **Rechts:** REM SE-Bild einer W-Spitze bei $U_{EHT} = 5 \text{ kV}$, die in Natronlauge unter Beigabe eines alkalischen Reinigungsmittels (*decon*[®]90) mit niedriger Viskosität geätzt wurde.

Tabelle 3.2: Spannungsreihe einiger Metalle in alkalischer Umgebung bei einer Temperatur von 25°C und einer Aktivität von $a_{\text{OH}^-} = 1 \text{ mol/l}$ [43].

Red.	\rightleftharpoons	Ox.	$\varepsilon_0[\text{V}]$
Li	\rightleftharpoons	$\text{Li}^+ + \text{e}^-$	-3,04
$\text{Zr} + 4\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{ZrO}_2 + 4\text{H}_2\text{O} + 4\text{e}^-$	-2,36
$\text{Al} + 4\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Al}(\text{OH})_4^- + 3\text{e}^-$	-2,31
$\text{Zn} + 4\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Zn}(\text{OH})_4^{2-} + 2\text{e}^-$	-1,29
$\text{W} + 8\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{WO}_4^{2-} + 4\text{H}_2\text{O} + 6\text{e}^-$	-1,07
$\text{Mo} + 8\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{MoO}_4^{2-} + 4\text{H}_2\text{O} + 6\text{e}^-$	-0,91
$\text{Sn} + 3\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Sn}(\text{OH})_3^- + 2\text{e}^-$	-0,91
$\text{Fe} + 2\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Fe}(\text{OH})_2 + 2\text{e}^-$	-0,88
$\text{Pb} + 3\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Pb}(\text{OH})_3^- + 2\text{e}^-$	-0,54
$\text{Cu} + 2\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Cu}(\text{OH})_2 + 2\text{e}^-$	-0,22
$\text{Pd} + 2\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Pd}(\text{OH})_2 + 2\text{e}^-$	-0,07
$\text{Pt} + 2\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Pt}(\text{OH})_2 + 2\text{e}^-$	0,15
$2\text{Ag} + 2\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{Ag}_2\text{O} + \text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^-$	0,34
$\text{Au} + 4\text{OH}^-$	\rightleftharpoons	$\text{H}_2\text{AuO}_3^- + \text{H}_2\text{O} + 3\text{e}^-$	0,70

Für beide Metalle finden die gleichen Anodenreaktionen jeweils für das oxidierte und reine Metall statt:



Diese Metalle bilden unter Raumluft rasch eine Oxidschicht, die das Material passiviert und eine weitere Oxidation verhindert. Unter Natronlauge wird diese Passivschicht jedoch aufgelöst, sodass die Elektrolyse wie oben beschrieben stattfinden kann, siehe Abbildung 3.12. Der Draht wird zu Beginn der Elektrolyse am unteren Ende zunächst abgerundet, im Laufe des Prozesses nimmt der Krümmungsradius der Nadelspitze immer weiter ab, siehe Abbildung 3.13. Der Spitzenradius kann so zunächst einfach über die Ätzzeit und den anfänglichen Drahtdurchmesser eingestellt werden. Ab einem gewissen Zeitpunkt wird der Draht an den durch die Metallmikrostruktur erzeugten Sollbruchstellen durch den Auftrieb der Gasblasen abgebrochen, bis das letzte Segment unterhalb des aus dem Elektrolyt ragenden Stumpfes abgeätzt wird, siehe Abbildung 3.12. Die Abbruchvorgänge können über einen kurzzeitigen Anstieg im Elektrolytstrom gemessen werden, über diese Strompeaks kann der Ätzprozess bei diesen Ereignissen bei Bedarf auch automatisch beendet werden. Für Molybdän und Wolfram lassen sich beispielsweise in 2-molarer Natronlauge unter Beimischung eines alkalischen Reinigungsmittel *decon*[®]90 zur Verringerung der

3.4. Elektrochemischer Herstellungsprozess

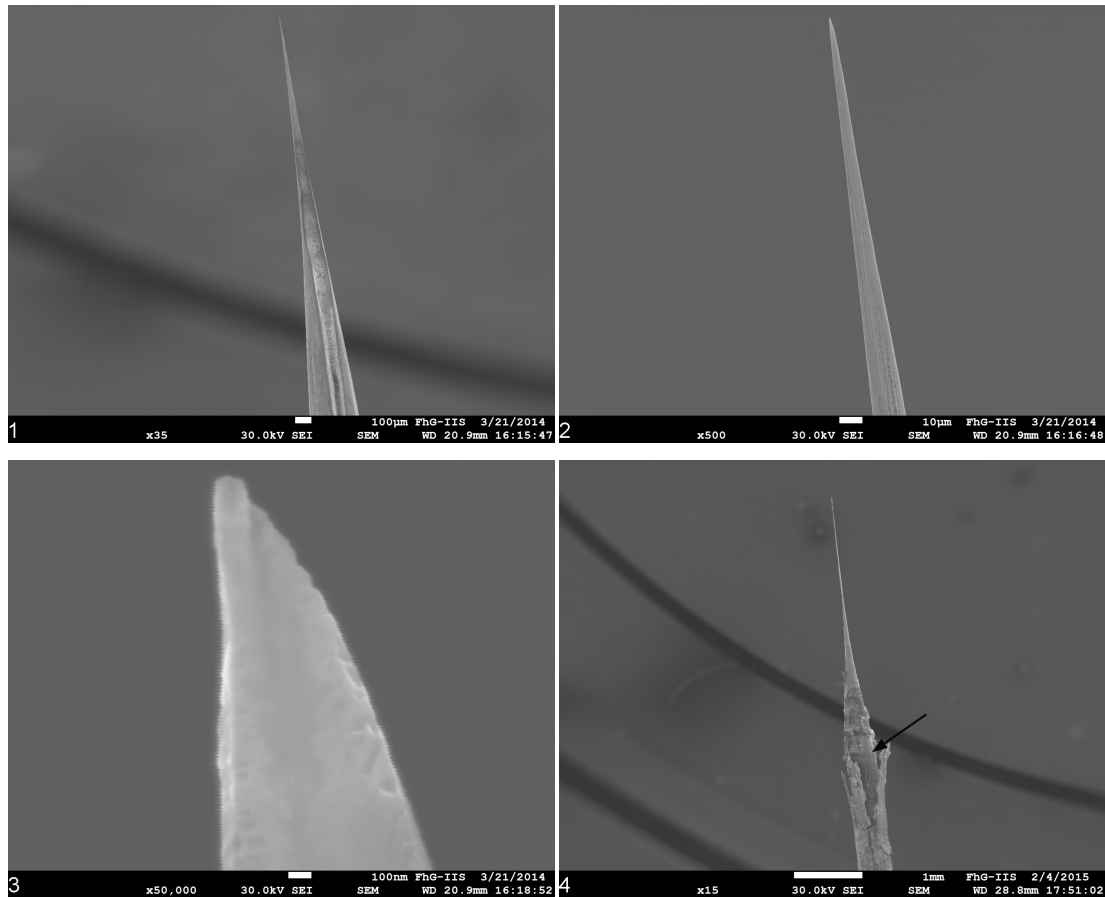


Abbildung 3.12: REM SE-Bilder einer geätzten W-Spitze bei $U_{EHT} = 30\text{ kV}$ und verschiedenen Vergrößerungen. **1:** Zeigt am unteren Bildrand den Bereich der zum Stumpf nahe der Oberfläche des Elektrolyts führt. **2:** Zeigt primär den Bereich des konstanteren Abtrags. **3:** Das Ende der Spitze zu sehen, das den durch Viskosität und Wechselstromfrequenz eingestellten α Winkel aufweist. **4:** Durch NaOH Dämpfe abgeplatzte Oxidschicht am unteren Ende einer anderen unter gleichen Parametern geätzten Spitze. Der Pfeil deutet den Bereich an bis wohin der Draht ins Elektrolyt versenkt wurde.

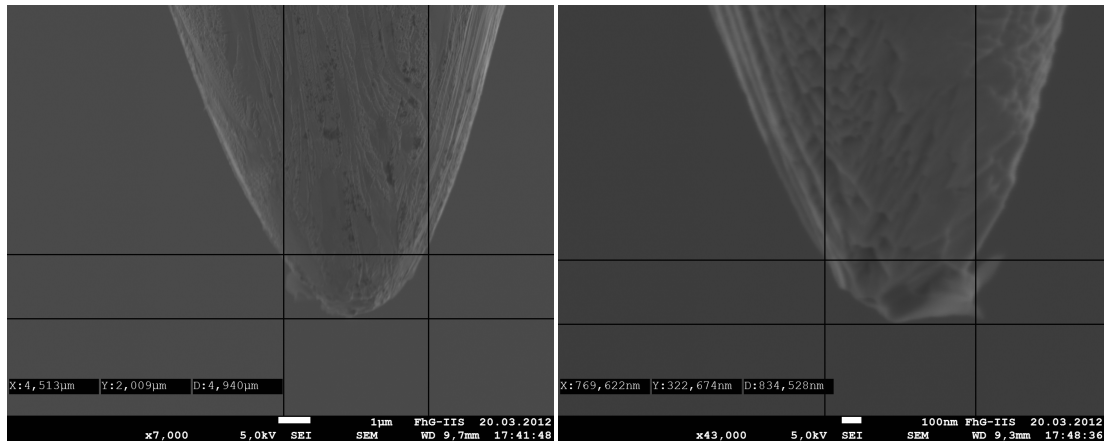


Abbildung 3.13: REM SE-Bilder bei $U_{EHT} = 5\text{ kV}$ die die Verkleinerung des Krümmungsradius r_T in Abhängigkeit von der Dauer des Ätzprozesses zeigen. **Links:** W-Spitze mit $r_T = 2,1\ \mu\text{m}$ geätzt von $0,5\text{ mm}$ ursprünglichem Drahtdurchmesser nach 25 min mit 10 Hz Wechselfspannung bei 20 V_{pp} in 2-molarer NaOH. **Rechts:** W-Spitze mit $r_T = 350\text{ nm}$, gleiche Ursprungsparameter nach 35 min Ätzen.

Viskosität und einer Sinusspannung von 20 V_{pp} bei 10 Hz zuverlässig Nadeln mit einem Krümmungsradius von $\sim 50\text{ nm}$ herstellen.

Der Krümmungsradius der Nadeln ist nach unten hin begrenzt, da die nach unten gerichtete Spitze durch die Blasenbewegung rundgeschliffen werden. Biegt man die Spitze nach etwa der Hälfte des Gesamtprozesses nach oben, befindet sich die Spitze nun im Bereich der gleichmäßigen Abtragung, weist jedoch nach oben, sodass diese nun weiter verjüngt wird ohne abgeschliffen zu werden. Durch das sogenannte inverse elektrochemische Ätzen lassen sich somit weitaus kleinere Spitzen mit einem kleineren α Winkel herstellen.

Mithilfe dieses Prozesses können nun Metallspitzen mit verschiedenen Parametern erzeugt werden, um so das optimale Target für die Anwendung zu finden.

3.5 Materialauswahl

Das verwendete Targetmaterial beeinflusst maßgeblich die Helligkeit der resultierenden Röntgenquelle. Da die Interaktionszone hier physisch begrenzt ist, ist nicht nur die Elektronenenergie und die Kernladungszahl des Targetmaterials entscheidend für die Helligkeit des Bremsspektrums, sondern auch die mittlere freie Weglänge der Elektronen im Material. Aus Abbildung 3.5 geht hervor, dass Materialien, die bei gleicher Elektronenenergie eine größere Interaktionszone kreieren, unvorteilhaft sind, falls ein möglichst intensiver Brennfleck gewünscht ist. Elektronen, die durch

das Target hindurch fliegen, erzeugen zudem sekundäre Brennflecke, deren Röntgenstreulicht die Messung beeinflussen können.

Das Vorhandensein starker charakteristischer Röntgenlinien im Energiebereich der Anlage ist nicht nur wegen einer höheren resultierenden Brennfleckintensität von Vorteil, sie beeinflussen auch bei festgesetzter Beschleunigungsspannung die mittlere Photonenenergie des Röntgenbrennflecks. Stehen in der Anlage mehrere Targets aus verschiedenen Materialien mit relevanten charakteristischen Linien zur Verfügung, lässt sich so das Photonenenergiespektrum an den Materialkontrast der Messobjekte anpassen.

Eine detaillierte Diskussion verschiedener Material-Parameter wurde in Hinblick auf diese Anlage bereits zuvor getätigt [84], auch hier ist das Energiespektrum durch die maximale $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ des REMs nach oben hin begrenzt. Die untere Grenze wird ebenfalls durch einen Röntgendetektorthreshold von 5 keV gesetzt. Wie auch in früherer Arbeit kristallisiert sich hier Wolfram als primäres Targetmaterial heraus. Es besitzt mit $\rho=19,25 \text{ g/cm}^3$ eine äußerst hohe Dichte sowie mit $Z=74$ eine der höchsten Ordnungszahlen der stabilen Metalle und vereint damit zwei der wichtigsten Eigenschaften, um kleine intensive Brennflecke zu erzeugen [90]. Durch seinen äußerst hohen Schmelzpunkt von 3695 K ist es möglich, das Target mit höheren Elektronenströmen anzuschließen als andere Metalle, wodurch intensivere Brennflecke möglich werden [78]. Zudem lässt sich das Material mithilfe des zuvor beschriebenen Ätzprozess in eine optimale Form für die Anwendung bringen.

Als alternatives Targetmaterial bietet sich Molybdän an, mit einem ebenfalls hohen Schmelzpunkt (2896 K) und den gleichen Bearbeitungsmöglichkeiten bietet es aufgrund seiner geringeren Dichte ($\rho=10,28 \text{ g/cm}^3$) und Ordnungszahl ($Z=42$) zwar einen weniger intensiven Brennfleck, es erzeugt jedoch durch charakteristische Linien bei Mo-K $_{\alpha 1}=17,48 \text{ keV}$, Mo-K $_{\alpha 2}=17,37 \text{ keV}$ und Mo-K $_{\beta 1}=19,61 \text{ keV}$ ein höher energetisches Photonenpektrum als das Wolfram mit charakteristischen Linien bei W-L $_{\alpha 1}=8,40 \text{ keV}$, W-L $_{\alpha 2}=8,34 \text{ keV}$, W-L $_{\beta 1}=9,67 \text{ keV}$ und W-L $_{\beta 2}=9,96 \text{ keV}$ [8].

Abschließend seien hier noch die dünnen Oxid-Passivierungsschichten erwähnt, die Wolfram und Molybdän rasch bei Kontakt mit Sauerstoff bilden. Diese Oxide sind als Targetmaterial unerwünscht, da sie eine geringere Metaldichte und somit einen kleineren Wirkungsgrad zur Erzeugung von Röntgenphotonenenergien im Operationsbereich der Anlage besitzen. Dünne Oxidschichten lassen sich nicht einfach vermeiden und können bei entsprechend kleinen Röntgentargets wie hier einen großen Einfluss auf die Effektivität der Quelle haben. Molybdän- und Wolframoxide besitzen jedoch signifikant kleinere Schmelz- und Siedepunkte als die reinen Metalle (WO $_3$ Schmelzpunkt: 1746 K, Siedepunkt: 1970 K; MoO $_3$ Schmelzpunkt: 1075 K, Siedepunkt: 1428 K), daher können leicht oxidierte Targets in der Vakuumkammer des REMs mit fokussiertem Elektronenbeschuss über Zeit von Oxid befreit wer-

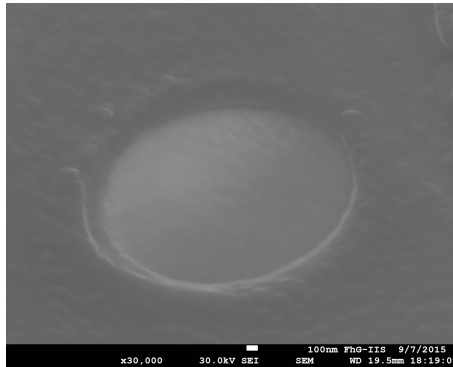


Abbildung 3.14: REM SE-Bild einer oxidierten Wolfram-Platte nach 1-wöchiger punktueller Bestrahlung mit einem fokussierten Elektronenstrahl (Fokussdurchmesser < 10 nm) in einem JEOL JSM-7100F TFE-REM bei 20 nA Elektronenstrom und $U_{EHT} = 30$ kV. Wolframoxid erscheint im SE-Bild dunkler als elementares Wolfram. Der Elektronenstrahl befand sich am Ende der Messung im Zentrum der kreisförmigen Struktur, es zeigt sich, dass das Wolframoxid großflächig um den primären Brennfleck herum abgetragen wurde, während das elementare Wolfram weitgehend unbeschädigt geblieben ist.

den. Frische Targets benötigen daher eine von der Dicke der Oxidschicht abhängige Einbrennzeit, vgl. Abbildung 3.14.

Die physische Integrität des Targets ließ sich im Rahmen dieser Arbeit nur über gewöhnliche SE- und BSE-Bildgebung zuverlässig auf seine Form überprüfen. Kontaminierungen durch andere Materialien können theoretisch durch Nachrüsten der Anlage mit einem EDX-Detektor nachgewiesen werden.

3.6 Stabilisierung und Ausrichtung der Strahlgeometrie

Die durch ihre geringe Größe intensitätsarme Röntgenquelle lässt lange Belichtungszeiten pro Projektion erwarten (> 30 min). Aus diesem Grund müssen verschiedene Ursachen für Brennfleckinstabilitäten berücksichtigt werden, welche Folgen diese auf die Strahlgeometrie und die Bildauflösung von Projektionen haben und wie sie adäquat korrigiert werden können. Ausgangspunkt hierfür ist ein luftgelagertes REM, welches durch Anschluss verschiedener Peripheriegeräte zusätzlichen äußeren und internen Störeinflüssen ausgesetzt ist. Als Material mit dem höchsten Wirkungsgrad wird im Folgenden zunächst von einem Wolframtarget ausgegangen. In Abschnitt 3.3 wurde gezeigt, dass für physisch begrenzte Wolframtargets in Reflexionsgeometrie größere Elektronenbrennflecke einen Röntgenbrennfleck mit höherer Punktsymmetrie erzeugen ohne signifikant an Auflösung einzubüßen. Ein weiterer Vorteil dieser

3.6. Stabilisierung und Ausrichtung der Strahlgeometrie

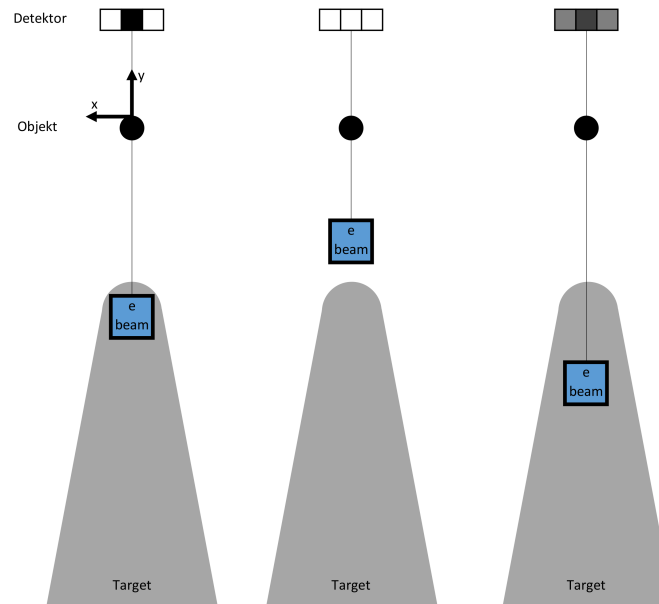


Abbildung 3.15: Das Elektronen-Rasterfenster (blau) bildet den Elektronenbrennfleck im Nadeltarget. Das Schema zeigt einige mögliche Positionen des Raster-Fensters aus der Sicht des Elektronenstrahls. Idealerweise wird der Röntgenbrennfleck an der Spitze der Nadel erzeugt, resultierend in einem möglichst scharfen Bild des Objekts auf der Detektorebene (links). Beginnt sich die Position des Elektronenstrahls auf der Nadel zu verändern, erlischt das Bild des Objekts auf dem Detektor (mitte) oder wird unschärfer, da ein größerer Röntgenbrennfleck erzeugt wird (rechts). Die Position des Rasterfensters kann über den SE-Detektor des REMs live verfolgt werden. Theoretisch können diese Veränderungen auch auf dem Röntgendetektor erkannt werden, jedoch mit einer viel geringeren Reaktionszeit, da das Elektronensignal um einige Größenordnungen intensiver ist, als das Röntgensignal.

Erkenntnis ist, dass das REM dafür nicht im Spot-Modus betrieben werden muss, in welchem der Elektronenbrennfleck auf eine fixe Position gesetzt wird. Das REM wird stattdessen im Raster-Modus betrieben, in dem der Elektronenbrennfleck ein festgesetztes Fenster abrastert. Das Fenster wird hierfür an die physikalische Größe des Röntgentargets angepasst, somit können live Veränderungen in Target- und Elektronenbrennfleckpositionen über den SE-Detektor des REMs erkannt und korrigiert werden, siehe Abbildung 3.15. Weicht die Position des Elektronenbrennflecks von der Idealposition am Ende des Nadeltargets ab, wird die Röntgenquelle entweder schwächer oder erlischt gänzlich, wenn das Raster-Fenster des REMs teilweise oder gar nicht auf der Spitze liegt. Alternativ wird die Röntgenquelle größer, sollte das Rasterfenster weiter hinten auf dem dickeren Teil der Nadel liegen.

3.6.1 Mechanische Stabilität

Unter mechanischer Instabilität versteht man entweder eine physische Drift der Targetposition oder eine periodische Schwingung durch externe Einflüsse. Ersteres entsteht durch unzureichende Befestigung des Targets, durch starke physische Spannungen im Aufbau oder mangelnde Haltekraft der Manipulatorachsen, all dies ist in der Regel vermeidbar, sollte aber klar als solches identifiziert werden. Ist eine physische Korrektur der Targetposition zwischen Projektionen nötig, muss das Target durch den Mikromanipulator an seine Ursprungsposition zurückgefahren werden, dies ist insbesondere bei Bewegungen in Elektronenstrahlrichtung zu ungenau, da die Probenhöhe im REM ohne zusätzliche Messmodule nur über die Fokusebene des Elektronenstrahls überprüft werden kann. Tritt der Positionsfehler zwischen zwei Projektionen auf, können die Projektionen vor der Rekonstruktion einfach wieder miteinander korreliert werden. Tritt eine physische Drift während weniger einzelner Projektionen auf, können diese Projektionen als Ausreißer verworfen werden ohne die Qualität des rekonstruierten 3D Datensatzes signifikant zu beeinträchtigen, vgl. Abschnitt 2.6.3 und 4.4.

Periodische Schwingungen können durch externe Peripheriegeräte an der Luftfederung vorbei auf das Target übertragen werden, siehe Abbildung 3.16. Der resultierende Röntgenbrennfleck wird dabei entsprechend unschärfer, indem seine Ränder durch die Schwingung verbreitert und schwächer werden, weil ein Teil der Elektronen im Rasterfenster periodisch das Ziel verfehlt, sich aber in die entgegengesetzte Richtung weiter im Material ausbreiten kann. Solche Schwingungen können sich durch Resonanz auf der Nadel verstärken, im Gegenzug kann diesen durch Dämpfung der Peripheriegeräte oder durch Veränderung der Nadelparameter entgegengewirkt werden.

Weitere periodische Schwingungen können bei Nadeln mit geringem α entstehen, wie beispielsweise diese die durch inverses elektrochemisches Ätzen erzeugt wurden. Bei diesen Nadeln entstehen vermehrt durch die Mikrostruktur verursachte Engstellen, die auf die Nadeln verbrachte Schwingungen an der Spitze verstärken. Selbst ohne Engstellen sind Nadeln mit geringem α anfälliger für periodische Schwingungssignale. Es gilt also den α Winkel über den Herstellungsprozess so groß wie möglich zu wählen und gleichzeitig eine ausreichend kleine Spitze zu erhalten, vgl. Abbildung 3.17.

3.6.2 Elektromagnetische Stabilität

Elektromagnetische Instabilitäten rühren von einer Ablenkung des Elektronenstrahls durch elektrische oder magnetische Felder her. Diese Instabilitäten können verschiedene Ursachen haben.

3.6. Stabilisierung und Ausrichtung der Strahlgeometrie

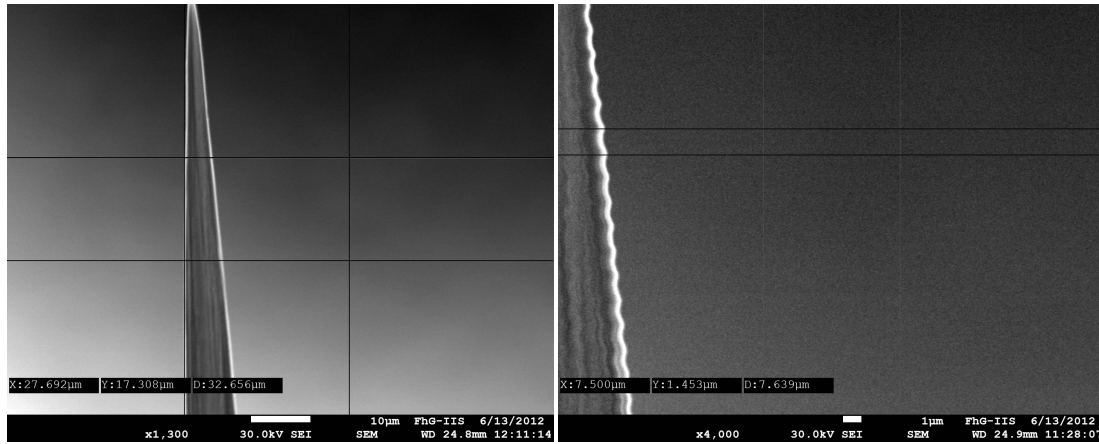


Abbildung 3.16: SEM SE-Bilder bei $U_{EHT} = 30\text{ kV}$ von einem periodischen 50 Hz Signal auf einem Nadeltarget mit hohem α . Die Schwingung auf der Nadel bei langsamer Scangeschwindigkeit (links) ist zunächst unauffällig und äußert sich nur über eine leichte Unschärfe der Struktur, erst eine schnellere Scangeschwindigkeit erlaubt eine Visualisierung der Schwingung (rechts). Der resultierende Röntgenbrennfleck wird ebenfalls unscharf indem sich seine Ränder verbreitern und Intensität verlieren.

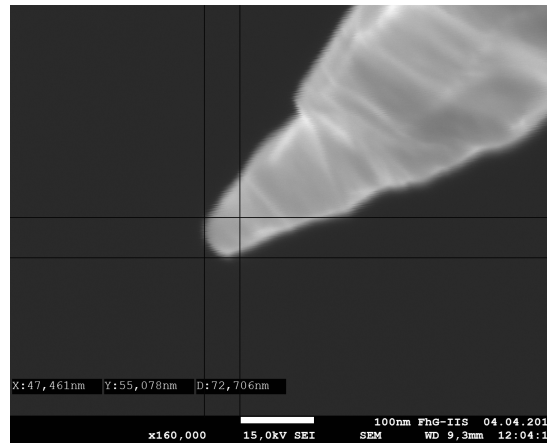


Abbildung 3.17: REM SE-Bild einer W-Nadel bei $U_{EHT} = 15\text{ kV}$ mit kleinem α durch inverses elektrochemisches Ätzen hergestellt. Diese Nadel weist einen kleineren Spitzenradius auf, vgl. Abbildung 3.12. Es lässt sich jedoch deutlich eine Schwingung am Rand der Struktur erkennen, die zu einer vergleichbaren Unschärfe im resultierenden Röntgenbrennfleck führt [86, 87].

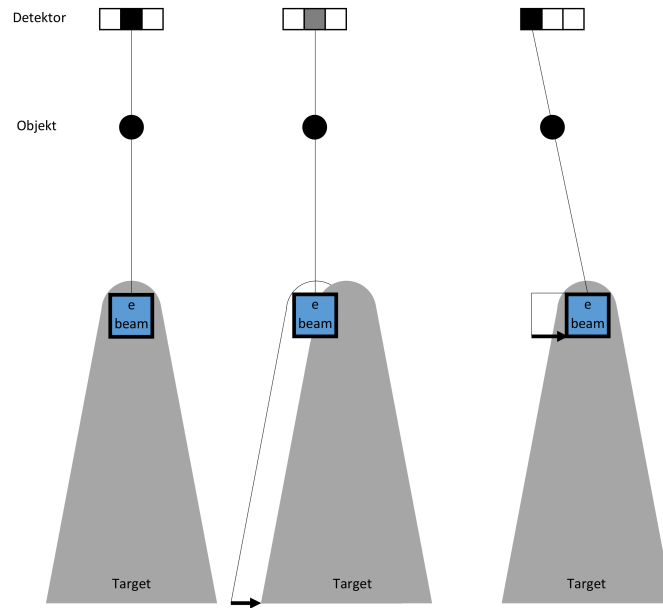


Abbildung 3.18: Schematische Darstellung einer physikalischen Positionsveränderung des Targets und den Konsequenzen für das Detektorsignal. Bewegt sich das Target aus dem Rasterfeld, wird das Detektorsignal schwächer, bleibt jedoch an seiner Pixelposition (mitte). Wird der Elektronenstrahl automatisch nachgeführt, resultiert dies in einer veränderten Objektposition auf dem Detektor (rechts). Für eine automatische Elektronenstrahlnachführung muss eine messbare mechanische und termische Drift während einer Projektion daher ausgeschlossen werden, sofern keine anderen Messgeräte die physische Targetposition überprüfen.

Als erstes sei hier die zeitliche Drift des Elektronenstrahls durch Veränderungen der Elektronenquelle und in den Elementen der Elektronenoptik erwähnt. Elektronenquellen nutzen sich mit der Zeit unweigerlich ab, dies führt zu stetigen Veränderungen in der Extraktorspannung, welche wiederum Variationen in Strahlqualität und -strom hervorrufen. Langlebige Elektronenquellen wie die eines Feldemitters eignen sich daher besser für Nanofokusröhren, da Quellveränderungen nicht im Laufe einer Messung ins Gewicht fallen. Langzeiteffekte machen sich vor Allem im Strahlstrom bemerkbar, sodass die Projektionsmesszeiten über die Lebenszeit der Elektronenquelle gegebenenfalls angepasst werden müssen.

Temperaturschwankungen in der Elektronenoptik führen zu veränderten Widerständen in den Linsenspulen und resultieren in einer Drift des Elektronenstrahls und seines Fokuspunktes. Durch eine aktive Kühlung der Elektronenlinsen lässt sich diese Drift einschränken, jedoch nicht vollständig unter einen für die Messung irrelevanten Wert bringen.

Aus diesem Grund wurde eine automatische Elektronenstrahlnachführung implementiert, die regelmäßig das Rasterfeld auf den Ursprungspunkt zurücksetzt, bevor die Drift zu relevanten Einbußen in Bildauflösung und Zählrate führt. Details hierzu können in [61] nachgelesen werden. Diese Art von Nachführung kann jedoch keine mechanische oder thermische Drift korrigieren. Im SE-Detektor erscheinen thermische, mechanische und elektromagnetische Drift stets als eine Veränderung der Targetposition, wobei nur die elektromagnetische Drift durch eine Repositionierung des Elektronenstrahls korrigiert werden darf, da die anderen Drift Arten die tatsächliche physikalische Position des Targets verändern und folglich durch Fahren der Piezoachsen korrigiert werden müssen, siehe Abbildung 3.18. Die Implementierung einer automatischen Elektronenstrahlnachführung erfordert also eine hinreichende mechanische und thermische Driftstabilität während einer Projektion.

Eine weitere Ursache für elektromagnetische Drift ist die elektrostatische Aufladung eines Objekts in der Messkammer. Kann beispielsweise der eingehende Elektronenstrom auf das Target nicht schnell genug abfließen, entsteht ein elektrostatisches Feld an der Spitze, welches die Zielposition der nachfolgenden Elektronen beeinflusst und in einer Drift des Elektronenbrennflecks resultiert. Da nach einer solchen Drift jedoch weniger Strom die Spitze trifft, geht eine auf diese Art erzeugte Drift mit der Zeit in Relaxation. Dadurch ist auch hier eine automatische Elektronenstrahlnachführung nicht hilfreich. Elektrostatische Aufladungen des Targets können durch Steigerung der Leitfähigkeit und ausreichende Erdung des Targets vermieden werden. Engstellen im Target sind daher die häufigsten Ursachen für solche Aufladungen.

Lädt sich beispielsweise das Messobjekt durch vom Target gestreute oder transferierte Elektronen auf, kann dies ebenfalls zu einer Drift mit Relaxation führen. Die Relaxation zeigt hier jedoch einen anderen Verlauf, da die Anzahl der am Target vorbei- oder hindurchtransferierten Elektronen mit der Drift des Rasterfensters zunächst steigt, bis der Elektronenstrahl das Target komplett verfehlt, wohingegen der Verlauf für durch das Target gestreute Elektronen umgekehrt ist. Transferierte Elektronen haben auf die Aufladung des Objekts natürlich nur einen Einfluss, wenn sich Teile des Objekts unter dem Target befinden. Diese Effekte können durch eine Verbesserung der Leitfähigkeit der Objekte beispielsweise durch Sputtern reduziert werden, doch bleiben auch hier oft lokale Ladungsfelder übrig, da das Sputtern ein gerichteter Prozess ist.

Das Ausmaß elektrostatischer Aufladungen muss natürlich nur auf einen automatisch korrigierbaren Bereich reduziert werden. Inwieweit diese Korrektur die totale Messzeit beeinflusst, ist in der bereits genannten Literatur nach zu lesen [61]. Relaxation erfordert jedoch ein gewisses Maß an Leitfähigkeit der aufgeladenen Objekte, ist dies nicht gegeben, erfolgt eine Entladung durch Überschläge. Der Elektronenstrahl springt dabei nach einer längeren Driftperiode schlagartig an seinen Ursprungsort

zurück. Die Genauigkeit der Driftkorrektur ist antiproportional zu ihrem Aktionsradius pro Korrekturperiode, daher können ausreichend starke Überschläge längere Messungen ungeplant beenden, da hier die Korrektur versagt und alle folgenden Projektionen schwarz bleiben. Längere Messungen sollten daher bei schwarzen Projektionen automatisch pausiert werden.

Die Piezokristalle der Manipulatorachsen erzeugen ebenfalls Felder, die den Pfad des Elektronenstrahls abhängig von ihrer Achsenposition verändern, siehe Abbildung 3.19. Zur Verifizierung, dass es sich um das elektrische Feld der Piezokristalle handelt, wurden die Elektronenbrennfleckpositionen relativ zum Target in Abhängigkeit von den Objektachsenpositionen untersucht. Die Messung der Elektronenbrennfleckbewegung unter Bewegung der x-Objektachse wurde bei maximalem y-Abstand zwischen Objekt und Target durchgeführt. Hierbei wurde ein linearer Zusammenhang zwischen beiden Bewegungen gefunden, da sich der Abstand zwischen Achse und Target im Gegensatz zur Richtung nur geringfügig ändert. Bei Bewegung der y-Objektachsen ist zu erkennen, dass die Elektronenstrahl-Abweichungen in y-Richtung pro Piezoinkrement im negativen Bereich der Achse zunimmt. Der negative Bereich der Piezo y-Achse entspricht dem Bereich der größten Annäherung zwischen Achse und Target, und ist gleichzeitig der Bereich, in dem der Einfluss der Bewegung des elektrischen Feldes des Piezokristalls auf den Elektronenstrahl am stärksten ist. Eine Drehung der Objektachse erzeugt eine kreisförmige Bewegung des Elektronenstrahls bei einer hohen Wiederholgenauigkeit. Aufgrund der natürlichen Brennfleckdrift durch die Instabilitäten der Optik ist hier aufgrund der Messdauer jedoch kein perfekt geschlossener Kreis zu erwarten. Falls Bewegungen des Elektronenbrennflecks durch die Piezofelder nur zwischen Projektionen beim Anfahren neuer Objektpositionen getriggert werden, lässt sich diese Bewegungen einfach über die automatische Brennfleckkorrektur nachführen.

3.6.3 Thermische Stabilität

Die physische Position des Targets sowie die geometrische Ausrichtung von Objekt und Target kann sich über Zeit durch thermische Effekte ändern. Piezokristalle wärmen sich nach dem Einschalten beim Fahren und Halten von Positionen auf und verzerren die Geometrie des Aufbaus. Es kann bis zu einige Stunden dauern, bis ein thermisches Equilibrium erreicht ist. Da es sich dabei um physische Positionsveränderungen handelt, ist es empfehlenswert den Manipulator durch dauerhafte Haltebefehle an die Piezokristalle auch außerhalb der Messzeiten im thermischen Equilibrium zu halten. Eine andere Möglichkeit mit physischer Targetdrift umzugehen, wäre die Targetposition beispielsweise über einen Laser direkt zu messen, dies erfordert jedoch, dass die Piezoachsen entsprechend genaue Korrekturschritte fahren können.

3.7. Alternative Herstellungsprozesse

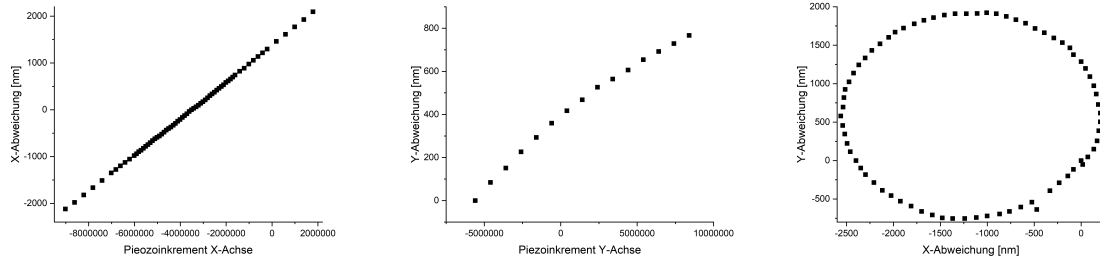


Abbildung 3.19: Veränderungen der Elektronenbrennfleckposition in Abhängigkeit von den Objekt-Achsen des Piezomanipulators. **Links:** Bewegung des Elektronenbrennflecks in x-Richtung durch Bewegung der Objektachse in x-Richtung. **Mitte:** Bewegung des Elektronenbrennflecks in y-Richtung bei Bewegung der Objektachse in y-Richtung. **Rechts:** Bewegung des Elektronenbrennflecks in x- und y-Richtung bei Rotation der Objektachse in 5° Schritten.

Zur Maximierung der Brennflechkelligkeit bietet sich eine Erhöhung des Elektronenstroms an. Die dabei entstehende Wärmelast auf das Target kann ab einem gewissen Grad nicht mehr vernachlässigt werden. Die Temperaturdifferenz zwischen zwei Enden eines Drahtes ΔT kann über

$$\Delta T = \frac{P \cdot L}{\beta \cdot A}$$

abgeschätzt werden [77]. Hierbei ist P die vom Draht absorbierte Leistung des Elektronenstrahls, L ist die Länge des Drahtes, $\beta [W/mK]$ die thermische Leitfähigkeit des Targetmaterials und A die Querschnittsfläche des Drahtes. Aus der Formel wird deutlich, dass kurze Nadeln mit hohem α Winkel vorteilhaft sind, da hiermit ein potentiell größerer Elektronenstrom auf das Target gebracht werden kann bevor es schmilzt [73].

3.7 Alternative Herstellungsprozesse

Es wurden in der Literatur schon viele Herstellungsprozesse für Targets von Nanofokusröhren diskutiert. Platin beispielsweise lässt sich durch seine verhältnismäßig weiche Konsistenz auseinanderziehen [72] um so dünne Spitzen zu erzeugen. FIB bietet sich generell als Methode zur Herstellung feiner Strukturen an, auch hiermit wurden erfolgreich Nanodrähte erzeugt und als Target verwendet [73]. Im Laufe dieses Kapitels wurde diskutiert, dass Nadeln durch ihre Form einige wichtige Vorteile als Nanofokus-Quelle bieten. Es wurde auch gezeigt, dass Wolfram einige bedeutende Materialparameter in sich vereint und sich so als Targetmaterial daher besonders gut eignet. Soll jedoch das Materialspektrum expandiert werden, um beispielsweise

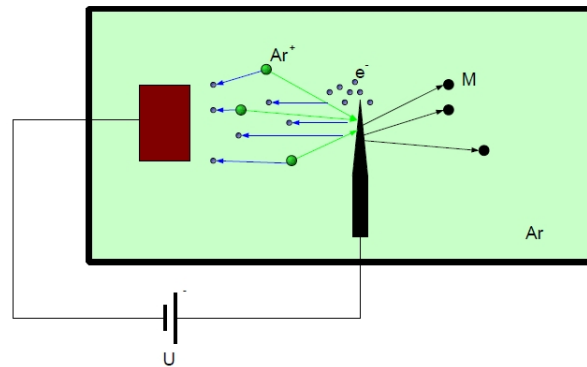


Abbildung 3.20: Self Sputtering einer bereits vorgeformten Metallspitze (schwarz) unter Ar-Atmosphäre. Wird eine ausreichend große Spannung zwischen Spitze und Elektrode (rot) angelegt um eine Feldemission von Elektronen an der Metallspitze zu induzieren, können diese die Ar-Atome ionisieren. Die Ar-Ionen werden in Richtung der Metallspitze beschleunigt, von wo sie dann Material abtragen.

während einer Messung zwischen Röntgenspektren mit verschiedenen charakteristischen Peaks wählen zu können, wird der elektrochemische Ätzprozess möglicherweise nicht reichen, falls edlere Metalle verarbeitet werden sollen.

Ein alternativer Herstellungsprozess für Nadeltargets in dem die elektrochemische Spannungsreihe keine Rolle mehr spielt ist das 'Self Sputtering'. Hierbei werden vorgeformte Metallspitzen über ein elektrisches Feld mit Argonionen beschossen, siehe Abbildung 3.20 [32, 49]. Der Krümmungsradius der Spitze r_T kann direkt über den gemessenen Feldemissionsstrom I , die angelegte Spannung U und einer Konstante a in Proportion gesetzt werden:

$$I \propto \left(\frac{U^2}{r_T}\right)^2 \exp\left(-a\frac{r_T}{U}\right) \quad (3.1)$$

Über diese Methode lassen sich gezielt Nadeln mit definierten Krümmungsradien erzeugen. Zum Spitzenwinkel α und inwieweit sich jener über diese Methode manipulieren lässt, wurden im Rahmen dieser Arbeit allerdings keine weiteren Untersuchungen angestellt.

Kapitel 4

REM basierte NanoCT mittels geometrischer Vergrößerung

In diesem Kapitel wird auf Basis der zuvor angebrachten Überlegungen die Realisierung einer REM basierten nanoCT-Anlage mit geometrischer Vergrößerung beschrieben. Es folgen erste Abschätzungen der Bildqualität im Projektionsbetrieb und im rekonstruierten Volumen. Die Ergebnisse werden dann über eine Vergleichsmessung mit einem auf Fresneloptik basierenden Röntgenmikroskop evaluiert. Abschließend erfolgen Vorschläge zur Weiterentwicklung und Hinweise auf noch zu charakterisierende Parameter des gebauten Prototypen.

4.1 Grundlegender Aufbau

Der Aufbau der in dieser Arbeit vorgestellten nanoCT-Anlage (XRMII nano-CT) liegt einem JEOL JSM-7100F TFE-REM zu Grunde. Die Original Manipulatorachsen wurden durch einen Piezomikromanipulator von Klocke Nanotechnik ausgetauscht um präzise Positionierungen des Targets und des Objekts in der Messkammer zu erlauben. Das Target kann dabei in 3 Raumrichtungen bewegt werden, während das Objekt in horizontaler Richtung bewegt und rotiert werden kann, siehe Abbildung 4.1. Als Strahlaustrittsfenster wurde in einen Flansch eine 250 μm dicke Scheibe aus Beryllium mit einem Durchmesser von 55 mm eingebaut, siehe Abbildung 4.2. Als Detektoren werden mit dem Timepix [4] und dem Pixirad-2 [10] zwei direkt konvertierende Halbleiterdetektoren eingesetzt. Da die Detektion der Röntgenstrahlung außerhalb der Probenkammer des REMs stattfindet, wird der Detektor und das Strahlaustrittsfenster über einen Strahlenschutzkasten aus 0,5 mm dickem Stahl von der Umgebung abgeschirmt.

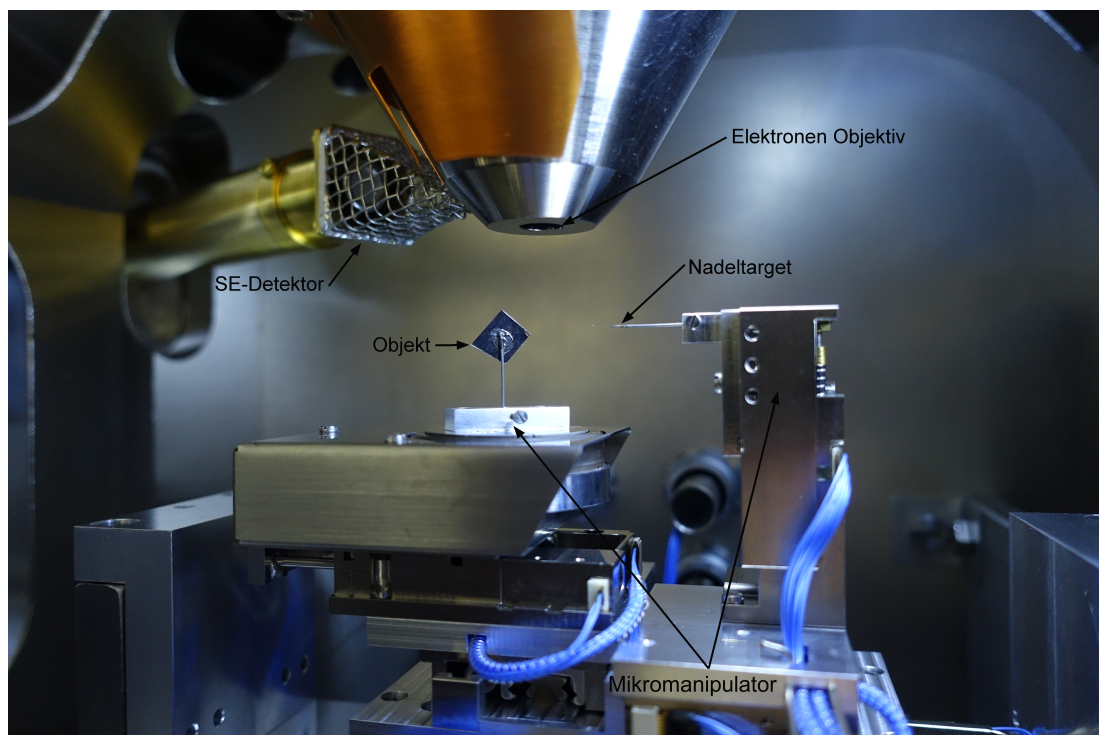


Abbildung 4.1: Target, Objekt und Piezo-Mikromanipulator in der REM Hauptkammer. Nadeltarget und Objekt haben hier zur Veranschaulichung einen größeren Abstand zueinander als bei einer laufenden Messung.

4.1. Grundlegender Aufbau

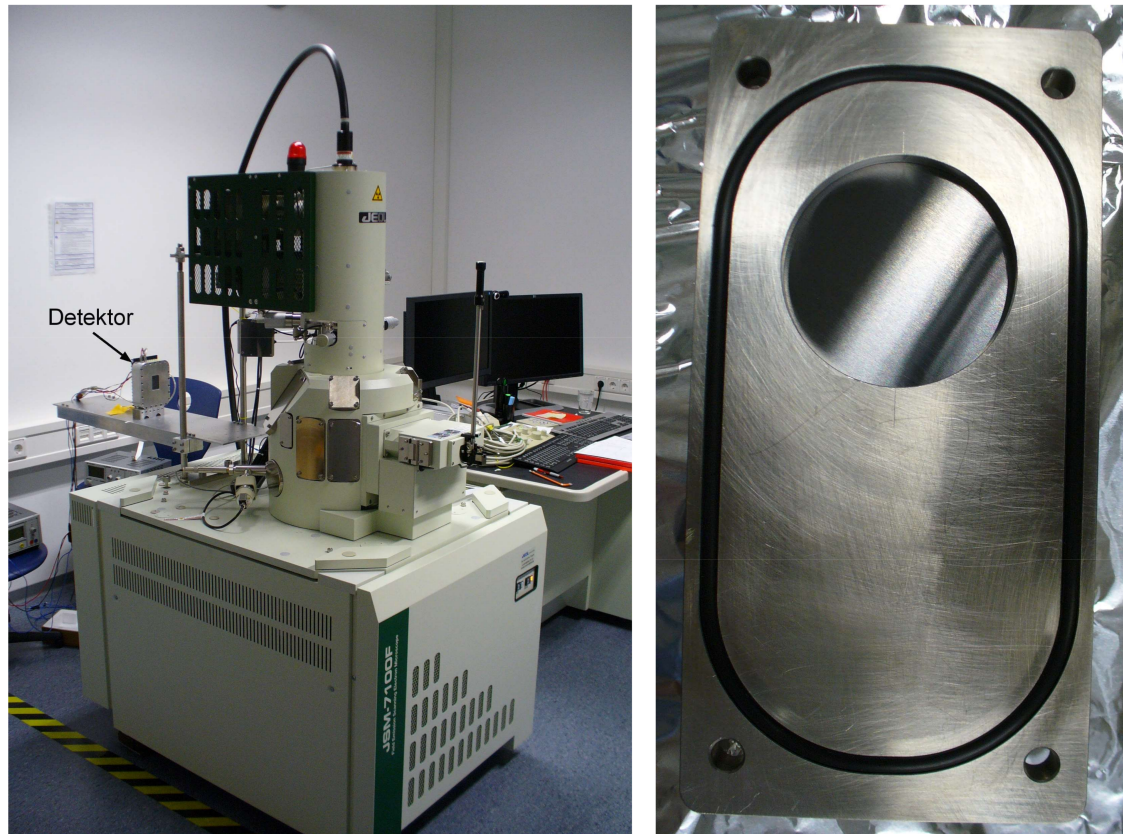


Abbildung 4.2: JEOL JSM-7100F TFE-REM nach Umbau zum XRMII nano-CT.
Links: Außenansicht ohne Strahlenschutzkasten mit einem Timepix Röntgendetektor.
Rechts: Strahlaustrittsfenster aus Beryllium (dunkelgraue Fläche) im Vakuumflansch.

Tabelle 4.1: Technische Daten des JEOL JSM-7100F TFE-REM [50].

SE-Bildaufflösung	1,2 nm (30 kV), 3,0 nm (1 kV)
Vergrößerung	x10 bis x1.000.000
Bild	SE und BSE
Maximaler Strahlstrom	314 nA
Elektronenquelle	Thermischer in-lens Feldemitter
Objektivlinsen	Konisch
Proben Stage	5 Achen Motor, Tilt: -5° bis 70°, Rotation 360° endlos x-y: 70 mm bis 50 mm, z: 3 mm bis 41 mm
Optionen	EDX, WDX, EBSD, CL, Low vacuum mode TTL system, Elektronenstrahlithografie

4.1.1 Strahlcharakteristika

Die technischen Daten des in dieser Arbeit verwendeten REMs sind in Tabelle 4.1 kurz zusammengefasst. Es wurden für diese Arbeit keine der optionalen Zusatzgeräte genutzt. Die Beschleunigung der Elektronen erfolge für Röntgenbildgebung stets mit $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$, während der Strahlstrom nach Möglichkeit auf seinem Maximum gehalten wurde. Es stellte sich im Laufe der ersten 5 Entwicklungsjahre heraus, dass der initiale Strahlstrom von bis zu 314 nA stetig abnahm. Grund hierfür war eine durch Strahlenschutzkasten und Detektorplatte verursachte sukzessive physische Verbiegung der Elektronensäule. Die konstante Abnahme des Elektronenstroms wurde zwar beobachtet, aber ihre Ursache bis zum Abschluss der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen nicht verstanden. Die Messung des Strahlstroms erfolgte über den dafür vorgesehen Port auf mittlerer Höhe der Elektronensäule unterhalb der Elektronenaperturen. Während die zu erwartende konstante Abnahme des Strahlstroms durch einen alternden Emitter darüber zuverlässig hätte verfolgt werden können, führt eine Verbiegung der Messsäule zu einem systematischen Messfehler abhängig vom Stromabnahmepunkt in der Elektronensäule. Der Elektronenstrom variiert daher in Abhängigkeit vom Zeitpunkt der jeweiligen Aufnahme zwischen 300 nA und 10 nA. Aufgrund unbrauchbarer Messwerte werden Strahlströme hier nur über einen Vergleich der mittleren Zählraten auf dem Röntgendetektor mit einem Erwartungswert abgeschätzt.

Die unter Verwendung eines W- und Mo-Targets erzeugten Röntgenspektren sind in Abbildung 4.3 für durch eine Pb-Blende kollimierte und nicht kollimierte Strahlengänge angegeben. Die Messung erfolgte jeweils direkt an der Außenseite des Be-Fensters. Diese Spektren wurden bereits in [84] detaillierter diskutiert. Es zeigt sich, dass durch transmittierte und gestreute Elektronen mehrere sekundäre Röntgenbrennflecke am Polschuh der Elektronensäule (Cu-Linien) und an dem unter dem Target liegenden Mikromanipulator (Ni & Zn) erzeugt werden. Ferner kann

4.1. Grundlegender Aufbau

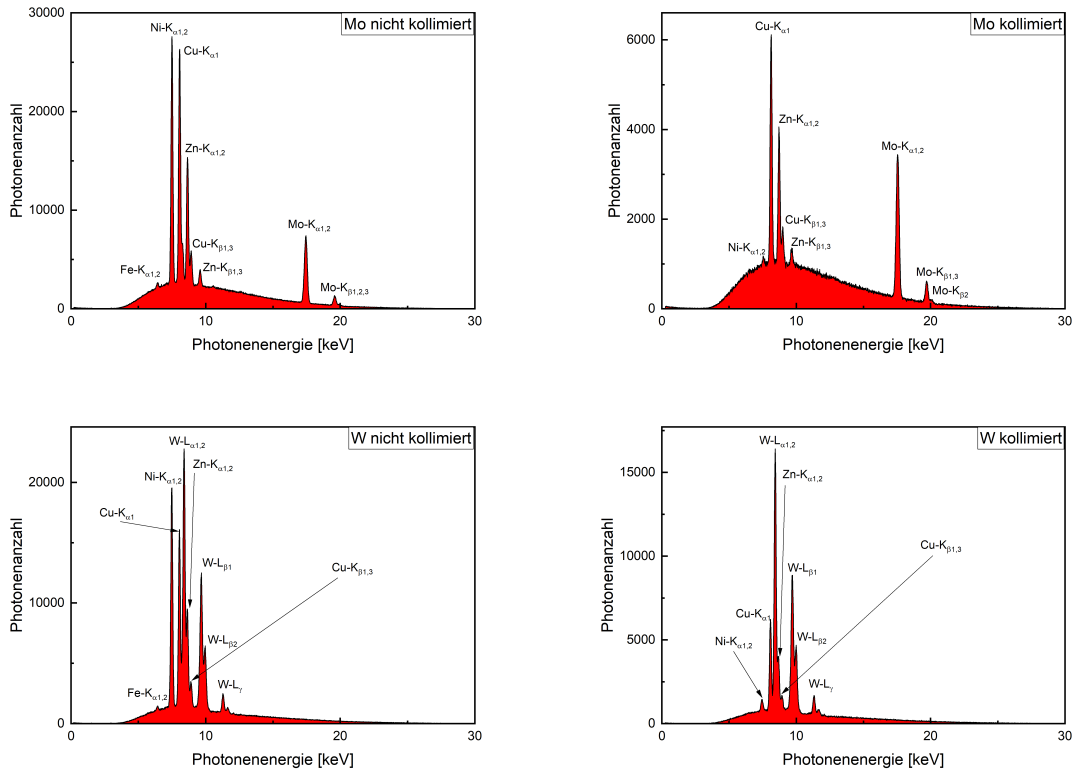


Abbildung 4.3: Kollimierte und nicht kollimierte Röntgenspektren für das XRMII unter Verwendung eines W- und eines Mo-Targets, direkt hinter dem Strahlaustrittsfenster gemessen.

diffuses Streulicht von der Wandung der REM Hauptkammer (Fe) detektiert werden. Diese sekundären Quellen werfen abhängig von ihrer Ausdehnung und Position in der Kammer weitere Projektionen auf die Sensorfläche des Detektors oder geben eine diffuse Grundhelligkeit. Diffuse und schwache Signale lassen sich über einen Hellbildabgleich auf dem Detektor herausrechnen, stärkere Brennflecke können über bauliche Veränderungen in der Probenkammer abgeschirmt werden.

Der Hauptstrahl der Röntgenquelle wird nach dem Gang durch das Messobjekt zusätzlich durch das Be-Fenster und die Umgebungsluft zwischen Detektor und Be-Fenster, wie in Abbildung 4.4 gezeigt, abgeschwächt [14, 15]. Die Schwächung durch die Umgebungsluft ist hier für einen Normaldruck von 1013,25 hPa, einer Atmosphärenzusammensetzung von 79% N, 20% O und 1% Ar und bei einem Detektor-Fenster-Abstand ('detector-window-distance' DWD) von 13 cm angegeben. Dieser Abstand wurde für einen Großteil der hier diskutierten Messungen verwendet. In dieser Konfiguration geht ein signifikanter Anteil der niederenergetischen Photonen

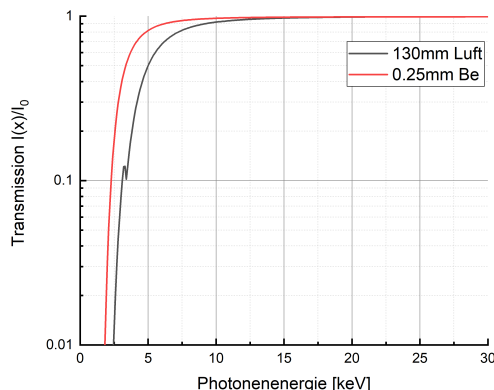


Abbildung 4.4: Energie abhängige Schwächung des Nutzstrahls durch das Be-Fenster und der Umgebungsluft (1013,25 hPa Normaldruck, 79% N, 20% O, 1% Ar). Als DWD wurde hier 13 cm gewählt, ein Abstand der für die meisten Messungen die in dieser Arbeit diskutiert werden verwendet wurde [14, 15].

des Spektrums verloren. Eine Verwendung von alternativen Targetmaterialien mit charakteristischen Linien <7 keV, die nebenbei eine Verringerung der U_{EHT} zur effektiveren Anregung erfordern - resultierend in einer Verschiebung des Bremsspektrums zu niedrigeren Energien - forciert eine Verringerung der DWD oder gegebenenfalls eine Verlagerung des Detektors ins Vakuum.

4.1.2 Detektoren

Sowohl der Pixirad-2 als auch der Timepix besitzen als direkt konvertierende Photodetektoren ähnliche wie in Abschnitt 2.3 beschriebene Aufbauten. Die wichtigsten Kenngrößen beider Geräte sind in Tabelle 4.2 angegeben. Die Sensorflächen beider Detektoren bestehen aus Anordnungen von Sensorkacheln, welche wiederum im Falle des Timepix aus quadratischen Pixeln mit einer Größe von $55 \mu\text{m}$ und im Falle des Pixirad-2 aus hexagonalen Pixeln mit einer Größe von $60 \mu\text{m}$ zusammengesetzt sind. Die hexagonalen Pixel des Pixirad-2 lassen sich auf ein quadratisches Äquivalent von $55 \mu\text{m}$ umrechnen. Die Bildvergrößerung kann unter Anderem über die Position des Detektors eingestellt werden, da die Photonenintensität jedoch mit dem Quadrat des Abstandes abnimmt, sollte die Einstellung der Vergrößerung zunächst über die SOD priorisiert werden, um die ODD minimal zu halten. Die SOD ist ultimativ durch die Probengeometrie und die Positionsgenauigkeit des Mikromanipulators limitiert. Sobald es aber durch Varianzen in der SOD zu messrelevanten Veränderungen in der Vergrößerung zwischen einzelnen Projektionen kommt, die im

Tabelle 4.2: Technische Daten des Timepix und Pixirad-2.

	Timepix	Pixirad-2
Pixel pro Sensorkachel	256 x 256	256 x 256
Äquivalente Pixelgröße	$(55 \mu\text{m})^2$	$(55 \mu\text{m})^2$
Anordnung der Sensorkacheln	2 x 3	2 x 1
Sensormaterial	Si	CdTe
Dicke der Sensorschicht	300 μm	500 μm

Rahmen des Rekonstruktionsalgorithmus nicht mehr hinreichend korrigierbar sind, sollte die ODD entsprechend der gewünschten Vergrößerung angepasst werden.

Die Effizienz eines Detektors ist maßgeblich vom Sensormaterial abhängig. Photonen, die durch das Sensormaterial transmittieren, gelten logischerweise als Verlust. Die Effizienz eines Sensorchips kann daher direkt aus seinem Absorptionsvermögen $I_0/I(x)$ abgeleitet werden. Abbildung 4.5 stellt die Schwächungskoeffizienten und spezifischen Absorptionskoeffizienten der jeweiligen Sensorchips im relevanten Energiebereich dar. Es zeigt sich, dass der Sensorchip des Timepix bereits bei den starken W_L Linien im Bereich 8,40 keV – 9,96 keV anfängt an Effektivität einzubüßen, der CdTe Sensorchip hingegen ist bei allen von dieser Anlage erzeugten Photonenergien weitgehend opak. In Anbetracht der signifikanten Anzahl an Photonen mit Energien >10 keV, insbesondere, wenn Flexibilität bei der Wahl der Targetmaterialien (z.B. Mo) erhalten werden soll, ist die Verwendung eines CdTe Sensorchips vorteilhaft. Es wurde während der frühen Phase der Entwicklung dieser Anlage auf einen Timepix zurückgegriffen, da die technischen Möglichkeiten zur Herstellung fehlerarmer CdTe Sensorkacheln dieser Größe zu diesem Zeitpunkt noch nicht gegeben waren. Frühere CdTe Modelle wie beispielsweise der Medipix-2 (vgl. [84]) erlauben nur die Nutzung von vergleichsweise kleinen fehlerfreien Teilen der Gesamtfläche des Sensors, was sich äußerst negativ auf das ohnehin kleine Field-of-View einer nanoCT auswirkt.

Photonenzählende Detektoren erzeugen vor Allem im niederenergetischen Bereich ein hohes Maß an Detektorrauschen, aus diesem Grund wird den Detektoren ein Energiethreshold vorgegeben, durch den alle detektierten Photonen unterhalb dieses Thresholds verworfen werden. Für alle in dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurde ein Threshold von 5 keV gewählt. Ein Vergleich mit den Spektren und Absorptionsraten aus den Abbildungen 4.3 und 4.4 zeigt, dass mit dieser Wahl unter Verwendung eines W- oder Mo-Targets noch kein nennenswerter Anteil des Signals verloren geht. Unter der Verwendung von Targets mit charakteristischen Linien von geringerer Photonenenergie müsste der Threshold auf Kosten des SNR entsprechend angepasst werden.

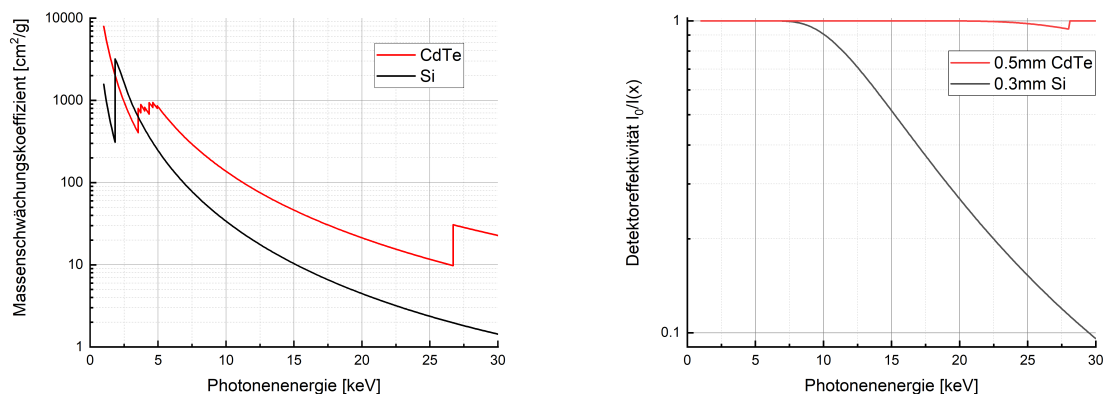


Abbildung 4.5: Links: Massenschwächungskoeffizient μ/ρ [cm^2/g] von CdTe und Si für den relevanten Energiebereich. **Rechts:** Spezifische Schwächung, repräsentativ für die Effektivität der Sensorflächen des Pixirad-2 (CdTe, 500 μm Dicke) und des Timepix (Si, 300 μm Dicke) im relevanten Energiebereich.

Beide Detektoren weisen fehlerhafte Pixel auf, die sich nur begrenzt durch Extrapolation und Hellbildkorrekturen ausgleichen lassen, siehe Abbildung 4.6. Wenn möglich wurden zur Bildgebung fehlerarme Sensorbereiche priorisiert, außerdem wurden für die Bilder beider Detektoren alle schwarzen Fehlstellen bis zu einer Größe von 2×2 über die Nachbarfelder extrapoliert. Neben dem Poissonrauschen der Photonenverteilung sind die Thresholds über alle Pixel nicht uniform, wodurch ein Hellbildabgleich erforderlich ist, außerdem müssen die Schwellen zwischen den Kacheln ebenfalls angeglichen werden [69]. Dies erfolgt beim Pixirad-2 automatisch, bei Timepix jedoch manuell, als Folge können einzelne Sensoren dunkler oder heller erscheinen, sofern für den spezifischen Messdurchgang kein eigenes Hellbild aufgenommen wurde.

4.2 2D-Bildgebung

4.2.1 Auflösung und Detailerkennbarkeit

Als Auflösungstestobjekt wurde ein mit Au bedampftes Cu-TEM-Grid mit einem FEI Helios-FIB bearbeitet, siehe Abbildung 4.7. Die in den Zwischenräumen des TEM-Grids in die Au-Folie geschnittenen Schlitzte dienen als Orientierungspunkte für die Detailauflösung der Anlage. Die Bilder des Auflösungstests wurden mit dem Pixirad-2 und einer W-Nadelquelle mit $r_T = 50 \text{ nm}$ und $r_T = 75 \text{ nm}$ bei $M = 590$ bzw. $P_E = 93 \text{ nm}$ Pixelsampling bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 20 nA Elektronenstrom aufgenommen, siehe Abbildung 4.8. Die Auflösung der beiden Bilder wird über die

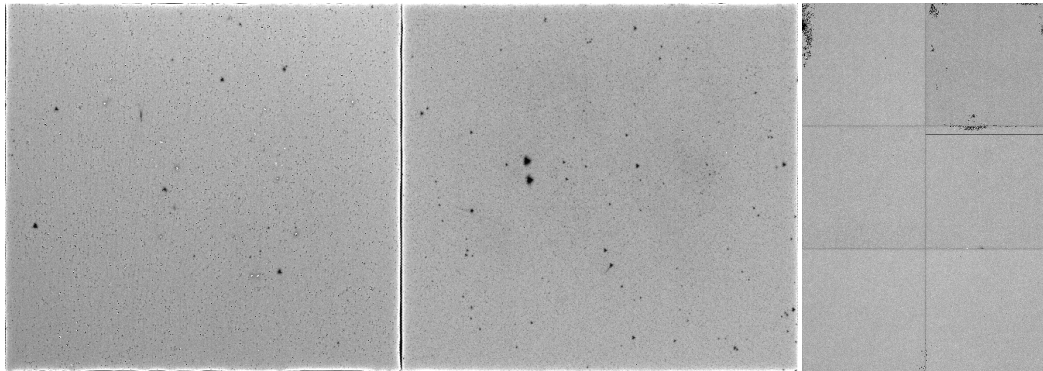


Abbildung 4.6: Hellbilder des Pixirad-2 (links und mitte) und des Timepix (rechts) bei Verwendung einer W-Quelle mit $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$. Beide Detektoren weisen schwarze und weiße Fehlstellen auf, deren Größe sich von 1 Pixel bis auf größere Anordnungen erstrecken. Alle weiteren Aufnahmen wurden mit diesen Hellbildern korrigiert. Wenn möglich, wurde bei Aufnahmen mit dem Pixirad-2 die linke Sensorkachel wegen ihrer geringeren Fehlstellenzahl priorisiert.

Linienpreizfunktion abgeschätzt. Es wurden Linienpreizungen von $0,7-1,0$ ($0,84$) für $r_T = 50 \text{ nm}$ sowie $0,9-1,3$ ($1,21$) für $r_T = 75 \text{ nm}$ abgelesen. Für beide Targets sind die 100 nm Linien unterscheidbar, während die 50 nm Linien nicht aufgelöst werden können.

Als nanoCT-Testobjekte wurden Stücke einer AlCu29-Legierung ausgewählt. Hierfür wurden Radiographien des Materials bei $M = 482$ bzw. $P_E = 115 \text{ nm}$ Pixel-sampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 50 \text{ nm}$ aufgenommen. Diese Legierung bildet größere Bereiche aus reinem Al, als auch eine eutektische Phase aus Al-Al₂Cu mit einer Periodizität von etwa $1 \mu\text{m}$ aus. Beide Phasen können in den Radiographien bereits klar ausgemacht werden. Ferner bilden sich durch Bearbeitung zahlreiche feine Risse im Material, die bis zur Auflösungsgrenze der Aufnahmen von 100 nm verfolgbar sind, siehe Abbildung 4.9. Die verschiedenen Phasen und Strukturen zeigen einen deutlichen Absorptionskontrast und eignen sich zugleich zur Beobachtung von Phasenkontrast. Die Linienprofile durch die Radiographien zeigen, dass die Projektionen, die mit einem Paganin-Filter korrigiert wurden, ein weitaus besseres SNR aufweisen, da die Kontrastüberhöhungen beim Phasenwechsel über die Kante geglättet werden.

Die Vorteile einer phasenkontrastfähigen Quelle zeigen sich bei Aufnahmen von Phasenübergängen von Materialien mit ähnlichem Absorptionsvermögen. Abbildung 4.10 zeigt eine Radiographie und das Linienprofil einer C-Faser mit einem Durchmesser von $4 \mu\text{m}$, bei $M = 266$ bzw. $P_E = 206 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 125 \text{ nm}$ nach einer Belichtungszeit von 45 min bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 25 nA Elektronenstrom. Der Kohlenstoff weist bei diesem Rönt-

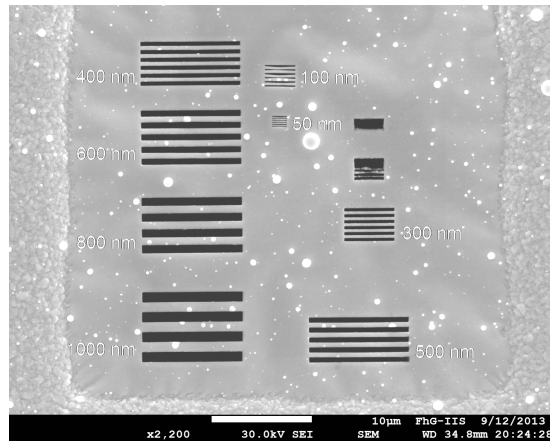


Abbildung 4.7: REM SE-Bild bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ eines Auflösungsstestobjekts mit Linienmustern zwischen 50 nm und 1 μm .

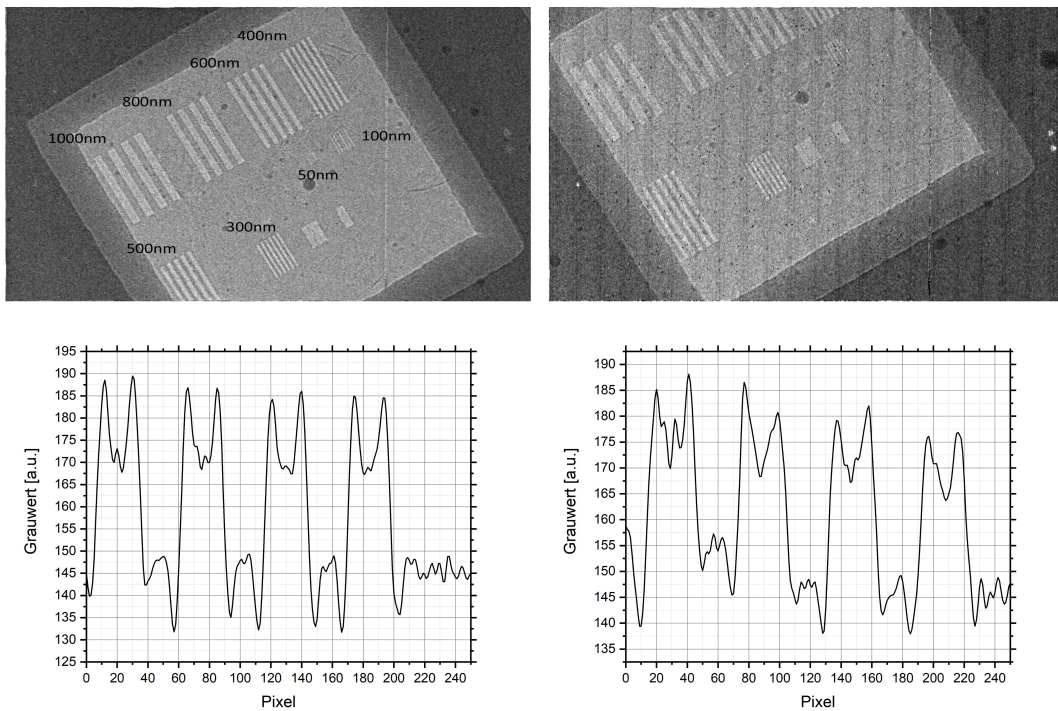


Abbildung 4.8: **Oben:** Pixirad-2 Radiographien des Auflösungsstestmusters bei $M = 590$ bzw. $P_E = 93 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 50 \text{ nm}$ (links) und $r_T = 75 \text{ nm}$ (rechts) nach einer Belichtungszeit von 20 min bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 15 nA Elektronenstrom. Die periodischen Streifen im rechten Bild stammen von einem fehlerhaften Spannungssignal beim Auslesen der Pixel [85]. **Unten:** Linienprofile des 1 μm Musters der Aufnahmen mit $r_T = 50 \text{ nm}$ (links) und $r_T = 75 \text{ nm}$ (rechts).

4.2. 2D-Bildgebung

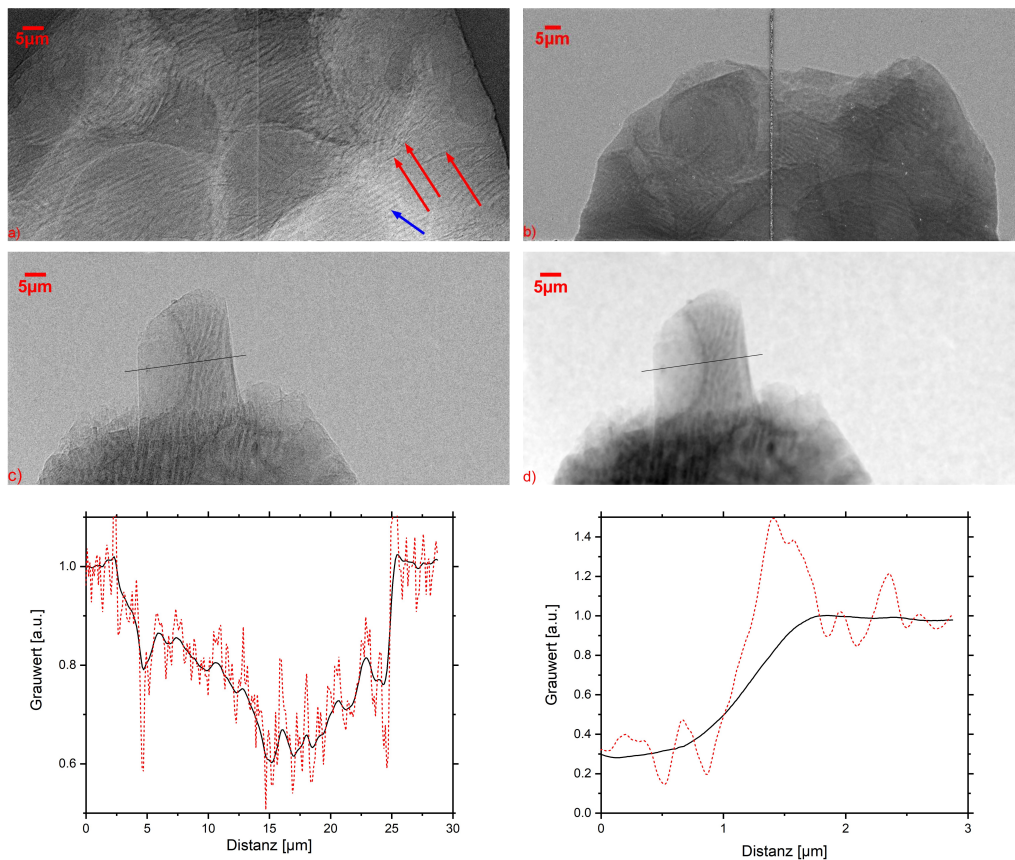


Abbildung 4.9: Pixirad-2 Radiographien einer AlCu29 Legierung. **a)** Invertierte Projektion bei $M = 482$ bzw. $P_E = 115 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 50 \text{ nm}$ nach einer Belichtungszeit von 120 min bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 20 nA Elektronenstrom. Verschiedene Phasen des Materials, wie das Al-Al₂Cu-Eutektikum (blauer Pfeil) sind erkennbar sowie bis zu 100 nm feine hauptsächlich durch Phasenkontrast sichtbare Risse (rote Pfeile) [85]. **b)** Projektion einer nanoCT bei $M = 354$ bzw. $P_E = 155 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Plattentargets mit einem Winkel von 45° relativ zum Elektronenstrahl und einer Belichtungszeit von 15 min bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 20 nA Elektronenstrom. **c)** Projektion einer nanoCT bei $M = 482$ bzw. $P_E = 115 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 50 \text{ nm}$ und einer Belichtungszeit von 30 min bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 15 nA Elektronenstrom ohne Paganin-Filter. **d)** Die selbe Projektion nach Anwendung eines Paganin-Filters. Die Liniennprofile folgen den schwarzen Linien in c) und d) und zeigen die Kontrastüberhöhungen durch den Phasenkontrast im Bild ohne Paganin-Filter (rote gestrichelte Linien) sowie die durch einen Paganin-Filter geglätteten Profile (schwarze Linie). Das rechte Profil zeigt eine Vergrößerung der rechten äußeren Kante.

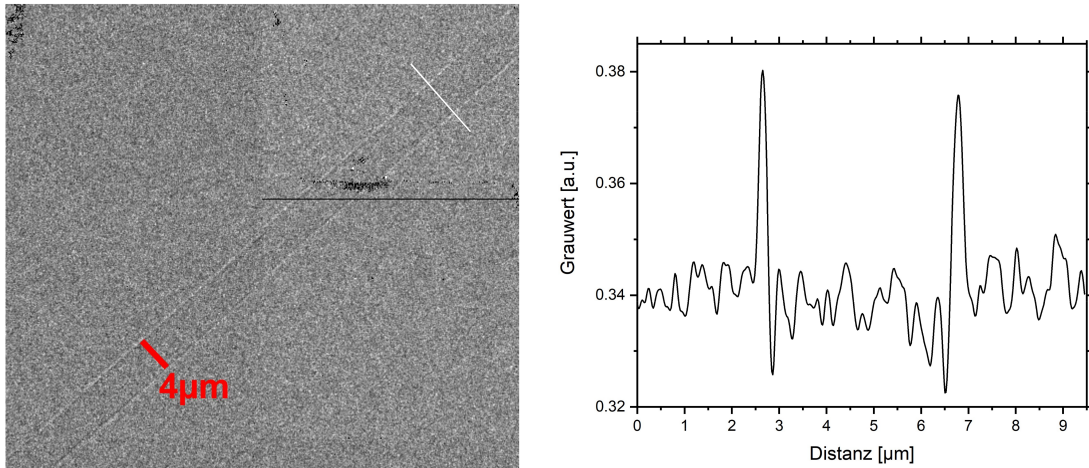


Abbildung 4.10: Timepix Radiographie einer Kohlenstofffaser bei $M = 266$ bzw. $P_E = 206 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 125 \text{ nm}$ nach einer Belichtungszeit von 45 min bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 25 nA Elektronenstrom. Das Linienprofil folgt der weißen Linie in der oberen rechten Sensorkachel [86].

genspektrum gegenüber dem leeren Raum in der Projektion kaum einen nennenswerten Kontrastunterschied auf, während sich die Ränder der Faser deutlich durch den Phasenkontrast ausmachen lassen. Selbst bei einem äußerst schlechten CNR ist so also weiterhin hochauflösende Bildgebung möglich.

Zum Vergleich wurde eine Radiographie eines Siemenssterns bei einer Belichtungszeit von 5 min mit dem kommerziell verfügbaren Zeiss/Xradia UltraXRM L200 aufgenommen, siehe Abbildung 4.11. Die Quelle des UltraXRM ist eine 1,2 kW Rigaku-Rotationsanode. Der Strahl wird durch Fresnelzonenplatten fokussiert, und ist auf die $\text{Cu-K}_{\alpha 1} = 8,4 \text{ keV}$ Linie beschränkt. Obwohl nur 1 % der von der Quelle erzeugten Photonen nach Energiefilterung und Fokussierung durch die Fresnelzonenplatten als Nutzstrahl übrig bleibt, weist die Radiographie verglichen mit dem vorgestellten System trotz einer geringeren Belichtungszeit immer noch ein besseres SNR auf, wohingegen die Detailerkennbarkeit vergleichbar ist (Details bis zu 100 nm können auch hier klar aufgelöst werden). Als Detektor diente ein hochauflösender direkt konvertierender Dünnschicht-Szintillator.

4.2.2 Sekundäre Brennflecke und Streuung

Bedeutende Störsignale im XRMII rühren von sekundären Brennflecken her, die durch das Target transmittierte Elektronen entstehen. Diffuse Störsignale, die nur eine Grundhelligkeit auf den Detektor bringen, lassen sich durch ein Hellbild korrigieren, während schärfere Schatten, die durch kleine Sekundärbrennflecke erzeugt

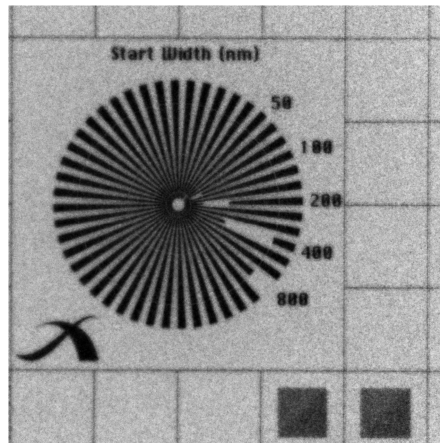


Abbildung 4.11: Radiographie eines Siemenssterns, aufgenommen mit einem kommerziell verfügbaren Röntgenmikroskop das Fresnelzonenplatten zur Strahlfokussierung benutzt (Zeiss/Xradia UltraXRM L200). Das Bild wurde mit monochromatischer $\text{Cu-K}_{\alpha 1}$ -Strahlung bei einer Belichtungszeit von 5 min aufgenommen. Details bis zu einer Größe von 100 nm sind klar erkennbar [86, 87].

werden, ein größeres Problem darstellen können, wenn z.B. die Abschattung zwischen sekundärem Brennfleck, Objekt und Detektor im Laufe der Messung variiert. Werden die Objekte beispielsweise in einer Höhe von wenigen mm auf einen Standard REM Probenteller aufgebracht, vgl. Abbildung 4.12, wird ein sekundärer Brennfleck auf dem REM Probenteller erzeugt, der unter der Annahme, dass die Anbringung der Probe nicht exakt senkrecht und zentral erfolgte, bei Rotation der Probe einer variablen Abschattung unterliegt. Sofern die Geometrie innerhalb der Probenkammer es zulässt, ist daher der Abstand zwischen Target und darunterliegendem Material so groß zu wählen, dass sich der sekundäre Brennfleck effektiv vom Detektor abschirmen lässt. Ist dies aufgrund der Proben- und Kammergeometrie jedoch nicht möglich (häufig bei kleinen SOD), sein im folgenden ein paar Punkte skizziert, über die sich der Einfluss des sekundären Schattenwurfs beurteilen lässt:

- Das Target selber trägt einen Teil zur Vergrößerung des sekundären Brennflecks bei, da wie schon in Abschnitt 3.3 angedeutet, längere Transmissionswege in einer größeren Aufspreizung des primären Elektronenstrahls resultieren. Abbildung 4.13 zeigt einen Vergleich zwischen Schatten, die von einem durch ein W-Nadeltarget mit $r_T = 50 \text{ nm}$ aufgespreizten Brennfleck geworfen werden und Schatten, die von dem selben Brennfleck nach Herausschieben des Targets aus dem Elektronenstrahl projiziert wurden.

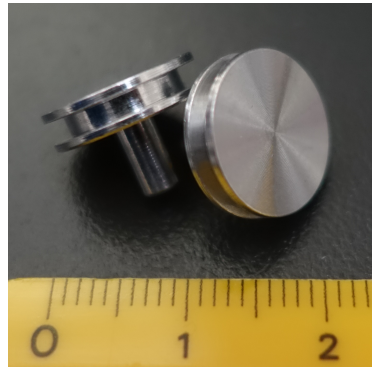


Abbildung 4.12: Standard Al-Probenhalter für REM Anwendungen.

- Ein größerer Abstand zwischen Target und dem darunterliegendem Material vergrößert ebenfalls den sekundären Brennfleck, da die transmittierten Elektronen vom Target aus ihren Weg in einem nach unten gerichteten Kegelstrahl fortsetzen.
- Das Material im Strahlengang zwischen sekundärem Brennfleck und Detektor sollte einen hohen Röntgenabsorptionskoeffizienten haben, wie beispielsweise W, während stark streuende Materialien wie Al vermieden werden sollten.
- Das Material, in dem der sekundäre Brennfleck erzeugt wird, sollte möglichst große intensitätsarme Brennflecke kreieren wie beispielsweise Al, während schwere und dichte Elemente wie W oder Cu vermieden werden sollten.

4.3 3D-Bildgebung

4.3.1 Material und Methoden

Von der AlCu29-Legierung wurden mit dem XRMII 2 Computertomographien aufgenommen [85]. Eine Tomographie erfolgte bei $M = 354$ bzw. $P_E = 155 \text{ nm}$ Pixel-sampling unter Verwendung eines W-Plattentargets, welches in einem Winkel von 45° relativ zum Elektronenstrahl ausgerichtet ist. Der gesamte Datensatz besteht aus 600 Projektionen bei einer Belichtungszeit von 15 min, $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 20 nA Elektronenstrom. Für eine Radiographie des Datensatzes siehe Abbildung 4.9 b). Das Plattentarget besitzt eine ausreichende Dicke, sodass keine Elektronentransmission durch das Target stattfindet. Der Elektronenstrahl wurde als Fokuspunkt auf die Oberfläche der W-Platte fokussiert. Eine Driftverfolgung des Elektronenstrahls während der Aufnahme einer Projektion wurde nicht durchgeführt. Das Objekt ist

4.3. 3D-Bildgebung

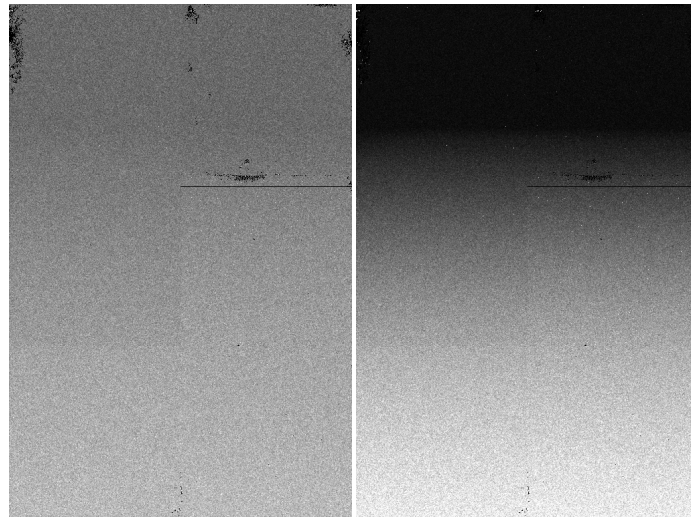


Abbildung 4.13: Timepix Bilder der Schattenwürfe von sekundären Brennflecken aus einem WCu-Probenhalter. **Links:** Schattenwurf eines sekundären Brennflecks der durch ein W-Nadeltarget mit $r_T = 50 \text{ nm}$ transmittierte Elektronen mit $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ erzeugten wurde. **Rechts:** Der projizierte Schatten vom selben Brennfleck nach Herausschieben des Targets aus dem Elektronenstrahl.

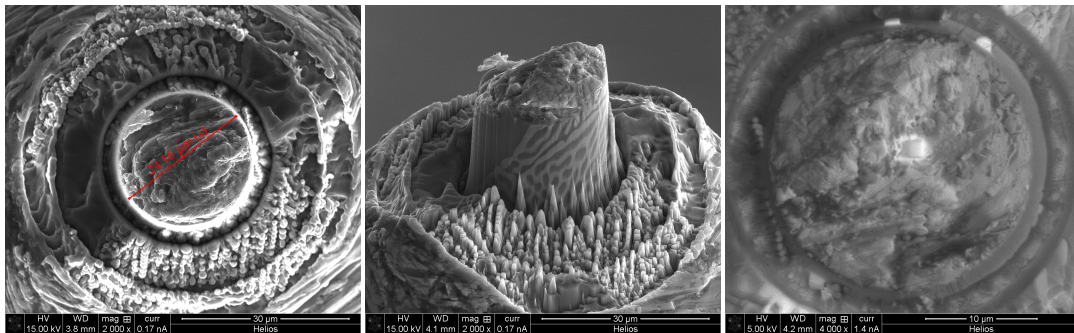


Abbildung 4.14: REM Aufnahmen des nanoCT-Testobjekts aus AlCu29. Der Testzylinder wurde mit einem FEI-Helios-FIB aus einem Kegel des Materials herausgeschnitten. **Links und mitte:** SE-Bild Draufsicht und Seitenansicht bei $U_{EHT} = 15 \text{ kV}$. **Rechts:** BSE-Bild bei $U_{EHT} = 5 \text{ kV}$, die hellen Pt-Würfel auf der Oberfläche der Probe sind mit einem Gasinjektionssystem aufgebracht worden und dienen zur besseren Positionsverfolgung [85].

die Spitze eines mit Schmirgelpapier angespitzten AlCu29-Kegels, der mit PLANO Leit-C-Kleber auf einen 0,5 mm dicken W-Draht aufgeklebt ist.

Eine weitere Tomographie wurde bei $M = 482$ bzw. $P_E = 115 \text{ nm}$ Pixel-sampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 50 \text{ nm}$ aufgenommen. Es wurden 4 separate Datensätze mit jeweils 200 Projektionen bei stets unterschiedlichen Beobachtungswinkeln aufgenommen, jede Projektion wurde bei $U_{EHT} = 30 \text{ kV}$ und 15 nA Elektronenstrom für jeweils 30 min belichtet. Jeder Datensatz wurde einmal direkt rekonstruiert und einmal nach Anwendung eines Paganin-Filters. Für Radiographien der Datensätze siehe Abbildung 4.9 c) und d). Eine Driftkorrektur des Elektronenstrahls während einer Projektion erfolgte alle 10 min. Projektionen, bei denen die Drift zu einer Verschiebung oder Schwächung des Quellflecks führten, wurden verworfen und direkt neu aufgenommen. Das Objekt ist ein Zylinder aus AlCu29 mit einem Durchmesser von $24 \mu\text{m}$, der mit einer FEI Helios-FIB aus einem Kegel des Materials herausgeschnitten wurde, siehe Abbildung 4.14. Die Probe wurde erneut mit PLANO Leit-C-Kleber auf einen 0,5 mm dicken W-Draht aufgeklebt. Um die Position des Objekts besser nachverfolgen zu können, wurden mit einem Gasinjektionssystem $4 \text{ } 1 \mu\text{m}^3$ große Pt-Würfel auf das Objekt aufgebracht.

Zur Evaluierung wie viele Projektionen für eine adäquate Bildqualität in der Rekonstruktion notwendig sind, wurde für die CT mit Nadeltarget Rekonstruktionen aus jeweils 200, 400, 600 und 800 Projektionen erzeugt. Nach der Korrektur der geometrischen Abweichungen wurde eine finale TV-regularisierte SART-Rekonstruktion mit 5–10 Iterationen angewendet. Um die Auswirkungen des Paganin-Filters auf die Rekonstruktionen zu untersuchen, wurden sowohl Rekonstruktionen der Rohdaten als auch Rekonstruktionen aus den Paganin-gefilterten Projektionen erzeugt.

4.3.2 Auflösung und Detailerkennbarkeit

Die nanoCT des AlCu29-Zylinders bei Verwendung eines Nadeltargets hat gezeigt, dass sich die Bildqualität der Rekonstruktionsschnitte zwischen 200 und 400 sowie zwischen 400 und 600 Projektionen noch erkennbar steigt, während eine Erhöhung der Projektionszahlen auf 800 keine sichtbare Verbesserung der Bildqualität und Detailerkennbarkeit zu haben scheint, siehe Abbildung 4.15. Streifen-Artefakte durch Abweichungen in der Strahlgeometrie sind vor allem in den Rekonstruktionen mit 200 Projektionen erkennbar, bei höheren Projektionszahlen werden diese Fehler hinreichend durch den Rekonstruktionsalgorithmus korrigiert.

In der nanoCT lassen sich ab 600 Projektionen sowohl unter Anwendung eines Paganin-Filters, als auch ohne diesen, feine Haarrisse im Material bis zu einer Größe von 200 nm erkennen. Der Paganin-Filter verbessert wie erwartet das SNR, jedoch scheinen die Bilder ein etwas geringeres räumliches Auflösungsvermögen zu haben. Ein Vergleich des SNR zwischen Rekonstruktionen mit unterschiedlichen Projek-

Tabelle 4.3: SNR der Rekonstruktionen ohne bzw. mit Paganin-Filter (PF) unter Verwendung unterschiedlicher Anzahl an Projektionen. Es zeigt sich, dass der Paganin-Filter das SNR deutlich verbessert, während eine Verringerung der Projektionszahl unter 400 das SNR merklich verringert.

	SNR mit PF	SNR ohne PF
800 Projektionen	7,15	3,60
600 Projektionen	7,20	3,63
400 Projektionen	7,14	3,51
200 Projektionen	6,12	2,68

tionen zeigt, dass sich dieses ab einer Projektionszahl >400 nicht mehr signifikant verbessert, siehe Tabelle 4.3.

Über eine Betrachtung der Linienspreizung lässt sich die Voxelauflösungen der Rekonstruktionen abschätzen. Für die nanoCT mit Nadeltarget werden Linienspreizungen zwischen 1,5 und 2,5 für die unkorrigierten Rekonstruktionen, sowie Linienspreizungen zwischen 2,5 und 3,5 für die Rekonstruktionen unter Verwendung eines Paganin-Filters gezählt, siehe Abbildung 4.16. Die größeren Linienspreizungen werden dabei tendenziell eher im Sockel des Objekts gezählt, wo der Strahl eine größere Strecke durch die Probe zurücklegen muss. Linienspreizungen sind für den gesamten Probenbereich im Rahmen der Messgenauigkeit unabhängig von der Raumrichtung. Für die nanoCT mit Plattentarget werden Linienspreizungen zwischen 1,5 und 3,5 für die unkorrigierten Rekonstruktionen, sowie Linienspreizungen zwischen 2,5 und 3,5 unter Verwendung eines Paganin-Filters gezählt, siehe Abbildung 4.17. Die größeren Linienspreizungen werden tendenziell eher in paralleler Richtung zum Elektronenstrahl gezählt, was sich auf einen asymmetrischen Röntgenbrennfleck oder eine stärkere Brennfleckdrift in dieser Richtung zurückführen lässt.

Zum Vergleich wurde eine nanoCT der AlCu29-Legierung mit einem kommerziell verfügbaren Zeiss/Xradia Ultra XRM L200 am Fraunhofer IZFP in Dresden mit einer Messzeit von 2 Tagen bei $P_E = 130\text{ nm}$ Pixelsampling aufgenommen, siehe Abbildung 4.18. Aus dem Linienprofil lassen sich Linienspreizungen zwischen 2,5 und 6,3 ablesen, wobei die Linienspreizungen deutlich größer werden, je mehr Material durchstrahlt werden muss. Das SNR scheint zudem im Inneren der Probe deutlich geringer zu werden.

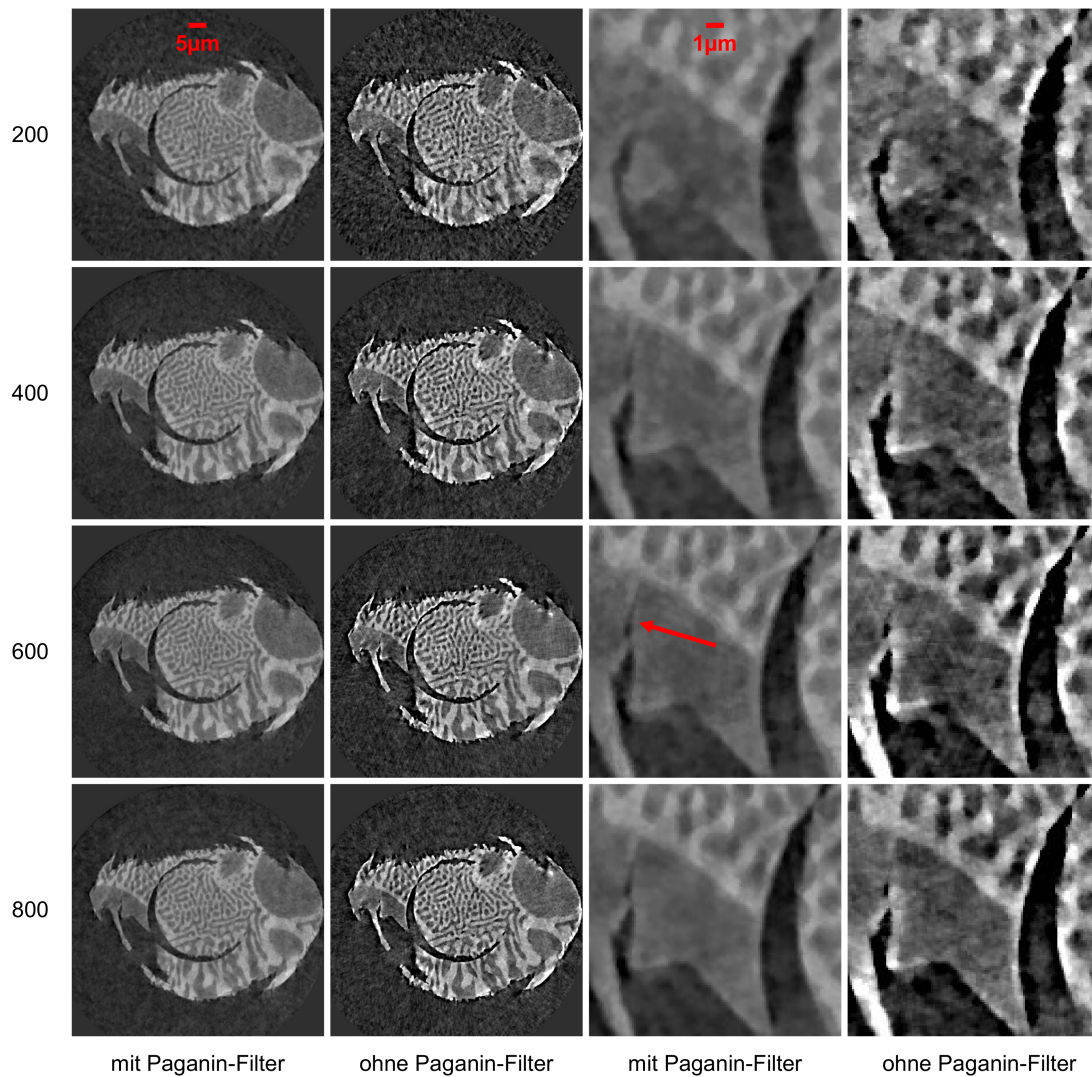


Abbildung 4.15: Vergleich zwischen Rekonstruktionen unter Verwendung unterschiedlicher Anzahl an Projektionen und zwischen Rekonstruktionen mit bzw. ohne Paganin-Filter. Projektionen wurden wie in Abbildung 4.9 c) und d) bei $M = 482$ bzw. $P_E = 115 \text{ nm}$ Pixelsampling unter Verwendung eines W-Nadeltargets mit $r_T = 50 \text{ nm}$ aufgenommen. Rekonstruktionen nach Anwendung eines Paganin-Filters zeigen geglättete, aber unschärfere Profile. Feine Haarrisse bis zu einer Größe von 200 nm sind ab einer Projektionsanzahl von ≥ 400 sowohl mit als auch ohne Paganin-Filter zu erkennen (roter Pfeil). Die Rekonstruktion mit 200 Projektionen zeigt leichte Streifenartefakte, die von der Geometriekorrektur herrühren. Eine Verwendung von ≥ 600 Projektionen scheint die Bildqualität nicht signifikant weiter zu verbessern [85].

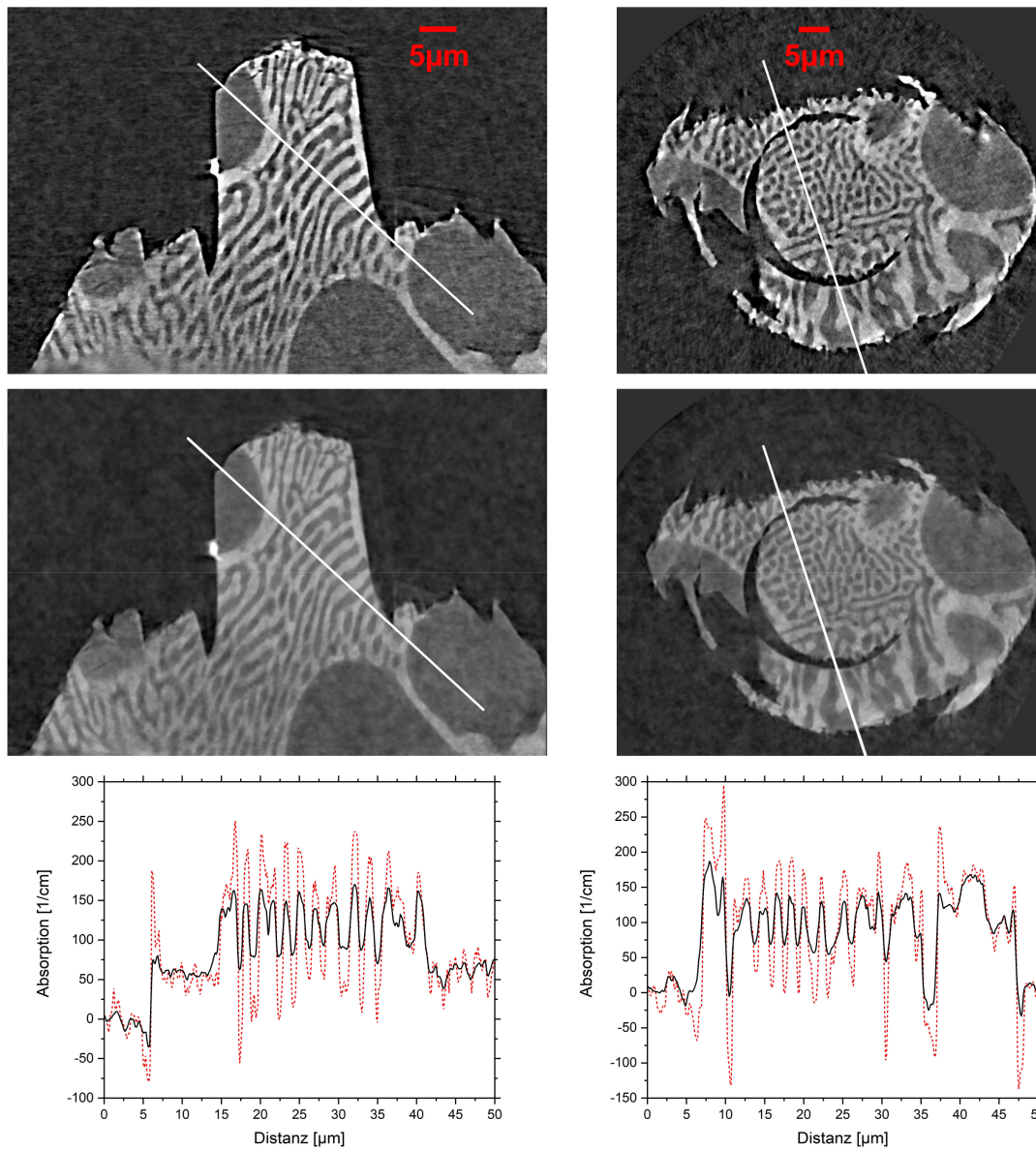


Abbildung 4.16: Rekonstruktionen mit 800 Projektionen der AlCu29-Legierung unter Verwendung der W-Nadeltarget-Quelle. Dargestellt sind die unkorrigierten Rekonstruktionsergebnisse (erste Zeile) und die Rekonstruktionen nach Anwendung eines Paganin-Filters (zweite Zeile). Die Linienprofile folgen den weißen Linien in den jeweiligen Rekonstruktionsschnitten und zeigen die Phasenkontrastüberhöhung der unkorrigierten (rote gestrichelte Linien) sowie die geglätteten Ergebnisse der Paganin-gefilterten (schwarze Linien) Rekonstruktionen [85].

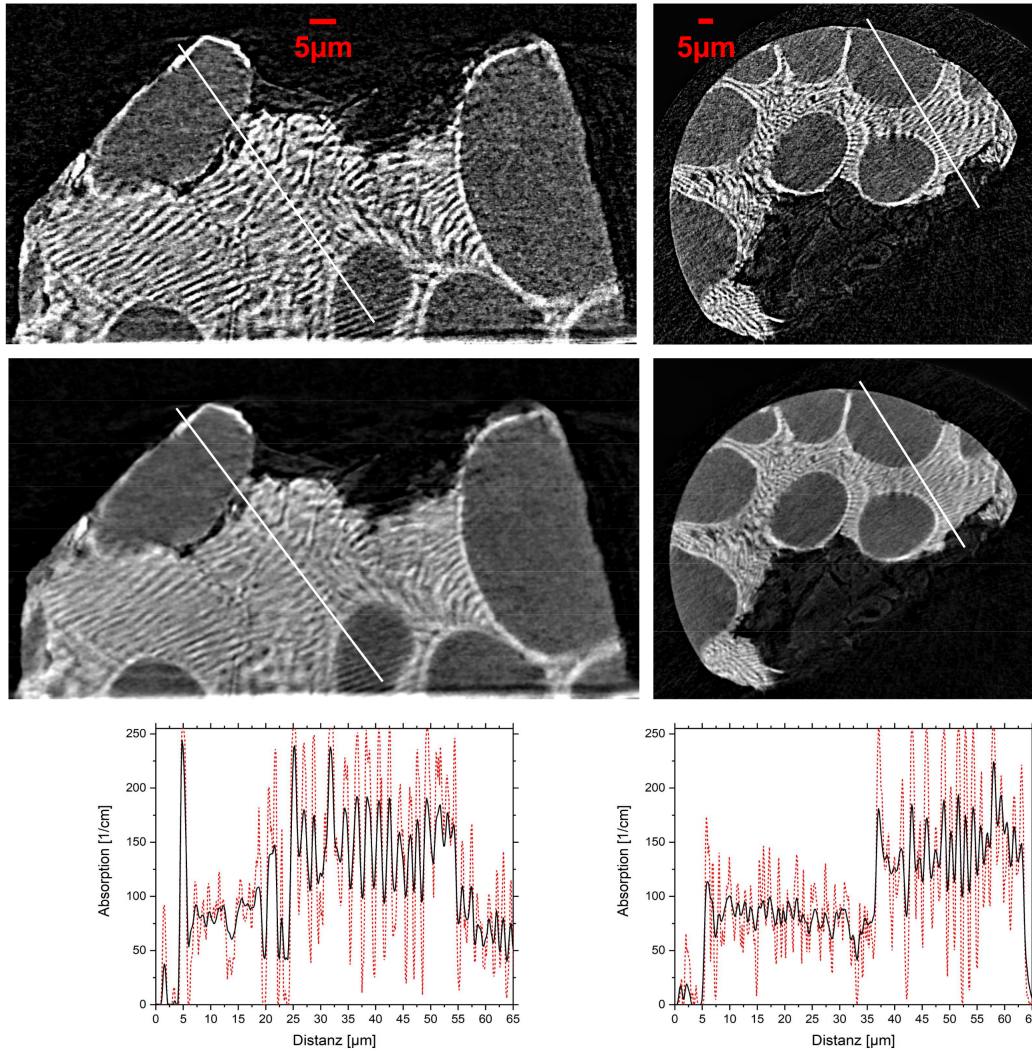


Abbildung 4.17: Rekonstruktionen mit 600 Projektionen der AlCu₂₉-Legierung unter Verwendung eines W-Plattentargets mit $M = 354$ bzw. $P_E = 155 \text{ nm}$ Pixelsampling. Dargestellt sind die unkorrigierten Rekonstruktionsergebnisse (erste Zeile) und die Rekonstruktionen nach Anwendung eines Paganin-Filters (zweite Zeile). Die Linienprofile folgen den weißen Linien in den jeweiligen Rekonstruktionsschnitten und zeigen die Phasenkontrastüberhöhung der unkorrigierten (rote gestrichelte Linien) sowie die geglätteten Ergebnisse der Paganin-geländerten (schwarze Linien) Rekonstruktionen.

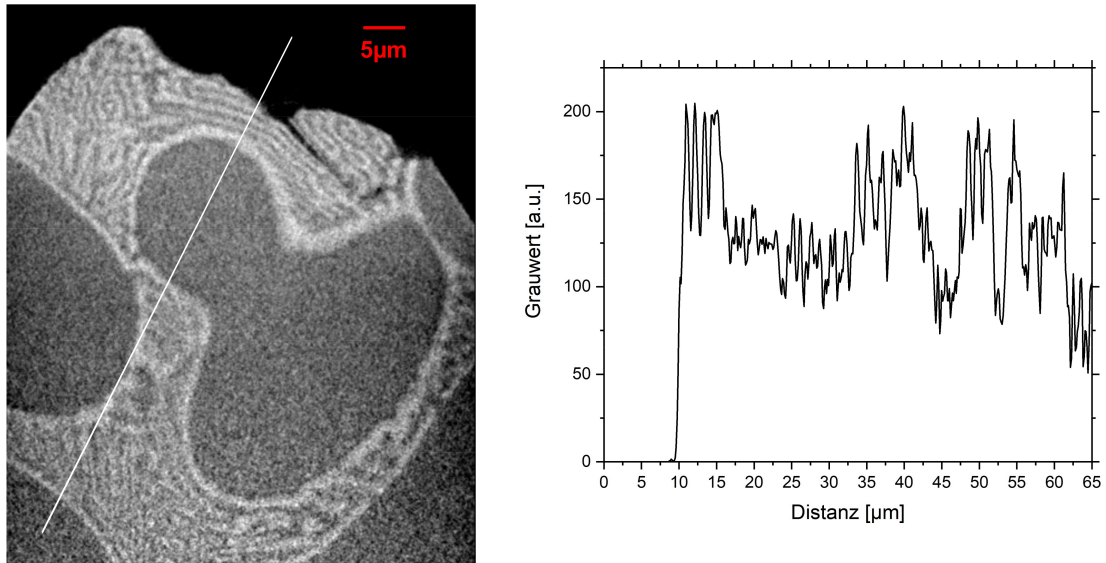


Abbildung 4.18: Rekonstruktionen der AlCu₂₉-Legierung aufgenommen mit einem Zeiss/Xradia UltraXRM L200. Dargestellt sind die unkorrigierten Rekonstruktionsergebnisse (links). Das Linienprofil (rechts) folgt der weißen Linie im Rekonstruktionsschnitt [85].

4.4 Diskussion

Aus den Linienspreizungen lassen sich Werte für das Auflösungsvermögen ableiten. Für ein W-Nadeltarget mit $r_T = 50 \text{ nm}$ kann im Projektionsbetrieb ein Auflösungsvermögen zwischen $65 \text{ nm} - 90 \text{ nm}$ und in 3D für >600 unkorrigierte Projektionen ein Voxel-Auflösungsvermögen zwischen $170 \text{ nm} - 300 \text{ nm}$ abgeleitet werden. Wird vor der Rekonstruktion ein Paganin-Filter auf die Projektionen angewendet, verringert sich das Auflösungsvermögen auf $300 \text{ nm} - 400 \text{ nm}$. Eine Vergrößerung des Röntgenbrennflecks wirkt sich wie zu erwarten direkt auf das Auflösungsvermögen der Anlage aus. Aus den Aufnahmen vom Auflösungstest lässt sich nach einer Vergrößerung des Targetradius auf $r_T = 75 \text{ nm}$ nur noch ein Auflösungsvermögen von $85 \text{ nm} - 120 \text{ nm}$ im Projektionsbetrieb erreichen. Unter Verwendung eines Plattentargets kann nach der Rekonstruktion noch ein Auflösungsvermögen von $325 \text{ nm} - 400 \text{ nm}$ mit unkorrigiertem Datensatz und ein Auflösungsvermögen von $400 \text{ nm} - 500 \text{ nm}$ unter Anwendung eines Paganin-Filters erreicht werden.

Es zeigt sich, dass ein symmetrischer, nicht driftender Brennfleck auch konsequenterweise zu einer symmetrischen Voxelauflösung führt. Ein stärkeres Absorptionsvermögen der durchstrahlten Materialien verringert das SNR und wirkt sich direkt negativ auf das Auflösungsvermögen in den Rekonstruktionen aus. Es ist daher aufgrund der geringen Strahlintensität erforderlich, Proben auf eine adäquate Größe

zurecht zu schneiden, um das Auflösungsvermögen der Anlage optimal ausnutzen zu können. Für hochauflösende Aufnahmen einer 'Region-of-Interest' (RoI) in einem größeren Werkstück ist die Anlage in dieser Konfiguration also eher ungeeignet.

Eine Minimierung der Projektionen sorgt für einen unterbestimmten Datensatz, spart jedoch aufgrund der langen Belichtungszeiten von 30 min pro Projektion sehr viel Messzeit. Es hat sich gezeigt, dass mithilfe der TV-regularisierten SART Datensätze bei einer Projektionszahl zwischen 400 und 600 adäquat rekonstruiert werden können. Unter Verwendung eines Nadeltargets werden bei dieser Konfiguration Messzeiten zwischen 10–14 Tagen erreicht. Durch Phasenkontrastbildung und das breite variable Röntgenspektrum können sowohl schwach- als auch starkabsorbierende Materialien betrachtet werden.

Vergleichsmessungen mit dem Zeiss/Xradia UltraXRM L200 zeigen, dass das Auflösungsvermögen in 2D vergleichbar ist, wobei das Xradia optional über einen Ultra-mode verfügt, der hier nicht verwendet wurde und mit dem Auflösungen bis zu 50 nm erreichbar sein sollen. Das Auflösungsvermögen im rekonstruierten Volumen lässt sich über die Linienspreizungen auf 350 nm – 845 nm ableiten. Die höheren Auflösungen werden nur im oberen Bereich der Probe erreicht, wo das durchstrahlte Volumen minimal ist. Das Auflösungsvermögen sinkt rapide bei zunehmender Probendicke, was mit der geringeren Photonenenergie der $\text{Cu-K}_{\alpha 1}=8,4\text{ keV}$ Linie und dem daraus folgenden geringeren Durchstrahlvermögen im Vergleich zu dem vollen 30 kV-W-Spektrum aus dem XRMII erklärbar ist. Das Xradia Ultra sollte also im Vergleich zum XRMII bei Materialien mit geringerer Dichte und Atomgewicht weitaus bessere Leistungen als bei den hier gewählten Materialien bringen, während das XRMII durch das breite Spektrum ein hohes Auflösungsvermögen in einem breiteren Anwendungsfeld aufweist. Ein deutlicher Nachteil des XRMII ist trotz des speziell auf das Gerät angepassten Rekonstruktionsalgorithmus nach wie vor die lichtschwache Quelle und die damit verbundenen langen Aufnahmezeiten pro Rekonstruktion.

Möglichkeiten den effektiven Strahlstrom zu erhöhen sind hier jedoch noch lange nicht ausgeschöpft und seien hier kurz als Weiterentwicklungsoptionen angemerkt:

- Zum Zeitpunkt der nanoCT mit Nadeltarget war die Elektronensäule wie schon erwähnt unbemerkt verbogen worden. In Kombination mit einem alternden Elektronenemitter sank damit der Elektronenstrom und damit die Intensität des Röntgenbrennflecks auf bis zu 1/20 seiner ursprünglichen Stärke. Ein Umstand, der sich durch eine routinemäßige Wartung seitens des Herstellers korrigieren lässt.

- Die Geometrie zwischen Target, Objekt und Be-Fenster wurde auf einen Arbeitsabstand des Elektronenstrahls von 18,4 mm eingestellt. In Anbetracht dessen, dass der optimale Arbeitsabstand des hier verwendeten REMs 5 mm beträgt, ist zu erwarten, dass dies zu einer nicht optimalen Fokussierung des Elektronenbrennflecks geführt haben könnte.
- Eine weitere Optimierung von SOD und SDD kann abhängig von der Probengeometrie zu einer effektiveren Ausnutzung des Kegelstrahls führen.
- Die Verlegung des Detektors ins Vakuum oder die Verwendung einer weniger stark absorbierenden Atmosphäre (Beispielsweise He) zwischen Strahlaustrittsfenster und Detektor würde zu einer effektiveren Nutzung des niederenergetischen Teils des Spektrums führen.
- Die Verwendung einer stärkeren Elektronenquelle ist nach Implementierung einer effektiven Elektronenstrahlnachführung möglich. Bei einer signifikanten Steigerung der Leistung über die hier untersuchten Parameter hinaus sollte evaluiert werden, ob die physische Integrität des Targets über einen Messzyklus hinweg gewährleistet werden kann und ob eine aktive Kühlung des Targets dessen Schmelzen entgegengesetzt werden muss.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Die primäre Zielsetzung dieser Arbeit ist es ein Röntgenmikroskop mit einem räumlichen Auflösungsvermögen im Nanometerbereich zu bauen, welches im Bereich der Materialanalytik für zerstörungsfreie Prüfmethoden eingesetzt werden kann. Das Gerät soll dieses Auflösungsvermögen nicht nur in einzelnen Projektionen erreichen, sondern auch in Schnitten von rekonstruierten Datensätzen in der 3D Bildgebung. Im Gegensatz zu linsenbasierten Mikroskopen, die auf eine spezifische Photonenenergie beschränkt sind, soll dieses Gerät geometrische Vergrößerung ohne optische Elemente verwenden, um das gesamte von der Röntgenquelle erzeugte Energiespektrum von 30 keV auszunutzen. Hiermit soll sich ein verhältnismäßig großes Probenpektrum im Vergleich zu linsenbasierten Systemen auf Kosten der Quellintensität und Gesamtmesszeit pro Probe eröffnen. Als Konsequenz ist zu erwarten, dass sich gerade für schwach absorbierende Materialien Bilder mit geringem Signal-zu-Rausch Verhältnis (SNR) und Kontrast-zu-Rausch Verhältnis (CNR) ergeben, diese Schwäche soll über die Phasenkontrast Rückgewinnung eines Paganin-Filters ausgeglichen werden.

Im Fokus dieser Arbeit steht zunächst die Herstellung einer für hochauflösende Bildgebung mit geometrischer Vergrößerung taugliche Röntgenquelle. Hierfür bedarf es eines stabilen und fokussierten Elektronenstrahls aus einem herkömmlichen Feldemissions-Rasterelektronenmikroskops (FE-REM). Die Interaktionszone der Elektronen wird physikalisch durch die Röntgenquelle in Form einer Nadel mit 50 nm Krümmungsradius begrenzt, resultierend in einem entsprechend kleinen Röntgenbrennfleck. Die genaue Form und Struktur der Nadel wird mithilfe eines flexiblen elektrochemischen Ätzprozesses an die besonderen Anforderungen des Systems angepasst. Das Quellmaterial und das daraus resultierende Röntgenspektrum ist zwar je nach den Anforderungen des zu untersuchenden Objektes austauschbar, jedoch wird hier exemplarisch ausschließlich Wolfram als besonders intensitätsstarkes und widerstandsfähiges Standardmaterial benutzt. Die ausreichend genaue Positionierung des Objekts relativ zur Quelle wird mithilfe von unabhängig voneinander bewegbaren

Piezoachsen gewährleistet. Die genauere Positionierung und Stabilisierung des Röntgenbrennflecks wird auch in Hinblick auf eine Automatisierung dieser über die native Elektronenbildgebung des REMs ergänzt.

Die Aufnahmen eines Testobjekts aus AlCu29 werden mit einem hoch effizienten photonenzählenden Pixirad-2 Detektor aufgenommen. Einzelne Projektionen zeigen ein Auflösungsvermögen von 65 nm–90 nm, während rekonstruierte Volumina ein Auflösungsvermögen von 170 nm–300 nm bei einer Gesamtmesszeit von 10–14 Tagen zeigen. Nach Anwendung eines Paganin-Filters verbessert sich wie zu erwarten das Signal-zu-Rausch Verhältnis auf Kosten einer Verschlechterung des räumlichen Auflösungsvermögens um einen Faktor von $\sim 1,5$.

Vergleichsmessungen mit dem selben Material an einem kommerziell verfügbaren Röntgenmikroskop mit Fresnellinsen zeigen eine signifikant kürzere Aufnahmezeit, jedoch weitaus schlechtere Leistungen in stärker absorbierenden Bereichen des Testobjekts aufgrund der hierbei verwendeten monochromatischen Cu-K $_{\alpha 1}$ =8,4 keV Linie. Im Vergleich zu anderen Systemen, die sich der geometrischen Vergrößerung bedienen, zeigt sich ein ähnliches räumliches Auflösungsvermögen, [38] beschreibt ein Röntgenmikroskop in Transmissiongeometrie mit einer maximalen Detailerkennbarkeit von 150 nm, während für Systeme in Reflexionsgeometrie bei einem Energiespektrum von 30 keV räumliche Auflösungsvermögen von bis zu 200 nm [56, 65, 73, 79] im rekonstruierten Volumen bei Messzeiten von 6–8 Stunden erreichbar sind. Ähnliche Messzeiten sind für die vorgestellte Anlage nach Korrektur der Elektronensäule und der damit einhergehenden Steigerung des Strahlstroms um den Faktor 20 zu erwarten. Die Beschädigung der Elektronensäule und die daraus resultierenden langen Messzeiten erforderte eine Korrektur der Röntgenstrahlstabilität über das anderweitig notwendige Maß hinaus. Dies zeigt jedoch auch, dass die Stabilität der vorgestellten Konfiguration für eine Weiterentwicklung zu noch kleineren Brennflecken und stärkeren Auflösungen bereits gegeben ist.

Das vorgestellte Gerät zeigt insbesondere viel Potential für die Analytik von Werkstoffen mit hoher Kernladungszahl und Materialdichte. Es besteht dabei insbesondere im Bereich der automatisierten Aufnahmetechnik Weiterentwicklungsbedarf. Das Design des Röntgenmikroskops beschränkt sich auf ein Strahlaustrittsfenster, einem Detektorkasten im Außenbereich des REMs und einem kompakten Piezo-Mikromanipulator für Objekt und Quelle in der Vakuumhauptkammer des REMs. Letztere wurde zunächst über eine Aufhängung nach Entfernung des ursprünglichen REM-Probenmanipulators angebracht, es zeigt sich jedoch das Potential den Piezo-Mikromanipulator als Modul auf dem Original-Manipulator anzubringen und somit REM-Standard-Operationen unbeeinträchtigt zu lassen. Damit lässt sich die vorgestellte Anlage zu einem Upgrade-Modul für jedes REM mit vergleichbarer Elektronenstrahlstabilität weiterentwickeln, während andere Röntgenmikroskope bisher nur als Einzelgeräte zu einem Vielfachen des Preises verfügbar sind.

Da die Zielsetzung dieser Arbeit zunächst nur der Beweis der Funktionsfähigkeit war, bedarf es noch einer genaueren Charakterisierung der Einzelkomponenten, insbesondere der Detektor-MTF und der Quellcharakterisierung verschiedener Targetmaterialien. Es bietet sich hier insbesondere auch eine Aufnahme desselben Objekts mit unterschiedlichen Quellmaterialien an, um den Kontrast einzelner Komponenten besser hervorheben und bewerten zu können.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die vorgestellte Arbeit einen Grundstein für eine nanoCT-Anlage mit viel Entwicklungspotential präsentiert, die eine bedeutende Nische in der Materialanalytik füllen kann.

Literaturverzeichnis

- [1] Abbe E *Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung* Archiv für mikroskopische Anatomie **9** 1:413, 1873 doi:10.1007/BF02956174
- [2] Als-Nielsen J, McMorrow D *Elements of modern X-ray physics, Second Edition* Wiley, New York, NY, 2011 ISBN:978-1-119-97015-6
- [3] Anderson A H, Kak A C *Simultaneous algebraic reconstruction technique (SART): a superior implementation of the ART algorithm* Ultrasonic imaging **6.1** 81-94, 1984 doi:10.1016/0161-7346(84)90008-7
- [4] Anton G, Gebert U, Michel T, Rügheimer T K *A Hybrid Photodetector using the Timepix Semiconductor Assembly for Photoelectron Detection* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **602** 205-208, 2009 doi:10.1016/j.nima.2008.12.053
- [5] Ardenne M *Das Elektronen-Rastermikroskop* Zeitschrift für Physik **109** 553-572, 1938 doi:10.1007/BF01341584
- [6] Ardenne M *Zur Leistungsfähigkeit des Elektronen-Schattenmikroskopes und über ein Röntgenstrahlen Schattenmikroskop* Naturwissenschaften **28** 485-486, 1939 doi:10.1007/BF01489234
- [7] Balles A, Dittmann J, Fella C, Hanke R, Zabler S *Quantitative phase contrast and X-ray scattering micro-tomography with the 9.2keV liquid metal jet anode: applications on materials and life* Proc. SPIE 10391 Developments in X-ray Tomography **XI** 109, 2017 doi:10.1117/12.2275889
- [8] Bearden J A *X-Ray Wavelength* Reviews of Modern Physics **39** 78, 1967 doi:10.1103/RevModPhys.39.78
- [9] Bechara B, McMahan C A, Moore W S, Noujeim M, Geha H, Teixeira F B *Contrast-to-noise ratio difference in small field of view con beam computed tomography machines* Journal of Oral Science **54/3** 227-232, 2012 doi:10.2334/josnusd.54.227

-
- [10] Bellazini R, Spandre G, Brez A, Minuti M, Pinchera M, Mozzo P *Chromatic X-ray imaging with a fine pitch CdTe sensor couplet to a large area photon counting pixel ASIC* Journal of Instrumentation **8** C02028, 2013 doi:10.48550/arXiv.1210.1248
- [11] Bogner A, Jouneau P H, Thollet G, Basset D, Gauthier C *A history of scanning electron microscopy developments: Towards „wet-STEM“ imaging* Micron **38** 390-402, 2007 doi:10.1016/j.micron.2006.06.008
- [12] Broers A N *Köhler illumination and brightness measurement with lanthanum hexaboride cathodes* Journal of Vacuum Science & Technology **16** 1692, 1979 doi:10.1116/1.570274
- [13] Buzug T M *Computed Tomography: From Photon Statistics to Modern Cone-Beam CT* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008 doi:10.1007/978-3-540-39408-2
- [14] Chantler C T, Olsen K, Dragoset R A, Chang J, Kishore A R, Kotochigova S A, Zucker D S *Theoretical Form Factor, Attenuation and Scattering Tabulation for Z=1-92 from E=1-10eV to E=0.4-1.0MeV* Journal of Physical and Chemical Reference Data **24** 71, 1995 doi:10.18434/T4HS32
- [15] Chantler C T, Olsen K, Dragoset R A, Chang J, Kishore A R, Kotochigova S A, Zucker D S *X-ray Form Factor, Attenuation and Scattering Tables* National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg MD **2.1**, 2005 Available: <http://physics.nist.gov/ffast> [2022, 02 12]
- [16] Chao W, Harteneck B D, Liddle A, Anderson E H, Attwood D T *Soft X-ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm* Nature **435** 1210-1213, 2005 doi: 10.1038/nature03719
- [17] Chen X, Li Y *Design and Analysis of a New High Precision Decoupled XY Compact Parallel Micromanipulator* Micromachines **8(3)**, 82, 2017 doi: 10.3390/mi8030082
- [18] Chong A, Feng G, Kanfoud J, Gan T H *An Outline of a Complementary Inspection System for Micro-Electro-Mechanical System (MEMS) Devices Based on Radiography and Plenoptic Camera* Advances in Manufacturing Technology **XXII** 33-38, 2018 doi:10.3233/978-1-61499-902-7-33
- [19] Cosslet V E, Nixon W C *X-ray Microscopy* Cambridge University Press, England, 1960 ISBN:9781107654655

- [20] de Broglie L *Recherches sur la théorie des quanta* Doctoral Dissertation, Migration-université en cours d'affectation, 1924
- [21] de Haan K, Ballard Z S, Riverson Y, Wu Y, Ozcan A *Resolution enhancement in scanning electron microscopy using deep learning* Scientific Reports **9** 12050, 2019 doi:10.48550/arXiv.1901.11094
- [22] Delogu P, Oliva P, Bellazini R, Brez A, Ruvo de P L, Minuti M, Pinchera M, Spandre G, Vincenzi A *Characterization of Pixirad-1 photon counting detector for X-ray imaging* Journal of Instrumentation **11(01)** 1015, 2016 doi:10.1088/1748-0221/11/01/P01015
- [23] Demtröder W *Experimentalphysik 2, Elektrizität und Optik, 7. Auflage* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2017 doi:10.1007/978-3-642-29944-5
- [24] Di Trapani V, Bravin A, Brun F, Dreossi D, Longo R, Mittone A, Rigon L, Delogu P *Characterization of acquisition modes implemented in Pixirad-1/Pixie-III X-ray Detector: Effects of charge sharing correction on spectral resolution and image quality* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **955** 163220, 2020 doi:10.1016/j.nima.2019.163220
- [25] Dittmann J *Efficient ray tracing on 3D regular grids for fast generation of digitally reconstructed radiographs in iterative tomographic reconstruction techniques* arXiv e-prints **1609**, 2016
- [26] Dittmann J *Tomographische Rekonstruktion aus wenigen Röntgenprojektionen auf Grundlage der Compressed Sensing Theorie* Masterarbeit Julius-Maximilians Universität Würzburg, 2013
- [27] Dremel K, Althoff D, Zabler S *CT alignment correction in iterative reconstruction methods* Proceeding on the 4th International Meeting on image formation in X-ray CT **40** 137, 2016
- [28] Dremel K *Modellbildung des Messprozesses und Umsetzung eines modellbasierten iterativen Lösungsverfahrens der Schnittbild-Rekonstruktion für die Röntgen-Computertomographie* Dissertation Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2017
- [29] Ebensperger T *Konzeption, Umsetzung und Evaluierung eines projektiven Röntgenmikroskops* Dissertation Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2014
- [30] Ebensperger T, Stahlhut P, Nachtrab F, Zabler S, Hanke R *Comparison of different sources for laboratory X-ray microscopy* Journal of Instrumentation **7** C10008, 2012 doi:10.1088/1748-0221/7/10/C10008

-
- [31] Eggert F *Standardfreie Elektronenstrahl-Mikroanalyse* Books on Demand GmbH, Norderstedt, 2005 ISBN:3-8334-2599-7
- [32] Ekvall I, Wahlström E, Claesson D, Olin H, Olsson E *Preparation and characterization of electrochemically etched W tips for STM* Measurement Science and Technology **10** 11-18, 1999 doi:10.1088/0957-0233/10/1/006
- [33] Esposito M, Jakubek J, Mettivier G, Pospisil S, Russo P, Solc J *Energy sensitive Timepix silicon detector for electron imaging* Nuclear Instruments and Methods Research A **652** 458-461, 2011 doi:10.1016/J.NIMA.2011.01.148
- [34] Feldkamp L A, Davis L C, Kress J W *Practical cone-beam algorithm* Journal of the Optical Society of America A **1(6)** 612-619, 1984 doi:10.1364/JOSAA.1.000612
- [35] Fotino M *Tip sharpening by normal and reverse electrochemical etching* Review of Scientific Instruments **64** 1, 1993 doi:10.1063/1.1144419
- [36] Fuchs T *Strahlaufhärtungskorrekturen in der Computer-Tomographie* Dissertation, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg, 1998
- [37] Goldstein J, Newbury D, Joy D, Lyman C, Echlin P, Lifshin E, Sawyer L, Michael J *Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis* Kluwer Academic Plenum Publishers New York, 2003 ISBN:0-306-47292-9
- [38] Graetz J, Müller D, Balles A, Fella C *Lenseless X-ray Nano-Tomography down to 150nm Resolution: On the Quantification of Modulation Transfer and Focal Spot of the Lab-based ntCT System* Journal of Instrumentation **16**, 2021 doi:10.1088/1748-0221/16/01/P01034
- [39] Gruber R, Gerth S, Claußen J, Wörlein N, Uhlmann N, Wittenberg T *Exploring Flood Filling Networks for Instance Segmentation of XXL-Volumetric and Bulk Material CT Data* Journal of Nondestructive Evaluation **40:1**, 2021 doi:10.1007/s10921-020-00734-w
- [40] Haine M E *The electron microscope. The present state of the art* London E. & F. F. N. Spon Ltd., 1961
- [41] Hashimoto T, Thompson G E, Zhou X, Withers P J *3D imaging by serial block face scanning electron microscopy for material science using ultramicrotomy* Ultramicroscopy **164** 6-18, 2016 doi:10.1016/j.ultramic.2016.01.005
- [42] Herstellerangabe für Zeiss Crossbeam 340 FE-SEMs Baujahr, 2014

- [43] Hollemann, Wiberg *Lehrbuch der Anorganischen Chemie 101. Auflage* Walter de Gruyter & Co, 1995 ISBN:3-11-012641-9
- [44] Hölzing A, Frimmel H E, Volland V, Dremel K, Zabler S, Minter W E L *The Cover of Mineralium Deposita's Anniversary Volume Uncovered* 13th SGA Biennial Meeting Proceedings **4** 1407, 2005
- [45] Hounsfield G N *Computerized transverse axial scanning (tomography) Part I. Description of the system* British journal of Radiology **46** 1016-1022, 1973 doi:10.1259/0007-1285-46-552-1016
- [46] Jaeger R G, Hübner W *Dosimetrie und Strahlenschutz: Physikalisch-technische Daten und Methoden für die Praxis* Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1974 ISBN:3133548026
- [47] Jaeschke E J, Khan S, Schneider J R, Hastings J B *Synchrotron Light Sources and Free-Electron Lasers, Second Edition* Springer, Cham 2020 doi:10.1007/978-3-030-23201-6
- [48] Jakubek J *Energy-sensitive X-ray radiography and charge sharing effect in pixelated detector* Nuclear Instruments and Methods Research A **607** 192-195, 2009 doi:10.1016/j.nima.2009.03.148
- [49] Janssen A P, Jones J P *The sharpening of field emitter tips by ion sputtering* Journal of Physics D: Applied Physics **4** 118, 1971 doi:10.1088/0022-3727/4/1/316
- [50] Japanese Elektron Optics Laboratory <https://www.jeol.co.jp>
- [51] Koch H W, Motz J W *Bremsstrahlung Cross-Section Formulas and Related Data* Reviews of Modern Physics **31/4** 920-956, 1959 doi:10.1103/RevModPhys.31.920
- [52] Krieger H *Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes* Springer Nature, 2019 doi:10.1007/978-3-662-60584-4
- [53] Krieger H *Strahlungsmessung und Dosimetrie* Springer Science + Business Media, Springer Fachmedien Wiesbaden, 2013 doi:10.1007/978-3-658-00386-9
- [54] Krieger H *Strahlungsquellen für Technik und Medizin* Springer Spektrum, 2013 doi:10.1007/978-3-658-00590-0
- [55] Kuypers F *Physik für Ingenieure und Naturwissenschaftler Band 2: Elektrizität Optik und Wellen* Wiley, Weinheim, 2012 ISBN:978-3-527-41144-3

-
- [56] Laloum D, Lorut F, Bertheau J, Audoit G, Bleuet P *Deep sub micrometer imaging of defects in copper pillars by X-ray tomography in a SEM* *Micron* **58** 1-8, 2014 doi:10.1016/j.micron.2013.10.014
- [57] Laszczyk K U *Field Emission Cathodes to Form an Electron Beam Prepared from Carbon Nanotube Suspensions* *Micromachines* **11** 260, 2020 doi:10.3390/mi11030260
- [58] Leo W R *Techniques for Nuclear and particle Physics Experiments* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1994 doi:10.1007/978-3-642-57920-2
- [59] Leung B O, Chou K C *Review of Super-Resolution Fluorescence Microscopy for Biology* *Applied Spectroscopy* **65** 967-980, 2011 doi:10.1366/11-06398
- [60] Llopart X, Campbell M *First test measurements of a 64k pixel readout chip working in single photon counting mode* *Nuclear Instruments and Methods Research A* **509** 157-163, 2003 doi:10.1016/S0168-9002(03)01565-1
- [61] Lutter F *Anwendungen für ein Laborbasiertes Nano-CT System Masterarbeit* Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2017
- [62] Lutter F, Stahlhut P, Dremel K, Zabler S, Fell J, Herrmann H G, Hanke R *Combining X-ray Nano Tomography with focused ion beam serial section imaging - Application of correlative tomography to integrated circuits* *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **500-501** 10-17, 2021 doi:10.1016/j.nimb.2021.05.006
- [63] Ma L, Slater T, Dowey P J, Yue S, Rutter E H, Taylor K G, Lee P D *Hierarchical integration of porosity in shales* *Science Reports* **8(1)** 11683, 2018 doi:10.1038/s41598-018-30153-x
- [64] Marshall F J, Ivancic S T, Mileham C, Nilson P M, Ruby J J, Stoeckl C, Scheiner B S, Schmitt M J *High-resolution x-ray radiography with Fresnel zone plates on the University of Rochester's OMEGA Laser Systems* *Review of Scientific Instruments* **92** 033701, 2021 doi:10.1063/5.0034903
- [65] Mayo S, Miller P, Gao D, Scheffeld-Parker J *Software image alignment for X-ray microtomography with submicrometre resolution using a SEM-based X-ray microscope* *Journal of Microscopy* **228.3** 257-263, 2007 doi:10.1111/j.1365-2818.2007.01857.x
- [66] Medvedskaya P, Lyatun I, Shevyrtalov S, Polikarpov M, Snigireva I, Younkin V, Snigirev A *Diamond refractive micro-lenses for full-field X-ray imaging and microscopy produced with ion beam lithography* *Optics Express* **28** 4/17 4773, 2020 doi:10.1364/OE.384647

- [67] Morneburg H *Bildgebende Systeme für die medizinische Diagnostik, 3. Auflage* Publicis MCD Verlag, Erlangen, 1995 ISBN:978-3-89578-002-8
- [68] Murphy E L, Good R H Jr *Thermionic Emission, Field Emission, and the Transition Region* Physical Review **102(6)** 1464-1473, 1956 doi:10.1103/physrev.102.1464
- [69] Niederlöhner D *Untersuchung zu Energiewichtung in der medizinischen Röntgenbildgebung mit dem Medipix2-Detektor* Dissertation Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg, 2006
- [70] Paganin D M *Coherent X-Ray Optics* Oxford University Press, 2006 ISBN:9780199673865
- [71] Paganin D M, Mayo S C, Gureyev T E, Miller P R, Wilkins S W *Simultaneous phase and amplitude extraction from a single defocused image of a homogeneous object* Journal of Microscopy **206.1** 33-40, 2002 doi:10.1046/j.1365-2818.2002.01010.x
- [72] Percival S J, Vartanian N E, Zhang B *Laser-pulled ultralong platinum and gold nanowires* RSC Advances **21**, 2014 doi:10.1039/C3RA47207H
- [73] Perini Gomes L A, Bleuet P, Filevich J, Parker W, Buijsse B, Kwakman L T *Developments on a SEM-based X-ray tomography system: Stabilization scheme and performance evaluation* Review of Scientific Instruments **88** 063706, 2017 doi:10.1063/1.4989406
- [74] Prekas G, Sabet H, Bhandari H H, Derderian G, Robertson F, Kudrolli H, Staples C J, Christian J, Kleinfelder S, Cool S, Aries L J D, Nagarkar V V *Direct and Indirect Detectors for X-Ray Photon Counting Systems* 2011 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record 1487-1493, 2011 doi:10.1109/NSSMIC.2011.6154354
- [75] Prekas G, Sellin P J, Veeramani P, Davies A W, Lohstroh A, Özsan M E, Veale M C *Investigation of the internal electric field distribution under in situ x-ray irradiation and under low temperature conditions by the means of Pockels effect* Journal of Physics D: Applied Physics **43** 085102, 2010 doi:10.1088/0022-3727/43/8/085102
- [76] Radon J *Über die Bestimmung von Funktionen durch ihre Integralwerte längs gewisser Mannigfaltigkeiten* Ber. Verh. Sächsische Akademie der Wissenschaften **69** 262-277, 1917

-
- [77] Reimer L *Scanning Electron Microscopy* Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1998 doi:10.1007/978-3-540-38967-5
- [78] Riedel *Anorganische Chemie* 9. Auflage, 2015 doi:10.1515/9783110355284
- [79] Sasov A, Pauwels B, Bruyndonckx P *New Lens-Free X-ray Source for Laboratory Nano-CT with 50-nm Spatial Resolution* AIP Conference Proceedings **1365** 140, 2011 doi:10.1063/1.3625324
- [80] Schroer C G, Kuhlmann M, Lengeler B, Günzler T F, Kurapova O, Benner B, Rau C, Simionovici A S, Snigirev A, Snigireva I *Beryllium parabolic refractive x-ray lenses* Proceedings of SPIE **4783** 10-18, 2002 doi:10.1117/12.451013
- [81] Schueder F, Gutiérrez J L, Beliveau B J, Saka S K, Sasaki H M, Woehrstein J B, Strauss M T, Grabmayer H, Yin P, Jungmann R *Multiplexed 3D super-resolution imaging of whole cells using spinning disk confocal microscopy and DNA-PAINT* Nature Communications **8** 2090, 2017 doi:10.1038/s41467-017-02028-8
- [82] Sidky E Y, Kao CM, Pan X *Accurate image reconstruction from few-views and limited-angle data in divergent-beam CT* Journal of X-ray Science and Technology **14.2** 119-139, 2006 doi:10.48550/arXiv.0904.4495
- [83] Snigirev A, Kohn V, Snigireva I, Lengeler B *A Compound refractive lens for focusing high-energy X-rays* Nature **384** 6604 49-51, 1996 doi:10.1038/384049a0
- [84] Stahlhut P *Aufbau und Charakterisierung eines Röntgenmikroskops mit Reflektionstarget* Diplomarbeit Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2012
- [85] Stahlhut P, Dremel K, Dittmann J, Engel J M, Zabler S, Hoelzing A, Hanke R *First results on laboratory nano-CT with a needle reflection target and an adapted toolchain* Proceedings of SPIE **9967**, 2016 doi:10.1117/12.2240561
- [86] Stahlhut P, Ebensperger T, Zabler S, Hanke R *A laboratory X-ray microscopy setup using a field emission electron source and micro-structured reflection targets* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B **324** 4-10, 2014 doi:10.1016/j.nimb.2013.12.028
- [87] Stahlhut P, Ebensperger T, Zabler S, Hanke R *Laboratory x-ray microscopy using a reflection target system and geometric magnification* Journal of Physics: Conference Series **463** 012007, 2013 doi:10.1088/1742-6596/463/1/012007
- [88] *Stopping powers for electrons and positrons [26 elements, 49 compounds and mixtures]* International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, MD (United States), 1984 ISBN:0-913394-31-9

- [89] Suzuki Y *Resolution Limit of Refractive Lens and Fresnel Lens in X-ray* Japanese Journal of Applied Physics **43** 7311, 2004 doi:10.1143/JJAP.43.7311
- [90] Thompson A, Lindau I, Attwood D, Liu Y, Gullikson E, Pianetta P, Howells M, Robinson A, Kim K J, Scofield J, Kirz J, Underwood J, Kortright J, Williams G, Winick H *X-ray Data Booklet* Center for X-ray optics and advanced light source, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, 2009
- [91] Tkachuk A, Duewer F, Cui H, Feser M, Wang S, Yun *X-ray computed tomography in Zernike phase contrast mode at 8 keV with 50-nm resolution using a Cu rotation anode X-ray source* Zeitschrift für Kristallographie **222** 650-655, 2007 doi:10.1524/zkri.2007.222.11.650
- [92] Van Grieken R, Markowicz A *Handbook of X-ray Spectrometry* Second Edition CRC Press, Boca Raton FL, 2001 doi:10.1201/9780203908709
- [93] Vila-Comamala J, Pan Y, Lombardo J J, Harris W M, Chiu W K S, David C, Wang Y *Zone-doubled Fresnel zone plates for high-resolution hard X-ray full-field transmission microscopy* Journal of Synchrotron Radiation **19(5)** 705-709, 2012 doi:10.1107/S0909049512029640
- [94] Vincenzi A, de Ruvo P L, Delogu P, Bellazini R, Brez A, Minuti M, Pinchera M, Spandre G *Energy characterization of Pixirad-1 photon counting detector system* Journal of Instrumentation **10.04** C04010, 2015 doi:10.1088/1748-0221/10/04/C04010
- [95] Zeiss, Zeiss.com
- [96] Zhou W, Apkarian R, Wang Z L, Joy D *Fundamentals of Scanning Electron Microscopy (SEM)* In: Zhou W, Wang Z L *Scanning Microscopy for Nanotechnology* Springer New York NY, 2006 doi:10.1007/978-0-387-39620-0_1
- [97] Zworykin V K, Morton G A, Ramberg E G, Hillier J, Vance A W *Electron Optics and the Electron Microscope* John Wiley & Sons p.111, 1945

Danksagung

An erster Stelle möchte ich mich bei Prof. Dr. Randolph Hanke bedanken, der es mir ermöglicht hat an diesem interessanten Thema zu arbeiten und das Projekt auf mehreren internationalen Konferenzen vor zu stellen.

Besonderer Dank geht an Dr. Astrid Hölzing, Dr. Jens Engel und Fabian Lutter, die mir bei experimentellen, technischen und anderen Fragen stets mit Rat und Tat zur Seite standen und damit maßgeblichen Anteil an der Entwicklung der hier vorgestellten Anlage haben. Ebenfalls möchte ich mich bei Jonas Graez und Kilian Dremel für die Rekonstruktion der aufgenommenen Daten zu 3D Datenätzen und bei Dr. Peter Krüger vom Fraunhofer IZZP in Dresden für die Aufnahmen mit dem Zeiss/Xradia UltraXRM L200 bedanken.

Ich möchte mich außerdem für die Förderung der Projektgruppe „Nano-Röntgensysteme zur Materialcharakterisierung“ durch das Bayerische Staatsministerium für Wirtschaft, Landesentwicklung und Energie bedanken, sowie bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die im Rahmen ihrer Exzellenzinitiative den Exzellenzcluster „Engineering of Advanced Materials“ an der Universität Erlangen-Nürnberg unterstützt.

Den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Lehrstuhls für Röntgenmikroskopie bin ich für die wunderbare Arbeitsatmosphäre sowie für die vielen interessanten fachlichen und fachfremden Diskussionen dankbar.

Außerdem möchte ich mich bei Prof. Dr. Jürgen Groll dafür bedanken, dass er mir gezeigt hat, welch hohen Stellenwert gutes wissenschaftliches Arbeiten im universitären Umfeld haben kann.

Vor allem aber möchte ich mich bei Heike, Ulrich, Marcus und Verena bedanken, ohne deren Unterstützung ich heute nicht da wäre, wo ich jetzt bin.