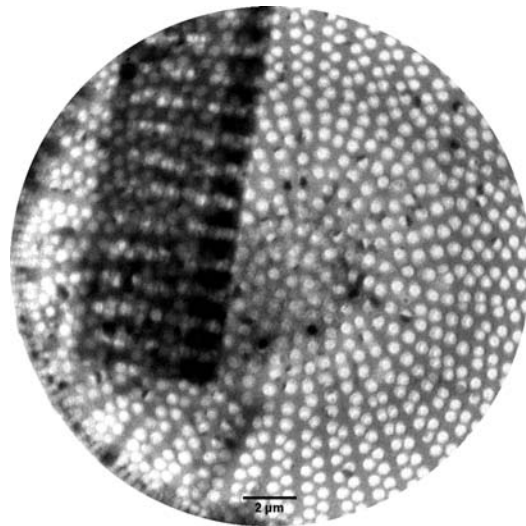


ENTWICKLUNG EINES  
TRANSMISSIONSMIKROSKOPS FÜR  
WEICHE RÖNTGENSTRAHLUNG UND  
DIE ANWENDUNG AN LABORQUELLEN



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

vorgelegt von

David Schäfer

aus Dernbach

Würzburg 2010

Angefertigt mit Genehmigung der Fakultät für Physik und Astronomie der  
Julius-Maximilians-Universität Würzburg

Eingereicht am 02. September 2010  
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Christian Spielmann  
2. Gutachter: Prof. Dr. Friedrich Th. Reinert  
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. Christian Spielmann  
2. Prüfer: Prof. Dr. Friedrich Th. Reinert  
3. Prüfer: Prof. Dr. Fakher F. Assaad  
im Promotionskolloquium

Tag der mündlichen Prüfung (Promotionskolloquium): 09. Dezember 2010

Mehr Licht!

---

*(Johann Wolfgang von Goethe)*



## Abstract

The presented work deals with the development and construction of a portable soft X-ray transmission microscope. It is specially designed for applications at laboratory sources but can also be operated at synchrotron facilities due to its modular layout. The microscope is based on a zone plate imaging system in conjunction with a CCD-camera as detector. The field of application ranges from the water-window spectral region between 2.3 nm and 4.4 nm wavelength to the extreme ultraviolet ( $\lambda < 20$  nm). Vacuum prepared samples like lithographical test objects, diatoms or chemically fixed biological cells can be investigated.

Two laboratory sources, a laser induced plasma based on a liquid nitrogen jet target and an electrical discharge source using hollow cathode electrode geometry, have been utilized. Due to the highly different source concepts the sources had to be characterized with regard to the radiant intensity and brilliance in order to determine an adequate condenser system. Therefore, beside measurements with an absolute calibrated spectrograph, the source sizes and line widths of the hydrogen- and helium-like emission lines of nitrogen at  $\lambda_{Ly-\alpha} = 2,48$  nm and  $\lambda_{He-\alpha} = 2,88$  nm have been investigated.

For good image quality, parameters like uniform and monochromatic illumination of the object with high intensity and matched numerical aperture of condenser and imaging optics are important parameters. Therefore a zone plate is used as condenser at the laser induced plasma source. The zone plate images the source into the object plane and also acts as a linear monochromator. Due to the wavelength depending focal length of the zone plate the setup features spectral imaging capabilities. Since the emitting source area of the electrical discharge is about four orders of magnitude larger than the source size of the laser induced plasma, a gold-coated axially symmetric ellipsoid is used for object illumination at the discharge source. With respect to the lower plasma temperature of the discharge source and closely related weak emission of hydrogen like emission lines, the *He- $\alpha$*  emission line can be selected by applying a titanium filter.

The performance of both concepts is presented by imaging of test objects and biological cells. Whereas the spatial Rayleigh-resolution at the laser induced plasma source is limited to 70 nm due to vibrations, a nearly diffraction limited resolution of 40 nm can be demonstrated at the electrical discharge source. The exposure time at the laser induced plasma source at a magnification of 1000 depends on the object and ranges from 10 to 30 minutes. Due to a 10-times higher intensity in the object plane at the electrical discharge source the exposure time at this source is proportionate shorter. Besides performance tests a new field of application in organic semiconductors is described and first experiments are presented.



## Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Entwicklung und Konstruktion eines mobilen Transmissionsmikroskops für weiche Röntgenstrahlung. Dieses ist speziell für den Einsatz an Laborquellen konzipiert und erlaubt durch einen modularen Aufbau auch den Betrieb an Synchrotroneinrichtungen. Das Mikroskop basiert auf einem abbildenden System mit einer Zonenplatte als Objektiv und einer CCD-Kamera als Detektor. Das Anwendungsgebiet erstreckt sich über den spektralen Bereich des Wasserfensters zwischen 2,3 nm und 4,4 nm Wellenlänge bis hin zu extrem ultravioletter Strahlung ( $\lambda < 20$  nm). Dabei können vakuumtaugliche Proben, wie beispielsweise lithographische Testobjekte, Kieselalgen oder chemisch fixierte biologische Zellen untersucht werden.

Bei den verwendeten Laborquellen handelt es sich zum einen um ein laserinduziertes Plasma mit einem flüssigen Stickstoffstrahl als Target und zum anderen um eine elektrische Stickstoffgas-Entladungsquelle mit Hohlkathoden-Elektrodengeometrie. Aufgrund der stark unterschiedlichen Quellkonzepte müssen die Quellen für die Entwicklung entsprechender Kondensorkonzepte in Bezug auf ihre spektrale Strahldichte und Brillanz charakterisiert werden. Daher wurden neben Messungen mit einem absolut kalibrierten Spektrographen auch die Quellgrößen und Linienbreiten der wasserstoff- und heliumähnlichen Emissionslinien von Stickstoff bei  $\lambda_{Ly-\alpha} = 2,48$  nm und  $\lambda_{He-\alpha} = 2,88$  nm untersucht.

Für eine gute Bildqualität sind neben einer gleichmäßigen, monochromatischen Ausleuchtung die Intensität in der Objektebene und eine Anpassung der numerischen Apertur von Kondensor und abbildender Optik wichtige Parameter. Daher wird an der laserinduzierten Plasmaquelle eine Zonenplatte als Kondensor verwendet. Diese bildet die Quelle 1:1 in die Objektebene ab und wirkt gleichzeitig als Linearmonochromator. Aufgrund der wellenlängenabhängigen Brennweite bietet sie zudem die Möglichkeit Spektromikroskopie zu betreiben. Da die emittierende Quellfläche der Entladungsquelle etwa vier Größenordnungen größer ist als die der laserinduzierten Plasmaquelle, wird an der Entladungsquelle ein mit Gold bedampfter, rotationssymmetrischer Ellipsoid für die Objektbeleuchtung verwendet. Angesichts einer geringeren Plasmatemperatur der Entladungsquelle und der damit verbundenen schwachen Emission der wasserstoffähnlichen Linien kann die  $He-\alpha$ -Linie mit Hilfe eines Titan-Filters freigestellt werden.

Anhand von Testobjekten und biologischen Proben wurde die Leistungsfähigkeit der beiden Konzepte gegenübergestellt. Während die räumliche Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium an der laserinduzierten Plasmaquelle durch Vibrationen im Aufbau auf ca. 70 nm begrenzt ist, konnte an der elektrischen Entladungsquelle eine nahezu beugungsbegrenzte Auflösung von 40 nm nachgewiesen werden. Die Belichtungszeiten bei 1000-facher Vergrößerung liegen bei der laserinduzierten Quelle je nach Objekt zwischen 10 und 30 Minuten. Durch die zehnfach höhere Intensität in der Objektebene ist die Belichtungszeit an der elektrischen Entladungsquelle entsprechend kürzer. Neben diesen Ergebnissen wird ein neues Anwendungsgebiet im Bereich organischer Halbleiter vorgestellt und erste Experimente präsentiert.





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung</b>	<b>5</b>
2.1	Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie . . . . .	5
2.2	Historischer Abriss der Röntgenmikroskopie . . . . .	8
2.3	Konzepte der Röntgenmikroskopie . . . . .	9
2.3.1	Rastermikroskopie . . . . .	9
2.3.2	Transmissionsmikroskopie . . . . .	10
2.4	Auflösung und Kontrastmechanismen . . . . .	12
2.5	Strahlenschäden . . . . .	15
<b>3</b>	<b>Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung</b>	<b>17</b>
3.1	Reflektive Optiken . . . . .	17
3.1.1	Spiegel im streifenden Einfall . . . . .	17
3.1.2	Multilayer-Spiegel . . . . .	18
3.2	Diffraktive Optiken . . . . .	20
3.2.1	Gitter . . . . .	20
3.2.2	Zonenplatten . . . . .	22
3.3	Optische Filter . . . . .	26
3.4	Detektoren . . . . .	31
3.4.1	Ortsauflösende Detektoren . . . . .	33
3.4.2	Zeitauflösende Detektoren . . . . .	34
<b>4</b>	<b>Laborquellen für die Röntgenmikroskopie</b>	<b>35</b>
4.1	Theoretische Grundlagen zur Plasmaphysik . . . . .	35
4.1.1	Plasmaerzeugung und elementare Plasmaparameter . . . . .	36
4.1.2	Strahlungsmechanismen in Plasmen . . . . .	39
4.1.3	Targetmaterialien für die Plasmaerzeugung . . . . .	42
4.2	Laserinduzierte Plasmaquelle . . . . .	43
4.2.1	Lasersystem . . . . .	44
4.2.2	Targetsystem . . . . .	45
4.3	Elektrische Entladungsquelle . . . . .	47

## Inhaltsverzeichnis

---

4.3.1	Funktionsprinzip . . . . .	48
4.3.2	Aufbau der Entladungsquelle . . . . .	50
4.4	Charakterisierung der Quellen . . . . .	51
4.4.1	Kalibrierung eines Spalt-Gitter-Spektrographen . . . . .	52
4.4.2	Charakterisierung der laserinduzierten Plasmaquelle . . . . .	55
4.4.3	Charakterisierung der elektrischen Entladungsquelle . . . . .	63
4.4.4	Vergleich der beiden Quellen . . . . .	67
<b>5</b>	<b>Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop</b>	<b>69</b>
5.1	Beleuchtungssystem . . . . .	69
5.1.1	Aufbau mit laserinduzierter Plasmaquelle . . . . .	70
5.1.2	Aufbau mit elektrischer Entladungsquelle . . . . .	74
5.1.3	Vergleich der Kondensorkonzepte . . . . .	78
5.2	Proben . . . . .	79
5.2.1	Testobjekte . . . . .	79
5.2.2	Biologische Zellen . . . . .	81
5.3	Abbildendes System . . . . .	82
5.4	Leistungsfähigkeit des Mikroskops . . . . .	83
5.4.1	Ergebnisse mit der laserinduzierten Plasmaquelle . . . . .	86
5.4.2	Ergebnisse mit der Entladungsquelle . . . . .	91
5.4.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	101
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>107</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>111</b>
	<b>Liste der Veröffentlichungen</b>	<b>127</b>

# 1 Einleitung

Die Geschichte der Mikroskopie lässt sich bis ins Altertum zurückverfolgen. In naturgeschichtlichen Schriften des römischen Gelehrten *Plinius der Ältere* lassen sich ausführliche Beschreibungen von Insektendetails finden, die er nur mit Hilfe einer Lupe hätte herausfinden können, wobei er diese nicht ausdrücklich erwähnt. Mit der Erfindung des Fernrohrs durch *Galileo Galilei* im Jahre 1609 wurde der Grundstein für die Entwicklung des Mikroskops gelegt. Ein Jahr später entdeckten die Linsenschleifer *Hans Jansen* und sein Sohn *Zacharias*, dass ein Teleskop mit verändertem Linsenabstand und Umkehrung der Linsen in ein Mikroskop umgebaut werden kann. Auch *Galilei* kam diesem Sachverhalt auf die Spur und führte den Begriff „Mikroskop“ offiziell ein. Ein weiterer Wegbereiter der mikroskopischen Forschung war *Robert Hooke* (1635 – 1703), der mit einer selbst konstruierten Linsenschleifmaschine zusammengesetzte Mikroskope mit Objektiv und Okular baute, die eine 170-fache Vergrößerung erreichten. Er studierte zahlreiche Objekte des Alltags und hielt seine Entdeckungen im ersten veröffentlichten Buch über die Mikroskopie, der „*Micrographia*“, fest. Mit einem relativ einfachen Lupeninstrument gelang es *Antoni van Leeuwenhoek* (1632 – 1723) jedoch, bessere Abbildungseigenschaften als mit den damaligen zusammengesetzten Mikroskopen zu erzielen. Er entwickelte neue Methoden zum Schleifen und Polieren von Linsen, mit denen er Objekte bis zu 270-fach vergrößert abbilden konnte [1].

Bis zum Ende des 19. Jahrhunderts ist die Entwicklung der klassischen Lichtmikroskopie hinsichtlich der räumlichen Auflösung bis an die physikalische Grenze, welche etwa bei der Hälfte der verwendeten Lichtwellenlänge liegt, vorgedrungen. Erst mit der Entdeckung des Lasers eröffneten sich neue Möglichkeiten, Mikroskopie mit Licht jenseits der *Abbe'schen Auflösungsgrenze* zu betreiben. Mit einer speziellen Variante der Fluoreszenz-Laser-Rastermikroskopie, der STED-Mikroskopie (engl.: Stimulated Emission Depletion), ist es möglich, diese Grenze zu umgehen. Hierbei wird das zu untersuchende Objekt an bestimmten Stellen mit einem Fluoreszenzfarbstoff versetzt und mit Licht geeigneter Wellenlänge angeregt. Bevor die beleuchteten Moleküle fluoreszieren können, wird ein zweiter Lichtstrahl mit einer ringförmigen Intensitätsverteilung auf die angeregte Stelle gerichtet. Die äußeren Moleküle werden damit zur stimulierten Fluoreszenz angeregt, während die inneren Moleküle erst später spontan fluoreszieren. Durch eine geschickte Wahl des Intensitätsprofils im abregenden Strahl kann somit der innere Bereich kleiner als das optische Auflösungsvermögen gewählt werden. Dabei ist eine räumliche Auflösung von 15 nm und besser bereits demonstriert worden [2, 3]. Nachteilig an dieser Methode ist jedoch, dass nur der Fluoreszenzfarbstoff und nicht das Objekt selbst betrachtet werden kann.

## 1 Einleitung

---

Die Elektronenmikroskopie bietet ein deutlich höheres Auflösungsvermögen als die Lichtmikroskopie. Durch die hohe Energie der für die Abbildung benutzten Elektronen und die damit verbundene kleinere *De-Broglie-Wellenlänge* kann man heutzutage bis in den atomaren Bereich vorstoßen [4]. Allerdings verlangt die Elektronenmikroskopie das Arbeiten unter Hochvakuumbedingungen und fordert daher eine aufwändige Probenpräparation. Gerade biologische Proben oder allgemein in ihrer natürlichen Erscheinungsform wässrige Objekte müssen entweder getrocknet und chemisch fixiert oder schockgefroren werden. Dies führt häufig zu einer Deformation oder Zerstörung von Objektstrukturen und erschwert damit die Interpretation der Aufnahmen. Eine Ausnahme stellt das ESEM (engl.: Environmental Scanning Electron Microscope) dar. Hier befindet sich in der Probenkammer ein Druck von etwa 1...25 mbar, der eine Untersuchung von Proben mit flüchtigen Anteilen ohne merkliche Trocknung ermöglicht. Nachteilig ist jedoch, dass durch die Streuung des Elektronenstrahls an den vorhandenen Gasmolekülen die laterale Auflösung beschränkt ist. Während ein Transmissionselektronenmikroskop (TEM) eine räumliche Auflösung von ca. 0,1 nm erreichen kann, liegt die realistische Grenze für ein ESEM bei ca. 10...50 nm. Darüber hinaus erlaubt ein TEM durch die sehr geringe Eindringtiefe der Elektronen nur die Untersuchung dünner Präparate mit einer Dicke von einigen 100 nm [4–6].

Die Rastersondenmikroskopie erschließt mit ihren vielfältigen Varianten, welche sich durch die Art der Wechselwirkung einer nanoskopischen Sonde und der Oberfläche der Probe unterscheiden, den Bereich atomarer Auflösung. Die Wechselwirkung kann eine Lichtwelle oder eine Kraft sein, welche mechanischer, elektrischer oder magnetischer Natur ist. Die erreichbare Auflösung ist unabhängig von der *Abbe'schen Grenze* und kann im Falle der Rastertunnelmikroskopie bis zu 10 pm betragen [7]. Die Anwendung dieser Methoden bleibt jedoch auf Oberflächenuntersuchungen von Festkörpern beschränkt, wodurch sich für biologische Proben ohne aufwändige Präparationsmethoden kein adäquates Anwendungsgebiet erschließt.

Eine Alternative bietet die Röntgenmikroskopie. Durch die Verwendung von weicher Röntgenstrahlung, die eine um zwei Größenordnungen kleinere Wellenlänge als sichtbares Licht aufweist, liegt die Auflösungsgrenze entsprechend niedriger. Ein Vorteil gegenüber der Elektronenmikroskopie ist die um Größenordnungen geringere deponierte Strahlungsdosis im zu untersuchenden Objekt. Dies hängt stark von der Dicke der Probe und der zu erreichenden Auflösung ab [8]. Durch die fortwährende Entwicklung neuer theoretischer und experimenteller Methoden zur Auflösungs- und Kontrastverbesserung ist die Röntgenmikroskopie bis heute so weit vorangeschritten, dass sie sich neben anderen mikroskopischen Verfahren zu einem bedeutsamen Forschungsinstrument in der Biologie, der Bodenkunde und der medizinischen Forschung etabliert hat [9]. Mittlerweile existieren zahlreiche Mikroskope an Elektronenspeicherringen, welche durch ihre unterschiedlichen Konzepte (rasternd oder in Transmission) von weicher bis harter Röntgenstrahlung ein breites Anwendungsgebiet

---

erschließen. Da die Anzahl von Mikroskopen an Elektronenspeicherringen begrenzt ist und deren Betrieb hohe Kosten verursacht, werden große Anstrengungen unternommen, um geeignete Laborquellen für eine breitere Anwendung röntgenmikroskopischer Methoden zu entwickeln. Erste Erfolge konnten in den 90er-Jahren unter Verwendung laserinduzierter Plasmen [10, 11] und elektrischer Entladungsplasmen [12] verzeichnet werden. Die aktuelle Entwicklung solcher Quellen basiert auf einer Erhöhung der Photonenzahlen und spektraler Brillanz, um die Belichtungszeiten auf das Niveau von Synchrotron-basierten Röntgenmikroskopen herabzusetzen und damit deren Verwendung zu Forschungszwecken im Labor attraktiver zu gestalten [13].

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Entwicklung und Konstruktion eines Transmissionsmikroskops für weiche Röntgenstrahlung, welches sowohl für den Betrieb an Speicherringen als auch für den Betrieb an Laborquellen geeignet ist. Der Aufbau wurde an einem laserinduzierten Plasma (LIP) und einer elektrischen Entladungsquelle erfolgreich getestet und so konstruiert, dass eine Adaption an die verschiedenen Quellen mit minimalen Aufwand möglich ist. Im Wesentlichen besteht das Mikroskop aus einem Kondensator, dem zu untersuchenden Objekt, einem Objektiv und einem zweidimensionalen Detektor. Die einzelnen Komponenten sind auf verschiedenen Verfahreinheiten montiert und können über manuelle Antriebe, Schrittmotoren und Piezoantriebe justiert werden. Bei der laserinduzierten Plasmaquelle werden Zonenplatten als beleuchtende und abbildende Optik verwendet. Für die Beleuchtung des Objekts an der Entladungsquelle wird hingegen ein rotationssymmetrischer Ellipsoid-Spiegel eingesetzt. Durch die Verwendung von Beugungsoptiken für die Beleuchtung und Abbildung der Probe ist ein Wechsel der Wellenlänge durch Verändern der Abstände zwischen den einzelnen Komponenten möglich. Damit eignet sich der Aufbau am LIP auch für die Spektromikroskopie. Für die Auslegung der optischen Komponenten sind die spektralen Eigenschaften, wie beispielsweise die Quellgröße und die Photonenzahlen der Plasmaquellen, von besonderer Relevanz. Nur auf diese Weise ist es möglich, die beiden Konzepte oder auch Konzepte anderer Arbeitsgruppen miteinander vergleichen zu können. Allerdings sind genaue Messungen von Photonenzahlen nur mit kalibrierten Optiken und Detektoren möglich. Dazu sind Laborquellen wegen ihrer Instabilität nicht geeignet. Deshalb wurden Experimente am Speicherring *DORIS III* (*DESY*, Hamburg) durchgeführt, um einen Spektrographen zu kalibrieren. Nach der Charakterisierung der Quellen wurden verschiedene lithographische und biologische Testobjekte untersucht und die beiden Konzepte im Hinblick auf die erreichbare Auflösung, Kontrast und Signal-Rausch-Verhältnis miteinander verglichen. Neben der Darstellung der Ergebnisse werden zudem neue Anwendungsgebiete der Labor-Röntgenmikroskopie aufgezeigt und erste Versuche vorgestellt. Da für die Experimente keine optimierten Optiken zur Verfügung standen, werden Prognosen erstellt und beide Konzepte in Bezug auf einen kommerziellen Einsatz gegenübergestellt.



## 2 Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung

Wie im sichtbaren Spektralbereich bestehen Transmissionsmikroskope für Röntgenstrahlung aus einem Beleuchtungssystem und einem abbildenden System. Durch die speziellen Eigenschaften von Röntgenstrahlung und deren Wechselwirkung mit Materie ist die Auswahl an verwendbaren Lichtquellen, Optiken und Detektoren jedoch stark begrenzt (vgl. Kapitel 3 und 4). In den folgenden Abschnitten werden die grundlegenden Zusammenhänge erläutert und ein kurzer historischer Abriss der Röntgenmikroskopie und deren Entwicklung in den letzten Jahren gegeben. Danach folgt eine Gegenüberstellung verschiedener Mikroskopie-Konzepte und eine genauere Betrachtung der Kontrastmechanismen bei der Röntgenmikroskopie.

### 2.1 Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Die optischen Eigenschaften von Materie sind für die Röntgenmikroskopie von besonderer Relevanz. Grundlegend werden diese durch die Wechselwirkungsprozesse von Röntgenstrahlung mit Materie bestimmt und hängen stark von der Wellenlänge  $\lambda$  der verwendeten Strahlung ab. Man unterscheidet zwischen extrem ultravioletter (EUV,  $10 \text{ nm} < \lambda < 100 \text{ nm}$ ), weicher ( $0,1 \text{ nm} < \lambda < 10 \text{ nm}$ ) und harter Röntgenstrahlung ( $\lambda < 0,1 \text{ nm}$ ). Bereits im Bereich der EUV-Strahlung erreicht die Wellenlänge molekulare Dimensionen. Dementsprechend ist die Photonenenergie ( $E_{\text{Ph}} = 1239,842 \text{ eV nm}/\lambda$ ) mit der atomaren Bindungsenergie von Elektronen vergleichbar. Beispielsweise liegt die Bindungsenergie der *K*-Schale von Kohlenstoff bei  $284,2 \text{ eV}$  [14], was der Energie eines Photons mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 4,36 \text{ nm}$  entspricht. Auf mikroskopischer Ebene wird die Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie durch elastische und inelastische Streuung sowie durch photoelektrische Absorption bestimmt. Dabei wird das Amplitudenverhältnis zwischen elektromagnetischen Wellen mit der Kreisfrequenz  $\omega$ , die an einem Atom und einem freien Elektron gestreut werden, durch den komplexen atomaren Streufaktor  $f^0$  beschrieben [15, 16]. Für Streuung in Vorwärtsrichtung gilt:

$$f^0(\omega) = f_1^0(\omega) - i f_2^0(\omega) \quad (2.1)$$

Die Betrachtung der makroskopischen Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie erfolgt über die komplexe Brechzahl

$$n(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega), \quad (2.2)$$

## 2 Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung

---

welche die Phasenschiebung  $\delta$  und die Absorption  $\beta$  in Materie beschreibt. Diese Faktoren können direkt aus dem Real- und Imaginärteil des atomaren Streufaktors berechnet werden [16]:

$$\delta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1^0(\omega) \quad \beta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2^0(\omega) \quad (2.3)$$

Hierbei ist  $n_a$  die mittlere Atomdichte des Materials und  $r_e$  der klassische Atomradius. Für einen großen Spektralbereich sind die Werte für  $f_1^0$  und  $f_2^0$  tabelliert [14, 17]. Die Daten beruhen auf Absorptionsmessungen zur Bestimmung von  $f_2^0$  und anschließender Berechnung von  $f_1^0$  unter Anwendung der *Kramer-Kronig-Relation* [16], da die direkte experimentelle Bestimmung von  $f_1^0$  über interferometrische Methoden schwierig ist.

Für eine ebene, elektromagnetische Welle  $E$  mit der Wellenzahl  $k = 2\pi/\lambda$  gilt für eine Ausbreitungsrichtung entlang der  $z$ -Achse:

$$E(z, t) = E_0 e^{-i(\omega t - kz)} \quad (2.4)$$

Mit der um die komplexe Brechzahl (Gleichung 2.2) erweiterten Dispersionsrelation

$$\frac{\omega}{k} = \frac{c}{n(\omega)} \quad \Rightarrow \quad k = \frac{\omega}{c} (1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega)) \quad (2.5)$$

sowie der Lichtgeschwindigkeit  $c$  ergibt sich damit:

$$E(z, t) = E_0 e^{-i\omega(t-z/c)} e^{-i(2\pi\delta/\lambda)z} e^{-(2\pi\beta/\lambda)z} \quad (2.6)$$

Der erste Term beschreibt die Propagation der Welle im Vakuum, der zweite und dritte die Phasenschiebung und die Absorption in Materie. Bildet man das Betragsquadrat des Quotienten aus den Gleichungen 2.6 und 2.4, so erhält man die resultierende Intensität  $I$  nach dem Durchgang der Welle durch ein Medium der Dicke  $r$ :

$$I = I_0 e^{-4\pi\beta r/\lambda} \quad (2.7)$$

Demnach verliert eine elektromagnetische Welle beim Durchgang durch ein Medium ihre Intensität exponentiell. Nach der Absorptionslänge  $l_{abs} = \lambda/(4\pi\beta)$  ist die Intensität auf  $1/e$  des anfänglichen Wertes gesunken. Experimentell kann dieser Wert über das *Lambert-Beersche-Gesetz*

$$\frac{I}{I_0} = e^{-4\pi\beta r/\lambda} = e^{-r/l_{abs}} = e^{-\mu_l r} \quad (2.8)$$

bestimmt werden und verhält sich reziprok zum Absorptionskoeffizienten  $\mu_l$ .

Im Allgemeinen weicht die Brechzahl im Spektralbereich der Röntgenstrahlung nur geringfügig von eins ab. Dies führt dazu, dass auf Brechung basierende Optiken, wie beispielsweise klassische Linsen, sehr lange Brennweiten aufweisen würden. Zudem ist die Absorption in diesem Spektralbereich sehr hoch. Demnach existieren für diesen Bereich keine klassischen



## 2.1 Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

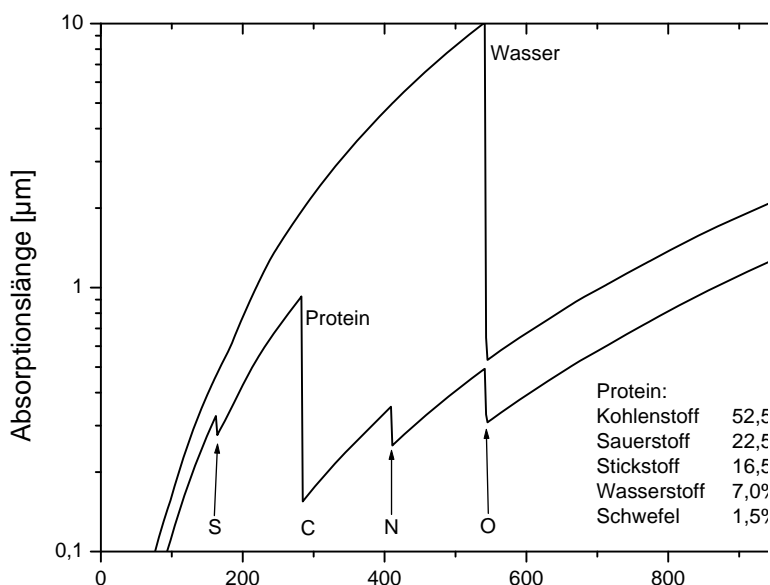
Brechungslinsen. Nur für härtere Röntgenstrahlung ( $E_{\text{Ph}} > 5 \text{ keV}$ ), bei der die Absorption um einige Größenordnungen geringer ist, ist der Einsatz von Brechungslinsen als abbildende Systeme für ein Röntgenmikroskop möglich. Jedoch ist die Abbildungsqualität und erreichbare räumliche Auflösung dabei sehr gering [18]. Die Werte von  $\delta$  und  $\beta$  liegen für die meisten Elemente in der Größenordnung von  $10^{-1}$  bis  $10^{-5}$ . In Tabelle 2.1 sind diese Werte für Aluminium, Siliziumnitrid und einem typischen Protein (vgl. auch Abbildung 2.1, Abschnitt 2.2) dargestellt. Für EUV-Strahlung ( $E_{\text{Ph}} = 100 \text{ eV}$ ) ist die Absorption um einige Größenordnungen höher als im härteren Spektralbereich ( $E_{\text{Ph}} = 5 \text{ keV}$ ). Begründet ist dies durch die im EUV-Spektralbereich liegenden Innerschalen-Resonanzen von leichteren Elementen. Daher sind in Transmission arbeitende optische Elemente in der Regel sehr dünn und werden vorwiegend auf Silizium- oder Siliziumnitrid-Membranen mit einer Dicke von 100 nm oder weniger hergestellt. Ferner ist die Phasenschiebung meist größer als die Absorption ( $\delta/\beta > 1$ ). Aus diesem Grund ist der Einsatz von phasensensitiven Verfahren in der Röntgenmikroskopie, wie beispielsweise differentieller Interferenzkontrast, sinnvoll (vgl. Abschnitt 2.4). Durch die starke Absorption von EUV- und weicher Röntgenstrahlung müssen Strahlungserzeugung, -führung und -detektion im Vakuum stattfinden. Schon der Weg durch 10 mm Luft würde die Intensität von weicher Röntgenstrahlung mit  $\lambda > 1,5 \text{ nm}$  um mehrere Größenordnungen abschwächen. Je nach Photonenenergie der Strahlung und Länge des Aufbaus reicht ein Druck im Bereich von  $10^{-3} \dots 10^{-4} \text{ mbar}$  in der Regel für eine Transmission von über 90 % aus.

**Tabelle 2.1:** Werte für  $\delta$  und  $\beta$  von Aluminium, Siliziumnitrid ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) und Protein für verschiedene Wellenlängen im Spektralbereich der Röntgenstrahlung [14].

	$E_{\text{Ph}}$ <i>eV</i>	$\lambda$ <i>nm</i>	$\delta$	$\beta$	$\delta/\beta$
Aluminium	100	12,4	$2,5 \cdot 10^{-4}$	$2,9 \cdot 10^{-2}$	$8,6 \cdot 10^{-3}$
	500	2,5	$2,0 \cdot 10^{-3}$	$4,0 \cdot 10^{-4}$	5,0
	5000	0,25	$2,2 \cdot 10^{-5}$	$9,9 \cdot 10^{-7}$	22
$\text{Si}_3\text{N}_4$	100	12,4	$7,8 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	0,6
	500	2,5	$2,6 \cdot 10^{-3}$	$9,3 \cdot 10^{-4}$	2,8
	5000	0,25	$2,9 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-6}$	28
Protein	100	12,4	$3,2 \cdot 10^{-2}$	$8,2 \cdot 10^{-3}$	3,9
	500	2,5	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$4,9 \cdot 10^{-4}$	3,2
	5000	0,25	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$1,8 \cdot 10^{-7}$	103,2

### 2.2 Historischer Abriss der Röntgenmikroskopie

Die Entdeckung der Röntgenstrahlung durch *Wilhelm Conrad Röntgen* am Physikalischen Institut der Universität Würzburg im Jahre 1895 eröffnete ein breites Anwendungsgebiet im Bereich der Materialanalyse und medizinischen Bildgebung und hat, neben der Entwicklung geeigneter Methoden zur Manipulation und Detektion der Strahlung, den Grundstein für die Röntgenmikroskopie gelegt. Die geringe Wellenlänge und das damit verbundene höhere räumliche Auflösungsvermögen in Kombination mit der hohen Durchdringungsfähigkeit von Röntgenstrahlen durch Materie sind für die Mikroskopie vielversprechende Faktoren. Im Jahre 1923 untersuchte *Compton* die Reflexion von Röntgenstrahlen im streifenden Einfall [19]. Dies führte 1949 zum weltweit ersten Röntgenmikroskop von *Kirkpatrick* und *Baez*, welches mit Spiegeln im streifenden Einfall in einem Wellenlängenbereich zwischen 0,1 nm und 1 nm arbeitete [20, 21]. Drei Jahre später schlug *Volter* vor, Röntgenmikroskopie in einem Wellenlängenbereich zwischen den *K*-Absorptionskanten von Sauerstoff ( $\lambda = 2,28$  nm,  $E_{\text{Ph}} = 543$  eV) und Kohlenstoff ( $\lambda = 4,36$  nm,  $E_{\text{Ph}} = 284$  eV) zu betreiben. Hier besitzt organische Materie, welche zu einem Großteil aus Kohlenstoff, Sauerstoff und Stickstoff besteht, gegenüber Wasser einen zehnfach größeren linearen Absorptionskoeffizienten, wodurch ein natürlicher Absorptionskontrast entsteht (siehe Abbildung 2.1). Dieser Spektralbereich wird daher auch als „Wasserfenster“ bezeichnet.



**Abbildung 2.1:** Absorptionslänge von Wasser und Protein im Spektralbereich der weichen Röntgenstrahlung. Der Bereich zwischen den *K*-Absorptionskanten von Kohlenstoff ( $E_{\text{Ph}} = 284$  eV) und Sauerstoff ( $E_{\text{Ph}} = 543$  eV) wird als „Wasserfenster“ bezeichnet [14].

Durch die hohe Transmission von Wasser an der  $O_K$ -Absorptionskante ergibt sich hier die Möglichkeit, auch dickere — typischerweise bis zu 10  $\mu\text{m}$  — biologische Objekte in ihrer wässrigen Umgebung zu untersuchen und mit tomographischen Verfahren dreidimensionale Informationen über deren Aufbau zu gewinnen [16, 22, 23]. Da in den 50er-Jahren noch keine hinreichend brillanten Röntgenquellen für diesen Spektralbereich zur Verfügung standen, gelang es *Niemann, Rudolph* und *Schmahl* erst im Jahre 1976 am Elektronensynchrotron *DESY* röntgenmikroskopische Aufnahmen mit hoher räumlicher Auflösung anzufertigen [24]. Entgegen *Wolters* Vorschlag Spiegel für die Abbildung zu benutzen, verwendeten sie holographisch hergestellte Zonenplatten für die Beleuchtung der Probe und als hochauflösendes Objektiv [25]. Ihr Transmissionsmikroskop wird heute mit zahlreichen Erweiterungen und Verbesserungen, wie beispielsweise der Implementierung eines Kryo-Rotations-Probenhalters für die tomographische Untersuchung von eingefrorenen Zellen, am Synchrotron *BESSY II* in Berlin betrieben [26–30]. Auf dem Gebiet der Rastermikroskopie wurden erste bahnbrechende Erfolge in den 80er-Jahren durch *Kirz et al.* am *Brookhaven National Laboratory* in den USA verzeichnet [31–34]. Seit den Anfängen der Röntgenmikroskopie haben sich die verschiedenen Konzepte und Anwendungsgebiete stark weiterentwickelt. Heutzutage lassen sich an zahlreichen Synchrotroneinrichtungen Röntgenmikroskope finden, welche neue Erkenntnisse auf den Gebieten der Zellbiologie, Kolloid- und Materialwissenschaften hervorbringen. Die Weiterentwicklungen und zahlreichen Ergebnisse auf dem Gebiet der Röntgenmikroskopie werden seit 1983 in den Publikationen der Röntgenmikroskopie-Konferenzen bis heute dokumentiert [9, 35–42].

### 2.3 Konzepte der Röntgenmikroskopie

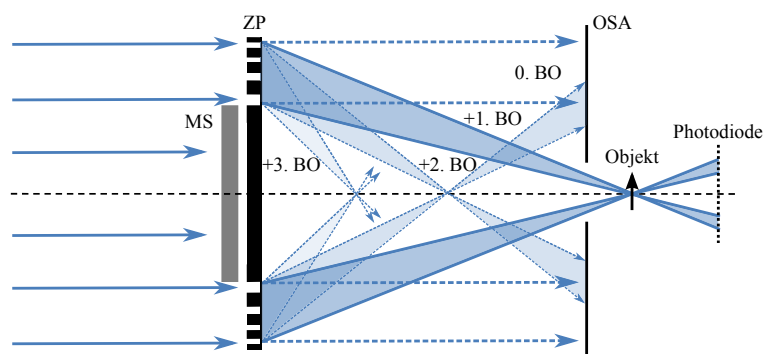
In der Röntgenmikroskopie existieren zwei grundsätzliche Konzepte. Zum einen ist dies das sogenannte Durchlicht- oder Transmissionsmikroskop und zum anderen das Rastermikroskop. Wie im sichtbaren Spektralbereich unterscheiden sich diese beiden Konzepte in der Art und Weise der Beleuchtung und Abbildung des Objekts grundlegend.

#### 2.3.1 Rastermikroskopie

Bei der Rastermikroskopie wird durch ein optisches Element, meist eine Zonenplatte (vgl. Kapitel 3.2.2), ein kleiner Fokus auf dem Objekt erzeugt. Das durch das Objekt transmittierte Licht wird dann mittels eines zeitauflösenden Detektors, beispielsweise einer Photodiode, aufgenommen (vgl. Abbildung 2.2). Wird das Objekt nun lateral zur Strahlachse bewegt, ändert sich die Transmission und damit das Signal des Detektors. Ein Computer wertet die Signale aus und setzt diese zu einem Bild zusammen. Je nach Fokusgröße und Rasterweite

## 2 Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung

kann somit eine variable Bildfeldgröße eingestellt werden. Dabei ist die erreichbare räumliche Auflösung durch die Fokusgröße beschränkt. Bei Verwendung einer Zonenplatte als fokussierendes Element ist für die Erzeugung eines beugungsbegrenzten Spots eine kohärente Ausleuchtung mit monochromatischem Licht erforderlich. Durch einen Wechsel der Wellenlänge können elementspezifische Absorptionskanten untersucht werden. Dieses Verfahren wird auch als *NEXAFS* (engl.: Near Edge X-ray Absorption Fine Structure) bezeichnet. Dabei wird je ein Rasterbild bei verschiedenen Wellenlängen vor und nach einer chemischen Reaktion aufgenommen und die erhaltenen Daten anschließend analysiert. Simultan kann dazu auch ein Fluoreszenz- oder Photoelektronenspektrum aufgenommen werden.

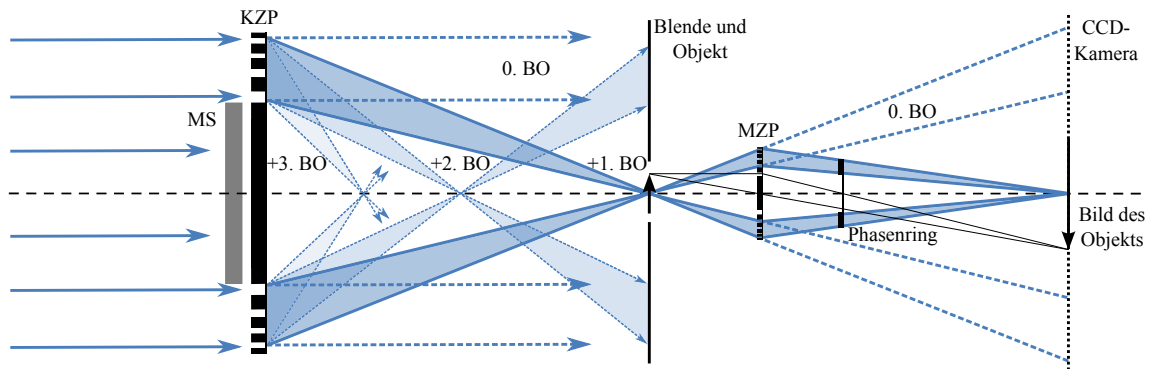


**Abbildung 2.2:** Schematischer Aufbau eines Rastermikroskops. Die +1. Beugungsordnung (BO) der Zonenplatte (ZP) wird auf das Objekt fokussiert und das transmittierte Licht von einer Photodiode aufgenommen. Ein Mittenstopp (MS) und eine Blende (OSA, Order Sorting Aperture) sorgen dafür, dass nur eine Beugungsordnung das Objekt beleuchtet.

### 2.3.2 Transmissionsmikroskopie

Im Gegensatz zum Rastermikroskop wird bei einem Transmissionsmikroskop das Objekt mit einer Kondensoroptik vollständig ausgeleuchtet. Ein Objektiv bildet dann die Probe auf einen ortsauflösenden Detektor, wie z.B. eine CCD-Kamera (engl.: Charge-Coupled Device), ab. Abbildung 2.3 veranschaulicht den Aufbau am Beispiel eines Zonenplatten-basierten Mikroskops. Der Mittenstopp vor der Kondensorzonenplatte (KZP) verhindert, dass Licht von der Quelle direkt auf den Detektor gelangt und dadurch das Bild der Mikrozonenplatte überstrahlt. Zudem werden höhere Beugungsordnungen (BO) der KZP durch eine Apertur in der Objektebene ausgeblendet. Diese würden ebenfalls ein Untergrundsignal auf dem Detektor erzeugen und so den Kontrast des Bildes verringern.

Der Vorteil eines Transmissionsmikroskops ist, dass das Objekt vollständig abgebildet und nicht Punkt für Punkt abgerastert wird. Instabilitäten der Quelle können sich daher nur auf die Intensität der Objektbeleuchtung und damit auf die Belichtungszeit auswirken. Die



**Abbildung 2.3:** Schematischer Aufbau eines Transmissionsmikroskops. Eine Kondensorzonenplatte (KZP) beleuchtet das Objekt. Der Mittenstopp (MS) vor der KZP und eine Blende vor der Mikrozonensplatte (MZP) erzeugen auf dem Detektor einen Schatten, in dem die MZP die Probe abbildet. Mit Hilfe des Phasenrings in der hinteren Brennebene der MZP kann Phasenkontrast erzeugt werden (vgl. Abschnitt 2.4).

Bildqualität bleibt dabei erhalten. Zudem ist die Belichtungszeit bei einem Transmissionsbild wesentlich kürzer als bei einem Rasterbild. Dies liegt hauptsächlich an der Rastereinheit, die eine gewisse Zeit benötigt, um die einzelnen Rasterpunkte anzufahren. Folglich sind Rastermikroskope empfindlicher gegenüber zeitlichen Veränderungen der Quelle oder des mechanischen Aufbaus, wie z.B. Quellintensitäts- oder Positionsinstabilitäten, Vibrationen oder thermischen Einflüssen [43, 44]. Nachteilig bei einem Transmissionsmikroskop ist jedoch, dass sich zwischen Objekt und Detektor eine zusätzliche Optik befindet, die aufgrund ihres geringen Wirkungsgrades einen gewissen Anteil des Lichtes absorbiert oder in andere Beugungsordnungen ablenkt. Die Strahlenbelastung des Objekts fällt daher bei Rastermikroskopen um etwa eine Größenordnung geringer aus. Bei tomographischen Verfahren biologischer Proben ist dies ein wichtiger Faktor (vgl. Abschnitt 2.5). Beide Mikroskoptypen ermöglichen Aufnahmeverfahren mit unterschiedlichen Kontrastmechanismen wie Phasenkontrast- oder Dunkelfeldmikroskopie. Bei der Rastermikroskopie muss dann jedoch ein segmentierter Detektor verwendet werden [44].

Es existieren auch in Reflexion arbeitende Röntgenmikroskope. Hier wird das Objekt monochromatisch beleuchtet und die reflektierte Strahlung mit Hilfe einer Zonenplatte auf einen Detektor abgebildet. Da die Reflektivität von Röntgenstrahlung im senkrechten Einfall sehr gering ist, muss die Probe in einem flachen Winkel beleuchtet und aufgenommen werden, was zu Aberrationen im Bild führt [45, 46]. Zudem lassen sich nur Reflektivitäten von Oberflächen untersuchen.

### 2.4 Auflösung und Kontrastmechanismen

Das räumliche Auflösungsvermögen und der Bildkontrast sind die beiden wichtigsten Kriterien für die Bewertung unterschiedlicher Mikroskoptechniken. Sie sind eng miteinander verbunden und bestimmen den Informationsgehalt von mikroskopischen Aufnahmen. Betrachtet man zwei zueinander inkohärente, monochromatische Punktquellen eines Objekts, so können diese nach der Abbildung noch räumlich voneinander getrennt wahrgenommen werden, wenn sich die *Airy-Scheibchen* der einzelnen Quellpunkte nicht überlappen. Nach dem *Rayleigh-Kriterium* sind die Quellpunkte gerade noch aufgelöst, wenn die erste Nullstelle des einen *Airy-Scheibchens* mit dem Maximum des anderen übereinander liegt. Das Verhältnis der Intensität in der Mitte der überlagerten Gesamtverteilung zu dem Maximum beträgt  $8/\pi^2 = 0,81$ . Mit dem Radius der ersten Nullstelle eines *Airy-Scheibchens* von  $r_{null} = 0,61\lambda/\text{NA}$  ist die räumliche Auflösung nach *Rayleigh* durch

$$\delta_{\text{Rayl.}} = 0,61 \frac{\lambda}{\text{NA}} \quad (2.9)$$

gegeben, wobei NA die numerische Apertur der abbildenden Optik ist [16]. Bewegt man eine scharfe Kante durch das Intensitätsprofil eines *Airy-Scheibchens*, entspricht das *Rayleigh-Kriterium* ungefähr einem Intensitätsanstieg von 10 % auf 90 %. Dieser sogenannte *Knife-Edge-Test* ist bei der praktischen Anwendung des *Rayleigh-Kriteriums* sehr hilfreich. An einer kontrastreichen Kante im Bild kann durch Vermessen des Intensitätsanstiegs die räumliche Auflösung bestimmt werden. Bei Betrachtung von Gleichung 2.9 lässt sich für weiche Röntgenstrahlen bei hoher NA eine theoretische Auflösung von einigen Nanometern erwarten. Durch die heutzutage zur Verfügung stehenden Optiken ist die Auflösung jedoch auf 12 nm bis 15 nm beschränkt [47, 48].

Die Kontrastmechanismen bei abbildenden Systemen im Spektralbereich der Röntgenstrahlung beruhen auf Innerschalenübergänge der Atome und unterscheiden sich daher grundlegend von anderen mikroskopischen Techniken. Der relativ hohe Imaginärteil der komplexen Brechzahl im EUV- und weichen Röntgen-Spektralbereich erlaubt für viele Materialien Absorptionskontrastverfahren. Mit steigender Photonenenergie nimmt jedoch die Absorption und damit auch der Kontrast im Bild stark ab. Insbesondere bei kürzeren Wellenlängen ( $\lambda < 1 \text{ nm}$ ) sind Kontrastmechanismen, die auf der Phasenschiebung in Materie basieren, von Vorteil, da das Verhältnis von Phasenschiebung zu Absorption  $\delta/\beta$  mit kürzeren Wellenlängen wächst. Demnach sind Verfahren wie Phasenkontrast nach *Zernike* [49] oder differentieller Interferenzkontrast (*DIC*) nach *Nomarski* [50, 51] für den Spektralbereich der Röntgenstrahlung interessant.

Bei der Realisierung des Phasenkontrasts nach *Zernike* in der Röntgen-Transmissionsmikroskopie wird in der hinteren Brennebene der Objektiv-Zonenplatte eine ringförmige

Phasenplatte angebracht (vgl. Abbildung 2.3). Das von der Mikrozonensplatte gebeugte Licht der Kondensorzonenplatte erhält so eine Phasenschiebung und interferiert mit dem vom Objekt gestreuten und von der Zonenplatte abgebildeten Anteil [52, 53].

Entgegen des klassischen Aufbaus eines *DIC*-Mikroskops werden im Röntgen-Spektralbereich keine zusätzlichen optischen Komponenten wie Polarisatoren und *Wollaston-Prismen* benötigt. Mit Hilfe eines Zonenplatten-Doublets als Objektiv lässt sich differentieller Interferenzkontrast relativ leicht realisieren [54, 55]. Dazu wird je eine Zonenplattenstruktur auf der Vorder- und Rückseite einer Trägermembran angefertigt. Diese sind axial zueinander versetzt und erzeugen unabhängig voneinander zwei lateral verschobene Bilder. Ist der laterale Versatz geringer als die räumliche Auflösung, interferieren die Bilder und erzeugen ein Interferenzmuster.

Es existieren auch Ansätze, Phasenkontrast oder *DIC* mit je nur einem optischen Element zu realisieren. Dafür werden spezielle Zonenplatten (*DOE*, Diffractive Optical Elements) angefertigt, deren Strukturen entsprechend angepasst werden [56, 57]: Für den *Zernike-Phasenkontrast* wird dazu ein Teil der äußeren Zonen um eine Zonenbreite nach außen hin versetzt, d.h. invertiert. Die Strahlung erhält dadurch in diesem Bereich eine Phasenschiebung. Beim *DIC-DOE* ist die Zonenplattenstruktur, frontal betrachtet, auf einer Seite invertiert, wodurch eine laterale Phasenschiebung entsteht. Generell haben phasensensitive Verfahren den Vorteil, dass der Bildkontrast bei niedrig absorbierenden Objekten mit phasenschiebenden Eigenschaften höher als im Absorptionskontrast ist, und die Strahlenbelastung für das Objekt geringer ausfällt [58].

Ein weiteres Kontrastverfahren ist der sogenannte Dunkelfeldkontrast. Hierbei ist die numerische Apertur der Beleuchtung des Objekts größer als die NA des Objektivs. In der Röntgenmikroskopie bedeutet dies, dass der Beleuchtungskegel der Kondensorzonenplatte vollständig an der Mikrozonensplatte vorbeistrahlt. Demnach kann nur das vom Objekt gestreute Licht für die Abbildung verwendet werden. Dies hat den Nachteil, dass die Dunkelfeldmikroskopie sehr lichtschwach ist und hohe Belichtungszeiten erfordert (vgl. auch Kapitel 5.4.2).

Allgemein ist der Bildkontrast  $C$  einer mikroskopischen Aufnahme durch die minimale und maximale Intensität  $I_{min}$  und  $I_{max}$  auf dem Detektor bestimmt:

$$C = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (2.10)$$

Ein Kontrast von  $C = (1 - 8/\pi^2)/(1 + 8/\pi^2) = 0,105$  entspricht demnach dem Kontrast zweier nach dem *Rayleigh-Kriterium* gerade noch aufgelöster Punktquellen eines Objektes. Betrachtet man ein eindimensionales Objekt mit einer sinusförmigen Transmissionsfunktion

## 2 Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung

---

$I(x) = I_0 + I_1 \sin(2\pi\xi_0 x)$  mit dem Kontrast  $C = I_1/I_0$  so wird die Intensität  $I(x)$  des Objektes durch ein optisches System auf den Detektor übertragen und führt bei Betrachtung von inkohärenter Strahlung zu einer ebenfalls sinusförmigen Intensitätsverteilung  $I'(x') = I'_0 + I'_1 \sin(2\pi\xi'_0 x' + \phi)$  mit dem Kontrast  $C' = I'_1/I'_0$ . Hierbei sind  $\phi$  eine durch das optische System eingeführte Phasendifferenz und  $\xi_0, \xi'_0$  die Frequenzen der sinusförmigen Struktur des Objektes bzw. des Bildes. Allgemein wird dieser Vorgang im zweidimensionalen Fall durch die Faltung (\*) mit der Punktbildfunktion (*PSF*, engl.: Point Spread Function), der Impulsantwort des optischen Systems, beschrieben [59]:

$$I'(x, y) = PSF(x, y) * I(x, y) \quad (2.11)$$

Im Frequenzbereich ist dies durch eine Multiplikation

$$\mathcal{F}\{I'(x, y)\} = \mathcal{F}\{PSF(x, y) \cdot I(x, y)\} \quad (2.12)$$

erfüllt, wobei  $\mathcal{F}\{\}$  die Fourier-Transformation kennzeichnet. Die Fourier-Transformierte der *PSF*( $x, y$ ) stellt die optische Übertragungsfunktion *OTF*( $\xi, \eta$ ) (engl.: Optical Transfer Function) dar [60]:

$$\mathcal{F}\{PSF(x, y)\} = OTF(\xi, \eta) = MTF(\xi, \eta) \cdot e^{i PTF(\xi, \eta)} \quad (2.13)$$

Die Phasenübertragungsfunktion *PTF*( $\xi, \eta$ ) entspricht dabei der Phasendifferenz  $\phi(\xi, \eta)$ , die die Ähnlichkeit der Abbildung (z.B. Verzeichnungen) beschreibt. Die Modulationsübertragungsfunktion *MTF* stellt die Übertragung des Kontrastes verschiedener Raumfrequenzen der Objektebene in die Bildebene dar und beschreibt die Gesamtheit der Abbildungsfehler. Sie spielt eine wichtige Rolle bei der Beurteilung bildgebender Systeme. Im sichtbaren Spektralbereich kann beispielsweise durch die Abbildung einer Punktlichtquelle mit einer hohen Vergrößerung die *PSF* direkt gemessen und damit auch die *MTF* berechnet werden. Eine andere Möglichkeit bietet die Kontrastmessungen von Sinusgittern mit unterschiedlichen Raumfrequenzen in verschiedenen Richtungen oder die direkte Bestimmung über die Gleichungen 2.12 und 2.13 bei der Abbildung eines bekannten Objektes ( $I(x, y)$ ). Im Spektralbereich der Röntgenstrahlung sind solche Methoden jedoch aufgrund fehlender Möglichkeiten zur Herstellung geeigneter Testobjekte nicht geeignet. Hier kann der Verlauf der *MTF* meist nur abgeschätzt werden, da bei der Berechnung über die Gleichungen 2.12 und 2.13 das Objekt selbst nicht bekannt ist, oder nur mit Einschränkungen über andere mikroskopische Verfahren (REM, TEM) bestimmt werden kann [61].

Über den Betrag der zweidimensionalen Fouriertransformation der Bilddaten  $|\mathcal{F}\{I'(x, y)\}|$  kann von symmetrischen Proben (z.B. Kugeln) eine Aussage über mögliche Abbildungsfehler getroffen werden. In diesem sogenannten Leistungsdichtespektrum (*PSD*, engl.: Power Spectral Density) finden sich die Anteile der im Bild vorhandenen Raumfrequenzen für bestimmte



Richtungen wieder. Ein unsymmetrisches Erscheinungsbild der  $PSD$  zeigt demnach eine richtungsgebundene Abhängigkeit der  $MTF$  auf und deutet auf Koma oder Astigmatismus hin.

Im vereinfachten eindimensionalen Fall ist die Bestimmung der  $MTF$  über die  $LSF$  (engl.: Line Spread Function) möglich. Dabei entspricht die  $LSF$  dem Integral der  $PSF$  in einer Raumrichtung und die  $MTF$  der Fourier-Transformierten der  $LSF$ :

$$MTF(\xi) = \mathcal{F}\{LSF(x)\} = \mathcal{F}\left\{\int_{-\infty}^{\infty} PSF(x, y)dy\right\} \quad (2.14)$$

Eine ideale Objektklinie (Spalt der Breite Null) ist jedoch nicht realisierbar. Daher wird eine Objektkante herangezogen, die sich als Kantenbild  $ESF$  (engl.: Edge Spread Function) darstellt. Aus dem Kantenbild wird durch Differenzieren das Linienbild berechnet:

$$LSF(x) = \frac{d}{dx}ESF(x) \quad (2.15)$$

Bei dieser Methode ist jedoch zu beachten, dass die  $LSF$  durch die Integralbildung (Gl. 2.14) eine spezielle Normierung auf die Gesamtintensität erfährt. Da sich die Intensität über das gesamte Bildfeld jedoch experimentell nicht genau bestimmen lässt, muss die  $MTF$  nachträglich auf  $MTF_{\xi=0} = 1$  normiert werden. Damit die errechnete  $MTF$ -Kurve aussagekräftig ist, sollte diese Methode nur an Kantenbildern erfolgen, bei denen die Objektkante sehr scharf ist und einen Kontrast nahe Eins aufweist. Im Bereich der Röntgenmikroskopie ist die Herstellung solcher Objekte in der notwendigen Qualität in Bezug auf die Schärfe und Rauheit der Kante sehr schwierig [61].

## 2.5 Strahlenschäden

Die Photonenenergie von weicher Röntgenstrahlung ist bereits ausreichend hoch, um Atome zu ionisieren. Dabei werden auch chemische Bindungen zerstört, was zu morphologischen Veränderungen in biologischen Objekten führen kann. Die vom Objekt absorbierte Dosis ist hauptsächlich von dessen Dicke und der zu erreichenden räumlichen Auflösung abhängig. Für ein ausreichendes Signal auf dem Detektor muss bei höheren Auflösungen dasselbe Signal aus einem kleineren Volumen stammen. Dabei haben Modellberechnungen von *Sayre et al.* gezeigt, dass die erforderliche Dosis umgekehrt proportional zur vierten Potenz der räumlichen Auflösung ist [62–64]. Die Strahlenbelastung bei einem Transmissionsmikroskop für weiche Röntgenstrahlung liegt, je nach Auflösung, zwischen  $10^5$  Gy und  $10^8$  Gy. Dabei entspricht 1 Gy der absorbierten Energiedosis von 1 J/kg. Bei tomographischen Verfahren ist der Wert entsprechend größer, da das Objekt aus verschiedenen Winkeln aufgenommen wird. Bei

## 2 Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung

---

einem Datensatz aus 100 Einzelaufnahmen kann die Dosis bis zu  $10^{10}$  Gy betragen. Dagegen zeigen natürliche Zellen bereits bei einer Dosis von etwa  $10^4$  Gy strukturelle Veränderungen [65]. Es existieren zwei Ansätze, dieses Problem zu umgehen: Zum einen können biologische Zellen chemisch fixiert und getrocknet werden. Zum anderen besteht die Möglichkeit einer Kryo-Fixierung, bei der die Zellen mit Kühlraten von mehreren 1000 K/s auf eine Temperatur von unter 136 K schockgefroren werden [66]. Dabei entstehen kleinste Eiskristalle, die sich im günstigsten Falle jedoch nicht auf das röntgenmikroskopische Bild auswirken [67]. Chemisch fixierte Proben zeigen bis  $10^6$  Gy keine Veränderungen [68], während schockgefrorene Proben einer Dosis von  $10^{10}$  Gy standhalten können [65]. Weitere Alternativen zur Verringerung der Dosis sind die Verwendung von Rastermikroskopen oder Phasenkontrastmethoden, bei denen die Strahlenbelastung um etwa eine Größenordnung geringer ausfällt.

## 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

Die Anforderungen an optische Elemente zur Strahlmanipulation sind je nach Wellenlängenbereich sehr unterschiedlich. Wie im sichtbaren Spektralbereich können diffraktive und reflektive Optiken für weiche Röntgenstrahlung verwendet werden, auf die in den folgenden Kapiteln eingegangen wird.

### 3.1 Reflektive Optiken

Grundsätzlich werden die optischen Eigenschaften von Materialien im Spektralbereich der Röntgenstrahlung von denselben klassischen Grundgesetzen bestimmt, die auch für sichtbare elektromagnetische Strahlung gelten. Dennoch können sich die resultierenden Effekte sehr stark unterscheiden. Die Reflektivität einer elektromagnetischen Welle an einer Grenzfläche zweier Materialien mit unterschiedlichen Brechzahlen ist durch die bekannten *Fresnel'schen Formeln* gegeben. Im Spektralbereich des Wasserfensters liegt die Reflektivität für die meisten Materialien in der Größenordnung von  $10^{-5}$  oder darunter. Daher sind klassische Spiegel im senkrechten Einfall für diesen Spektralbereich nicht geeignet.

#### 3.1.1 Spiegel im streifenden Einfall

Trifft eine elektromagnetische Welle von einem optisch dichteren Medium auf ein optisch dünneres Medium, kommt es unter Einfallswinkeln kleiner als dem kritischen Winkel  $\phi_c$  zur Totalreflexion. Da im Spektralbereich der Röntgenstrahlung der Realteil der Brechzahl von Materie kleiner als derjenige von Vakuum ist, tritt dieser Effekt beim Übergang von Vakuum in Materie auf. Unter Berücksichtigung des *Snellius'schen Brechungsgesetzes* und Vernachlässigung der Absorption kann der kritische Winkel zu

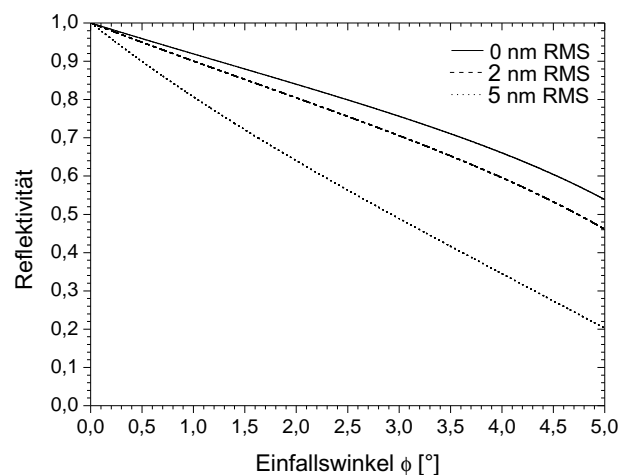
$$\phi_c \approx \sqrt{2\delta} \quad (3.1)$$

berechnet werden [69]. Strahlung, die in einem kleineren Winkel als  $\phi_c$  auf eine Oberfläche trifft, wird zu einem großen Teil reflektiert. Konkav geformte Oberflächen sind daher besonders gut als fokussierende Elemente für Röntgenstrahlung geeignet. Einspiegelsysteme unterliegen jedoch nicht zu vernachlässigenden Abbildungsfehlern wie Astigmatismus oder Koma, wodurch sie in der Mikroskopie vorzugsweise als Kondensoroptiken verwendet werden. Ansätze zur Verminderung der Aberrationen liefern mehrkomponentige Systeme, wie z.B.

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

*Kirkpatrick-Baez-* oder *Wolter-Systeme*, die in der Regel jedoch nicht als hochauflösende Objektive für die Mikroskopie geeignet und zudem schwierig zu justieren sind [20, 22].

Durch die Wechselwirkung der Strahlung mit den oberen Atomschichten der Oberfläche wird ein gewisser Strahlungsanteil absorbiert und gestreut. Dieser Effekt wird durch die Oberflächenrauheit verstärkt. Abbildung 3.1 veranschaulicht dies an der Reflektivität einer Nickel-Oberfläche für unterschiedliche Rauheitswerte bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 2,88$  nm. Nickel ist ein gut zu verarbeitendes Material, welches ein hohes Reflexionsvermögen aufweist und als Oberflächen für Optiken im streifenden Einfall verwendet wird [70]. Je nach Material und Herstellungsverfahren können Rauheitswerte (RMS<sup>1</sup>) von 3 nm [71] bis unter 1 nm [72] für Optiken im streifenden Einfall erreicht werden.



**Abbildung 3.1:** Reflektivität einer Nickel-Oberfläche mit unterschiedlichen Rauheitswerten bei einer Wellenlänge von 2,88 nm, aufgetragen über dem Einfallswinkel [14].

In dieser Arbeit wird als Kondensator an der Entladungsquelle ein mit Gold bedampfter rotationssymmetrischer Ellipsoid verwendet (vgl. Abschnitt 5.1.2). Dieser Kollektor wurde ursprünglich für EUV-Strahlung eingesetzt. In diesem Spektralbereich bietet Gold höhere Reflektivitäten als Nickel. Der Einfallswinkel liegt zwischen  $1,72^\circ$  und  $1,86^\circ$ , wodurch sich bei Annahme einer glatten Oberfläche für eine Wellenlänge von 2,88 nm Reflektivitäten im Bereich von  $66,8 \pm 1,1\%$  ergeben. Mit Nickel als reflektierende Fläche wäre eine Steigerung der Reflektivität auf  $85,8 \pm 0,5\%$  möglich.

#### 3.1.2 Multilayer-Spiegel

Mittels eines Schichtsystems aus verschiedenen Materialien (engl.: Multilayer) kann die Reflektivität einer Oberfläche deutlich gesteigert werden. Multilayer-Spiegel für den Spektralbereich der Röntgenstrahlung bestehen aus sich periodisch abwechselnden Materialien mit niedriger und hoher Absorption. Dabei wird die Dicke einer solchen Doppelschicht (engl.:

<sup>1</sup>Root Mean Square, quadratisches Mittel der Rauheitswerte

Bilayer) derart ausgewählt, dass die an den einzelnen Bilayern reflektierten Wellen miteinander konstruktiv interferieren. Die Bedingung für konstruktive Interferenz ist durch die bekannte *Bragg-Gleichung* gegeben.

Durch die Überlagerung der einzelnen Teilwellen aus  $N$  Perioden wird das Licht mit einer Bandbreite von  $\lambda/\Delta\lambda \leq N$  reflektiert. Multilayer-Spiegel können daher auch als Monochromatoren eingesetzt werden. Die Auswahl geeigneter Materialien für die Herstellung von Multilayer-Spiegeln mit hoher Reflektivität hängt von mehreren Faktoren ab. Erweitert man die *Fresnel'schen Formeln* um den komplexen Anteil der Brechzahlen, so gilt für kleine  $\delta$  und  $\beta$  im senkrechten Einfall die Näherung:

$$R \approx \frac{(\Delta\delta)^2 + (\Delta\beta)^2}{4} \quad \text{mit} \quad \Delta\delta = \delta_1 - \delta_2 \quad \text{und} \quad \Delta\beta = \beta_1 - \beta_2 \quad (3.2)$$

Um die Reflektivität zu maximieren, müssen die Materialien also einen großen Unterschied in  $\delta$  und  $\beta$  aufweisen. Dabei sollte darauf geachtet werden, dass die Gesamtreflektivität nicht durch die Absorption in den Schichten mit einem hohen  $\beta$ -Anteil beeinträchtigt wird. Darüber hinaus müssen auch mechanische, physikalische und chemische Bedingungen erfüllt sein. Beispielsweise müssen die Materialien sehr glatte Oberflächen bilden können und keine chemische Bindung an den Grenzschichten eingehen oder ineinander diffundieren. Da die Berücksichtigung aller erforderlichen Parameter und die Herstellung solcher Schichten ein komplexer Prozess ist, können die gemessenen Reflektivitäten stark von den theoretischen Werten abweichen [73].

Multilayer-Spiegel haben gegenüber Spiegeln im streifenden Einfall den Vorteil, dass sie durch ihren größeren Akzeptanzwinkel mehr Licht auffangen können und einfacher zu justieren sind. Daher sind sie als Kollektorspiegel für die EUV-Lithographie bei  $\lambda = 13,5$  nm oder für die Labor-Röntgenmikroskopie im Wasserfenster sehr interessant. Während im EUV-Spektralbereich bei gekrümmten Substraten Reflektivitäten von bis zu 70 % erreicht werden können [74, 75], liegen die Werte im Wasserfenster bei nur einigen Prozent. Grund dafür ist die wesentlich kleinere Wellenlänge, wodurch die einzelnen Schichten sehr dünn und die Anforderungen an die Rauheit und an die ideale Schichtdicke extrem hoch sind. Zudem sollen diese Schichten homogen über eine möglichst große Fläche verlaufen, was bei sphärischen Substraten schwierig zu realisieren ist. Aktuell können mit einer Materialkombination aus Scandium und Chrom sphärische Multilayer-Spiegel mit einer mittleren Reflektivität von 3 % bei 3,37 nm, einer Wellenlänge aus dem Spektrum fünfmal ionisierten Kohlenstoffs, hergestellt werden. Als Kondensoren in der Röntgenmikroskopie an laserinduzierten Laborquellen haben diese Optiken bereits Erfolge verzeichnen können [76, 77]. Stand der Technik ist eine mittlere Reflektivität von 4,8 % für diese Arbeitswellenlänge, was durch sogenannte Barrierschichten aus Kohlenstoff zwischen den beiden Materialien erreicht wird. Zum einen werden dadurch die Grenzflächen geglättet und zum anderen die Interdiffusion in benachbarte Schichten minimiert [78]. Schichtsysteme aus Chrom und Vanadium sind

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

---

vielversprechend für Wellenlängen von 2,4 nm bis 2,7 nm, Chrom und Titan für Wellenlängen im Bereich von 2,7 nm bis 3,1 nm. Mit Barrierschichten aus Borcarbid können bei flachen Substraten Reflektivitäten von 5,2% bei 2,48 nm, einer Wellenlänge aus dem Spektrum sechsfach ionisierten Stickstoffs, erreicht werden. Erste Versuche mit der Übertragung dieser Schichten auf sphärische Substrate zeigen eine mittlere Reflektivität von 0,8% [79]. Der Einsatz als Kondensormpiegel für ein Labormikroskop wird derzeit am MBI in Berlin geprüft [80].

#### 3.2 Diffraktive Optiken

Neben den bisher beschriebenen optischen Elementen, die auf Reflexion im streifenden Einfall oder Reflexion an Multilayer-Schichten beruhen, stellen diffraktive Optiken eine weitere, vor allem in der Röntgenmikroskopie bedeutende Klasse von Optiken dar. Sie können in Reflexion oder Transmission betrieben werden und bieten so ein breites Anwendungsgebiet. Lineare Beugungsgitter werden beispielsweise als Spektrographen oder auch als Monochromatoren an Synchrotronstrahlquellen eingesetzt. Für die Röntgenmikroskopie eignen sich *Fresnel'sche Zonenplatten*, welche hierbei als hochauflösende Objektive für die Abbildung von Objekten oder auch als Kondensoren dienen können [24, 81].

##### 3.2.1 Gitter

Die grundlegende Funktionsweise einer diffraktiven Optik kann nach dem *Huygen'schen Prinzip* verstanden werden, wonach jede Wellenfront zu einem späteren Zeitpunkt berechnet werden kann, wenn diese zu einem früheren Zeitpunkt bekannt war. Jeder Punkt der Wellenfront wird als ein Ausgangspunkt einer neuen Kugelwelle angesehen. Bringt man nun ein periodisches Gitter in ein Wellenfeld, so interferiert das Licht der Einzelspalte miteinander und bildet im Fernfeld ein Interferenzmuster, welches durch das *Kirchhoff'sche Beugungsintegral* beschrieben werden kann [82]. Für den senkrechten Einfall lässt sich die Lage der Beugungsmaxima auf einem Schirm für verschiedene Beugungsordnungen  $m$  nach der *Fraunhofer-Näherung* durch

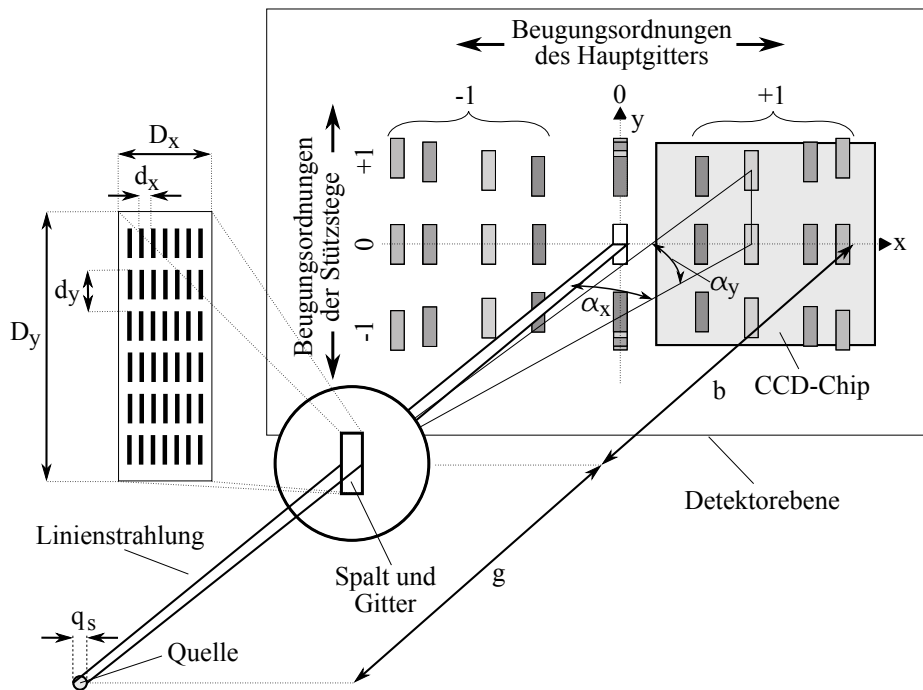
$$\sin\alpha_x = \frac{m\lambda}{d_x} \quad |m \in \mathbb{Z} \quad (3.3)$$

berechnen. Dabei entspricht  $d_x$  der Gitterperiode und  $\alpha_x$  dem Beugungswinkel. Durch die Wellenlängenabhängigkeit eignen sich Gitter für die spektrale Zerlegung von EUV- und weicher Röntgenstrahlung. Da ein Transmissionsgitter aufgrund der hohen Absorption in diesem Spektralbereich in der Regel auf einer dünnen Folie oder freitragend in die Trägerfolie strukturiert wird, muss eine Blende vor dem Gitter platziert werden, um direktes Licht auf dem Detektor zu vermeiden. Damit erweitert sich der Aufbau zu einer Lochkamera, die die Quelle auf den Detektor abbildet.

Die beugungsbegrenzte spektrale Auflösung eines solchen Spektrographen ist durch die Anzahl der ausgeleuchteten Gitterperioden  $N_g$  und die verwendete Beugungsordnung  $m$  gegeben:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{\text{diff}}} = mN_g \quad \text{bzw.} \quad \Delta\lambda_{\text{diff}} = \frac{\lambda}{mN_g} \quad (3.4)$$

Für die Charakterisierung der in dieser Arbeit verwendeten Laborquellen wurde ein Transmissionsgitterspektrograph eingesetzt (vgl. auch Kapitel 4.4.1), dessen Funktionsprinzip in Abbildung 3.2 dargestellt ist. Er setzt sich aus einem Transmissionsgitter mit einer Gitterperiode von  $d_x = 100 \text{ nm}$  und einem  $50 \mu\text{m}$  breiten und  $1 \text{ mm}$  hohen Eintrittsspalt zusammen. Das Gitter selbst besteht aus Nickel-Strukturen mit einer Dicke von  $120 \text{ nm}$  ( $\pm 10 \text{ nm}$ ), die auf einer ca.  $60 \text{ nm}$  dicken Silizium-Folie aufgebracht sind. Das Gitter ist freitragend, was bedeutet, dass die Silizium-Folie ebenfalls strukturiert ist. Aus Stabilitätsgründen befindet sich senkrecht zu dem Gitter eine Stützstegestruktur mit einer Gitterkonstante von  $d_y = 1,5 \mu\text{m}$ , welche ebenfalls Beugungsordnungen erzeugt. Mit einem bekannten Detektorabstand  $b$  können die Beugungsordnungen der Stützstege damit für eine Wellenlängenkalibrierung herangezogen werden, ohne die weitaus hellere nullte Ordnung des Hauptgitters auf den Detektor abbilden zu müssen, was bei der praktischen Anwendung einen erheblichen Vorteil bietet.



**Abbildung 3.2:** Aufbau und Funktionsweise eines Spaltgitterspektrographen. Der vor dem Gitter positionierte Spalt wird von der Quelle ausgeleuchtet und auf einen Detektor abgebildet. Im Fernfeld ist das Beugungsbild durch horizontale Ordnungen der Hauptgitterstruktur und in vertikaler Richtung durch Beugungsordnungen der Stützstegestruktur charakterisiert [83, 84].

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

Die maximal erreichbare spektrale Auflösung ist neben dem Beugungslimit durch den geometrischen Aufbau begrenzt. Zwei benachbarte Wellenlängen können nur dann voneinander getrennt detektiert werden, wenn sich der Schattenwurf der Spaltbilder nicht überlagert. Näherungsweise gilt für die geometrische Auflösung [83]:

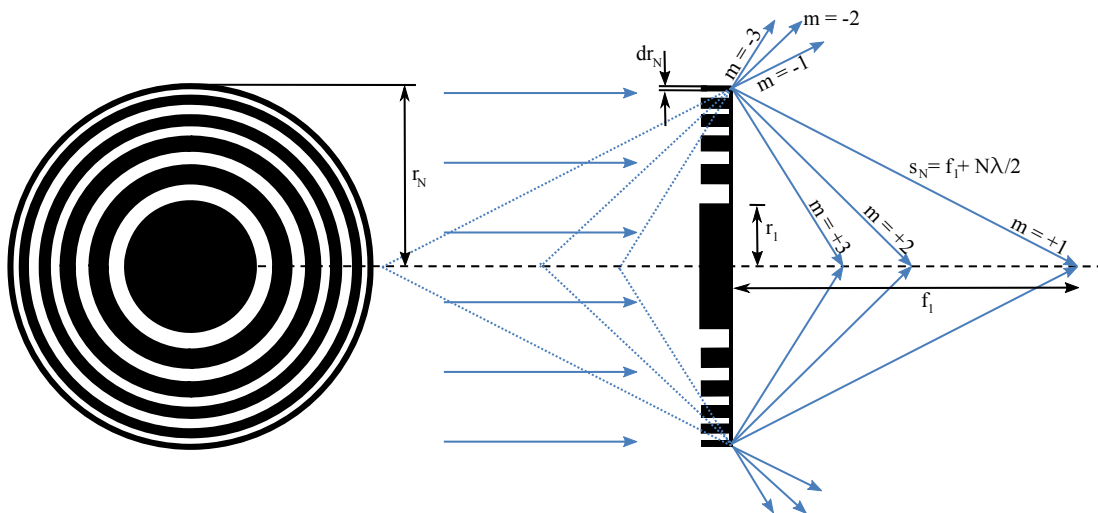
$$\Delta\lambda_{\text{geom}} \approx \frac{d_x}{m} \left( \frac{D_x + q_s}{g} + \frac{D_x}{b} \right) \quad (3.5)$$

Hierbei ist  $D_x$  die Breite des Eintrittsspalt,  $q_s$  die Quellgröße,  $g$  die Gegenstandsweite und  $b$  die Bildweite. Das gesamte spektrale Auflösungsvermögen ergibt sich aus der Kombination der beiden Grenzen zu:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{\text{ges}}} \approx \sqrt{\frac{\lambda^2}{\Delta\lambda_{\text{geom}}^2 + \Delta\lambda_{\text{diff}}^2}} \quad (3.6)$$

#### 3.2.2 Zonenplatten

*Fresnel'sche Zonenplatten* sind kreisförmig konzentrische Beugungsgitter, deren Gitterperiode nach Gleichung 3.3 derart angepasst ist, dass die Beugungsordnungen  $m$  der einzelnen Zonen konstruktiv auf einer optischen Achse in einem Abstand  $f_m$  zur Zonenplatte interferieren. Abbildung 3.3 veranschaulicht das Funktionsprinzip. Für die +1. Beugungsordnung ist die Bedingung für konstruktive Interferenz erfüllt, wenn die Länge des Wellenzuges  $s_n$  der  $n$ -ten Zone genau der Summe aus der Brennweite  $f_1$  und dem  $n$ -ten Vielfachen der halben Wellenlänge  $\lambda$  entspricht<sup>2</sup>. Konstruktive Interferenz findet auch bei



**Abbildung 3.3:** Schematische Skizze einer Zonenplatte. Die einfallende Strahlung wird in die verschiedenen Ordnungen gebeugt. Dabei wird der zerstreue und fokussierende Charakter einer Zonenplatte deutlich.

<sup>2</sup>Es wird die halbe Wellenlänge betrachtet, da sowohl die transparenten als auch die absorbierenden Zonen separat gezählt werden.



mehrfachen Weglängenunterschieden  $\pm m\lambda/2$  statt. Diese höheren Ordnungen führen zu entsprechenden Brennweiten von  $f_m = \pm f_1/m$ , wobei die negativen Werte auf die Eigenschaft einer Zerstreulinse hindeuten. Zusätzlich existiert die nullte Beugungsordnung, die von der Zonenplatte transmittiert wird. All diese Strahlen überlagern sich in der Bildebene. Wenn dies nicht erwünscht wird, müssen Blenden an den entsprechenden Stellen im Aufbau vorgesehen werden. Die Brennweite  $f_m$  der  $m$ -ten Beugungsordnung ergibt sich aus dem Radius  $r_n$  der  $n$ -ten Zone und der Anzahl der Zonen  $N$  [16]:

$$f_m = \frac{r_N^2}{mN\lambda} - \frac{mN\lambda}{4} \quad |m \in \mathbb{Z} \quad (3.7)$$

Der zweite Term ( $mN\lambda/4$ ) korrigiert die sphärische Aberration und kann für Zonenplatten mit kleiner numerischer Apertur vernachlässigt werden. Bildet man die Differenz der beiden äußeren Zonen  $r_N$  und  $r_{N-1}$  unter Berücksichtigung der vereinfachten Form von Gleichung 3.7 für die +1. Beugungsordnung, so erhält man für die äußerste Zonenbreite  $dr_N \approx r_N/(2N)$ .

Zonenplatten werden in der Röntgenmikroskopie als hochauflösende Objektive eingesetzt. Eine Abbildung mit einer Zonenplatte folgt dem bekannten Abbildungsgesetz:

$$\frac{1}{f_m} = \frac{1}{g} + \frac{1}{b} \quad (3.8)$$

Ein Objekt im Abstand  $g$  zur Zonenplatte mit der Brennweite  $f_m$  wird im Abstand  $b$  in die Bildebene mit einer Vergrößerung von  $V = b/g$  abgebildet. Allgemein gilt nach dem *Rayleigh-Kriterium*, dass die maximal erreichbare transversale Auflösung  $\delta_{\text{Rayl.}}$  durch die verwendete Wellenlänge und die numerische Apertur des optischen Systems beschränkt ist (vgl. Kapitel 2.4). Im Fall von kohärenter Objektbeleuchtung gilt für das räumliche Auflösungsvermögen einer Zonenplatte in der  $m$ -ten Beugungsordnung [16]:

$$\delta_{\text{Rayl.}} = 0,61 \frac{\lambda}{\text{NA}} = 0,61 \frac{\lambda f_1}{m r_N} \approx \frac{1,22 dr_N}{m} \quad (3.9)$$

Neben dem Auflösungsvermögen stellt die Schärfentiefe *DOF* (engl.: Depth Of Focus) einen wichtigen Parameter für die Abbildung dar. Wie die Auflösung ist diese mit der Wellenlänge und der numerischen Apertur verknüpft [85]:

$$DOF = \pm \frac{\lambda}{2(\text{NA})^2} = \pm \frac{\lambda}{2} \left( \frac{f_1}{m r_N} \right)^2 \approx \pm \frac{2(dr_N)^2}{m\lambda} \quad (3.10)$$

Aufgrund der stark wellenlängenabhängigen Brennweite muss eine hinreichende Monochromasie der Strahlung für eine Abbildung ohne chromatische Aberration gegeben sein. Um an der äußersten Zone einen Phasenunterschied von weniger als  $180^\circ$  zu erhalten, ergibt sich ein minimaler Wert für die erforderliche Monochromasie [73]:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} \geq Nm \quad (3.11)$$

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

---

Normalerweise benutzt man eine Zonenplatte in der ersten Beugungsordnung, da hier der Beugungswirkungsgrad am größten ist. Dieser beschreibt das Verhältnis des in die  $m$ -te Beugungsordnung gebeugten Intensitätsanteils  $I_m$  zur einfallenden Gesamtintensität  $I_0$  und lässt sich mit Hilfe der Fourieranalyse des Zonenplattenprofils berechnen. Für eine Zonenplatte mit dem Strich/Periode-Verhältnis  $L$  der Zonenhöhe  $r$  und einem rechteckigen Profil ergibt sich [86, 87]:

$$BWG_{ZP}(\lambda) = \frac{I_m}{I_0} = \frac{\sin^2(Lm\pi)}{(m\pi)^2} \left[ 1 + e^{-4\pi\beta r/\lambda} - 2e^{-2\pi\beta r/\lambda} \cos(2\pi\delta r/\lambda) \right], \quad (3.12)$$

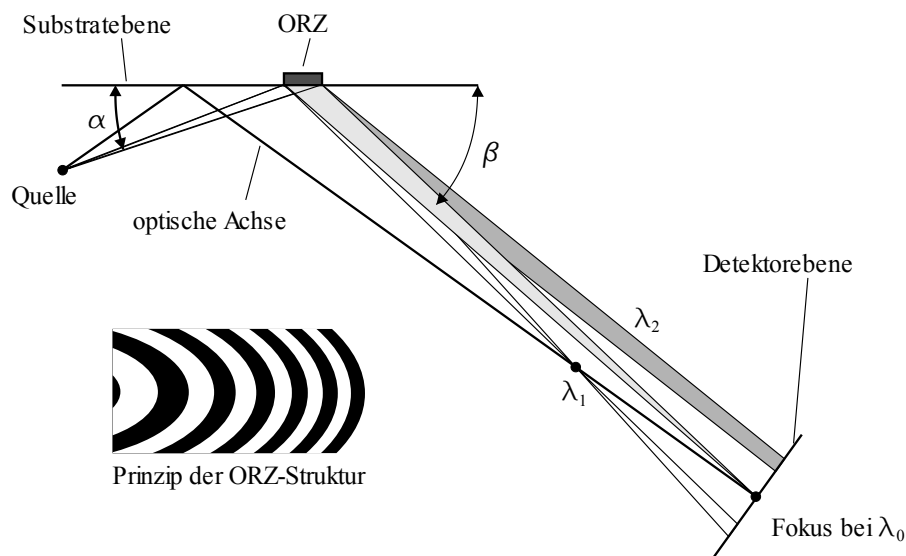
Bei opakem Zonenmaterial und einem Strich/Periode-Verhältnis  $L = 1$  resultiert daraus ein Beugungswirkungsgrad von ungefähr 10 %. Dieser Wert kann enorm gesteigert werden, wenn die absorbierenden Zonen aus einem phasenschiebenden Material bestehen, welches eine geringe Absorption aufweist. Im Idealfall wird die Phase um ein ganzzahliges Vielfaches von  $\pi$  geschoben, wodurch sich die Beugungseffizienz auf 40 % erhöht. Da die meisten Materialien im EUV- und weichen Röntgen-Spektralbereich immer einen absorbierenden Anteil aufweisen, ist bei einem günstigen Verhältnis zwischen Absorption und Phasenschiebung von  $\beta/\delta = 0,05$  die Effizienz auf maximal 34 % reduziert [73].

Mit Hilfe von Gleichung 3.12 kann eine Auswahl geeigneter Materialien getroffen werden, wobei der Herstellungsprozess und die Langzeitstabilität die Auswahl weiter einschränken. Im Spektralbereich der weichen Röntgenstrahlung bieten Gold, Germanium und Nickel die höchsten Effizienzen für die erste Beugungsordnung. Auf Basis einer elektrodynamischen Beschreibung lassen sich unter Zuhilfenahme der Theorie gekoppelter Wellen Zonenstrukturen mit Aspektverhältnissen  $> 10:1$  berechnen, mit denen sich der Wirkungsgrad in den höheren Ordnungen verbessern lässt [88, 89]. Der Vorteil darin liegt in der größeren numerischen Apertur, die eine höhere räumliche Auflösung ermöglicht (vgl. Gleichung 3.9). Weiterhin kann bei Verwendung als Kondensor in der Labor-Röntgenmikroskopie ein wesentlich größerer Raumwinkel aufgefangen werden. Nachteilig ist jedoch der verkürzte Abstand zum Plasma, wodurch die Zonenplatte stärker durch das Plasma beansprucht wird. Abschnitt 3.3 befasst sich näher mit diesem Sachverhalt.

Der Herstellungsprozess einer Zonenplatte hat seinen Ursprung in der Halbleiter-Industrie. Mittels Elektronenstrahlolithographie wird das Zonenplattenmuster in einen Elektronenresist geschrieben, durch reaktives Ionenätzen in darunterliegendes Material übertragen und schließlich die so entstandenen Lücken durch einen galvanischen Prozess mit Nickel aufgefüllt [90]. Heutzutage können Zonenplatten mit einer äußersten Zonenbreite von 15 nm hergestellt werden [47]. Die in dieser Arbeit verwendeten Zonenplatten werden in den Kapiteln 5.1.1 und 5.3 beschrieben.

### Off-Axis-Reflexionszonenplatte

Eine Off-Axis-Reflexionszonenplatte (ORZ) vereint die reflektiven Eigenschaften im streifenden Einfall mit den abbildenden Eigenschaften einer Zonenplatte. Abbildung 3.4 veranschaulicht das Funktionsprinzip und zeigt beispielhaft den Ausschnitt einer ORZ-Struktur. Die Oberfläche der Reflexionsoptik besteht aus nicht-konzentrischen Ellipsenabschnitten, die in Projektion von der Quelle aus gesehen den äußeren Teil einer Zonenplatte ergeben und das Zonenplattenabbildungsgesetz erfüllen. Demnach bildet die ORZ die Quelle auf den Detektor ab. Aufgrund der wellenlängenabhängigen Brennweite ist die Abbildungsgleichung (3.8) immer nur für eine Wellenlänge  $\lambda_0$  erfüllt. Andere Wellenlängen  $\lambda_1 > \lambda_0 > \lambda_2$  sind auf der optischen Achse räumlich voneinander getrennt und erscheinen defokussiert im Bild.



**Abbildung 3.4:** Funktionsweise einer Off-Axis-Reflexionszonenplatte. Die nicht-konzentrische Zonenplattenstruktur bildet die Quelle bei der Wellenlänge  $\lambda_0$  auf den Detektor ab. Die Fokalebene der Wellenlängen  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  liegen vor bzw. hinter der Detektorebene [91].

Der Vorteil einer solchen Optik ist die Abbildung der Quelle bei gleichzeitiger spektraler Zerlegung. Prinzipiell ist es so möglich, die spektralen Eigenschaften und die Quellgröße, also die Brillanz der Quelle (vgl. Kapitel 4.4), für eine Wellenlänge zu bestimmen [92]. Bei genauerer Betrachtung der Zonenstruktur ist zu erkennen, dass die Gitterkonstante nur sehr schwach variiert. Demnach kann die ORZ näherungsweise als lineares Reflexionsgitter mit einer mittleren Gitterkonstante  $\bar{d}$  betrachtet werden:

$$\cos\alpha - \cos\beta = \frac{m\lambda}{\bar{d}} \quad |m \in \mathbb{Z} \quad (3.13)$$

Hierbei sind  $\alpha$  und  $\beta$  die Einfallswinkel bzw. Beugungswinkel, die zur Substratebene angegeben werden. Der Einfallswinkel beträgt nur wenige Grad, wodurch zahlreiche Gitterstrukturen

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

---

beleuchtet werden. Die spektrale Auflösung ist daher in der Regel nicht durch Beugung begrenzt, sondern durch die Größe des Quellbildes in spektraler Richtung  $B_s$ . Mit dem Abstand zur Detektorebene  $b$  ergibt sie sich zu:

$$\Delta\lambda_{\text{geom}} = \frac{\bar{d}}{m} \frac{B_s}{b} \sin\beta \quad (3.14)$$

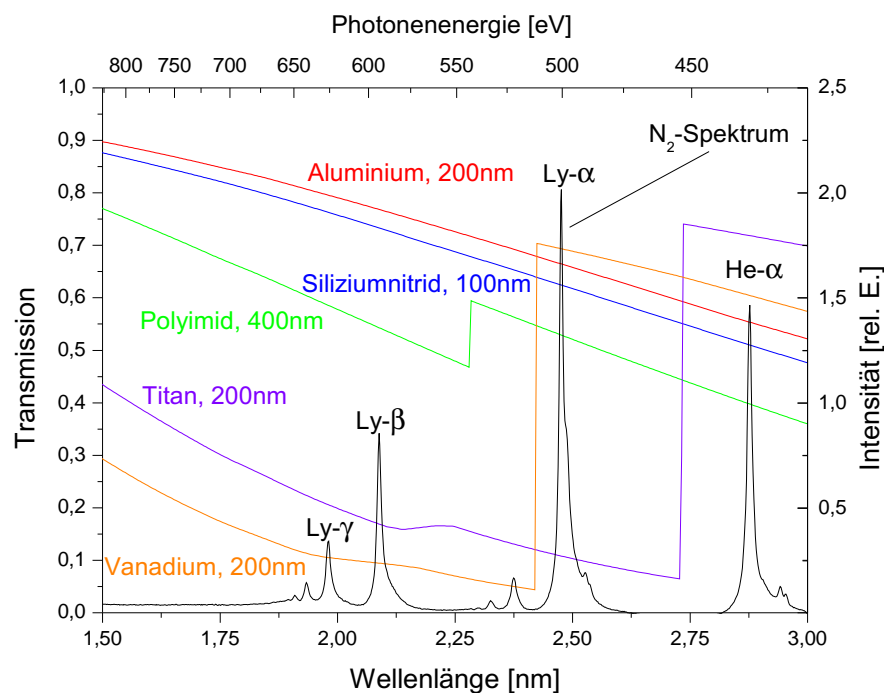
Hierbei ist jedoch zu beachten, dass dies nur für eine Wellenlänge erfüllt ist. Konstruktionsbedingt kommt es für nicht-axiale Strahlen sowie bei einer Dejustierung zu Abbildungsfehlern, die die Bildgröße und damit auch die spektrale Auflösung limitieren.

Raytracing-Berechnungen haben gezeigt, dass die Abbildungseigenschaften einer ORZ stark von der verwendeten Beugungsordnung abhängen [84]. Bei Quellgrößen von  $< 20 \mu\text{m}$  ergibt sich für die -1. Beugungsordnung ( $\alpha > \beta$ ) neben einer größeren Dispersion ein wesentlich größerer aufgefangener Raumwinkel bei gleichem spektralen Auflösungsvermögen wie für die +1. BO ( $\alpha < \beta$ ). Bei größeren Quellen kann jedoch nur in der +1. Beugungsordnung ein hohes Auflösungsvermögen erzielt werden. Für die in Kapitel 4.4 dargestellten Experimente zur Charakterisierung der Plasmaquellen wurde eine ORZ mit einer Brennweite von  $f_{\lambda_0} = 500 \text{ mm}$  in der -1. BO verwendet. Die Optik vereint zwei Gitterstrukturen auf einem Substrat, die für die beiden *Ly- $\alpha$* - und *He- $\alpha$* -Emissionslinien von Stickstoff bei  $\lambda_0^1 = 2,4779 \text{ nm}$  und  $\lambda_0^2 = 2,8787 \text{ nm}$  und einer Abbildungsvergrößerung von  $V = 2$  hergestellt worden sind. Der Einfallswinkel für beide Optiken beträgt  $\alpha = 4^\circ$ , der Beugungswinkel  $\beta = 1,5^\circ$  [92]. Die ORZ-Strukturen wurden mit einem Mikrostrukturierungsverfahren auf einem Glassubstrat hergestellt und zur Erhöhung des Beugungswirkungsgrades mit Nickel bedampft. Die Flächen der Optiken betragen je  $8 \times 1 \text{ mm}^2$ , was für die -1. BO in Projektion einer Fläche von ca.  $0,56 \times 1 \text{ mm}^2$  entspricht. Im Vergleich zu dem Transmissionsgitter ist die optische Fläche damit um einen Faktor von zehn größer. Die mittlere Gitterkonstante  $\bar{d}$  beträgt  $1,184 \mu\text{m}$  für  $2,4779 \text{ nm}$  Wellenlänge bzw.  $1,375 \mu\text{m}$  für  $\lambda = 2,8787 \text{ nm}$ , woraus sich bei Annahme einer Quellgröße von  $20 \mu\text{m}$ , einer Pixelgröße von  $20 \mu\text{m}$  des Detektors unter Voraussetzung einer fehlerfreien Abbildung eine spektrale Auflösung von  $\lambda/\Delta\lambda_{\text{geom}} \approx 3000$  ergibt.

### 3.3 Optische Filter

Laborquellen für die Röntgenmikroskopie sind in der Regel Plasmaquellen, die neben der erforderlichen weichen Röntgenstrahlung auch sichtbares Licht und unerwünschte EUV-Strahlung emittieren. Im speziellen Fall einer LIP-Quelle ist eine effiziente Filterung des um Größenordnungen stärkeren Laserlichtes zwingend erforderlich. Zu diesem Zweck werden dünne Metallfolien mit einer Dicke von  $100 \dots 400 \text{ nm}$  eingesetzt. Für den weichen Röntgen-Spektralbereich gut geeignete Materialien sind Aluminium, Vanadium und Titan. Abbildung 3.5 zeigt die Transmissionskurven dieser Materialien im Wellenlängenbereich von

1,5...3 nm. Gleichzeitig ist ein Emissionsspektrum einer auf Stickstoff basierenden LIP-Quelle sowie die Transmissionskurven von Siliziumnitrid und Polyimid dargestellt, welche als Substrat für transmittive Optiken und mikroskopische Proben verwendet werden. Ein Titan-Filter ermöglicht die Transmission der  $He-\alpha$  Emissionslinie von Stickstoff bei gleichzeitiger Absorption von energetisch höher liegenden Emissionslinien. Im Falle einer elektrischen Entladungsquelle kann die Strahlung damit monochromatisiert werden, da die energetisch höheren  $Ly$ - und  $He$ -Emissionslinien durch die im Vergleich zum LIP kältere Plasmatemperatur schwächer ausgeprägt sind und dadurch nahezu vollständig vom Titan-Filter absorbiert werden (vgl. Kapitel 4.4.3 und 5.1.2).



**Abbildung 3.5:** Transmissionskurven für Metallfilter aus Aluminium, Vanadium und Titan für den Spektralbereich der weichen Röntgenstrahlung. Siliziumnitrid und Polyimid eignen sich als Substrate für transmittive Optiken oder Proben. Weiterhin ist ein typisches Emissionsspektrum einer Stickstoff-basierten LIP-Quelle dargestellt [14, 93].

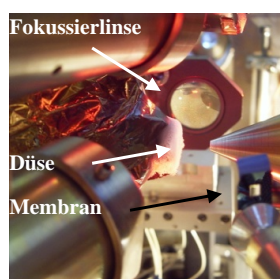
Eine weitere wichtige Aufgabe von Filtern ist der Schutz der optischen Komponenten vor dem sogenannten *Debris*. Bei einem LIP handelt es sich dabei um einen Partikelstrom (Atome, Moleküle und Cluster), der durch Schockwellen und thermische Verdampfung beim Auftreffen des Laserstrahls auf das Targetmaterial entsteht. Elektrische Entladungsquellen emittieren Debris hauptsächlich durch die Erosion der Elektroden [94]. Da die meisten Experimente viel Licht erfordern, muss die erste optische Komponente eine hohe numerische Apertur aufweisen, womit das vor der Komponente installierte Filter entweder sehr groß und weit von der Quelle entfernt ist oder sich nah am Plasma befindet und dafür einen kleineren Durchmesser

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

---

haben kann. Große Filter sind aufgrund ihrer erforderlichen Dicke mechanisch sehr instabil, hingegen werden kleinere Filter, die sich näher am Plasma befinden, stärker durch den Partikelstrom belastet. Somit muss ein Kompromiss zwischen Größe und Abstand zur Quelle gefunden werden, um eine adäquate Lebensdauer zu gewährleisten.

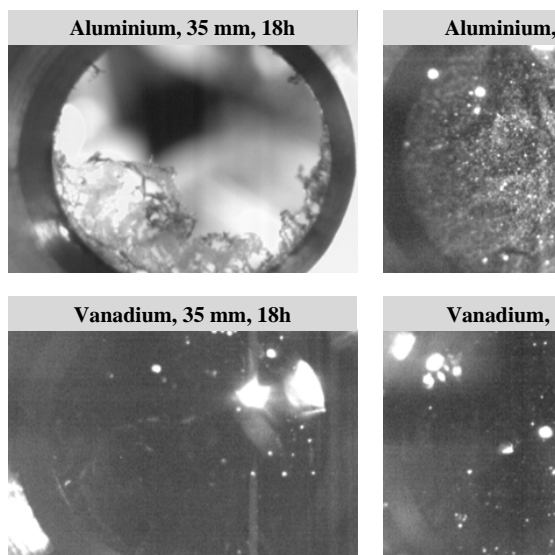
In der Labor-Röntgenmikroskopie ist gerade das Kondensorkonzept ein kritischer Punkt. Bei Verwendung einer Zonenplatte ist diese durch ihre dünne Trägerfolie (50...100 nm Siliziumnitrid) besonders gefährdet. Zudem existieren Ansätze, Kondensorzonenplatten in höherer Beugungsordnung zu benutzen, da durch die größere numerische Apertur mehr Licht aufgefangen werden kann [88]. Betrachtet man eine Kondensorzonenplatte mit einigen mm Durchmesser und einer äußersten Zonenbreite von 50 nm, ergeben sich nach Gleichungen 3.7 und 3.8 bei einer 1:1 Abbildung der Quelle in den höheren Beugungsordnungen Abstände zum Plasma von weniger als 100 mm. Um die auf das Debris bezogene Standfestigkeit von Kondensorzonenplatten zu evaluieren, wurde eine  $2 \times 2 \text{ mm}^2$  große Siliziumnitrid-Membran in einem Abstand von 150 mm zwei Stunden lang mit einem laserinduzierten Plasma bestrahlt. Der Laser wurde mit einer Pulsenergie von 100 mJ bei einer Repetitionsrate von 100 Hz betrieben. Nähere Informationen zum Aufbau und der Funktionsweise der verwendeten Quelle sind in Kapitel 4.2 zu finden. Abbildung 3.6 zeigt den Versuchsaufbau und die Ergebnisse des Experimentes. Schon bei einem Betrieb in einem Abstand von 150 mm zur Quelle entstehen nach zwei Stunden Risse in der Membran. Dies würde eine Kondensoroptik aufgrund der auftretenden Aberrationen bereits unbrauchbar machen. Bei einem Abstand von 100 mm ist die Membran nach 20 Minuten zerstört. Die Verwendung eines schützenden Filters ist daher zwingend erforderlich.



**Abbildung 3.6:** Versuchsaufbau für den Test einer 100 nm dicken Siliziumnitrid-Membran bei direkter Bestrahlung durch ein LIP (links) und eine lichtmikroskopische Aufnahme (Mitte) der Membran nach zweistündigem Betrieb in einem Abstand von 150 mm zum Plasma. Die Membran zeigt Risse durch den auftreffenden Partikelstrom (Debris). Rechts ist die Photographie einer zerstörten Membran nach 20 Minuten Betrieb in einem Abstand von 100 mm zu sehen [95].

Inwieweit dünne Metallfolien als Debris-Schutz geeignet sind, wurde innerhalb einer Langzeitstudie an der LIP-Quelle evaluiert. Aluminium- und Vanadium-Filter (Hersteller: *Lebow*) mit einer Dicke von 200 nm und einem Durchmesser von 10 mm wurden in verschiedenen

Abständen zum Plasma getestet. Die Experimente fanden in mehreren Etappen statt. Es konnten insgesamt drei Filter simultan untersucht werden. Diese sind vor je einem Kamerasystem in verschiedenen Abständen zur Plasmaquelle montiert. Über einen vierfach Video-Multiplexer werden die Filter während der Versuche gleichzeitig über einen Monitor betrachtet bzw. für eine spätere Auswertung über eine Video-Karte im Computer aufgezeichnet. Parallel dazu ist ein Kamerasystem zur Beobachtung des Flüssigkeitsstrahls und der Quellemission (vgl. Abbildung 4.4, S. 46) an den Multiplexer angeschlossen. So können Löcher bzw. Pinholes, die durch Instabilitäten der Quelle verursacht worden sind, identifiziert werden. Für jeden Filtertyp wurden zunächst Versuche mit Abständen von 200 mm, 141 mm und 100 mm zur Quelle durchgeführt. Nach 25 h Laufzeit wurden die Filter licht- und elektronenmikroskopisch untersucht und mittels EDX<sup>3</sup> analysiert. Danach wurden sie erneut mit Abständen von 70 mm, 50 mm und 35 mm eingesetzt. Die Abstufungen entsprechen je einer Verdopplung der Intensität mit kürzer werdendem Abstand. Dabei konnte festgestellt werden, dass beide Filtertypen nach 25 h Betrieb und Abständen zwischen 100 mm und 200 mm nur eine geringfügige Erhöhung der Pinhole Anzahl aufweisen. Abbildung 3.7 zeigt Kamerabilder der Filtertests nach wiederholtem Betrieb bei kürzeren Abständen. Hier lassen sich bereits bei einem Abstand von 70 mm teils starke Degradierungen erkennen. In einem Abstand von 50 mm ist das Filtermaterial vollständig perforiert, bei 35 mm ist das Filter zerstört. Vergleichstests mit Vanadium haben gezeigt, dass diese widerstandsfähiger sind. Größere Defekte bzw. Perforationen treten erst bei längeren Laufzeiten auf.



**Abbildung 3.7:** Kamerabilder der Filtertests mit Angabe der Abstände zum Plasma und den entsprechenden Laufzeiten. Vanadium zeigt eine größere Widerstandsfähigkeit gegenüber Debris als Aluminium [95].

<sup>3</sup>Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy, energiedispersive Röntgenspektroskopie

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

---

Inwieweit das Debris durch ein Filter zuverlässig abgeschirmt werden kann, ist aus diesen Experimenten schwierig zu ermitteln. Unter Umständen können Partikel, die bereits eine Metallfolie überwunden haben, noch einen ausreichenden Impuls besitzen, um die Optik zu gefährden. In jedem Fall sind Abstände von weniger als 70 mm zu vermeiden. Hier ist für einen zuverlässigen Schutz eventuell der Einsatz von zwei Filtern denkbar. Teilchen, die durch die erste Filter-Folie gelangen, können von der zweiten Folie geblockt werden. Ob die verminderte Transmission der Filter durch den größeren Raumwinkel ausgeglichen werden kann, ist jedoch fragwürdig. In jedem Fall ist das Risiko einer Zerstörung der Optik bei diesen Abständen höher. Für einen sicheren Betrieb von mehreren zehn Stunden sind Abstände über 100 mm empfehlenswert. Zudem wird der Streulichtanteil durch Löcher bzw. kleine Pinholes in der Folie bei geringeren Abständen schon nach einigen Stunden zu groß für eine mikroskopische Anwendung.

Zusätzlich wurde ein Dauertest mit einem Aluminium-Filter bei einem Abstand von 200 mm durchgeführt. Abbildung 3.8 zeigt eine Photographie und eine REM-Aufnahme des Filters nach über 100 Stunden Dauerbetrieb. In der REM-Aufnahme sind sehr kleine Pinholes mit einem Durchmesser von  $< 1 \mu\text{m}$  zu erkennen. Wie es scheint, werden größere Partikel ( $> 1 \mu\text{m}$ ) zuverlässig vom Filter geblockt, die sich dann auf diesem ablagern. Eine EDX-Analyse der Partikel führt zu der Erkenntnis, dass es sich dabei um Aluminium, Natriumchlorid, Silizium und Anteile von Edelstahl handelt. Dem Anschein nach hat das vom Plasma emittierte Debris einen sehr hohen Impuls, sodass Material von nah am Plasma befindlichen Teilen herausgeschleudert wird (Sputter-Effekt) und sich dann als Partikel auf dem Filter niederschlägt. Abbildung 4.4 (S. 46) zeigt die Abstandsverhältnisse des Aufbaus. Die Entfernung zwischen Plasma und Düse beträgt nur etwa 2...3 mm. Demnach stammt das Silizium aller Wahrscheinlichkeit nach von der Düse (Glaskapillare), der Edelstahl von der Befestigungsmutter der Düse und das Aluminium von der differentiellen Pumpstrecke. Das



**Abbildung 3.8:** Aluminium-Filter mit einer Dicke von 200 nm nach über 100 Stunden Bestrahlung durch ein Stickstoff-LIP bei einem Abstand von 200 mm (links) und eine REM-Aufnahme (rechts) bei 8400-facher Vergrößerung und 30 kV Beschleunigungsspannung [95].



Vorhandensein von Natriumchlorid ist durch den Herstellungsprozess des Filters zu erklären. Es wird dabei üblicherweise zunächst Salz (Natriumchlorid, o.ä.) auf ein Substrat aufgedampft. Danach folgt das Aufbringen der Metallschicht. So kann die Filterfolie in einem Wasserbad vom Substrat getrennt werden. Durch die Oberflächenspannung des Wassers schwimmt diese auf der Oberfläche und wird dann mit einem Ring „abgeschöpft“. Der Sputter-Effekt könnte durch eine Vergrößerung der Abstände minimiert werden. Leider ist dies aus Stabilitätsgründen des Flüssigkeitsstrahls nicht möglich (vgl. Kapitel 4.2.2). Weitere Informationen zu den hier vorgestellten Versuchsreihen sind in [95] zu finden. Da diese Ergebnisse zu Beginn der Arbeit noch nicht vorlagen, wurden für sämtliche Experimente an der LIP-Quelle Aluminium-Filter eingesetzt.

### 3.4 Detektoren

In der Durchlicht-Röntgenmikroskopie werden für die Aufnahme eines Bildes zweidimensionale Detektoren benötigt. Bis zum Anfang der 90er-Jahre wurden dafür in der Regel photographische Materialien, d.h. spezielle Photoplatten oder lichtempfindliche Emulsionen, eingesetzt. Den Vorteilen solcher Platten, nämlich ein nahezu beliebig großes Aufnahmegebiet bei einem sehr guten räumlichen Auflösungsvermögen, stellt sich eine Reihe von Nachteilen entgegen. Die Schwärzungskurve zeigt einen stark nichtlinearen Verlauf, der sich zudem noch schlecht reproduzieren lässt, sodass radiometrische Messungen, wie beispielsweise die Transmissionsbestimmung von Objektdetails, nicht möglich sind. Zudem muss die Photoplatte nach der erfolgten Belichtung nasschemisch entwickelt werden. Für ein Röntgenmikroskop bedeutet dies einen erheblichen Arbeitsaufwand, da hierfür die Vakuumkammer, in der sich die Photoplatte befindet, belüftet werden muss und die Aufnahme erst nach erfolgter Entwicklung begutachtet werden kann [96]. Heutzutage haben sich Halbleiterdetektoren für die Anwendung mit EUV- und weicher Röntgenstrahlung durchgesetzt. Die einfachste Form solcher Detektoren sind Photodioden, bei denen durch Lichteinfall eine Ladungstrennung induziert wird und somit ein Photostrom gemessen werden kann. Mit ihrer Hilfe ist es möglich, die Intensität von Röntgenstrahlung zeitaufgelöst zu messen. Aufgrund ihrer Linearität und Strahlenbeständigkeit sind sie besonders für Absolutmessungen von Photonenzahlen geeignet (vgl. Kapitel 4.4.1). Zeitlich integrierende Halbleiterdetektoren, wie z.B. CCD-Chips (engl.: Charge-Coupled Device), bieten zudem die Möglichkeit, zweidimensionale Intensitätsverteilungen aufzunehmen. Die Funktionsweise ähnelt einer Photodiode, mit dem Unterschied, dass der Chip aus mehreren Zellen, sogenannten *Pixeln*, besteht, die durch Potentialtöpfe die entstehenden Photoelektronen einfangen und später durch Schieben der Ladung an einen einkanaligen Ausgangsverstärker ausgelesen werden können. Wichtige Eigenschaften eines Detektorsystems sind Dynamik, Linearität, Empfindlichkeit, Eigenrauschen und Quanteneffizienz, deren Zusammenhänge im Folgenden erläutert werden.

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung

---

Photodioden und CCD-Detektoren bestehen typischerweise aus dotiertem Silizium. Im sichtbaren Spektralbereich beträgt die Bandlücke zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares 1,1 eV. Bei Photonenenergien oberhalb von ca. 10 eV existiert jedoch vielmehr ein Energie-mittelwert von  $E_{elp} = 3,7 \text{ eV}$ , der aus Stoßionisation der Photoelektronen mit sekundären Elektronen und damit verbundenen phononischen Beiträgen resultiert [96]. Für einen idealen Detektor im Spektralbereich der EUV- und weichen Röntgenstrahlung erhält man demnach eine mittlere Zahl von Elektronen pro absorbiertem Photon von:

$$n_{max} = \frac{E_{Ph}}{E_{elp}} = \frac{h\nu}{3,7 \text{ eV}} \quad (3.15)$$

Dabei ist  $h$  das *Planck'sche Wirkungsquantum* und  $\nu$  die Frequenz der Lichtwelle. Da nicht alle entstehenden Elektronen nachgewiesen werden können, ergibt sich daraus eine energie-bezogene Quantenausbeute  $\eta$ , die sich aus dem Verhältnis der gemessenen Elektronen  $n_{det}$  pro Photon und der idealen Elektronenzahl  $n_{max}$  zusammensetzt:

$$\eta = \frac{n_{det}}{n_{max}} = \frac{3,7 \text{ eV } n_{det}}{h\nu} \quad (3.16)$$

Die Anzahl der gemessenen Elektronen  $n_{det}$  ist demnach die Konversionsrate des Detektors und wird daher oft als *Quantum Yield (QY)* bezeichnet, da sie die Umwandlung der Photonen in Elektronen beschreibt ( $[QY] = e^-/\text{Photon}$ ).

Allgemein bezeichnet die Dynamik eines Systems den Quotienten aus dem Maximalsignal  $S_{max}$  und dem Systemrauschen  $\sigma_{sys}$ . Für das in dieser Arbeit verwendete CCD-System ist das Systemrauschen bei kurzen Belichtungszeiten hauptsächlich durch das Ausleserauschen gegeben und beträgt je nach Auslesefrequenz zwischen 5 und 10 Elektronen [97]. Ein Photon mit einer Wellenlänge von 2,48 nm ( $h\nu = 500 \text{ eV}$ ) erzeugt bereits 135 Elektronen, womit die Dynamik  $D_d$  des Detektors durch das Signal eines einzelnen Photons bestimmt ist [96]:

$$D_d = \frac{S_{max}}{n_{det}} = \frac{S_{max}}{QY} \quad (3.17)$$

Mit der Dynamik ist auch ein maximaler Wert für das Signal-Rausch-Verhältnis  $SNR$  (engl.: Signal-to-Noise-Ratio) gegeben. Für eine zeitlich *Poisson*-verteilte Strahlungsemission einer Quelle entspricht das Rauschen der Quadratwurzel der Zahl der emittierten Photonen  $N_{Ph}$  (*Shot-Noise*). Konsequenterweise gilt auch für das  $SNR$  eines Detektors:

$$SNR_{det} = \sqrt{D_d} \quad (3.18)$$

Die Dynamik sowie das  $SNR$  des Detektors können künstlich erhöht werden, wenn mehrere Aufnahmen desselben Objekts angefertigt und im Computer aufsummiert werden. Das Signal-Rausch-Verhältnis der Quelle und des Detektors stehen mit der Quanteneffizienz

$DQE$  (engl.: Detective Quantum Efficiency) in folgendem Zusammenhang:

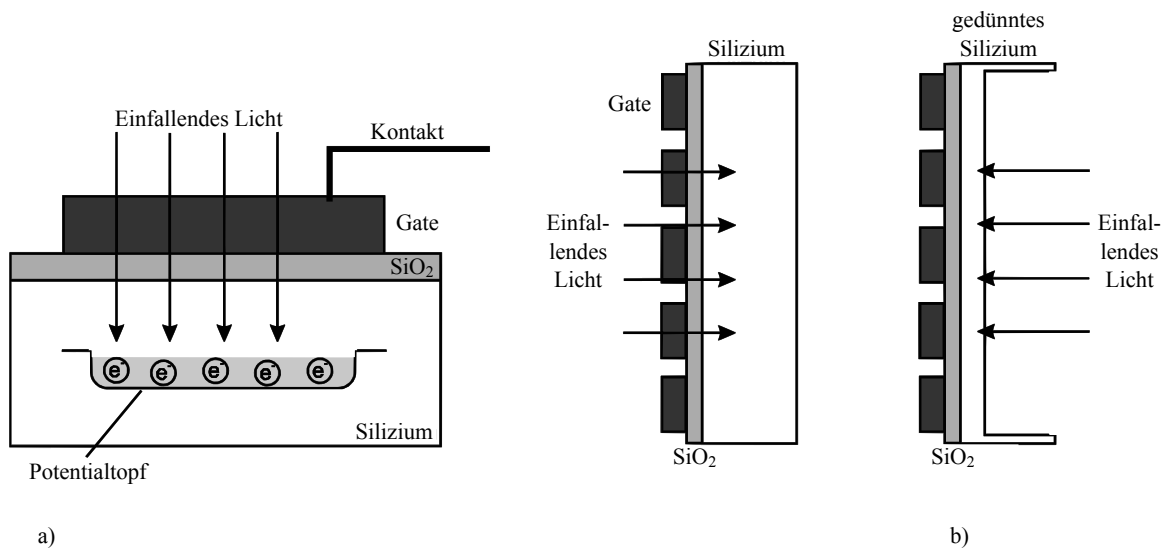
$$DQE = \left( \frac{SNR_{det}}{SNR_{Quelle}} \right)^2 = \frac{D_d}{N_{Ph}} \leq 1 \quad (3.19)$$

Demnach gibt die  $DQE$  an, wie viele auf den Detektor treffende Photonen in ein elektrisches Signal umgewandelt werden. Dabei fließen sowohl das Rauschen der Quelle als auch das Eigenrauschen des Detektors mit ein. Ist die  $DQE$  gleich eins, entspricht das Signalausrauschen dem Photonenrauschen [96]. Eine weitere Quelle für das Detektorrauschen ist der sogenannte Dunkelstrom. Durch thermische Effekte in der lichtempfindlichen Schicht können auch ohne Lichteinfall freie Elektronen erzeugt werden. Dieser Effekt ist stark von der Temperatur abhängig und proportional zur Belichtungszeit. Daher werden Detektoren meist mittels thermoelektrischer Elemente oder mit flüssigem Stickstoff gekühlt, um den Dunkelstrom zu reduzieren. Dabei führt eine Reduzierung der Temperatur um 6 K zu einer Halbierung des Dunkelstroms [98].

### 3.4.1 Ortsauflösende Detektoren

CCD-Kameras für den sichtbaren Spektralbereich sind sowohl in der Wissenschaft als auch im Alltag weit verbreitet. Für weiche Röntgenstrahlung sind sie jedoch in der üblichen Bauform nicht einsetzbar. Der Grund dafür liegt in einer isolierenden  $\text{SiO}_2$ -Schicht, durch die die Belichtung erfolgen muss. Aufgrund der hohen Absorption von weicher Röntgenstrahlung in dieser Schicht wäre die Empfindlichkeit des CCD-Chips stark vermindert. Zudem erzeugen die absorbierten Photonen Elektron-Loch-Paare, die durch schnell erfolgende Ladungstrennung zu Strahlenschäden und damit zu einer Manipulation der Potentialtöpfe führen. Aus diesem Grund werden CCD-Chips für den Spektralbereich der Röntgenstrahlung rückseitig belichtet. Da das Halbleitermaterial nicht vollständig depletiert ist, muss der Chip von der Rückseite aus auf 10...20  $\mu\text{m}$  gedünnt werden, um eine hohe Empfindlichkeit zu erhalten [96]. Abbildung 3.9 veranschaulicht den Unterschied zwischen einem frontseitigen und einem rückseitig gedünnten CCD-Chip. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurde eine *Princeton Instruments* Kamera (*PI-SX:1300*) eingesetzt [97]. Sie zeichnet sich durch eine hohe Linearität von über 98 % und einen hohen Dynamikbereich aus. Der CCD-Chip ist rückseitig gedünnt und verfügt über eine Pixelmatrix von 1340 x 1300 quadratischen Elementen. Ein Pixel hat eine Größe von 20 x 20  $\mu\text{m}^2$  und kann ca.  $3 \cdot 10^5$  Elektronen speichern, was bei einer Wellenlänge von 2,48 nm unter Berücksichtigung des in Kapitel 4.4.1 bestimmten Quantum Yields von  $QY = 115 e^-/Ph$  etwa 2610 Photonen entspricht. Zur Reduzierung des Dunkelsignals und des Ausleserausens kann der Chip mittels thermoelektrischer Kühlung auf  $-50^\circ\text{C}$  gekühlt werden. Um ein Ausfrieren der Luftfeuchtigkeit auf dem Chip zu verhindern, kann die Kamera nur unter Vakuumbedingungen gekühlt betrieben werden. Generell eignen sich rückseitig gedünnte CCDs für den Spektralbereich von 1...30 nm.

### 3 Optische Elemente für weiche Röntgenstrahlung



**Abbildung 3.9:** Funktionsprinzip eines (a) frontseitig belichteten und (b) rückseitig belichteten, gedünnten CCD-Chips [96].

#### 3.4.2 Zeitauflösende Detektoren

Als zeitauflösende Detektoren werden im sichtbaren Spektralbereich meist Photodioden verwendet. Wie CCD-Chips bestehen sie aus einem Halbleitermaterial und lassen sich auch für den Spektralbereich der Röntgenstrahlung einsetzen, sofern das Fenster bzw. die Isolationsschicht entfernt wird. Die Photoabsorption findet in der Grenzschicht der Halbleitermaterialien statt, wobei die erzeugten Ladungen im Vergleich zu einem CCD-Chip nicht gespeichert werden. Eine Photodiode erzeugt daher einen elektrischen Strom, der von einer externen Schaltung, beispielsweise einem Transimpedanz-Verstärker, in eine einfach zu messende Spannung umgewandelt und verstärkt werden muss. Durch ihre hohe Linearität und Strahlenbeständigkeit eignen sich Photodioden auch als Eichnormal für die Vermessung von Strahlungsquellen. Kapitel 4.4.1 beschreibt Experimente, mit deren Hilfe eine von der *PTB* (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) geeichte Photodiode dafür verwendet wurde, einen Spalt-Gitter-Spektrographen zu kalibrieren. Ein weiterer Verwendungszweck im Rahmen dieser Arbeit ist die Echtzeit-Kontrolle der am laserinduzierten Plasma entstehenden Röntgenemission. Durch thermische Einflüsse oder Instabilitäten des Flüssigkeitsstrahls muss die Laserfokussierung regelmäßig kontrolliert und optimiert werden (vgl. Kapitel 4.2.2). Um zu verhindern, dass sichtbare Strahlung auf die Photodiode gelangt, wird eine dünne Metallfolie als Spektral-Filter verwendet (vgl. Abschnitt 3.3). Unter Zuhilfenahme eines Oszilloskops kann das Diodensignal dargestellt werden. Dieses ist zwar über die Strahlung aller vom Filter transmittierten Wellenlängen integriert, liefert aber dennoch einen guten Anhaltspunkt für die Optimierung der Laserfokussierung.

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

Erste röntgenmikroskopische Aufnahmen wurden in den 70er-Jahren am Elektronensynchrotron *DESY* angefertigt [24]. In einem Synchrotron werden Elektronen auf nahezu Lichtgeschwindigkeit beschleunigt und mit Hilfe von Magnetfeldern durch einen Speicherring gelenkt. Bei der Ablenkung der relativistischen Elektronen an den Magneten entsteht charakteristische Synchrotronstrahlung, die hinsichtlich Brillanz, Intensität, Wellenlängen- und Leistungsskalierung ein konkurrenzloses Strahlungsnormal darstellt [16, 99]. Der Energieaufwand und die laufenden Kosten einer solchen Anlage sind jedoch extrem hoch. Experimentierplätze stehen nur begrenzt zur Verfügung und sind daher stark nachgefragt. Eine Alternative bieten Laborquellen, wie laserinduzierte Plasmaquellen, elektrische Entladungsquellen oder Hohe-Harmonische Quellen, deren Brillanz im Vergleich zu Synchrotronstrahlquellen zwar wesentlich geringer ist, die aber dennoch Erfolge im Anwendungsbereich der Röntgenmikroskopie aufzeigen können [10, 43, 77, 100, 101].

In diesem Kapitel werden zwei verschiedene Labor-Plasmaquellen vorgestellt. Nach einer Einführung in die theoretischen Grundlagen von Plasmen wird deren Aufbau näher beschrieben. Danach folgt die Darstellung der experimentell bestimmten charakteristischen Eigenschaften.

### 4.1 Theoretische Grundlagen zur Plasmaphysik

Der Begriff Plasma bezeichnet in der Physik ein nach außen elektrisch neutrales makroskopisches Vielteilchensystem mit freien Ladungsträgern (Elektronen und Ionen). Mikroskopisch lässt es sich durch die verschiedenen elektromagnetischen Wechselwirkungsprozesse der Teilchen untereinander oder in Interaktion mit äußeren elektromagnetischen Feldern beschreiben [102]. Diese spielen insbesondere bei der Erzeugung eines laserinduzierten Plasmas eine bedeutende Rolle. Für die Veranschaulichung und Simulation der komplexen Prozesse innerhalb eines Plasmas existieren verschiedene theoretische Modelle: Eine mikroskopische Beschreibung, welche jedes Teilchen einzeln betrachtet; ein Bewegungsmodell, welches von Geschwindigkeitsverteilungen ausgeht und ein Flüssigkeitsmodell, welches Parameter wie Druck, Dichte und Temperatur verwendet, um ein Plasma zu beschreiben. Allgemeine Grundlagen zu den Eigenschaften und der Erzeugung von Plasmen sind in der Literatur zu finden [16, 102, 103], auf die in den folgenden Abschnitten eingegangen wird.

### 4.1.1 Plasmaerzeugung und elementare Plasmaparameter

Um ein Plasma zu erzeugen, muss einem Medium Energie zugeführt werden, damit die Atome oder Moleküle ionisiert werden. Bei den betrachteten Plasmaquellen geschieht dies zum einen durch intensive Laserstrahlung oder zum anderen durch eine elektrische Entladung. Durch die vorhandene Ladungstrennung und die hohe Dichte innerhalb eines Plasmas spielt die *Debye-Länge* eine wichtige Rolle. Sie bezeichnet den charakteristischen Abstand, nach welchem das elektrische Potential eines Teilchens in einem Gemisch aus Ladungsträgern unterschiedlicher Polarität auf  $1/e$  abgefallen ist. Bei Betrachtung von Größenskalen kleiner als die *Debye-Länge* ist demnach eine mikroskopische Berücksichtigung der einzelnen Teilchen sinnvoll, während bei größeren Weglängen die einzelnen Ladungsträger von benachbarten Ladungen abgeschirmt werden und somit kollektive Phänomene wie akustische Wellen der Ionen und Elektronen für die Beschreibung eines Plasmas zweckmäßiger sind. Die *Debye-Länge* ist neben Naturkonstanten von der Temperatur der Elektronen  $T_e$ <sup>1</sup> und der Elektronendichte  $n_e$  abhängig und berechnet sich zu [16]:

$$\lambda_d = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e}} \quad (4.1)$$

Dabei ist  $k_B$  die Boltzmann-Konstante,  $e$  die Elementarladung und  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätszahl.

Der Startpunkt bei der Erzeugung eines laserinduzierten Plasmas ist die Ionisation der Atome oder Moleküle durch die Wechselwirkung von Laserstrahlung mit einem Targetmaterial. Dabei wird dieser Ionisationsprozess durch zwei unterschiedliche physikalische Modelle beschrieben. Zum einen werden die Atome durch die gleichzeitige Absorption von mehreren Photonen ionisiert, da die Energie eines einzelnen Photons im Allgemeinen nicht ausreicht. Man spricht auch von der *Multiphotonenionisation*. Zum anderen wird die Potentialbarriere des Coulombfeldes eines Atomkerns durch die Überlagerung mit dem äußeren elektrischen Laserfeld so weit erniedrigt, dass vorher gebundene Zustände frei werden oder die Wahrscheinlichkeit für den Tunnelprozess eines Elektrons aus dem Potential wesentlich erhöht wird. In diesem Fall spricht man von der *Tunnelionisation*. Der Übergang zwischen den beiden Prozessen wird durch den *Keldysh-Parameter*

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_I}{2U_P}} \quad \text{mit} \quad U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \quad (4.2)$$

beschrieben [104]. Hierbei ist  $E_I$  das Ionisierungspotential und  $U_P$  das *ponderomotive Potential*, welches die zeitgemittelte kinetische Energie eines Elektrons im oszillierenden elektrischen Laserfeld beschreibt. Dabei ist  $m_e$  die Masse des Elektrons,  $E_0$  die elektrische Feldstärke und  $\omega$  die Kreisfrequenz des Laserfeldes. Für  $\gamma < 1$  dominiert die Tunnelionisation, während für  $\gamma > 1$  die Multiphotonenionisation überwiegt.

---

<sup>1</sup>Die Temperatur wird in der Plasmaphysik üblicherweise in  $eV$  angegeben:  $1 eV/k_B = 11604,5 K$

Neben diesen Ionisationsmodellen spielen die Ausbreitung des elektromagnetischen Laserfeldes innerhalb des Plasmas und die damit verbundenen Wechselwirkungsprozesse mit den Ionen und Elektronen eine wichtige Rolle. Durch die hohe Frequenz der Lichtwellen können die Ionen als unbeweglich betrachtet werden. Für die freien Elektronen sind die *Stoßabsorption* sowie der Effekt der *inversen Bremsstrahlung* entscheidend. Unter Berücksichtigung der Stoßfrequenz  $\nu_{e,i}$  zwischen den Elektronen und Ionen kann mit Hilfe des *Newton'schen Gesetzes*  $\mathbf{F} = m\mathbf{a}$  eine einfache Bewegungsgleichung der Elektronen aufgestellt werden [16]:

$$m_e \frac{d\mathbf{v}_e}{dt} = -e\mathbf{E} - \underbrace{m_e \nu_{e,i} \mathbf{v}_e}_{\text{Stoßterm}} \quad (4.3)$$

Hierbei ist  $\mathbf{v}_e$  die Geschwindigkeit der Elektronen und  $\mathbf{E}$  der elektrische Feldvektor der Lichtwelle.

Unter Vernachlässigung des Stoßterms ergibt sich mit Hilfe von Gleichung 4.3 und den allgemein bekannten *Maxwell-Gleichungen* eine Wellengleichung für transversale elektromagnetische Wellen in einem Plasma [16]

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \omega_p^2 - c^2 \nabla^2 \right) \mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = 0, \quad (4.4)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$  und der Plasmafrequenz

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e}}, \quad (4.5)$$

die der natürlichen Schwingungsfrequenz der Elektronen in einem Plasma entspricht. Für eine ebene Welle der Form  $\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{E}_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k}\mathbf{x})}$  folgt aus Gleichung 4.4 die Dispersionsrelation [16]:

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2 c^2 \quad (4.6)$$

Diese unterscheidet sich von der Dispersionsrelation im Vakuum durch den Summanden  $\omega_p^2$ . Bei der Bedingung  $\omega = \omega_p$ , wenn also die Lichtfrequenz der Plasmafrequenz entspricht, wird die sogenannte *kritische Dichte* im Plasma erreicht. Kombiniert man die Gleichung für die Dispersionsrelation mit der Gleichung 4.5 und löst nach  $n_e$  auf, ergibt sich für die kritische Dichte [16]:

$$n_{krit} = \frac{\epsilon_0 m_e \omega^2}{e^2} \quad (4.7)$$

Für die Bedingung  $\omega < \omega_p$  wird der Wert  $k$  imaginär. Das bedeutet, dass die Lichtwelle an einem Plasma mit der Elektronendichte  $n_e > n_{krit}$  (*überdichtetes Plasma*) total reflektiert wird. Nur für  $\omega > \omega_p$  kann sich die Welle im *unterdichten Plasma* mit  $n_e < n_{krit}$  ausbreiten.

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

Die Brechzahl eines solchen Plasmas errechnet sich aus Gleichung 4.6 zu:

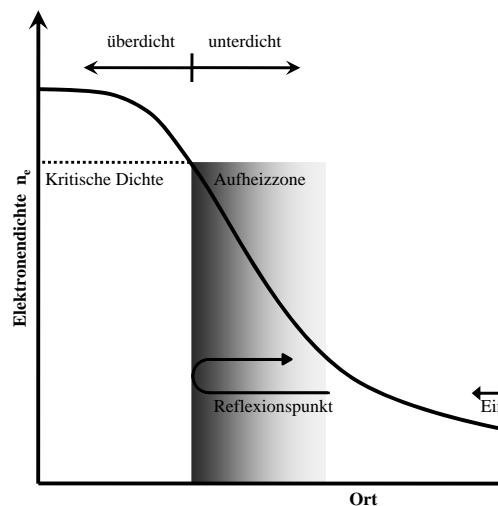
$$n_{Plasma} = \sqrt{1 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2} \quad (4.8)$$

Berücksichtigt man den Stoßterm  $-m_e \nu_{e,i} \mathbf{v}_e$  aus Gleichung 4.3, so wird die Dispersionsrelation unter der Bedingung  $\nu_{e,i} \ll \omega$  erweitert zu [16]:

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2 c^2 - i \omega_p^2 \frac{\nu_{e,i}}{\omega} \quad (4.9)$$

Der Realteil entspricht der Dispersionsrelation ohne Berücksichtigung des Stoßterms aus Gleichung 4.3. Der negative Imaginärteil bedeutet eine Dämpfung der Lichtwelle während der Ausbreitung im unterdichten Plasma. Dabei überträgt die Welle Energie in Form von Elektronenoszillationen über Stöße der Elektronen mit Ionen in das Plasma. Die Elektronentemperatur wird demnach erhöht, und es werden weitere Ionisationsstufen erzeugt.

Abbildung 4.1 verdeutlicht den Prozess schematisch. Die einfallende Laserstrahlung trifft auf ein Plasma mit einem Elektronendichtegradienten. Beim Fortlaufen der Welle durch das unterdichte Plasma wird diese gedämpft und heizt das Plasma über *inverse Bremsstrahlung* weiter auf. Die Welle dringt bis zum Erreichen der kritischen Dichte weiter in das Plasma ein und wird schließlich total reflektiert. Im Bereich vor dem Reflexionspunkt ist die Energieübertragung aus der Lichtwelle in das Plasma durch Stoßabsorption am effektivsten. Für einen frequenzverdoppelten Nd:YAG<sup>2</sup>-Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm liegt die kritische Dichte bei etwa  $n_{krit} \approx 4 \cdot 10^{21} \text{ e}^- / \text{cm}^3$ .



**Abbildung 4.1:** Eindimensionale Darstellung der Absorption von Laserstrahlung in einem Plasma.

<sup>2</sup>Yttrium-Aluminium-Granat mit Neodym dotiert



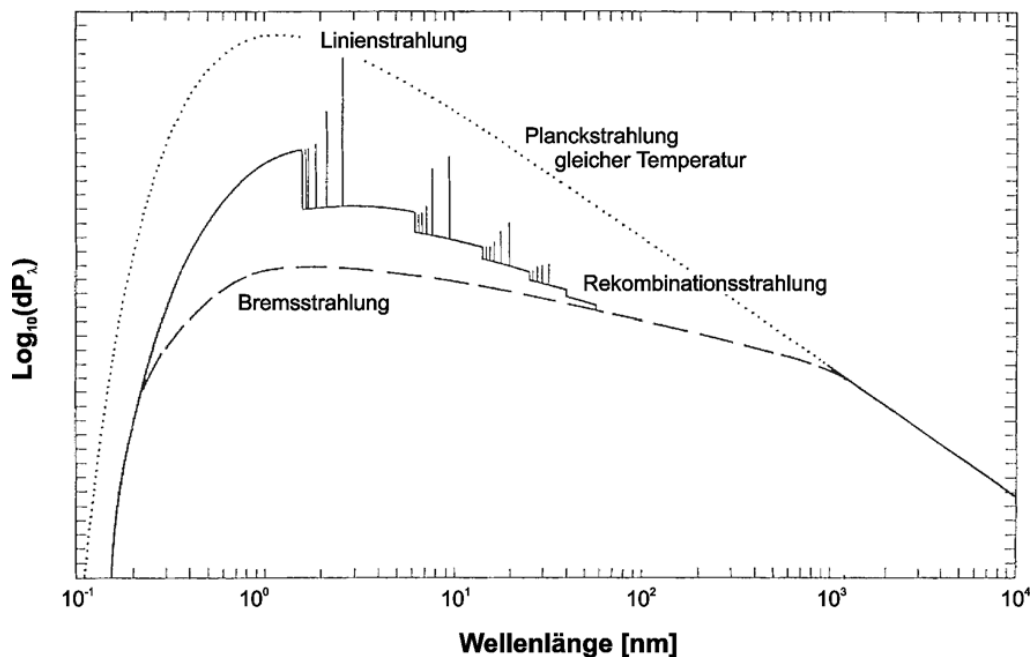
## 4.1.2 Strahlungsmechanismen in Plasmen

Ein Plasma verliert Energie durch das Abbremsen schneller Elektronen und die Rekombination von Elektronen mit Ionen. Dabei wird elektromagnetische Strahlung in einem breiten Spektralbereich emittiert. Die Charakteristik der Strahlung ist im Wesentlichen durch die Art der Plasmaerzeugung und die Wahl des Targetmaterials bestimmt. Als Näherung für die Emission eines Plasmas kann das *Planck'sche Strahlungsgesetz* herangezogen werden. Für die abgestrahlte Leistung  $dP$  pro Flächenelement  $dA$  in ein Raumwinkelintervall  $d\Omega$  eines Systems im vollständigen thermodynamischen Gleichgewicht gilt [105]:

$$\frac{dP}{d\lambda \cdot d\Omega \cdot dA} = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{hc/\lambda k_B T} - 1} \quad (4.10)$$

Die hieraus resultierende *Planck-Kurve* stellt das obere Limit für die Strahlungsleistung eines Plasmas dar, da sich dieses nicht im vollständigen thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Abbildung 4.2 veranschaulicht den Unterschied der spektralen Verteilung eines Planck-Strahlers und der eines Plasmas. Das Strahlungsmaximum der Kurve berechnet sich aus dem *Wien'schen Verschiebungsgesetz* [106]:

$$\lambda_{max} = \frac{2,9 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot K}{T} \quad (4.11)$$



**Abbildung 4.2:** Berechnete Strahlung eines Stickstoff-Plasmas bei einer Temperatur von  $T = 200 \text{ eV}$ . Als Vergleich ist das Spektrum eines schwarzen Strahlers bei gleicher Temperatur gezeigt [107].

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

---

So lässt sich die Temperatur bestimmen, die für die Emissions-Maximierung eines speziellen Spektralbereichs notwendig ist. Für die Emission der *Ly- $\alpha$* -Linie von Stickstoff bei einer Wellenlänge von 2,48 nm ist demnach eine Temperatur von  $1,17 \cdot 10^6$  K erforderlich. Die dafür notwendige Leistungsdichte  $I_L$  ist durch das *Stefan-Boltzmann-Gesetz* für Planck-Strahler mit  $\sigma_B$  als Stefan-Boltzmann-Konstante gegeben [16]:

$$I_L = \sigma_B T^4 \quad (4.12)$$

Für ein Strahlungsmaximum bei einer Wellenlänge von 2,48 nm ist folglich eine Leistungsdichte von  $1,06 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> nötig, was bei der Festlegung des Lasersystems und der Fokussierung einen wichtigen Parameter darstellt (vgl. Abschnitt 4.2).

Wie in Abbildung 4.2 gezeigt, stellt das Spektrum eines schwarzen Strahlers die obere Grenze der spektralen Intensität dar. Die berechneten Werte aus den o.g. Gleichungen veranschaulichen damit lediglich die Größenordnung der Plasmaparameter und können als Hilfe für die Festlegung des Lasersystems und des Targetmaterials dienen. Von *Lebert* durchgeführte Berechnungen haben jedoch gezeigt, dass einzelne Spektrallinien die Planck-Kurve nahezu erreichen können [107].

Die aus einem Plasma emittierte elektromagnetische Strahlung entsteht im Wesentlichen durch drei verschiedene Strahlungsmechanismen:

- Bremsstrahlung (frei-frei Übergänge)
- Rekombinationsstrahlung (frei-gebunden Übergänge)
- Linienstrahlung (gebunden-gebunden Übergänge)

Die im Plasma vorhandenen freien Elektronen werden im Coulomb-Feld der positiv geladenen Ionen abgebremst und emittieren dabei Strahlung (Bremsstrahlung). Zudem können diese auch mit den Ionen rekombinieren und in einen gebundenen Zustand übergehen, wobei Rekombinationsstrahlung emittiert wird. Da der umgewandelte Energiebetrag in beiden Fällen von der kinetischen Energie der Elektronen abhängt und diese statistisch verteilt ist, entsteht ein kontinuierliches Spektrum. Durch das Herabfallen von gebundenen Elektronen eines höheren Niveaus in niedriger gelegene Energieniveaus des Atomverbundes entsteht die für das Targetmaterial charakteristische Linienstrahlung. Je nach Energiedifferenz der beteiligten Zustände werden einzelne, schmalbandige Linien emittiert, deren Wellenlängen durch die *Rydberg-Formel* beschrieben werden [108]:

$$\frac{1}{\lambda} = R_\infty (Z - \sigma)^2 \left( \frac{1}{m_z^2} - \frac{1}{n_z^2} \right) \quad |n_z > m_z \quad (4.13)$$

Dabei sind  $R_\infty$  die Rydbergkonstante,  $Z$  die Kernladungszahl,  $\sigma$  die Abschirmkonstante und  $n_z, m_z$  die Hauptquantenzahlen der beteiligten Energieniveaus.

Die Breite der Emissionslinien setzt sich dabei aus der natürlichen Linienbreite, der Dopplerverbreiterung und der Druckverbreiterung zusammen [106]:

**Natürliche Linienbreite:** Durch die natürliche Lebensdauer  $\tau$  des angeregten Zustandes eines Atoms ist die Energie des emittierten Photons nur bis auf einen Energiebetrag von  $\Delta E = \hbar/\tau$  genau bestimmt. Dies führt zu einem lorentzförmigen Linienprofil mit einer Halbwertsbreite von [108]:

$$\Delta\lambda_N = \lambda_0^2 / (2c\pi\tau) \quad (4.14)$$

**Dopplerverbreiterung:** Durch die thermischen Bewegungen der Atome unterliegen die emittierten Photonen der Dopplerverbreiterung. Bei einer *Maxwell'schen* Geschwindigkeitsverteilung erhält man mit  $M$  als Ionenmasse ein gaußförmiges Linienprofil mit einer Halbwertsbreite von [108]:

$$\Delta\lambda_D = \lambda_0 \sqrt{k_B T \cdot 2 \ln 2 / M} \quad (4.15)$$

**Druck-, Starkverbreiterung:** Durch Stoßprozesse der Atomkerne wird die Emission eines Photons „gestört“. Ist die mittlere Zeit zwischen zwei Atomstößen in der Größenordnung der mittleren Lebensdauer oder darunter, wird die effektive Lebensdauer des Zustandes verkürzt und damit die Energiebandbreite vergrößert. Der Prozess ist von der Ionensorte und dem Übergang abhängig. Für wasserstoffähnliche Ionen mit der Ionendichte  $n_i$  und der von der Elektronendichte  $n_e$  und Plasmatemperatur  $T$  abhängigen Konstante  $C_L(n_e, T)$  gilt näherungsweise [107]:

$$\Delta\lambda_S \approx C_L(n_e, T) \cdot n_i^{2/3} \quad (4.16)$$

Die Linienbreite ist für die röntgenmikroskopische Abbildung mit einer Zonenplatte von besonderer Relevanz. Wenn durch einen monochromatisierenden Kondensator eine Emissionslinie des Plasmas freigestellt werden kann, stellt die Linienbreite den limitierenden Faktor für eine Abbildung ohne chromatische Aberrationen dar (siehe Gleichung 3.11). Bei einem laserinduzierten Plasma ist die Linienbreite im Wesentlichen durch die Doppler- und Starkverbreiterung gegeben. Im weichen Röntgen-Spektralbereich beträgt die Linienbreite bei Laserintensitäten von  $< 10^{16} \text{ W/cm}^2$  weniger als 1 pm [109, 110]. Bei Betrachtung des Plasmas einer elektrischen Entladung (siehe Abschnitt 4.3) sind aufgrund einer geringeren Plasmadichte und -temperatur ähnliche Linienbreiten zu erwarten. Messungen mit einem Off-Axis-Reflexionsspektrographen (vgl. Kapitel 3.2.2) haben dies bestätigt. In den Abschnitten 4.4.2 und 4.4.3 sind die entsprechenden Ergebnisse zu finden.

### 4.1.3 Targetmaterialien für die Plasmaerzeugung

Das Strahlungsspektrum eines laserinduzierten Plasmas wird neben der Art der Plasmaerzeugung durch das Targetmaterial bestimmt. Je nach Intensität des Lasers können unterschiedliche Ionisationsstufen des Targets angeregt werden. Analog dazu bestimmt die Energie der elektrischen Entladung und der Aufbau des Elektrodensystems die maximale Ionisationsstufe bei einer Entladungsquelle. Ist man beispielsweise an Strahlung mit einzelner Spektrallinien in einem bestimmten Wellenlängenbereich interessiert, wählt man gemäß Gleichung 4.13 ein Target mit einer kleinen Kernladungszahl und entsprechend hohen Ionisationsstufen ( $n_z, m_z = 1, 2, 3$ ). Für die Erzeugung eines kontinuierlichen Spektrums sind hingegen schwere Elemente mit hoher Kernladungszahl erforderlich, da durch die hohe Anzahl der möglichen Übergänge ein Quasi-Kontinuum entsteht [103]. Durch die Wahl des Targetmaterials kann demnach eine Plasmaquelle für eine bestimmte Anwendung optimiert werden. Für Linienstrahlung im Spektralbereich der weichen Röntgenstrahlung, speziell im Wasserfenster, bieten sich Kohlenstoff und Stickstoff an.

Die Erzeugung des Plasmas findet im Vakuum statt, da die hohen Intensitäten im Bereich des Laserfokus einen Luftdurchbruch verursachen und die dadurch verlorene Energie nicht mehr für das eigentliche Target zur Verfügung steht. Zudem ist die Absorption der gewünschten Röntgenstrahlung an Luft sehr groß [14]. Während bei einer elektrischen Entladungsquelle nur gasförmige Medien als Target geeignet sind, ist der Aggregatzustand bei einem laserinduzierten Plasma frei wählbar. Jedoch gibt es große Unterschiede bei der Handhabung und der maximal erreichbaren Strahlungsleistung. Festkörpertargets können hinsichtlich ihres niedrigen Dampfdrucks problemlos im Vakuum eingesetzt werden. Zudem bieten sie, aufgrund ihrer hohen Dichte, die höchste emittierte Leistungsdichte im Vergleich zu flüssigen oder gasförmigen Medien. Jedoch muss sichergestellt werden, dass jeder Laserpuls auf eine neue Stelle des Materials trifft. Durch die Erzeugung des Plasmas entsteht ein Krater, womit sich das Material bei darauffolgenden Pulsen nicht mehr optimal im Fokus befindet und die Emission drastisch abnimmt. Bei Verwendung von Rundmaterial kann beispielsweise durch Rotation und gleichzeitig lateraler Bewegung relativ zur einfallenden Laserstrahlung dafür gesorgt werden, dass immer eine neue Stelle des Targets getroffen wird. Nachteilig bei Festkörpertargets ist jedoch das sogenannte *Debris*. Durch das Auftreffen des Laserstrahls auf den festen Körper entstehen Schockwellen, wodurch Teilchen aus der Oberfläche herausgeschleudert werden [11, 95]. Zusätzlich besteht Debris aus Ionen, die neben der gewünschten Strahlung vom Plasma emittiert werden. Dieser Partikelstrom kann zur Zerstörung von sensiblen röntgenoptischen Elementen führen und stellt das größte Problem bei Festkörpertargets dar (vgl. Kapitel 3.3).

Durch die Verwendung von Flüssigkeits- oder Gastargets kann die Entstehung von Debris gemindert werden. Bei einem Gastarget leitet man kurzzeitig Gas in das Vakuum. Der Laser trifft in die Gaswolke und zündet das Plasma. Das entstehende Debris setzt sich lediglich aus einzelnen Atomen und Ionen zusammen. Um eine hohe mittlere Atomdichte zu erzeugen und damit effektiv die Laserstrahlung zu absorbieren sind jedoch Drücke von etwa 10 bar nötig. Die maximal erreichbare Repetitionsrate ist damit durch die erforderlichen Vakuumbedingungen begrenzt [111, 112].

Bei Flüssigkeitstargets wird durch eine Düse ein ultradünner Flüssigkeitsstrahl (Jet) mit einigen 10  $\mu\text{m}$  Durchmesser erzeugt. Der hierfür erforderliche Druck liegt im Bereich von 10...60 bar. Die Atomdichte ist mit der von Festkörpern vergleichbar. Wählt man eine Fokussgröße im Bereich des Jetdurchmessers, spricht man von einem *mass-limited* Target. Das auftretende Debris kann dadurch drastisch reduziert werden. Ein weiterer Vorteil ist eine automatische Targeterneuerung, denn jeder Laserpuls trifft auf eine neue Stelle des Targets. Nachteilig bei dieser Art von Targets ist jedoch die Aufrechterhaltung des Vakuums. Durch den hohen Dampfdruck von Flüssigkeiten müssen differentielle Pumpstrecken oder Kühlfallen in Verbindung mit saugstarken Pumpen eingesetzt werden. Verwendbare Flüssigkeiten bestehen in der Regel aus mehreren Atomsorten, sodass eine spezifische Auswahl von nur einem Element zur Maximierung der Röntgenemission einer bestimmten Wellenlänge schwierig ist. Einen Ausweg bietet die Verwendung von sogenannten *Kryo*-Flüssigkeitstargets [113]. Hierbei wird ein unter Atmosphärendruck gasförmiges Element verflüssigt. Da dieses aus nur einer Atomsorte besteht, bietet es konsequenterweise eine höhere Konversionseffizienz als Molekülverbindungen. Nach der Interaktion mit dem Laser kann dieses durch eine differentielle Pumpstrecke wieder aus dem Vakuumsystem abgeführt werden. Eine andere, experimentell jedoch weitaus aufwändigere Methode besteht darin, ein Gas auf einer tiefkalten Oberfläche auszufrieren. Nach Erreichen der erforderlichen Dicke wird der Laserstrahl auf das Kryo-Target fokussiert [114]. Durch das relativ langsame Wachsen der Eisschicht ist die Repetitionsrate eines solchen Kryo-Festkörpertargets jedoch begrenzt. Zudem entsteht Debris in Form von kleinen Eispartikeln.

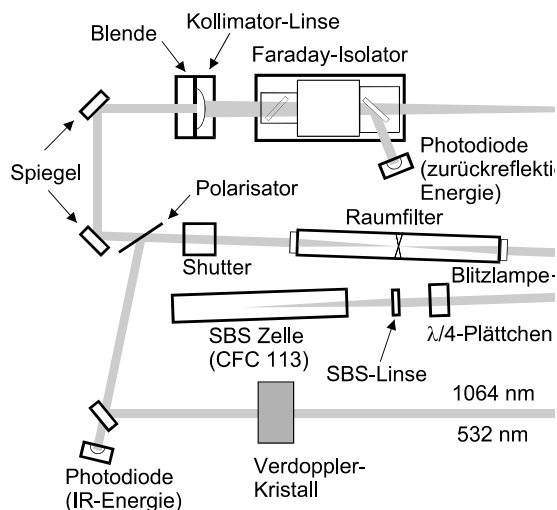
## 4.2 Laserinduzierte Plasmaquelle

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendete laserinduzierte Plasmaquelle wurde am RheinAhr-Campus in Remagen entwickelt. Sie basiert auf einem älteren Konzept [115, 116], welches neu konstruiert und optimiert wurde. Damit konnte eine bessere Langzeitstabilität gewährleistet und die Wartungsintervalle verlängert werden. In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Komponenten des Aufbaus beschrieben und die durchgeführten Optimierungen erläutert.

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

### 4.2.1 Lasersystem

Für die Erzeugung des Plasmas wird ein mit einem BBO<sup>3</sup>-Kristall frequenzverdoppelter, gütegeschalteter Nd:YAG-Laser (*Infinity 40-100, Coherent*) mit einer Pulslänge von 3 ns und einer maximalen Repetitionsrate von 100 Hz verwendet. Bei maximaler Repetitionsrate erreicht der Laser eine Pulsenergie von 400 mJ in der infraroten Emissionslinie ( $\lambda = 1064$  nm). Die Konversionseffizienz des BBO-Kristalls beträgt ca. 50...60 %, damit stehen maximal 230 mJ für die Plasmaerzeugung zur Verfügung. Der Laser ist nach dem Oszillator-Verstärker-Prinzip aufgebaut. Ein Laserdioden-gepumpter Nd:YAG-Oszillator erzeugt mittels einer Güteschaltung durch einen AOM<sup>4</sup> kurze Pulse mit einer Dauer von etwa 10 ns und einer Pulsenergie von 30  $\mu$ J [117]. Dieser Puls wird dann durch Blitzlampen-gepumpte Nd:YAG-Kristalle verstärkt. Ein Überblick über den gesamten Aufbau ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Nach dem Oszillator wird der Strahl kollimiert und passiert einen *Faraday-Isolator*, der verhindert, dass vom nachgeschalteten Verstärker zurückgestreute Laserstrahlung in den Oszillator gelangt und diesen beschädigt bzw. zerstört. Anschließend wird der Strahl linear polarisiert und durchläuft einen Raumfilter. Dieser eliminiert hohe Raumfrequenzen und erzeugt so ein gaußförmiges Strahlprofil. Damit kein Luftdurchbruch entsteht, befindet sich die Blende des Raumfilters in einer Vakuumpküvette. Der Verstärker besteht aus zwei Blitzlampen-gepumpten Nd:YAG-Kristallen. Nach der ersten Verstärkung wird der Strahl durch ein Image-Relay-System in den zweiten Kristall abgebildet. Ein zwischengeschalteter 90°-Rotator reduziert dabei die durch thermische Doppelbrechung in den Kristallen erzeugte Polarisationserniedrigung. Nach Durchlaufen der beiden Kristalle



**Abbildung 4.3:** Aufbau des verwendeten Lasersystems Coherent Infinity 40-100 [117].

<sup>3</sup>Barium-Borat

<sup>4</sup>Akusto-optischer Modulator

wird der Strahl in eine SBS-Zelle<sup>5</sup> fokussiert. Diese ist mit einer Flüssigkeit (*CFC 113*, Chlor-Fluoro-Carbonat) gefüllt, in der im Fokuspunkt ein phasenkonjugierender Spiegel erzeugt wird [85, 118]. Nach der Reflexion in der SBS-Zelle passiert der Strahl ein weiteres Mal die Verstärkerkristalle. Durch den phasenkonjugierenden Spiegel werden Wellenfrontverzerrungen, die durch den thermischen Linseneffekt der Verstärkerkristalle beim ersten Durchlauf entstanden sind, beim zweiten Durchlauf kompensiert. Der SBS-Effekt ist stark nichtlinear und selbstinduziert. Ist eine bestimmte Leistungsdichte im Fokus überschritten, wird der phasenkonjugierende Spiegel erzeugt. Dadurch wird ein Teil des Laserpulses abgeschnitten und eine steil ansteigende Pulsflanke erreicht. Der aus dem Oszillator emittierte Laserpuls mit einer Länge von 10 ns wird so auf 3 ns nach der Verstärkung verkürzt. Im Strahlengang befindet sich zusätzlich ein  $\lambda/4$ -Plättchen. Da dieses zweimal durchlaufen wird, kann der Strahl durch einen polarisationsabhängigen Spiegel ausgekoppelt werden. Bevor der Strahl das Lasersystem über zwei Spiegel verlässt, wird die Lichtfrequenz mittels eines BBO-Kristalls verdoppelt.

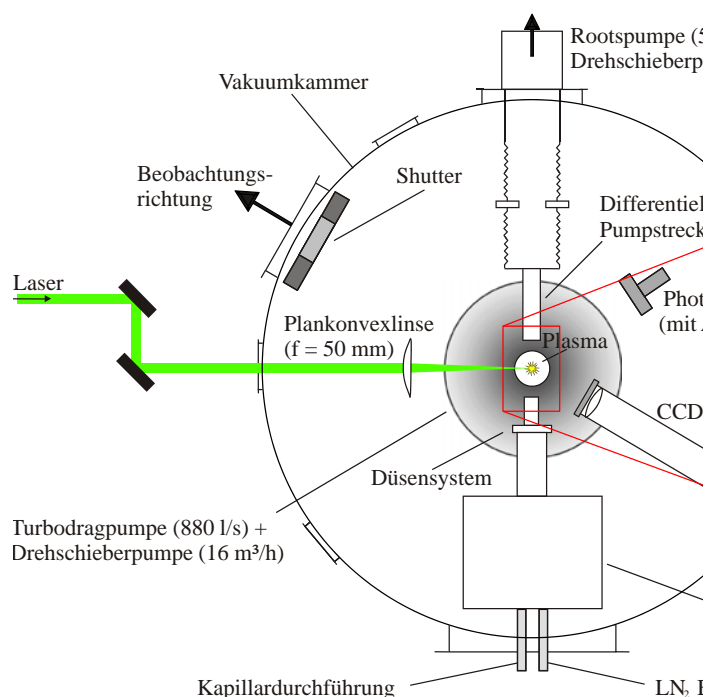
### 4.2.2 Targetsystem

Wie in Abschnitt 4.1.3 erwähnt wurde, ist es durch eine gezielte Auswahl des Targets möglich, die emittierte Strahlung aus einem Plasma für eine bestimmte Anwendung zu optimieren. Für die Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung im Wasserfenster (Wellenlänge zwischen 2,28 nm und 4,36 nm) sind Kohlenstoff und Stickstoff als Targetmaterialien am besten geeignet. Die stärksten Emissionslinien von Kohlenstoff liegen bei  $\lambda_{C-Ly-\alpha} = 3,37$  nm (wasserstoffähnliches Ion) und  $\lambda_{C-He-\alpha} = 4,03$  nm (heliumähnliches Ion). Stickstoff emittiert stark bei  $\lambda_{N-Ly-\alpha} = 2,48$  nm und  $\lambda_{N-He-\alpha} = 2,88$  nm. Da die Transmission von Wasser bei höheren Photonenenergien größer ist (vgl. Abbildung 2.1, S. 8), und damit auch dickere biologische Zellen in ihrer wässrigen Umgebung untersucht werden können, ist Stickstoff zu bevorzugen. Ein weiterer Vorteil ist, dass Stickstoff in reiner Form als Kryo-Flüssigkeitsstrahl verwendet und somit relativ leicht über eine differentielle Pumpstrecke aus dem Vakuumsystem abgeführt werden kann. Kohlenstoff kann entweder als Feststoff oder als Flüssigkeitsstrahl in einer organischen Verbindung (z.B. Methanol, Ethanol) benutzt werden. Feststofftargets verursachen jedoch sehr viel Debris und in einer alkoholischen Verbindung ist der Kohlenstoffanteil geringer als im reinen Zustand, sodass die Konversionseffizienz für die wasserstoff- und heliumähnlichen Emissionslinien bei Stickstoff größer ist.

Abbildung 4.4 zeigt den schematischen Aufbau der Targetkammer. Für die Erzeugung eines flüssigen Stickstoffstrahls wird hochreines Stickstoffgas der Qualität 6.0 verwendet. Bereits verflüssigter Stickstoff ist aufgrund seiner Verunreinigungen nicht geeignet, da das Düsensystem durch sich ansammelnde Fremdstoffe verstopfen würde. Das Stickstoffgas wird

<sup>5</sup>Stimulated Brillouin-Scattering, Stimulierte Brillouin-Streuung

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie



**Abbildung 4.4:** Schematischer Aufbau der Targetkammer und eine Photographie eines Plasmas an Luft.

über eine Kapillare durch einen mit flüssigem Stickstoff gefüllten Behälter (Kryostaten) geführt. Über Dampfdruckerniedrigung des Kryostaten kann so das Gas bis zur Verflüssigung abgekühlt werden.

Bevor das Düsensystem optimiert wurde, mündete die Kapillare in einer Elektronenmikroskopieblende aus Platin/Iridium mit einem Durchmesser von 10...30  $\mu\text{m}$ . Diese Blenden haben jedoch den Nachteil, dass sie bereits nach einer Laufzeit von  $< 15$  h starke Beschädigungen durch die Flüssigkeitsströmung aufweisen und dadurch keinen stabilen Strahlbetrieb mehr ermöglichen [115]. Im Rahmen der Arbeit wurde das System auf die Verwendung von Glaskapillaren mit einem sich verjüngenden Düsenkanal (20  $\mu\text{m}$ ) umgebaut. Diese zeigten bereits an einer Plasmaquelle, basierend auf einem Flüssigkeitsstrahl aus Ethanol, längere Laufzeiten von bis zu 100 h und lassen sich über eine Klemmverschraubung leicht austauschen. Damit keine Fremdstoffe in den Düsenkanal gelangen, befinden sich im Kapillarsystem zwei Sinterfilter mit Filtereinsätzen aus Edelstahl und einer Porengröße von 0,5  $\mu\text{m}$ . Einer der Filter wird außerhalb des Vakuums über ein Dewargefäß mit flüssigem Stickstoff gekühlt, der andere befindet sich innerhalb des Kryostaten. Dieser Aufbau hat sich gerade für längere Laufzeiten von mehr als zwei Stunden bewährt, da mit der Zeit Verunreinigungen im Gas zum Einfrieren der Düse führen. Durch die beiden Filter werden die Verunreinigungen vorab innerhalb dieser ausgefroren.



Um die Vakuumbedingungen aufrecht zu erhalten, werden saugstarke Pumpen (vgl. Abbildung 4.4) eingesetzt. Ferner wird der Stickstoffstrahl durch eine differentielle Pumpstrecke aus der Kammer herausgeschleust. Bei Verwendung einer Glaskapillare mit einem Innendurchmesser von  $20\ \mu\text{m}$  ist für die Erzeugung eines stabilen Jets ein Stickstoffgasdruck von 12 bar notwendig. Dabei liegt der Druck in der Targetkammer bei etwa  $8 \cdot 10^{-3}$  mbar. Aufgrund einer schlechten Wärmeleitung des Glaskapillarhalters muss der Kryostat bis kurz vor den Gefrierpunkt des Stickstoffs auf 120 mbar abgepumpt werden. Eine weitere Dampfdruckerniedrigung würde zu einem Einfrieren des Kapillarsystems führen. Demnach lassen sich keine höheren Drücke einstellen, da die größere Stickstoffgasmenge nicht ausreichend gekühlt werden kann und der Jet somit zerfällt. Höhere Drücke würden aufgrund der Geschwindigkeitssteigerung des Strahls zu einer größeren Zerfallslänge und damit zu einem stabileren Jet führen. Insbesondere ist dies bei der Verwendung von hohen Repetitionsraten des Lasers wichtig, da die durch das Plasma erzeugten Schockwellen die Stabilität eines schnelleren Jets weniger beeinflussen.

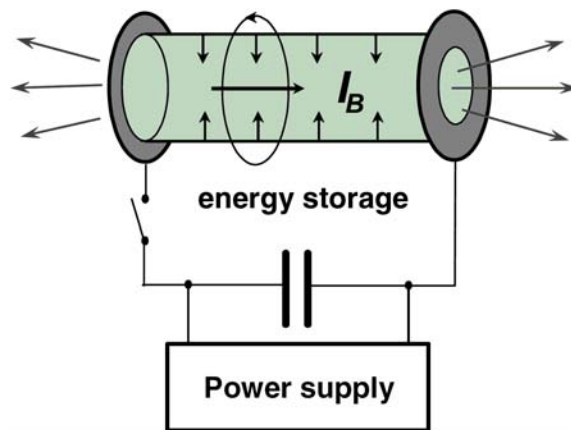
Der Laser wird mit Hilfe einer Plankonvexlinse ( $f = 50\ \text{mm}$ ) auf den Flüssigkeitsstrahl fokussiert. Die Fokusgröße beträgt etwa  $10\ \mu\text{m}$  (FWHM), wodurch bei maximaler Pulsenergie des Lasers ohne Berücksichtigung der Strahlungsverluste durch Umlenkspiegel und des Vakuumfensters eine Intensität von bis zu  $1 \cdot 10^{14}\ \text{W}/\text{cm}^2$  erreicht werden kann. Mittels zweier Kamerasysteme und einer Photodiode wird der Jet bzw. die Emission des Plasmas beobachtet. Über eine Motorisierung der Düse und der Fokussierlinse kann die Lage und Photonenausbeute des Plasmas im laufenden Betrieb nachkorrigiert werden. Eine Vorjustage an Luft ist aufgrund der am Kryostaten kondensierenden Luftfeuchtigkeit nicht möglich.

### 4.3 Elektrische Entladungsquelle

Die Entwicklung elektrischer Entladungsquellen wird maßgeblich durch die EUV-Lithographie vorangetrieben. Aber auch in anderen Anwendungsgebieten, wie in der Metrologie, Spektroskopie und Mikroskopie, haben sie sich im EUV-Spektralbereich als Alternative zu Synchrotronstrahlquellen etabliert. Dabei zeichnen sie sich durch ihre simple Handhabung (vollautomatische Turn-Key-Systeme), hohe Flexibilität und Zuverlässigkeit aus. Die mittlere Betriebslebensdauer kann 1000 Stunden und mehr betragen. Durch den Wechsel des Betriebsgases ist es möglich, das emittierende Spektrum für eine bestimmte Anwendung zu optimieren. Beispielsweise liefert Xenon ein Quasi-Kontinuum, während leichtere Gase, wie Stickstoff oder Sauerstoff, ein ausgeprägtes Linienspektrum emittieren [119]. In den folgenden Abschnitten wird die Funktionsweise von elektrischen Entladungsquellen erläutert. Weiterhin erfolgt eine genauere Beschreibung des Aufbaus der am Fraunhofer Institut für Lasertechnik in Aachen entwickelten Entladungsquelle.

### 4.3.1 Funktionsprinzip

Bei einer elektrischen Entladungsquelle wird ein Plasma durch einen gepulsten elektrischen Strom erzeugt. Abbildung 4.5 veranschaulicht das Funktionsprinzip. Zwischen zwei Elektroden befindet sich ein Gas mit einem Druck von typischerweise 0,1...1 mbar. Über eine elektrische Verbindung mit sehr geringer Induktivität ( $< 20 \text{ nH}$ ) sind die Elektroden mit einer aufgeladenen Kondensatorbank verbunden. Dadurch können Ströme von einigen 10 kA erzeugt werden [120]. Nach der Zündung wird durch den im Plasma fließenden Strom ein azimuthales Magnetfeld erzeugt, welches durch den sogenannten *Pinch-Effekt* das Plasma weiter komprimiert und zu einem Plasmaschlauch verdichtet. Somit können Plasmatemperaturen von einigen 10 eV generiert werden. Im Vergleich zu einem laserinduzierten Plasma ist die Plasmadichte einer Entladungsquelle jedoch wesentlich geringer.



**Abbildung 4.5:** Prinzip einer elektrischen Entladungsquelle. Zwischen zwei Elektroden befindet sich ein Gas. Durch einen elektrischen Strom wird das Plasma gezündet. Das dadurch erzeugte Magnetfeld schnürt das Plasma ein und heizt dieses weiter auf [120].

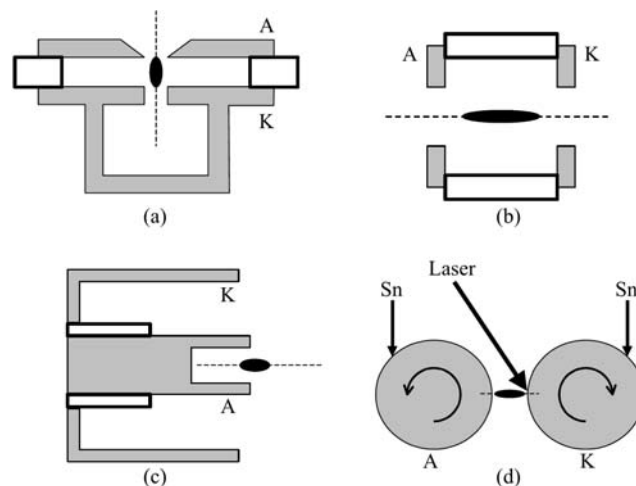
Über die *Bennett-Gleichung* kann der benötigte Strom für eine bestimmte Plasmatemperatur abgeschätzt werden. Sie stellt den vom Magnetfeld ausgeübten Druck dem thermischen Druck des Plasmas gegenüber [120, 121]:

$$\frac{\mu_0 I_B^2}{8\pi^2 r_p^2} = (n_i + n_e) k_B T \quad (4.17)$$

Dabei ist  $\mu_0$  die Permeabilität,  $I_B$  der elektrische Strom,  $r_p$  der Radius des Plasmaschlauches und  $n_i, n_e$  die Anzahldichte der Ionen bzw. Elektronen. Für ein Plasma mit zehnfach ionisierten Atomen ( $n_e = 10n_i$ ), einem Gasdruck von 0,1 mbar, einem Radius des Plasmaschlauches von 2,5 mm und einer Plasmatemperatur von 35 eV ist demnach ein Strom von 8 kA nötig. Obwohl in der Regel eine Gleichstellung des Plasma- und Magnetfelddrucks nicht erreicht wird, liefert die Gleichung einen guten Richtwert für den benötigten Strom.

Typische Zeitskalen für die Kompression, Emission und den Zerfall des Plasmas liegen im Bereich von einigen 100 ns. Die Kapazitäten der Kondensatoren reichen von 100 nF bis zu mehreren  $\mu\text{F}$ , wodurch eine Energie von 10 J und mehr gespeichert werden kann. Abhängig von der Geometrie der Elektroden entstehen so Stromdichten von  $10 \text{ kA}/\text{cm}^2$ . Das Elektrodensystem besteht typischerweise aus Molybdän oder Wolfram. Dennoch wird bei solch hohen Stromdichten mit jedem Puls Material von der Oberfläche der Elektroden verdampft. Die Erosionsraten liegen bei einigen  $10 \mu\text{g}$  pro elektrischer Ladung [120]. Allerdings schlägt sich der Dampf wieder auf die Elektroden nieder, wodurch die Netto-Rate  $< 10 \mu\text{g}/\text{C}$  beträgt.

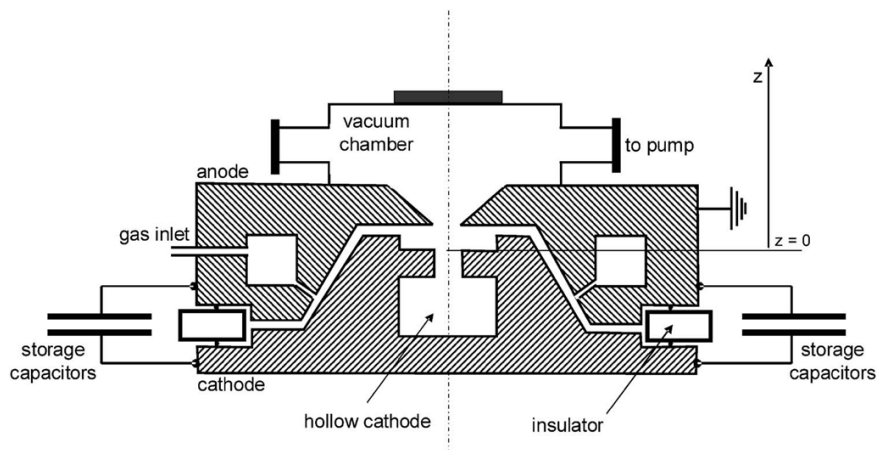
Es existieren verschiedene Konzepte für die Erzeugung elektrischer Entladungsplasmen. Im Wesentlichen unterscheiden sich diese durch die Geometrie der Elektroden. Abbildung 4.6 zeigt die wichtigsten Konzepte schematisch. Die in dieser Arbeit verwendete Entladungsquelle verfügt über eine Hohlkathoden-Anordnung (Abb. 4.6 a), welche im folgenden Abschnitt näher erläutert wird. Beim Z-Pinch (b) wird das Plasma zunächst am Isolator gezündet, bevor es sich durch den Pinch-Effekt zu einem Plasmaschlauch zusammenzieht. Bei der Plasma-Fokus-Anordnung (c) entsteht zunächst eine Art Plasmaschild, der durch den Strom zu der Spitze der Anode hin beschleunigt wird und sich dadurch verdichtet. Das Prinzip der rotierenden Elektroden (d) ist speziell für die EUV-Lithographie entwickelt worden. Die Elektroden werden durch ein Bad mit flüssigem Zinn ständig benetzt. Erosion der Elektrodenoberfläche kann somit auch bei hohen Stromdichten vermieden werden. Zudem werden diese durch das Bad effektiv gekühlt. Gezündet wird das Plasma mit Hilfe eines kurzen Laserpulses. Dieser verdampft Zinn von der Oberfläche der Kathode. Der entstehende Zinn-Dampf ermöglicht dann den elektrischen Durchbruch.



**Abbildung 4.6:** Aufbau verschiedener Konzepte für die Erzeugung einer elektrischen Entladung: (a) Hohlkathoden-geprägtes Pinch-Plasma, (b) Z-Pinch, (c) Plasma-Fokus und (d) Laser-getriggerte Entladung mit rotierenden Elektroden. A Anode, K Kathode [120].

### 4.3.2 Aufbau der Entladungsquelle

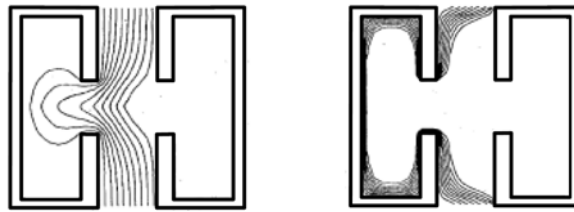
Die in dieser Arbeit verwendete Entladungsquelle basiert auf der Hohlkathoden-Elektrodengeometrie und wurde vom Fraunhofer Institut für Lasertechnik in Aachen entwickelt. Abbildung 4.7 zeigt den schematischen Aufbau des Entladungskopfes. Zwei konzentrisch angeordnete Elektroden mit einer zentralen Bohrung sind über einen Keramik-Isolator elektrisch voneinander getrennt. Die Elektroden bestehen aus Molybdän und sind wassergekühlt. Oberhalb der Anode befindet sich eine Vakuumkammer, die über eine Turbomolekularpumpe mit vorgeschalteter Membranpumpe evakuiert wird. Der Elektrodenabstand beträgt 6 mm. Insgesamt zehn Kondensatoren mit einer Kapazität von je 250 nF sind direkt mit den Elektroden verbunden. Die Gesamtinduktivität liegt bei etwa 13 nH, wodurch Spitzenströme von bis zu 25 kA erreicht werden können. Die Kondensatoren werden auf eine Spannung von 2,8...4,5 kV aufgeladen, die Anode ist dabei geerdet. Die in den Kondensatoren gespeicherte Energie liegt demnach zwischen 10 J und 25 J. Die Zündung erfolgt durch die Einleitung von Stickstoffgas in den Zwischenraum der Elektroden. Der Gasfluss und der Druck werden derart eingestellt, dass die Entladung eigenständig zündet. Dabei liegt der Druck an der Bohrung der Elektroden bei etwa 0,15 mbar. Die Zündung erfolgt damit auf der linken Flanke der *Paschen-Kurve* [122]. Durch die Bohrung der Anode ist der Druck in der Vakuumkammer um eine Größenordnung geringer als zwischen den Elektroden und liegt bei etwa  $10^{-2}$  mbar.



**Abbildung 4.7:** Schematische Skizze der elektrischen Entladungsquelle mit Hohlkathoden-Elektrodengeometrie [122].

Der genaue Ablauf der Entladung kann in mehrere Abschnitte unterteilt werden. In der Literatur sind verschiedene Simulationen und Untersuchungen zu finden [122–125]. Abbildung 4.8 veranschaulicht den Startprozess anhand der Verteilung der elektrischen Feldlinien. Das Gas wird entlang der Feldlinien am Bohrloch der Kathode ionisiert, sodass die Anode Elektronen aus dem ionisierten Gas extrahieren kann.

Die verbleibende positiv geladene Gaswolke breitet sich im Hohlraum der Kathode aus und bildet eine „virtuelle“ Anode (siehe Abbildung 4.8, links). Dies führt zu einer pendelartigen Bewegung der Elektronen im Hohlraum, wodurch deren effektive Weglänge vergrößert wird. Dadurch kann das Gas effizient ionisiert werden. Es bildet sich ein Plasma im Hohlraum, welches das Potential der „virtuellen“ Anode dicht an die Wände der Kathode verlagert (siehe Abbildung 4.8, rechts). Dadurch entstehen sehr hohe Stromdichten (einige  $\text{kA}/\text{cm}^2$ ), die zu einem Verdampfen der Kathodenoberfläche bzw. zu sogenannten *Cathode Spots* führen. Die Stromdichte ist an der Kathodenöffnung am größten. Durch die pulsartige Entladung entsteht ein Magnetfeld, welches das Plasma komprimiert und zu einem Plasmaschlauch zwischen den Elektroden verdichtet. Die aus dem emittierten Spektrum berechnete Verteilung der einzelnen Ionensorten hat gezeigt, dass die Elektronentemperatur im Bereich von 100...200 eV liegt [122].



**Abbildung 4.8:** Entwicklung des elektrischen Feldpotentials einer Pseudofunkenentladung. Die Simulation zeigt die Entstehung einer „virtuellen“ Anode (links) und die Plasmaphase in der Hohlkathode (rechts) [123].

Die maximale Repetitionsrate der elektrischen Entladungsquelle beträgt im Burst-Betrieb 2 kHz. Dabei ist ein Dauerbetrieb bei 1 kHz bereits demonstriert worden [122, 126]. Bei einer elektrischen Energie von 10...25 J pro Puls liegt die Leistungsaufnahme demnach zwischen 10 kW und 25 kW. Höhere Repetitionsraten sind aufgrund der starken thermischen Belastung der Elektroden nur im kurzzeitigen Burst-Betrieb möglich.

## 4.4 Charakterisierung der Quellen

Für viele Experimente mit EUV- und weicher Röntgenstrahlung an Laborquellen sind Parameter wie die Quellgröße und die Anzahl der emittierten Photonen pro Zeiteinheit in einem bestimmten Wellenlängenbereich von entscheidender Bedeutung. Diese Parameter sind im Begriff der Brillanz  $B$  zusammengefasst [109]:

$$B = \frac{\text{Zahl der Photonen}}{\text{Zeiteinheit} \cdot \text{Raumwinkelintervall} \cdot \text{Quellfläche} \cdot \text{relative Bandbreite}} \quad (4.18)$$

Sie entspricht somit der spektralen Strahldichte bezogen auf die Quellgröße und der Energie pro Photon innerhalb eines Einheits-Wellenlängenintervalls.

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

---

Für gepulste Laborquellen werden meist folgende Einheiten verwendet [127]:

$$[B] = \frac{1}{\text{Puls} \cdot \text{sr} \cdot \text{mm}^2 \cdot 0,1 \% \Delta\lambda/\lambda} \quad \text{oder} \quad \frac{1}{\text{Puls} \cdot \text{sr} \cdot \mu\text{m}^2 \cdot \text{pm}} \quad (4.19)$$

Wobei sich die erste Definition auf die relative Bandbreite  $0,1 \% \Delta\lambda/\lambda$  und die zweite auf die absolute Bandbreite  $\Delta\lambda$  bezieht. Häufig wird auch ein Wert für die spektrale Strahldichte  $I_s$  mit der Einheit  $[I_s] = 1/(\text{Puls} \cdot \text{sr} \cdot \text{pm})$  angegeben, was dem Photonenfluss bzw. der Brillanz ohne Berücksichtigung der Quellgröße entspricht. Bei genauer Kenntnis der optischen Parameter der Elemente in einem röntgenoptischen System kann unter Zuhilfenahme der Quellbrillanz die erforderliche Belichtungszeit für die Generierung einer Aufnahme mit bestimmten Signal-Rausch-Verhältnis berechnet werden.

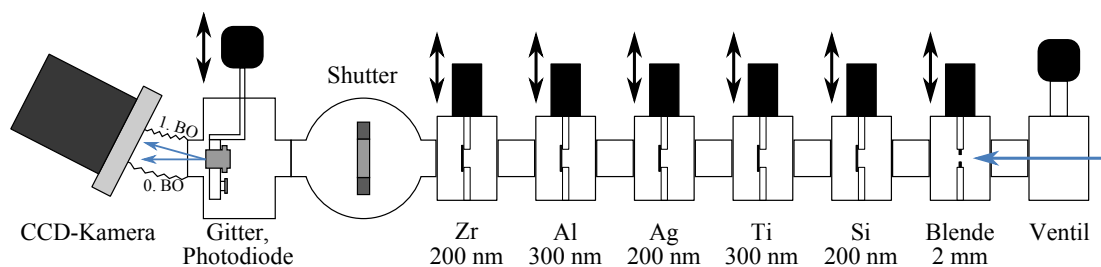
Die Messung der spektralen Brillanz erfolgt in zwei Schritten. Mit Hilfe eines kalibrierten Spektrographen werden die emittierten Photonen pro Puls innerhalb eines bestimmten Wellenlängenintervalls gemessen. Die Ermittlung der Quellgröße erfolgt mittels einer Abbildung der Quelle mit einem Pinhole (Prinzip einer Lochkamera) oder einer Zonenplatte. In den folgenden Abschnitten werden die Experimente zur Ermittlung der Quellbrillanzen näher erläutert und die Ergebnisse präsentiert.

### 4.4.1 Kalibrierung eines Spalt-Gitter-Spektrographen

Für die spektrale Zerlegung von weicher Röntgenstrahlung sind prinzipiell zwei verschiedene optische Elemente, ein Reflexionsgitter oder ein Transmissionsgitter, in Kombination mit einer CCD-Kamera als Detektor geeignet. Dabei muss für die Messung der absoluten Photonenzahlen und Konversionseffizienzen der Laborquellen zum einen das Signal der Kamera bei der Belichtung mit einer definierten Anzahl von Photonen (Gleichung 3.16) und zum anderen der Beugungswirkungsgrad des verwendeten Gitters bekannt sein (Gleichung 3.12). Gegenüber einem Reflexionsgitter hat ein Transmissionsgitter den Vorteil, dass der BWG nicht vom Einfallswinkel der Strahlung auf dem Gitter abhängig ist. Daher besteht bei sich wiederholenden Messungen mit in Reflexion arbeitenden Optiken die Schwierigkeit, immer den exakten Winkel zwischen Optik und Quelle einzuhalten, wodurch die Unsicherheit der Messung wächst. Aus diesem Grund wird für die Messungen ein Transmissionsgitterspektrograph eingesetzt (vgl. auch Kapitel 3.2.1).

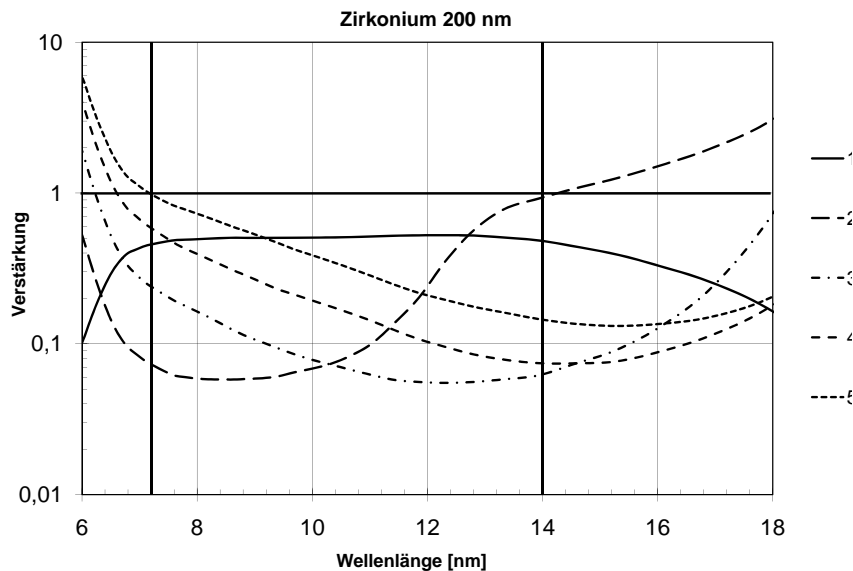
Für die absolute Kalibrierung eines Spektrographen ist eine Strahlungsquelle erforderlich, deren Emission über einen bestimmten Zeitraum bekannt ist. Gepulste Laborquellen sind für diesen Zweck nicht geeignet, da diese keine ausreichende Puls-zu-Puls-Stabilität aufweisen. Eine Kalibrierung kann daher nur an einer Synchrotronstrahlquelle stattfinden. Die Photonenemission ist hier streng linear mit dem im Speicherring fließenden Strom.

Die Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen wurde an der Beamline *BW3* des Speicherrings *DORIS III* bei *DESY* durchgeführt. Die Beamline besitzt einen Undulator, der durch eine wechselbare Magnetstruktur den Energiebereich von 15 eV bis 1800 eV abdeckt. Ein wassergekühlter Spiegel leitet das Licht in einen modifizierten Plangitter-Monochromator (*SX-700*, *Zeiss*), der die Strahlung in einen Austrittsspalt fokussiert. Die monochromatische Strahlung wird dann mittels eines ellipsenförmigen Spiegels in die Experimentierkammer fokussiert [128]. Die Besonderheit dieses Monochromators ist, dass die vom Undulator zusätzlich emittierten höheren Ordnungen, also ganzzahlige Vielfache der eingestellten Photonenenergie, durch einen sogenannten „higher order suppression mode“ unterdrückt werden können. Dafür werden die Spiegel und das Gitter des Monochromators auf steilere Winkel eingestellt, wodurch die Reflektivität für höhere Photonenenergien abnimmt und die hohen Ordnungen absorbiert werden. Zusätzlich sind verschiedene Filter vor dem Versuchsaufbau (siehe Abbildung 4.9) montiert, die die hohen Ordnungen je nach Wellenlängenbereich zusätzlich unterdrücken. Abbildung 4.10 veranschaulicht den Effekt am Beispiel eines Zirkonium-Filters mit einer Dicke von 200 nm. Das Diagramm gibt das Verhältnis der Transmissionen höherer Ordnungen zu der Fundamentalen bei einer bestimmten Wellenlänge an. Zwischen 7 nm und 14 nm ist die Transmission von Zirkonium höher als bei kleineren Wellenlängen. Dadurch werden die höheren Ordnungen stärker absorbiert als die Fundamentale. Insgesamt befinden sich fünf verschiedene Filter im Aufbau, wodurch für jede Wellenlänge das optimale Filter gewählt werden kann. Während der Durchführung der Versuche konnten keine höheren Ordnungen des Undulators detektiert werden. Der Aufbau befindet sich hinter der eigentlichen Experimentierkammer, also hinter dem Fokus, um die Strahlintensität abzuschwächen und ein gleichmäßiges Strahlprofil zu erhalten. Die Anzahl der emittierten Photonen wird mit Hilfe einer von der *PTB* kalibrierten Photodiode (*SXUV-100*, *International Radiation Detectors*) bestimmt. Über ein Elektrometer (*Model 6514*, *Keithley*) kann so der Photodiodenstrom gemessen und auf die Anzahl der Photonen pro Sekunde rückgeschlossen werden. Eine Blende mit einem Durchmesser von 2 mm vor dem Aufbau begrenzt den Strahl, damit die Photodiode lateral nicht überstrahlt wird. Die Photodiode und das Gitter sind auf einer Lineardurchführung befestigt. Nach der Messung des Photodiodenstroms wird eine  $I_0$ -Aufnahme der CCD-Kamera durchgeführt.



**Abbildung 4.9:** Versuchsaufbau für die Kalibrierung des Spalt-Gitter-Spektrographen.

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie



**Abbildung 4.10:** Unterdrückung der höheren Ordnungen eines Undulators durch Zirkonium mit einer Dicke von 200 nm. Die Kurven geben das Verhältnis der Transmission von höheren Ordnungen zu der Fundamentalen an [14].

In einem homogenen Bereich der Ausleuchtung wird dann das Gitter hineingefahren und zwei Aufnahmen der ersten Beugungsordnungen (+1. BO und -1. BO) angefertigt. Da der Ringstrom exponentiell abfällt, wird dieser vor und nach den einzelnen Belichtungen notiert. Für jede Messung kann so der Ringstrom und damit auch der absolute Photonenfluss gemittelt werden. Die Belichtungszeit wird über einen mechanischen Verschluss eingestellt. Da Öffnungs- und Schließzeiten dieses Verschlusses nicht genau reproduzierbar sind, wird der Austrittsspalt des Monochromators weit geschlossen. Dadurch steht weniger Licht zur Verfügung und die Belichtungszeiten liegen im Bereich von einigen 10 s bis einigen Minuten. Die Ungenauigkeit, die durch die unterschiedlichen Öffnungs- und Schließzeiten verursacht wird, fällt damit nur schwach ins Gewicht und liegt unter 1 %. Durch die Stützstege des Gitters (vgl. Kapitel 3.2.1) entsteht ein zusätzliches Beugungsmuster senkrecht zu dem des Hauptgitters. Dieses kann sich, je nach Photonenenergie und Abstand zwischen Gitter und Kamera, mit dem Beugungsmuster des Hauptgitters überlagern. Da die Gitterstrukturen über die gesamte Fläche des Gitters nicht absolut homogen und fehlerfrei verlaufen, ändert sich lokal auch der Beugungswirkungsgrad. Durch das Herausrechnen des Beugungsmusters der Stützstege entsteht somit eine Ungenauigkeit von  $< 10\%$ . Weitere Fehler liegen im Festlegen der aufzusummierenden Pixel des CCD und dem Auslesen des Photodiodenstroms. Der Gesamtfehler der Kalibrierung kann somit auf ca. 20 % abgeschätzt werden. Abbildung 4.11 zeigt die Kalibrierdaten der CCD-Kamera (*PI-SX:1300, Princeton Instruments*) und des Spalt-Gitter-Spektrographen. Für die Auswertung der Spektren werden die aufgenommenen Intensitätswerte unter Zuhilfenahme einer bikubischen Interpolation an das entsprechende Wellenlängenintervall eines CCD-Pixels umgerechnet. Zwischen 12 nm und 13 nm ist



ein deutlicher Anstieg der Kalibrierkurven zu beobachten. Dies ist durch die sprunghafte Änderung der Transmission von Silizium ( $L$ -Absorptionskante bei  $\lambda = 12,4 \text{ nm}$ ) begründet. Bei der Auswertung von quasi-kontinuierlichen Quellen ist dies zu beachten, da durch die Interpolation der Kalibrierdaten die Absorptionskante nicht korrekt dargestellt wird.

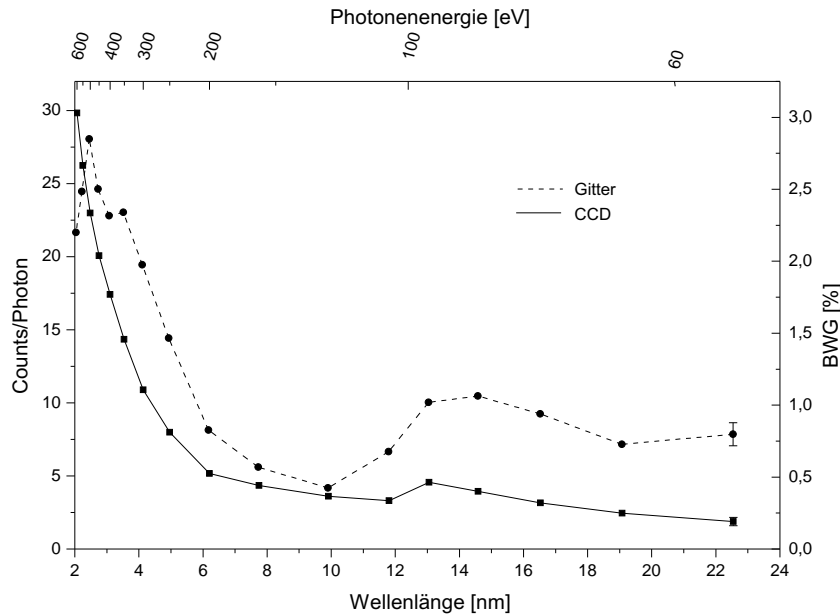


Abbildung 4.11: Gemessene Kalibrierdaten der CCD-Kamera und des Spektrographen.

### 4.4.2 Charakterisierung der laserinduzierten Plasmaquelle

Die Quellgröße eines laserinduzierten Plasmas wird neben der Pulsenergie und Fokusgröße des Laserstrahls auch vom Aggregatzustand und der Größe des Targets beeinflusst. Welche Ionisationszustände des Targets angeregt werden können, hängt von der erreichten Intensität im Fokus ab. Zudem spielt die Pulsdauer eine weitere wichtige Rolle. Bei längeren Laserpulsen ( $\approx 10 \text{ ns}$ ) kann das expandierende Plasma durch Stoßprozesse noch weiter aufgeheizt werden, wodurch sich die Quelle vergrößert [129, 130]. Weiterhin kann mit Hilfe eines Vorpulses der Photonenfluss um bis zu einem Faktor von drei gesteigert werden. Dabei wird durch einen schwachen Laserpuls einige ns vor dem eigentlichen Hauptpuls ein Plasma erzeugt. Dieses expandiert bevor der Hauptpuls in das Plasma einkoppelt. Es liegen bereits angeregte Zustände vor, sodass der intensive Hauptpuls das Plasma hauptsächlich durch effiziente Stoßprozesse der Elektronen und weniger durch Multiphotonenionisation aufheizt [43, 131].

#### Bestimmung der Quellgröße

Die Quellgröße wird mit Hilfe der für das Röntgenmikroskop eingesetzten Kondensorenplattenplatte bestimmt. Diese ist an einem Schrittmotor-betriebenen XYZ-Verschiebetisch ( $MT55$  und  $MT60$ ,  $MICOS$ ) innerhalb der Targetkammer befestigt und bildet die Quelle

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

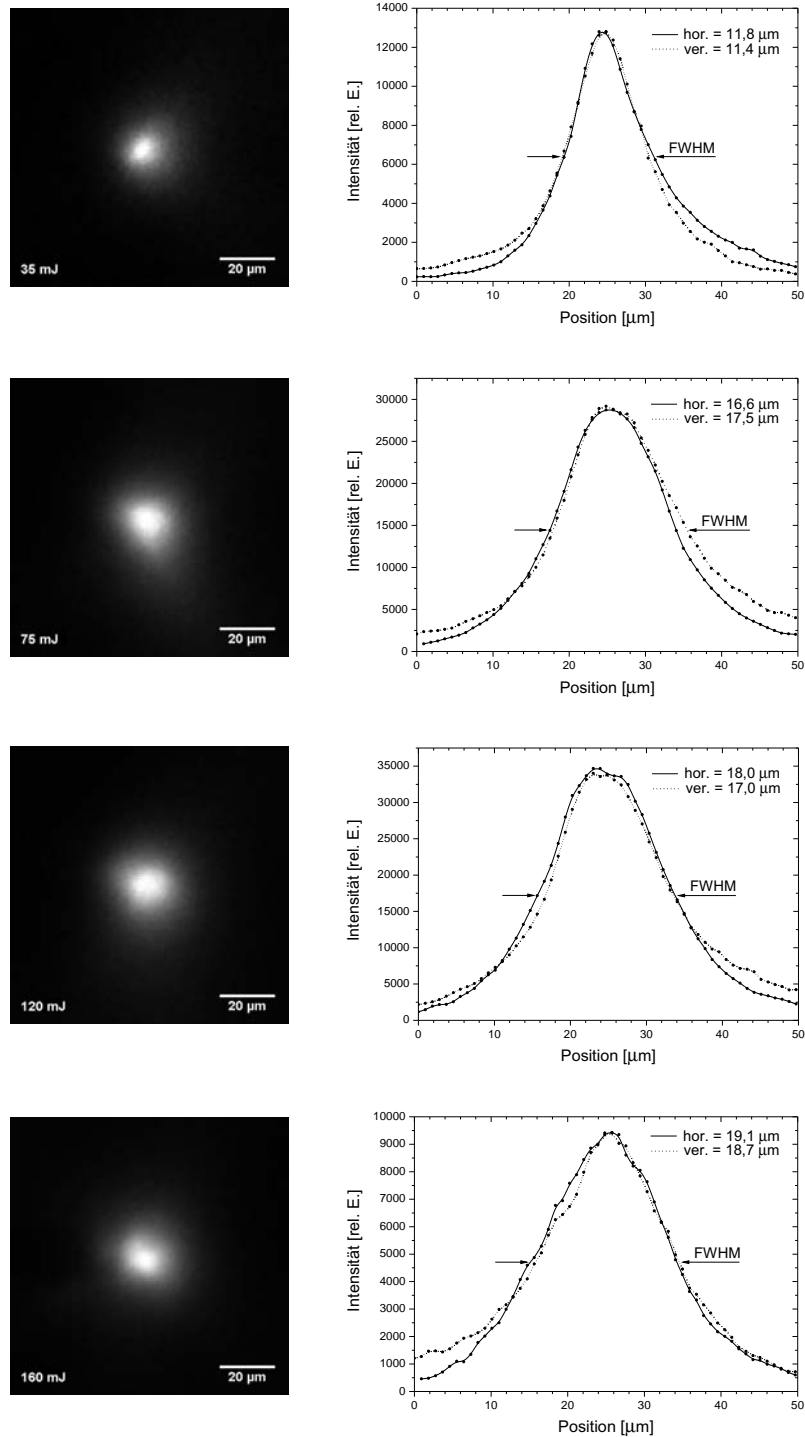
---

auf eine CCD-Kamera ab. Der Verfahrensweg auf der optischen Achse beträgt 40 mm. Somit können beide für die Röntgenmikroskopie interessanten Emissionslinien scharf abgebildet werden. Die genauen Daten der Zonenplatte sind in Kapitel 5.1.1 zu finden. Für die *Ly- $\alpha$* -Emissionslinie bei 2,4779 nm Wellenlänge beträgt die Brennweite  $f_{2,48\text{nm}} = 196$  mm, für die *He- $\alpha$* -Linie bei 2,8787 nm  $f_{2,88\text{nm}} = 169$  mm. Die maximal erreichbaren Vergrößerungen sind durch die Abmessungen des Labors begrenzt. Die Entfernung zwischen CCD-Chip und Quelle beträgt 4,66 m, woraus sich eine Vergrößerung von  $V_{2,48\text{nm}} = 21,7$  bei  $\lambda = 2,48$  nm ergibt, bzw.  $V_{2,88\text{nm}} = 25,6$  für  $\lambda = 2,88$  nm. Die räumliche Auflösung des Systems ist durch die Pixelgröße des Detektors auf  $1,8 \mu\text{m}$  bzw.  $1,6 \mu\text{m}$  limitiert.

Um Streulicht im Gesamtaufbau zu unterdrücken und die KZP vor Debris zu schützen, sind zwei Aluminium-Folien mit einer Dicke von je 200 nm vor der KZP befestigt. Zudem befindet sich vor den Filtern ein mechanischer Verschluss. Die Beobachtungsrichtung der Zonenplatte relativ zum Laser- und Flüssigkeitsstrahl entspricht der Richtung des röntgenmikroskopischen Gesamtaufbaus (vgl. Abb. 4.4, S. 46). Der Winkel zwischen der optischen Achse und dem Laserstrahl beträgt  $30^\circ$ . Ein Mittenstopp vor der KZP erzeugt auf dem Detektor einen Schattenwurf, in dem die Quelle abgebildet wird. Dadurch erscheinen auch die am nächsten gelegenen Emissionslinien, wie z.B. die *He- $\beta$* -Linie bei 2,4898 nm oder die Satelliten-Linie bei 2,9084 nm als unscharfe Abbildung ringförmig auf dem Detektor. Bei einer erwarteten Quellgröße von etwa  $20 \mu\text{m}$  ergibt sich eine Bildgröße von ca.  $430 \mu\text{m}$  für die *Ly- $\alpha$* -Emissionslinie und ca.  $510 \mu\text{m}$  für die *He- $\alpha$* -Linie. Der Mittenstopp erzeugt für die *He- $\beta$* -Linie einen Beleuchtungsring mit einem inneren und äußeren Durchmesser von  $490 \mu\text{m}$  bzw.  $980 \mu\text{m}$  auf dem Detektor, bei der Satelliten-Linie der *He- $\alpha$* -Emission beträgt dieser  $1,23$  mm bzw.  $2,47$  mm. Die durch den Mittenstopp erzeugten ringförmigen Abbildungen der am nächsten gelegenen Emissionslinien überlagern sich daher nicht mit den entsprechenden scharfen Abbildungen der Quelle.

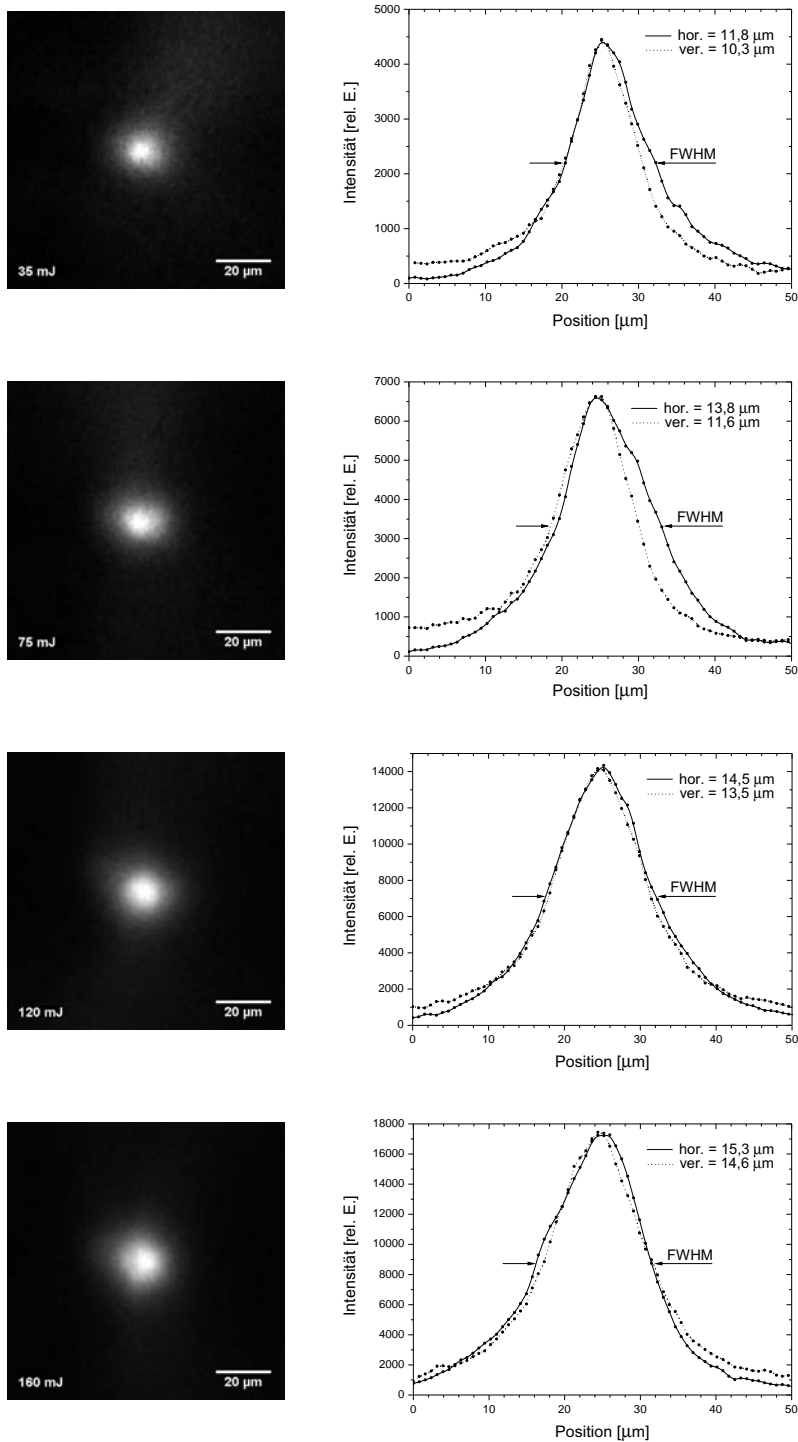
Durch den großen aufgefangenen Raumwinkel der Zonenplatte kann die Dynamik der Kamera mit nur einem Laserpuls fast vollständig ausgenutzt werden. Bei Pulsenergien  $> 100$  mJ muss ein zusätzliches Filter in den Strahlengang gebracht werden, um die Kamera nicht zu übersteuern. In den Abbildungen 4.12 und 4.13 sind die entsprechenden Aufnahmen bei 2,48 nm und 2,88 nm Wellenlänge dargestellt. Neben den Aufnahmen sind horizontale und vertikale Intensitätsdiagramme durch das zentrale Maximum abgebildet. Wie in Abbildung 4.12 zu erkennen ist, beträgt die Halbwertsbreite der Quellausdehnung bei 35 mJ Pulsenergie  $11 \dots 12 \mu\text{m}$ . Wird die Pulsenergie über 75 mJ auf 160 mJ erhöht, vergrößert sich die Quelle von  $17 \mu\text{m}$  auf  $19 \mu\text{m}$ . Bei einer Pulsenergie von 35 mJ reicht die Intensität nicht aus, um das Target vollständig zu ionisieren. Nur im Intensitätsmaximum des Fokus kann ein Plasma gebildet werden. Bei höheren Pulsenergien wird das Targetmaterial vollständig ionisiert. Hier führt eine Steigerung der Energie zu einer größeren Plasmaexpansion. Dieser Effekt ist auch bei der *He- $\alpha$* -Linie (vgl. Abb. 4.13) zu beobachten.

## 4.4 Charakterisierung der Quellen



**Abbildung 4.12:** Mit der KZP7 aufgenommene Bilder der LIP-Quelle bei  $\lambda = 2,48$  nm. Die Einzelschuss-Abbildungen sind bei unterschiedlichen Pulsenergien mit einer Vergrößerung von  $V = 21,7$  aufgenommen worden. Neben den Aufnahmen sind die entsprechenden horizontalen und vertikalen Intensitätsverläufe durch das Maximum dargestellt.

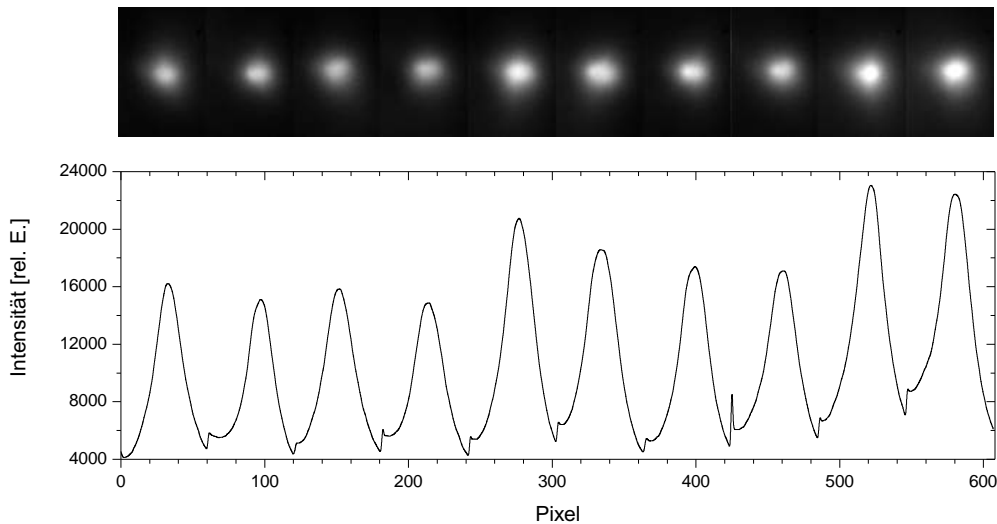
## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie



**Abbildung 4.13:** Abbildungen der Quelle bei der  $He\text{-}\alpha$ -Linie von Stickstoff ( $\lambda = 2,88\text{ nm}$ ) mit 25,4-facher Vergrößerung. Auf der rechten Seite sind die entsprechenden Intensitätsverläufe dargestellt. Im Vergleich zu der  $Ly\text{-}\alpha$ -Emission (vgl. Abb. 4.12) ist die Quelle bei 2,88 nm geringfügig kleiner.

Hier wächst die Quellgröße über 10...12  $\mu\text{m}$  bei 35 mJ Pulsenergie auf 15  $\mu\text{m}$  bei 160 mJ an. Generell ist die Quellgröße der  $He\text{-}\alpha$ -Linie jedoch etwas kleiner als die der  $Ly\text{-}\alpha$ -Linie. Die leichte Asymmetrie bei den Ergebnissen ist durch die Beobachtungsrichtung begründet. In horizontaler Richtung, also in der Ebene von Laser- und Flüssigkeitsstrahl, erscheint die Quelle etwas ausgedehnter, da der Fokus in dieser Richtung nicht so scharf begrenzt ist wie in der vertikalen Richtung.

Mit dem gleichen Aufbau wird auch eine Stabilitätsmessung durchgeführt. Dafür wird die Kamera nur 1 ms belichtet und direkt im Anschluss ausgelesen. Der mechanische Verschluss bleibt dabei geöffnet, wodurch die Kamera während des Auslesens weiter belichtet wird. Man erhält so eine Folge von Quellabbildungen auf dem ausgelesenen Bild separiert. Ausgehend von einer konstanten Auslesegeschwindigkeit des CCD-Chips und einer konstanten Laserpulsfrequenz kann somit die räumliche Stabilität des Plasmas bestimmt werden. Abbildung 4.14 zeigt eine solche Aufnahme der  $Ly\text{-}\alpha$ -Emission bei einer Pulsenergie von 120 mJ und einer Repetitionsrate von 25 Hz.



**Abbildung 4.14:** Einzelschuss-Abbildungen der Quelle bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  und einer Pulsenergie von 120 mJ. Darunter ist das entsprechende Intensitätsprofil dargestellt. Die Variation des Quellortes liegt innerhalb der räumlichen Auflösungsgrenze des abbildenden Systems.

Die Variation in horizontaler Richtung (Ebene Laser- und Flüssigkeitsstrahl) beträgt  $\Delta X_{\text{pos}} = 1,9 \mu\text{m}$ , in vertikaler Richtung  $\Delta Y_{\text{pos}} = 0,8 \mu\text{m}$ . Innerhalb der räumlichen Auflösung des abbildenden Systems von  $1,8 \mu\text{m}$  kann die Quelle damit als stabil angesehen werden. Die Variation in horizontaler Richtung ist größer als in vertikaler Richtung. Dies führt zu der Annahme, dass der Flüssigkeitsstrahl nicht absolut ortsstabil ist. Eine Positionsänderung des Jets in horizontaler Richtung beeinflusst die Quellposition auf der optischen Achse des Laserstrahls, wodurch sich neben der horizontalen Position auch die Intensität der Quelle

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

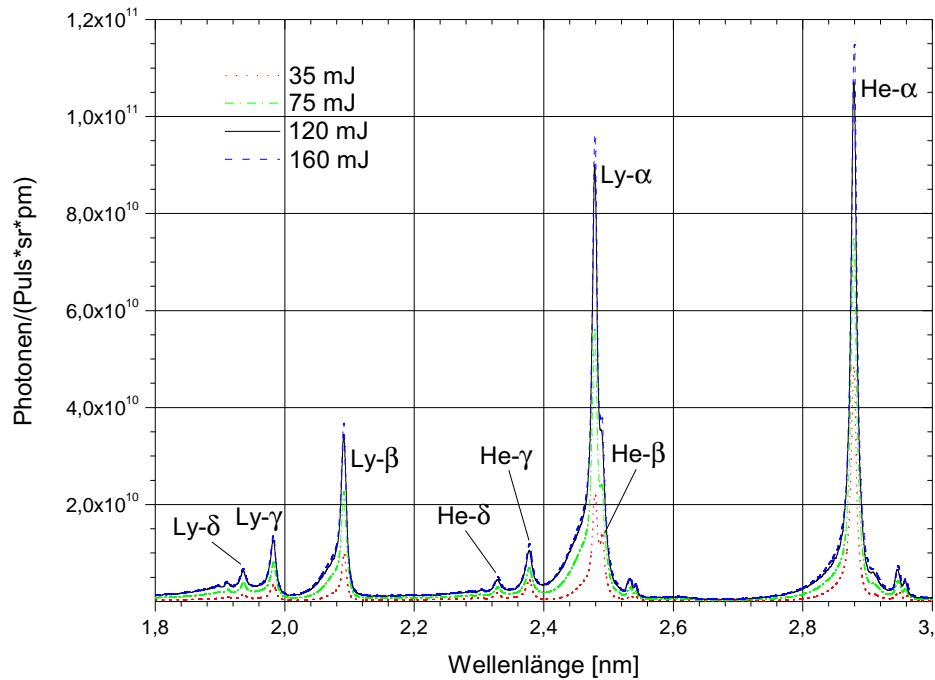
---

aufgrund einer schwankenden Intensität des Laserstrahls ändert. Variationen des Targets in vertikaler Richtung machen sich dagegen als Emissionsschwankungen bemerkbar, da sich der Flüssigkeitsstrahl aus dem Fokus des Laserstrahls herausbewegt. Die Emissionsschwankung der einzelnen Pulse liegt bei 16,5 %, welche neben der Positionsänderung des Targets auch durch eine Intensitätsschwankung des Lasers von ca. 2...5 % verursacht wird. Versuche mit höheren Pulsenergien führen zu ähnlichen Werten für die Variation der Quellposition. Die Intensitätsschwankungen erhöhen sich bei einer Pulsenergie von 160 mJ jedoch auf 38 %. Der Grund dafür liegt in einer Erwärmung des Düsensystems durch die Plasmastrahlung. Dieser Effekt ist bei längeren Laufzeiten ab einer Pulsenergie von 100 mJ zu beobachten. Für eine Stabilitätserhöhung der Quelle müsste der Aufbau des Düsensystems weiter optimiert werden. Denkbar ist die Verwendung einer Kapillare mit einem größeren Durchmesser und besserer Wärmeleitung innerhalb des Kryostaten, wodurch ein größerer Vorrat an flüssigem Stickstoff vorhanden ist und der Vordruck des Stickstoffgases erhöht werden kann. Aufgrund einer Geschwindigkeitssteigerung des Flüssigkeitsstrahls würde dies zu einer größeren Zerfallslänge und damit zu einem stabileren Jet führen (vgl. auch Abschnitt 4.2.2).

Der effektive Beugungswirkungsgrad der bei den Quellgrößen-Messungen eingesetzten Kondensorzonenplatte kann unter Berücksichtigung der spektralen Strahldichte, der Filtertransmission und dem bei den Versuchen aufgefangenen Raumwinkel abgeschätzt werden. Für beide Emissionslinien der Quelle ergibt sich ein BWG von weniger als 0,2 %. Dieser Wert ist jedoch nur eine grobe Abschätzung, da die einzelnen Messungen nicht zur gleichen Zeit durchgeführt worden sind und keine absolute Puls-zu-Puls Stabilität der Quelle gegeben ist. Dennoch ist dieser Wert sehr gering.

### Bestimmung der spektralen Strahldichte

Mit Hilfe des Spalt-Gitter-Spektrographen werden Spektren zur Bestimmung der spektralen Strahldichte aufgenommen. Der Abstand zwischen Gitter und Quelle beträgt 1618 mm, zwischen Gitter und Detektor 1995 mm. Nach Gleichung 3.3 wird ein Wellenlängenbereich von ca.  $\Delta\lambda = 1,3$  nm auf den Detektor abgebildet, was für die Darstellung der wasserstoff- und heliumähnlichen Linien von Stickstoff ausreichend ist. Die durch den Aufbau gegebene spektrale Auflösung des Systems ist durch die Geometrie beschränkt und beträgt bei Annahme einer Quellgröße von 20  $\mu\text{m}$  nach Gleichungen 3.4, 3.5 und 3.6 für die  $Ly-\alpha$ -Emissionslinie  $\lambda/\Delta\lambda \approx 294$ . Demnach kann die  $He-\beta$ -Linie bei  $\lambda = 2,4898$  nm von der  $Ly-\alpha$ -Linie getrennt dargestellt werden ( $\lambda/\Delta\lambda_{He-\beta-Ly-\alpha} \approx 208$ ). Abbildung 4.15 zeigt die Ergebnisse bei verschiedenen Pulsenergien. Wie zu erkennen ist, ändern sich die Verhältnisse der  $Ly-\alpha$ - und  $He-\alpha$ -Linien. Bei höheren Pulsenergien werden die energetisch höheren Zustände bevorzugt angeregt, wodurch die Emission der  $Ly-\alpha$ -Linie im Verhältnis zur  $He-\alpha$ -Linie stärker anwächst. Aufgrund einer anwachsenden Quellgröße nimmt der Kontrast zwischen der  $Ly-\alpha$ - und  $He-\beta$ -Linie bei höheren Pulsenergien ab.



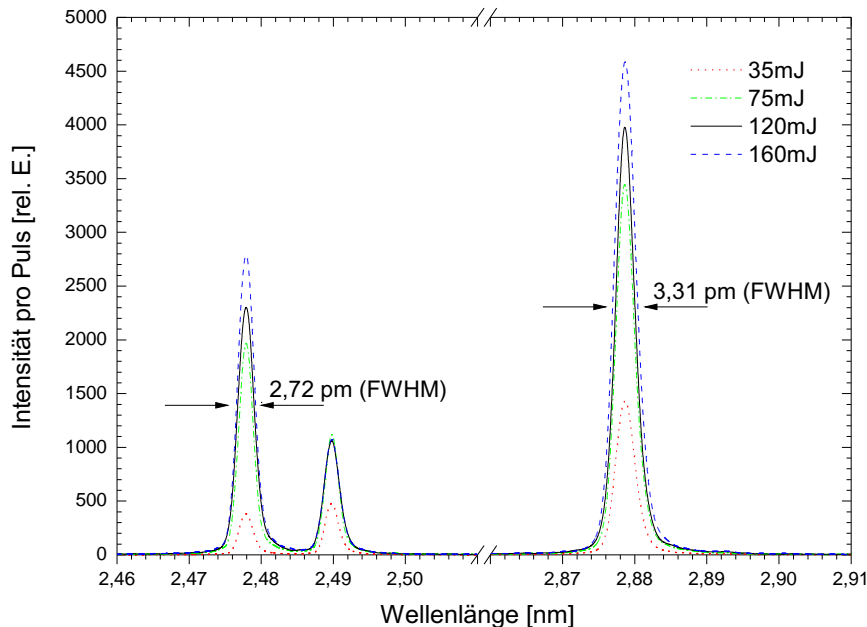
**Abbildung 4.15:** Mit dem kalibrierten Spalt-Gitter-Spektrographen aufgenommene Spektren bei einer Laserpulsfrequenz von 100 Hz und Pulsenergien von 35 mJ bis 160 mJ.

### Bestimmung der Linienbreite

Mit Hilfe des in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Off-Axis-Reflexionsspektrographen soll die Linienbreite ermittelt werden. Damit die Quellgröße bei hohen Pulsenergien die Auflösung des Spektrographen nicht negativ beeinflusst, wird dieser in Kombination mit einem 10  $\mu\text{m}$  Eintrittsspalt verwendet. Dieser ist auf einem XYZ-Verschiebetisch nahe am Plasma positioniert und kann so im Strahlengang justiert werden. Der minimale Abstand zum Plasma beträgt 10 mm. In der Ebene der ORZ-Optik wird damit eine horizontale Ausleuchtung mit einer Breite von ca. 2 mm erzeugt. Die ORZ ist auf zwei Rotationstischen montiert, die es erlauben, den Einfallswinkel und die Orientierung der ORZ-Strukturen zur optischen Achse einzustellen. Die Gegenstands- und Bildweite der ORZ beträgt 750 mm bzw. 1500 mm, wodurch der Eintrittsspalt mit einer Vergrößerung von  $V = 2$  auf den Detektor abgebildet wird. Abbildung 4.16 zeigt die Ergebnisse bei verschiedenen Pulsenergien. Hierbei ist zu beachten, dass die Spektren für die beiden Emissionslinien getrennt voneinander aufgenommen worden sind und dadurch nicht zueinander in Relation stehen. Bei 160 mJ Pulsenergie wird für die  $Ly-\alpha$ -Linie eine spektrale Breite von  $\Delta\lambda_{Ly-\alpha} = 2,72$  pm gemessen. Bei der  $He-\alpha$ -Linie liegt der Wert bei  $\Delta\lambda_{He-\alpha} = 3,31$  pm. Daraus ergibt sich eine Monochromasie von  $(\lambda/\Delta\lambda)_{Ly-\alpha} = 910$  bzw.  $(\lambda/\Delta\lambda)_{He-\alpha} = 870$ . Das theoretische Auflösungsvermögen des Spektrographen von  $\lambda/\Delta\lambda_{geom} \approx 3000$  kann nicht erreicht werden. Demnach ist unklar, ob die Monochromasie der Spektrallinie durch die Doppler- oder Starkverbreiterung gegeben

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

ist, oder Abbildungsfehler und Vibrationen im experimentellen Aufbau die Auflösung des Spektrographen begrenzen. Da bereits Linienbreiten von  $\lambda/\Delta\lambda \approx 1030$  bei einem laserinduzierten Plasma gemessen worden sind [109], liegt der Verdacht nahe, dass die spektrale Auflösung durch den experimentellen Aufbau limitiert ist.



**Abbildung 4.16:** Mit der Off-Axis-Reflexionszonenplatte aufgenommene Spektren der beiden für die Röntgenmikroskopie interessanten Emissionslinien bei 2,4779 nm und 2,8787 nm Wellenlänge. Die Monochromasie der Linien liegt bei  $\lambda/\Delta\lambda \approx 900$ .

### Zusammenfassung der Charakterisierung

Mit den bisher gewonnenen Daten ist es möglich, die spektrale Strahldichte und die Brillanz einer Emissionslinie zu berechnen. Für die Bestimmung der Photonenzahlen werden die einzelnen Werte der *Ly- $\alpha$* - und *He- $\alpha$* -Linie aus dem kalibrierten Spektrum (Abb. 4.15) aufsummiert. Dabei werden nur Photonenzahlen  $> 10\%$  des maximalen Wertes der Emissionslinien berücksichtigt. Durch das Verhältnis der maximalen Werte der *Ly- $\alpha$* - und *He- $\beta$* -Linie kann der absolute Wert für die *Ly- $\alpha$* -Linie bestimmt werden. In Tabelle 4.1 sind die Ergebnisse der Quellcharakterisierung zusammengefasst. Für die Berechnung der Brillanz wird die volle Halbwertsbreite (FWHM) der Quellgröße berücksichtigt. Die Ergebnisse sind mit vorherigen Messungen von *Wieland* vergleichbar [116]. Es wird deutlich, dass der Photonfluss und die Brillanz mit steigender Pulsenergie zunimmt.

Die maximale Konversionseffizienz (Laserleistung zu Röntgenemission) für die beiden Emissionslinien liegt bei 1,5...1,6% und wird bei einer Pulsenergie von 75 mJ erreicht. Aufgrund der bereits angesprochenen Instabilitäten der Quelle ab 100 mJ nimmt die Effizienz bei 160 mJ um 15...20% ab.



**Tabelle 4.1:** Spektrale Strahldichte und Brillanz der laserinduzierten Plasmaquelle bei einer Laserpulsfrequenz von 100 Hz und unterschiedlichen Pulsenergien für die  $Ly-\alpha$ - und  $He-\alpha$ -Emissionslinien.

Pulsenergie $mJ$	Linie	Quellgröße $\mu m$	Spektrale Strahldichte	Brillanz	Konversions- effizienz
			$\frac{Photonen}{Puls \cdot sr \cdot Linie}$	$\frac{Photonen}{Puls \cdot sr \cdot Linie \cdot \mu m^2}$	
35	$Ly-\alpha$	12	$3,0 \cdot 10^{11}$	$2,6 \cdot 10^9$	0,85 %
	$He-\alpha$	11	$5,4 \cdot 10^{11}$	$5,7 \cdot 10^9$	1,34 %
75	$Ly-\alpha$	17	$1,1 \cdot 10^{12}$	$5,0 \cdot 10^9$	1,54 %
	$He-\alpha$	13	$1,3 \cdot 10^{12}$	$1,0 \cdot 10^{10}$	1,56 %
120	$Ly-\alpha$	18	$1,8 \cdot 10^{12}$	$7,0 \cdot 10^9$	1,50 %
	$He-\alpha$	14	$2,1 \cdot 10^{12}$	$1,4 \cdot 10^{10}$	1,50 %
160	$Ly-\alpha$	19	$2,1 \cdot 10^{12}$	$7,4 \cdot 10^9$	1,31 %
	$He-\alpha$	15	$2,3 \cdot 10^{12}$	$1,3 \cdot 10^{10}$	1,25 %

#### 4.4.3 Charakterisierung der elektrischen Entladungsquelle

Im Vergleich zu auf Flüssigkeitsstrahlen basierenden laserinduzierten Plasmen ist die Brillanz von elektrischen Entladungsplasmen wesentlich geringer. Dies ist zum einen durch die relativ große Ausdehnung eines elektrischen Entladungsplasmas und zum anderen durch die geringere Elektronendichte innerhalb des Pinchs begründet. Dadurch ist auch die Konversionseffizienz einer Entladungsquelle (elektrischer Leistung zu Röntgenemission) um etwa eine Größenordnung geringer als bei einem LIP (Laserleistung zu Röntgenemission) [116, 122]. Durch die um drei Größenordnungen höhere Eingangsleistung stellt die Entladungsquelle jedoch eine Alternative als Laborquelle für ein Röntgenmikroskop dar. Die stark unterschiedlichen Quellgrößen erfordern allerdings auch unterschiedliche Kondensorkonzepte (vgl. Kapitel 5.1). Die genaue Charakterisierung der elektrischen Entladungsquelle erfolgte hauptsächlich durch die Arbeitsgruppe von *Bergmann* am Fraunhofer Institut für Lasertechnik in Aachen und teilweise durch die Zusammenarbeit mit dem RheinAhrCampus in Remagen. Im Folgenden werden die Ergebnisse kurz dargestellt [100, 122, 132].

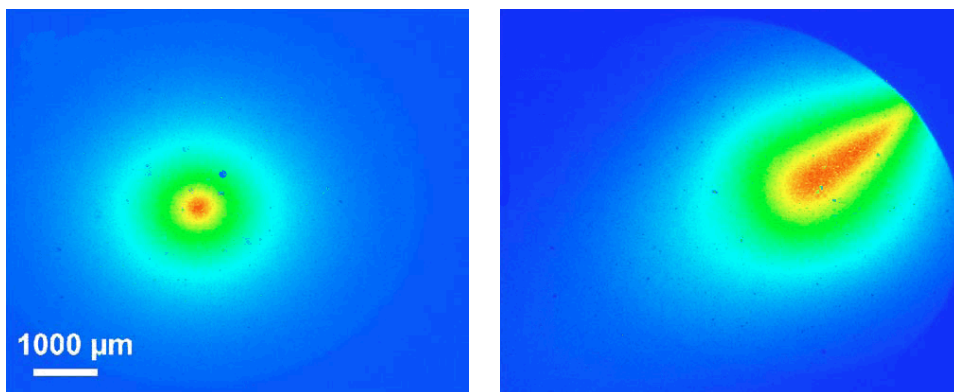
#### Bestimmung der Quellgröße

Die Quellgröße der Entladungsquelle wird mit Hilfe eines Pinholes mit einem Durchmesser von  $20 \mu m$  in Kombination mit einer CCD-Kamera bestimmt. Der Abstand zwischen Quelle und Pinhole beträgt  $180 \text{ mm}$  und zwischen Pinhole und Detektor  $560 \text{ mm}$ , resultierend in einer Vergrößerung von  $V \approx 3,1$ . Für die spektrale Filterung der Emission wird eine mit  $300 \text{ nm}$  Titan bedampfte Siliziumnitrid-Membran mit einer Dicke von  $150 \text{ nm}$  verwendet. Der transmittierte Anteil der Strahlung liegt zwischen  $2,7 \text{ nm}$  und  $5 \text{ nm}$ , wobei auch eine geringe

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

---

Transmission im Bereich von 12,4 nm und 20 nm vorhanden ist. Bei den Aufnahmen ist die Pulsenergie konstant auf 15 J und die Repetitionsrate auf 25,4 Hz eingestellt. Abbildung 4.17 zeigt zwei Aufnahmen der Quelle aus axialer Richtung (links) und unter einem Winkel von 30° (rechts). Das axiale Intensitätsprofil entspricht einer Lorentzverteilung mit einem Durchmesser von 1175  $\mu\text{m}$  [132]. Im rechten Teil der Abbildung ist das Sichtfeld zum Inneren des Elektrodensystems durch die Apertur der Anode begrenzt. Eine genauere Betrachtung zeigt, dass sich das Intensitätsmaximum innerhalb des Zwischenraums der Elektroden befindet und bis in die Bohrungen der Kathode und Anode hineinreicht. Dementsprechend beträgt die Länge des Pinchs in dieser Richtung einige mm.



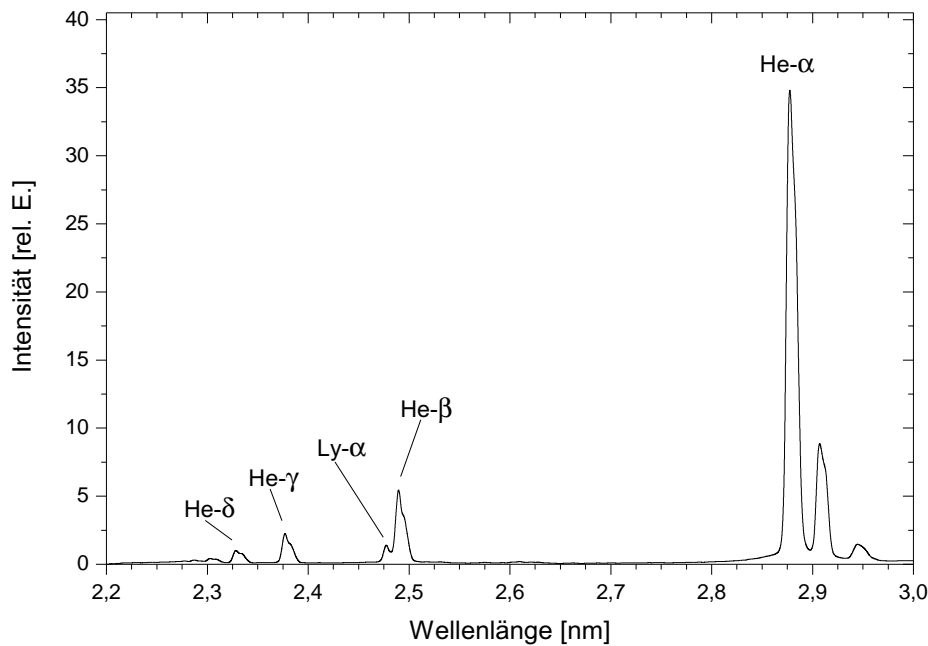
**Abbildung 4.17:** Pinhole-Abbildungen der Entladungsquelle. Das Bild links zeigt die Quelle aus axialer Beobachtungsrichtung, rechts unter einem Winkel von 30° zur Axialachse. Hier begrenzt die Apertur der Anode den Blick in die Hohlkathode [122].

### Messung des Emissionsspektrums

Das Emissionsspektrum der Entladungsquelle wird mit Hilfe eines mit Gold beschichteten Reflexionsgitters mit 2400 Linien pro mm in Verbindung mit einer CCD-Kamera aufgenommen [133]. Die spektrale Auflösung ist durch einen Eintrittsspalt mit einer Breite von 100  $\mu\text{m}$  begrenzt und beträgt  $\lambda/\Delta\lambda \approx 200$ . Die elektrischen Parameter bleiben unverändert. In Abbildung 4.18 ist das Spektrum dargestellt. Im Vergleich zu einem LIP (siehe Abb. 4.15, S. 61) werden bei der elektrischen Entladung hauptsächlich die heliumähnlichen Ionisationsstufen angeregt. Durch die geringere Plasmatemperatur können wasserstoffähnliche Ionensorten nur in geringer Anzahl erzeugt werden. Daher ist die  $Ly-\alpha$ -Linie nur sehr schwach ausgeprägt. Deutlich sind auch die niederenergetischen Satelliten-Linien neben der  $He-\alpha$ -Linie zu erkennen.

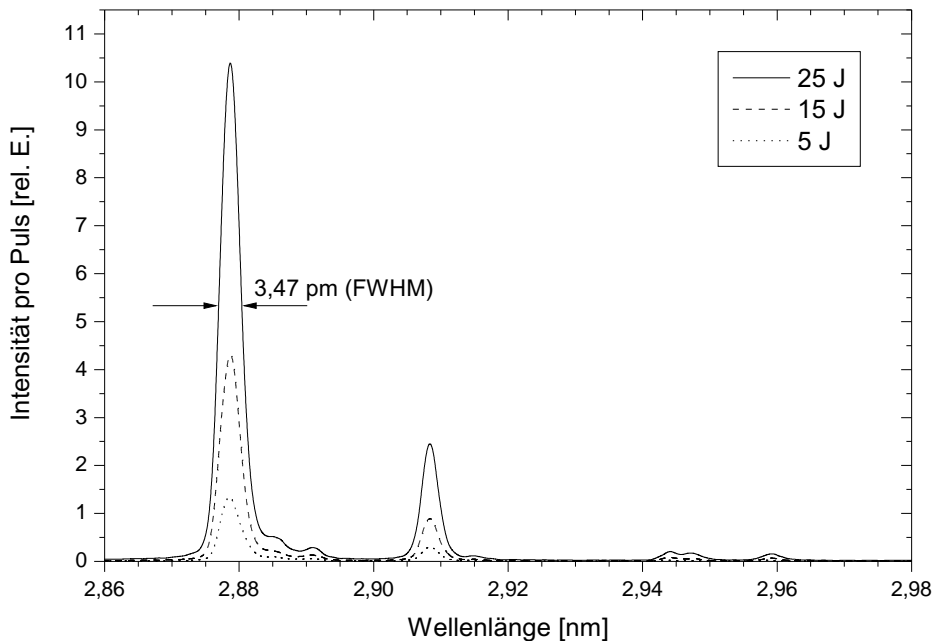
### Bestimmung der Linienbreite

Wie bei der laserinduzierten Plasmaquelle werden auch an der Entladungsquelle Spektren mit Hilfe des ORZ-Spektrographen aufgenommen. Hier ist allerdings nur der Wellenlängenbereich



**Abbildung 4.18:** Emissionsspektrum der Entladungsquelle bei 15 J Pulsenergie, aufgenommen mit Hilfe eines Reflexions-Gitters. Im Vergleich zu dem Spektrum eines laserinduzierten Plasmas werden hauptsächlich heliumähnliche Emissionslinien erzeugt [122].

um  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  interessant, da das Emissionsspektrum für eine mikroskopische Anwendung mit einer Titan-Folie gefiltert wird. Durch die starke Absorption unterhalb der  $L$ -Absorptionskante von Titan ( $2,73 \text{ nm}$ ) steht damit hauptsächlich die  $He-\alpha$ -Linie zur Verfügung. Die Auswirkungen der niederenergetischen Satelliten-Linien auf eine röntgenmikroskopische Abbildung mit einer Zonenplatte wird in Kapitel 5.1.2 genauer betrachtet. Der experimentelle Aufbau entspricht dem Aufbau an der LIP-Quelle. Auch hier wird ein Eintrittsspalt mit einer Breite von  $10 \mu\text{m}$  verwendet. Zusätzlich wird ein  $50 \mu\text{m}$  breiter Spalt horizontal vor dem Eintrittsspalt positioniert, um die Quellgröße auch in vertikaler Richtung zu begrenzen und das Streulicht im Gesamtaufbau zu minimieren. In Abbildung 4.19 sind Spektren bei unterschiedlichen Pulsenergien dargestellt. Die angegebenen Intensitätswerte sind für die entsprechenden Pulsenergien auf einen Einzelpuls normiert. Neben der  $He-\alpha$ -Linie bei  $\lambda = 2,8787 \text{ nm}$  ist die vierfach schwächere Satelliten-Linie bei  $\lambda = 2,9084 \text{ nm}$  zu erkennen. Das Intensitätsverhältnis zwischen den Emissionslinien ist für die angegebenen Pulsenergien konstant. Gleichzeitig ist auch die spektrale Breite der  $He-\alpha$ -Linie unabhängig von der Pulsenergie und beträgt  $\Delta\lambda = 3,47 \text{ pm}$ , woraus sich eine Monochromasie von  $\lambda/\Delta\lambda = 830$  ergibt. Auch hier kann die theoretische Auflösung des Spektrographen nicht erreicht werden. Demnach kann abschließend nicht geklärt werden, ob die Linienbreite durch die Doppler- oder Starkverbreiterung begrenzt ist, oder Abbildungsfehler die Auflösung begrenzen.

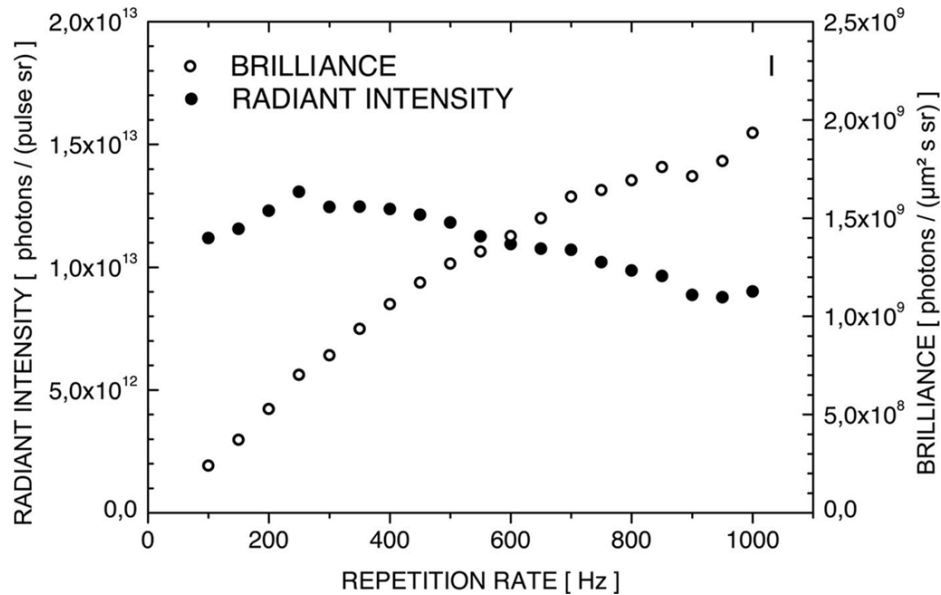


**Abbildung 4.19:** Mit der Off-Axis-Reflexionszonenplatte aufgenommenes Spektrum der elektrischen Entladungsquelle bei unterschiedlichen Pulsenergien. Die Monochromasie der  $He\text{-}\alpha$ -Linie bei  $\lambda = 2,8787\text{ nm}$  beträgt  $\lambda/\Delta\lambda = 830$ .

### Zusammenfassung der Charakterisierung

Die spektrale Strahldichte wird mit Hilfe einer Photodiode (*AXUV-100, International Radiation Detectors*) unter Berücksichtigung der im Datenblatt des Herstellers angegebenen Empfindlichkeit für die  $He\text{-}\alpha$ -Linie bestimmt. Die Photodiode ist mit Titan bedampft und detektiert daher hauptsächlich Strahlung mit  $\lambda > 2,73\text{ nm}$ . Der Anteil der Satelliten-Linien wird unter Berücksichtigung der Ergebnisse mit dem Reflexionsspektrographen herausgerechnet. Mit der gemessenen Quellgröße kann somit die Brillanz bestimmt und mit der spektralen Strahldichte für unterschiedliche Repetitionsraten verglichen werden. Abbildung 4.20 veranschaulicht den Kurvenverlauf für eine Pulsenergie von 10 J. Bei einer Repetitionsrate von 1 kHz fällt die spektrale Strahldichte auf 70 % des maximalen Wertes bei 250 Hz. Wird die Pulsenergie auf 20 J erhöht, steigt die Strahldichte auf  $3,8 \cdot 10^{13}$  Photonen/(sr·Puls) und die Brillanz auf  $5,1 \cdot 10^6$  Photonen/(\(\mu\text{m}^2 \cdot \text{sr} \cdot \text{Puls}\)) [132]. Vergleichsmessungen mit dem kalibrierten Gitter-Spektrographen führen bei einer Repetitionsrate von 100 Hz auf einen Wert von  $1,7 \cdot 10^{13}$  Photonen/(sr·Puls) bei 13 J Pulsenergie,  $2,5 \cdot 10^{13}$  Photonen/(sr·Puls) (15 J) und  $2,7 \cdot 10^{13}$  Photonen/(sr·Puls) bei 18 J für die  $He\text{-}\alpha$ -Linie. Diese Ergebnisse sind mit den aufgenommenen Daten der Photodioden-Messung vergleichbar. Berücksichtigt man die Abnahme der spektralen Strahldichte auf 70 % bei einer Repetitionsrate von 1 kHz ergibt sich eine maximale spektrale Strahldichte von  $1,9 \cdot 10^{16}$  Photonen/(sr·s) bei 18 J Pulsenergie. Dies entspricht

bei Annahme einer isotropen Strahlungsverteilung in  $4\pi$ sr einer Konversionseffizienz (elektrische Leistung zu Röntgenemission) von etwa 0,1 % für die  $He\text{-}\alpha$ -Linie. Für eine genauere Gegenüberstellung der beiden Quellen werden bei den folgenden Berechnungen die Werte des Spalt-Gitter-Spektrographen berücksichtigt.



**Abbildung 4.20:** Strahlungsintensität und Brillanz der Entladungsquelle bei der  $He\text{-}\alpha$ -Linie von Stickstoff als Funktion der Repetitionsrate. Die Pulsenergie beträgt 10 J [100].

#### 4.4.4 Vergleich der beiden Quellen

Die Unterschiede der beiden Quellkonzepte spiegeln sich auch in deren Emissionscharakteristik wider. Durch die stark unterschiedlichen Quellgrößen muss eine genaue Differenzierung zwischen Strahldichte und Brillanz erfolgen. Gerade im Hinblick auf die Verwendung der Quellen für ein Röntgenmikroskop sind diese beiden Faktoren von besonderer Bedeutung (siehe Kapitel 5.1). In Tabelle 4.2 sind die mit Hilfe des kalibrierten Spektrographen gemessenen Werte der beiden Quellen bei maximaler Pulsenergie und Repetitionsrate dargestellt. Die Werte für die Entladungsquelle wurden bei 100 Hz aufgenommen und sind, da die Strahldichte pro Puls bei 1 kHz Repetitionsrate um ca. 70 % abnimmt, entsprechend skaliert.

Durch eine um drei Größenordnungen höhere Eingangsleistung liegt die spektrale Strahldichte der Entladungsquelle etwa zwei Größenordnungen über der des laserinduzierten Plasmas. Da die emittierende Quellfläche der Laser-Plasmaquelle jedoch um etwa vier Größenordnungen kleiner ist, liegt deren Brillanz deutlich über der der Entladungsquelle. Im Hinblick auf ein Kondensorkonzept für ein Röntgenmikroskop empfiehlt es sich daher, die

## 4 Laborquellen für die Röntgenmikroskopie

**Tabelle 4.2:** Vergleich der spektralen Strahldichte und Brillanz der LIP-Quelle und der elektrischen Entladungsquelle bei maximaler Repetitionsrate und Pulsenergie.

Quelle	Linie	Quellgröße $\mu\text{m}$	Strahldichte	Brillanz
			$\frac{\text{Photonen}}{s \cdot \text{sr} \cdot \text{Linie}}$	$\frac{\text{Photonen}}{s \cdot \text{sr} \cdot \text{Linie} \cdot \mu\text{m}^2}$
LIP (0,16 J, 100 Hz)	Ly- $\alpha$ (2,48 nm)	19	$2,1 \cdot 10^{14}$	$7,4 \cdot 10^{11}$
	He- $\alpha$ (2,88 nm)	15	$2,3 \cdot 10^{14}$	$1,3 \cdot 10^{12}$
Entladung (18 J, 1 kHz)	He- $\alpha$ (2,88 nm)	1432	$1,9 \cdot 10^{16}$	$1,2 \cdot 10^{10}$

laserinduzierte Plasmaquelle 1:1 in das Objektfeld (typischerweise 20  $\mu\text{m}$ ) abzubilden. Bei der Entladungsquelle würde dadurch viel Licht verloren gehen. Hier sollte die Quelle stark verkleinert werden. Aufgrund einer erforderlichen Anpassung der numerischen Apertur von Kondensor und abbildender Optik ist dies jedoch nur bis zu einer bestimmten Grenze möglich. Hier spielt die Brillanz die entscheidende Rolle. Bei großen Quellen kann für die Beleuchtung eines kleinen Objektfeldes mit einer bestimmten numerischen Apertur nur ein geringer Raumwinkel der Quelle aufgefangen werden (*Satz von Liouville*, siehe auch Kapitel 5.1). Damit haben kleinere Quellen den Vorteil, dass je nach Anforderung auch unterschiedliche Kondensorkonzepte genutzt werden können. Bei einem laserinduzierten Plasma wäre neben der Verwendung einer Kondensorzonenplatte in 1:1 Konfiguration auch Spiegel im streifenförmigen Einfall oder, je nach Wellenlänge, auch im senkrechten Einfall denkbar (vgl. Einleitung Kapitel 5).

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

Nach aktuellem Wissensstand existieren weltweit nicht mehr als zehn Labor-Mikroskope für die Anwendung im Wasserfenster. Darunter sind neben Transmissionsmikroskopen auch Rastermikroskope, wie z.B. das LIP-basierte STXM des *King's College* in London [10, 134] bekannt. Vorreiter bei den Transmissionsmikroskopen ist die Arbeitsgruppe von *Hertz* der technischen Hochschule *KTH* in Stockholm [135, 136]. Hier sind zwei LIP-basierte Mikroskope in Betrieb, eines mit vertikaler Strahlachse und einem sphärischen Spiegel für  $\lambda = 3,37$  nm Wellenlänge (Methanol-Jet-Target) als Kondensator [137, 138] und eines mit horizontaler Strahlachse, welches wahlweise bei  $\lambda = 3,37$  nm und einem sphärischen Spiegel oder bei  $\lambda = 2,48$  nm (Stickstoff-Jet-Target) und einer Kondensorzonenplatte arbeitet [135]. Ein anderer Ansatz findet sich an der Universität von Tsukuba in Japan (*Hoshino* und *Aoki*). Hier wird ein LIP in Verbindung mit einem Tantal-Festkörpertarget und Wolter-Spiegel als Kondensator eingesetzt [139, 140]. Ein weiteres LIP-basiertes Transmissionsmikroskop aus Korea arbeitet mit einem Stickstoff-Jet-Target und einem elliptischen Reflektor [141, 142]. Wasserfenster-Mikroskope unter Verwendung einer elektrischen Entladungsquelle sind aus den 90er-Jahren bekannt [143]. Aktuelle Entwicklungen dieser Quellen für die Röntgenmikroskopie sind in den Publikationen der Röntgenmikroskopie-Konferenz von 2008 zu finden [126, 144, 145].

In den folgenden Kapiteln wird der Aufbau des entwickelten Transmissionsmikroskops dargestellt. Dabei werden die unterschiedlichen Kondensorkonzepte an der laserinduzierten Plasmaquelle in Remagen und an der elektrischen Entladungsquelle in Aachen erläutert und die Leistungsfähigkeit des Mikroskops an den beiden Quellen anhand von Testobjekten und biologischen Proben veranschaulicht.

### 5.1 Beleuchtungssystem

Die meisten Transmissionsmikroskope für den Spektralbereich des Wasserfensters basieren auf einem abbildenden System mit einer Zonenplatte als Objektiv und einer CCD-Kamera als Detektor. Die Unterschiede liegen damit hauptsächlich in der Quelle und dem verwendeten Kondensorkonzept. Allerdings ist nicht nur das abbildende System, sondern auch der Kondensator für die Bildqualität entscheidend. Folgende Parameter sind für die Festlegung und Charakterisierung eines geeigneten Kondensators wichtig:

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

---

- Intensität in der Objektebene (Photonen/ $(\mu\text{m}^2 \cdot \text{s})$ ),
- Gleichmäßigkeit der Objektausleuchtung ( $C = (I_{max} - I_{min}) / (I_{max} + I_{min})$ ),
- Monochromasie der Strahlung ( $\lambda / \Delta\lambda \geq Nm$ ) und
- Anpassung der numerischen Apertur von Kondensator und Mikrozonplatte.

Bei der Strahlungsübertragung der von der Quelle emittierten Photonen spielt der *Satz von Liouville* eine bedeutende Rolle. Dieser besagt, dass die Dichte der Photonen nur erhöht werden kann, wenn sich deren Impulse quer zur Strahlrichtung ändern. Das Produkt aus dem Querschnitt und der Divergenz des Strahls, die sogenannte *Emittanz*, bleibt im günstigsten Falle erhalten [146]. Für die im Vergleich zum laserinduzierten Plasma relativ große Quelle der elektrischen Entladung bedeutet dies, dass für die Nutzung der gesamten Quellfläche nur ein sehr geringes Raumwinkelintervall aufgefangen werden kann.

Im Folgenden werden die unterschiedlichen Kondensorkonzepte für den Betrieb an der laserinduzierten Plasmaquelle und der elektrischen Entladungsquelle erläutert. Dabei werden die oben genannten Parameter untersucht und die Konzepte miteinander verglichen.

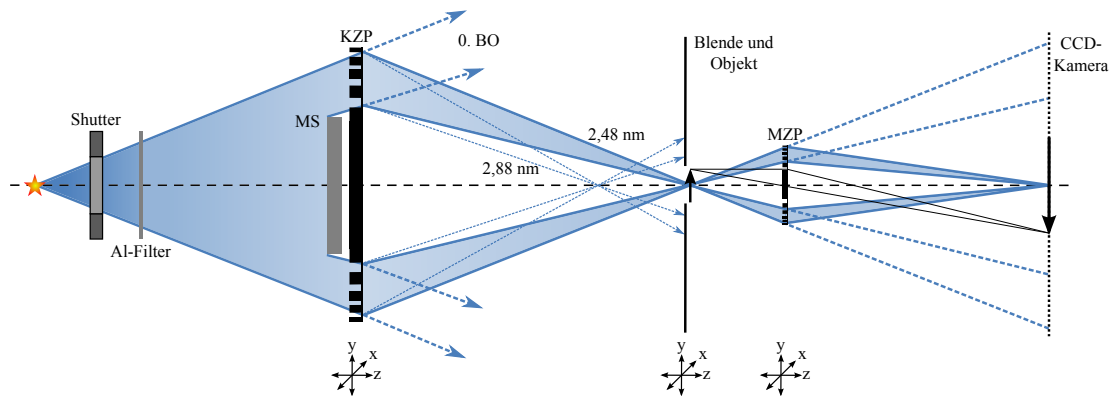
### 5.1.1 Aufbau mit laserinduzierter Plasmaquelle

Bei einer Vergrößerung des abbildenden Systems von  $V = 1000$  ergibt sich, bei Verwendung eines Detektors mit  $1340 \times 1300$  Pixel und einer Pixelgröße von  $20 \mu\text{m}$ , ein auszuleuchtendes Objektfeld von ca.  $25 \mu\text{m}$ . Demnach bietet sich für ein Kondensorkonzept an der laserinduzierten Plasmaquelle eine 1:1 Abbildung an. Nachteilig daran ist jedoch, dass das Intensitätsprofil des Objektfeldes dem Profil der Quelle entspricht. In der klassischen Lichtmikroskopie wird diese Konfiguration auch als *kritische Beleuchtung* bezeichnet. Abbildung 5.1 zeigt das Schema des Gesamtaufbaus an der laserinduzierten Plasmaquelle. Als Kondensator wird eine Zonenplatte (KZP) verwendet. Vor dieser befindet sich ein mechanischer Verschluss und ein Aluminium-Filter mit einer Dicke von  $200 \text{ nm}$ . Dadurch werden die sichtbaren Anteile der Plasmaemission absorbiert und die KZP vor Debris geschützt. Die Probe ist auf einer Membran direkt hinter einer Blende mit einem Durchmesser von  $20 \dots 25 \mu\text{m}$  präpariert (vgl. Abschnitt 5.2). Die Blende verhindert, dass Strahlung höherer Beugungsordnungen der KZP auf den Detektor gelangt und wirkt gleichzeitig als Linearmonochromator. Eine einfache geometrische Überlegung zeigt, dass die erreichbare Monochromasie eines solchen Linearmonochromators durch den Durchmesser der Kondensatorzonenplatte  $D$  und den Durchmesser der Objektfeld-definierenden Blende  $d$  gegeben ist [147]:

$$\lambda / \Delta\lambda = (V_{\text{KZP}} + 1) \frac{D}{2d} \quad (5.1)$$

Voraussetzung dafür ist eine vollständige Abbildung der Quelle innerhalb der Blende ( $V_{\text{KZP}} d_{\text{Quelle}} < d$ ).





**Abbildung 5.1:** Schematischer Aufbau des Transmissionsmikroskops an der laserinduzierten Plasmaquelle. Die Kondensorzonenplatte (KZP) bildet die Plasmaquelle in die Objektebene ab. Der Mittenstopp (MS) vor der KZP und eine Blende vor dem Objekt erzeugen auf dem Detektor einen Schatten, in dem die MZP die Probe abbildet. Durch Verfahren von Blende mit Objekt und MZP können beide Emissionslinien ( $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  und  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$ ) der Quelle für die Abbildung gewählt werden.

Damit die nullte Beugungsordnung der KZP nicht auf die Bildmitte des Detektors fällt und so ein starkes Untergrundsignal entstehen lässt, ist vor der Kondensorzonenplatte ein Mittenstopp mit einem Durchmesser von 4,5 mm angebracht. Dieser erzeugt auf der CCD-Kamera einen Schattenwurf, in dem die Mikrozonensplatte das Objekt vergrößert abbildet. Die Verwendung einer Kondensorzonenplatte hat durch deren wellenlängenabhängigen Brennweite den Vorteil, dass eine beliebige Beleuchtungswellenlänge innerhalb des Linienspektrums der Quelle eingestellt werden kann. Dies bietet die Möglichkeit, Spektromikroskopie zu betreiben. Dafür werden zwei Bilder mit unterschiedlichen Wellenlängen aufgenommen und miteinander verglichen. Liegt eine Absorptionskante eines in der Probe vorhandenen Elementes zwischen diesen Wellenlängen, kann durch Subtrahieren der Bilder die Verteilung des Elementes bestimmt werden (*Element Mapping*). Für eine auf Stickstoff-basierte Plasmaquelle und deren für die Mikroskopie interessanten Wellenlängen von  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  der *Ly- $\alpha$* -Linie und  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  der *He- $\alpha$* -Linie ist dies z.B. Titan (*L*-Absorptionskante bei  $\lambda = 2,73 \text{ nm}$ ). In Abschnitt 5.4.1 sind entsprechende Ergebnisse zu finden.

Die im Aufbau verwendete Kondensorzonenplatte hat einen Durchmesser von 9 mm mit ca. 34.000 Zonen und verfügt über eine äußerste Zonenbreite von 54 nm [147]. Sie wurde an der Forschungseinrichtung für Röntgenphysik der Universität Göttingen hergestellt. In den 90er-Jahren wurden Zonenplatten desselben Typs (*KZP7*) erfolgreich als Kondensator an verschiedenen Synchrotron-basierten Mikroskopen eingesetzt (*BESSY* in Berlin, *ALS* in Berkeley, USA und *ISA* in Aarhus, Dänemark). Da sie holographisch hergestellt wurde, und über die Anzahl der Zonen und damit auch über die Brennweite keine genaue Aussage getroffen werden kann, wurde die Brennweite in einem Vorversuch experimentell bestimmt.

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

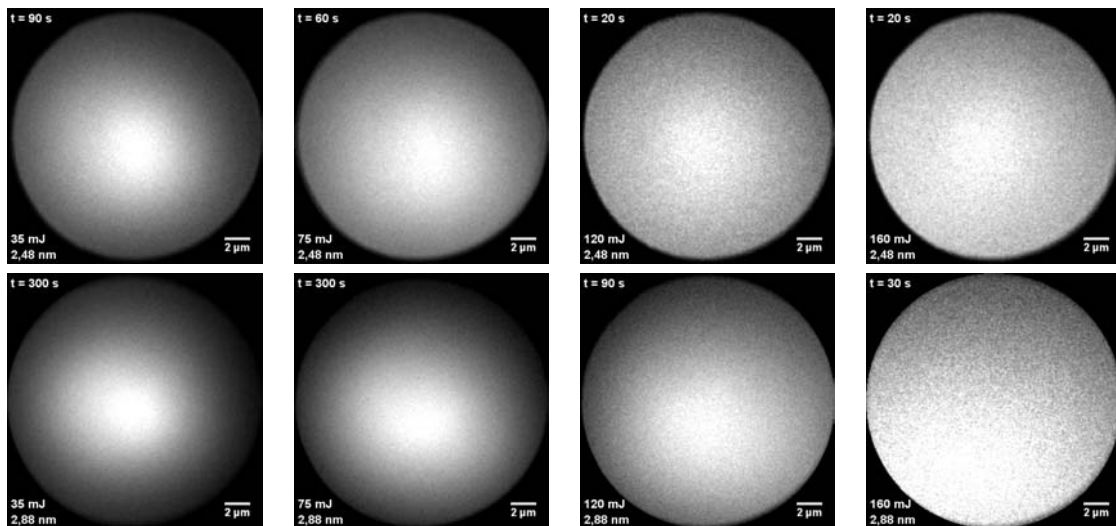
---

Bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  ergibt sich eine Brennweite von  $f_{\text{KZP}} = 195,9 \text{ mm}$ . Diese ist um etwa  $1,2 \text{ mm}$  länger als von *Hettwer* angegeben [147]. Die Zonenplatte befindet sich in einer Vakuumkammer, welche durch eine an der nachfolgenden Mikroskop-Kammer angebrachten Turbomolekularpumpe evakuiert wird (siehe Abschnitt 5.3). Über einen Schrittmotorbetriebenen XYZ-Verschiebetisch (*MT55* und *MT60*, *MICOS*) kann diese im Strahlengang justiert werden. Der Fahrweg in XY-Richtung beträgt  $5 \text{ mm}$  mit einer Schrittweite von  $137 \text{ nm}$  pro Vollschrift. In Z-Richtung (optische Achse des Mikroskops) liegt der Fahrweg bei  $40 \text{ mm}$  mit einer Schrittweite von  $549 \text{ nm}$ . Durch die Konstruktion der zur Verfügung stehenden Vakuumkammern ist ein  $2f$ -Aufbau (1:1 Abbildung) nicht exakt möglich. Die Gegenstandsweite der Kondensorzonenplatte beträgt minimal  $g_{\text{KZP}} = 420 \text{ mm}$ , woraus sich nach dem Abbildungsgesetz eine Bildweite von  $b_{\text{KZP}} = 367 \text{ mm}$  für  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  ergibt ( $b_{\text{KZP}} = 282 \text{ mm}$  für  $2,88 \text{ nm}$ ). Demzufolge ist die Vergrößerung des Systems  $V_{\text{KZP}} = 0,87$  ( $V_{\text{KZP}} = 0,67$ ).

Neben den für die Abbildung genutzten *Ly- $\alpha$* - und *He- $\alpha$* -Emissionslinien sind auch weitere Linien bei  $2,4898 \text{ nm}$  (*He- $\beta$* ) und  $2,9084 \text{ nm}$  bzw.  $2,9534 \text{ nm}$  vorhanden (vgl. Spektren in Abbildung 4.15, S. 61). Diese können die Abbildung mit der Mikrozonplatte negativ beeinflussen und zu chromatischen Aberrationen führen. Nach Gleichung 5.1 beträgt die durch den Aufbau erreichte Monochromasie für eine Objektfeldblende mit einem Durchmesser von  $20 \mu\text{m}$   $(\lambda/\Delta\lambda)_{\text{Ly-}\alpha} = 422$  bzw.  $(\lambda/\Delta\lambda)_{\text{He-}\alpha} = 376$ . Zudem zeigt eine geometrische Überlegung, dass durch die Verwendung des Mittenstopps vor der KZP der Beleuchtungskegel benachbarter Emissionslinien von der Objektfeldblende geblockt werden. Bei  $\lambda = 2,4779 \text{ nm}$  hat der innere Teil des Beleuchtungskegels der *He- $\beta$* -Linie in der Ebene der Blende einen Durchmesser von  $41 \mu\text{m}$ . Der Durchmesser bei  $2,9084 \text{ nm}$  beträgt in der Fokusebene der *He- $\alpha$* -Linie  $78 \mu\text{m}$ . Demnach werden die am nächsten liegenden Wellenlängen von der Objektfeldblende geblockt und tragen nicht zur Objektbeleuchtung bei. Die erreichte Monochromasie ist damit durch die Linienbreite der Beleuchtungswellenlängen gegeben. Wie in Kapitel 4.4.2 bereits beschrieben, beträgt die Monochromasie der beiden Emissionslinien  $\lambda/\Delta\lambda \geq 870$ . Chromatische Aberrationen können somit vernachlässigt werden.

Die Gleichmäßigkeit der Ausleuchtung wird mit Hilfe des Gesamtaufbaus bestimmt. Eine in der Objektebene positionierte Blende mit einem Durchmesser von  $20 \mu\text{m}$  wird dazu mit einer Mikrozonplatte auf eine CCD-Kamera abgebildet. Der Justagevorgang der einzelnen Komponenten ist in Abschnitt 5.4.1 zu finden. Die Ausleuchtung wird bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  und  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  gemessen, wodurch die Vergrößerungen dementsprechend variieren. Dabei wird eine Gesamtlänge des Aufbaus gewählt, die neben dem Bild der Blende auch eine Abbildung der gesamten nullten Beugungsordnung der MZP auf dem Detektor ermöglicht. Bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  beträgt die Vergrößerung  $V = 231$ , während sie bei der *He- $\alpha$* -Linie bei  $V = 302$  liegt. Nach jeder Aufnahme wird die Mikrozonplatte aus dem Strahlengang gefahren und das von der Blende transmittierte Licht direkt mit dem Detektor aufgenommen.

Über die Kalibrationswerte der Kamera kann somit die mittlere Anzahl der Photonen pro Fläche und Zeiteinheit in der Objektebene bestimmt werden. Der Laser wird bei verschiedenen Pulsenergien und maximaler Repetitionsrate (100 Hz) betrieben. Abbildung 5.2 zeigt die Ergebnisse. Durch die Verkleinerung der Quelle lässt sich deren Intensitätsprofil im Objektfeld erkennen. Der Kontrast bei Pulsenergien  $< 100$  mJ liegt bei über 40 %. Pulsenergien von  $> 100$  mJ führen aufgrund der größeren Quelle und stärkeren Variationen der Quellposition zu einem gleichmäßiger ausgeleuchteten Objektfeld ( $C < 30$  %). In Tabelle 5.1 sind die gemessenen Werte für die verschiedenen Pulsenergien vergleichend dargestellt. Generell ist die Ausleuchtung des Objektfeldes durch die stärkere Verkleinerung der Quelle bei der *He- $\alpha$* -Linie inhomogener als bei der *Ly- $\alpha$* -Linie. Betrachtet man nur ein Objektfeld mit einem Durchmesser von  $10 \mu\text{m}$ , liegt der Kontrast zwischen 10 % und 20 %. Bei einer Pulsenergie von 120 mJ wird der höchste mittlere Photonenfluss in der Blende gemessen. Für die *Ly- $\alpha$* -Linie ( $\lambda = 2,48$  nm) liegt dieser bei  $3,9 \cdot 10^4$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  und  $2,5 \cdot 10^4$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  für die *He- $\alpha$* -Linie bei  $\lambda = 2,88$  nm. Eine Steigerung der Pulsenergie führt aufgrund eines zu großen Wärmeeintrags des Plasmas in das Kryo-Düsensystem zu Instabilitäten im Flüssigkeitsstrahl, wodurch die Quellgröße und deren Positionsvariation anwächst und der Photonenfluss in der Objektebene sinkt (vgl. auch Kapitel 4.4.2).



**Abbildung 5.2:** Ausleuchtung in der Objektebene am laserinduzierten Plasma in Verbindung mit der Kondensorzonenplatte bei Pulsenergien von 35 mJ bis 160 mJ. Aufgenommen bei  $\lambda = 2,48$  nm (oben) und  $\lambda = 2,88$  nm (unten). Durch die verkleinerte Abbildung der Quelle lässt sich deren Intensitätsprofil erkennen (Messwerte siehe Tabelle 5.1).

Wird die Objektfeldblende 1 mm hinter dem Fokus der KZP angeordnet, kann eine gleichmäßigere Ausleuchtung erzielt werden. Bei 35 mJ Pulsenergie ( $\lambda = 2,88$  nm) lässt sich der Kontrast damit von 56,3 % auf 34,6 % reduzieren. Allerdings sinkt der mittlere Photonenfluss von  $1,2 \cdot 10^4$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  auf etwa die Hälfte ( $6,3 \cdot 10^3$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$ ).

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

Je nach Vergrößerung und Anforderungen an das aufzunehmende Objekt lassen sich Objektfeldgröße und Ausleuchtung an die Gegebenheiten anpassen. Im Vergleich zu der Ausleuchtung mit einem sphärischen Multilayer-Spiegel (Beispiel *KTH* [135]: 12 % in 20  $\mu\text{m}$  Durchmesser) sind die erzielten Ergebnisse etwas schlechter. Aber auch in diesem Fall wurde der Wert nur bei einer Defokussierung des Spiegels gemessen. Unter Berücksichtigung der spektralen Quellstrahldichte, Filtertransmission und des vom Kondensator aufgefangenen Raumwinkels kann auch hier die Beugungseffizienz der KZP grob abgeschätzt werden. Der ermittelte Wert liegt bei unter 0,1 % ( $< 0,2\%$  aus der Quellgrößenmessung, vgl. Kapitel 4.4.2). Die Abweichung zu dem Wert aus der Quellgrößenmessung lässt sich durch die langen Belichtungszeiten für die Aufnahmen hinter der Objektfeldblende erklären. Hierbei haben Instabilitäten der Quelle einen stärkeren Einfluss als bei den Einzelschuss-Messungen. Dennoch bestätigt dies die Größenordnung des Beugungswirkungsgrades. Damit ist der Wert im Vergleich zu „State of the Art“ Kondensatorzonenplatten sehr gering. Demnach ließe sich der Photonfluss unter Verwendung einer Zonenplatte mit einer Effizienz 5,5 % mit etwa der Hälfte des aufgefangenen Raumwinkels, wie sie beispielsweise an der *KTH* in Stockholm eingesetzt wird [148], um etwa eine Größenordnung steigern.

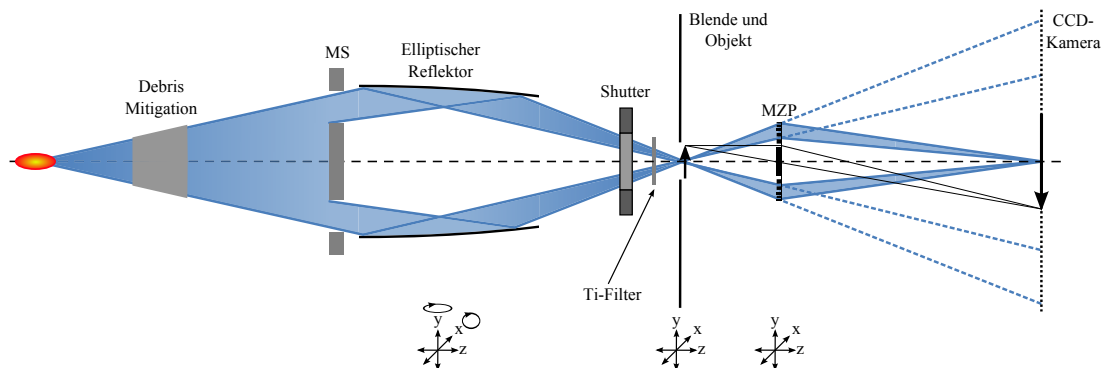
**Tabelle 5.1:** Messergebnisse der Ausleuchtung einer Blende mit 20  $\mu\text{m}$  Durchmesser bei Verwendung eines Zonenplattenkondensators am laserinduzierten Plasma, gemessen bei einer Laserpulsfrequenz von 100 Hz.

Emissionslinie	Pulsenergie $mJ$	Kontrast in 20 $\mu\text{m}$	Kontrast in 10 $\mu\text{m}$	Mittlere Intensität
		$\frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$	$\frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$	$\frac{\text{Photonen}}{s \cdot \mu\text{m}^2}$
<i>Ly-<math>\alpha</math></i> (2,48 nm)	35	51,7 %	18,1 %	$1,6 \cdot 10^4$
	75	37,7 %	16,2 %	$2,1 \cdot 10^4$
	120	25,9 %	10,6 %	$3,9 \cdot 10^4$
	160	17,9 %	7,1 %	$3,3 \cdot 10^4$
<i>He-<math>\alpha</math></i> (2,88 nm)	35	56,3 %	25,1 %	$1,2 \cdot 10^4$
	75	42,4 %	18,0 %	$1,5 \cdot 10^4$
	120	31,6 %	11,2 %	$2,5 \cdot 10^4$
	160	20,5 %	11,4 %	$1,1 \cdot 10^4$

### 5.1.2 Aufbau mit elektrischer Entladungsquelle

Um die höhere Strahldichte der Entladungsquelle auszunutzen, müsste die im Vergleich zum laserinduzierten Plasma wesentlich größere Quelle stark verkleinert abgebildet werden. Unter Berücksichtigung einer angepassten numerischen Apertur von Kondensator und abbildender Zonenplatte würde dann allerdings der aufgefangene Raumwinkel sehr klein werden.

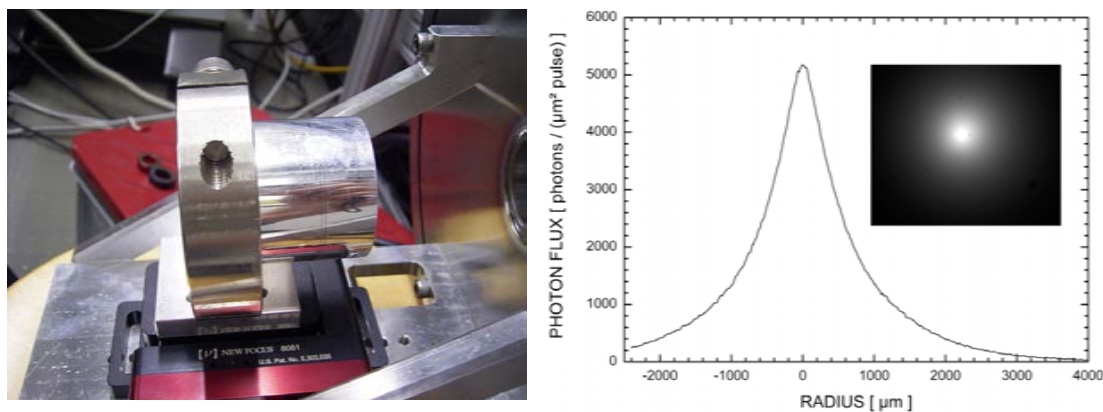
Demnach muss ein Kompromiss zwischen aufgefangenem Raumwinkel und Anpassung der numerischen Apertur erfolgen. Für die Experimente stand kein optimierter Kondensator zur Verfügung. Es wurde ein mit Gold bedampfter, rotationssymmetrischer Ellipsoid (Kollektor) verwendet. Er besteht aus zwei Segmenten und liefert eine Vergrößerung von  $V \approx 0,67$ . Die beiden Halbachsen betragen  $a = 300 \text{ mm}$  und  $a' = 9 \text{ mm}$ . Abbildung 5.3 zeigt den Gesamtaufbau des Mikroskops. Vor dem Kollektor befindet sich ein Debrismitigationssystem. Dabei handelt es sich um eine 20 mm lange Polykapillare [126, 149], die aus mehreren 100 Kapillaren mit 50  $\mu\text{m}$  Durchmesser in wabenförmiger Struktur besteht. Mit ihrer Hilfe wird das Vakuum der Quelle (ca.  $10^{-2} \text{ mbar}$ ) von dem der Kollektorkammer (ca.  $10^{-6} \text{ mbar}$ ) getrennt. Zudem wird der Kollektor vor Debris geschützt. Unter Berücksichtigung des geometrischen Aufbaus und der theoretischen Reflektivität in den einzelnen Kanälen sollte die Transmission der Kapillare bei  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  70 % betragen. Aufgrund von Geometrie-Abweichungen und Unreinheiten der Kanäle wurde jedoch nur 33 % gemessen. Gegen Ende der Experimentierkampagnen wurde auch eine Kapillare aus Wolfram getestet. Sie wurde mittels selektivem Lasersintern hergestellt und besteht aus einer spinnennetzförmigen Struktur mit 20 mm langen Kanälen. Die Transmission dieses Systems ist alleine durch den geometrischen Aufbau gegeben und beträgt ca. 50 %. Durch die großen Kanäle ist der Vakuumdruck in der Kollektorkammer jedoch zwei Größenordnungen schlechter als mit der Glaskapillare. Beide Debrismitigationssysteme sind an den Öffnungswinkel des Kollektors angepasst. Sie befinden sich in einem Abstand von 150 mm zur Quelle und können manuell im Strahlengang verkippt werden. Vor dem Kollektor ist ein Mittenstopp angebracht. Dieser verhindert, dass direktes Licht der Quelle auf den Detektor gelangen kann. Zudem reduziert er das Streulicht im Gesamtsystem. Hinter dem Kollektor befindet sich ein mechanischer Verschluss und eine 200 nm Titan-Folie, die aus dem Emissionsspektrum der Quelle die  $\text{He-}\alpha$ -Linie bei  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  transmittiert und kürzere Wellenlängen herausfiltert. Der Abstand zwischen



**Abbildung 5.3:** Schematischer Aufbau des Transmissionsmikroskops an der elektrischen Entladungsquelle. Ein elliptischer Reflektor wird als Kondensator verwendet. Vor diesem ist eine Polykapillare [149] positioniert, die den Kollektor vor Debris schützt (Debrismitigation). Zur spektralen Filterung wird ein 200 nm Titan-Filter eingesetzt.

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

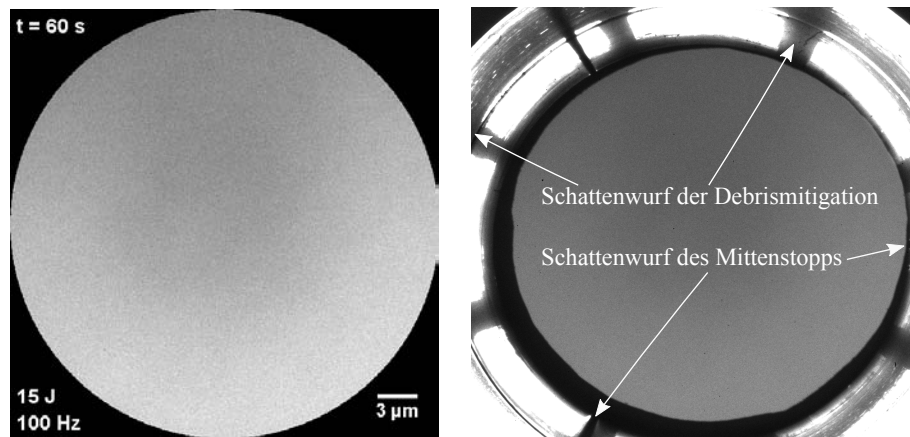
Quelle und Kollektorfokus entspricht ungefähr der Hauptachse des Kollektors und beträgt demnach ca. 600 mm. Um den Kollektor im Strahlengang justieren zu können, ist dieser auf einer Verfahrereinheit mit fünf Piezomotor-angetriebenen Achsen (*Model 8081, New Focus*) montiert. Der Justageprozess des Debrismitigationssystems und des Kollektors wird in Abschnitt 5.4.2 beschrieben. Abbildung 5.4 zeigt eine Photographie des Kollektor Moduls mit einem Segment und die Intensitätsverteilung im Fokus. Diese wurde mit Hilfe eines Ce:YAG-Konverter Kristalls<sup>1</sup> und einer CCD-Kamera aufgenommen [126].



**Abbildung 5.4:** Kollektormodul mit nur einem Segment (links) und CCD-Aufnahme der Ausleuchtung im Fokus des Kollektors mit beiden Segmenten und einem entsprechenden Intensitätsprofil entlang des Fokus [126].

Der Fokus des Kollektors ist im Vergleich zu dem ausgeleuchteten Objektfeld eines LIP-basierten Mikroskops mit Kondensorzonenplatte sehr groß. Nur der mittlere Teil des Spots kann für die Beleuchtung der Probe verwendet werden. Der Vorteil hierbei liegt jedoch in einer gleichmäßigen Ausleuchtung, die selbst bei einem Objektfeld von 50 µm oder größer realisierbar ist. Abbildung 5.5 (links) zeigt ein mit einer Mikrozonenplatte aufgenommenes Bild einer 30 µm großen Blende im Fokus des Kollektors. Das Bild wurde mit einer Belichtungszeit von einer Minute bei einer Pulsenergie von 15 J und 100 Hz Repetitionsrate aufgenommen. Der Kontrast der Ausleuchtung innerhalb eines Objektfeldes mit 20 µm Durchmesser beträgt 10%. Der rechte Teil der Abbildung zeigt neben der mikroskopischen Aufnahme den Beleuchtungskegel des Kollektors, in dem der Schattenwurf des Mittenstopps und der Wolfram-Kapillare zu erkennen ist. Aufgrund der durch die Vakuumkammern gegebenen Geometrie ist eine direkte Aufnahme des vollständigen Beleuchtungskegels für die Bestimmung des Photonenflusses innerhalb der Objektfeldblende nicht möglich. Über den absoluten Beugungswirkungsgrad der verwendeten Zonenplatte und deren Ausleuchtung durch den Kollektor kann dieser nur abgeschätzt werden. Bei 15 J Pulsenergie und 100 Hz Repetitionsrate errechnet sich die mittlere Intensität damit zu  $8 \cdot 10^4$  Photonen/(µm<sup>2</sup>s).

<sup>1</sup>Yttrium-Aluminium-Granat mit Cer dotiert



**Abbildung 5.5:** Ausleuchtung einer 30 µm Blende im Fokus des Kollektors (links). Im rechten Teil der Abbildung ist zusätzlich der Beleuchtungskegel des Kollektors aufgenommen, in dem der Schattenwurf des Mittenstopps und der Wolfram-Kapillare zu erkennen ist. Im Vergleich zu der Objektausleuchtung bei einem LIP kann durch den relativ großen Zwischenfokus ein sehr homogenes Intensitätsprofil erzielt werden.

Vergleichsmessungen mit einem Ce:YAG-Konverter Kristall in Verbindung mit einer CCD-Kamera liefern bei gleichen Quellparametern  $1,3 \cdot 10^5$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  [132]. Die Abweichung resultiert eventuell aus einem über die Fläche der MZP ungleichmäßig verteilten Beugungswirkungsgrad oder einer Kontamination. Für einen besseren Vergleich mit den röntgenmikroskopischen Aufnahmen (siehe Abschnitt 5.4.2) werden im Folgenden die berechneten Werte aus der ersten Beugungsordnung der MZP berücksichtigt. So kann das Signal-Rausch-Verhältnis der Aufnahmen und der Einfluss des verwendeten Debrismitigationssystems besser miteinander verglichen werden. Der maximale Photonenfluss wird bei 18 J Pulsenergie und 700 Hz Repetitionsrate erreicht und beträgt  $3,1 \cdot 10^5$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$ . Raytracing-Untersuchungen haben gezeigt, dass mit einem optimierten Kollektor und skalierten Quellparametern ein theoretischer Fluss von  $1 \cdot 10^7$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  möglich ist [126]. In [132] wird die Auslegung eines optimierten Kollektors näher beschrieben. Erste Experimente zur Charakterisierung eines Prototypen haben bei 14,5 J Pulsenergie und 720 Hz Repetitionsrate einen Photonenfluss von  $9,7 \cdot 10^5$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  gezeigt. Dieser Wert entspricht nur etwa 25 % der vorher durchgeführten Simulation, was durch einen flächenmäßig vierfach größeren Fokus begründet ist. Als Ursache dafür kommen Formabweichung des Kollektors sowie unzureichende Justage in Betracht. Röntgenmikroskopische Ergebnisse zu diesem Kollektorsystem stehen noch aus.

Die Monochromasie der Strahlung ist alleine durch die Breite der *He- $\alpha$* -Linie gegeben, da kürzere Wellenlängen durch die Titan-Folie absorbiert werden. Wie bereits in Kapitel 4.4.3 beschrieben, liegt diese bei  $\lambda/\Delta\lambda = 830$  und sollte ausreichend für eine mikroskopische Abbildung mit einer Zonenplatte sein. Die Emissionen bei  $\lambda = 2,9084$  nm und  $\lambda = 2,9534$  nm (vgl.

Abbildungen 4.18, S. 65 und 4.19, S. 66) können sich jedoch negativ auf die Abbildungsleistung auswirken. Bei Betrachtung einer Mikrozonenplatte mit einem Durchmesser von  $56\ \mu\text{m}$  und einer Brennweite von  $585\ \mu\text{m}$  ( $DOF = 0,6\ \mu\text{m}$ ) unterscheiden sich die Brennweiten von  $2,88\ \text{nm}$  und  $2,91\ \text{nm}$  um  $6\ \mu\text{m}$  (siehe auch Abschnitt 5.3). Durch die unscharfen Abbildungen der beiden Emissionslinien wird ein Untergrundsignal im Bild erzeugt, was zu einem reduzierten Kontrast führt. Die räumliche Auflösung wird dadurch nicht merklich verschlechtert [100, 132].

### 5.1.3 Vergleich der Kondensorkonzepte

Wie die Untersuchungen der beiden Kondensorkonzepte gezeigt haben, sind diese für eine mikroskopische Abbildung mit einer Zonenplatte geeignet. Im Falle der elektrischen Entladungsquelle ist die erreichbare Intensität in der Objektebene um zwei bis drei Größenordnungen geringer als an Synchrotron-basierten Mikroskopen [29]. Mittels eines optimierten Kollektors könnte der Photonenfluss jedoch weiter gesteigert werden. Auch im Falle des laserinduzierten Plasmas ließe sich die Intensität in der Objektebene unter Verwendung einer „State of the Art“ Kondensorzonenplatte um etwa eine Größenordnung erhöhen. Tabelle 5.2 gibt einen vergleichenden Überblick der wichtigsten Parameter der beiden Konzepte. Die Werte beziehen sich auf die gemessenen Werte unter Berücksichtigung der Filtertransmission. Im Falle der Entladungsquelle ist die mittlere Intensität in der Objektebene nur ein abgeschätzter Wert, da dieser aus dem mikroskopischen Bild einer Blende und dem Beugungswirkungsgrad der verwendeten MZP berechnet wurde. Inwieweit die numerische Apertur der Konzepte an das abbildende System angepasst ist, hängt von den verwendeten Mikrozonenplatten ab. Im Allgemeinen ist die numerische Apertur einer Zonenplatte durch die Wellenlänge  $\lambda$  und der Breite der äußersten Zone  $dr_N$  gegeben und beträgt  $NA = \lambda/2dr_N$ . Nimmt man ein  $dr_N$  von  $25\text{...}60\ \text{nm}$  und die Wellenlängen  $2,48\ \text{nm}$  und  $2,88\ \text{nm}$  an, liegt die NA in einem Bereich von ca.  $0,021$  bis  $0,058$  (vgl. auch Abschnitt 5.3). Bei einem laserinduzierten Plasma müsste im Fall einer 1:1 Abbildung der Quelle in die Objektebene und einer äußersten Zonenbreite der MZP von  $dr_N = 25\ \text{nm}$  die äußerste Zonenbreite der Kondensorzonenplatte  $12,5\ \text{nm}$  betragen. Dies kann jedoch mit den derzeit existierenden Nanostrukturierungsmethoden nicht realisiert werden. Die Anforderungen an den Kondensator, aus einem möglichst großen Raumwinkel Licht zu sammeln und gleichzeitig eine an das Objektiv angepasste Beleuchtungsapertur zu erzeugen, kann nur für hohe Beugungsordnungen der KZP erfüllt werden [88]. Bei der elektrischen Entladungsquelle ist eine Anpassung der Beleuchtungsapertur des Kollektors einfacher realisierbar, da die Fertigungsmöglichkeiten eines elliptischen Reflektors die Apertur nicht in dem Maße begrenzen. Hier muss allerdings ein Kompromiss zwischen aufgefangenem Raumwinkel und Vergrößerung der Quelle eingegangen werden. Wählt man eine angepasste NA bei starker Verkleinerung der Quelle, ist der aufgefangene Raumwinkel sehr klein.



**Tabelle 5.2:** Vergleich der beiden Kondensorkonzepte bei der Ausleuchtung einer Blende mit 20  $\mu\text{m}$  Durchmesser.

Quelle	Wellenlänge	Kontrast in 20 $\mu\text{m}$	Mittlere Intensität	Monochromasie	NA
	$nm$	$\frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$	$\frac{\text{Photonen}}{s \cdot \mu\text{m}^2}$	$\lambda/\Delta\lambda$	
LIP (0,12 J, 100 Hz, Al-Filter)	2,48	25,9 %	$3,9 \cdot 10^4$	910	0,0122
	2,88	31,6 %	$2,5 \cdot 10^4$	870	0,0160
Entladung (18 J, 0,7 kHz, Ti-Filter)	2,88	10,3 %	$3,1 \cdot 10^5$	830	0,0449

## 5.2 Proben

Grundsätzlich können bei dem entwickelten Mikroskop nur vakuumtaugliche Proben untersucht werden. Es handelt sich dabei um lithographische Testobjekte, Latex- oder Goldkugeln, Diatomeen (Kieselalgen) oder chemisch fixierte Zellen. Diese sind auf Siliziumnitrid-Membranen oder Kupfer-Netzchen präpariert und werden auf einer Blende mit Hilfe von Kapton-Tape fixiert. Die Blende wiederum ist auf eine Stahlfolie geklebt und kann so über einen Magneten an der Verfahreinheit im Mikroskop gehalten werden. Der Durchmesser der Blende variiert je nach Abstand zwischen Probe und Blende. Er liegt für Proben auf Kupfer-Netzchen bei 20...30  $\mu\text{m}$  und für Siliziumnitrid-Membranen bei bis zu 60  $\mu\text{m}$ . Die folgenden Abschnitte geben einen genaueren Überblick über die verschiedenen Testobjekte.

### 5.2.1 Testobjekte

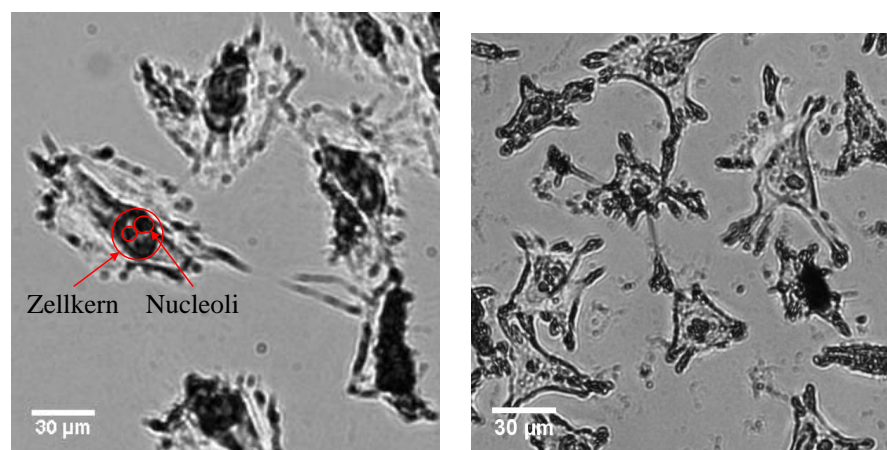
Insgesamt stehen zwei maschinell hergestellte Testobjekte zur Verfügung. Diese werden hauptsächlich zur Ermittlung der räumlichen Auflösung eingesetzt. Zum einen handelt es sich um einen Siemensstern, der an der *KTH* in Stockholm elektronenstrahlolithographisch hergestellt wurde und zum anderen um Teststrukturen, die am Forschungszentrum *caesar* in Bonn mittels eines fokussierten Ionenstrahls (FIB, engl.: Focused Ion Beam) direkt in eine Membran geschrieben worden sind. Der Siemensstern besteht aus ca. 100...125 nm dicken Nickel-Strukturen auf einem Schichtsystem bestehend aus 5 nm Chrom, 10 nm Germanium und einer 50 nm Siliziumnitrid-Membran. Abbildung 5.6 zeigt zwei REM-Aufnahmen. Die äußeren Strukturen sind 2  $\mu\text{m}$  breit und laufen zur Mitte hin auf 100 nm zusammen, wobei hier das Strich-Lücke-Verhältnis leicht von 1:1 abweicht. Die Stege sind an dieser Stelle ca. 135 nm breit, die Lücken dementsprechend 65 nm. Herstellungsbedingt befindet sich im senkrechten Steg ein Spalt mit einer Breite von 26 nm. Dieser ist für Auflösungstests sehr gut geeignet.



Als weitere Testobjekte wurden zwei verschiedene Sorten Latexkugeln mit einem Durchmesser von  $1\ \mu\text{m}$  eingesetzt. Zur Kontrastverbesserung ist eine Sorte mit Palladium und Platin beschattet. Weiterhin wurden Goldkugeln mit einem Durchmesser von  $50\ \text{nm}$  untersucht. Diese sind in der Röntgen-Transmissionsmikroskopie weit verbreitet und finden als funktioneller Markerstoff Verwendung. Als sehr anschauliche Objekte wurden Diatomeen auf Siliziumnitrid-Membranen präpariert. Bei ihnen handelt es sich um kieselsäurehaltige Algen, die ein Zellskelett aus  $\text{SiO}_2$  besitzen, das sehr regelmäßige Strukturen haben kann und sich dementsprechend gut für Auflösungstests eignet.

### 5.2.2 Biologische Zellen

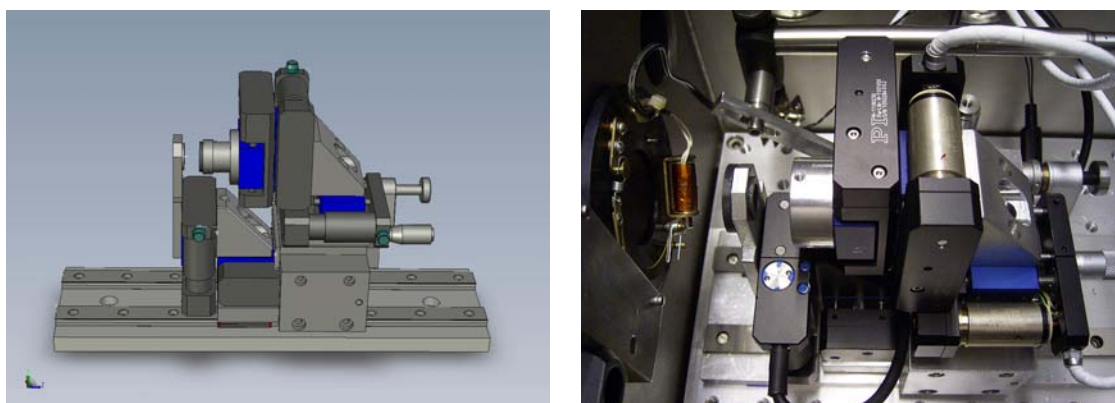
Da auf die Verwendung einer Nasskammer verzichtet wird, müssen die biologischen Zellen chemisch fixiert und getrocknet werden. Für die Versuche wurden zwei Zellarten von der Universität Heidelberg zur Verfügung gestellt. Abbildung 5.8 zeigt zwei lichtmikroskopische Aufnahmen der beiden Zelltypen. Sie sind auf  $100\ \text{nm}$  dicken Siliziumnitrid-Membranen kultiviert und durch diverse chemische Prozesse fixiert und getrocknet worden. Eine detaillierte Beschreibung ist in [150, 151] zu finden. Bei der ersten Zellart handelt es sich um in Bindegewebe vorkommende embryonale Zellen einer Ratte (Rat Embryonic Fibroblast, REF 52WT). Sie bestehen aus einem ovalen Zellkern mit einem Durchmesser von  $10\text{...}30\ \mu\text{m}$ , in dem mehrere Nucleoli (Kernkörper) vorhanden sind. Solche Zellen werden häufig als Modell für Studien zur Adhäsion von Zellen herangezogen [152]. Als weitere Zellart werden HeLa-TK-Zellen untersucht. Diese sind menschliche Epithel-Zellen (Drüsengewebe), welche aus einem Gebärmutterhals-Karzinom extrahiert worden sind. Bei der Präparation wurde die Zellmembran absichtlich zerstört, sodass die Zelle ihre Chromosomen auf der Membran verteilt.



**Abbildung 5.8:** Lichtmikroskopische Aufnahmen von Ratten-Fibroblasten (links) mit gekennzeichnetem Zellkern und Kernkörper (Nucleoli) und HeLa-TK-Zellen (rechts).

### 5.3 Abbildendes System

Das abbildende System besteht aus einer Mikrozonenplatte und einer CCD-Kamera. Die CCD-Kamera wurde zusammen mit dem Spalt-Gitter-Spektrographen kalibriert (vgl. Kapitel 4.4.1) und liefert bei maximal eingestellter Verstärkung für die  $Ly-\alpha$ -Linie bei 2,48 nm Wellenlänge 95,88 Counts/Photon und 79,37 Counts/Photon für die  $He-\alpha$ -Linie bei  $\lambda = 2,88$  nm. Das Objekt und die MZP sind auf Schrittmotor-betriebenen Positioniereinheiten (*M-110.12S, Physik Instrumente*) montiert. Dabei ist das Objekt in XY-Richtung und die Zonenplatte in XYZ-Richtung mit je einem maximalen Weg von 5 mm und kleinster Schrittweite von 586 nm verfahrbar. Abbildung 5.9 zeigt die CAD-Konstruktion und eine Photographie der Positioniereinheiten. Das Objekt wird über einen ringförmigen Magneten gehalten. Die Zonenplatte kann wahlweise über eine Schraube geklemmt oder ebenfalls magnetisch fixiert werden. Für die Anpassung der verschiedenen Halter der Zonenplatten ist zusätzlich eine manuelle Positioniereinheit in Z-Richtung integriert. Diese erleichtert das Ein- und Ausbauen der Zonenplatte. Da das Mikroskop an verschiedenen Quellen mit jeweils unterschiedlichen Kondensorkonzepten getestet werden soll, befindet sich die gesamte Objekt/MZP-Konstruktion auf einem Schienensystem. Über eine manuelle Lineardurchführung kann so das Objekt in die Fokusebene des Kondensors gefahren werden. Die Komponenten befinden sich in einer Vakuumkammer, die über eine Turbomolekularpumpe und eine Scrollpumpe evakuiert wird. Damit ist ein Druck bis  $1 \cdot 10^{-6}$  mbar während des Betriebs möglich.



**Abbildung 5.9:** CAD-Konstruktion und Photographie der Objekt- und MZP-Verfahreinheit. Das komplette System ist auf Schienen montiert und kann mittels einer manuellen Lineardurchführung in die Fokusebene des Kondensors gefahren werden.

In Tabelle 5.3 sind die verwendeten Zonenplatten aufgelistet. Sie sind jeweils auf einer Siliziumnitrid-Membran mit einer Dicke von 100 nm (MZP1) und 50 nm (MZP2 und MZP3) strukturiert. Die angegebenen Beugungswirkungsgrade beziehen sich auf eine Wellenlänge von  $\lambda = 2,4$  nm. Durch die höhere Absorption von Siliziumnitrid bei  $\lambda = 2,88$  nm ist der

BWG bei dieser Wellenlänge um ca. 1% reduziert. Die Zonenplatten MZP1 und MZP2 werden aufgrund ihrer geringen numerischen Apertur nur an der LIP-Quelle ( $NA = 0,0122$  bei  $2,48\text{ nm}$ ) eingesetzt. An der elektrischen Entladungsquelle ( $NA = 0,0449$ ) könnte mit ihnen nur Dunkelfeldmikroskopie betrieben werden, da der Beleuchtungskegel des Kollektors an der Zonenplatte vorbeistrahlt. MZP3 wurde von *Rehbein* (*BESSY*, Berlin) zur Verfügung gestellt. Durch ihre geringe äußerste Zonenbreite von  $dr_N = 30\text{ nm}$  liegt deren Schärfentiefe bei  $DOF = 625\text{ nm}$  ( $\lambda = 2,88\text{ nm}$ ). Demnach sollte die Positionierung der MZP auf der optischen Achse besser als dieser Wert sein, um das Bild scharf stellen zu können. Da die Schrittmotor-betriebene Verfahreinheit ein totes Spiel von  $\pm 1,5\text{ }\mu\text{m}$  in dieser Bewegungsrichtung aufweist, wird eine zusätzliche Piezo-betriebene Schraube integriert. Durch ihre geringe Schrittweite von ca.  $30\text{ nm}$  ist somit eine präzise Einstellung sichergestellt. Über einen induktiven Weglängensensor (*TT20*, *Tesatronic*) mit einer Auflösung von  $100\text{ nm}$  kann die Positionierung überwacht werden.

**Tabelle 5.3:** Auflistung der verwendeten Mikrozonplatten. Aufgrund der geringen numerischen Apertur der Zonenplatten MZP1 und MZP2 wurden diese nur am LIP-basierten Mikroskop verwendet.

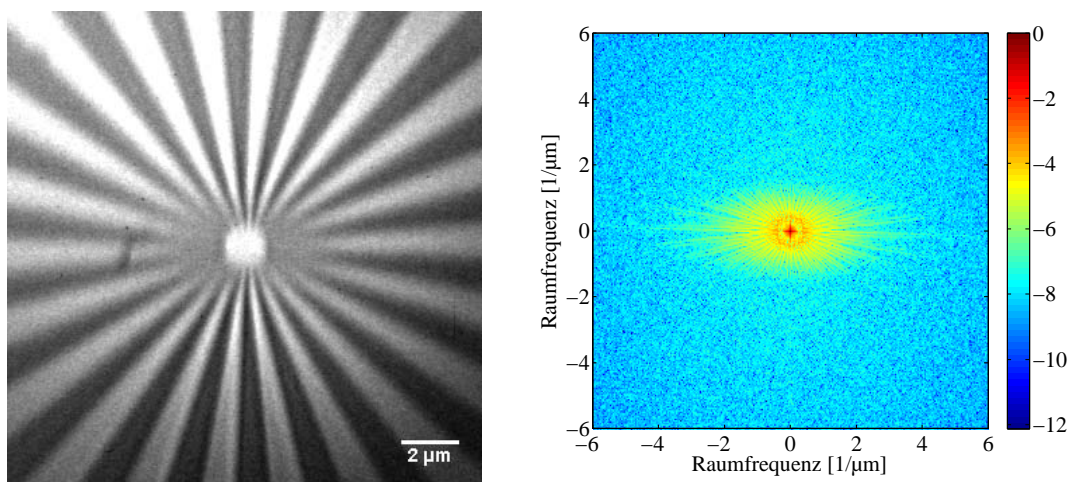
	$2r_N$ $\mu\text{m}$	$dr_N$ $\text{nm}$	$N$	$f_{2,48\text{ nm}}$ $\mu\text{m}$	$f_{2,88\text{ nm}}$ $\mu\text{m}$	$NA_{2,48\text{ nm}}$	$NA_{2,88\text{ nm}}$	BWG (abs.) bei $2,4\text{ nm}$
MZP1	95	63	377	2415	2079	0,0197	0,0228	n.b.
MZP2	61,78	39	396	972	837	0,0318	0,0369	3%
MZP3	56,16	30	674	680	585	0,0413	0,0480	8%

## 5.4 Leistungsfähigkeit des Mikroskops

Die Leistungsfähigkeit des Mikroskops ist neben dem in Kapitel 5.1 behandelten Beleuchtungssystem und den Abbildungsfehlern der Mikrozonplatte auch von äußeren Einflüssen abhängig. Je nach erforderlicher Belichtungszeit werden hohe Anforderungen an die Stabilität des Aufbaus gestellt. Durch Vakuumpumpen verursachte Vibrationen oder thermische Einflüsse können die Bildqualität drastisch reduzieren. Während sich thermische Einflüsse hauptsächlich bei längeren Belichtungszeiten von einigen 10 Minuten bemerkbar machen, haben Vibrationen durch Vakuumpumpen jedoch auch bei kurzen Belichtungszeiten einen erheblichen Einfluss. Dabei sind laterale Schwingungen der CCD-Kamera zur optischen Achse von einigen  $\mu\text{m}$  durch die im Vergleich dazu relativ große Pixelgröße unerheblich. Vielmehr spielen Bewegungen des Objektivs relativ zum Objekt die entscheidende Rolle. Hier können Schwingungen im sub-100-nm-Bereich die erreichbare Auflösung massiv verschlechtern. Angesichts des komplexen und sehr kompakten Aufbaus der einzelnen Verfahreinheiten

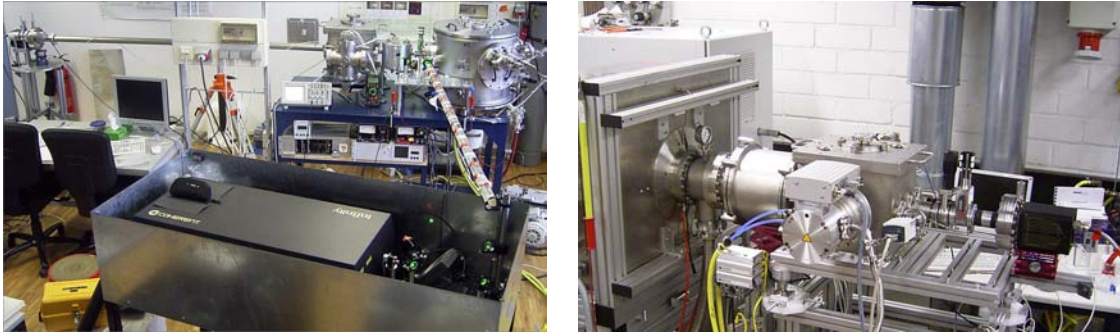
## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

ist das abbildende System anfällig gegenüber Vibrationen. Durch das Spiel der verschiedenen Positioniereinheiten und des Schienensystems können schon bei geringfügiger Anregung Schwingungen entstehen. Mit Hilfe einer schwingungsgedämpften Aufstellung und Entkopplung der Vorvakuumpumpen durch Well- oder Gummischläuche kann deren Einfluss minimiert werden. Gerade bei dem Betrieb des Mikroskops an der laserinduzierten Plasmaquelle sind solche Maßnahmen durch die Verwendung von drei Drehschieberpumpen und einer Roots-pumpe für den Betrieb des Stickstoff-Jets unerlässlich. Neben diesen Optimierungen wurden zusätzlich Schwingungsanalysen mit Hilfe eines Beschleunigungssensors (*ADXL202, Analog Devices*) durchgeführt. Dieser wurde an der Stelle des Objekts und der MZP fixiert und die Vibrationen durch Optimierungen der Konstruktion des abbildenden Systems minimiert. Zudem wurden verschiedene Turbomolekularpumpen für die Evakuierung der Objektkammer getestet. Eine magnetgelagerte Pumpe (*Turbovac Mag W 400, Oerlikon Leybold Vacuum*) führte zu den besten Ergebnissen. Die durch die Vakuumpumpen der Objektkammer verursachten Vibrationen konnten dadurch vollständig eliminiert werden. Abbildung 5.10 zeigt eine röntgenmikroskopische Aufnahme des Siemenssterns bei 437-facher Vergrößerung, die vor den angesprochenen Optimierungen aufgenommen wurde. Es zeigt sich eine deutliche Unschärfe in vertikaler Richtung, die durch Vibrationen entstanden ist. Im entsprechenden Leistungsdichtespektrum (Abb. 5.10, rechts) ist dies an der ovalförmigen Verteilung des Spektrums zu erkennen. Die in den Abschnitten 5.4.1 und 5.4.2 dargestellten Ergebnisse sind nach den beschriebenen Optimierungen des Aufbaus aufgenommen worden.



**Abbildung 5.10:** Röntgenmikroskopische Aufnahme eines Siemenssterns mit 437-facher Vergrößerung und 200s Belichtungszeit (links). Das Bild wurde mit der MZP1 an der laserinduzierten Plasmaquelle aufgenommen bevor die im Text angesprochenen Optimierungen im Aufbau durchgeführt worden sind. Die vorhandene Unschärfe in vertikaler Richtung ist auch deutlich im Leistungsdichtespektrum (rechts) an der ovalförmigen Struktur zu erkennen.

Abbildung 5.11 zeigt den Gesamtaufbau des Mikroskops an den beiden Quellen. Bei 1000-facher Vergrößerung ist der Aufbau am laserinduzierten Plasma unter Verwendung der MZP1 mit 2,4 mm Brennweite sehr lang. Der Laser wird zusätzlich noch für eine weitere LIP-Quelle eingesetzt und ist zwischen den zwei Targetkammern aufgestellt. Mit einer kürzeren Brennweite der MZP und einer platzsparenden Aufstellung des Lasers kann ein ebenso kompakter Aufbau wie an der Entladungsquelle realisiert werden.



**Abbildung 5.11:** Gesamtaufbau des Mikroskops am laserinduzierten Plasma (links) und an der Entladungsquelle (rechts). Durch die relativ lange Brennweite der MZP bei dem LIP ist der Aufbau bei 1000-facher Vergrößerung im Vergleich zur Entladungsquelle sehr lang.

Die erforderlichen Belichtungszeiten können anhand der in der Objektebene gemessenen Intensitäten abgeschätzt werden. Für eine mikroskopische Aufnahme mit sehr guten Kontrastverhältnissen sollte die Dynamik der CCD-Kamera nahezu vollständig ausgenutzt werden. Bei einer Dynamik von 16 bit und den gemessenen Kalibrationsdaten bei minimaler Verstärkungseinstellung von 23 Counts/Photon für  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  (19 Counts/Photon für 2,88 nm) ergeben sich damit 2850 Photonen (3440 Photonen) pro Pixel. Typischerweise sind 1000 Photonen als ausreichend zu betrachten. Dies entspricht einem Signal-Rausch-Verhältnis von  $SNR > 30$ . Unter Berücksichtigung der Transmission des Objekt-Substrates (100 nm  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) und einer Beugungseffizienz der Mikrozonenplatte von 7% ist bei 1000-facher Vergrößerung eine Intensität von  $7 \cdot 10^7 \text{ Photonen}/\mu\text{m}^2$  notwendig. Bei Betrachtung des maximalen Photonenflusses der beiden Quellen bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  (LIP:  $2,5 \cdot 10^4 \text{ Photonen}/(\mu\text{m}^2\text{s})$ , Pinch:  $3,1 \cdot 10^5 \text{ Photonen}/(\mu\text{m}^2\text{s})$ ) ergeben sich damit Belichtungszeiten von ca. 47 Minuten für das laserinduzierte Plasma und ca. 4 Minuten für die elektrische Entladungsquelle. Die lange Belichtungszeit beim LIP ist für den praktischen Gebrauch ungeeignet. Hier muss ein Kompromiss zwischen Vergrößerung und Signal-Rausch-Verhältnis gefunden werden: Für 12 Minuten Belichtungszeit ergibt sich bei 1000-facher Vergrößerung ein Signal-Rausch-Verhältnis von  $SNR = 16$ , bei nur 500-facher Vergrößerung liegt das  $SNR$  bei 32. Die angestellten Berechnungen beziehen sich auf dünne Proben; sollen biologische Zellen untersucht werden, verlängert sich die Belichtungszeit je nach Dicke der Probe um einen Faktor von drei bis fünf.

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

---

Die nachfolgenden Abschnitte stellen die Ergebnisse an den beiden Quellen dar. Dabei wird zunächst auf die Justage des Aufbaus an der jeweiligen Quelle eingegangen und die aufgenommenen Bilder im Hinblick auf Kontrast und Signal-Rausch-Verhältnis untersucht. Je nach Testobjekt werden zudem Leistungsdichtespektren gezeigt und an einer geeigneten Kante im Bild die Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium bestimmt. An der sehr kontrastreichen FIB-Probe wird zudem die Modulationsübertragungsfunktion (MTF) für den eindimensionalen Fall berechnet.

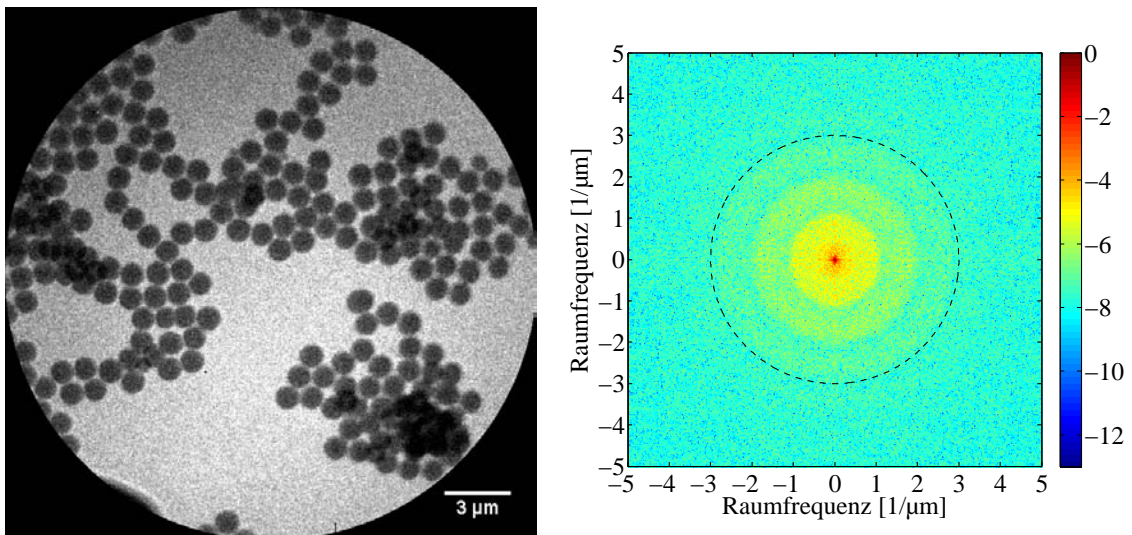
### 5.4.1 Ergebnisse mit der laserinduzierten Plasmaquelle

Die Justage der optischen Komponenten erfolgt schrittweise. Zunächst werden diese unter Zuhilfenahme eines Fernrohrs vor dem Evakuieren des Systems vorjustiert. Dazu wird das Fernrohr auf die optische Achse, welche durch die Position des Plasmas und der Austrittsöffnung der Objektkammer vorgegeben ist, eingerichtet. So können Kondensorenzoneplatte, Objekt und Mikrozoneplatte nacheinander auf diese Achse eingestellt werden. Eine genaue Positionierung der Kondensorenzoneplatte ist aufgrund ihrer Größe nicht möglich. Dies kann nur im Betrieb erfolgen. Dafür wird zunächst die Mikrozoneplatte aus dem Strahlengang gefahren und der Fokus der KZP unter Beobachtung der +1. Beugungsordnung durch die Objektfeldblende gesucht und optimiert. Danach wird die MZP wieder vor das Objekt positioniert und durch schrittweises Verfahren in Z-Richtung (optische Achse des Mikroskops) die optimale Fokuseinstellung gesucht. Die Schrittweite richtet sich nach der Schärfentiefe der verwendeten Mikrozoneplatte und liegt zwischen 500 nm und 3  $\mu\text{m}$ . Bei Vergrößerungen von  $V > 500$  wird bei der Fokussuche die Kamera im Binning-Modus betrieben. Hierzu wird auf dem CCD-Chip eine ausgewählte Anzahl benachbarter Pixel gemeinsam ausgelesen und damit zu einem größeren Pixel zusammengefasst. Das Signal eines gebinneten Pixels entspricht demnach der Summe der Einzelsignale. Die Belichtungs- und Auslesezeiten verkürzen sich dementsprechend. Wenn die optischen Komponenten justiert sind, ist ein relativ schneller Probenwechsel möglich. Mittels zweier Ventile kann die Objektkammer von der Targetkammer und der gekühlten CCD-Kamera getrennt werden. Dies hat den Vorteil, dass weder die Kamera noch der Kryostat in der Targetkammer aufgetaut werden müssen. Nach der Belüftung wird die Kamera mit verriegeltem Ventil demontiert und das Objekt mit einem Fernrohr anvisiert. Nach dem Probenwechsel kann so leicht die vorherige Position mit Hilfe der Verfahrenseinheiten angefahren werden. Die Ungenauigkeit beträgt weniger als 15  $\mu\text{m}$ , sodass nach dem Evakuieren der Objektkammer das Objekt nur minimal verschoben werden muss. Ein Probenwechsel ist damit hauptsächlich von der Pumpzeit abhängig und liegt bei 30...45 Minuten.

Abbildung 5.12 zeigt eine röntgenmikroskopische Aufnahme von Latexkugeln mit einem Durchmesser von 1  $\mu\text{m}$  bei 567-facher Vergrößerung. Die Aufnahme ist bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$



mit der Mikrozonenplatte MZP1 angefertigt worden, die Belichtungszeit beträgt 10 Minuten. Wie auch bei den nachfolgenden Aufnahmen ist die Pulsenergie des Lasers auf 100 mJ bei einer Repetitionsrate von 100 Hz eingestellt. Das durchschnittliche Signal an den Stellen ohne Objekt beträgt etwa 50.000...55.000 Counts. Dies entspricht unter Berücksichtigung der Kalibrationsdaten bei maximaler Verstärkungseinstellung der Kamera ungefähr 520 Photonen pro Pixel. Das Signal-Rausch-Verhältnis liegt demnach bei  $SNR > 20$ , was bei Annahme einer Beugungseffizienz der Mikrozonenplatte von 7% etwa die Hälfte der theoretischen Überlegungen in Abschnitt 5.4 beträgt. Die Differenz ist durch eine geringere Pulsenergie des Lasers und eine minimale Dejustage der Kondensorenzoneplatte begründet, da in den Aufnahmen die Ausleuchtung des Objektfeldes gleichmäßiger ist als in Abschnitt 5.1.1 gemessen (vgl. Abb. 5.2, S. 73). Durch die geringe optische Dichte beträgt der Kontrast bei den Latexkugeln  $C = 0,28$ . Daher sind übereinander liegende Kugeln gut zu erkennen. Das angegebene Leistungsdichtespektrum (Abb. 5.12, rechts) ist gleichmäßig radialsymmetrisch verteilt. Dies deutet darauf hin, dass keine radialsymmetrischen Aberrationen wie Astigmatismus oder Koma in der Aufnahme vorhanden sind.

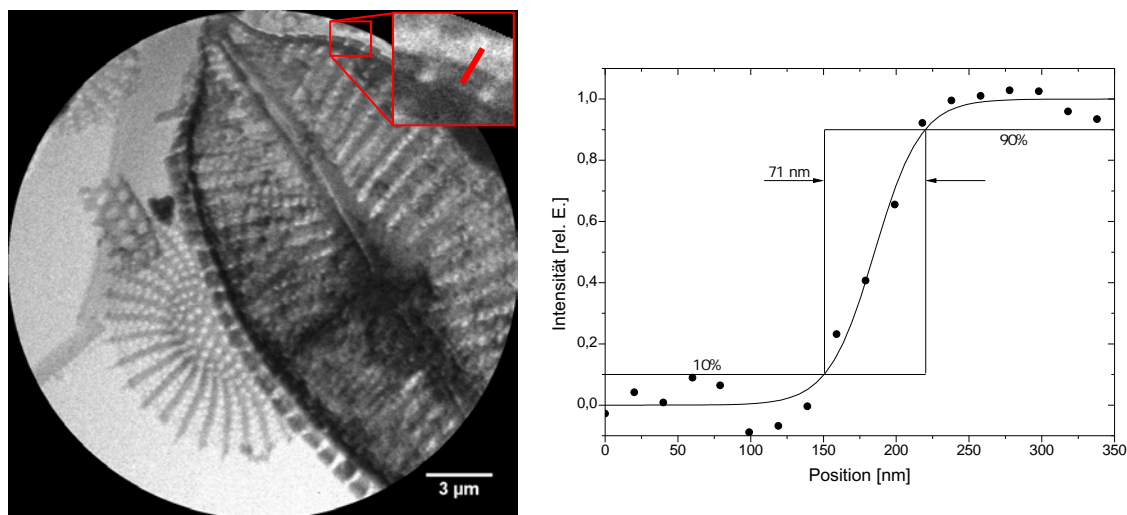


**Abbildung 5.12:** Röntgenmikroskopische Aufnahme von 1 µm Latexkugeln bei 567-facher Vergrößerung (links, [153]) und ein dazugehöriges Leistungsdichtespektrum mit logarithmischer Skalierung (rechts). Gleichzeitig ist im PSD ein zur Null-Frequenz (DC-Komponente) zentrierter Kreis als Referenz dargestellt. Die radialsymmetrische Verteilung des Spektrums signalisiert eine in Bezug auf Astigmatismus oder Koma aberrationsfreie Abbildung.

In Abbildung 5.13 ist eine Diatomee mit einer Vergrößerung von 1007 dargestellt. Die geometrische Auflösung ist damit durch die Pixelgröße der CCD-Kamera auf etwa 40 nm begrenzt. Der maximale Kontrast im Bild beträgt  $C = 0,83$ , das Signal-Rausch-Verhältnis liegt bei etwa  $SNR = 25,6$ . In der Aufnahme ist erkennbar, dass die ovalförmige Diatomee im

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

oberen Teil schärfer abgebildet wird als im unteren Bereich. Hier befinden sich die Strukturen durch die darunter liegende sternförmige Diatomee nicht mehr im Schärftiefenbereich der Mikrozonenplatte (nach Gl. 3.10:  $DOF = \pm 3,2\mu\text{m}$ ). Daher wird für die Bestimmung der Auflösung an einer scharf abgebildeten Kante im oberen Teil der Aufnahme ein Intensitätsprofil erstellt (Abb. 5.13, rechts). Das Profil wird über eine Breite von fünf Pixeln gemittelt. Der Kantentest liefert einen Intensitätsanstieg von 10 % auf 90 % innerhalb von 71 nm, was der räumlichen Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium entspricht. An diesem Kantentest wird keine eindimensionale MTF bestimmt (vgl. Kapitel 2.4), da der Kontrast ( $C = 0,32$ ) sehr gering ist. Theoretisch liegt die beugungsbegrenzte Auflösung der Zonenplatte bei  $\delta_{\text{Rayl.}} = 77\text{ nm}$ . Die Differenz ist durch die konvergente Beleuchtung des Objekts begründet. Das Rayleigh-Kriterium geht von einer räumlich kohärenten Beleuchtung ( $NA = 0$ ) des Objekts aus. Um ein Objekt abbilden zu können, muss die erste Beugungsordnung der Objektstruktur in die MZP fallen. Durch eine konvergente (räumlich inkohärente) Beleuchtung des Objekts verringert sich der Winkel der Beugungsordnung zur optischen Achse, sodass auch kleinere Strukturgrößen vom Objektiv noch erfasst werden können [16, 34, 154].

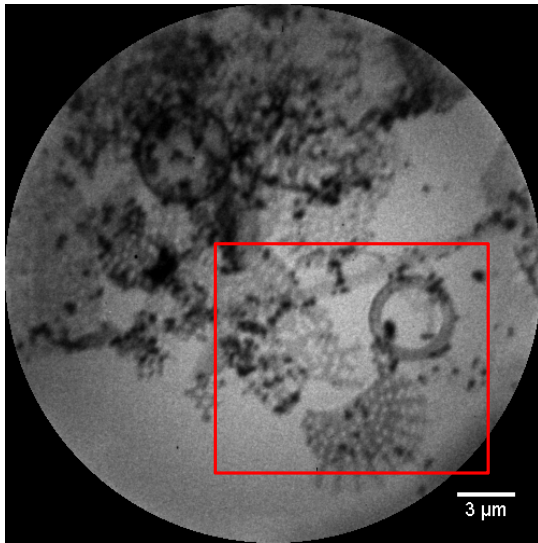


**Abbildung 5.13:** Mit der MZP1 aufgenommenes Bild einer Diatomee bei 1007-facher Vergrößerung (links). Die Belichtungszeit beträgt 30 Minuten. Rechts ist ein Intensitätsprofil an der markierten Kante im vergrößerten Ausschnitt dargestellt. Ein Intensitätsanstieg von 10 % auf 90 % wird innerhalb von 71 nm erreicht [153].

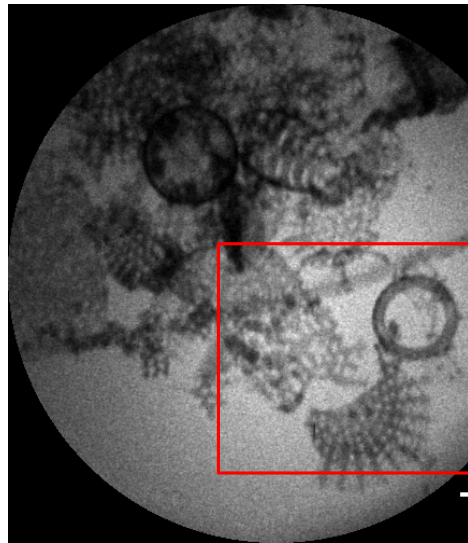
Wie bereits in Abschnitt 5.1.1 beschrieben, eignet sich der Aufbau am laserinduzierten Plasma zur Spektromikroskopie. Um diese Methode zu veranschaulichen, wurden Diatomeen mit Titandioxid-Partikeln präpariert. Titan besitzt eine  $L$ -Absorptionskante bei 2,73 nm und weist daher stark unterschiedliche Absorptionskoeffizienten bei den Emissionslinien ( $Ly-\alpha$  und  $He-\alpha$ ) auf. Abbildung 5.14 zeigt zwei röntgenmikroskopische Aufnahmen, die bei  $\lambda = 2,48\text{ nm}$  (5.14 a) und  $\lambda = 2,88\text{ nm}$  (5.14 b) aufgenommen worden sind. Während

die Transmission der Titandioxid-Partikel in (b) mit der Transmission der Diatomeen vergleichbar ist, zeigen sie in (a) eine starke Absorption. Dennoch ist es schwierig, stark absorbierende Diatomeen von titanhaltigen Partikeln zu unterscheiden. Erst eine Subtraktion der beiden Aufnahmen (5.14 c) lässt eine genaue Lokalisierung dieser zu. Für die Berechnung wurde das Bild bei 2,88 nm auf die Vergrößerung und maximale Intensität des Bildes bei 2,48 nm neu skaliert. Durch den unterschiedlichen Abbildungsmaßstab der Kondensorenplatte variiert die Objektausleuchtung in den beiden Aufnahmen. Dies macht sich im Differenzbild (5.14 c) als Untergrundsignal (violett) bemerkbar. Der im Differenzbild markierte Bereich wurde genauer untersucht. Aus den Bilddaten der Aufnahme (5.14 b) lässt sich die Dicke der ringförmigen Diatomee zu 350 nm ( $\text{SiO}_2$ ) bestimmen. Die Transmission des Titandioxid-Partikels innerhalb der Diatomee liefert einen Wert von 550 nm. In Abbildung 5.14 (d) sind die berechneten Transmissionskurven dieser beiden Objekte dargestellt [14]. Bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 2,88$  nm beträgt der Kontrast zwischen den Objekten, wie auch in Abbildung 5.14 (b) zu messen ist,  $C = 0,05$ . Bei  $\lambda = 2,48$  nm steigt dieser durch die starke Absorption des titanhaltigen Partikels auf  $C = 0,92$ . Dieser theoretische Wert kann in Aufnahme 5.14 (a) nicht nachgewiesen werden. Hier wird nur ein Kontrast von  $C = 0,68$  erzielt. Eventuell führen Verunreinigungen des Titandioxids zu einem geringeren Titan-Anteil, wodurch die Transmission steigt. Dennoch erhöht sich der Kontrast zwischen den Objekten durch die Subtraktion der beiden Aufnahmen auf nahezu eins ( $C = 0,99$ ).

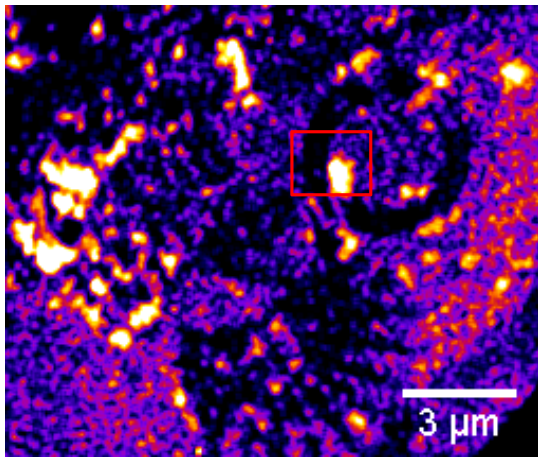
Abbildung 5.15 zeigt ein mit der MZP2 aufgenommenes Bild des Siemenssterns bei  $\lambda = 2,88$  nm und 971-facher Vergrößerung. Durch die relativ kurze Belichtungszeit von zwei Minuten beträgt das Signal-Rausch-Verhältnis nur  $SNR = 8,3$ , der Kontrast liegt bei  $C = 0,44$ . Die inneren Strukturen des Siemenssterns können klar aufgelöst werden. Ein Kantentest an der markierten Stelle liefert eine räumliche Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium von 68 nm. Für eine eindimensionale Bestimmung der MTF an einer Kante reicht das SNR und der geringe Kontrast nicht aus. Die Darstellung des Leistungsdichtespektrums deutet auf eine fehlerfreie Abbildung hin. Da eine beugungsbegrenzte Auflösung von  $\delta_{\text{Rayl.}} = 48$  nm der Mikrozonenplatte nicht erreicht wird, sind eventuell minimale Vibrationen, verursacht durch die Vakuumpumpen der Plasmaquelle, für die limitierte räumliche Auflösung verantwortlich. Die Verteilung im PSD ist jedoch sehr gleichmäßig und radial-symmetrisch. Demnach sollten eventuell vorhandene Vibrationen keine Vorzugsrichtung aufweisen. Als weitere Fehlerquelle kommt eine unzureichende Fokussierung oder fehlerhafte Zonenplatte in Betracht. Zu diesem Zeitpunkt wurde der induktive Weglängensensor und die Piezo-betriebene Schraube für die Fokussierung der MZP noch nicht eingesetzt (vgl. Kapitel 5.3). Durch die geringe Schärfentiefe der MZP2 von  $DOF = \pm 1$   $\mu\text{m}$  ist daher keine präzise Einstellung der Fokussierung mit der Schrittmotor-betriebenen Verfahrenheit möglich.



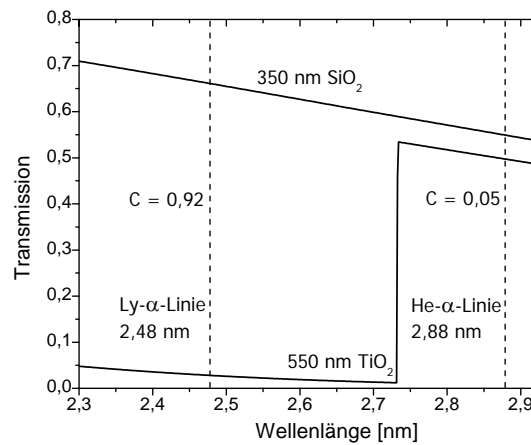
a)  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$ ,  $V = 360$



b)  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$ ,  $V = 400$

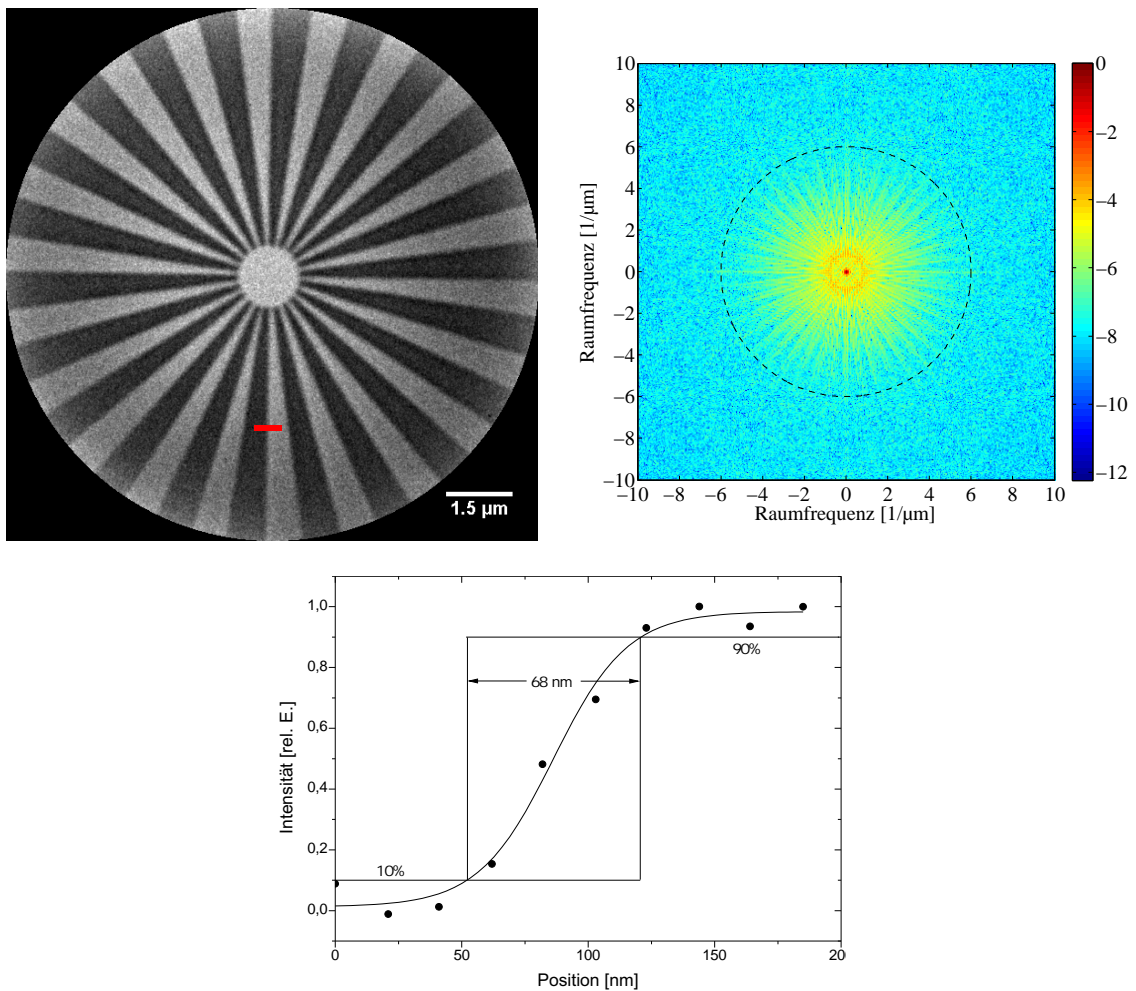


c) Differenz



d) Transmissionskurven von  $\text{SiO}_2$  und  $\text{TiO}_2$

**Abbildung 5.14:** Aufnahme von Diatomeen mit Titandioxid-Partikeln bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  (a) und  $\lambda = 2,88 \text{ nm}$  (b) mit Belichtungszeiten von 3 Minuten (a) und 5 Minuten (b). In dem Differenzbild der markierten Ausschnitte (c) sind die Titandioxid-Partikel als gelbe Punkte deutlich zu erkennen und zu lokalisieren [153]. (d) zeigt die Transmissionskurven der aus (b) berechneten Dicken von  $\text{SiO}_2$  und  $\text{TiO}_2$  des markierten Bereichs in (c) [14].



**Abbildung 5.15:** Am laserinduzierten Plasma aufgenommener Siemensstern bei 971-facher Vergrößerung. Für die Abbildung wurde die MZP2 bei 2,88 nm Wellenlänge verwendet. Die Belichtungszeit beträgt 2 Minuten. Das Leistungsdichtespektrum zeigt eine gleichmäßig radialsymmetrische Verteilung, was auf eine Abbildung frei von radialsymmetrischen Aberrationen (z.b. Astigmatismus, Koma) hindeutet. Das Intensitätsprofil an der markierten Kante in der Aufnahme zeigt eine räumliche Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium von 68 nm.

#### 5.4.2 Ergebnisse mit der Entladungsquelle

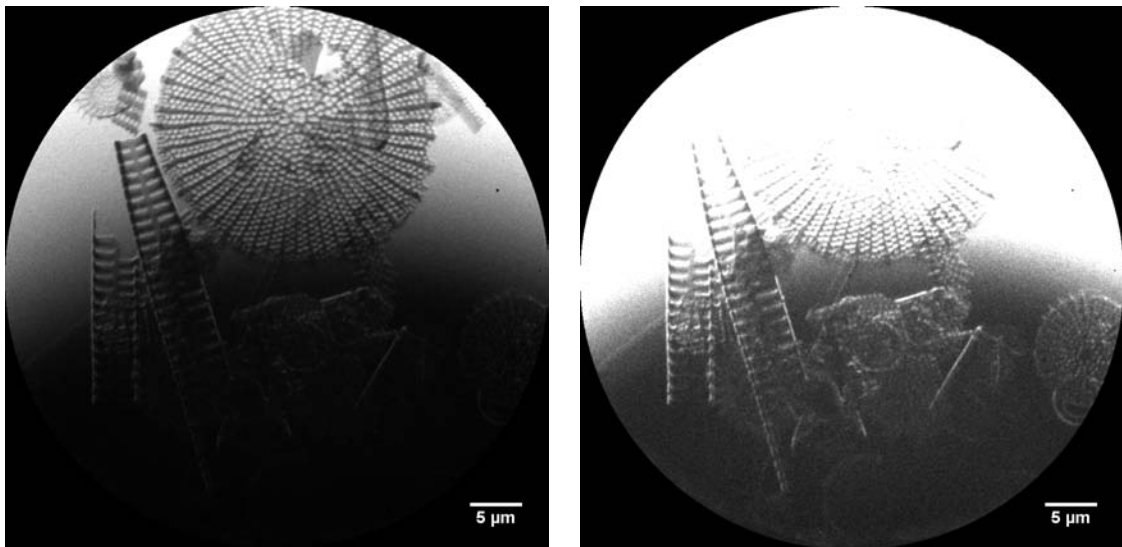
Für die Vorjustage des Aufbaus an der Entladungsquelle müssen zunächst die Glas- bzw. Wolfram-Kapillare und der Kollektor justiert werden. Die Einstellung der Kapillare erfolgt an Luft, da keine motorisierte Verstellmöglichkeit vorhanden ist. Dafür wird der hintere Teil des Entladungskopfes demontiert und eine Leuchtdiode an der Stelle des Plasmas in der Mitte zwischen Anode und Kathode als Lichtquelle angebracht. Mittels dreier Verstell-schrauben kann die Kapillare in der XY-Ebene verkippt und der Beleuchtungskegel auf dem Kollektor optimiert werden. Für die Justage des Kollektors wird an der Austrittsöffnung

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

---

der Kollektorkammer ein Fenster mit einem Ce:YAG-Kristall angeflanscht. Dieser ist auf der Vorderseite mit Titan bedampft und absorbiert unerwünschte EUV-Strahlung und sichtbare Spektralanteile des Plasmas. Der Abstand zwischen Szintillator-Kristall und Quelle entspricht den Design-Daten des Kollektors. Im Betrieb erfolgt dann die Justage durch laterale Bewegung und Verkipfung des Kollektors zur optischen Achse. Dabei wird die Quelle mit Argon betrieben und der Zwischenfokus mit einem Mikroskopobjektiv und einer CCD-Kamera bewertet. Durch den Betrieb mit Argon wird eine wesentlich kleinere Quelle ( $\approx 400 \mu\text{m}$ ) erzeugt, was eine genauere Beurteilung des Zwischenfokus zulässt. Nachdem der Kollektor justiert ist, wird nochmals die Leuchtdiode montiert und die Einstellung der Kapillare unter Beobachtung des Beleuchtungsringes hinter dem Zwischenfokus mit einer CCD-Kamera korrigiert. Im Anschluss wird das Mikroskop an die Kollektorkammer angeflanscht. An Stelle des Objekts wird zunächst ein Ce:YAG-Kristall eingesetzt und die Beleuchtung der Objektebene unter Zuhilfenahme eines Fernrohres kontrolliert und gegebenenfalls durch Verschieben des abbildenden Systems entlang der optischen Achse optimiert. Anschließend wird eine Blende als Objekt montiert und unter Beobachtung der transmittierten Röntgenstrahlung in die Mitte des Kollektorfokus gefahren. Nun können Mikrozonentplatte und Objekt auf die durch das Fernrohr fixierte optische Achse justiert werden. Danach erfolgt die Suche der optimalen Fokuseinstellung. Im Gegensatz zum Betrieb am laserinduzierten Plasma muss bei einem Probenwechsel auch die Vakuumkammer der Quelle belüftet werden. Dies erfolgt über einen Bypass zwischen Quell- und Mikroskopkammer, der während des Betriebs geschlossen bleibt. Der Probenwechsel ist auch hier von der Pumpzeit abhängig und liegt wie bei dem LIP zwischen 30 und 45 Minuten.

Für die ersten Experimente an der elektrischen Entladungsquelle standen noch nicht alle Komponenten zur Verfügung. Zunächst konnte nur das vordere Segment des in Abschnitt 5.1.2 beschriebenen Kollektorsystems in Verbindung mit der MZP1 für eine Abbildung genutzt werden. Zu diesem Zeitpunkt wurde außerdem kein Debrismitigationssystem verwendet. Wie bereits in Abschnitt 5.3 beschrieben, kann durch die zweifach größere NA des Kollektors nur Dunkelfeldmikroskopie betrieben werden, da der vom Objekt transmittierte Beleuchtungskegel an der MZP vorbeistrahlt ( $NA_{\text{Koll.}} = 0,0449$ ,  $NA_{\text{MZP1}} = 0,0228$ ). Durch eine laterale Verschiebung der MZP auf der optischen Achse ist es dennoch möglich, ein Teil des Objekts im Hellfeld abzubilden. Abbildung 5.16 zeigt eine solche Aufnahme von Diatomeen mit unterschiedlicher Skalierung der Intensität bei 350-facher Vergrößerung. Die Aufnahme wurde bei einer Repetitionsrate von 200 Hz und einer Pulsenergie von 11 J durchgeführt. Die Belichtungszeit beträgt 6 Minuten. Die Mikrozonentplatte wurde an den Rand des Beleuchtungskegels herangefahren. Dadurch liegen die Objekte im oberen Teil der Aufnahmen im Hellfeld, während sie im unteren Teil im Dunkelfeld liegen. Im Hellfeld wird ein maximales Signal-Rausch-Verhältnis von  $SNR = 18,5$  bei einem Kontrast der Diatomee von  $C = 0,25$  erzielt.

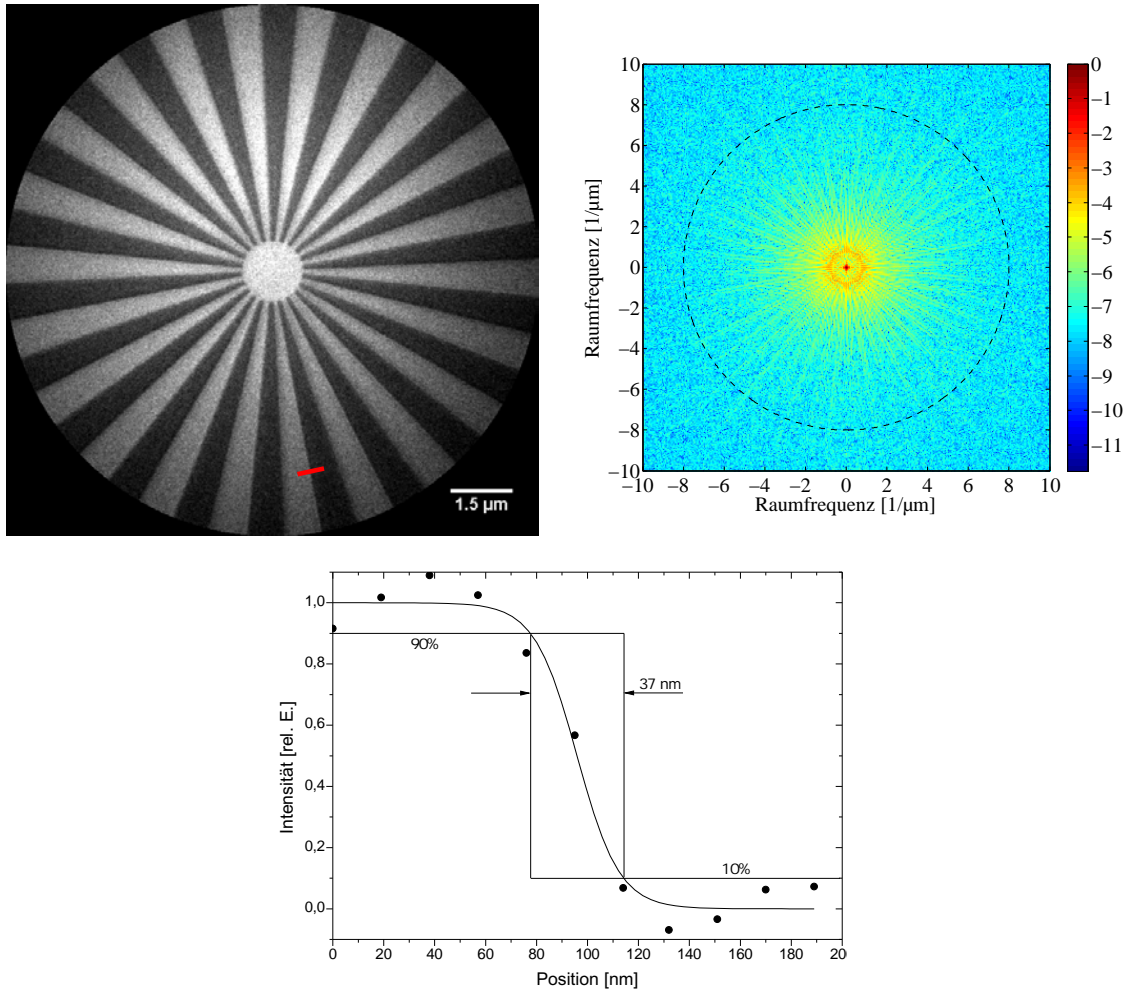


**Abbildung 5.16:** Mit der MZP1 aufgenommene Diatomeen bei 350-facher Vergrößerung. Die Repetitionsrate der Entladungsquelle beträgt 200 Hz bei einer Pulsenergie von 11 J. Die MZP ist an den Rand des Beleuchtungskegels herangefahren. Durch die zweifach größere NA des Beleuchtungskegels gegenüber der NA der Objektiv-Zonenplatte liegt das Objekt im oberen Teil im Hellfeld (links) und darunter im Dunkelfeld (rechts). Die Bilder sind in der Intensität entsprechend skaliert um den Effekt zu verdeutlichen.

Die nachfolgend dargestellten Ergebnisse wurden mit der MZP3 in Verbindung mit beiden Kollektorsegmenten angefertigt. Hier sind die numerischen Aperturen von Kollektor und MZP fast vollständig angepasst ( $NA_{\text{Koll.}} = 0,0449$ ,  $NA_{\text{MZP3}} = 0,0480$ ). Zudem wurde das Mikroskop mit der Glaskapillare ausgestattet, um das Vakuum der Quelle vom optischen System zu trennen und den Kollektor vor Debris zu schützen. Abbildung 5.17 zeigt eine Aufnahme des Siemenssterns mit 1057-facher Vergrößerung bei 11 J Pulsenergie und einer Repetitionsrate von 300 Hz. Die Belichtungszeit beträgt eine Minute. Die Ausleuchtung in der Objektebene ist nicht sehr gleichmäßig. Dies ist durch die Präparation des Siemenssterns auf einer zu kleinen Blende begründet. Die errechneten Werte für den Kontrast  $C = 0,41$  und das Signal-Rausch-Verhältnis  $SNR = 8,6$  beziehen sich daher auf die Mitte des Bildes. Das ebenfalls dargestellte Leistungsdichtespektrum ist radialsymmetrisch, sodass auch hier von einer aberrationsfreien Abbildung ausgegangen werden kann. Die Strukturen sind vollständig bis in die Mitte des Siemenssterns aufgelöst. An der markierten Kante in der röntgenmikroskopischen Aufnahme wird ein Intensitätsprofil erstellt und unter Zuhilfenahme der 90/10-Methode die Kantensteilheit bestimmt. Nach dem Rayleigh-Kriterium ergibt sich hierbei eine räumliche Auflösung von 37 nm, welche mit der theoretischen Auflösung der MZP von  $\delta_{\text{Rayl.}} = 36,6$  nm (Gl. 3.9) gut übereinstimmt. Der in Abbildung 5.6 (S. 80) dargestellte Spalt mit einer Breite von 26 nm innerhalb des senkrechten Steges ist jedoch nicht in der

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

Aufnahme zu erkennen. Eventuell ist dieser im Testobjekt selbst nicht vollständig bis zur Membran strukturiert und liefert demnach einen zu schwachen Kontrast, oder die Auflösung reicht dafür nicht aus. Im Vergleich zu dem Ergebnis an der laserinduzierten Plasmaquelle (Abb. 5.15, S. 91) ist der allgemeine Bildkontrast an der elektrischen Entladungsquelle geringfügig schlechter. Dies liegt an der in Abschnitt 5.1.2 beschriebenen Kontrastreduzierung durch die vorhandenen Emissionslinien bei 2,91 nm und 2,95 nm.

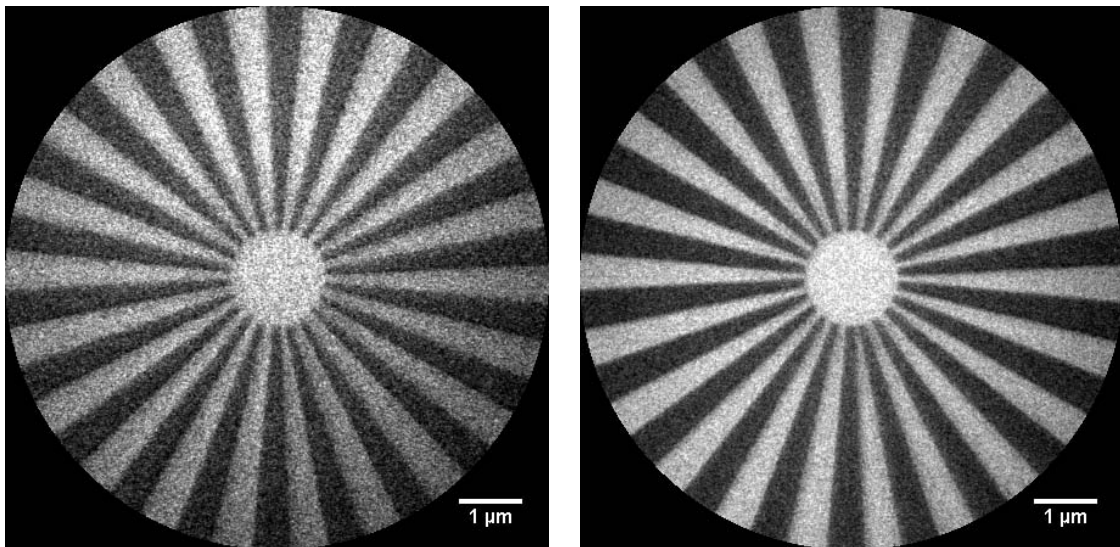


**Abbildung 5.17:** Siemensstern, aufgenommen bei 1057-facher Vergrößerung mit der MZP3 an der elektrischen Entladungsquelle; Quelle: 300 Hz Repetitionsrate, 11 J Pulsenergie. Die Belichtungszeit beträgt eine Minute. Das räumliche Auflösungsvermögen wird an der markierten Kante nach dem Rayleigh-Kriterium zu 37 nm bestimmt [145].

Um die Leistungsfähigkeit der Quelle zu testen, werden zwei weitere Bilder des Siemenssterns bei 600 Hz und 20 J Pulsenergie aufgenommen. Abbildung 5.18 zeigt die Ergebnisse. In beiden Fällen liegt der Kontrast bei  $C = 0,39$ . Dieser ist etwas niedriger als bei 11 J Pulsenergie, was eventuell mit einem stärkeren Einfluss von Kontinuumsstrahlung in Verbindung



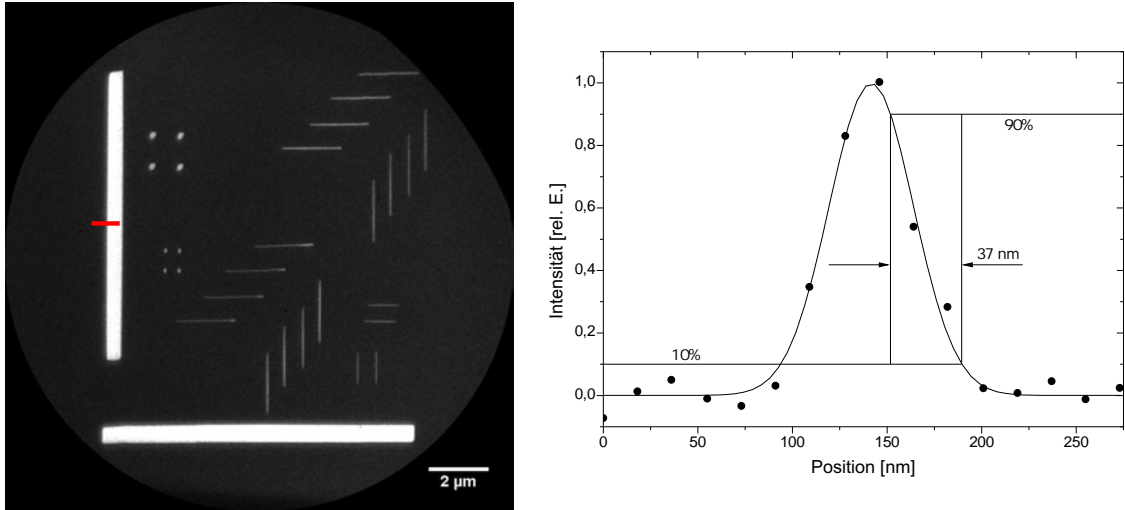
steht. Bei einem Vergleich der Aufnahme mit einer Minute Belichtungszeit (Abb. 5.17) liefert das Bild mit 20 s in etwa das gleiche Signal-Rausch-Verhältnis. Die dreifach reduzierte Belichtungszeit wird durch die Verdopplung der Pulsenergie und Repetitionsrate ausgeglichen. Bei einer Belichtungszeit von 8 s ist das Bild stark verrauscht ( $SNR = 4,5$ ). Dennoch lassen sich auch hier die inneren Strukturen des Siemenssterns klar und aufgelöst erkennen. Ein Vergleich von Abbildung 5.18 (rechts) mit der Aufnahme des Siemenssterns an der laserinduzierten Plasmaquelle (Abb. 5.15, S. 91) zeigt, dass die Belichtungszeit an der Entladungsquelle unter Berücksichtigung der unterschiedlich eingestellten Vergrößerungen um einen Faktor von 35 kürzer ist. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Photonenzahlen in der Objektebene (siehe Tabelle 5.2, S. 79). Die Entladungsquelle erreicht ca. 12,4-fach mehr Licht in der Objektebene bei der  $He-\alpha$ -Linie. Berücksichtigt man den unterschiedlichen Beugungswirkungsgrade der verwendeten Zonenplatten von 7% für die MZP an der Entladungsquelle und 2% an der LIP-Quelle (siehe Tabelle 5.3, S. 83), stimmen die Ergebnisse recht gut überein.



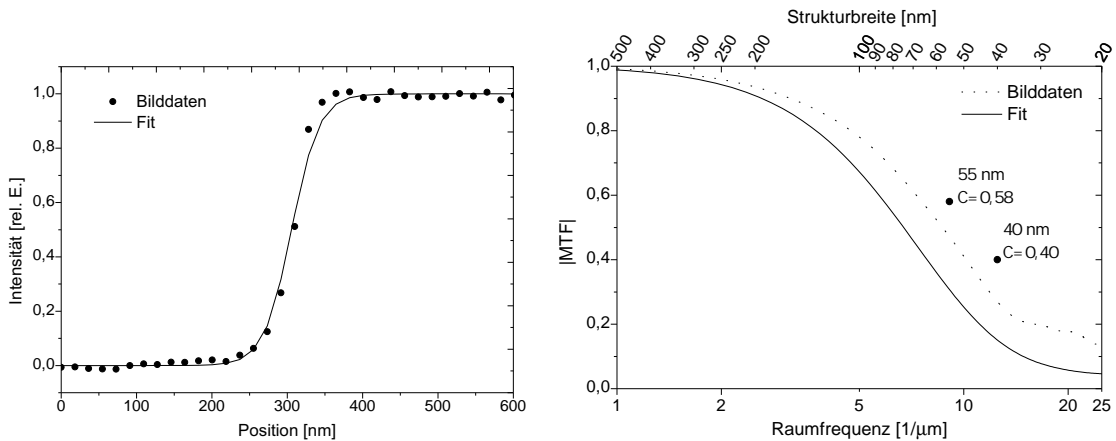
**Abbildung 5.18:** Mit erhöhter Repetitionsrate (600 Hz) und Pulsenergie (20 J) aufgenommener Siemensstern; links: 8 s Belichtungszeit, rechts: 20 s.

Ein weiterer Auflösungstest wurde mit den FIB-Teststrukturen durchgeführt. In Abbildung 5.19 ist eine Aufnahme mit 1097-facher Vergrößerung und einer Minute Belichtungszeit dargestellt. Für die Abbildung wurde die Quelle mit 400 Hz bei einer Pulsenergie von 15 J betrieben und die Wolfram-Kapillare als Debrismitigation verwendet. Das maximale Signal-Rausch-Verhältnis liegt bei  $SNR = 14$ . Durch das stark absorbierende Schichtsystem der Probe beträgt der Kontrast der ca. 600 nm breiten Schicht  $C = 0,81$ . Bei den schmaleren Strukturen sinkt dieser auf  $C = 0,58$  bei einer Breite von 55 nm und  $C = 0,4$  bei 40 nm.

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop



**Abbildung 5.19:** Mit der MZP3 aufgenommene FIB-Teststrukturen; Quelle: 400 Hz Repetitionsrate, 15 J Pulsenergie. Die Belichtungszeit beträgt eine Minute. Der Kontrast der kleinsten Schnitte mit einer Breite von 40 nm beträgt  $C = 0,4$ . Ein Intensitätsprofil bestätigt die aus Abb. 5.17 erreichte räumliche Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium von 37 nm.

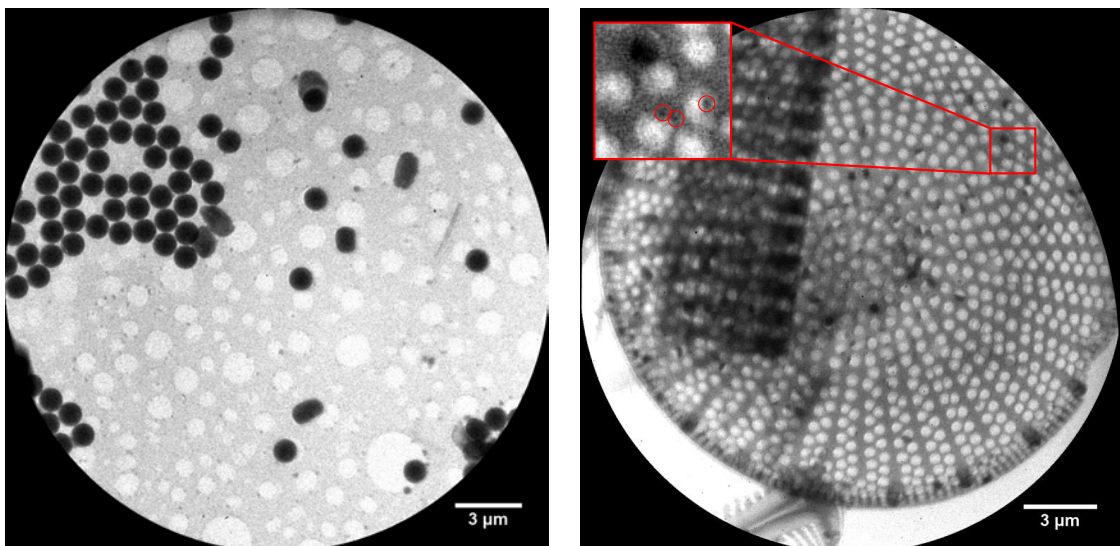


**Abbildung 5.20:** Intensitätsprofil der in Abb. 5.19 markierten Kante und ein nichtlinearer Fit der Messdaten (links). Rechts ist die nach Gleichungen 2.14 und 2.15 ermittelte, eindimensionale Übertragungsfunktion der beiden Profile dargestellt. Die aus den Bilddaten direkt ermittelten Kontraste der feinen Spalte (55 nm und 40 nm) liegen oberhalb der MTF-Kurven. Details siehe Text.

Diese lassen sich noch klar in der Aufnahme erkennen. Das dargestellte Intensitätsprofil einer 40 nm breiten Struktur bestätigt die beim Siemensstern erreichte räumliche Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium von 37 nm (vgl. Abb. 5.17). An der markierten Kante im Bild wird ein weiteres, über eine Breite von zehn Pixeln gemitteltes, Intensitätsprofil erstellt (Abbildung 5.20, links). Gleichzeitig ist ein nichtlinearer Fit an die Messdaten dargestellt.

Aus diesem Profil wird mit Hilfe der Gleichungen 2.14 und 2.15 die eindimensionale Modulationsübertragungsfunktion der Abbildung errechnet. Abbildung 5.20 (rechts) zeigt den Verlauf für die Messdaten und deren Fit. Es ist zu erkennen, dass die MTF der Messdaten über der MTF der angepassten Daten verläuft. Beide Kurven liegen jedoch unterhalb der aus den Bildinformationen ermittelten Kontrastwerte für die feinen Spalte mit einer Breite von 55 nm und 40 nm. Demnach sind die angegebenen MTF-Kurven möglicherweise nicht repräsentativ für die Abbildungsleistung des Mikroskops. Eventuell zeigt der 600 nm Spalt der Probe einen leicht konischen Verlauf oder eine erhöhte Kantenrauheit auf. Da die berechnete MTF von einer perfekten Kante ausgeht, kann diese nicht den realen Verlauf wiedergeben (vgl. Kapitel 2.4).

Abbildung 5.21 zeigt Aufnahmen von Palladium/Platin beschatteten Latexkugeln mit einem Durchmesser von 1  $\mu\text{m}$  (links), welche in eine Polymerschicht eingebettet sind, und eine mit 50 nm Goldkugeln präparierte Diatomee (rechts) auf einer Siliziumnitrid-Membran. Die Vergrößerung beträgt 989 bei den Latexkugeln und 1097 bei der Diatomee. Beide Proben wurden eine Minute lang belichtet. Für die Latexkugeln wurde das Glas-Kapillarsystem als Debrismitigation verwendet, bei der Diatomee die Wolfram-Kapillare. Die Quellparameter sind 11 J bei 300 Hz (Latexkugeln) und 20 J bei 400 Hz (Diatomee). Durch die hohe Transmission der Wolfram-Kapillare und die höhere Pulsenergie und Repetitionsrate ist das Signal-Rausch-Verhältnis bei der Diatomee von  $SNR = 15,5$  doppelt so groß wie bei den Latexkugeln ( $SNR = 7,6$ ). In Kapitel 5.4.3 werden die Debrismitigationssysteme genauer



**Abbildung 5.21:** Aufnahmen von Palladium/Platin beschatteten Latexkugeln mit 1  $\mu\text{m}$  Durchmesser bei 989-facher Vergrößerung (links, [100]) und eine mit 50 nm Goldkugeln präparierte Diatomee (rechts,  $V = 1097$ ). Die Belichtungszeit beträgt jeweils eine Minute, Pulsenergie und Repetitionsrate liegen bei 11 J und 300 Hz (Latexkugeln) und 20 J bei 400 Hz (Diatomee). Im vergrößerten Ausschnitt der Diatomee sind einzelne Goldkugeln erkennbar.

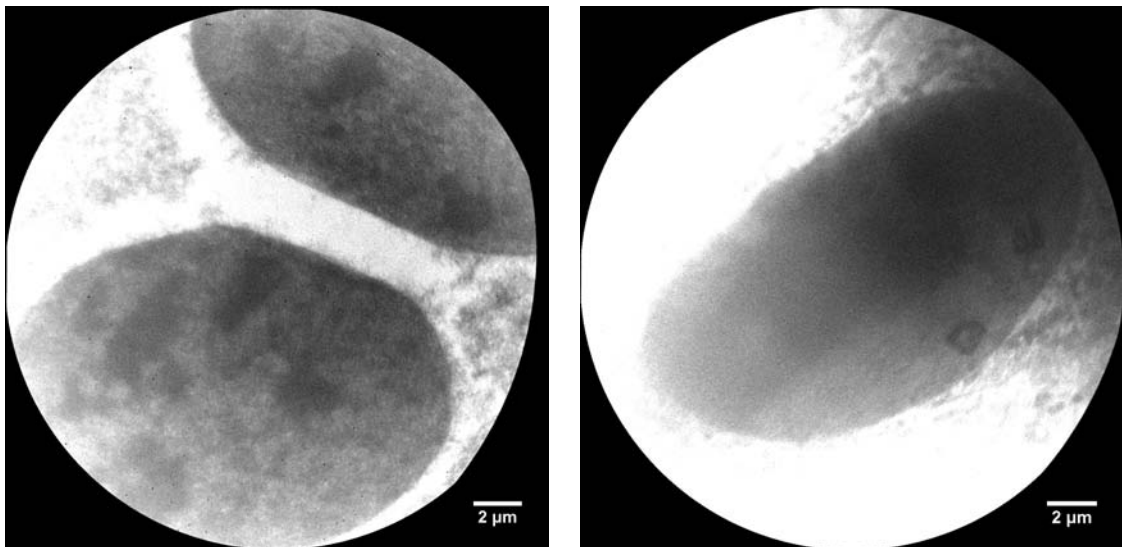
## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

---

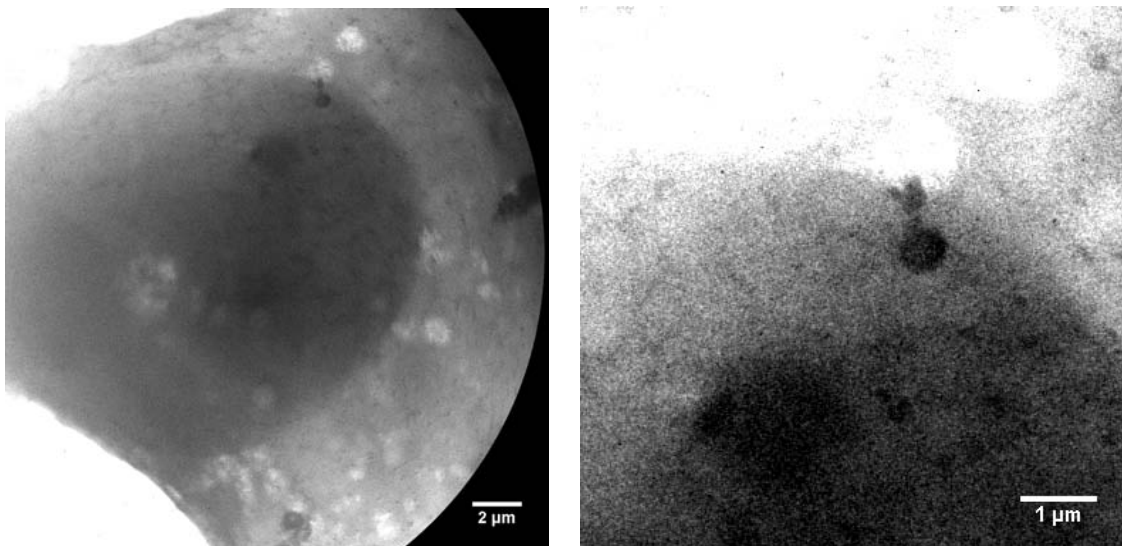
miteinander verglichen. Die Beschattung der Latexkugeln liefert einen sehr guten Kontrast von  $C = 0,7$  im Vergleich zu dem Ergebnis der unbeschichteten Kugeln an der LIP-Quelle bei  $\lambda = 2,48 \text{ nm}$  ( $C = 0,28$ ). Die Kontrastunterschiede zwischen der Diatomee ( $C = 0,28$ ) und den in den Zwischenräumen angesiedelten Goldkugeln ( $C = 0,44$ ) ermöglichen eine eindeutige Lokalisierung der Partikel innerhalb der Diatomee. Hier ist jedoch zu beachten, dass der Kontrast aus einer Ansiedlung mehrerer Goldkugeln resultiert. Im vergrößerten Ausschnitt ist dies deutlich zu erkennen. Einzelne Kugeln (kreisförmig markiert) liefern nur einen Kontrast von  $C = 0,23$ . Dennoch ist dieser Wert ca. 10...20 % größer als vergleichbare Aufnahmen an Synchrotron-basierten Mikroskopen zeigen [155]. Hauptsächlich ist dies durch die größere Arbeitswellenlänge und der damit verbundenen, stärkeren Absorption von Gold begründet. Funktionelle Bildgebung mit Hilfe von Kolloid-Gold, wie beispielsweise die Lokalisierung bestimmter Proteine innerhalb einer Zelle [156], ist generell auch mit dem Labor-Mikroskop möglich. Weiterführende Experimente dazu stehen noch aus.

In den nachfolgenden Abbildungen (5.22 und 5.23) sind röntgenmikroskopische Aufnahmen von chemisch fixierten Zellen (vgl. Kapitel 5.2.2) zusammengefasst. Abbildung 5.22 zeigt zwei Aufnahmen von Fibroblasten einer Ratte bei 1097-facher Vergrößerung. Die Pulsenergie beträgt 15 J bei 400 Hz Repetitionsrate. Die Wolfram-Kapillare ist als Debrismitigation eingesetzt worden. Im linken Bild sind zwei Zellkerne zu erkennen, in denen sich mehrere Kernteilchen (Nucleoli) durch ihre starke Absorption vom Zellkern hervorheben. Das Signal-Rausch-Verhältnis liegt bei etwa  $SNR = 20$ , der maximale Kontrast bei  $C = 0,72$ . Durch die etwas dickere Zellmembran ist die Zelle im rechten Bild 30 s länger belichtet worden, das Signal-Rausch-Verhältnis beträgt  $SNR = 17$ . Im Gegensatz zur linken Aufnahme sind hier nur zwei ringförmige Objekte innerhalb des Zellkerns zu erkennen. Der Kern ist zudem etwas schmaler, was vermuten lässt, dass es sich um zwei verschiedene Zelltypen handelt. Abbildung 5.23 zeigt eine HeLa-TK-Zelle bei gleichen Quellparametern. Da die Zellmembran wie im Falle von Abbildung 5.22 (rechts) stärker absorbiert, wurde auch hier 90 s belichtet. Das maximale Signal-Rausch-Verhältnis beträgt  $SNR = 23,2$  bei einem Kontrast von  $C = 0,68$ . Im rechten Teil der Abbildung ist ein vergrößerter Ausschnitt vom oberen Teil des Zellkerns dargestellt. Die Intensitätsskalierung ist an die Kontrastverhältnisse angepasst. Dadurch werden unter anderem fadenförmige Strukturen sichtbar. Bei diesen handelt es sich um Chromosomen, die durch die spezielle Präparation aus dem Zellkern ausgetreten und dadurch auch innerhalb der Zellmembran sichtbar sind.

Um die gezeigten Bilder scharf abbilden zu können mussten mehrere Aufnahmen durchgeführt werden. Inwieweit die Zellen während der Bestimmung der optimalen Fokusslage durch die Strahlung geschädigt wurden, konnte nicht überprüft werden. Während der Experimente sind in den verschiedenen Aufnahmen keine sichtbaren Degradierungen aufgetreten. Weitere Aufnahmen von biologischen Zellen, die mit dem Mikroskop an der elektrischen Entladungsquelle aufgenommen wurden, sind in [126, 145] zu finden.



**Abbildung 5.22:** 1097-fach vergrößerte Aufnahmen von Fibroblasten einer Ratte, aufgenommen bei einer Pulsenergie von 15 J und 400 Hz Repetitionsrate. Die Belichtungszeit beträgt eine Minute (links) und 90 s (rechts).

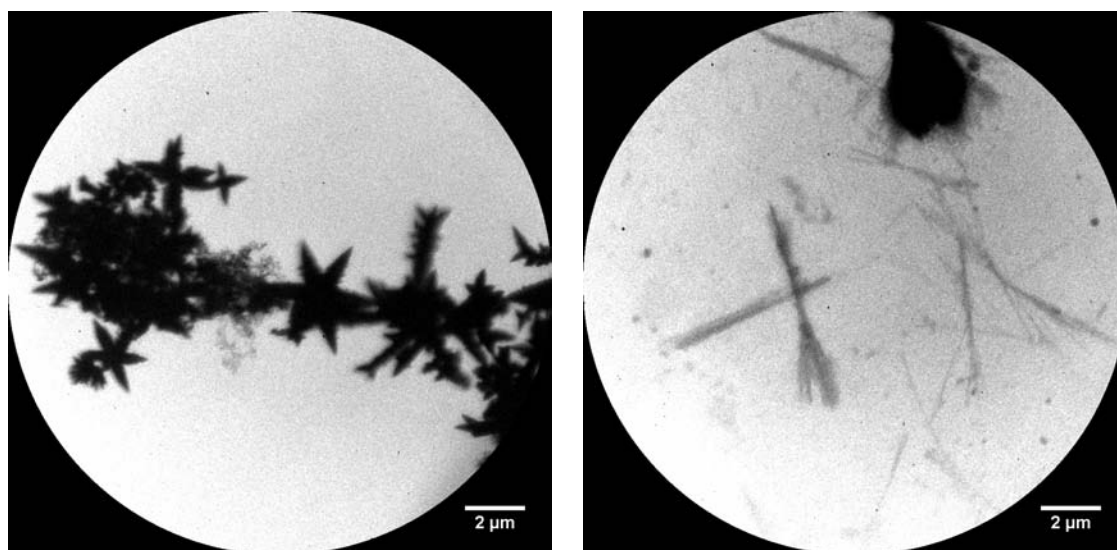


**Abbildung 5.23:** HeLa-TK-Zelle mit einer Vergrößerung von 1097. Aufgenommen bei 15 J und 400 Hz innerhalb von 90 s. Links ist der gesamte Zellkern dargestellt, rechts ein vergrößerter Ausschnitt vom oberen Teil des Zellkerns. Durch eine angepasste Skalierung der Intensität lassen sich weitere Details erkennen.

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

Neben den bisher gezeigten Aufnahmen sind erste Experimente für eine spezielle Anwendung eines Labor-Röntgenmikroskops durchgeführt worden. Dabei handelt es sich um Aufnahmen von vielfach verzweigten Nanokristallen und Nanoröhren, die die Herstellung von organischem Halbleitermaterial mit speziellen elektrischen Eigenschaften ermöglichen. Beispielsweise lassen sich damit organische Solarzellen herstellen, welche bei einer Strahlungsleistung von  $1000 \text{ W/cm}^2$  einen Wirkungsgrad von 1,7 % erreichen [157, 158]. Die Effektivität eines organischen Halbleiters ist maßgeblich von der Form der Nanostrukturen abhängig. Sie können durch Selbstorganisation in einem flüssigen Medium erzeugt werden und lassen sich kostengünstig auf großen Flächen herstellen [159]. Allerdings sind deren Entstehungs- und Wachstumsprozesse, welche in einem Zeitraum von einigen zehn Minuten bis Stunden ablaufen, noch nicht vollständig verstanden. Dafür ist ein zeitlich und räumlich hochauflösendes mikroskopisches Verfahren erforderlich. TEM ist durch die geringe Eindringtiefe von Elektronen in das wässrige Medium dazu nicht geeignet. Ebenso sind lichtmikroskopische Verfahren aufgrund der erforderlichen räumlichen Auflösung nicht einsetzbar. Mit einer geeigneten Nasskammer bietet die Labor-Röntgenmikroskopie die Möglichkeit die Entstehungsprozesse zeitaufgelöst zu beobachten. Je nach erforderlicher Auflösung und Probendicke sind auch tomographische Verfahren denkbar, die eine übersichtlichere Darstellung der komplex verzweigten Strukturen erlauben.

In einem ersten Vorversuch werden PbS-Nanokristalle und CdTe-Nanoröhren röntgenmikroskopisch untersucht. Die Proben wurden von der Universität Michigan (USA) auf Siliziumnitrid-Membranen präpariert und getrocknet. Abbildung 5.24 zeigt die Aufnahmen bei 1097-facher Vergrößerung und einer Minute Belichtungszeit. Die Quellparameter sind



**Abbildung 5.24:** Aufnahmen von PbS-Nanokristallen und CdTe-Nanoröhren bei 1097-facher Vergrößerung. Die Belichtungszeit beträgt jeweils eine Minute, Pulsenergie und Repetitionsrate liegen bei 15 J und 400 Hz.

15 J Pulsenergie und 400 Hz Repetitionsrate. Das  $SNR$  der Aufnahmen liegt bei etwa 14. Der maximale Kontrast der PbS-Kristalle beträgt  $C = 0,76$  und  $C = 0,69$  für die CdTe-Nanoröhren, wobei der Kontrast einer einzelnen Röhre bei  $C < 0,05$  liegt. Dennoch lassen sich auch einzelne Röhren und deren dicht verzweigte Strukturen in der Mitte der Aufnahme erkennen. Prinzipiell ist das Labor-Röntgenmikroskop für die Abbildung solcher Nanostrukturen geeignet. Der erzielte Kontrast und das hohe  $SNR$  sind vielversprechende Faktoren für eine Abbildung in wässriger Umgebung. Hier sind Belichtungszeiten im Bereich von fünf Minuten zu erwarten. Validierende Experimente von wässrigen Proben in einer geeigneten Nasskammer sind für die Zukunft geplant.

### 5.4.3 Diskussion der Ergebnisse

Die Belichtungszeit für eine röntgenmikroskopische Aufnahme mit einem hohen Signal-Rausch-Verhältnis hängt stark vom Objekt und der zu erreichenden räumlichen Auflösung ab. Die wichtigsten Bildparameter der an der laserinduzierten Plasmaquelle erzielten Aufnahmen sind in Tabelle 5.4 zusammengefasst. Da der Beugungswirkungsgrad der verwendeten Zonenplatte nicht bekannt ist, wurde für die Berechnung der Photonenzahlen in der Objektebene ein BWG von 7% angenommen. Die Ausleuchtung der Mikrozonensplatte wird dabei nicht berücksichtigt.

**Tabelle 5.4:** Auflistung der röntgenmikroskopischen Aufnahmen an der laserinduzierten Plasmaquelle bei 100 mJ Pulsenergie und 100 Hz Repetitionsrate. Angegeben sind: Wellenlänge  $\lambda$ , Vergrößerung  $V$ , Belichtungszeit  $t_{\text{bel}}$ , Signal-Rausch-Verhältnis  $SNR$ , maximaler Kontrast  $C_{\text{max}}$  und die berechnete Intensität  $I$  in der Objektebene unter Annahme einer Mikrozonensplatte mit 7% Beugungswirkungsgrad.

Objekt	Bild	$\lambda$ <i>nm</i>	$V$	$t_{\text{bel}}$ <i>s</i>	$SNR$	$C_{\text{max}}$	$I$ $\frac{\text{Photonen}}{\text{s} \cdot \mu\text{m}^2}$
Latex-Kugeln	5.12	2,48	567	600	21,77	0,24	$1,5 \cdot 10^4$
Diatomeen	5.12	2,48	592	600	21,86	0,84	$1,9 \cdot 10^4$
Diatomeen	5.13	2,48	1007	1800	25,63	0,77	$2,1 \cdot 10^4$
Siemensstern	5.15	2,88	971	120	8,27	0,44	$2,7 \cdot 10^4$

Betrachtet man die in Abschnitt 5.1.1 gemessenen maximalen Photonenzahlen in der Objektebene ( $Ly\text{-}\alpha$ -Linie:  $3,9 \cdot 10^4$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  und  $He\text{-}\alpha$ -Linie:  $2,5 \cdot 10^4$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$ ), ist zu erkennen, dass die Aufnahmen bei  $\lambda = 2,48$  nm nur etwa die Hälfte des Wertes erreicht haben. Instabilitäten der Quelle, die auf eine Erwärmung des Düsensystems zurückzuführen

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

---

sind, verursachen bei Belichtungszeiten  $> 10$  Minuten eine starke Abnahme des mittleren Photonenflusses. Bei der Aufnahme des Siemenssterns stimmt die berechnete Photonenzahl mit der in Abschnitt 5.1.1 gemessenen gut überein. Der theoretische Kontrast des Siemenssterns beträgt unter Berücksichtigung der verschiedenen Schichten (vgl. Abschnitt 5.2.1) bei  $2,88 \text{ nm}$  Wellenlänge  $C = 0,49$  [14]. Dieser Wert kann bei der mikroskopischen Abbildung nicht ganz erreicht werden, der maximale Kontrast liegt bei  $C = 0,44$ . Eventuell ist die Angabe der einzelnen Schichtdicken des Siemenssterns ungenau, oder im optischen Aufbau vorhandenes Streulicht vermindert den Kontrast.

In Tabelle 5.5 sind die Ergebnisse der elektrischen Entladungsquelle zusammengefasst. Hier ist ein Vergleich der in Abschnitt 5.1.2 gemessenen Photonenzahlen schwierig, da die Intensität pro Puls nicht linear mit der Pulsenergie steigt und bei höheren Repetitionsraten nicht konstant ist. Bei  $18 \text{ J}$  Pulsenergie und  $700 \text{ Hz}$  wurden unter Verwendung der Wolfram-Kapillare  $3,1 \cdot 10^5 \text{ Photonen}/(\mu\text{m}^2\text{s})$  gemessen (vgl. Tabelle 5.2, S. 79). Die röntgenmikroskopischen Aufnahmen mit der Glas-Kapillare liefern generell kleinere Werte von  $< 2,1 \cdot 10^5 \text{ Photonen}/(\mu\text{m}^2\text{s})$ , was mit den in Abschnitt 5.1.2 gemachten Angaben ( $T_{\text{Glas}} = 0,33$  und  $T_{\text{Wolfram}} = 0,5$ ) gut übereinstimmt. Unter Verwendung der Wolfram-Kapillare werden jedoch auch Photonenzahlen  $> 5,4 \cdot 10^5 \text{ Photonen}/(\mu\text{m}^2\text{s})$  bei geringerer Repetitionsrate erreicht. Da die Experimente während verschiedener Messkampagnen durchgeführt worden sind, können die Werte aufgrund von unterschiedlichen Einstellungen des Kollektors voneinander abweichen. Generell liegen sie mit der Wolfram-Kapillare jedoch über  $1 \cdot 10^5 \text{ Photonen}/(\mu\text{m}^2\text{s})$  und damit etwa eine Größenordnung über den Ergebnissen der LIP-Quelle, was durch die entsprechend kürzeren Belichtungszeiten an der Entladungsquelle bestätigt wird. Auffallend ist, dass der Kontrast des Siemenssterns an der Entladungsquelle bei  $11 \text{ J}$  Pulsenergie geringer ist ( $C = 0,41$ ) als an der laserinduzierten Plasmaquelle ( $C = 0,44$ ). Dies wird durch die niederenergetischen Satelliten-Linien der  $He\text{-}\alpha$ -Emission verursacht, die vom verwendeten Titan-Filter transmittiert werden und so den Kontrast mindern. Bei  $20 \text{ J}$  Pulsenergie sinkt dieser weiter auf  $C = 0,39$ . Dies kann mit einem stärkeren Einfluss der Kontinuumsstrahlung zusammenhängen. Der theoretische Kontrast der FIB-Probe beträgt  $C = 0,65$ , während die röntgenmikroskopische Aufnahme einen stärkeren Kontrast von  $C = 0,82$  liefert. Eventuell ist auch hier die Angabe der Schichtdicken ungenau. Die Dicke der Goldschicht beträgt wahrscheinlich mehr als die vom Hersteller angegebenen  $30 \text{ nm}$ . Die Aufnahme der Diatomee mit  $50 \text{ nm}$  Gold-Kugeln zeigt die Möglichkeit funktioneller Bildgebung in der Kolloidwissenschaft und Zellbiologie auf. Der von den Kugeln erzielte Kontrast konvergiert mit den Ergebnissen von Synchrotron-basierten Mikroskopen [155]. Die ersten Vorversuche der Nanoröhren und vielfach verzweigten Nanokristallen eröffnen ein neues Anwendungsgebiet der Labor-Röntgenmikroskopie. Das hohe Signal-Rausch-Verhältnis der getrockneten Proben zeigt die Möglichkeit auf, die Proben auch in wässriger Umgebung abbilden zu können. Mit einer



Steigerung der Photonenzahlen in der Objektebene wären zudem tomographische Verfahren möglich.

**Tabelle 5.5:** Auflistung der röntgenmikroskopischen Aufnahmen an der Entladungsquelle. Neben den in Tabelle 5.4 angegebenen Werten ist zusätzlich das für die Aufnahme verwendete Debrismitigationssystem (Glas- oder Wolfram-Kapillare), die Pulsenergie  $E_P$  und die Repetitionsrate  $\nu_q$  angegeben.

Objekt	Bild	Debrismitig.	$E_P$	$\nu_q$	$V$	$t_{\text{bel}}$	$SNR$	$C_{\text{max}}$	$I$
			$J$	$Hz$					
Siemensstern	5.17	Glas	11	300	1057	60	8,61	0,41	$6,9 \cdot 10^4$
Siemensstern	5.18	Glas	20	600	1057	20	8,67	0,39	$2,1 \cdot 10^5$
Siemensstern	5.18	Glas	20	600	1057	8	4,49	0,39	$1,4 \cdot 10^5$
FIB-Probe	5.19	Wolfr.	15	400	1097	60	14,14	0,81	$1,4 \cdot 10^5$
Latex-Kugeln Pd/Pt	5.21	Glas	11	300	989	60	7,64	0,70	$6,7 \cdot 10^4$
Diat. mit Au-Kugeln	5.21	Wolfr.	20	400	1097	60	15,47	0,44	$3,4 \cdot 10^5$
Fibroblasten I	5.22	Wolfr.	15	400	1097	60	19,67	0,72	$5,4 \cdot 10^5$
Fibroblasten II	5.22	Wolfr.	15	400	1097	90	17,28	0,82	$2,8 \cdot 10^5$
Hela-TK	5.23	Wolfr.	15	400	1097	90	23,19	0,68	$5,0 \cdot 10^5$
PbS-Kristalle	5.24	Wolfr.	15	400	1097	60	13,08	0,76	$2,4 \cdot 10^5$
CdTe-Röhren	5.24	Wolfr.	15	400	1097	60	14,93	0,69	$3,1 \cdot 10^5$

Die in dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse sind mit denen von Synchrotron-basierten Transmissionsmikroskopen vergleichbar. Während die Arbeitswellenlänge am Synchrotron frei wählbar ist und spektromikroskopische Untersuchungen einfach zu realisieren sind, ist die Wellenlänge eines LIP-basierten Mikroskops durch das Targetmaterial bestimmt. Dennoch ermöglicht der monochromatisierende Kondensator verschiedene Emissionslinien des Targets zu selektieren. Durch einen Austausch der differentiellen Pumpstrecke des Targetsystems mit einer Kühlfalle könnte beispielsweise auch mit einem Ethanol- oder Methanol-Jet als Target gearbeitet werden, wodurch ein Betrieb bei  $\lambda = 3,37 \text{ nm}$  und  $\lambda = 4,03 \text{ nm}$  ( $Ly\text{-}\alpha$ - und  $He\text{-}\alpha$ -Linie von Kohlenstoff) möglich ist. Hierbei könnte das Element Calcium ( $L$ -Absorptionskante bei  $\lambda = 3,58 \text{ nm}$ ) untersucht werden, welches einen wichtigen Mineralstoff in biologischen Organismen darstellt. Aufgrund eines fehlenden Monochromators ist Spektromikroskopie an der elektrischen Entladungsquelle nicht möglich. Zudem ist der Kontrast durch die vorhandenen Satelliten-Linien etwas geringer als am LIP.

Maßgeblich für die Bildqualität in Bezug auf das Signal-Rausch-Verhältnis und die räumliche Auflösung ist die Photonenzahl in der Objektebene. Das *Göttinger Röntgenmikroskop*

## 5 Das Labor-Transmissionsröntgenmikroskop

---

am *BESSY II* stellt maximal  $6 \cdot 10^8$  Photonen/ $(\mu\text{m}^2\text{s})$  bei einer Photonenenergie von 524 eV zur Verfügung [29]. Dieser Photonenfluss reicht aus, um Aufnahmen von wässrigen Proben mit wenigen Sekunden Belichtungszeit und hohem *SNR* zu realisieren und liegt etwa drei Größenordnungen über den gemessenen Photonenzahlen der Entladungsquelle. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass die gezeigten Ergebnisse mit den zur Verfügung stehenden Optiken realisiert worden sind. Durch eine Optimierung der Kondensorkonzepte und die Verwendung von „State of the Art“ Mikrozonplatten mit einer geringeren äußersten Zonenbreite und an die Wellenlänge angepasstem Zonenmaterial zur Erhöhung des Beugungswirkungsgrades bei der Arbeitswellenlänge können die räumliche Auflösung weiter gesteigert und die Belichtungszeiten verkürzt werden. Weiterhin ist eine quellseitige Optimierung des Photonenflusses beider Systeme in einem bestimmten Maße möglich.

Bei der laserinduzierten Plasmaquelle wäre mit Hilfe eines speziell für diesen Verwendungszweck optimierten Lasersystems mit einer höheren Repetitionsrate und mittleren Leistung ein um etwa eine Größenordnung gesteigerter Photonenfluss erreichbar. Inwieweit ein stabiler Betrieb des Flüssigkeitsstrahls bei solch hohen Repetitionsraten möglich ist, muss gerade auch im Hinblick auf die Erwärmung des Düsensystems durch die höhere Strahlungsleistung des Plasmas genauer untersucht werden. Wie bereits in Abschnitt 5.1.1 beschrieben, wäre eine weitere Erhöhung des Photonenflusses in der Objektebene um etwa eine Größenordnung durch die Verwendung einer Kondensorzonenplatte mit einem höheren Beugungswirkungsgrad möglich. Mit den beiden Optimierungen ließe sich damit die Belichtungszeit für eine Aufnahme mit 1000-facher Vergrößerung auf unter 10s verkürzen. Die räumliche Auflösung ist aktuell durch die Mikrozonplatte und eventuell vorhandene Vibrationen auf etwa 70 nm begrenzt. Durch konstruktive Verbesserungen, wie beispielsweise spezielle Vakuumentkopplungsbälge für den Anschluss der Vakuumpumpen, einen schwingungsgedämpften Tisch und die Verwendung einer magnetgelagerten Turbomolekularpumpe für die Targetkammer sind auch hier bessere Ergebnisse zu erwarten.

Die Optimierungsmöglichkeiten der elektrischen Entladungsquelle beziehen sich hauptsächlich auf den Kondensator. Eine Verbesserung der Quellbrillanz bzw. des Photonenflusses durch eine optimierte Elektrodengeometrie oder bessere Stabilität bei Wiederholraten von mehr als einem kHz liegt unter einem Faktor von fünf. Durch die Verwendung eines speziell für den Verwendungszweck optimierten Kollektors mit an der MZP vollständig angepassten numerischen Apertur könnte auch hier die Abbildungsleistung verbessert werden. Erste Ergebnisse mit einem Prototypen zeigen eine deutliche Steigerung des Photonenflusses. Eine endgültige Skalierung lässt auch hier Belichtungszeiten von unter 10s erwarten. Da die beschriebenen Experimente bereits eine nahezu beugungsbegrenzte Auflösung der Mikrozonplatte gezeigt haben, sind hier nur bessere Ergebnisse unter Verwendung einer Zonenplatte mit einer kleineren äußersten Zonenbreite zu erwarten.

Die Handhabung der elektrischen Entladungsquelle bietet einen großen Vorteil. Während für die Inbetriebnahme der laserinduzierten Plasmaquelle zunächst der Kryostat mit flüssigem Stickstoff gefüllt und evakuiert werden muss, ist die elektrische Entladungsquelle sofort einsatzbereit. Die Wartungsintervalle der beiden Quellen liegen in einem vergleichbaren Zeitraum. Erst nach mehreren Millionen Zündungen müssen an der elektrischen Entladungsquelle die einfach zu wechselnden Elektroden ausgetauscht werden. Bei der laserinduzierten Plasmaquelle ist ein Austausch der Glaskapillare des Düsensystems erst nach ca. 100 Betriebsstunden (ca.  $10^7$  Pulse) nötig. Allerdings ist hier der Aufwand deutlich höher als bei der elektrischen Entladungsquelle. Im Hinblick auf die Realisierung eines kommerziellen Labor-Röntgenmikroskops bietet ein Aufbau mit der Entladungsquelle einige Vorteile. Neben der einfachen Handhabung und Bedienbarkeit der Quelle sind auch die laufenden Betriebskosten niedriger, da bei einem LIP hochreines Stickstoffgas und flüssiger Stickstoff für die Kühlung des Kryostaten notwendig sind.



## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Entwicklung eines Transmissionsmikroskops für den Spektralbereich der weichen Röntgenstrahlung beschrieben. Es basiert auf einem abbildenden System mit einer Zonenplatte als Objektiv und einer CCD-Kamera als Detektor und zeichnet sich durch eine modulare und kompakte Bauweise aus. Der adaptive Aufbau ist speziell für die Anwendung an Laborquellen, wie beispielsweise einem laserinduziertes Plasma oder einer elektrischen Entladungsquelle, optimiert worden. Zur Festlegung der verwendbaren Kondensorkonzepte wurden die verschiedenen Quellsysteme im Hinblick auf ihre spektrale Strahldichte und Brillanz charakterisiert und wichtige Parameter wie Quellgröße und Monochromasie der für die Abbildung notwendigen Linienstrahlung untersucht.

Beide Quellsysteme arbeiten mit Stickstoff als Target. Im Falle der laserinduzierten Plasmaquelle handelt es sich dabei um einen flüssigen Stickstoffstrahl, auf den der Laser fokussiert wird. Bei der elektrischen Entladungsquelle wird der Stickstoff im gasförmigen Zustand zwischen zwei Elektroden in Hohlkathoden-Geometrie eingeleitet, und das Plasma mittels einer elektrischen Entladung gezündet. Durch die geringere Plasmatemperatur des elektrischen Durchbruchs steht hier als starke Emissionslinie nur die *He- $\alpha$* -Emission von Stickstoff bei einer Wellenlänge von 2,88 nm zur Verfügung. Dagegen ist an der laserinduzierten Quelle zudem auch die *Ly- $\alpha$* -Linie ( $\lambda = 2,48$  nm) für die Abbildung geeignet, welche bei maximaler Pulsenergie in etwa die gleiche spektrale Strahldichte wie die *He- $\alpha$* -Linie erreicht. Die Emissionslinien liegen damit im höherenergetischen Bereich des Wasserfensters und ermöglichen es hier, durch die hohe Transmission von Wasser, auch dickere biologische Objekte in ihrer wässrigen Umgebung zu untersuchen.

Für die Entwicklung eines geeigneten Kondensorkonzeptes sind Parameter wie eine monochromatische und gleichmäßige Beleuchtung der Objektebene mit einer hohen Intensität und einer angepassten numerischen Apertur von Beleuchtungsoptik und abbildender Optik entscheidend. Mit einem kalibrierten Spalt-Gitter Spektrographen wurden daher Spektren der Quellen zur Bestimmung der spektralen Strahldichte der Emissionslinien aufgenommen. Die maximalen Photonenzahlen der *He- $\alpha$*  Emission liegen für das laserinduzierte Plasma bei  $2,3 \cdot 10^{14}$  Photonen/(sr·s) und  $1,9 \cdot 10^{16}$  Photonen/(sr·s) für die Entladungsquelle. Die Monochromasie der Emissionslinien wurde mit Hilfe einer Off-Axis-Reflexionszonenplatte bestimmt und beträgt in beiden Fällen  $\lambda/\Delta\lambda > 800$ , wodurch keine chromatischen Aberrationen bei der Abbildung mit der Zonenplatte zu erwarten sind. Die

gemessenen Quellgrößen und damit verbundenen Brillanzen der Quellen sind sehr verschieden. Während die mit Hilfe einer Zonenplatte ermittelte Quellgröße des Laser-Plasmas bei ca. 15...20  $\mu\text{m}$  liegt, wurde die Quelle der elektrischen Entladung mittels einer Pinhole-Abbildung auf eine Größe von 1,2...1,4 mm bestimmt. Die maximale Brillanz der Entladungsquelle liegt mit  $1,2 \cdot 10^{10}$  Photonen/(sr·s· $\mu\text{m}^2$ ) etwa zwei Größenordnungen unter der LIP-Quelle ( $1,3 \cdot 10^{12}$  Photonen/(sr·s· $\mu\text{m}^2$ ) für die *He- $\alpha$* -Linie).

Aufgrund der kleinen Quelle bietet sich beim Laser-Plasma an, die Quelle mit einer Kondensorzonenplatte 1:1 in das Objektfeld (20  $\mu\text{m}$ ) abzubilden. Durch die wellenlängenabhängige Brennweite ist damit auch die Möglichkeit der Spektromikroskopie gegeben, bei der nach Subtraktion zweier Aufnahmen mit unterschiedlicher Wellenlänge eine genaue Lokalisierung eines im Objekt befindlichen Elementes mit einer Absorptionskante zwischen den verwendeten Wellenlängen möglich ist (*Element Mapping*). An der Entladungsquelle wird als Kondensator ein rotationssymmetrischer Ellipsoid (Kollektor) verwendet. Die monochromatische Beleuchtung wird mit Hilfe einer Titan-Folie realisiert, die die höherenergetischen heliumähnlichen Emissionslinien und die schwache *Ly- $\alpha$* -Emission absorbiert. Die maximal erreichbaren Intensitäten im Objektfeld liegen bei  $3,9 \cdot 10^4$  Photonen/( $\mu\text{m}^2\text{s}$ ) für das Laser-Plasma und etwa eine Größenordnung darüber ( $3,1 \cdot 10^5$  Photonen/( $\mu\text{m}^2\text{s}$ )) für die Entladungsquelle. Dabei ist die Ausleuchtung im Falle der Entladung durch den großen Fokus des Kollektors mit einem Kontrast von etwa 10 % sehr gleichmäßig. Dagegen liegt der Kontrast bei dem laserinduzierten Plasma bei Pulsenergieen  $> 100$  mJ durch die 1:1 Abbildung der Quelle je nach Wellenlänge zwischen 20 % und 30 %. Durch eine Defokussierung der Kondensorzonenplatte lässt sich diese unter Abnahme des Photonенflusses verbessern.

Um die Leistungsfähigkeit des Aufbaus zu demonstrieren wurden verschiedene lithographische Testobjekte, Latex- und Goldkugeln, Kieselalgen (Diatomeen) und chemisch fixierte Zellen untersucht. Zudem wurden erste Aufnahmen von Nanoröhren und vielfach verzweigten Nanokristallen durchgeführt, wodurch ein spezielles Anwendungsgebiet der Labor-Röntgenmikroskopie aufgezeigt wurde. Die theoretischen Belichtungszeiten aus den vorab ermittelten Photonenzahlen in der Objektebene stimmen mit den röntgenmikroskopischen Aufnahmen gut überein. Durch die 10-fach höhere Intensität ist die Belichtungszeit an der Entladungsquelle entsprechend niedriger. Im Falle der laserinduzierten Plasmaquelle ist die erreichbare räumliche Auflösung (Rayleigh-Kriterium) durch die verwendete Mikrozonplatte und eventuell vorhandene Vibrationen von Vakuumpumpen für den Betrieb des Flüssigkeitsstrahls auf ca. 70 nm begrenzt. An der elektrischen Entladungsquelle konnte nach dem Rayleigh-Kriterium eine Auflösung von 40 nm nachgewiesen werden.

Die Belichtungszeit könnte an beiden Quellen bis in den Sekundenbereich verkürzt werden. An der laserinduzierten Quelle wäre eine Steigerung des Photonенflusses durch die Verwendung eines Lasersystems mit einer höheren Leistung und einer „State of the Art“

---

Kondensorzonenplatte möglich. Bei der elektrischen Entladungsquelle ließe sich die Intensität durch einen stabileren Betrieb bei hohen Repetitionsraten und den Einsatz eines optimierten Kollektors steigern. Im Hinblick auf eine kommerzielle Nutzung wären beide Systeme geeignet. Die Handhabung und Wartung der elektrischen Entladungsquelle bietet hier jedoch Vorteile.

Zukünftige Experimente sollten neben der Steigerung des Photonenflusses in der Objektebene die Implementierung einer Nasskammer vorsehen. Hiermit wäre eine Beobachtung der in wässriger Umgebung wachsenden Nanostrukturen für die Herstellung organischer Halbleiter in Echtzeit möglich. Vorstellbar ist eine einfache Konstruktion mit zwei Siliziumnitrid-Fenstern, zwischen denen sich die Strukturen befinden (vgl. [160]). Je nach Geschwindigkeit des Wachstumsprozesses der Strukturen (einige zehn Minuten bis Stunden) können auch mehrere Aufnahmen aus verschiedenen Winkeln durchgeführt werden um einen dreidimensionalen Eindruck der Gefüge zu erhalten.





## Literaturverzeichnis

- [1] KREMER, B. P.: *Das große Kosmos-Buch der Mikroskopie*. Franckh-Kosmos-Verlags-GmbH & Co., Stuttgart, 2002.
- [2] DONNERT, G., J. KELLER, R. MEDDA, M. A. ANDREI, S. O. RIZZOLI, R. LÜHRMANN, R. JAHN, C. EGGELING und S. W. HELL: *Macromolecular-scale resolution in biological fluorescence microscopy*. Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 103(31):11440–11445, 2006.
- [3] RITTWEGER, E., K. Y. HAN, S. E. IRVINE, C. EGGELING und S. W. HELL: *STED microscopy reveals crystal colour centres with nanometric resolution*. Nature Photonics, 3(3):144–147, 2009.
- [4] MOTOKI, S., C. HAMAMOTO, H. NISHIOKA, Y. OKURA, Y. KONDO und H. JINNAI: *Optimum optical condition of Tomography for thick samples*, Band 1, Kapitel I2.4 Tomography, Seiten 327–328. Springer, 2008.
- [5] FECHNER, P. M.: *Raman-Spektroskopie und atmosphärische Rasterelektronenmikroskopie - Charakterisierung pharmazeutischer Hilfsstoffe*. Doktorarbeit, Universität Halle, 2005.
- [6] FLEGLER, S. L., J. W. HECKMAN und K. L. KLOMPARENS: *Scanning and Transmission Electron Microscopy: An Introduction*. Oxford University Press, USA, 1995.
- [7] CHEN, C. J.: *Introduction to Scanning Tunneling Microscopy*. Oxford University Press, 1993.
- [8] JACOBSEN, C., R. MEDENWALDT und S. WILLIAMS: *A perspective on biological x-ray and electron microscopy*. In: THIEME, J., G. SCHMAHL, E. UMBACH und D. RUDOLPH (Herausgeber): *X-ray Microscopy and Spectromicroscopy*, Band II, Seiten 93–102. Springer-Verlag, Berlin, 1998.
- [9] QUITMANN, C., C. DAVID, F. NOLTING, F. PFEIFFER und M. STAMPANONI (Herausgeber): *9th International Conference on X-Ray Microscopy*, Band 186. IOP, Journal of Physics: Conference Series, 2009.

- [10] MICHETTE, A. G., I. C. E. TURCU, M. S. SCHULZ, M. T. BROWNE, G. R. MORRISON, P. FLUCK, C. J. BUCKLEY und G. F. FOSTER: *Scanning x-ray microscopy using a laser-plasma source*. Rev. Sci. Instrum., 64:1478–1482, 1993.
- [11] RYMELL, L., H. M. HERTZ und L. ENGSTRÖM: *Very-low-debris laser-plasma soft X-ray source for microscopy*. In: ARISTOV, V. V. und A. I. ERKO (Herausgeber): *Proc. X-ray Microscopy IV*, Seiten 365–368. Chernogolovka: Bogorodskii Pechatnik Publishers, 1994.
- [12] NIEMANN, B., D. RUDOLPH, G. SCHMAHL, M. DIEHL, J. THIEME, W. MEYER-ILSE, W. NEFF, R. HOLZ, R. LEBERT, F. RICHTER und G. HERZIGER: *An x-ray microscope with a plasma x-ray source*. Optik, 84:35–36, 1990.
- [13] ADAM, J. F., J. P. MOY und J. SUSINI: *Table-top water window transmission x-ray microscopy: Review of the key issues, and conceptual design of an instrument for biology*. Review of Scientific Instruments, 76:091301, 2005.
- [14] GULLIKSON, E. M.: *X-Ray Interactions With Matter*. [http://henke.lbl.gov/optical\\_constants/](http://henke.lbl.gov/optical_constants/), 2010.
- [15] AGARWAL, B. K.: *X-ray spectroscopy*. Springer-Verlag New York Inc., 1989.
- [16] ATTWOOD, D.: *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation : Principles and Applications*. Cambridge University Press, 1999.
- [17] HENKE, B. L., E. M. GULLIKSON und J. C. DAVIS: *X-ray interactions: Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at  $E = 50\text{--}30,000$  eV,  $Z = 1\text{--}92$* . Atomic Data and Nuclear Data Tables, 54(2):181–342, 1993.
- [18] KOHMURA, Y., K. OKADA, A. TAKEUCHI, H. TAKANO, Y. SUZUKI, T. ISHIKAWA, T. OHIGASHI und H. YOKOSUKA: *High spatial resolution hard X-ray microscope using X-ray refractive lens and phase contrast imaging experiments*. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 467-468(Part 2):881 – 883, 2001.
- [19] COMPTON, A. H.: *The total reflection of X-rays*. Phil. Mag., 45(270):1121–1131, 1923.
- [20] KIRKPATRICK, P. und A. V. BAEZ: *Formation of optical images by X-rays*. J. Opt. Soc. Am., 38:766–774, 1949.
- [21] BAEZ, A. V. und P. KIRKPATRICK: *Design and construction of an x-ray microscope*. Physical Review, 78(1):83, 1950.

- [22] WOLTER, H.: *Spiegelsysteme streifenden Einfalls als abbildende Optiken für Röntgenstrahlen*. Annalen der Physik, 10:94–114, 1952.
- [23] LEHR, J.: *Entwicklung, Charakterisierung und Anwendung von dreidimensionalen Bildgebungsverfahren für die Röntgenmikroskopie*. Doktorarbeit, Universität Göttingen, 1997.
- [24] NIEMANN, B., D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *X-ray microscopy with synchrotron radiation*. Appl. Opt., 15:1883–1884, 1976.
- [25] SCHMAHL, G. und D. RUDOLPH: *Lichtstarke Zonenplatten als abbildende Systeme für weiche Roentgenstrahlung*. Optik, 29(6):577–585, 1969.
- [26] NIEMANN, B., D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *Soft x-ray imaging zone plates with large zone numbers for microscopic and spectroscopic applications*. Opt. Commun, 12:160–163, 1974.
- [27] SCHMAHL, G., D. RUDOLPH, B. NIEMANN, P. GUTTMANN, J. THIEME, G. SCHNEIDER, C. DAVID, M. DIEHL und T. WILHEIN: *X-ray microscopy studies*. Optik, 93(3):95–102, 1993.
- [28] GUTTMANN, P., B. NIEMANN, J. THIEME, D. HAMBACH, G. SCHNEIDER, U. WIESEMANN, D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *Instrumentation advances with the new X-ray microscopes at BESSY II*. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A, 467:849–852, 2001.
- [29] GUTTMANN, P., B. NIEMANN, S. REHBEIN, C. KNÖCHE, G. SCHMAHL und D. RUDOLPH: *The transmission X-ray microscope at BESSY II*. J. Phys. IV, 104:85–90, 2003.
- [30] WEISS, D., G. SCHNEIDER, S. VOGT, P. GUTTMANN, B. NIEMANN, D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *Tomographic imaging of biological specimens with the cryo transmission X-ray microscope*. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A, 467:1308–1311, 2001.
- [31] RARBACK, H., J. M. KENNEY, J. KIRZ, M. R. HOWELLS, P. CHANG, P. J. COANE, R. FEDER, P. J. HOUZEGO, D. P. KERN und D. SAYRE: *Recent results from the Stony Brook scanning microscope*. In: SCHMAHL, G. und D. RUDOLPH (Herausgeber): *X-Ray Microscopy*, Band 43 der Reihe *Springer Series in Optical Sciences*, Seiten 203–215. Springer-Verlag, Berlin, 1984.
- [32] RARBACK, H., D. SHU, S. C. FENG, H. ADE, J. KIRZ, I. McNULTY, D. P. KERN, T. H. P. CHANG, Y. VLADIMIRSKY, N. ISKANDER, D. ATTWOOD, K. McQUAID und

- S. ROTHMAN: *Scanning X-Ray Microscope with 75-nm Resolution*. Rev. Sci. Instrum., 59(52), 1988.
- [33] JACOBSEN, C., S. WILLIAMS, E. ANDERSON, M. T. BROWNE, C. J. BUCKLEY, J. KIRZ, D. KERN, M. RIVERS und X. ZHANG: *Diffraction-limited imaging in a scanning transmission X-ray microscope*. Optics Communications, 86:351–364, 1991.
- [34] JACOBSEN, C., J. KIRZ und S. WILLIAMS: *Resolution in soft x-ray microscopes*. Ultramicroscopy, 47:55–79, 1992.
- [35] SCHMAHL, G. und D. RUDOLPH (Herausgeber): *X-Ray Microscopy*. Springer-Verlag, Berlin, 1984.
- [36] SAYRE, D., M. HOWELLS, J. KIRZ und H. RARBACK (Herausgeber): *X-Ray Microscopy II*. Springer-Verlag, Berlin, 1988.
- [37] MICHETTE, A. G., G. R. MORRISON und C. J. BUCKLEY (Herausgeber): *X-Ray Microscopy III*. Springer-Verlag, Berlin, 1992.
- [38] ARISTOV, V. V. und A. I. ERKO (Herausgeber): *X-Ray Microscopy IV*. Bogorodskii Petchatnik, Chernogolovka, 1994.
- [39] THIEME, J., G. SCHMAHL, D. RUDOLPH und E. UMBACH (Herausgeber): *X-Ray Microscopy and Spectromicroscopy*. Springer-Verlag, Berlin, 1998.
- [40] MEYER-ILSE, W., T. WARWICK und D. ATTWOOD (Herausgeber): *X-Ray Microscopy*. AIP, Melville, 2000.
- [41] SUSINI, J, D. JOYEUX und F. POLACK (Herausgeber): *X-Ray Microscopy*. EDP Sciences, Les Ulis, 2003.
- [42] AOKI, S., Y. KAGOSHIMA und Y. SUSZUKI (Herausgeber): *X-Ray Microscopy*. IPAP, Tokyo, 2006.
- [43] FRÜKE, R.: *Entwicklung eines Rastermikroskopes für den Einsatz an Laborquellen im EUV Spektralbereich*. Doktorarbeit, Bayerische Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2005.
- [44] WIESEMANN, U.: *The Scanning Transmission X-Ray Microscope at BESSY II*. Dissertation, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 2003.
- [45] DENBEAUX, G., P. FISCHER, F. SALMASSI, K. DUNN und J. EVERTSEN: *Reflection Mode Imaging with High Resolution X-ray Microscopy*. eScholarship Repository, 2005.

- [46] BRIZUELA, F., G. VASCHENKO, C. BREWER, M. GRISHAM, C. MENONI, M. MARCONI, J. ROCCA, W. CHAO, J. LIDDLE, E. ANDERSON et al.: *Reflection mode imaging with nanoscale resolution using a compact extreme ultraviolet laser*. Opt. Express, 13:3983–3988, 2005.
- [47] CHAO, W., B. D. HARTENECK, J. A. LIDDLE, E. H. ANDERSON und D. ATTWOOD: *Soft X-ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm*. Nature, 435(7046):1210–1213, 2005.
- [48] CHAO, W., J. KIM, S. REKAWA, P. FISCHER und E. H. ANDERSON: *Demonstration of 12 nm Resolution Fresnel Zone Plate Lens based Soft X-ray Microscopy*. Opt. Express, 17(20):17669–17677, 2009.
- [49] ZERNIKE, F.: *How I discovered phase contrast*. Science, 121(3141):345–349, 1955.
- [50] NOMARSKI, G. und A. R. WEILL: *Application à la métallographie des méthodes interférentielles à deux ondes polarisées*. Rev. Metall, 2:121–128, 1955.
- [51] ALLEN, R. D. und G. B. DAVID: *The Zeiss-Nomarski differential interference equipment for transmitted-light microscopy*. Zeitschrift für wissenschaftliche Mikroskopie und mikroskopische Technik, 69(4), 1969.
- [52] SCHMAHL, G., D. RUDOLPH, P. GUTTMANN, G. SCHNEIDER, J. THIEME und B. NIEMANN: *Phase contrast studies of biological specimens with the x-ray microscope at BES-SY (invited)*. Rev. Sci. Instrum., 66:1282, 1995.
- [53] CHU, Y. S., J. M. YI, F. DE CARLO, Q. SHEN, W. K. LEE, H. J. WU, C. L. WANG, J. Y. WANG, C. J. LIU, C. H. WANG, S. R. WU, C. C. CHIEN, Y. HWU, A. TKACHUK, W. YUN, M. FESER, K. S. LIANG, C. S. YANG, J. H. JE und G. MARGARITONDO: *Hard-x-ray microscopy with Fresnel zone plates reaches 40 nm Rayleigh resolution*. Appl. Phys. Lett., 92(10):103119, 2008.
- [54] WILHEIN, T., B. KAULICH, E. DI FABRIZIO, F. ROMANATO, S. CABRINI und J. SUSINI: *Differential interference contrast X-ray microscopy with submicron resolution*. Appl. Phys. Lett., 78:2082, 2001.
- [55] KAULICH, B., T. WILHEIN, E. DI FABRIZIO, F. ROMANATO, M. ALTISSIMO, S. CABRINI, B. FAYARD und J. SUSINI: *Differential interference contrast X-ray microscopy with twin zone plates*. J. Opt. Soc. Am. A, 19(4):797–806, 2002.
- [56] LINDBLOM, M., T. TUOHIMAA, A. HOLMBERG, T. WILHEIN, H. M. HERTZ und U. VOGT: *High-resolution differential interference contrast X-ray zone plates: Design*

- and fabrication*. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 62(6-7):539 – 543, 2007. A Collection of Papers Presented at the 18th International Congress on X-Ray Optics and Microanalysis (ICXOM 2005).
- [57] HOFSTEN, O. VON, M. BERTILSON, M. LINDBLOM, A. HOLMBERG, H. M. HERTZ und U. VOGT: *Compact phase-contrast soft X-ray microscopy*. Journal of Physics: Conference Series, 186:012038 (3pp), 2009.
- [58] SCHMAHL, G., D. RUDOLPH, G. SCHNEIDER, P. GUTTMANN und B. NIEMANN: *Phase contrast X-ray microscopy studies*. Optik, 97(4):181–182, 1994.
- [59] GOODMAN, J. W.: *Introduction to Fourier optics*. Roberts & Company Publishers, 2005.
- [60] BOREMAN, G. D.: *Modulation transfer function in optical and electro-optical systems*. SPIE Press, Bellingham, WA, 2001.
- [61] CHAO, W.: *Resolution characterization and nanofabrication for soft X-ray zone plate microscopy*. Doktorarbeit, University of California, Berkeley, 2005.
- [62] SAYRE, D., J. KIRZ, R. FEDER, D. M. KIM und E. SPILLER: *Transmission microscopy of unmodified biological materials: comparative radiation dosages with electrons and ultrasoft x-ray photons*. Ultramicroscopy, 2(4):337–349, 1977.
- [63] SAYRE, D., J. KIRZ, R. FEDER, D. M. KIM und E. SPILLER: *Potential operating region for ultrasoft X-ray microscopy of biological materials*. Science, 196(4296):1339–1340, 1977.
- [64] SAYRE, D. und H. N. CHAPMAN: *X-ray microscopy*. Acta Crystallographica Section A: Foundations of Crystallography, 51(3):237–252, 1995.
- [65] SCHNEIDER, G.: *Cryo X-ray microscopy with high spatial resolution in amplitude and phase contrast*. Ultramicroscopy, 75(2):85, 1998.
- [66] ECHLIN, P.: *Low-temperature microscopy and analysis*. Plenum Press, 1992.
- [67] MEYER-ILSE, W., D. HAMAMOTO, A. NAIR, S. A. LELIEVRE, G. DENBEAUX, L. JOHNSON, A. L. PEARSON, D. YAGER, M. A. LEGROS und C. A. LARABELL: *High resolution protein localization using soft X-ray microscopy*. Journal of Microscopy, 201(3):395–403, 2001.
- [68] WILLIAMS, S., X. ZHANG, C. JACOBSEN, J. KIRZ, S. LINDAAS, J. VAN’T HOF und S. S. LAMM: *Measurements of wet metaphase chromosomes in the scanning transmission X-ray microscope*. Journal of Microscopy, 170:155–165, 1993.

- [69] MICHETTE, A. G.: *Optical Systems for soft X-Rays*. Plenum Press, New York, London, 1986.
- [70] CITTERIO, O., M. GHIGO, F. MAZZOLENI, G. PARESCHI, G. PARODI, H. W. BRAEU-  
NINGER, W. BURKERT und G. D. HARTNER: *Development of soft and hard X-ray  
optics for astronomy: progress report II and considerations on material properties for  
large-diameter segmented optics of future missions*. In: *Proc. SPIE*, Band 4496, Seiten  
23–40, 2002.
- [71] CHON, K. S., Y. NAMBA und K. H. YOON: *Single-Point Diamond Turning of As-  
pheric Mirror with Inner Reflecting Surfaces*. *Key Engineering Materials*, 364(1):39,  
2008.
- [72] HUDEC, R., L. PINA und A. V. INNEMAN: *Replicated grazing incidence x-ray optics:  
past, present, and future*. In: *Proceedings of SPIE*, Band 3766, Seite 62, 1999.
- [73] SPILLER, E.: *Soft x-ray optics*. SPIE Optical Engineering Press, Bellingham, 1994.
- [74] SOUFLI, R., E. SPILLER, B. B. KAUFMANN, M. A. SCHMIDT, J. C. DAVIDSON,  
R. F. GRABNER, E. M. GULLIKSON, S. MROWKA, C. MONTCALM und J. A. FOL-  
TA: *Characterization of curved multilayer optics for an extreme ultraviolet lithography  
projection system*. In: *Proc. SPIE*, Band 4343, Seiten 4343–07, 2000.
- [75] BRAUN, S., P. GAWLITZA, M. MENZEL, S. SCHÄDLICH und A. LESON: *High-Precision  
Multilayer Coatings and Reflectometry for EUV Lithography Optics*. In: CHOI, J.-Y.  
und S. RAH (Herausgeber): *Synchrotron Radiation Instrumentation*, Band 879 der  
Reihe *American Institute of Physics Conference Series*, Seiten 1482–1485, 2007.
- [76] STOLLBERG, H., S. YULIN, P. A. C. TAKMAN und H. M. HERTZ: *High-reflectivity  
Cr/Sc multilayer condenser for compact soft x-ray microscopy*. *Rev. Sci. Instrum.*,  
77:123101, 2006.
- [77] JOHANSSON, G.: *Compact Soft X-Ray Microscopy*. Royal Institute of Technology,  
Stockholm, 2003.
- [78] YULIN, S., T. FEIGL, N. BENOIT, M. PERSKE, E. TARACHEVA, S. SCHRÖDER,  
V. NESTERENKO, N. KAISER und F. PUBLICA: *Hochreflektierende EUV/ Röntgen-  
Mehrschichtspiegel*. *Photonik*, 2:48–50, 2008.
- [79] YULIN, S., V. NESTERENKO, T. FEIGL und N. KAISER: *Collector optics for the water  
window*. to be published, 2010.
- [80] LEGALL, H., H. STIEL und G. BLOBEL: *Persönliche Nachricht.* , 2010.

- [81] KIRZ, J., C. JACOBSEN und M. HOWELLS: *Soft X-ray microscopes and their biological applications*. Q. Rev. Biophys, 28:33–130, 1995.
- [82] BORN, M. und E. WOLF: *Principles of optics*. Cambridge University Press, 7. Auflage, 1999.
- [83] WILHEIN, T., S. REHBEIN, D. HAMBACH, M. BERGLUND, L. RYMELL und H. M. HERTZ: *A slit grating spectrograph for quantitative soft x-ray spectroscopy*. Rev. Sci. Instrum., 70:1694–1699, 1999.
- [84] HAMBACH, D.: *Elektronenstrahlolithographische Herstellung von Reflexionszonenplatten für die Plasmadiagnostik im weichen Röntgenbereich*. Diplomarbeit, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 1997.
- [85] HECHT, E.: *Optics*. Addison-Wesley, San Francisco, 2002.
- [86] SCHNOPPER, H. W., L. P. VAN SPEYBROECK, J. P. DELVAILLE, A. EPSTEIN, E. KALLNE, R. Z. BACHRACH, J. DIJKSTRA und L. LANTWARD: *Diffraction grating transmission efficiencies for XUV and soft x rays*. Appl. Opt., 16(1088):276, 1977.
- [87] KIRZ, J.: *Phase zone plates for X rays and the extreme UV*. J. Opt. Soc. Am., 64:301–309, 1974.
- [88] HAMBACH, D.: *Nanostrukturen mit hohem Aspektverhältnis als lichtstakre diffraktive Röntgenoptiken für hohe Beugungsordnungen*. Doktorarbeit, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 2001.
- [89] SCHNEIDER, G.: *Zone plates with efficiency in high orders of diffraction described by dynamic theorie*. Appl. Phys. Lett., 71:2242, 1997.
- [90] HOLMBERG, A., S. REHBEIN und H. M. HERTZ: *Nano-fabrication of condenser and micro-zone plates for compact X-ray microscopy*. Microelectronic Engineering, 73:639–643, 2004.
- [91] WIELAND, M.: *Entwicklung hochauflösender röntgenoptischer Verfahren für Hohe-Harmonische-Strahlung im extrem ultravioletten Spektralbereich*. Doktorarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2004.
- [92] WILHEIN, T., D. ALTENBERND, U. TEUBNER, E. FÖRSTER, R. HÄSSNER, W. THEOBALD und R. SAUERBREY: *X-ray brilliance measurements of a subpicosecond laser plasma using an elliptical off-axis reflection zone plate*. J. Opt. Soc. Am. B, 15(3):1235–1241, 1998.



- [93] WIELAND, M., M. FAUBEL, M. SCHMIDT, U. VOGT und T. WILHEIN: *Soft x-ray and EUV emission from cryogenic liquid jets irradiated with fs, ps, and ns laser pulses*. In: KYRALA, G. A. und J.-C. J. GAUTHIER (Herausgeber): *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Band 4504 der Reihe *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, Seiten 62–68, 2001.
- [94] WALTER, K.: *Auslegung und Charakterisierung eines Extrem-Ultraviolett-Transmissionsmikroskops*. Doktorarbeit, RWTH Aachen, 2005.
- [95] SCHÄFER, D., U. WIESEMANN, T. NISIUS und T. WILHEIN: *Degradation of thin-film filters irradiated by debris emission of a laser induced plasma*. Band 7361, Seite 73610V. SPIE, 2009.
- [96] WILHEIN, T.: *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendungen im Bereich weicher Röntgenstrahlung*. Dissertation, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 1994.
- [97] PRINCETON INSTRUMENTS: *PI-SX: 1300 Rev. C1 Specification Datasheet*.
- [98] WIDENHORN, R., M. M. BLOUKE, A. WEBER, A. REST und E. BODEGOM: *Temperature dependence of dark current in a CCD*. In: *Proc. SPIE*, Band 4669, Seiten 193–201, 2002.
- [99] THOMPSON, A., D. ATTWOOD, E. GULLIKSON, M. HOWELLS, K. J. KIM, J. KIRZ, J. KORTRIGHT, I. LINDAU, P. PIANATTA, A. ROBINSON, J. SCOFIELD, J. UNDERWOOD, D. VAUGHAN, G WILLIAMS und H. WINICK: *X-ray data booklet*. Lawrence Berkeley National Laboratory, 2001.
- [100] BENK, M., K. BERGMANN, D. SCHÄFER und T. WILHEIN: *Compact soft x-ray microscope using a gas-discharge light source*. *Opt. Lett.*, 33(20):2359–2361, 2008.
- [101] WIELAND, M., C. SPIELMANN, U. KLEINEBERG, T. WESTERWALBESLOH, U. HEINZMANN und T. WILHEIN: *Toward time-resolved soft X-ray microscopy using pulsed fs-high-harmonic radiation*. *Ultramicroscopy*, 102(2):93–100, 2005.
- [102] HORA, H.: *Laser Plasma Physics: forces and the nonlinearity principle*. SPIE Press, 2000.
- [103] TURCU, I. C. E. und J. B. DANCE: *X-rays from laser plasmas: generation and applications*. Wiley-VCH, 1998.

- [104] KELDYSH, L. V.: *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*. Soviet Physics JETP, 20:1307–1314, 1965.
- [105] KRYSZEK, M.: *Optische Strahlung und deren Messung*. In: NIEDRIG, H. (Herausgeber): *Bergmann-Schäfer: Lehrbuch der Experimentalphysik*, Band 3 der Reihe *Optik*, Seiten 609–663, Berlin, New York, 1993. Walter de Gruyter.
- [106] SEIDEL, J. und B. WENDE: *Plasmen*. In: RAITH, E. (Herausgeber): *Bergmann-Schäfer: Lehrbuch der Experimentalphysik*, Band 5 der Reihe *Vielteilchensysteme*. Walter de Gruyter, Berlin, 1992.
- [107] LEBERT, R.: *Pinchplasmen als gepulste Röntgenquelle hoher spektraler Strahldichte*. Doktorarbeit, RWTH Aachen, 1990.
- [108] MEYER-KUCKUK, T.: *Atomphysik*. Teubner, Stuttgart, 5. Auflage, 1997.
- [109] WILHEIN, T., D. HAMBACH, B. NIEMANN, M. BERGLUND, L. RYMELL und H. M. HERTZ: *Off-axis reflection zone plate for quantitative soft x-ray source characterization*. Appl. Phys. Lett., 71:190, 1997.
- [110] SCHRIEVER, G., S. MAGER, A. NAWAED, A. ENGEL, K. BERGMANN und R. LEBERT: *Laser-produced lithium plasma as a narrow-band extended ultraviolet radiation source for photoelectron spectroscopy*. Appl. Opt., 37(7):1243–1248, 1998.
- [111] FIEDOROWICZ, H., A. BARTNIK, R. JAROCKI, M. SZCZUREK und T. WILHEIN: *X-ray emission in the water-window from a nitrogen gas puff target with a nanosecond Nd:Glass laser pulse*. Appl. Phys. B: Lasers and Optics, 67:391–393, 1998.
- [112] FIEDOROWICZ, H., A. BARTNIK, M. HORVATH, L. JUHA, K. JUNGWIRTH, B. KRALIKOVA, J. KRASA, T. MOCEK, M. PFEIFER, L. PINA, J. SKALA, J. ULLSCHMIED und J. WAWER: *Investigation of soft x-ray emission in the water window for microscopy using a double-stream gas puff target irradiated with the Prague Asterix Laser System (PALS)*. In: KHOUNSARY, A. M. und C. A. MACDONALD (Herausgeber): *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Band 4502 der Reihe *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, Seiten 47–54, 2001.
- [113] BERGLUND, M., L. RYMELL, H. M. HERTZ und T. WILHEIN: *Cryogenic liquid-jet target for debris-free laser-plasma soft x-ray generation*. Rev. Sci. Instrum., 69:2361–2364, 1998.

- [114] LEBERT, R., G. SCHRIEVER, T. WILHEIN und B. NIEMANN: *Soft x-ray emission of laser-produced plasmas using low-debris cryogenic nitrogen target*. J. Appl. Phys., 84:3419, 1998.
- [115] WIELAND, M.: *Kryogene Flüssigkeitsstrahlen als Target einer laserinduzierten Plasmaquelle*. Diplomarbeit, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 1999.
- [116] WIELAND, M., U. VOGT, M. FAUBEL, T. WILHEIN, D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *Development and characterization of a soft X-ray source using room-temperature and cryogenic liquid jets as low debris target*. In: *AIP Conference Proceedings*, Band 507, Seite 726, 2000.
- [117] COHERENT INC.: *The Coherent Infinity Nd:YAG Laser System*. Operators Manual, 1998.
- [118] CARR, I. D. und D. C. HANNA: *Performance of a Nd: YAG oscillator/ampflifier with phase-conjugation via stimulated Brillouin scattering*. Appl. Phys. B: Lasers and Optics, 36:83–92, 1985.
- [119] LEBERT, R., C. WIES, B. JAEGLE, L. JUSCHKIN, U. BIEBERLE, M. MEISEN, W. NEFF, K. BERGMANN, K. WALTER, O. ROSIER et al.: *Status of the EUV-lamp development and demonstration of applications*. In: *Proc. SPIE*, Band 5374, Seiten 943–953, 2004.
- [120] JUSCHKIN, L., G. DERRA und K. BERGMANN: *EUV light sources*, Band 2 der Reihe *Low temperature plasmas: fundamentals, technologies and techniques*, Kapitel 24, Seiten 619–654. Wiley-VCH, 2008.
- [121] WOODS, L.C.: *Physics of plasmas*. Wiley-VCH, 2004.
- [122] BERGMANN, K., F. KÜPPER und M. BENK: *Soft x-ray emission from a pulsed gas discharge in a pseudosparklike electrode geometry*. J. Appl. Phys., 103:123304, 2008.
- [123] PANKERT, J., K. BERGMANN, R. WESTER, J. KLEIN, W. NEFF, O. ROSIER, S. SEIWERT, C. SMITH, S. PROBST, D. VAUDREVANGE et al.: *Hollow-Cathode-Triggered Plasma Pinch Discharge*. EUV Sources for Lithography (SPIE Press Book), Seiten 395–411, 2005.
- [124] BERGMANN, K., G. SCHRIEVER, O. ROSIER, M. MÜLLER, W. NEFF und R. LEBERT: *Highly Repetitive, Extreme-Ultraviolet Radiation Source Based on a Gas-Discharge Plasma*. Appl. Opt., 38(25):5413–5417, 1999.

- [125] BOEUF, J. P. und L. C. PITCHFORD: *Pseudospark discharges via computer simulation*. IEEE Transactions on Plasma Science, 19(2):286–296, 1991.
- [126] BENK, M., D. SCHÄFER, T. WILHEIN und K. BERGMANN: *High power soft x-ray source based on a discharge plasma*. Journal of Physics: Conference Series, 186:012024 (3pp), 2009.
- [127] BERGMANN, L., C. SCHAEFER und H. NIEDRIG: *Lehrbuch der Experimentalphysik: Wellen- und Teilchenoptik*. Walter de Gruyter, 2004.
- [128] MÖLLER, T.: *First results from the HASYLAB XUV undulator beamline BW3*. Synchrotron Radiation News, 6(4):16–18, 1993.
- [129] JANSSON, P. A. C., U. VOGT und H. M. HERTZ: *Liquid-nitrogen-jet laser-plasma source for compact soft x-ray microscopy*. Rev. Sci. Instrum., 76(4):043503, 2005.
- [130] VOGT, U., R. FRUEKE, T. WILHEIN, H. STOLLBERG, P. A. C. JANSSON und H. M. HERTZ: *High-resolution spatial characterization of laser produced plasmas at soft x-ray wavelengths*. Appl. Phys. B: Lasers and Optics, 78(1):53–58, 2004.
- [131] BERGLUND, M., L. RYMELL und H. M. HERTZ: *Ultraviolet prepulse for enhanced x-ray emission and brightness from droplet-target laser plasmas*. Appl. Phys. Lett., 69(12):1683–1685, 1996.
- [132] BENK, M.: *in Vorbereitung*. Doktorarbeit, RWTH Aachen, 2010.
- [133] SAEMANN, A. und K. EIDMANN: *Absolute calibration of a flat field spectrometer in the wavelength range 10–70 Å*. Rev. Sci. Instrum., 69(5):1949–1954, 1998.
- [134] MICHETTE, A. G., S. J. PFAUNTSCH, A. K. POWELL, T. GRAF, D. LOSINSKI, C. D. MCFAY, A. MA, G. J. HIRST und W. SHAIKH: *Progress with the King's College Laboratory scanning X-ray microscope*. J. Phys. IV France, 104:123–126, 2003.
- [135] TAKMAN, P. A. C.: *Compact Soft X-Ray Microscopy: Sources, Optics and Instrumentation*. Doktorarbeit, KTH Stockholm, Royal Institute of Technology, 2007.
- [136] BERTILSON, M., O. VON HOFSTEN, J. THIEME, M. LINDBLOM, A. HOLMBERG, P. A. C. TAKMAN, U. VOGT und H. M. HERTZ: *First application experiments with the Stockholm compact soft x-ray microscope*. Journal of Physics: Conference Series, 186:012025 (3pp), 2009.
- [137] BERGLUND, M., L. RYMELL, M. PEUKER, T. WILHEIN und H. M. HERTZ: *Compact water-window transmission x-ray microscopy*. Journal of Microscopy, 197(3):268–273, 2000.

- [138] JOHANSSON, G. A., A. HOLMBERG, H. M. HERTZ und M. BERGLUND: *Design and performance of a laser-plasma-based compact soft x-ray microscope*. Rev. Sci. Instrum., 73:1193, 2002.
- [139] HOSHINO, M. und S. AOKI: *Laser plasma soft x-ray microscope with Wolter mirrors for observation of biological specimens in air*. Japan J. Appl. Phys, 45:989–994, 2006.
- [140] HOSHINO, M. und S. AOKI: *Laboratory-Scale Soft X-ray Imaging Microtomography Using Wolter Mirror Optics*. Applied Physics Express, 1(6):067005, 2008.
- [141] KIM, K. W., Y. M. KWON, K. Y. NAM, J. H. LIM, K. G. KIM, K. S. CHON, B. H. KIM, D. E. KIM, J. KIM, B. N. AHN, H. J. SHIN, S. RAH, K. H. KIM, J. S. CHAE, D. G. GWEON, D. W. KANG, S. H. KANG, J. Y. MIN, K. S. CHOI, S. E. YOON, E. A. KIM, Y. NAMBA und K. H. YOON: *Compact soft x-ray transmission microscopy with sub-50 nm spatial resolution*. Physics in Medicine and Biology, 51(6):N99–N107, 2006.
- [142] KIM, K. W., Y. M. KWON, K. G. KIM, K. Y. NAM, D. W. KANG, S. H. KANG, D. G. GWEON, S. RAH, J. Y. MIN und K. H. YOON: *A New Optical Design for Compact Soft X-ray Microscope*. In: AOKI, S., Y. KAGOSHIMA und Y. SUSZUKI (Herausgeber): *X-Ray Microscopy*. IPAP, Tokyo, 2006.
- [143] RUDOLPH, D., G. SCHMAHL, B. NIEMANN, M. DIEHL, J. THIEME, T. WILHEIN, C. DAVID und K. MICHELMANN: *Wet specimen imaging with an x-ray microscope with a pulsed plasma source*. In: ARISTOV, V. V. und A. I. ERKO (Herausgeber): *Proc. X-ray Microscopy IV*, Seiten 381–386. Chernogolovka: Bogorodskii Pechatnik Publishers, 1994.
- [144] HORNE, S. F., J. SILTERRA und W. HOLBER: *A Compact Soft X-Ray Microscope using an Electrode-less Z-Pinch Source*. Journal of Physics: Conference Series, 186:012028, 2009.
- [145] SCHÄFER, D., M. BENK, K. BERGMANN, T. NISIUS, U. WIESEMANN und T. WILHEIN: *Optical setup for tabletop soft X-ray microscopy using electrical discharge sources*. Journal of Physics: Conference Series, 186:012033 (3pp), 2009.
- [146] GERTHSEN, C.: *Gerthsen Physik*. Berlin Heidelberg, 18 Auflage, 1995.
- [147] HETTWER, M. und D. RUDOLPH: *Fabrication of the x-ray condenser zone plate KZP7*. In: THIEME, J., G. SCHMAHL, D. RUDOLPH und E. UMBACH (Herausgeber): *X-ray Microscopy and Spectromicroscopy*, Seiten IV 21–26. Springer-Verlag, Berlin, 1998.

- [148] REHBEIN, S., A. HOLMBERG, G. A. JOHANSSON, P. A. C. JANSSON und H. M. HERTZ: *Fabrication and characterization of a condenser zone plate for compact x-ray microscopy*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, 22:1118, 2004.
- [149] ARKADIEV, V. A., V. I. BELOGLAZOV, A. A. BZHAUMIKHOV, H.-E. GORNY, N. LANGHOFF, Z. MARGUSHEV, J. SCHMALZ, R. WEDELL und H. WOLFF: *Poly-capillary structure as an x-ray window for differential vacuum pumping*. Band 3444, Seiten 436–442. SPIE, 1998.
- [150] BARTH, R.: *Digital In-Line X-Ray Holographic Microscopy with Synchrotron Radiation*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2008.
- [151] KAYA, Z.: *Entwicklung von neuen nahinfrarot emittierenden Anthrachinonfluoreszenzfarbstoffen und deren Evaluierungen in der angewandten, biologischen Grundlagenforschung*. Doktorarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2008.
- [152] CAVALCANTI-ADAM, E. A., T. VOLBERG, A. MICOULET, H. KESSLER, B. GEIGER und J. P. SPATZ: *Cell spreading and focal adhesion dynamics are regulated by spacing of integrin ligands*. Biophysical journal, 92(8):2964–2974, 2007.
- [153] SCHÄFER, D., N. NISIUS, R. FRÜKE, S. RAUSCH, M. WIELAND, U. VOGT und T. WILHEIN: *Compact x-ray microscopes for EUV- and soft x-radiation with spectral imaging capabilities*. Band 6317, Seite 631704. SPIE, 2006.
- [154] DIEHL, M.: *Abbildungseigenschaften eines Röntgenmikroskops mit gepulster Plasmaquelle*. Doktorarbeit, Universität Göttingen, 1993.
- [155] STOLLBERG, H., P. GUTTMANN, P. A. C. TAKMAN und H. M. HERTZ: *Size-selective colloidal-gold localization in transmission x-ray microscopy*. Journal of Microscopy, 225(1):80–87, 2007.
- [156] VOGT, S., G. SCHNEIDER, A. STEUERNAGEL, J. LUCCHESI, E. SCHULZE, D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *X-ray microscopic studies of the Drosophila dosage compensation complex*. Journal of Structural Biology, 132(2):123–132, 2000.
- [157] HUYNH, W. U., J. J. DITTMER und A. P. ALIVISATOS: *Hybrid nanorod-polymer solar cells*. Science, 295(5564):2425, 2002.
- [158] GUR, I., N. A. FROMER, C. P. CHEN, A. G. KANARAS und A. P. ALIVISATOS: *Hybrid solar cells with prescribed nanoscale morphologies based on hyperbranched semiconductor nanocrystals*. Nano Lett, 7(2):409–414, 2007.

- [159] TANG, Z., N. A. KOTOV und M. GIERSIG: *Spontaneous organization of single CdTe nanoparticles into luminescent nanowires*. Science, 297(5579):237, 2002.
- [160] STOLLBERG, H., M. POKORNY und H. M. HERTZ: *A vacuum-compatible wet-specimen chamber for compact X-ray microscopy*. Journal of Microscopy, 226(1):71–73, 2007.





## Veröffentlichungen

- M. Kruijff, E. J. Heide, S. Dueck, N. Gadhok, M. Kinsner, M. Linden, D. Schäfer, A. Morganti, *Tether Deployment Ground Test for YES2 SpaceMail*, IAF-03-A.P.28, IAF Bremen (2003)
- T. Nisius, D. Schäfer, R. Früke, T. Wilhein, *Wavefront analysis and beam profiling from 40 eV up to 40 keV*, in: *Advances in X-Ray/EUV Optics, Components, and Applications*, Proc. SPIE 6317, 63171E (2006)
- D. Schäfer, T. Nisius, R. Früke, S. Rausch, M. Wieland, U. Vogt, T. Wilhein, *Compact X-ray microscopes for EUV- and soft X-radiation with spectral imaging capabilities*, in: *Advances in X-Ray/EUV Optics, Components, and Applications*, Proc. SPIE 6317, 631704 (2006)
- M. Benk, K. Bergmann, D. Schäfer, T. Wilhein, *Compact soft x-ray microscope using a gas-discharge light source*, *Opt. Lett.* 33, 2359-2361 (2008)
- A. Rosenhahn, F. Staier, T. Nisius, D. Schäfer, R. Barth, C. Christophis, L.-M. Stadler, S. Streit-Nierobisch, C. Gutt, A. Mancuso, A. Schropp, J. Gulden, B. Reime, J. Feldhaus, E. Weckert, B. Pfau, C. M. Günther, R. Könnecke, S. Eisebitt, M. Martins, B. Faatz, N. Guerassimova, K. Honkavaara, R. Treusch, E. Saldin, S. Schreiber, E. A. Schneidmiller, M. V. Yurkov, I. Vartanyants, G. Grübel, M. Grunze, T. Wilhein, *Digital In-line Holography with femtosecond VUV radiation provided by the free-electron laser FLASH*, *Opt. Exp.* 17(10), 8220-8288 (2009)
- D. Schäfer, M. Benk, K. Bergmann, T. Nisius, U. Wiesemann, T. Wilhein, *Optical setup for tabletop soft X-ray microscopy at electrical discharge sources*, in: *Journal of Physics: Conference Series*, 186, 012033 (3pp) (2009)
- M. Benk, D. Schäfer, T. Wilhein, K. Bergmann, *High power soft x-ray source based on a discharge plasma*, in: *Journal of Physics: Conference Series*, 186, 012024 (3pp) (2009)
- D. Schäfer, U. Wiesemann, T. Nisius, T. Wilhein, *Degradation of thin-film filters irradiated by debris emission of a laser induced plasma*, in: *Damage to VUV, EUV, and X-ray Optics II (XDam2)*, Proc. SPIE 7361, 736110V (2009)
- T. Nisius, R. Früke, D. Schäfer, M. Wieland, T. Wilhein, *Applicability of transmissive diffractive optics to high flux FEL radiation*, in: *Damage to VUV, EUV, and X-ray Optics II (XDam2)*, Proc. SPIE 7361, 736110Y (2009)

M. Benk, K. Bergmann, D. Schäfer, T. Wilhein, *Gas discharge source and collector module for soft x-ray microscopy in the water window spectral range*, to be published in: Proceedings of 10th international conference on x-ray microscopy, Chicago (2010)

U. Wiesemann, W. Diete, M. Benk, K. Bergmann, D. Esser, M. Höfer, H. Stiel, H. Legall, P. Takman, H. Hertz, S. Rehbein, G. Schneider, S. Yulin, T. Feigl, D. Schäfer, T. Wilhein, *X-Ray Microscopy with Compact Sources*, to be published in: Proceedings of 10th international conference on x-ray microscopy, Chicago (2010)

M. Benk, K. Bergmann, A. Querejeta, S. Srivastava, N. A. Kotov, D. Schäfer, T. Wilhein, *Soft x-ray microscopic investigation on self assembling nanocrystals*, to be published in: Proceedings of 10th international conference on x-ray microscopy, Chicago (2010)

## Danke!

Hiermit möchte ich mich bei allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, ganz herzlich bedanken. Mein besonderer Dank gilt:

- Prof. Dr. Christian Spielmann, der mir als Doktorvater stets mit Rat und Tat zur Seite stand,
- Prof. Dr. Thomas Wilhein für die fachliche Unterstützung und zahlreiche Diskussionen und Ratschläge rund um die Röntgenmikroskopie,
- Markus Benk und Dr. Klaus Bergmann vom Fraunhofer ILT in Aachen für die hervorragende Zusammenarbeit und ihr großes Engagement bei der Durchführung der Mikroskopieversuche an der Entladungsquelle,
- allen Mitarbeitern des Instituts für X-Optik, darunter besonders meinem Kollegen Thomas Nisius, für die stets offene und angenehme Arbeitsatmosphäre sowie zahlreiche, bereichernde Diskussionen,
- Johannes Lenz für die Herstellung der kontrastreichen FIB-Teststrukturen,
- den Mitarbeitern der elektrischen und mechanischen Werkstatt für die ausgezeichnete Unterstützung sowie Tipps, Tricks und viele gute Ratschläge,
- den äußerst fleißigen Korrektur-LeserInnen des Manuskripts,
- meiner Freundin Barbara, die sehr großes Verständnis für meine langen Arbeitstage aufgebracht und mich stets bei meinem Tun unterstützt hat,
- meinen Eltern für die vorbehaltlose Unterstützung während meines gesamten Studiums.

David Schäfer



# Lebenslauf

## Persönliche Daten

Name David Schäfer  
Wohnort Tannenweg 1, 56235 Ransbach-Baumbach  
geboren 21.01.1980 in Dernbach  
Staatsangehörigkeit deutsch  
Familienstand ledig

## Schulausbildung

1986 - 1990 Astrid-Lindgren-Grundschule Ransbach  
1990 - 1999 Mons-Tabor-Gymnasium Montabaur  
06/1999 Allgemeine Hochschulreife

## Ersatzdienst

1999 - 2000 Caritas-Werkstätten Westerwald/Rhein-Lahn

## Studium

10/2000 - 08/2004 Fachhochschule Koblenz, RheinAhrCampus Remagen  
Studiengang: Lasertechnik  
03/2004 - 08/2004 Diplomarbeit bei der AUDI AG in Neckarsulm:  
*Untersuchung des Laserstrahlötens von Aluminium-Stahl-Hybridverbindungen im Karosserieaußenhautbereich*  
24.08.2004 Abschluss: Diplom-Ingenieur (FH)  
10/2004 - 05/2006 Fachhochschule Koblenz, RheinAhrCampus Remagen  
Studiengang: Applied Physics  
Masterarbeit am Synchrotron ELETTRA in Triest  
*Herstellung diffraktiver Optiken für weiche Röntgenstrahlung mittels röntgenlithografischer Nanostrukturierung*  
11.05.2006 Abschluss: Master of Science  
seit 10/2007 Julius-Maximilians-Universität Würzburg  
Promotion bei Prof. Dr. C. Spielmann (seit 04/2008 an der Friedrich-Schiller-Universität Jena)

## Berufsweg

seit 22.05.2006 wissenschaftlicher Mitarbeiter der Fachhochschule Koblenz am RheinAhrCampus in Remagen

Würzburg, den 12. Januar 2011

---

David Schäfer



## Eidesstattliche Erklärung

Ich versichere hiermit an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation eigenständig, d.h. insbesondere selbständig und ohne Hilfe eines kommerziellen Promotionsberaters angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Würzburg, den 12. Januar 2011

---

David Schäfer