

Together with the detection of chemi-ionized species under controlled laboratory conditions, the spectroscopic technique allowed also to allocate trace components of  $\text{Cu}_2$  and  $\text{BaO}$  to the short initiation period of the effusion process. Later on, the particle temperature is too low to vaporize these species.

Even though many problems in the mechanism of metal combustion remain to be solved, a number

of puzzling phenomena observed during upper atmosphere releases seem to have been rationalized, so as to make Ba vapour clouds a well defined tool of space research.

#### Acknowledgements

We wish to thank Prof. Dr. REIMAR LÜST for supporting this work. We are also indebted to Mr. J. ROEB for the experimental assistance.

## Zur „Abbildung“ komplexer Bildfunktionen in der Elektronenmikroskopie

W. HOPPE

Abteilung für Röntgenstrukturforschung am Max-Planck-Institut für Eiweiß- und Lederforschung, München und Physikalisch-Chemisches Institut der Technischen Universität, Abteilung für Strukturforschung, München

(Z. Naturforsch. 26 a, 1155—1168 [1971]; eingegangen am 15. April 1971)

New developments in the image reconstruction procedures for electron microscopy proposed by us are reported here. Reconstruction procedures with visible light for complex functions are described. In one variant of the procedure bright field micrographs for various tilting of the primary beam are combined. It is shown that in this case a further increase in resolution by a factor of 2 and simultaneous improvement in depth of focus are attainable. The depth of focus is at least equivalent to that of a normal instrument working with a wavelength of  $\lambda/4$ . It is shown that zone correction plates can be used in the microscope according to the same principle. The higher resolution improves the discrimination between heavy and light atoms with the aid of anomalous scattering. The discrimination by anomalous scattering is compared with that attainable by elastic—inelastic scattering (in Crewe's Scanning Microscope) at various resolutions. Some preliminary experiments have been done.

Vor einiger Zeit haben wir neue Verfahren zur rechnerischen Rekonstruktion von Bildfunktionen mit Korrektur der Bildfehler (Erhöhung der Auflösung) für die Elektronenmikroskopie beschrieben<sup>1-4</sup>, von denen eines (Hellfeldaufnahmen des Objektes mit Aperturblenden, welche als komplementäre Halbebenen ausgebildet sind) mit einer von LOHMANN<sup>5</sup> und von BRYNGDAHL und LOHMANN<sup>6</sup> für Registrierung und Entzifferung von Hologrammen angegebenen lichtoptischen Methode („Einseitenbandholographie“) verwandt ist. Wir hatten auf

die Bestimmung der vollständigen komplexen Bildfunktion (getrennte Registrierung von Real- und Imaginärteil) besonderen Wert gelegt. Das ist für die Elektronenmikroskopie von Interesse, da Schweratome Elektronen mit beträchtlicher Phasenverschiebung (im Gegensatz zu Röntgen-Strahlen!) streuen. Wie wir ausgeführt hatten, lassen sich dann durch gewichtete Differenzbildung Schweratome gegen Leichtatome diskriminieren. Kürzlich hat HANSZEN<sup>7, 8</sup> unseren elektronenmikroskopischen Halbebenenbildrekonstruktionsprozeß — allerdings nur für den

<sup>1</sup> W. HOPPE, R. LANGER u. F. THON, Vortrag auf der gemeinsamen Tagung der Österreichischen Arbeitsgemeinschaft für Ultrastrukturforschung und der Deutschen Ges. f. Elektronenmikroskopie am 25. Sept. 1969, Wien, Optik 30, 538 [1969].

<sup>2</sup> W. HOPPE, Acta Cryst. A 26, 414 [1970].

<sup>3</sup> W. HOPPE, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem., Bd. 74, Nr. 11, 1090—1100 [1970].

<sup>4</sup> W. HOPPE, Proc. Roy. Soc., im Druck.

<sup>5</sup> A. LOHMANN, Opt. Acta 3, 97 [1956].

<sup>6</sup> O. BRYNGDAHL u. A. LOHMANN, J. Opt. Soc. Amer. 58, 620 [1968].

<sup>7</sup> K. J. HANSZEN, Z. Naturforsch. 24 a, 1850 [1969].

<sup>8</sup> K. J. HANSZEN, Vortrag Intern. Congr. Elektronenmikroskopie, Grenoble, Vol. I, 21 [1970].



Spezialfall des reinen Phasenobjektes<sup>9</sup> — über eine Variante des holographischen Verfahrens<sup>5, 6</sup> lichtoptisch nachgebildet.

Für sorgfältige Strukturuntersuchungen ist zweifellos die rechnerische Rekonstruktion aus Gründen der Genauigkeit angebracht; lichtoptische Rekonstruktionen sind aber trotzdem nicht ohne Interesse; sie könnten z. B. schnell Übersichtsbilder des Amplitudenanteils über eine größere Fläche liefern. Auf normalen elektronenmikroskopischen Aufnahmen heben sich, wie Modellrechnungen gezeigt haben, einzelne Schweratome kaum ab. Da Leichtatomstrukturen einen sehr geringen Amplitudenkontrast zeigen, besteht Hoffnung, interessante Schweratomstellen auch ohne gewichtete Differenzbildung (die lichtoptisch schwer realisierbar wäre) zu erkennen. Diese können dann rechnerisch genauer untersucht werden. Ein Teil dieser Arbeit wird sich daher mit Fragen der lichtoptischen Rekonstruktion komplexer Funktionen (insbesondere mit dem Ziel des Erkennens von Schweratomen) befassen.

Bei elektronenmikroskopischen Bildrekonstruktionsverfahren wird man immer bemüht sein, Methoden anzuwenden, welche mit möglichst geringen experimentellen Komplikationen verbunden sind. Ganz besonders gilt dies für den ersten Schritt einer Bildrekonstruktion, der ja Manipulationen in einem empfindlichen elektronenoptischen Gerät voraussetzt. Ideal in dieser Beziehung ist das Maréchal'sche Bildrekonstruktionsverfahren<sup>10–15</sup>, das ja an jeder guten elektronenmikroskopischen Hellfeldaufnahme angewandt werden kann. Weniger günstig sind die von uns<sup>1</sup> und von WEINGÄRTNER et al.<sup>16, 17</sup> vorgeschlagenen Verfahren der Bildregistrierung in der Bildebene eines Objektivs unter Verwendung eines gesonderten Referenzstrahles (Bildebenenholographie), da diffizile elektronenoptische Strahlenteilungssys-

teme angewandt werden müssen. Im ersten Schritt einfach, allerdings im zweiten Schritt wohl nur mit Rechenmaschinen gut beherrschbar sind die Bildrekonstruktionsverfahren mit Fokussierungsserien (vgl. <sup>12–14</sup>). Eine Mittelstellung nimmt das Bildrekonstruktionsverfahren mit zwei komplementären Halbblenden ein. Eingriffe in die Elektronenoptik des Mikroskops sind zwar nicht erforderlich, doch muß ein Aperturblendschieber vorgesehen werden, welcher es erlaubt, diese Halbblenden (und möglichst auch eine Vollblende) in definierter und reproduzierbarer geometrischer Lage wiederholt einzubringen. Wenn auch diese Forderung mit den heutigen feinmechanischen Mitteln durchaus als erfüllbar erscheint, so wäre natürlich ein Verfahren mit feststehender Aperturblende vorzuziehen. In <sup>1, 2</sup> hatten wir darauf hingewiesen, daß die Verschiebung der Aperturblende auch durch Kippung der Bestrahlungsrichtung ersetzt werden kann. Wir hatten allerdings befürchtet<sup>2</sup>, daß Schwierigkeiten bei nicht sehr dünnen Objekten auftreten müßten, da — ähnlich wie bei stereoskopischer Betrachtung — zwei nicht völlig identische Projektionen des Objektes miteinander kombiniert werden. Überraschenderweise ergab nun gerade die Behandlung der Theorie des dicken Objektes, daß die befürchteten Schwierigkeiten nicht nur nicht eintreten, sondern daß sogar Vorteile in bezug auf die virtuelle Tiefenschärfe der Bildrekonstruktion bei schiefer Beleuchtung entstehen. Ferner ergab sich, daß die Bildrekonstruktion so geführt werden kann, daß — gewissermaßen als Nebenprodukt — eine Verdoppelung der Auflösung resultiert. Mit dieser neuen Variante unseres Bildrekonstruktionsverfahrens wird sich ein weiterer Teil dieser Arbeit beschäftigen. Schließlich wird gezeigt, daß nach dem gleichen Prinzip mit Zonenkorrekturplatten (oder Ringblenden) unverzernte Phasenkontrastbilder erhalten werden können.

<sup>9</sup> In <sup>7</sup> hält Hanszen die von uns in <sup>1</sup> geforderte komplexe Rekonstruktion für Höchstauflosungsmikroskopie im allgemeinen für nicht erforderlich, da die Objekte in genügend guter Näherung als Phasenobjekte wirken. Für Leichtatomstrukturen ist das sicher zutreffend. Für gemischte Schweratom-Leichtatomobjekte — wie sie als „gefärbte Präparate“ in der Elektronenmikroskopie sehr üblich sind — sind (allerdings nur bei atomaren Auflösungen) die Schweratombilder in der Phasenrekonstruktion doch schon so verzerrt, daß Deutungsschwierigkeiten auftreten könnten.

<sup>10</sup> A. MARECHAL u. P. CROCE, C. R. Acad. Sci. Paris **237**, 607 [1953]. See also J. TSUJUCHI, in: Progress in Optics, Vol. **II**, 133 ff., North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1963; and for theoretical treatment, P. ELIAS, D. S. GREY, and D. D. ROBINSON, J. Opt. Soc. Amer. **42**, 127 [1952].

<sup>11</sup> J. L. HARRIS, J. Opt. Soc. Amer. **56**, 569 [1966].

<sup>12</sup> P. SCHISKE, Europ. Konf. Elektronenmikroskopie Rom, Vol. **I**, 145 [1968].

<sup>13</sup> K. J. HANSZEN, Europ. Konf. Elektronenmikroskopie Rom, Vol. **I**, 153 [1968].

<sup>14</sup> J. FRANK, P. BUSSLER, R. LANGER u. W. HOPPE, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem., Bd. **74**, Nr. 11, 1105–1115 [1970].

<sup>15</sup> F. THON u. B. M. SIEGEL, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem. Bd. **74**, Nr. 11, 1116–1119 [1970].

<sup>16</sup> I. WEINGÄRTNER, W. MIRANDE u. E. MENZEL, Optik **30**, [1969].

<sup>17</sup> I. WEINGÄRTNER, W. MIRANDE u. E. MENZEL, Optik **31**, [1970].

*Lichtoptische Rekonstruktion*

Nimmt man ein Objekt einer Dicke an, die gegen die Tiefenschärfe des Objektivs vernachlässigbar ist und orientiert die Objektebenenkoordinaten  $x, y$  (und damit auch die entsprechenden reziproken Koordinaten<sup>18</sup>  $x^*, y^*$ ) senkrecht zur optischen Achse, so ergibt sich bei Halbebenenausblendung nach <sup>2</sup> [vgl. insbesondere Gl. (35) und (36)] für die Intensität in der Bildebene in linearer Näherung die Beziehung (1).

$$I \sim A_0^2 + 2 A_0 \left\{ \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty |F_{x^*, y^*}| \cos \Omega \cdot \cos 2\pi (x^* x + y^* y) dx^* dy^* \right. \\ \left. + \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty |F_{x^*, y^*}| \sin \Omega \sin 2\pi (x^* x + y^* y) dx^* dy^* \right\}. \quad (1)$$

Durch eine Fourier-Analyse des Bildes können die Absolutwerte der Fourier-Koeffizienten  $|F_{x^*, y^*}|$  des Bildes unverzerrt gewonnen werden. Es ist dabei angenommen, daß die  $y^*$ -Achse in die Halbebenenbegrenzung gelegt wird, und daß nach (2)

$$x^{*2} + y^{*2} \leq r_{\max}^{*2} \quad (2)$$

Fourier-Koeffizienten nur bis zu einer durch die grundsätzlichen optischen Eigenschaften des Objektivs bedingten Grenze  $r_{\max}^*$  auftreten. Die gleiche Fourier-Analyse, welche die  $|F_{x^*, y^*}|$  ergab, liefert auch die Phasen  $\Omega$ . Diese Phasen  $\Omega$  hängen mit den Phasen  $\Phi_{x^*, y^*}$  nach (3) zusammen:

$$\Omega = \Phi_{x^*, y^*} + \gamma_0 + \pi/2; \quad (3)$$

$\gamma_0$  ist die Wellenaberration. Sind die Atomformfaktoren reell oder imaginär (reines Phasenobjekt oder reines Amplitudenobjekt), so gilt der Friedelsche Satz (4):

$$|F_{-x^*, -y^*}| = |F_{x^*, y^*}|, \quad (4a)$$

$$\Phi_{-x^*, -y^*} = -\Phi_{x^*, y^*}. \quad (4b)$$

Damit kann man nicht gemessene Daten in der anderen Halbebene erzeugen. Die rechnerische Bildrekonstruktion nach <sup>1-4</sup> ist also sehr einfach: Sie beschränkt sich auf eine rechnerische Fourier-Analyse, auf eine Korrektur der ermittelten  $\Omega$ -Werte nach (3)<sup>19</sup> und auf eine Fourier-Synthese mit den kor-

rigierten Fourier-Koeffizienten. Bei der lichtoptischen Bildrekonstruktion ist der Gang verschieden: Die Schwärzungsverteilung der elektronenmikroskopischen Aufnahme wirkt im Lichtdiffraktometer (bei Ausschaltung der Phasenstruktur der Gelatineschicht) als reines Amplitudenobjekt. Würde man mit einer Linse der Wellenaberration  $\gamma_0$  ohne weitere Maßnahmen einfach abbilden, so würden in der Bildebene Fourier-Koeffizienten nach (5) das Bild aufbauen:

$$|F_{-x^*, -y^*}| = |F_{x^*, y^*}|, \quad (5a)$$

$$\Omega_{x^*, y^*}^0 = \Phi_{x^*, y^*} + 2\gamma_0 + \pi/2, \quad (5b)$$

$$\Omega_{-x^*, -y^*}^0 = -\Phi_{x^*, y^*} - \pi/2. \quad (5c)$$

Dieses Bild wäre wegen Einfluß der Wellenaberration  $\gamma_0$  in (5b) wieder verzerrt. Wir betrachten nun zunächst ein reines Amplitudenobjekt. Dann entfällt der 3. Summand in (3), (5b) und (5c)<sup>19</sup>. Blendet man nach LOHMANN<sup>5, 6</sup> die Fourier-Koeffizienten (5b) durch eine Halbaperturblende aus, so wirken nach (5c) beim Bildaufbau nur unverzerrte Fourier-Komponenten mit. Wegen der Halbebenenausblendung ist allerdings die Bildfunktion komplex, obwohl sie von einem reellen Objekt stammt. Da aber nur der Realteil registriert wird, gilt wieder die Beziehung (1) und man erhält ein in allen Einzelheiten fehlerloses Abbild. (1) ist nämlich formal völlig analog der Fourier-Synthese einer reellen Funktion mit Verwendung *aller* Fourier-Koeffizienten unter Berücksichtigung des Friedelschen Satzes (4). Bei Phasenobjekten muß noch der Phasensprung  $\pi/2$  in (3) bzw. (5c) berücksichtigt werden. Das kann z. B. durch ein zusätzliches  $\pi/2$ -Plättchen für den Primärstrahl (oder die gestreuten Strahlen) erfolgen<sup>7</sup>. Ganz anders sind nun die Verhältnisse, wenn die Atomformfaktoren nicht mehr reell, sondern komplex sind. Dann gilt im allgemeinen weder (4a) noch (4b). Nur in einem Spezialfall ist die lichtoptische Bildrekonstruktion aus einer Aufnahme noch möglich. Besteht nämlich das Objekt aus lauter Atomen gleicher Art, dann kann — wie z. B. in <sup>2</sup> allgemein gezeigt wurde — die Phasenschiebung des anomalen Streuers als weiteres Glied der Wellen-

<sup>18</sup> Es ist  $r^* = \sqrt{x^{*2} + y^{*2} + z^{*2}} = (2 \sin \vartheta/2)/\lambda$  ( $\vartheta$  = Streuwinkel). Definition des reziproken Raumes analog wie in der Röntgen-Strukturanalyse;  $\vartheta/2$  entspricht bei Kristallen dem Bragg'schen Winkel.

<sup>19</sup> Beim Amplitudenobjekt muß man nach dem Huygens-Fresnelschen Prinzip den 3. Summanden durch  $\pi$  ersetzen; man kann ihn auch weglassen, wenn man die Bildamplitude von der Primärstrahlamplitude subtrahiert [negatives Vorzeichen des zweiten Gliedes in Gl. (1), negatives Vorzeichen des zweiten Gliedes in Gl. (11)].

aberration  $\gamma_0$  formal betrachtet werden. Für die rechnerische Bildrekonstruktion ergeben sich damit keine weiteren Probleme. Bei der lichtoptischen Rekonstruktion muß allerdings die Wellenaberration des korrigierenden Objektivs zusätzlich verändert werden. Dazu kann z. B. neben dem phasenschiebenden Plättchen eine die Streustrahlen in Abhängigkeit vom Streuwinkel beeinflussende Phasenplatte benutzt werden.

Sind die Fourier-Koeffizienten einer komplexen Bildfunktion in beiden Halbebenen bekannt, so läßt sich der Realteil und der Imaginärteil der Funktion<sup>20</sup> nach den Beziehungen (6) und (7) berechnen.

$$\operatorname{Re}(\varrho) \sim \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty [(A_{x^*, y^*} + A_{-x^*, -y^*}) \cos \alpha + (B_{x^*, y^*} - B_{-x^*, -y^*}) \sin \alpha] dx^* dy^* \quad (6)$$

$$\operatorname{Im}(\varrho) \sim \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty [(B_{x^*, y^*} + B_{-x^*, -y^*}) \cos \alpha - (A_{x^*, y^*} - A_{-x^*, -y^*}) \sin \alpha] dx^* dy^* \quad (7)$$

Hierbei sind  $A$  bzw.  $B$  die Realteile bzw. die Imaginärteile der entsprechenden Fourier-Koeffizienten. Die Bedeutung der Abkürzung  $\alpha$  folgt aus (8):

$$\alpha = 2\pi(x^*x + y^*y). \quad (8)$$

Bei Einsetzen der Friedelschen Beziehungen (4) wird der Imaginärteil (7) 0 und für den Realteil ergibt sich — wie schon früher erwähnt — (1). Zur rechnerischen Behandlung der lichtoptischen Bildrekonstruktion empfiehlt sich die Zerlegung der Fourier-Koeffizienten in Anteile, die vom Phasenobjekt und vom (überlagerten) Amplitudenobjekt herrühren. Dazu schreiben wir die komplexen Atomformfaktoren in der Form (9):

$$f_j = f_j' + i f_j'' \quad (9)$$

Für die Fourier-Koeffizienten (Strukturfaktor) des aus  $N$  Atomen aufgebauten Objektes ergibt sich

(10)<sup>20</sup>:

$$F_{x^*, y^*} = \sum_j^N f_j' \exp i \alpha_j + i \sum_j^N f_j'' \exp i \alpha_j \\ = |F_{x^*, y^*}'| \exp i \Phi' + i |F_{x^*, y^*}''| \exp i \Phi'' \quad (10)$$

In der linearen Näherung tragen die beiden Anteile  $F'$ ,  $F''$  aus (10) additiv nach (1) zur Intensitätsänderung  $\Delta I_1$  des elektronenmikroskopischen Halbebenenbildes bei (11):

$$\Delta I_1 \sim \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty \{|F_{x^*, y^*}'| [\cos \Omega_1' \cos \alpha + \sin \Omega_1' \sin \alpha] + |F_{x^*, y^*}''| [\cos \Omega_1'' \cos \alpha + \sin \Omega_1'' \sin \alpha]\} dx^* dy^* \quad (11)$$

Da der erste Anteil in (11) von einem Phasenobjekt und der zweite Anteil von einem Amplitudenobjekt herrührt, ergibt sich für  $\Omega_1'$  die bereits in (3) angeführte Beziehung, während  $\Omega_1''$  zwar die Phasenverzerrung um  $\gamma_0$  (und den Phasensprung  $\pi$  nach<sup>19, 20</sup>), aber nicht den für das Phasenobjekt charakteristischen Phasensprung um  $\pi/2$  zeigt. Wird nun eine lichtoptische Rekonstruktion ohne Verwendung eines phasenschiebenden Plättchens für den Primärstrahl durchgeführt, so wird — entsprechend (5 c) — zwar die Wellenaberration, aber nicht der Phasensprung für den ersten Anteil in (11) korrigiert. Für den zweiten Anteil ergibt sich aber unmittelbar die korrekte (negative) Phase  $-\Phi''$ . Setzt man die so veränderten Phasen in (11) ein — unter Berücksichtigung der Tatsache, daß die lichtoptische Rekonstruktionsabbildung die andere Halbebene benutzt —, so erhält man in (12) nach einigen einfachen trigonometrischen Umformungen die Lichtintensitätsschwankung  $\Delta I_L^A$ , wobei beim ersten (vom Phasenobjekt herrührenden) Glied in (12) das obere Vorzeichen zu lesen ist:

$$\Delta I_L^A \sim \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty \{ \mp |F_{x^*, y^*}'| [-\sin \Phi' \cos \alpha + \cos \Phi' \sin \alpha] + |F_{x^*, y^*}''| [\cos \Phi'' \cos \alpha + \sin \Phi'' \sin \alpha] \} dx^* dy^* \quad (12)$$

Führt man die gleichen Rechnungen für die komplementären Halbebenen sowohl der elektronenmikroskopischen Aufnahme wie der lichtoptischen Rekonstruktion durch, so erhält man das gleiche Ergebnis (12), nur daß jetzt das positive Vorzeichen für den ersten Anteil einzusetzen ist. Denkt man sich schließlich die lichtoptischen Rekonstruktionen mit einem Phasenplättchen durchgeführt, welches die Streustrahlen um  $\pi/2$  (oder den Primärstrahl um  $-\pi/2$ )

<sup>20</sup> Auf eine historisch bedingte Verwirrung der Nomenklatur ist hier hinzuweisen. Definiert man — wie in der Strukturanalyse allgemein üblich — den für den Phasenkontrast verantwortlichen Teil des Atomformfaktors als Realteil [vgl. Gl. (9)], so entspricht der Realteil von Gln. (6), (7) dem Phasenkontrastbild, der Imaginärteil dem Amplitudenkontrastbild. In der Lichtoptik wird häufig umgekehrt zugeordnet. Man erhält die „lichtoptische“ Schreibweise in Gl. (10), wenn man  $F_{x^*, y^*}$  durch  $i F_{x^*, y^*}$  ersetzt; dem in Gl. (19) erwähnten Phasensprung  $\pi$  entspricht dann das negative Vorzeichen vom „Realteil“  $F_{x^*, y^*}''$ .



in der Phase verschiebt (negativer Phasenkontrast), so folgt als Ergebnis der komplementären Rekonstruktionen (13):

$$\Delta I_L^P \sim \int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty \{ -|F'_{x^*, y^*}| [\cos \Phi' \cos \alpha + \sin \Phi' \sin \alpha] \pm |F''_{x^*, y^*}| [\sin \Phi'' \cos \alpha - \cos \Phi'' \sin \alpha] \} dx^* dy^* \quad (13)$$

Man erkennt, daß in (13) die Rolle von Phasenanteil und Amplitudenanteil vertauscht ist. Von Bedeutung ist nun, daß in den beiden Bildrekonstruktionen (12) der Phasenanteil bzw. in den Bildrekonstruktionen (13) der Amplitudenanteil mit umgekehrten Vorzeichen und damit auch mit umgekehrtem Kontrast auftreten. Addiert man nämlich die beiden Bilder, so erhält man nach (12) nur den Amplitudenanteil, nach (13) nur den Phasenanteil des Bildes. Am leichtesten läßt sich diese Addition durchführen, wenn man tatsächlich die vier Bildrekonstruktionen durchführt und je zwei Lichtbilder Schicht auf Schicht übereinanderlegt. Man erspart sich damit komplizierte interferometrische Geräte für die gleichzeitige Rekonstruktion der beiden elektronenmikroskopischen Aufnahmen. Bei der Über-einandermontage müssen freilich die Teilbilder exakt zur Deckung gebracht werden. Beim Amplitudenanteil gibt dafür ein gewisses Kriterium eine möglichste Kontrastarmut in schweratomfreien Gebieten. Genauer läßt sich freilich die genaue Aufeinanderpassung im Lichtdiffraktometer analog wie bei der Bilddifferenztechnik<sup>21-23</sup> ermitteln<sup>24</sup>. Diese Fourier-Transformiertenanaloge von Korrelationsfunktionen lassen sich anwenden, da bei beiden Bildrekonstruktionspaaren identische Bildanteile auftreten. Voraussetzung für eine korrekte Kompensation ist natürlich, daß nicht nur die elektronenmikroskopischen Aufnahmen und die zugehörigen lichtoptischen Aufnahmen unter gleichen Bedingungen durchgeführt und entwickelt werden, sondern daß auch die Schwärzungskurve im  $\Delta I$ -Bereich genügend geradlinig ist. Diese lichtoptische Bildrekonstruktion arbeitet im Prinzip analog wie eine kohärente Hellfeldabbildung mit einem idealen Objektiv (in der Gausschen Bild-

ebene) bei unendlicher Tiefenschärfe ohne und mit Verwendung eines Zernikeschen Phasenplättchens. Es ist bekannt, daß unter diesen Bedingungen entweder nur der Amplitudenanteil oder der Phasenanteil des Bildes registriert wird. Wesentlich ist dabei, daß neben dem Öffnungsfehler auch die Defokussierung bei der lichtoptischen Rekonstruktion genau eingestellt wird (entspricht dem Aufsuchen der Gausschen Ebene bei der idealen Linse). Andernfalls würde das Bild aus Phasenanteil und Amplitudenanteil gemischt sein. Hinzu gehört auch, daß das Objekt mit genügender Genauigkeit als „unendlich dünn“ angesehen werden kann. Wir hatten in<sup>3</sup> schon darauf hingewiesen, daß in einer dritten elektronenmikroskopischen Aufnahme Öffnungsfehler, Astigmatismus und Defokussierung gesondert bestimmt werden können. Die Bestimmung des axialen Astigmatismus ist freilich nur für die rechnerische Rekonstruktion weiterführend; es gibt kein bequemes Mittel, den axialen Astigmatismus einer Lichtlinse zu verändern. Eine andere Möglichkeit – sowohl für die rechnerische wie für die lichtoptische Rekonstruktion – ist natürlich, die variablen Parameter (insbesondere die Defokussierung) aus Eigenschaften des Bildes selbst zu bestimmen. Hat man z. B. ein Objekt auf einer Kohle-Lochfolie, so könnte man daran denken, in der lichtoptischen Rekonstruktion einer Halbebene [in Phasenobjekteinstellung nach (13), da die Kohlefolie als Phasenobjekt aufgefaßt werden kann] die Lochränder visuell scharf zu stellen. Damit würde auch die korrekte Defokussierung für Amplitudenobjekte auf der Lochfolie (also für Schweratompartikelchen) gewährleistet sein.

Eine Betrachtung von (12) und (13) zeigt übrigens, in welcher Weise sich bei einer einzigen Halbebenenaufnahme restliche Phasenanteile (bzw. bei einem Phasenobjekt und bei Phasenrekonstruktion restliche Amplitudenanteile) bemerkbar machen. Diese Anteile werden verzerrt abgebildet (also nicht ausgelöscht wie bei einer idealen Linse) und dem korrekten Bild überlagert. Wir wollen zeigen, daß diese verzerrte Abbildung mit dem Differentialquotienten der Struktur verwandt ist. Dazu bilden wir

<sup>21</sup> W. HOPPE, R. LANGER, F. FRANK u. A. FELTYNOWSKI, Naturwiss. 56, 267 [1969].

<sup>22</sup> J. FRANK, Optik 20, 171 [1970].

<sup>23</sup> R. LANGER, J. FRANK, A. FELTYNOWSKI u. W. HOPPE, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem. Bd. 74, Nr. 11, 1120–1126 [1970].

<sup>24</sup> Das „Aufeinanderpassen“ der Halbebenenaufnahmen („Hologramme“) bleibt einem auch im Interferometer<sup>6</sup> nicht erspart. Es ist übrigens nicht selbstverständlich, daß beide Rekonstruktionsverfahren zum gleichen Ziel führen; in<sup>6</sup> werden komplexe Wellenamplituden, hier aber Amplitudenquadrate (bzw. wegen der linearen Übertragung Realteile von Wellenamplituden) überlagert.

in (14) den partiellen Differentialquotienten nach  $x$  von (13):

$$\begin{aligned} \partial I_L^P / \partial x \sim \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \{ 2\pi x^* |F'_{x^*, y^*}| [-\sin \Phi' \cos \alpha \\ + \cos \Phi' \sin \alpha] \mp 2\pi x^* |F''_{x^*, y^*}| \\ \cdot [\cos \Phi'' \cos \alpha + \sin \Phi'' \sin \alpha] \} dx^* dy^*. \end{aligned} \quad (14)$$

Durch Vergleich von (12) und (14) erkennen wir, daß durch diese Operation – bis auf Faktoren  $\pm 2\pi x^*$  – (13) in (12) verwandelt wurde. Es vertauschen also die verzerrten und die nicht verzerrten Bildanteile ihre Plätze. Im besonderen läßt sich der verzerrte Bildanteil – bis auf Faktoren  $\pm 1/2\pi x^*$  – als Differentialquotient der korrekten Struktur auffassen. Der erwähnte Faktor kann als reelle modifizierende Funktion (vgl. <sup>2</sup>) aufgefaßt werden. Er bewirkt eine Verbreiterung des Differentialquotienten des Bildes in  $x$ -Richtung. Für den Spezialfall der Abbildung eines einzelnen Atoms sind in Abb. 1 diese Verhältnisse dargestellt <sup>25</sup>.

### Bildrekonstruktion „dicker“ Objekte mit Kippung des Primärstrahls

Abbildung 2 zeigt den reziproken Raum eines „dicken“ Objektes. Die Primärstrahlung soll zunächst entlang der optischen Achse (welche parallel zu  $z^*$  orientiert ist) eingestrahlt werden. Nur die Fourier-Koeffizienten, die auf der Oberfläche der Ewaldschen Ausbreitungskugel  $K_0$  liegen, tragen zur Abbildung bei. Wir wollen zunächst annehmen, daß das Objektivsystem eine Apertur  $2r^*$  besitzt. Dann wird aus der Ewaldschen Ausbreitungskugel eine Kugelkalotte mit dem Radius  $2r^*$  herausgeschnitten; die Streustrahlen, welche den auf dieser Kalotte liegenden Fourier-Koeffizienten entsprechen, bauen das Bild in der Bildebene auf. Will man eine echte Projektion eines räumlichen Objektes erhalten, so muß man verlangen, daß nur Fourier-Koeffizienten auf der  $x^*, y^*$ -Ebene des reziproken Raumes zum Bild beitragen. Das läßt sich nach Abb. 2 nur erreichen, wenn man den Radius  $1/\lambda$  der Ausbreitungskugel unendlich groß (oder  $\lambda$  unendlich klein) machen könnte. Das ist natürlich nicht möglich; immerhin ist die Krümmung bei Elektronenstrahlen konventioneller Spannungen auch bei Voraussetzung atomarer Auflösung noch recht gering. Abbildung 2 b zeigt die Verhältnisse in der  $x^*, y^*$ -Ebene. Den ausgeschnittenen Bereich im Fourier-Raum kennzeichnet ein Kreis mit dem Radius  $r^*$ ; bei der Halbebenenrekonstruktion werden

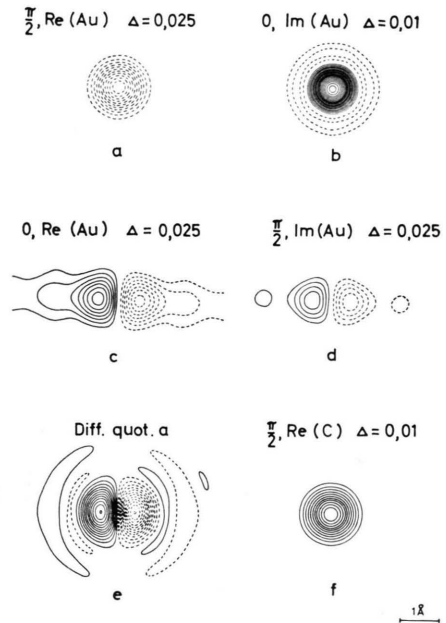


Abb. 1. Atomare Abbildungen mit komplexen Funktionen von Gold und Kohlenstoff. Halbebenenabbildung, ideale Linse mit Auflösungsgrenze  $\partial/\lambda = 1 \text{ \AA}$  (die gleiche Auflösung läßt sich mit schiefer Beleuchtung mit Linsen des Öffnungsfehlers  $\sim 1 \text{ mm}$  und Spitzenkathode bei  $\sim 8$  Oszillationen durch Bildrekonstruktion erreichen). Spannung 80 kV, Atomformfaktoren nach HAASE <sup>40</sup>. Berechnet wurden die „reinen“ Fälle [Realteil (Phasenteil) bzw. Imaginärteil (Amplitudenteil)] allein. Gezeichnet ist die Hellfeldamplitude  $1 - \varrho$ ; das Untergrundniveau (Primärstrahlenniveau) ist also auf 1 normiert zu denken. Schichtlinien  $> 1$  sind strichliert,  $< 1$  ausgezogen. a) Au, Realteil,  $\pi/2$ -Verschiebung (positiver Phasenkontrast), Schichtlinienabstand  $d=0,025$ . b) Au, Imaginärteil ohne  $\pi/2$ -Verschiebung (Amplitudenkontrast),  $d=0,01$ . c) Au, Realteil, ohne  $\pi/2$ -Verschiebung,  $d=0,025$ . d) Au, Imaginärteil, mit  $\pi/2$ -Verschiebung,  $d=0,025$ . e) wie c), aber Fourier-Komponenten mit  $2\pi x^*$  multipliziert (=Differentialquotient von a),  $d=0,05$ . f) C, Imaginärteil,  $\pi/2$ -Verschiebung (negativer Phasenkontrast),  $d=0,01$ . Man beachte den der großen Auflösung entsprechenden großen Kontrast (trotz Halbebenenabbildung). Bei Hellfeldabbildung mit nur einer Halbebene entstehen „gemischte Bilder“, etwa proportional  $a+d$  (mit Phasenplättchen) oder  $b+c$  (ohne Phasenplättchen). Bei Abbildung mit idealer Linse und Kreisapertur entsteht a (Phasenkontrast) bzw. b (Amplitudenkontrast) mit verdoppeltem Schichtlinienabstand; die Absenkung der Wellenamplitude auf  $\sim 45\%$  bzw.  $68\%$  zeigt, daß in diesem Fall kaum mehr von einem schwach streuenden Objekt gesprochen werden kann. Man beachte, daß  $\varrho_{\max}$  im Fall b) fast  $60\%$  von  $\varrho_{\max}$  im Fall a) beträgt; gleichzeitig ist der Bildpunkt im Fall b) wegen des langsamen Abfalls des Atomformfaktors schärfer. Dieser Vergleich demonstriert die Eignung der anomalen Streuung zur Diskriminierung von Schweratomen bei hoher Auflösung.

<sup>25</sup> Nur am Rande sei erwähnt, daß man auf diese Weise (also durch Halbebenenabbildung im Laserstrahl mit Zernike-schen Phasenplättchen und einem nach  $2\pi x^*$  bzw.  $1/(2\pi x^*)$  geformten Lichtdurchlässigkeitsfilter) zweidimensionale Dichtefunktionen im lichtoptischen Analogieverfahren differenzieren bzw. integrieren kann.

komplementäre Halbkreisaperturbildern verwendet, deren Mittellinie in Abb. 2 b mit m bezeichnet ist. Wir wollen nun das gleiche Objektiv verwenden, eine Vollkreisapertur dem Radius  $r^*$  entsprechend vorsehen, dafür aber bei den beiden komplementären Aufnahmen

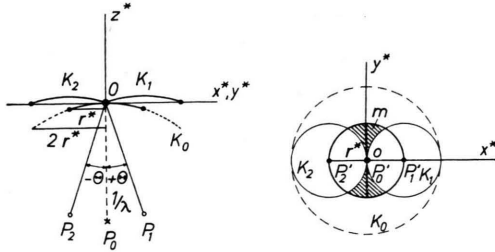


Abb. 2 a.

Abb. 2 b.

Abb. 2. Ewaldsche Kugelkonstruktion für Abbildung mit schiefer Beleuchtung bei Kippung des Primärstrahls um  $\pm \Theta$ . Die „Anschmiegung“ an die  $x^*, y^*$ -Ebene durch die zwei Kugelkalotten  $K_1, K_2$  ist besser als durch die Kugelkalotte  $K_0$ . Allerdings erfolgt nur eine partielle Erfassung des reziproken Raumes (Abb. 2 b). Bei schiefer Beleuchtung verschiebt sich der Mittelpunkt des Fourier-Koeffizientenbereiches von  $P_0'$  zu  $P_1'$  und  $P_2'$ . Die in den schraffierten Zwickeln m vorliegenden Koeffizienten sind nicht mehr meßbar.

den Primärstrahl um den Winkel  $\pm \Theta$  (vgl. Abb. 2 a) gegen die Linsenachse verkippen. Das Wesentliche ist, daß nun für jede Primärstrahlrichtung eine eigene Ewaldsche Ausbreitungskugel wirksam wird. Die entsprechenden Kugelkalotten sind in Abb. 2 mit  $K_1$  und  $K_2$  bezeichnet. Abbildung 2 b zeigt die bei beiden Aufnahmen herausgeschnittenen Gebiete des reziproken Raumes in Projektion auf die  $x^*, y^*$ -Ebene. Es sind das die beiden Kreise mit dem Radius  $r^*$  um die Mittelpunkte  $P_1'$  bzw.  $P_2'$ . Vernachlässigt man die Krümmung der Ausbreitungskugel, so erkennt man, daß diese Experimente im mit dem Radius  $r^*$  um den Ursprung des reziproken Raumes O geschlagenen Kreis (Abb. 2 b) den Großteil aller Fourier-Koeffizienten liefern. Die in den schraffiert gezeichneten Zwickeln vorhandenen Fourier-Koeffizienten tragen allerdings zum Bildaufbau nicht bei. Dafür treten aber bis zu einer Grenze  $2r^*$  neue Fourier-Koeffizienten auf. Führt man eine Bildrekonstruktion mit Verwendung dieser beiden Aufnahmen durch, so erhält man das komplexe Bild bis zu einer Grenze  $2r^*$ . Man erhält also ein Bild mit doppelter Auflösung. Allerdings wird, wie die Abb. 2 b zeigt, diese Auflösungserhöhung nur in Richtung  $x^*$  wirksam; in Richtung  $y^*$  verdoppelt sich die Auflösung nicht. Wie später noch im Detail gezeigt wird, kann man in allen Richtungen der  $x^*, y^*$ -Ebene erhöhte Auflösung erreichen, wenn man mehr als zwei Aufnahmen für eine Bildrekonstruktion herstellt. Auf einen wichtigen Punkt müssen wir noch hinweisen: Bei der Halbebenenrekonstruktion wird die Fläche der Aperturblende auf die Hälfte verkleinert; gegenüber der Vollkreisaperturblende kann daher nur die Hälfte der gestreuten Elektronen im Objektiv eingefangen werden. Bei der Bildrekonstruktion mit gekipptem Primärstrahl wird hingegen die volle Apertur des Objektivs ausgenutzt.

Auf die Möglichkeit, mit mehreren Aufnahmen bei Kippung des beleuchteten Strahles die Apertur eines Objektes virtuell zu vergrößern, ist in lichtoptischen Arbeiten öfters hingewiesen worden<sup>26-28</sup>. Allerdings mußten für die kohärente Zusammensetzung der Teil-

bilder komplizierte, mit Referenzwellen arbeitende holographische Apparaturen (mit zusätzlichen Verschiebe- oder Kippeinrichtungen mit interferometrischer Genauigkeit oder mit partiell kohärenten Systemen) vorgesehen werden. Man kann das hier beschriebene Verfahren als Spezialfall einer solchen holographischen Methode mit dem Primärstrahl als Referenzstrahl auffassen, wobei allerdings bei der Aufnahme auf die Registrierung des phasenrichtigen Zusammenhanges der einzelnen Teilspektren verzichtet wird. Diese werden vielmehr erst bei der Bildrekonstruktion aufeinander „phasenskaliert“. Dazu dienen wieder Korrelationsfunktionen, die anwendbar sind, da die zusammenzusetzenden Bilder gleichartige Bildanteile enthalten. Besonders nützlich ist dabei – ähnlich wie schon bei der Halbebenenbildrekonstruktion beschrieben – eine zusätzliche Aufnahme mit nicht gekipptem Primärstrahl. Eine Maréchal'sche Bildrekonstruktion liefert dann sofort alle optischen Konstanten für die Entzerrungsfunktion. Die aus ihr bestimmten Fourier-Koeffizienten können außerdem – soweit sie nicht zu nahe an Nullstellen liegen – mit zur Korrelation der Teilaufnahmen herangezogen werden.

Die Abb. 3 a bis 3 c zeigen verschiedene Möglichkeiten, die Teilaufnahmen so anzuordnen, daß eine gleichmäßige Auflösungserhöhung in der  $x^*, y^*$ -Ebene resultiert. Mit steigender Anzahl an Teilaufnahmen wird zwar die durch den Kreis mit dem Radius  $2r^*$  gekenn-

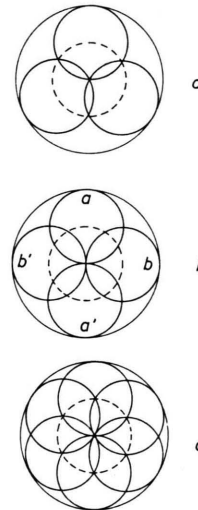


Abb. 3. Erfassung des reziproken Raumes durch 3, 4, 6 Kugelkalotten. Mit steigender Kalottenzahl verbesserte Erfassung des reziproken Raumes, aber auch Mehrfachvermessung der inneren Bereiche durch Überlappung. (In Abb. 3 a, 3 b Einfachüberlappungen, in Abb. 3 c Einfach- und Zweifachüberlappungen.)

<sup>26</sup> L. J. CUTRONA, E. N. LEITH, L. J. PORCELLO u. W. E. VIVIAN, Proc. IEEE **54**, 1026 [1966].

<sup>27</sup> W. MARTIENSEN, Holographiearbeitstag, Battelle-Institut, Frankfurt 1967.

<sup>28</sup> G. HOHBERG, Optik **28**, 288 [1968].

zeichnete Apertur mit verdoppelter Öffnung immer besser ausgefüllt. Gleichzeitig überlappen sich diese Kreise aber immer mehr, was bedeutet, daß die inneren Fourier-Koeffizienten mehrfach gemessen werden. Damit steigt ihre relative Genauigkeit bei Vergleich mit den nur einmal gemessenen äußeren Fourier-Koeffizienten, was nicht unbedingt erwünscht ist. Es empfiehlt sich übrigens sehr, auch bei einem Schema nach Abb. 3 a oder Abb. 3 b die Anzahl der Teilaufnahmen recht hoch zu wählen (also das Schema mehrfach zu durchlaufen). Damit wird der Einfluß der Strahlenschädigung auf die Bildrekonstruktion minimalisiert. Man erhält eine über die Strahlenschädigung gemittelte Bildfunktion, in der z. B. nicht durch verschiedene Strahlenschädigung in den Teilbildern hervorgerufene Unsymmetrien eines reinen Phasenobjektes als Amplitudenanteil fälschlich gedeutet werden können. Man kann auch die Teilbilder auf einer einzigen Platte registrieren, wenn man die elektrischen Bildverschiebeeinrichtungen benützt, die in einigen kommerziellen Geräten bereits vorgesehen sind; die Mittelung läßt sich in diesem Fall durch wiederholtes elektrisches Umschalten einfach realisieren.

Es ist ein Vorteil dieser Art der Auflösungserhöhung, daß nicht gesteigerte Anforderungen an partielle Kohärenz und vor allem Monochromasie im Elektronenmikroskop gestellt werden. Das ist bei der Auflösungserhöhung nach Zonenkorrekturprinzipien nicht der Fall, wie wir früher gezeigt haben<sup>29</sup>; da andererseits das Zonenkorrekturprinzip die effektive Öffnung des Objektives erhöht, ist es von besonderem Vorteil, daß in diesem Bildrekonstruktionsverfahren beide Prinzipien kombiniert werden können. Man kann abschätzen, daß man mit Objektiven mit Öffnungsfehlern in der Größenordnung von 1 mm, mit Feldemissionskathoden und mit Spannungen von 100 kV Auflösungen von  $\sim 0,5 \text{ \AA}$  erreichen sollte, wenn man  $\sim 10$  Oszillationen in der Pupillenfunktion zuläßt.

Ein weiterer grundsätzlicher Vorteil des neuen Verfahrens resultiert, wenn man die bisher vernachlässigte Krümmung der Ewaldschen Ausbreitungskugel mit berücksichtigt. Dazu betrachten wir wieder Abb. 2, wobei wir annehmen wollen, daß wir sowohl bei einem Verfahren mit Einstrahlung längs der optischen Achse wie mit dem neuen Rekonstruktionsverfahren eine Auflösung von  $2r^*$  erreicht haben. Im ersten Fall erhält man eine Kugelkalotte mit  $2r^*$  Durchmesser (vgl. Abb. 2 a), im zweiten Fall setzt sich z. B. für eine Bildrekonstruktion nach Abb. 3 a die resultierende Fläche im reziproken Raum aus drei Kugelkalotten mit dem Durchmesser  $r^*$  zusammen. Bereits ein kurzer Blick auf Abb. 2 a zeigt, daß sich die so erhaltene Fläche des reziproken Raums der  $x^*, y^*$ -Ebene wesentlich besser anschmiegt als die  $K_0$ -Kugelkalotte. Einfache geometrische Überlegungen zeigen, daß man die Wellenlänge auf  $1/4$  herabsetzen müßte, wenn man die gleiche

maximale Abweichung von der  $x^*, y^*$ -Ebene mit der  $K_0$ -Kalotte erreichen wollte. Da die Wellenlänge mit der Spannung sinkt, ist also die virtuelle Tiefenschärfe einer mit 100 kV durchgeführten Bildrekonstruktion gleich der Tiefenschärfe einer konventionellen Aufnahme eines Gerätes mit  $\sim 0,9 \text{ MeV}$ . Die Verhältnisse werden noch günstiger, wenn man Bildrekonstruktionen mit Mehrfachüberlappungen (vgl. z. B. Abb. 3 c) durchführt. Wie man sich leicht an Hand einfacher geometrischer Konstruktionen klar macht, summieren sich in den Überlappungsgebieten Fourier-Koeffizienten mit etwas verschiedener Abweichung von der  $x^*, y^*$ -Ebene. Bei diesen kleinen Abweichungen erhält man bei der Mittelbildung in Näherung die Fourier-Koeffizienten einer Fläche, die zwischen den Extremflächen liegen. Man kann noch weiter gehen und kann für eine Bildrekonstruktion nur die Fourier-Koeffizienten eines ringförmigen Bereiches jeder Kugelkalotte vorsehen. Wie Abb. 2 zeigt, berühren die Kugelkalotten an ihrem Rande die  $x^*, y^*$ -Ebene. Bei einer genügend großen Anzahl von Teilbildern läßt sich mit solchen ringförmigen Bereichen trotzdem eine lückenlose Überstreichung des reziproken Raumes erreichen. Recht vorteilhaft ist dabei, daß dieses Verfahren die Genauigkeit der Bestimmung der äußeren Fourier-Koeffizienten kaum herabsetzt. Es ist sofort einzusehen, daß man auf diese Weise die virtuelle Tiefenschärfe der Bildrekonstruktion beliebig (freilich auf Kosten der Lichtstärke)<sup>30</sup> steigern kann. Man hat damit sogar den Vorteil, im am schwächsten oszillierenden Teil der Pupillenfunktion zu arbeiten (die übliche Optimierung der Defokussierung — vgl. z. B. Abb. 6 — vorausgesetzt). In diesem Zusammenhang sei betont, daß für eine saubere Trennung von Schwer- und Leichtatomen eine hohe Tiefenschärfe tatsächlich wesentlich sein kann. Nichtfokussierte Leichtatome zeigen, wie bereits erwähnt, einen Amplitudenanteil, der in ungünstigen Fällen Schweratome vertauschen könnte.

Für die rechnerische Durchführung der Bildrekonstruktion lassen sich die für die Halbebenenrekonstruktion angegebenen Formeln ohne Abänderung benutzen.

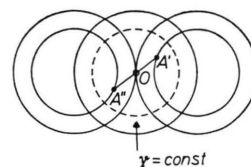


Abb. 4. Verlauf der Pupillenfunktion bei Kippung. Die Kurven  $\gamma = \text{const}$  sind bei Fehlen von axialem Astigmatismus Kreise. Durch ein Symmetriezentrum verbundene Fourier-Koeffizienten  $A', A''$  liegen auf verschiedenen Aufnahmen und können daher getrennt gemessen werden (Registrierung der komplexen Bildfunktion).

<sup>29</sup> A. HIRT, R. LANGER u. W. HOPPE, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem. Bd. 74, 1101–1105 [1970].

<sup>30</sup> Diese Verringerung der Lichtstärke hält sich durchaus in Grenzen. Reduziert man z. B. die virtuelle Wellenlänge um einen weiteren Faktor 5 (also auf  $\lambda/20!$ ), so ist immer noch

ein Bereich von 24% der Linsenapertur wirksam, wobei die oben erwähnte sehr erwünschte Überbetonung der äußeren Streubereiche eine Kontrasterhöhung des Amplitudentils und eine weitere Verringerung des auflösbaren Abstandes zwischen 2 Atomen hervorruft.



Man muß nur nach Abb. 4 berücksichtigen, daß sich die Kurven gleicher Wellenaberration (bei Fehlen von axialem Astigmatismus Kreise im reziproken Raum) verschieben.

Natürlich läßt sich die Rekonstruktion bei schiefer Beleuchtung auch für dreidimensionale Untersuchungen einsetzen. In diesem Fall empfiehlt es sich allerdings, in Überlappungsgebieten nach Abb. 3 keine Mittelung durchzuführen, sondern mit den Meßwerten unmittelbar in die Auswertung nach den Whittaker-Shannon-Theorien<sup>31</sup> einzugehen.

Der Vollständigkeit wegen sei erwähnt, daß man analog wie im lichtoptischen Fall<sup>26-28</sup> die Auflösung weiter erhöhen kann, wenn man zusätzliche Aufnahmen mit stärkerer Verkipfung anschließt. Allerdings kann dann nicht mehr der Primärstrahl als Referenzstrahl dienen; es müssen nach<sup>1, 16, 17</sup> eigene Referenzstrahlen erzeugt werden. Wegen der damit verbundenen komplizierten Strahlteilersysteme, aber auch wegen der steigenden Kompliziertheit der Auswertung haben derartige Verfahren geringes praktisches Interesse, um so mehr, als man bereits mit unserem einfachen Verfahren genügend hohe Auflösungen erreichen kann. Bemerkenswert ist, daß — wie Abb. 5 zeigt — ein derartiges

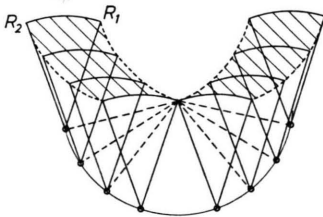


Abb. 5. Überstreichung des reziproken Raumes mit aneinandergereihten Aufnahmen mit verschieden großem Kippwinkel. Der schraffiert gezeichnete Bereich des reziproken Raumes ist meßbar. Gesonderte Referenzstrahlen (innerhalb der Linsenapertur) sind erforderlich.

Verfahren ein räumliches Gebiet aus dem reziproken Raum herauszuschneiden, wenn man die Krümmung der Ewaldschen Ausbreitungskugel berücksichtigt. Der reziproke Raum zwischen den Rotationsfiguren  $R_1$  und  $R_2$  (Abb. 5) wird abgetastet; aus Abb. 5 ist ferner unmittelbar zu ersehen, daß wegen der dreidimensionalen Struktur des reziproken Raumes mehr Aufnahmen vorzusehen wären, als zur reinen Auflösungserhöhung erforderlich sind. Die Rotationsfiguren werden natürlich um so flacher, je kleiner die Wellenlänge ist. Auch zur Gewinnung dreidimensionaler Daten hat daher dieses Verfahren in der Elektronenmikroskopie wenig Interesse.

<sup>31</sup> W. HOPPE, *Optik* **29**, 617 [1969].

<sup>32</sup> Selbstverständlich lassen sich parallaxenfreie Mehrfachbildrekonstruktionen — wenn auch mit geringerer Genauigkeit — über Mehrfachkopierprozesse erreichen.

## Lichtoptische Bildrekonstruktion bei schiefer Beleuchtung

Die lichtoptische Halbebenenrekonstruktion mit Öffnungsfehler behafteter Lichtlinse ist möglich, da im reziproken Raum die Phasen in bezug auf seinen Ursprung als Zentrum antisymmetrisch, die Wellenaberrationen aber symmetrisch sind. Wie Abb. 4 zeigt, bleibt diese Eigenschaft der Wellenaberration auch bei schiefer Beleuchtung erhalten. Man kann also die lichtoptische Rekonstruktion mit den gleichen Geräten durchführen, wenn man beim zweiten Schritt mit kreisförmiger Apertur arbeitet und eine Kippung der Beleuchtung um den negativen Winkel vorsieht. Die Benutzung eines Zernikeschen Phasenplättchens bei Abbildung eines Phasenobjekts ist auch hier erforderlich. Allerdings sind für die Rekonstruktion komplexer Funktionen im allgemeinen mehr als  $2 \times 2$  Aufnahmen im lichtoptischen Gerät erforderlich. Auch ist es notwendig, für die Überlappungsgebiete (vgl. Abb. 3) zusätzliche Schwächungsfilter vorzusehen, um ein störendes Übergewicht der Fourier-Koeffizienten in diesem Gebiete zu vermeiden. Damit ist es z. B. schon nicht mehr möglich, eine parallaxenfreie Summation der Schwärzungen durch Zusammenfügen von zwei Einzelaufnahmen mit aufeinanderliegenden Gelatineschichten zu erreichen<sup>32</sup>. Es gibt einige Spezialfälle, in denen man mit zwei Aufnahmen auskommen kann: Verwendet man zur Bildrekonstruktion zwei Aufnahmen mit positiven und negativen Kippwinkel (vgl. Abb. 2b oder Abb. 4) und führt eine Rekonstruktion des Amplitudenanteils durch, so wird das Amplitudenbild gegenüber dem Phasenuntergrund diskriminiert; die Form der Bildpunkte wird allerdings verzerrt, da der reziproke Raum ungenügend erfaßt ist. Trotzdem können diese Lichtrekonstruktionen sehr nützlich sein, da sie erkennen lassen, an welchen Gebieten der Aufnahmen schwache Amplitudenobjekte (z. B. einzelne Schweratome) vorliegen. Scheinstrukturen von Leichtatomen, welche Schweratome vortäuschen könnten, werden bemerkenswerterweise nicht erzeugt. Eine nachfolgende rechnerische Rekonstruktion (aus allen Aufnahmen) der interessierenden Gebiete führt dann zu den verzerrungsfreien Strukturen. Durch Verwendung einer Ringblende im lichtoptischen Analogiegerät läßt sich auch die virtuelle Tiefenschärfe — allerdings in der Zweibildrekonstruktion mit starker Verzerrung der Schweratom-Bildpunkte — erhöhen. Schließlich ist es auch möglich, reine Phasenobjekte (bzw. reine Amplitudenobjekte oder Objekte, die nur aus einer Atomart bestehen) aus zwei Bildern mit in allen Richtungen erhöhter Auflösung zu erhalten. Dazu müssen die nicht zentrosymmetrisch miteinander verbundenen Aufnahmen a und b (oder a' und b') aus Abb. 3 b miteinander kombiniert werden. Man beachte, daß eine evtl. verwendete Phasenplatte zur Kompensation der anomalen Streuung eines aus einer Atomsorte bestehenden Objektes gegenüber der Aperturblende des Lichtobjektives verschoben werden muß (sie muß auch weiterhin rotationssymmetrisch zum Primärstrahl bleiben).

Verzichtet man auf die Auflösungserhöhung, so läßt sich mit einer nicht kreisförmigen Aperturblende im Mikroskop (z. B. einem Rechteck mit Kantenlängen im Verhältnis 1 : 2) eine lückenlose Erfassung des reziproken Raumes mit nur 2 Aufnahmen (bei einem reinen Phasen- oder Amplitudenobjekt sogar mit nur einer Aufnahme) erreichen; die Erhöhung der Tiefenschärfe wird allerdings nur in einer Richtung wirksam.

### Zonenkorrekturplatten und schiefe Beleuchtung

Da Zonenkorrekturplatten Elemente sind, mit denen die Korrektur auf Wellenaberration im Elektronenmikroskop (statt nachträglich rechnerisch oder lichtoptisch) durchgeführt wird, ist es verständlich, daß die hier beschriebenen Anordnungen auch mit Zonenkorrekturplatten realisiert werden können. Auch die  $\pi/2$ -Phasenverschiebung für Abbildung von Phasenobjekten kann bei schiefer Beleuchtung analog wie bei gerader Beleuchtung durch Dimensionierung der Zonenringe erreicht werden. Freilich wird trotz der Korrektur durch die Zonenkorrekturplatte bei einseitig schiefer Beleuchtung eine Verzerrung des Bildes wegen des exzentrischen Ortsfrequenzbereiches auftreten. Analog wie bei den Rekonstruktionsverfahren lassen sich diese Störungen beseitigen, wenn man mehrere Aufnahmen mit in verschiedener Richtung gekipptem Primärstrahl kombiniert. Da aber die Korrektur auf Wellenaberration bereits im Elektronenmikroskop erfolgt, kann man die Überlagerung der (zueinander inkohärenten) Teilbilder im Elektronenmikroskop vornehmen. Das führt zu einer Hellfeldabbildung mit konischer Beleuchtung oder mit schiefer Beleuchtung und Rotation des Primärstrahls auf einem Kegelmantel über die Primärstrahlkippvorrichtung des Gerätes<sup>33</sup>. Man beachte, daß man wieder sowohl durch das Zonenkorrekturprinzip als auch durch virtuelle Vergrößerung der Apertur durch schiefe Beleuchtung die Auflösung erhöht. Es handelt sich ferner um ein echtes Phasenkontrastverfahren, welches gleichzeitig die durch die Ringstruktur der Zonenkorrekturblenden bewirkte Untergrundwelligkeit reduziert. Da es kaum schwieriger zu realisieren sein dürfte als die bisher experimentell versuchten Anordnungen<sup>34</sup>, mag es vielleicht praktische Bedeutung erlangen.

Es ist ganz allgemein ein Vorteil der Korrektur der Pupillenfunktion unmittelbar im Elektronenmikroskop, daß die Randstörungen der rechnerischen Rekonstruktion (vgl. 2.,<sup>35</sup>) wegfallen. Andererseits verbleiben auch bei Zonenkorrekturplatten — zumindest wenn man keine kontinuierliche Phasenverschiebung vorsieht — kleine restliche Bildstörungen. Man könnte daran denken, diese durch eine zusätzliche Korrektur — der bereits weitgehend korrigierten Aufnahmen — zu beseitigen. Das würde also bedeuten, daß man die vorstehend

beschriebenen Rekonstruktionen an Zonenkorrekturplatten-korrigierten Objektiven durchführt.

Wie weit freilich dieses Konzept der Korrektur in 2 Stufen praktische Bedeutung hat, läßt sich schwer beurteilen.

Vor Einführung der rechnerischen und lichtoptischen Rekonstruktionsverfahren in die Elektronenmikroskopie hat HANSZEN<sup>36</sup> den Einfluß schiefer Beleuchtung auf konventionelle elektronenmikroskopische Hellfeldaufnahmen theoretisch untersucht; die Ergebnisse waren verständlicherweise nicht sehr ermutigend. Wir wollen nun zeigen, daß in einem bestimmten Spezialfall eine bildfehlerarme quasikonventionelle Elektronenmikroskopie doch möglich ist. Ersetzt man nämlich die kreisförmige Aperturblende durch eine ringförmige Blende und orientiert den Primärstrahlkegel in die Mitte der Blende, so läßt sich nach Abb. 6 immer eine Defokussierung finden, bei welcher korrekte Phasenkontrastabbildung auftritt. Durch die Blende wird für eine bestimmte Kipprichtung zwar nur ein ringförmiger Ortsfrequenzbereich abgebildet; die den verschiedenen Kipprichtungen entsprechenden Ortsfrequenzbereiche überlappen sich aber lückenlos. Nach den weiter oben diskutierten Merkmalen der Abbildung dicker Objekte wird gleichzeitig eine große Tiefenschärfe erreicht; tatsächlich handelt es sich bei der Fokussierung mehr um ein Einstellen der Pupillenfunktion als um ein Scharfstellen auf bestimmte Ebenen im Objekt. Das Verhältnis von Ringbreite (Breite des Doppelmaximums in Abb. 6) zu

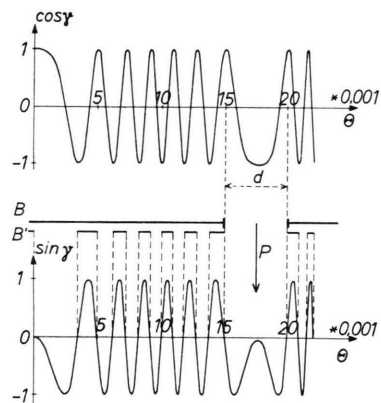


Abb. 6. Optimierte Ringzone für Phasenkontrastabbildung bei konischer Hellfeldbeleuchtung. Berechnet für  $C_0=1$  mm und 100 kV. Defokussierung  $Z_0=3100$  Å. Ordinate=Streuwinkel  $\theta$  (vgl. auch Abb. 2). Innere Streuwinkelgrenze der Ringzone= $B$ , Streuwinkelbreite= $d$ . Es wird ausgenutzt, daß sich bei entsprechend gewählter Defokussierung die Phasen der Streustrahlen (gegenüber dem Primärstrahl  $P$ ) um  $\pi$  (im Mittel um  $\pi/2$ ) drehen.  $B'$ =Zonenkorrekturblende für die gleiche Pupillenfunktion.

<sup>33</sup> Es spielt wegen der Inkohärenz dabei keine Rolle, daß der „Primärstrahlkegel“ nicht gleichzeitig auf das Präparat einwirkt.

<sup>34</sup> G. MÖLLENSTEDT, R. SPEIDEL, W. HOPPE u. R. LANGER; K.-H. KATERBAU u. F. THON, 4. Europ. Reg. Conf. Electron Microscopy, Rome 1968, Vol. I, 125.

<sup>35</sup> In dieser Beziehung ist die lichtoptische (holographische) Rekonstruktion überlegen, da die Bildfeldgröße nicht durch Rechenmaschinenkapazitätsüberlegungen beschränkt werden muß. Bei endlichen Objekten (Bild differenzanalyse) entfallen diese Störungen.

<sup>36</sup> K. J. HANSZEN u. B. MORGENSTERN, Z. Angew. Phys. 19, 215 [1965].

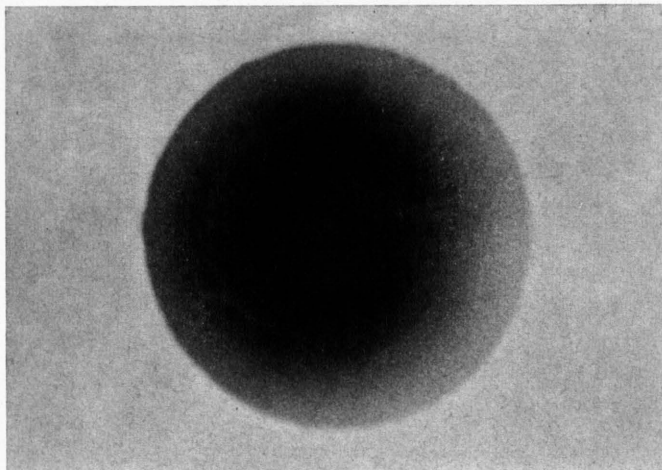


Abb. 9 a.

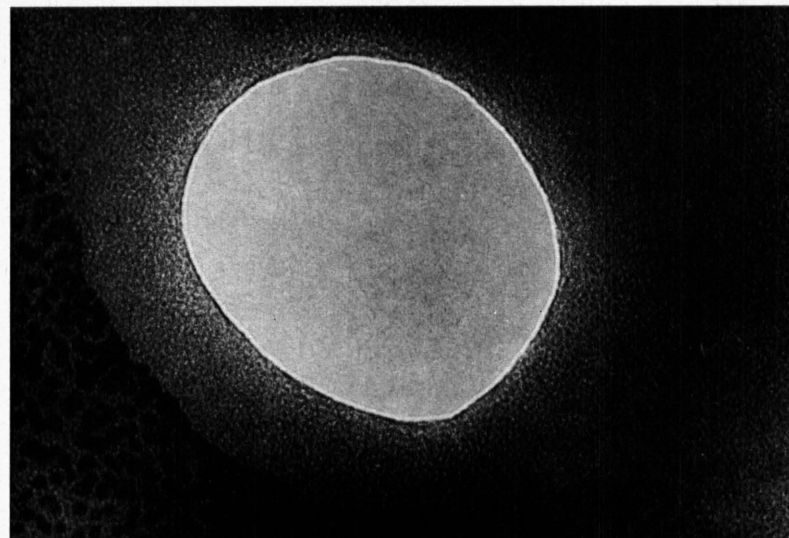


Abb. 9 b.

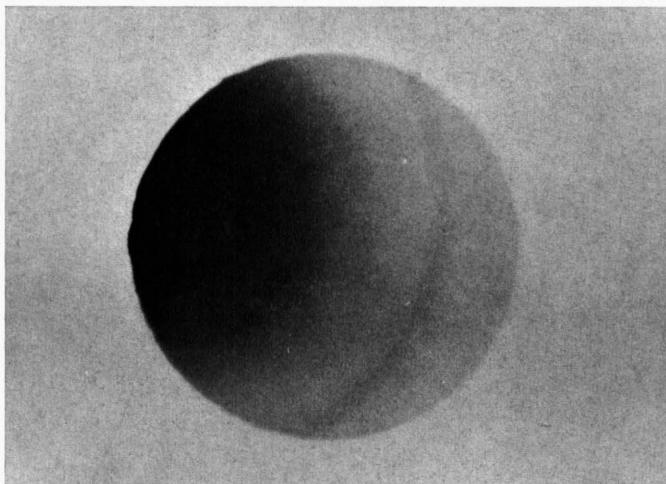


Abb. 9 c.

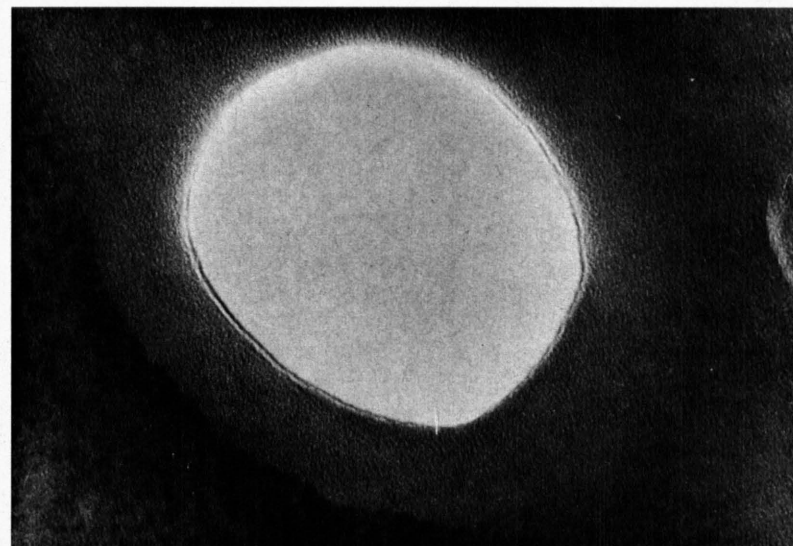


Abb. 9 d.

Abb. 9. Aufnahme einer Gold-Kohlenfolie mit und ohne Verkippung.  $C_0=2,9$  mm, 80 kV,  $M \sim 270\,000$ . a) Zentrische Beleuchtung, Beugungsdiagramm in der Aperturebene. Durch  $65\,\mu$ -Blende bestimmte Grenze des Fourier-Raumes  $r^*=0,33\,\text{\AA}^{-1}$ . b) Aufnahme bei zentrischer Beleuchtung im Scherzerschen Fokus. c) Beugungsbild bei (nicht bis ganz an den Blendenrand durchgeführter) Kippung. d) Aufnahme mit gekippter Beleuchtung bei gleichen Bedingungen wie in a).





Ringradius hängt von der gewünschten Auflösung ab. Durch die Ringausblendung wird ein Teil der gestreuten Elektronen beim Bildaufbau nicht ausgenützt; damit sinkt der Kontrast im Bild und es steigt die Strahlenbelastung. Da aber diese Schwächung selektiv ist und hohe Ortsfrequenzbereiche kaum betrifft, wirkt sie wie eine modifizierende Funktion, welche den Bildpunkt verschärft. Abbildung 1 zeigt im übrigen auch, wie eine entsprechende Zonenkorrekturblende aus dieser Ringblende entwickelt werden kann. Dazu ist es nur erforderlich, die Blende B mit weiteren Ringöffnungen so zu durchbrechen, daß alle negativen Bereiche von  $\sin \gamma$  durchgelassen werden (vgl. B' in Abb. 6).

### Diskussion

Eine Kippung des Primärstrahles ist mit elektrostatischen oder elektromagnetischen Ablensystemen ähnlich einfach durchzuführen wie eine Änderung der Defokussierung. Damit kann das Bildrekonstruktionsverfahren mit Strahlkippung ohne große Umstände in bestehenden Geräten durchgeführt werden. In diesem Zusammenhang sei erwähnt, daß für diese Aufgabe hochempfindliches Aufnahmematerial eingesetzt werden sollte (vor allem wenn rechnerisch rekonstruiert wird). Es ist zwar öfters darauf hingewiesen worden, daß bei Benutzung eines günstigen Schwärzungsbereiches der von der Elektronenstatistik herrührende Fehler so groß ist, daß feine Einzelheiten nicht mehr signifikant registriert werden können<sup>14</sup> (aus diesem Grund wurde auch vorgeschlagen, unempfindliche Emulsionen für Höchstauflösungselektronenmikroskopie zu verwenden<sup>37</sup>); die Situation ändert sich aber, wenn ein Strukturbild aus mehreren Teilaufnahmen zusammengesetzt wird. Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ist der Gesamtfehler proportional der Wurzel aus der Summe der Fehlerquadrate der Einzelbilder. Die Einzelbilder können daher mit geringerer statistischer Genauigkeit registriert werden. Das bedeutet u. a. auch, daß sich die Gesamtbelichtungszeit nicht ändert, gleichgültig in wie viele Teilbilder man das Gesamtbild unterteilt. Die Verwendung hochempfindlicher Emulsionen hat dann den Vorteil, daß die Teilbilder im günstigen Schwärzungsbereich aufgenommen werden können.

Es wurde schon eingangs erwähnt, daß der sehr beträchtliche Anteil an anomaler Streuung bei Elektronen die Überlegungen zur Diskriminierung von Schwer- und Leichtatomen angeregt hatte. Zur Illustrierung dieser Verhältnisse sind in Abb. 7 Real- und Imaginärteil der Atomformfaktoren für Gold

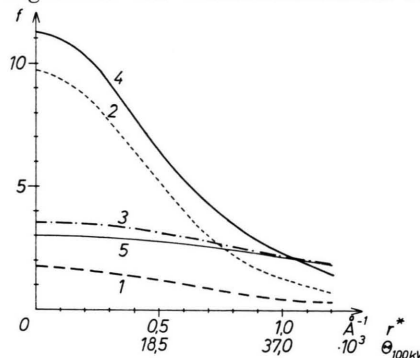


Abb. 7 a. 1 =  $f_c^{100 \text{ kV}}$ , 2 =  $\text{Re}_{\text{Au}}^{40 \text{ kV}}$ , 3 =  $\text{Im}_{\text{Au}}^{40 \text{ kV}}$ , 4 =  $\text{Re}_{\text{Au}}^{100 \text{ kV}}$ , 5 =  $\text{Im}_{\text{Au}}^{100 \text{ kV}}$ . Atomformfaktoren  $f$  in  $\text{\AA}$ ; der Faktor bei  $\Theta_{100 \text{ kV}}$  muß in Abb. 7 a und b  $10^{-3}$  heißen.

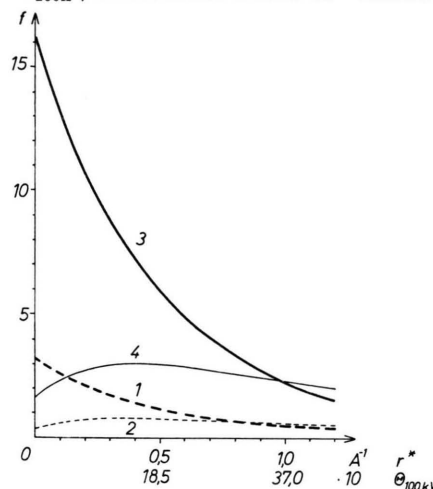


Abb. 7 b. 1 =  $\text{Re}_C^{100 \text{ kV}}$ , 2 =  $\text{Im}_C^{100 \text{ kV}}$  (Ordinate zehnmal erhöht), 3 =  $\text{Re}_{\text{Au}}^{100 \text{ kV}}$ , 4 =  $\text{Im}_{\text{Au}}^{100 \text{ kV}}$ .

Abb. 7. Komplexe Atomformfaktorkurven für Au und C nach RAITH<sup>39</sup> (Abb. 7 a) und HAASE<sup>40</sup> (Abb. 7 b). Man beachte den für niedrige  $r^*$ -Werte beträchtlich verschiedenen Verlauf; für Werte ab  $r^* = 0,3 \text{ \AA}^{-1}$  sind die Kurven vergleichbar. Abb. 7 b zeigt, daß der relative Anteil des Imaginärteils am Atomformfaktor bei C (als Vertreter eines Leichtatoms) etwa zehnmal kleiner ist als bei Schweratomen; der Diskriminierungseffekt für höhere  $\Theta$ -Werte ist — auch wegen der geringen Gesamtstreuung von C — sehr beträchtlich.

<sup>37</sup> N. G. WRIGLEY, Vortr. Intern. Kongr. Elektronenmikroskopie, Grenoble 1970, Vol. I, 357.

<sup>38</sup> In Abb. 7 sind die Streukurven nach RAITH<sup>39</sup> und HAASE<sup>40</sup> gegenübergestellt. Für die Ergebnisse dieser Arbeit spielen die an sich nicht gerade geringen Unterschiede keine große Rolle.

<sup>39</sup> H. RAITH, Acta Cryst. A 24, 85 [1968].

<sup>40</sup> J. HAASE, Z. Naturforsch. 25 a, 1219 [1970].

<sup>41</sup> Die Auflösungsabschätzungen beziehen sich auf die in <sup>34</sup> beschriebene Anlage bei Verwendung von konventionellen Spitzenkathoden. Bei Verwendung von Feldmissionskathoden sollte, wie bereits erwähnt, eine weitere Auflösungserhöhung (bis ca.  $1,5 \text{ \AA}$ ) möglich sein.

bei 40 kV und 100 kV im Vergleich zur Atomformfaktorkurve von Kohlenstoff angegeben<sup>38</sup> (vgl. auch Abb. 1). Man erkennt, daß schon bei kleinen  $r^*$ -Werten der Imaginärteil von Gold die gesamte Streuung von Kohlenstoff um etwa den Faktor 2 übertrifft. Besonders interessant sind aber die Verhältnisse bei großen Streuwinkeln. Eine unkorrigierte Linse bei etwa 100 kV ist bis ca.  $r^* = 0,25 \text{ \AA}^{-1}$  verwendbar. Mit Maréchal'scher Bildrekonstruktion bzw. mit Halbblendenbildrekonstruktion kann dieser Bereich ungefähr verdoppelt werden<sup>41</sup>. Bei Rekonstruktion mit schiefer Beleuchtung tritt der Bereich zwischen  $r^* = 0,5 \text{ \AA}^{-1}$  und  $r^* = 1 \text{ \AA}^{-1}$  neu hinzu. Man erkennt aus Abb. 7, daß gerade dieser Bereich für die Rekonstruktion komplexer Bildfunktionen besonders wertvoll ist: Einerseits sind wegen des langsamen Abfalls des Imaginärteils die Realteile und die Imaginärteile des Schweratoms in diesem Bereich bereits vergleichbar und andererseits ist die Kohlenstoffstreuung stark abgesunken. In der rechnerischen Bildrekonstruktion kann man offenbar ganz allgemein den Einfluß des Imaginärteils verstärken, wenn man eine Gewichtsfunktion einführt, die bei der Fourier-Synthese Fourier-Koeffizienten mit hohem Streuwinkel bevorzugt. Derartige modifizierende Funktionen können leicht so gewählt werden, daß gleichzeitig die schon erwähnte virtuelle Erhöhung der Tiefenschärfe eintritt, welche den

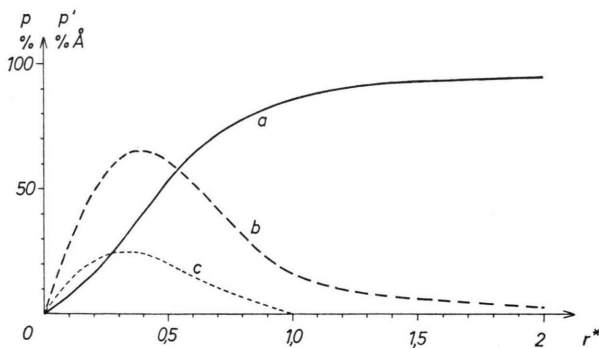


Abb. 8. Zunahme der von der Linse erfaßten elastisch gestreuten Elektronen mit Erhöhung der Apertur  $r^*$  (berechnet mit den Atomformfaktorwerten nach RAITH<sup>39</sup> für C. a) Integrale prozentuale Elektronenzahl  $p$  (bezogen auf die Gesamtstreuung), b) differentielle prozentuale Zunahme  $Z$  ( $Z = 2 p' \Delta r^*$ ), c) differentielle Zunahme bei exzentrischer Lage einer Kreisblende mit dem Radius  $r^* = 0,5 \text{ \AA}^{-1}$  (Gesamtausbeute  $\sim 28\%$ ).

Imaginärteil für die nichtfokussierten Leichtatome reduziert. Weiter interessante Einzelheiten können in Abb. 8 entnommen werden. Sie zeigt die Zunahme der gestreuten Elektronen mit  $r^*$  (die Streuwerte für große Streuwinkel wurden nach der Rutherford'schen Streuformel extrapoliert). Die Kurven wurden für Kohlenstoff berechnet<sup>39</sup>; die  $r^*$ -Abhängigkeit für andere Atome ist ähnlich. Man erkennt, daß für  $r^* = 1 \text{ \AA}^{-1}$  (Punktauflösung in kohärentem Hellfeld ca.  $0,75 \text{ \AA}$ ) bereits mehr als 80% aller Elektronen erfaßt werden (Kurve a). Kurve b zeigt die prozentuale Zunahme (bezogen auf ein Inkrement  $\Delta r^* = 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ ) mit steigendem  $r^*$ . Das Maximum liegt bei  $r^* = 0,4 \text{ \AA}^{-1}$ . Man erkennt den relativ langsamen Zuwachs von weniger als 3% bei Verbreiterung der Apertur  $r^*$  um  $\Delta r^* = 0,1$  für die Gebiete über  $r^* = 1,0 \text{ \AA}^{-1}$ . Das bedeutet, daß die Erhöhung der Auflösung  $r^* = 0,5 \text{ \AA}^{-1}$  bis  $r^* = 1 \text{ \AA}^{-1}$  viele neue Streuelekttronen dem Bild zuführt, daß aber diese Zunahme für Gebiete oberhalb  $1 \text{ \AA}^{-1}$  nur mehr relativ gering ist. Eine weitere Rechnung zeigt, daß eine der exzentrischen Vollkreisblenden in Abb. 3 bei Annahme von  $r^* = 0,5 \text{ \AA}^{-1}$  etwa 28% aller Elektronen erfaßt, die (ohne destruktive Interferenz) zum Bildaufbau beitragen. Kurve c zeigt die prozentuale Zunahme für steigendes  $r^*$ . Interessant ist der Vergleich mit einer idealen Linse der vollen Apertur  $r^* = 1 \text{ \AA}^{-1}$ . Wie schon erwähnt, werden zwar mehr als 80% aller Elektronen erfaßt; die getrennte Registrierung von Amplitudenteil und Phasenteil erfordert aber zwei Aufnahmen; die Ausbeute ist also nur um den Faktor 1,5 größer<sup>42</sup>.

Interessant ist ferner ein Vergleich mit der Durchstrahlungsrastrermikroskopie<sup>43</sup>, welche ja ebenfalls eine Diskriminierung von Schwer- und Leichtatomen (durch Vergleich von elastischer und inelastischer Streuung) ermöglicht. Setzt man in beiden Fällen Aperturblenden voraus, welche die bisher bei der Rastermikroskopie erreichte Auflösung von  $5 \text{ \AA}$  ermöglichen, so werden in der konventionellen Elektronenmikroskopie nur 5–10% der gestreuten Strahlen zum Bildaufbau verwendet, während in der Rastermikroskopie praktisch alle gestreuten Elektronen (elastisch und inelastisch) verwertet werden. Bei dieser relativ schlechten Auflösung spielt auch die in<sup>5</sup>

<sup>42</sup> Allerdings wäre bei so hohen Auflösungen die Verwendung einer idealen Linse für die Diskriminierung von Schweratomen in Projektionen wegen der beträchtlichen Krümmung der Ausbreitungskugel wohl in Frage gestellt; die nicht ausreichende Fokussierung des ("dicken") Leicht-

atomuntergrundes täuscht, wie schon erwähnt, Amplitudenteile vor.

<sup>43</sup> A. V. CREWE, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem. Bd. 74, Nr. 11, 1181 [1970].

(Fußnote 26) und <sup>44</sup> erwähnte Schwierigkeit der Unschärfe des durch die inelastisch gestreuten Elektronen gezeichneten Bildes noch keine entscheidende Rolle. Erhöht man aber mit Bildrekonstruktion die Auflösung um den Faktor 7, so sind die Verhältnisse völlig verschieden. Die Ausbeute an Elektronen wird bei der Kippdurchstrahlungsmikroskopie mit etwa 30% sehr viel besser, während in der Rastermikroskopie die Ausbeute sinkt, weil die wegen der großen Apertur des beleuchteten Systems erforderliche Abdeckblende auch einen Großteil der elastisch gestreuten Elektronen abblendet <sup>45</sup>. In bezug auf optimale Ausnutzung der gestreuten Elektronen sind also beide Methoden etwa gleich. Besonders interessant ist nun der Vergleich der beiden, zur Diskriminierung der Atome verwendeten physikalischen Effekte. Im Bereich bis etwa 5 Å Auflösung ist die inelastische Streuung sehr beträchtlich; sie übersteigt — integral gesehen — die elastische Streuung. Erhöht man aber die Auflösung, so sinkt ihr Anteil rasch bis etwa auf 1/6 (für Kohlenstoff) der elastischen Streuung ab. Die entsprechenden hohen Fourier-Koeffizienten beim Aufbau des inelastischen Vergleichsbildes werden aber damit so schwach, daß sie trotz Erhöhung der Auflösung kaum die Schärfe dieses Bildes beträchtlich erhöhen können. Das Crewesche Diskriminierungsprinzip beruht aber gerade darauf, daß das „elastische Bild“ und das „inelastische Bild“ der Leichtatome völlig identisch ist. Gerade umgekehrt sind die Verhältnisse, wenn man die Diskriminierung über die anomale Streuung betrachtet. Bei kleinen Auflösungen ist der Anteil des Imaginärteiles an der Gesamtstreuung noch recht gering; der Diskriminierungseffekt wird also auch gering sein. Wie aber bei der Diskussion der Abb. 7 gezeigt wurde, steigt der relative Anteil des Imaginärteiles bei Erhöhung der Auflösung an. Gerade für hohe Fourier-Koeffizienten wird der Diskriminierungseffekt vorzüglich. Wie ein Blick auf Abb. 7 (vgl. auch Abb. 1) zeigt, ist das nur vom Imaginärteil gezeichnete Bild eines Schweratoms sogar schärfer, als sein Bild, gezeichnet — etwa im idealen Dunkelfeld — von der gesamten elastischen Streu-

ung. Tatsächlich spielt die räumliche Ausdehnung des Atoms kaum mehr eine Rolle; die Atomformfaktorkurve für den Imaginärteil ist — ähnlich wie bei der Röntgen-Beugung — beinahe die Streukurve eines punktförmigen Objektes. In dieser Diskussion ist noch nicht berücksichtigt, daß es beim Rastermikroskop sehr schwierig sein dürfte, die siebenfache Auflösung mit einfachen Mitteln zu erhalten und daß das Prinzip der kohärenten Bildrekonstruktion ganz allgemein die Trennung der physikalischen Struktur von den optischen Merkmalen des untersuchten Gerätes gestattet. Tatsächlich wird ja hier das Elektronenmikroskop weniger als abbildendes Gerät als vielmehr als Meßgerät für Amplitude und Phase der Streustrahlen betrachtet, aus denen dann das Bild wie in der Röntgen-Strukturanalyse von Kristallen rechnerisch synthetisiert wird. Sobald — wie in der inkohärenten Dunkelfeldmikroskopie — statt eines definierten „Primärstrahls“ ein inkohärenter Primärstrahlenkegel vorliegt, ist die strenge Zuordnung von reziprokem Raum (Fourier-Raum) und Objektraum zerstört.

### Vorversuche <sup>\*, 47</sup>

Zur Demonstration einiger der oben erläuterten Folgerungen haben wir einige Experimente in einem Elmikroskop 101 ( $C_0 = 2,9$  mm, 80 kV, elektr.-optische Vergr.  $\sim 270\,000$ ) an einem Phasen-Amplitudenobjekt (Goldpartikelchen auf einer dünnen Lochkohlefolie) durchgeführt. Abbildung 9 a \* zeigt das elektronenoptische Beugungsdiagramm des Objekts in der Aperturebene des Gerätes bei Verwendung einer  $65\,\mu$ -Aperturblende ( $r_{\max} = 0,33\,\text{\AA}^{-1}$ ) bei (ungefähr) zentrischer Beleuchtung. Abbildung 9 b zeigt das Bild der Folie (Loch in der Bildmitte, Goldpartikelchen am Rande) ungefähr im Scherzerschen Fokus. Im nächsten Versuch wurde der beleuchtende Primärstrahl gegen den Rand der Blende verkippt. Abbildung 9 c zeigt das entsprechende Beugungsdiagramm. Die Vergrößerung des Fourier-Raumes ist unmittelbar zu erkennen. Abbildung 9 d zeigt die entsprechende Aufnahme bei gleicher Einstellung wie Abb. 9 b. Der unsymmetrisch ausgeblendete Fourier-Raum bewirkt eine äußerlich einem Astigmatismus oder einer Bilddrift ähnelnde Verzerrung; die „Auflösung“ in Richtung der Kippung ist größer als in Richtung senkrecht dazu. In folgenden Aufnahmen

<sup>44</sup> O. SCHERZER, Ber. d. Bunsenges. f. Phys. Chem. Bd. 74, Nr. 11, 1154 [1970].

<sup>45</sup> Die Diskussion bezieht sich auf den Betrieb des Gerätes nach dem Prinzip der inkohärenten Dunkelfeldbeleuchtung; andere Beleuchtungsarten — insbesondere kohärente Hellfeldbeleuchtung — führen beim Abtastmikroskop zu winzigen (um ca. den Faktor 100 kleineren) Elektronenausbeuten (vgl. auch <sup>46</sup>).

<sup>46</sup> M. G. R. THOMSON u. E. ZEITLER, Vortr. Intern. Kongr. Elektronenmikroskopie, Grenoble 1970, Vol. I, 63.

<sup>47</sup> Vgl. auch F. THON, Vortrag European Conference on Electron Microscopy, Rome 1968, Vol. I, 127.

\* Für die Durchführung der im folgenden beschriebenen Experimente danke ich Herrn Dr. A. FELTYNOWSKI, Max-Planck-Institut für Eiweiß- und Lederforschung, München.

\*\* Abbildungen 9 auf Tafel S. 1164 a.

ohne Kippung hatten wir uns davon überzeugt, daß unter diesen Bedingungen kein zusätzlicher Astigmatismus durch Verschmutzen des Blendenrandes erzeugt worden war.

Diese Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft, dem Fonds der Chemischen Industrie und der Badischen Anilin- & Sodafabrik unterstützt. Für die hochherzige Förderung sprechen wir unseren besten Dank aus.

## Messungen der Bildfehler eines elektrostatischen Sektorfeldes \*

ALFRED BÄUML

2. Physikalisches Institut der Justus Liebig-Universität, Gießen

(Z. Naturforsch. 26 a, 1168—1174 [1971]; eingegangen am 21. April 1971)

### *Measurement of Image Aberrations of an Electrostatic Sector Field*

The ion-optical properties of a cylinder-condenser (sector angle  $\Phi = 50^\circ$  and curvature radius of the middle equipotential surface  $r_0 = 100$  mm) are investigated by an experimental ray-tracing technique.

A narrow electron beam entering the field under a known angle and at a known place is observed on the exit side of the field by means of a luminescent screen combined with a special microscope. The measurement of the lateral distances of this ray from the central beam in several distances behind the exit field-boundary yields the information about the imaging properties of the sector field. The analysis of the measurements indicates the existence of a third-order angular aberration. The experimentally determined values of second-order  $\alpha$ -,  $u$ -, and  $\delta$ -aberration-coefficients do not differ substantially from the theoretical ones.

Das elektrostatische Sektorfeld ist als Energieanalysator für geladene Teilchen seit langem in Gebrauch. Auch seine Fokussierungseigenschaften sind bekannt. In der allgemeineren Form des Toroidkondensators besitzt es verschieden starke Fokussierungen in radialer und axialer Richtung, die durch die Wahl der radialen und axialen Krümmungen der mittleren Äquipotentialfläche zwischen den Elektroden bestimmt werden. Der Zylinderkondensator und der Kugelkondensator sind daher Spezialfälle des Toroidkondensators. Die Bildfehler des Toroidkondensators wurden von EWALD und LIEBL<sup>1</sup> in zweiter Näherung berechnet. WOLLNIK<sup>2</sup> ergänzte diese Berechnungen, indem er auch die Streufeld-einflüsse an den Feldgrenzen miteinbezog.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die Bildfehler eines Zylinderkondensators zu messen und mit den Ergebnissen der Theorie<sup>2</sup> zu vergleichen.

### Prinzip der Messung

Über Bildfehlermessungen an magnetischen Sektorfeldern wurde von mehreren Autoren berichtet<sup>3-5</sup>. Die Bildfehler des elektrostatischen Sektor-

feldes wurden bisher noch nicht systematisch experimentell untersucht.

An Hand von Abb. 1 soll das Prinzip der Messung erläutert werden.

Ein fein ausgeblendeter Elektronenstrahl wird zunächst so in den Zylinderkondensator eingeschossen, daß er die kreisförmige geometrische Mittelbahn mit dem Radius  $r_0$  zwischen den Elektroden durchläuft. Die zugehörige Potentialfläche soll auf Erdpotential liegen, die Feldstärke auf der Mittelbahn sei  $E_0$ . Damit die Elektronen der Energie  $e U_0$  sich auf dieser Kreisbahn bewegen können, muß die Bedingungsgleichung

$$M v^2 / r_0 = e E_0 = 2 e U_0 / r_0 \quad (1)$$

erfüllt sein. Die Potentiale der Zylinderelektroden ergeben sich aus der Beziehung

$$U(r) = r_0 E_0 \ln(r_0/r). \quad (2)$$

$M$ ,  $v$  und  $e$  bedeuten die Masse, die Geschwindigkeit und die Ladung des Elektrons. Die leichte relativistische Massenzunahme der Elektronen bei der Beschleunigungsspannung  $U_0 = 10$  kV wurde berücksichtigt.

\* Auszug aus der Dissertation (D 26) von A. BÄUML.

<sup>1</sup> H. EWALD u. H. LIEBL, Z. Naturforsch. 12 a, 28 [1957].

<sup>2</sup> H. WOLLNIK, Nucl. Instr. and Meth. 59, 277 [1968]; s. auch U. CZOK, K. EULER, M. RAUSCHER u. H. WOLLNIK, Nucl. Instr. and Meth. 92, 365 [1971] und H. MATSUDA, Nucl. Instr. and Meth. 91, 637 [1971].

<sup>3</sup> M. BARIL u. L. KERWIN, Canad. J. Phys. 43, 1657 [1965].

<sup>4</sup> S. PENNER u. J. W. LIGHTBODY, Proc. of the International Symposium on Magnet Technology 1965, S. 154 ff.

<sup>5</sup> J. CAMPLAN u. R. MEUNIER, Nucl. Instr. Meth. 57, 251 [1967].

<sup>6</sup> R. HERZOG, Phys. Z. 41, 18 [1940].