

**Entwicklung von neuen Meßmethoden in der
atomar auflösenden Holographie und der
Einfluß der kristallinen Probenstruktur auf
die holographische Rekonstruktion**

DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Andreas Schley
aus Lüneburg

Hamburg
2002

Gutachter der Dissertation : Prof. Dr. G. Materlik
Prof. Dr. G. Zimmerer

Gutachter der Disputation : Prof. Dr. G. Materlik
Prof. Dr. W. Wurth

Datum der Disputation : 25. Oktober 2002

Dekan des Fachbereichs Physik und
Vorsitzender des Promotionsausschusses : Prof. Dr. F.-W. Büßer

Kurzfassung

Atomar auflösende Holographie ist eine Methode, die Nachbarschaft eines Atoms modellfrei zu rekonstruieren. Sie wird seit einigen Jahren erfolgreich mit Hilfe niederenergetischer Elektronen zur Oberflächenanalyse verwendet. Zur Untersuchung der Festkörpereigenschaften werden dagegen Röntgenstrahlen genutzt, da diese tiefer in die Probe eindringen können.

In dieser Arbeit wird geprüft, ob es auch mit hochenergetischen Elektronen möglich ist, Festkörpereigenschaften holographisch zu untersuchen, um dadurch den Aufwand der Experimente zu verringern. Es zeigt sich jedoch, daß die starke Wechselwirkung der hochenergetischen Elektronen mit Materie eine holographische Auswertung der Meßdaten verhindert.

Da bei der Holographie mit Röntgenstrahlung das Verhältnis von Signal zu Untergrund mit einem Faktor von 10^{-4} nur sehr klein ist, wird eine möglichst hohe Meßstatistik der Daten benötigt. Es werden neue Ansätze zur Detektion vorgestellt, die dieses ermöglichen sollen: Zum einen wird die von der Probe emittierte Fluoreszenzstrahlung mit Hilfe von Analysatorkristallen auf eine Diode fokussiert. Zum anderen werden alle von der Probe emittierten Augerelektronen in einer neu entwickelten Meßzelle integral detektiert. Beide Methoden liefern eine wesentlich bessere Statistik der Meßdaten als bisherige Experimente.

Dennoch zeigt sich, daß sich die Qualität der holographischen Rekonstruktionen dieser Daten im Vergleich zu bisherigen Messungen nur unwesentlich verbessert hat. Hier wird gezeigt, daß dieses auf den Einfluß der weit vom untersuchten Atom entfernt liegenden Nachbaratome zurückzuführen ist und daß diese nicht aus den Hologrammdateien entfernt werden können, ohne dabei Artefakte in den Rekonstruktionen zu erzeugen. Ihre langreichweitige Ordnung führt in kristallinen Proben jedoch zur Ausbildung von Kossel-Linien. Es zeigt sich, daß diese alleine ausreichen, um in der Rekonstruktion Artefakte an richtigen Atompositionen zu erzeugen.

Damit ist es nicht möglich, die atomar auflösende Holographie mit Röntgenstrahlen auf kristalline Proben anzuwenden. Dieses stellt die Ergebnisse der meisten bisher veröffentlichten Arbeiten zumindest teilweise in Frage.

Abstract

Development of new methods of measurement in atomic resolution holography and the influence of the crystalline sample structure on the holographic reconstruction

Atomic resolution holography is a model-free method to reconstruct the neighborhood of an atom. In recent years it has been successfully applied to surface analysis using low-energy electrons. Due to their larger penetration depth, X-rays are used to determine the bulk properties of the sample.

This work examines the possibility to use high-energy electrons to holographically probe bulk properties. This would reduce the experimental effort tremendously. However, it appears that the strong interaction of the high-energy electrons with matter prevents a holographic analysis of the measured data.

Due to the small (10^{-4}) signal-to-background ratio in x-ray holography, the statistics of the measured data should be as high as possible. New detection approaches to make this possible are shown: First, the fluorescence radiation of the sample is focused on the detector using an analyzer crystal. Second, all Auger electrons emitted from the sample are detected by a new measurement cell. Both methods produce data with statistics better than all previous measurements.

Nevertheless, the quality of the holographic reconstructions of these data appears to be only marginally better than that of the previous measurements. It is shown that this is due to the influence of the distant neighbor atoms of the examined atom. It is not possible to remove these from the holographic data without producing artifacts in the reconstruction. The long-range order in crystalline samples leads to the formation of Kossel lines. It is shown that these patterns alone are sufficient to produce artifacts at true atomic positions in the reconstruction.

Therefore, it is not possible to use atomic-resolution x-rays holography with crystalline samples. This makes the results of most of the previous published works questionable.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	iii
Abstract	iv
Inhaltsverzeichnis	viii
Abbildungsverzeichnis	x
Einleitung	xi
1 Holographie	1
1.1 Klassische Holographie	1
1.2 Atomar auflösende Holographie	5
1.2.1 Holographie mit interner Quelle	5
1.2.2 Reziproke Holographie	8
1.2.3 Gemischte Methode	10
1.3 Kossel-Linien im Kristall	11
1.4 Rekonstruktion der Hologramme	16
1.4.1 Numerische Rekonstruktion	18
2 Reziproke Elektronenholographie	21
2.1 Experimenteller Aufbau	25
2.2 Meßdaten	28
2.2.1 Messungen der Germanium-K α -Fluoreszenz	28
2.2.2 Messung des Probenstroms	32
2.3 Fazit	37
3 Neue Meßmethoden	41
3.1 Messungen mit Hilfe eines Analysatorkristalls	44
3.2 Messungen an Cu ₃ Au	50
3.2.1 Messungen mit Silizium-Drift-Detektoren	54
3.2.2 Messungen mit dem Elektronendetektor	62

3.3	Fazit	69
4	Kristalline Proben	71
4.1	Rekonstruktion der Kossel-Linien-Muster	72
4.2	Der Einfluß der weiter entfernten Atome	78
4.3	Fazit	85
5	Zusammenfassung und Ausblick	87
	Anhang	90
A	Kohärenz	91
A.1	Zeitliche Kohärenz	92
A.2	Räumliche Kohärenz	92
B	Streuung von Photonen	95
B.1	Streuung am Atom	97
B.2	Dispersionskorrekturen	98
B.3	Herleitung der Hologrammintensität	100
C	Auflistung der Messungen	105
	Literaturverzeichnis	107
	Danksagung	111

Abbildungsverzeichnis

1.1	Allgemeines Prinzip der Holographie	2
1.2	Prinzip der Holographie mit interner Quelle	6
1.3	Prinzip der inversen Röntgenholographie	9
1.4	Gemischte Methode	10
1.5	Entstehung der Kossel-Linien	12
1.6	Cu ₃ Au Cluster mit 1, 2 und 3 Gitterkonstanten Radius	14
1.7	Cu ₃ Au-Cluster mit 4, 6 und 10 Gitterkonstanten Radius	15
1.8	Schema der holographischen Rekonstruktion	17
2.1	Schema des Elektronenstrahl-Experiment	26
2.2	Photo des Probenmanipulators	27
2.3	Strukturen im Fluoreszenzsignal der Germanium Probe	29
2.4	Germanium-K α -Fluoreszenz Daten	31
2.5	Rekonstruktion Germanium-Fluoreszenz	32
2.6	Aufladungseffekte der Probe	33
2.7	Probenstrom des Germaniums	34
2.8	Probenstrom des Silizium (111)	35
2.9	Einfluß zunehmender Energie auf Kossel-Kegel	36
2.10	Rekonstruktion des Silizium-Hologramms	37
2.11	Rekonstruktion des Probenstroms für 17 keV Elektronen	38
3.1	Schematischer Aufbau eines Silizium Drift Detektors	43
3.2	Funktionsweise des Graphit-Analysators	45
3.3	Hologramm von Germanium in Silizium	46
3.4	Germanium in Silizium bei 12 und 14 keV	47
3.5	Germanium in Silizium bei 16 und 18 keV	48
3.6	Aufbau des Elektronendetektors	50
3.7	Kennlinie der Meßzelle	51
3.8	Struktur von Cu ₃ Au	53
3.9	Erster Aufbau	54
3.10	Untergrundsignal der Fluoreszenz-Messung	56

3.11	Daten ersten Detektor	59
3.12	Rekonstruktion des Untergrundsignals des im Pol gelegenen Detektors	60
3.13	Untergrundsignal bei 12 keV	61
3.14	Gemischt gemessenes Hologramm	62
3.15	Meßdaten des verkippten Detektors	63
3.16	Meßaufbau mit dem Elektronendetektor	64
3.17	Vergleich Elektronensignal mit Simulation und Kossel-Linien .	65
3.18	Signal der Augerelektronen	67
3.19	Signal der Kupfer-Fluoreszenz	68
4.1	Simuliertes Kossel Muster der Gold $L\alpha$ Fluoreszenz für einen Cu_3Au -Kristall.	73
4.2	Rekonstruktion des Musters aus Abb 4.1 mit dem normalen Barton-Algorithmus.	74
4.3	Skizze der geometischen Verhältnisse zu den Gl. 4.4-4.11 . . .	75
4.4	Rekonstruktion eines Kossel-Doppel-Kegels in der X - Z -Ebene.	76
4.5	Rekonstruktion des Kossel-Doppel-Kegels in X - bzw. Y -Richtung	77
4.6	Vergl. gefilterter Modell Hologramme mit kl. Cluster	80
4.7	Amplitudenvergl. d. Zerlegung nach Sphärischen Harmonischen versch. Koord.Schalen	82
4.8	Filterung der Daten	83
4.9	Ungeordneter Cluster	84
4.10	Amplitudenvergl. d. Zerlegung nach Sphärischen Harmonischen von zufälligem und geordnetem Cluster	85
A.1	longitudinale Kohärenz	93
A.2	Transversale Kohärenz	94
B.1	Fluoreszenzwahrscheinlichkeit w_f	100

Einleitung

Die Röntgenholographie ist ein neues Verfahren, um die atomare Umgebung einzelner Atome dreidimensional zu bestimmen, ohne daß dazu zusätzliche Informationen über die Probe notwendig sind. Darin unterscheidet sie sich von den sonst in der Kristallographie üblichen Verfahren zur Strukturbestimmung. Diese beginnen mit einem Startmodell, welches mit iterativen Verfahren immer weiter verbessert wird, bis es gegen die endgültigen Lösung der Struktur konvergiert.

Ursprünglich wurde die Holographie in den 40er Jahren von Dennis Gabor als Verfahren entwickelt, um das Auflösungsvermögen von Elektronenmikroskopen zu verbessern [1]. Aber erst mit der Erfindung des Lasers in den 60er Jahren stand eine intensive Strahlungsquelle mit der für die Holographie nötigen Kohärenz zur Verfügung. Seitdem haben sich viele verschiedene technische Anwendungen der Holographie entwickelt. Um allerdings atomare Strukturen abbilden zu können braucht man kohärente Strahlung mit Wellenlängen in der Größenordnung atomarer Abstände, also im Bereich einiger Angström. Außerdem muss die Quelle der Strahlung möglichst punktförmig sein um die transversale Kohärenz der Welle zu gewährleisten. Mit konventionellen Techniken sind deshalb nur Auflösungen von einigen Nanometern möglich.

1986 schlug Abraham Szöke daher vor, die Atome der untersuchten Probe selbst als ideale punktförmige Quelle für die Holographie zu nutzen und mit Hilfe der von diesen emittierten Strahlung, seien es Photoelektronen oder Fluoreszenzstrahlung, deren atomare Umgebung holographisch abzubilden [2]. Diese Idee führte Anfang der 90er Jahre zur Entwicklung der Photoelektronen-Holographie und später, ab Mitte der 90er Jahre, zur Röntgenholographie mit Hilfe der von den Atomen ausgesandten Fluoreszenzstrahlung.

Die Holographie mit Photoelektronen ist aufgrund der starken Wechselwirkung der Elektronen mit Materie sehr oberflächensensitiv und wird auf die-

sem Gebiet schon längere Zeit erfolgreich angewandt. Dagegen eignet sich die Röntgenfluoreszenzholographie aufgrund der schwachen Wechselwirkung der Photonen mit der Probe besser zur Untersuchung von Festkörperstrukturen.

Diese schwache Wechselwirkung macht es nötig, nicht nur das Hologramm eines einzelnen Atoms zu untersuchen, sondern gleichzeitig die Hologramme vieler Atome mit gleichorientierter Umgebung aufzunehmen. Deshalb wurden Röntgenholographie-Experimente nur an Einkristallen durchgeführt.

Neben der Holographie mit interner Quelle gibt es auch noch die *inverse* oder auch *reziproke* Methode. Hierbei sind die Position von Emitter und Detektor vertauscht. Der im Unendlichen liegende Emitter wird durch eine einlaufende ebene Welle repräsentiert und ein Atom in der Probe dient als Detektor. Mit Hilfe eines Sekundärsignals dieses Atoms kann das Hologramm von dessen atomarer Umgebung dann außerhalb der Probe detektiert werden.

In der reziproken Röntgenfluoreszenzholographie kann die Energie, mit der das Hologramm erzeugt wird, frei gewählt werden und ist nicht auf die charakteristischen Fluoreszenzlinien der Probenatome beschränkt. Sie erlaubt es außerdem, neben der Fluoreszenzstrahlung auch andere Sekundärsignale der Probe zur Hologramm-Messung zu benutzen und diese dabei über einen großen Raumwinkel integrierend zu messen. Dieses verbessert die Meßstatistik erheblich gegenüber der *direkten* Methode, deren Winkelauflösung von einer möglichst kleinen Detektorfläche abhängig ist.

Die Ziele dieser Arbeit sind zweierlei. Zum einen soll untersucht werden, ob es möglich ist, die reziproke Holographie an Festkörpern auch ohne die Synchrotronstrahlung eines Speicherrings zu betreiben. Dazu wurden Experimente mit hochenergetischen Elektronen als einfallender Primärstrahl vorgenommen. Zum anderen sollen neue Methoden entwickelt werden, die Statistik der holographischen Messungen zu verbessern. Dazu wird die Tatsache genutzt, daß es in der reziproken Holographie möglich ist, das Sekundärsignal des Atoms über einen größeren Raumwinkel zu messen.

Im Folgenden behandelt Kapitel 1 das allgemeine Prinzip der Holographie und erweitert dieses auf die atomar auflösende Holographie nach der Idee von Abraham Szöke mit den beiden möglichen Methoden, der direkten und der reziproken Holographie. Danach wird auf die Ausbildung von sogenannten Kossel-Linien in den Hologrammen eingegangen und schließlich die numerische Rekonstruktion der Hologramm-Daten nach dem Ansatz von John J. Barton behandelt.

In Kapitel 2 wird ein Experiment vorgestellt, um das Konzept der reziproken Holographie auch auf die Elektronenholographie anzuwenden. Dabei wird ein

Elektronenstrahl mit einer Energie von ca. 20 keV als Primärstrahl genutzt, um die Festkörperstruktur verschiedener Halbleiter-Kristalle zu untersuchen. In diesen Messungen werden sowohl die Fluoreszenzstrahlung der Probe als auch deren Emission von Augerelektronen zur Detektion der Hologramme genutzt.

Danach werden in Kapitel 3 neue Meßmethoden für die reziproke Röntgenfluoreszenzholographie beschrieben. Es werden zum einen fokussierende Optiken eingesetzt, um die Photonenausbeute der Röntgendetektoren zu erhöhen, und zum anderen die von der Probe emittierten Augerelektronen mit einer speziellen Meßzelle als Sekundärsignal gemessen. Diese verbesserten Meßmethoden werfen dabei ein neues Licht auf den Einfluß der kristallinen Probenstruktur in der atomar auflösenden Holographie.

Kapitel 4 geht daher genauer auf den Einfluß der langreichweitigen Ordnung der Kristalle auf die Holographie ein. Es wird gezeigt, daß die Kossel-Linien, die als Folge dieser langreichweitigen Ordnung auftreten, in der Rekonstruktion der Hologramme Artefakte an Atompositionen erzeugen. Schließlich wird die Frage untersucht, ob sich die Einflüsse der weit vom Detektor bzw. Emitter entfernten Atome aus den Hologrammen entfernen lassen. Dabei werden alle bisher veröffentlichten Ergebnisse holographischer Messungen an Kristallen in Frage gestellt.

Schließlich werden die Ergebnisse dieser Arbeit in Kapitel 5 noch einmal zusammengefasst und ein Ausblick auf die zukünftige Entwicklung der atomar auflösende Holographie gegeben.

Kapitel 1

Holographie

1.1 Klassische Holographie

In optischen Verfahren werden Linsen verwendet um ein Objekt abzubilden. Die Qualität dieser Abbildung wird dabei durch die verwendeten optischen Elemente bestimmt. Linsen verursachen mit ihrem endlichen Durchmesser Beugungseffekte, die punktförmige Objekte in der Abbildung zu sogenannten Beugungsscheibchen ausdehnen. Daher begrenzt das Verhältnis von verwendeter Wellenlänge zu Linsen-Durchmesser, λ/d , die maximale Auflösung einer Linse (Rayleighsches Kriterium).

In den 40^{er} Jahren erdachte Dennis Gabor ein neues Abbildungsverfahren um das Auflösungsvermögen von Elektronenmikroskopen von damals 12 Å zu verbessern und mit ihnen atomare Auflösung zu erreichen [1]: Die minimalen theoretischen Aberrationen der Linsen für sichtbares Licht sind kleiner als die der Elektronen-Linsen. Daher plante er das Wellenfeld der Elektronen zu speichern und anschließend in ein optisches Wellenfeld zu übertragen. An diesem können dann die Fehler der verwendeten Elektronen-Linsen optisch soweit ausgeglichen werden, daß mit diesem kombinierten Verfahren aus Elektronen- und Photonenoptik schließlich eine atomare Auflösung erreicht werden kann.

Um dieses Verfahren zu realisieren, ist es nötig, das Wellenfeld der am untersuchten Objekt gestreuten Elektronen zu bestimmen. Man braucht also ortsaufgelöst dessen Amplitude und Phase. Speichert man das Feld durch einfaches Belichten eines photographischen Films, geht dessen Phaseninformation verloren, da die Schwärzung des Films nur von der Intensität des Feldes im zeitlichen Mittel, also dessen Amplitudenquadrat, abhängt.

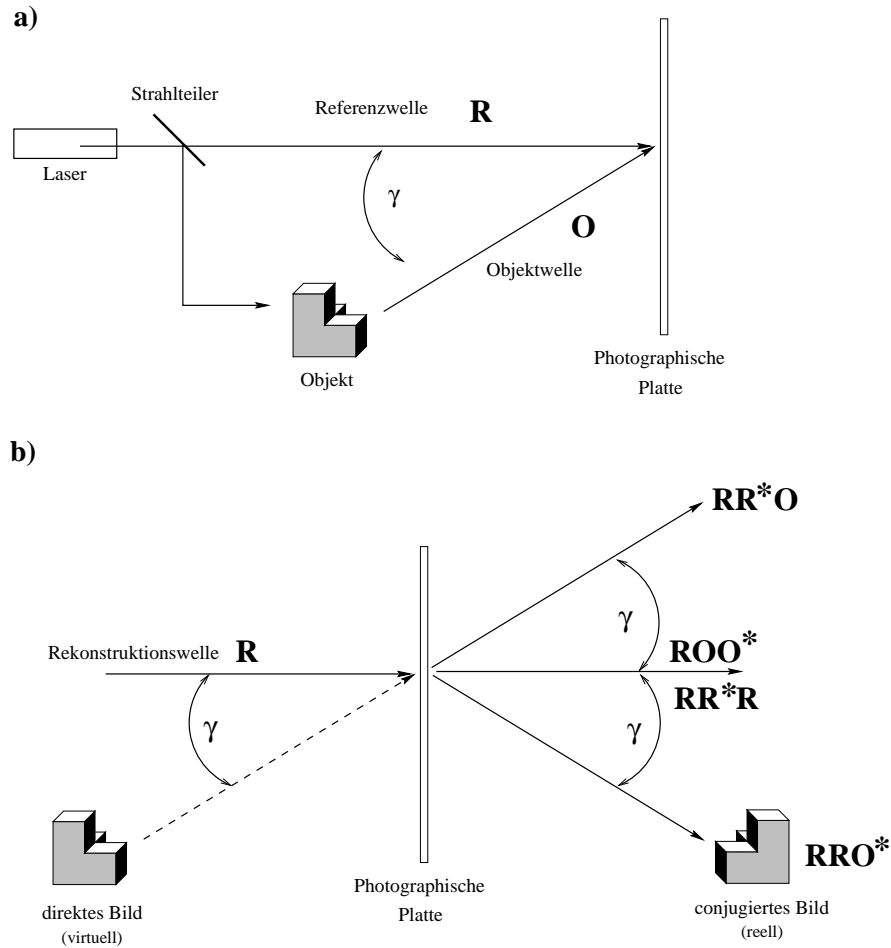


Abbildung 1.1: Das Prinzip der Holographie:

a) Erzeugung eines Hologramms mit sichtbarem Licht. Ein kohärenter Laserstrahl wird mit Hilfe eines Strahlteilers aufgeteilt. Ein Teil beleuchtet das abzubildende Objekt und erzeugt so die Objektwelle \mathbf{O} . Diese überlagert sich auf einer photographischen Platte mit dem anderen, ungestreuten Teil des Laserstrahls, der Referenzwelle \mathbf{R} . Das Interferenzmuster der Überlagerung der beiden Strahlen bildet das Hologramm des Objekts.

b) Durch Bestrahlen des aufgenommenen Hologramms mit der Rekonstruktionswelle \mathbf{R} ergeben sich: Das virtuelle Bild des Objekts $|\mathbf{R}|^2\mathbf{O}$ hinter der Holographischen Aufnahme und das reelle, konjugierte Bild vor dem Hologramm $\mathbf{R}^2\mathbf{O}^*$ – beide jeweils unter dem Winkel γ zur Optischen Achse, Referenzstrahl $|\mathbf{R}|^2\mathbf{R}$ und Speckel Muster $\mathbf{R}|\mathbf{O}|^2$ in Richtung des Referenzstrahls.[3]

Es ist möglich, die Phaseninformation zu erhalten, indem man der Objektwelle bei der Aufnahme eine kohärente Referenzwelle überlagert. Die beiden Wellen interferieren dort konstruktiv, wo Referenz- und Objektwelle in Phase sind, und destruktiv, wo sie gegenphasig zueinander sind. Das resultierende Interferenzmuster enthält also die Information über die Phase der Objektwelle *relativ* zur Referenzwelle. Dieses Muster nannte Gabor das Hologramm des Objekts, es läßt sich durch belichten einer hochauflösenden, photographischen Platte als Negativ speichern.

Durchleuchtet man dieses Negativ des Hologramms mit einer Welle der selben Wellenlänge und Richtung wie die ursprüngliche Referenzwelle – man nennt dies nun die Rekonstruktionswelle – wird deren Intensität durch das Hologramm moduliert. Die resultierende Welle erhält dadurch die Intensitäts- und Phasenverteilung des ursprünglichen Wellenfeldes aus Objekt- und Referenzwelle. Gabor zeigte mathematisch, daß es immer möglich ist, aus dem gespeicherten Hologramm eines beliebig komplizierten Objekts dessen Wellenfeld zu rekonstruieren. Verwendet man zur Rekonstruktion der Objektwelle eine Referenzwelle mit einer anderen Richtung oder Energie als die ursprüngliche Referenzwelle, erhält man nur ein verzerrtes Bild des Objekts.

Die Tatsache, daß das Hologramm die Phaseninformation der Objektwelle speichert, hat zur Folge, daß man mit ihm die gesamte dreidimensionale Information über das Objekt besitzt, im Gegensatz zu der rein zweidimensionalen Information einer konventionellen Abbildung. Dieser Aspekt der Holographie hat in den vergangenen 50 Jahren deren wichtigste Anwendungen ausgemacht, während eine Auflösung atomarer Strukturen erst in den letzten zehn Jahren erreicht werden konnte. Dieses liegt unter anderem am Fehlen geeigneter Quellen kohärenter Strahlung mit der benötigten Wellenlänge von 1 \AA und darunter. Erst die Erfindung des Lasers in den 60er Jahren machte eine technische Anwendung des holographischen Prinzips möglich. Mit ihm hatte man eine geeignete Quelle intensiver kohärenter Strahlung, allerdings im Frequenzbereich sichtbaren Lichts, was eine atomare Auflösung unmöglich macht.

Die Kohärenz zwischen der Referenz- und Objektwelle ist für die Holographie von entscheidender Bedeutung (vgl. Anhang A). Dieses wird am einfachsten dadurch erreicht, daß ein kohärenter Strahl mit einem Strahlteiler in zwei Strahlen aufgeteilt wird. Der eine Strahl beleuchtet dann direkt den photographischen Film, mit dem das Hologramm aufgenommen werden soll. Der zweite Strahl beleuchtet das aufzunehmende Objekt und erzeugt damit die Objektwelle, vgl. Abb 1.1a. Damit ist sichergestellt, das Objekt- und Referenzwelle immer zueinander kohärent sind.

Die Intensität auf dem photographischen Film, mit dem man das Hologramm aufnimmt, besteht aus dem zeitlichen Mittel der kohärenten Überlagerung der Referenzwelle \mathbf{R} und der Objektwelle \mathbf{O} :

$$I = |\mathbf{R} + \mathbf{O}|^2 = |\mathbf{R}|^2 + \mathbf{R}^*\mathbf{O} + \mathbf{R}\mathbf{O}^* + |\mathbf{O}|^2 \quad (1.1)$$

$|\mathbf{R}|^2$ ist die Intensität der Referenzwelle, $|\mathbf{O}|^2$ die Intensität der Objektwelle. Die Phaseninformation des Hologramms ist in den Termen $\mathbf{R}^*\mathbf{O}$ und $\mathbf{R}\mathbf{O}^*$ enthalten.

Das Bild des Objekts erhält man, indem man das Hologramm mit einer kohärenten Rekonstruktionswelle \mathbf{R}^* mit der selben Wellenlänge wie die ursprüngliche Referenzwelle beleuchtet, vgl. Abb 1.1b. Dabei wird die Intensität der Rekonstruktionswelle durch das Hologramm moduliert. Bei einer konstanten Referenzwelle ergibt sich damit:

$$\begin{aligned} \mathbf{R}^*I &= \mathbf{R}^*|\mathbf{R} + \mathbf{O}|^2 \\ &= |\mathbf{R}|^2\mathbf{R} + |\mathbf{R}|^2\mathbf{O} + \mathbf{R}^2\mathbf{O}^* + |\mathbf{O}|^2\mathbf{R} \end{aligned} \quad (1.2)$$

Im Einzelnen besteht das resultierende Feld aus folgenden Anteilen: Einem konstanter Hintergrund $|\mathbf{R}|^2\mathbf{R}$, dem Streubild (Speckel Muster) des Objekts $|\mathbf{O}|^2\mathbf{R}$, dem gesuchten direkten Bild des Objekts $|\mathbf{R}|^2\mathbf{O}$ und dessen konjugierten Bild $\mathbf{R}^2\mathbf{O}^*$.

Da die Kohärenzlänge des Elektronenmikroskops zu gering war, um den Elektronenstrahl in zwei Teile aufzuteilen, mußte Gabor in seinem ursprünglich Experiment das Objekt mit der Referenzwelle durchstrahlen. Der kleine, am Objekt gestreute Anteil der Referenzwelle stellt dann die Objektwelle dar. Dieses Verfahren funktioniert also nur mit dünnen Proben, die den größten Teil der Referenzwelle unbeeinflusst lassen und dabei selber als Strahlteiler fungieren. Bei dieser sogenannten *Inlineholographie* liegen das direkte und das konjugierte Bild des Objekts auf der Optischen Achse und können sich dadurch gegenseitig stören. Dieses wird in der optischen Holographie durch die Anordnung des Experiments vermieden: Referenz- und Objektwelle treffen aus verschiedenen Richtungen auf die photographische Platte. Dadurch liegen direktes und konjugiertes Bild auf unterschiedlichen Winkeln zur Optischen Achse und können sich nicht mehr beeinflussen.

1.2 Atomar auflösende Holographie

Der Anwendung der Holographie auf atomare Strukturen, so wie sie von Gabor vorgesehen war, standen lange Zeit technische Schwierigkeiten entgegen:

Um das Untersuchungsobjekt zu beleuchten und diese Objektwelle anschließend mit einer kohärenten Referenzwelle zu überlagern, ist es in der Lichtoptik üblich, einen Primärstrahl in zwei, zueinander kohärente Lichtstrahlen aufzuteilen. Die longitudinale Kohärenzlänge der Elektronen eines Elektronenmikroskops ist mit ca. $1\ \mu\text{m}$ jedoch zu kurz, um dasselbe für die Elektronenholographie zu realisieren.

Ein anderer Ansatz ist, sich mit der Elektronenquelle möglichst nahe an die Probe zu bewegen, so daß der Abstand der Quelle zum Objekt kleiner als die longitudinale Kohärenzlänge ist und dann in der ursprünglich von Gabor vorgeschlagenen Inline-Geometrie das Hologramm aufzunehmen.

In der Elektronenmikroskopie beschränkt die endliche Ausdehnung der Emissionsspitze die transversale Kohärenz des Elektronenstrahls und damit die maximal erreichbare Auflösung des Hologramms (vgl. Anhang A).

1.2.1 Holographie mit interner Quelle

Um die oben genannten Beschränkungen für die Holographie mit Elektronen zu umgehen, schlug Abraham Szöke 1986 vor, direkt die Atome der Probe als Punktquelle für die Referenzwelle zu nutzen [2]. Die von einem Atom emittierten Photoelektronen werden als Elektronenwelle zum Teil an dessen Nachbaratomen gestreut und überlagern sich am Detektor im Fernfeld mit dem ungestreuten Anteil der Welle. Die räumliche Modulation dieses Interferenzmusters stellt dann das Hologramm der Umgebung des Emitters dar.

Die besonders nahe am Atomkern lokalisierten Elektronen der K-Schale sind dabei ideale punktförmige Quellen für die Photoelektronen. Um diese besonders stark gebundenen Elektronen anzuregen, benötigt man energiereiche Röntgenstrahlung. Die kinetische Energie der Photoelektronen läßt sich – als Differenz zwischen der Photonen- und der Bindungsenergie der Elektronen – durch geeignete Wahl der Röntgenstrahlung frei wählen.

Für die vom Atom als Fluoreszenz abgestrahlte Röntgenstrahlung gelten dieselben Überlegungen wie für die Photoelektronen, mit der Ausnahme, daß man in der Energie der Strahlung auf die charakteristischen Fluoreszenzlinien der jeweiligen Atome beschränkt ist.

Um die Umgebung eines Atoms zu untersuchen sind Abstände von einigen nm von Interesse. Da die Kohärenzlänge der Fluoreszenzstrahlung der Atome in der Größenordnung von $\Delta\lambda/\lambda \approx 10^{-4} m$ liegt, ist in der atomar auflösende Holographie die Kohärenzbedingung immer erfüllt. In der Folgezeit entwickelten sich aus Szökes Idee sowohl die Röntgenfluoreszenzholographie (*XFH* – *X-ray Fluorescence Holography*) als auch die Elektronenholographie, beide – bedingt durch die unterschiedlich starke Wechselwirkung von Photonen und Elektronen mit Materie – mit unterschiedlichen Schwerpunkten.

Um aus dem gemessenen Hologramm das Bild der atomaren Umgebung zu

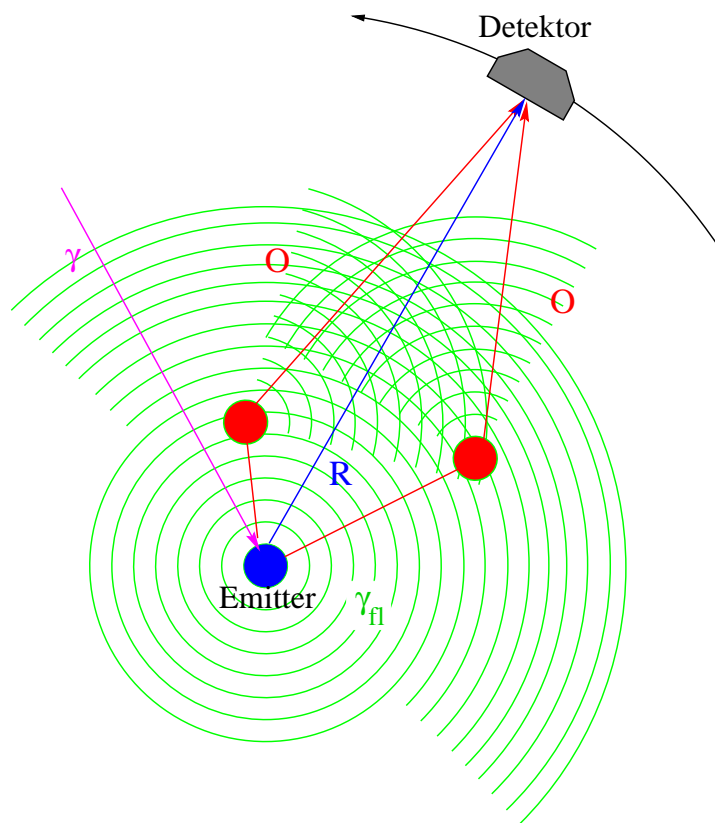


Abbildung 1.2: Prinzip der Holographie mit interner Quelle:
Ein Atom der Probe wird durch Röntgenstrahlung zur Fluoreszenz angeregt. Die emittierte Strahlung wird teilweise an den Nachbaratomen gestreut. Am Detektor überlagern sich direkte und gestreute Strahlung und erzeugen das Hologramm der atomaren Umgebung des Atoms

erhalten, schlug Szöke die Verwendung eines Strukturverfeinerungsverfahrens vor, ähnlich den in der Kristallographie üblichen Verfahren. John J. Barton zeigte in seiner Arbeit von 1988 [4], daß die schon damals bekannte winkelabhängige Photoelektronen-Streuung [5, 6] als Photoelektronen Holographie umgedeutet werden kann. Mit Hilfe des Helmholtz-Kirchhoffschen Integral-Theorems konnte er eine einfache Gleichung herleiten, welche es erlaubt, aus dem bei einer Energie winkelaufgelöst gemessenen Hologramm $\chi(\theta_k, \phi_k)$ das Bild $\psi_k(\mathbf{r})$ der ursprünglichen Atom-Anordnung zu rekonstruieren:

$$\psi_k(\mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi R^2} \iint \chi(\hat{\mathbf{k}}) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} d\mathbf{k}. \quad (1.3)$$

Dabei wird die Integration über alle Richtungen $\hat{\mathbf{k}}$ des Hologramms durchgeführt. Diese Gleichung wird später, in Abschnitt 1.4, genauer hergeleitet. Anhand simulierter Hologramme mit Elektronen konnte Barton die Wirksamkeit des Algorithmus demonstrieren.

1990 zeigten Harp, Saldin und Tonner eine erste Anwendung des holographischen Prinzips mit Elektronen an einem Kupferkristall [7]. Die an einem Kupfer-Atom durch quasielastische Streuung entstehenden Kikuchi-Elektronen, mit einer Energie von ca. 1 keV , werden an den umliegenden Atomen im wesentlichen vorwärts gestreut. Das so entstehende Streubild wurde als Hologramm interpretiert und mit Hilfe von Bartons Algorithmus rekonstruiert. Die Rekonstruktion zeigte Maxima an den Positionen der nächsten Nachbarn.

In einer anderen Arbeit aus dem Jahre 1990 zeigen Saldin und de Andres [8] eine erste holographische Interpretation von *diffuse low-energy electron diffraction* (DLEED) Mustern. Das DLEED Muster wird von Elektronen erzeugt, die an den Oberflächenatomen der Probe gestreut werden. Diese Atome haben keine langreichweitige Ordnung (weniger als eine Monolage Bedeckung), aber bedingt durch die immer gleiche Bindung an die Oberfläche alle dieselbe Substratumgebung. In diesem Fall erzeugt die Superposition von an den Oberflächenatomen gestreuten Elektronen, die direkt den Detektor treffen, und solchen, die am Substrat zum Detektor zurück gestreut werden, das Hologramm.

Die erste Umsetzung der Holographie mit interner Quelle für Fluoreszenzstrahlung (XFH) erfolgte 1996 durch M. Tegze und G. Faigel [9]. Da die Röntgenphotonen wesentlich schwächer mit Materie wechselwirken als die Elektronen, kann bei ihnen die Mehrfachstreuung, außer unter der Bragg-Bedingung, vernachlässigt werden.

Da die atomar auflösenden Holographie eine Form der Inline-Holographie

ist, lassen sich bei ihr die sogenannten Zwillingbilder nicht von den wirklichen Bildern der Atome trennen. Die Entstehung der Zwillingbilder läßt sich durch den $\mathbf{R}^2\mathbf{O}^*$ -Term in Gl. (1.2) erklären. Dies hat zur Folge, daß neben dem eigentlichen Atom am Ort \mathbf{r} in der Rekonstruktion ein weiteres Atom am Ort $-\mathbf{r}$ gefunden wird. Befindet sich, wie bei zentrosymmetrischen Strukturen, am Ort $-\mathbf{r}$ ebenfalls ein Atom, kann sich dessen Bild mit dem Zwillingbild überlagern. Da die Phasen von Bild und Zwillingbild, abhängig von der verwendeten Energie, unterschiedlich sein können, löschen sich die beiden Bilder gegenseitig aus, falls die Bedingung

$$|\mathbf{r}| = \lambda(2m + 1)/4, \quad (1.4)$$

mit $m \in \mathbb{N}$ erfüllt ist.

Um diese Effekte auszugleichen, schlug Barton 1991 vor, bei verschiedenen Energien aufgenommene Hologramme zu kombinieren [10]:

$$\psi(\mathbf{r}) = \int_{|k|} \psi_k(\mathbf{r}) e^{-ikr} dk \quad (1.5)$$

Der zusätzliche energieabhängige Term in Gl. 1.5 bewirkt, daß die Phase des Bildes des Atoms konstant bleibt, während sich dessen Zwillingbild in der Integration weghebt. Dieses Verfahren wird Mehrenergiemethode (*MEXH* – Multiple Energy X-Ray Holography) genannt.

1.2.2 Reziproke Holographie

Im Gegensatz zur Photoelektronenholographie ist man bei der Röntgenfluoreszenzholographie in der Wahl der Energie, mit der man das Hologramm aufzeichnet, auf die charakteristischen Fluoreszenzlinien der jeweiligen Atomsorte angewiesen. Dieses schränkt die Anwendung der Mehrenergiemethode ein. Erst durch die Ausnutzung des Prinzips der Austauschbarkeit von Quelle und Detektor in der Optik war es möglich, Röntgenhologramme bei beliebigen Energien aufzunehmen [11]:

Dient die Feldverteilung an einem Punkt A als Quelle für das Feld an einem anderen Punkt B , so ist dieses gleichbedeutend damit, daß das Feld am Punkt B die Feldverteilung am Ort A erzeugen würde. Eine genaue Herleitung dazu findet sich z.B. in [12]. Dieses Austauschbarkeitsprinzip macht es in der Holographie möglich, daß ein Atom in der Probe als Detektor fungiert, während die Strahlungsquelle quasi im unendlichen liegt. Eine einlaufende ebene Welle wird teilweise an den umliegenden Atomen gestreut

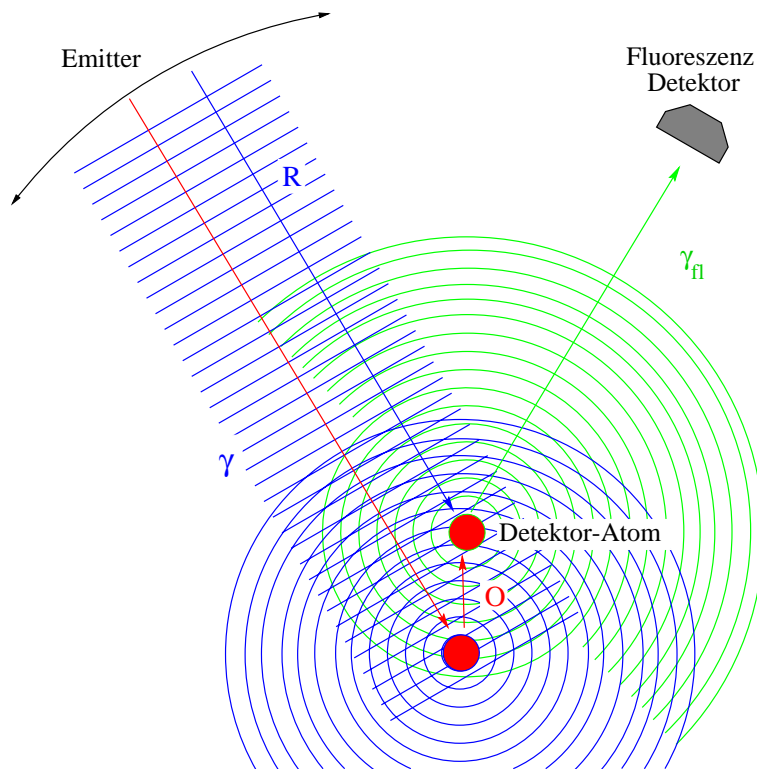


Abbildung 1.3: Prinzip der inversen Röntgenholographie: Eine einlaufende ebene Welle wird zum Teil an den Nachbaratomen gestreut und überlagert sich am Ort des Detektor-Atoms mit der ungestreuten Welle. Die Intensität am Atomort variiert mit der Einfallsrichtung der ebenen Welle und regt dabei das Atom zur Emission von Röntgenphotonen oder Augerelektronen an. Diese werden dann im Fernfeld detektiert.

und überlagert sich dann am Detektor-Atom mit seinem ungestreuten Anteil. Abhängig von der Einfallsrichtung der ebenen Welle ändert sich dadurch die Gesamtfeldstärke am Ort des Atoms. Ein von dieser Feldstärke abhängiges Sekundärsignal des Atoms, wie z.B. dessen Fluoreszenzstrahlung oder Augerelektronen-Emission, kann dann mit einem Detektor außerhalb der Probe gemessen werden. Dieses Verfahren wird die *inverse* oder auch *reziproke* Holographie genannt.

Auch in der reziproken Methode ist für die einfallende ebene Welle nur eine Kohärenzlänge in der Größenordnung der atomaren Abstände von Nöten: Um ein Nachbaratom abzubilden, das sich aus Sicht der einfallenden Welle im Abstand a hinter dem Detektor-Atom befindet, muß diese als Objekt-

welle um 180° zurück gestreut werden. Damit der gestreute mit dem ungestreuten Anteil noch interferieren kann, muß daher die Kohärenzlänge der benutzten Strahlung nur größer als $2 \times a$ sein. Da die Kohärenzlänge der Synchrotronstrahlung, die für die reziproke Holographie genutzt wird, in der Größenordnung von $1 \mu\text{m}$ liegt, ist diese Forderung immer erfüllt.

1.2.3 Gemischte Methode

Fällt eine ebene Welle unter variierendem Einfallswinkel auf eine Probe, finden immer beide Interferenzprozesse, denen die direkte und die reziproke Holographie entsprechen, gleichzeitig statt:

Die einlaufende Welle wird teilweise an den umliegenden Atomen gestreut, bevor sie das Fluoreszenzatom erreicht. Die Überlagerung mit dem ungestreuten Anteil der Welle erzeugt am Ort des Detektor-Atoms die Hologramm-

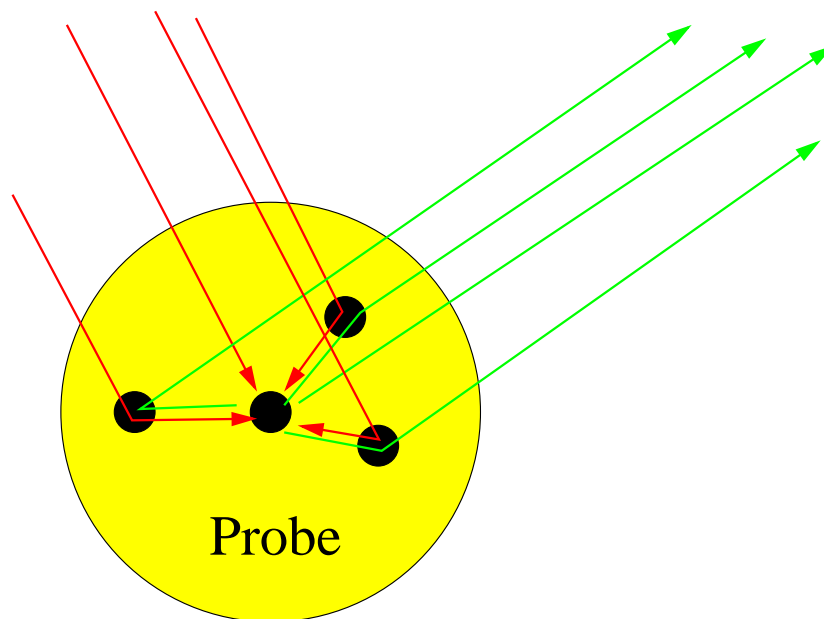


Abbildung 1.4: Gemischte Methode:

Ein Atom der Probe wird zu Fluoreszenz angeregt. Diese Fluoreszenzstrahlung erzeugt beim Verlassen der Probe ein Hologramm der atomaren Umgebung des Emitters. Diesem Hologramm ist ein zweites Hologramm überlagert, welches durch die Streuung der den Emittter anregenden einfallenden Strahlung an dessen Nachbarn erzeugt wird.

Modulation. Die von diesem als Sekundärsignal abgestrahlte Fluoreszenzstrahlung trägt in ihrer Intensität die Hologramm-Information über die Nachbarschaft des Atoms.

Ein Teil dieser Fluoreszenz wird ebenfalls an den umliegenden Atomen gestreut bevor er den Detektor erreicht. An diesem überlagern sich dann der gestreute und der ungestreute Anteil der Fluoreszenzstrahlung zu einem *direkten* Hologramm. Das schließlich detektierte Signal ist also eine Überlagerung zweier Hologramme: zum einen das reziproke Hologramm, das von der einlaufenden Welle erzeugt wird und zum anderen das direkte Hologramm der energetisch niedriger liegenden auslaufenden Fluoreszenzstrahlung. Um diese Hologramme zu trennen, ist es nötig, die Position des Detektors bezüglich der Probe festzuhalten, in diesem Fall bestimmt nur das reziproke Hologramm der einfallenden Strahlung das Detektorsignal. Oder die Einfallsrichtung der einfallenden Welle auf die Probe wird konstant gehalten, in diesem Fall bestimmt nur das direkte Hologramm der Fluoreszenz das Detektorsignal.

1.3 Kossel-Linien im Kristall

In Abschnitt 1.2.1 wurde das Prinzip der Holographie mit interner Quelle beschrieben. Diese berücksichtigt nur die Streuung an einigen wenigen Nachbaratomen und vernachlässigt den Einfluß einer möglichen langreichweitigen Ordnung innerhalb der untersuchten Probe.

Schon durch die im Vergleich zu Elektronen geringere Wechselwirkung der Photonen mit Materie nimmt die Zahl der am Hologramm beteiligten Nachbaratome in der Röntgenfluoreszenzholographie gegenüber der Elektronenholographie zu. Damit steigt die Zahl der Objektwellen, die sich am Detektor mit der Referenzwelle und auch miteinander überlagern. Weisen nun die Nachbaratome eine regelmäßige Anordnung auf, handelt es sich bei der untersuchten Probe z.B. um einen Einkristall, werden sich die Objektwellen in bestimmten Richtungen konstruktiv überlagern.

Im Grenzfall eines wirklich großen Volumens beschreibt man die Streuung der Fluoreszenzstrahlung des Emitter-Atoms an seinen Nachbaratomen nur noch durch die Bragg-Bedingung.

$$2d \sin \theta = \lambda \quad (1.6)$$

Zu jeder vorhandenen Netzebene in der Probe gibt es danach einen Winkel, den Bragg-Winkel, unter dem die Objektwellen konstruktiv interferieren

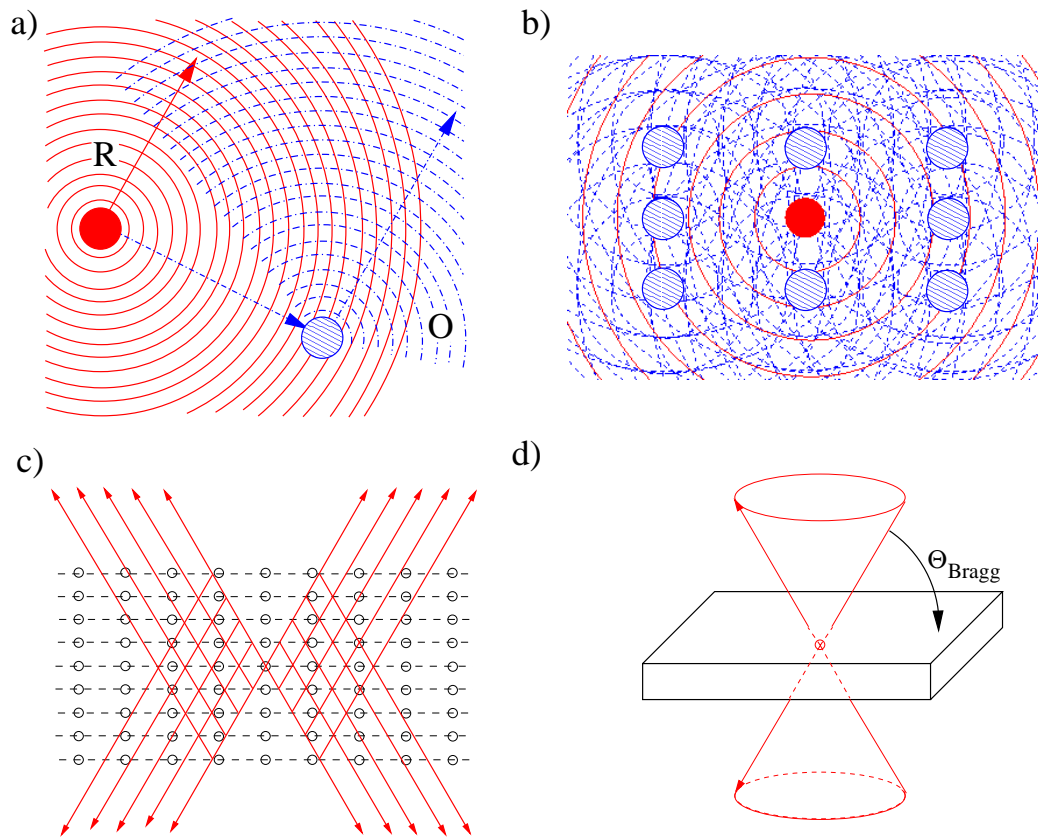


Abbildung 1.5: Entstehung der Kossel-Linien aus der Holographie mit interner Quelle:

a) Die Fluoreszenzstrahlung des Emitter-Atoms wird an einem Nachbaratom gestreut und überlagert sich im Fernfeld (in Richtung der Pfeile) mit der ungestreuten Referenzwelle zum Hologramm.

b) Die Anzahl der Nachbaratome nimmt zu. Die langreichweitige Ordnung des Kristalls wird sichtbar.

c) Darstellung für eine noch größere Anzahl Atome. Die Streuung an den Atomen lässt sich durch die Reflexion an Gitterebenen beschreiben. Bei Reflexion unter dem Bragg-Winkel kommt es zur konstruktiven Interferenz zwischen den Strahlen.

d.) Makroskopisches Bild: Aufgrund der Rotationssymmetrie des Bragg-Gesetzes zur Netzebenen-Normalen liegen die konstruktiven Interferenzen auf einem (Doppel-)Kegel.

können. Da das Bragg-Gesetz rotationssymmetrisch um den reziproken Gittervektor der Netzebene ist, liegen die Maxima der Interferenz auf Kegeln um den jeweiligen reziproken Gittervektor.

Diese Kegel wurden 1934 von Walther Kossel zum ersten mal in der charakteristischen Emission einer Röntgenröhre nachgewiesen [13], und heißen seitdem im Röntgenbereich *Kossel-Linien*. Diese Linienmuster können auch auf andere Weise entstehen. Zum Beispiel verlieren die an einem Atom quasi-elastisch gestreuten Elektronen die Information über ihre ursprüngliche Einfallrichtung und können deshalb so behandelt werden, als ob sie von diesem Atom emittiert wurden. Man nennt diese Elektronen Kikuchi-Elektronen [14]. Sie können unter den selben Bedingungen wie die Fluoreszenzstrahlung konstruktiv interferieren. Man spricht in diesem Fall dann von *Kikuchi-Linien*. Auch in der Emission von thermischen Neutronen [15] wurden entsprechende Linienmuster nachgewiesen.

Auch im Falle der inversen Holographie können die gleichen Linienmuster auftreten: Trifft die einfallende ebene Welle unter dem Bragg-Winkel auf eine Netzebene der Probe, führt die konstruktive Interferenz der Objektwellen zu einer Verstärkung des Sekundärsignals am Detektor-Atom. Man spricht in diesem Fall von inversen Kossel-Linien bzw. im Falle von gestreuten Elektronen von inversen Kikuchi-Linien. Da die Streuung von ebenen Wellen einfacher zu beschreiben ist als die von Kugelwellen, wurde die Struktur der Kossel-Linien auch zuerst von Max von Laue mit Hilfe des Zeitumkehrbarkeits-Prinzips erklärt [12].

In Abb. 1.6 und Abb. 1.7 wird anhand von simulierten Cu_3Au -Kristall-Clustern dargestellt, wie sich mit zunehmender Clustergröße in den Hologrammen aus einzelnen Intensitätsmaxima langsam die Kossel-Linien herausbilden. Das Hologramm eines einzelnen Atoms besteht aus konzentrischen Ringen von abwechselnd maximaler und minimaler Intensität und ähnelt damit einer Fresnellschen Zonenplatte. Im Hologramm der ersten 18 Nachbarn, dieses entspricht einem Cluster-Radius von einer Gitterkonstanten, kann man noch grob die Überlagerung dieser Ringstrukturen für die einzelnen Atome erkennen. Mit zunehmender Größe des Clusters steigt die Komplexität des Hologramms, wobei die Winkeldurchmesser einzelner Maxima im Hologramm abnimmt. Für den Cluster mit zehn Gitterkonstanten Radius erhält man ein Hologramm, bei dem sich schon die ersten Kossel-Linien herausbilden.

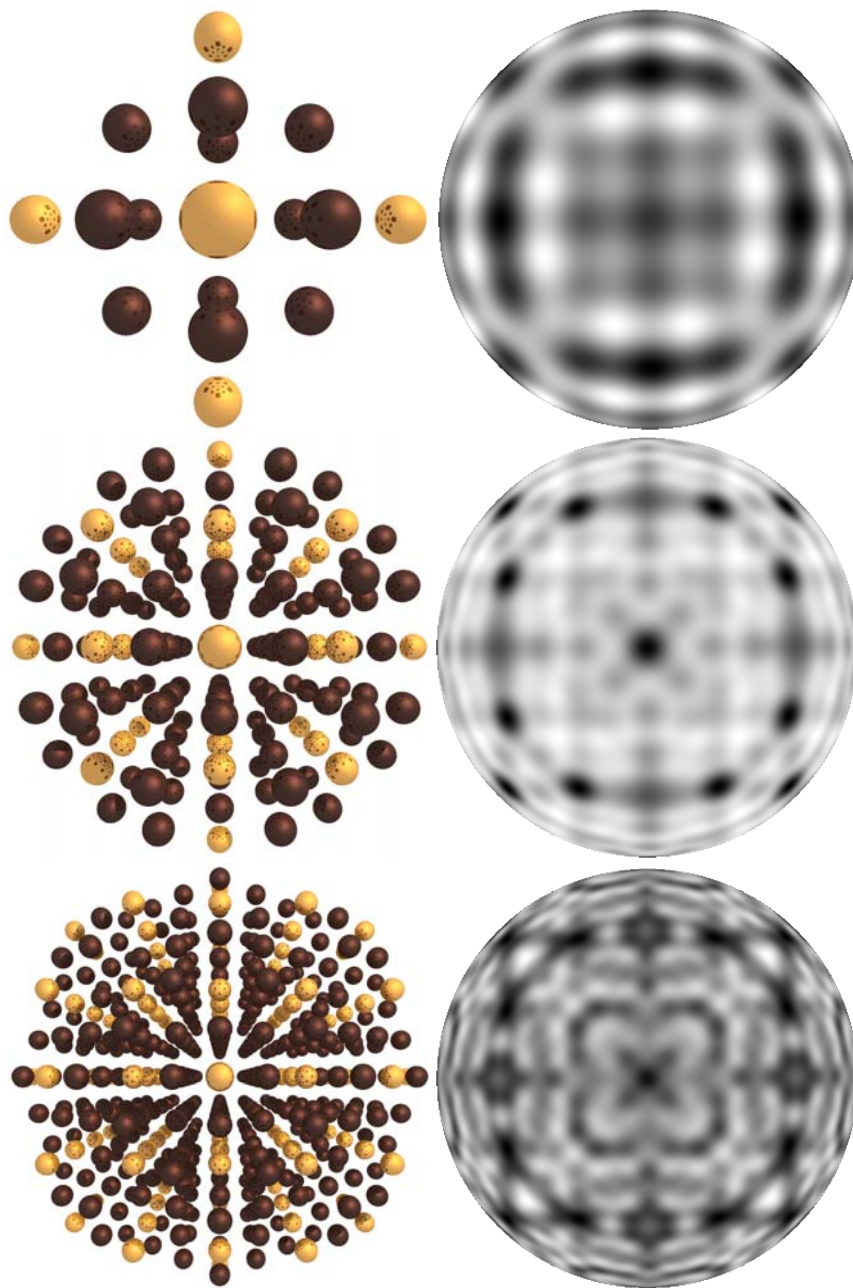


Abbildung 1.6: Von oben nach unten: Cu₃Au-Cluster mit einem Radius von einer, zwei und drei Gitterkonstanten mit den jeweils dazu gehörigen Hologrammen der Gold-Fluoreszenz.

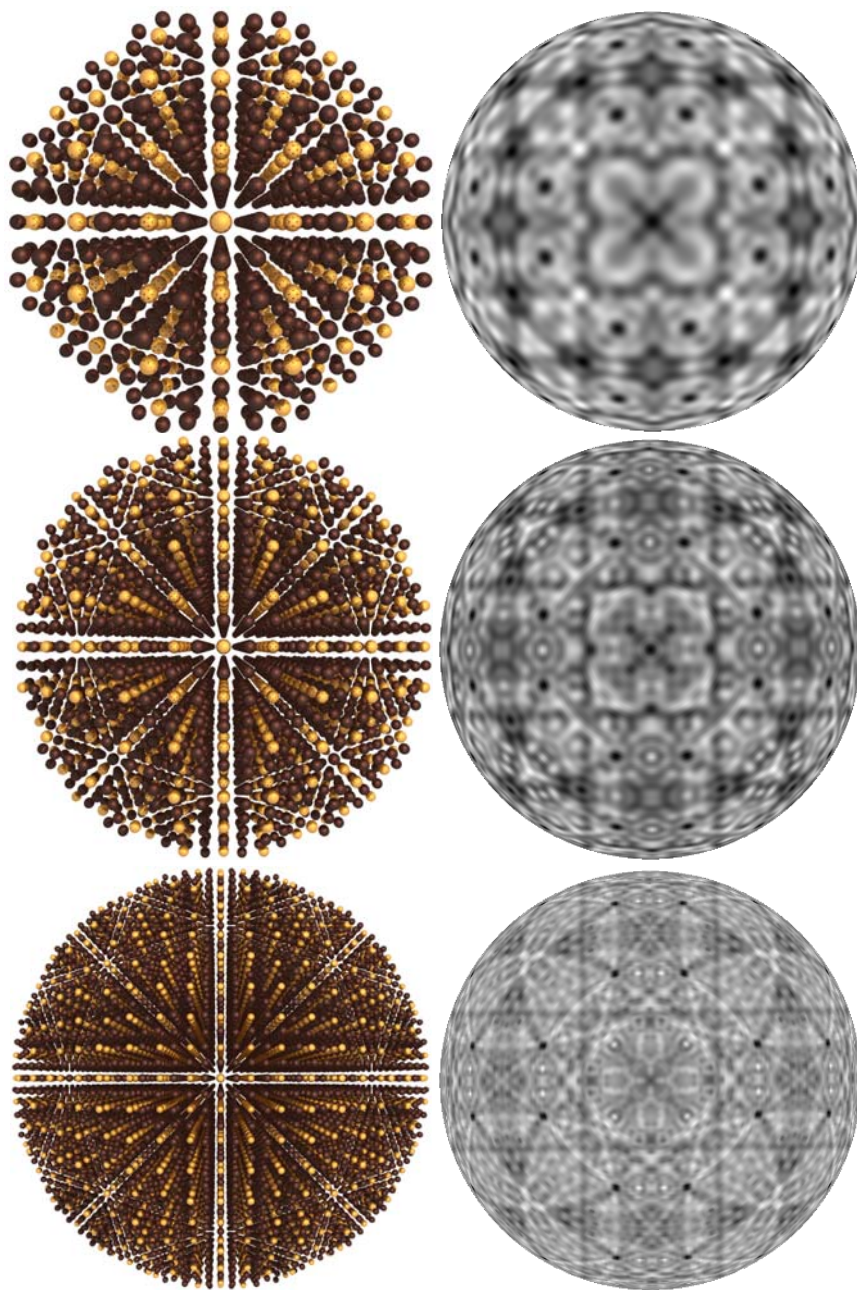


Abbildung 1.7: Von oben nach unten: Cu₃Au-Cluster mit einem Radius von vier, sechs und zehn Gitterkonstanten mit den jeweils dazu gehörigen Hologrammen der Gold-Fluoreszenz.

1.4 Rekonstruktion der Hologramme

In der atomar auflösenden Holographie liegt das Hologramm als gemessene Intensitätsmodulation auf einer Kugeloberfläche im Abstand R um den Emitter vor. Die ursprüngliche Objektwelle kann nicht mittels Durchstrahlung des Hologramms mit einer Rekonstruktionswelle rekonstruiert werden, wie dieses in Abschnitt 1.1 für die klassische Holographie gezeigt wurde, da dafür eine einlaufende Kugelwelle benötigt wird. Da die Hologramme als Intensitätsdaten in Abhängigkeit der Winkelparameter θ und ϕ entweder für jede Detektorposition bei der direkten Holographie oder für jede Einfallsrichtung bei der reziproken vorliegen, kann die Rekonstruktion numerisch mit dem Computer erfolgen.

John J. Barton zeigte 1988, daß es möglich ist, mit Hilfe des Helmholtz-Kirchhoffschen Integral-Theorems aus der Hologramm-Modulation die ursprüngliche Objektwelle zu bestimmen [4]. Das Theorem erlaubt es, aus einem bekannten Wellenfeld auf der Oberfläche einer Sphäre – in der Holographie ist dieses die durch das Hologramm modulierte Rekonstruktionswelle – die Amplitude des Wellenfelds an einem beliebigen Punkt \mathbf{P}_0 im Innern dieser Sphäre zu berechnen.

Das Helmholtz-Kirchhoffschen Integral-Theorem lautet im Detail:

$$U(\mathbf{r})|_{\mathbf{r}=\mathbf{P}_0} = \frac{ik}{4\pi} \iint_S \left[\frac{\partial U_S}{\partial \eta} \frac{e^{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}|}}{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}|} - U_S \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\frac{e^{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}|}}{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}|} \right) \right] d\sigma. \quad (1.7)$$

Das Emitter-Atom liegt im Zentrum der Sphäre S des Hologramms. η ist die Oberflächennormale des Flächenelement $d\sigma$ am Ort \mathbf{R} . U_S ist die Feldamplitude auf der Oberfläche, also gleich der Hologramm-Intensität χ . $U(\mathbf{r})$ ist die Amplitude am Ort P_0 im Inneren der Sphäre [16].

Für typische atomare Abstände $|\mathbf{r}|$ im Objekt von einigen Å Länge, im Gegensatz zu dem makroskopischen Abstand R zwischen Emitter und Hologramm, kann man die Näherung $|\mathbf{R}-\mathbf{r}| \approx R - \mathbf{r}\mathbf{R}/R$ verwenden. Damit vereinfacht sich Gl. 1.7 zu:

$$U(\mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi R^2} \iint_S \chi(\mathbf{k}) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} d\sigma \quad (1.8)$$

Die Amplitude des Wellenfeldes im Inneren der Sphäre läßt sich also durch eine einfache fourierartige Transformation des Hologramms bestimmen.

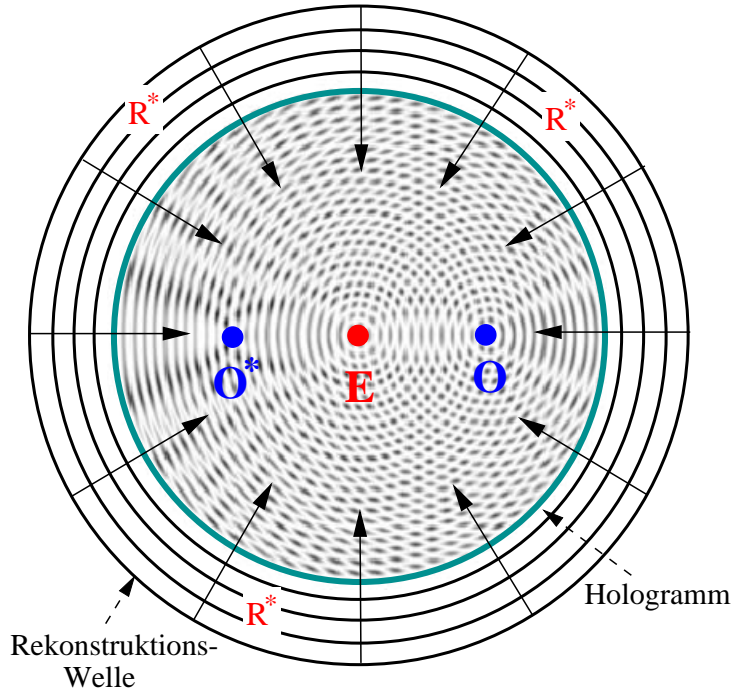


Abbildung 1.8: Schema der holographischen Rekonstruktion in der Röntgenholographie. Eine phasenkonjugierte Kugelwelle \mathbf{R}^* fällt als Rekonstruktionswelle auf das schalenförmige Hologramm. Dort wird die Intensität der Welle derartig moduliert, daß sich im Inneren der Sphäre Maxima am Ort \mathbf{O} des ursprünglichen Streuers, sowie am Ort \mathbf{O}^* dessen Zwillingsbildes ausbilden.

Laut Gleichung (B.40) beträgt die Hologrammintensität für ein Fluoreszenz-Hologramm:

$$\chi(\mathbf{k}) = -2r_e \Re \sum_j \frac{f_S(\mathbf{r}_j, \mathbf{k})}{r_j} e^{i(kr_j - \mathbf{k}\mathbf{r}_j)} \quad (1.9)$$

Setzt man dieses in Gl. 1.8 ein, erhält man als Amplitude der Objektwelle an einem Punkt \mathbf{r} innerhalb der Sphäre S :

$$U(\mathbf{r}) = -\frac{r_e}{\pi R^2} \sum_j \frac{1}{r_j} \iint_S [f_S(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) e^{i(kr_j - \mathbf{k}\mathbf{r}_j - \mathbf{k}\mathbf{r})} + f_S^*(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) e^{-i(kr_j - \mathbf{k}\mathbf{r}_j + \mathbf{k}\mathbf{r})}] d\sigma. \quad (1.10)$$

Das rekonstruierte Bild besteht aus der Summe der Beiträge der einzelnen Atome an den Orten \mathbf{r}_j . Für einen beliebigen Punkt \mathbf{r} werden sich die Oszillationen der Exponentialfunktionen im Integral aufheben. Nur für Punkte $\mathbf{r} \approx \pm \mathbf{r}_j$ wird das Integral große Intensitäten liefern. In der Rekonstruktion findet sich daher neben dem Bild des Atoms am Ort \mathbf{r} auch dessen Zwillingsbild am Punkt $-\mathbf{r}$.

Um die Zwillingsbilder aus den Rekonstruktionen zu beseitigen, schlug Barton 1991 vor, Hologramme, die bei verschiedenen Energien gemessen wurden mit einem zusätzlichen, energieabhängigen Phasenfaktor versehen aufzusummieren [10]:

$$\psi(\mathbf{r}) = \int_{|k|} U(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} d\mathbf{k} \quad (1.11)$$

Der zusätzliche Term in Gl. 1.11 sorgt dafür, daß die Phase des Atoms am Punkt \mathbf{r} konstant bleibt, während sich die Phase seines Zwillingsbild mit der Energie ändert, so daß es sich in der Integration über die verschiedenen Energien weghebt.

Man kann dieses Verfahren auch so verstehen: Das bei nur einer Energie aufgenommene Hologramm enthält nur eine zweidimensionale Information, die Richtung von $\hat{\mathbf{k}}$. Daher kann sie keine eindeutige Information über die dreidimensionale Umgebung des Emitteratoms liefern. Dieses äußert sich im Auftreten der Zwillingsbilder. Wird das Hologramm durch die Kombination von Hologrammen, die bei verschiedenen Energien aufgenommen wurden, auf drei Dimensionen erweitert, reicht sein Informationsgehalt für eine eindeutige Rekonstruktion der Umgebung des Atoms aus. Patrick Len hat in seiner Arbeit von 1994 den Einfluß der Schrittweite $\Delta\mathbf{k}$, in der χ_k gemessen wurde, auf die holographische Rekonstruktion genauer untersucht [17].

1.4.1 Numerische Rekonstruktion

Das Ziel der Holographie ist die Rekonstruktion der atomaren Umgebung des Emitter- bzw. Detektor-Atoms. Das X, Y, Z -Koordinatensystem der Rekonstruktion wird dabei so gewählt, daß die Z -Achse parallel zur Achse der ϕ -Rotation liegt, die wiederum zu einer Hauptrichtung des Kristalls ausgerichtet ist. Da der Rechenaufwand für die komplette dreidimensionale Rekonstruktion sehr groß ist, beschränkt man sich in den meisten Fällen zuerst auf einen zweidimensionalen Schnitt durch das zu rekonstruierende Volumen.

Aufgrundes des anisotropen Streuquerschnitts von Elektronen kommt es in der Elektronenholographie in der Rekonstruktion zu einer leichten Verzerrung der Atompositionen in radialer Richtung [18]. Dasselbe wird in der Röntgenfluoreszenzholographie ebenfalls passieren, ist jedoch aufgrund der geringeren Anisotropie der Photonenstreuung wesentlich schwächer ausgeprägt als bei den Elektronen. Die Beschränkung der Meßdaten auf einen Bereich von maximal 2π Raumwinkel unter idealen Umständen führt ebenfalls zu einer deutlichen elliptischen Verzerrung dieser Maxima in Z -Richtung. Daher ist die übliche Methode der Rekonstruktion, die auch in dieser Arbeit meistens verwendet wird, die Berechnung des Bildes für einen Schnitt in der XY -Ebene bei konstantem Z -Wert, parallel zur Probenoberfläche. Die Volumen-Rekonstruktion ergibt sich dann durch die Stapelung mehrerer solcher berechneter Schnitte im Abstand ΔZ . Da das Ziel der Experimente hauptsächlich die Verbesserung der holographischen Meßmethode ist, werden bislang nur schon vorher bekannte Strukturen untersucht. Daher kann man die Schnitte in den Rekonstruktionen auch direkt durch die atomaren Ebenen legen. In der Rekonstruktion der einzelnen Z -Schnitte kann man neben den zu erwartenden Atompositionen auch noch die Ausläufer tiefer liegender Maxima in den Bildern beobachten.

Alternativ zu horizontalen Schnitten ist es denkbar, das Bild in Schalen zu rekonstruieren, bei denen der Radius $|\mathbf{r}|$ konstant ist. Dieses Vorgehensweise hat Vorteile, wenn zwar die Struktur der Probe bekannt ist, nicht aber deren exakte Orientierung, wenn z.B. die Oberflächennormale nicht exakt parallel zu c -Achse des Kristalls ist. In diesem Fall kann man in der sphärischen Rekonstruktion leicht die Probenorientierung bestimmen. Außerdem überdecken Artefakte in der Nähe des Zentral-Atoms, die durch eine nicht vollständige Untergrundkorrektur der Hologrammdaten entstehen, die Maxima an den weiter entfernten Atompositionen nicht mehr, da sie in dieser Rekonstruktion nur einen konstanten Untergrund liefern.

Eine weitere Möglichkeit ist die eindimensionale Rekonstruktion in radialer Richtung. Dabei wird die Richtung von \mathbf{r} konstant gehalten und dessen Länge geändert. Für $Z = 0 \text{ \AA}$ entspricht der XY -Schnitt einer Kombination dieser eindimensionalen Rekonstruktionen mit verschiedenen Richtungen für ϕ . Was diese Vorgehensweise interessant macht, ist die Möglichkeit einer engeren Verknüpfung von Meßgeometrie, Physik der Streuung und der Rekonstruktion:

Im Bereich niedriger Elektronenenergien von ca. 100 eV dominiert bei der Elektronenstreuung die Rückstreuung. Dieser Anisotropie wird dadurch Rechnung getragen, daß man für jede Richtung von \mathbf{r} in der Rekonstruktion nur

einen Teil des gemessenen Hologramms verwendet, nämlich einen Kegel mit einem Öffnungswinkel von ca. 30° um die Richtung von $\mathbf{k}/k = -\mathbf{r}/r$. Da die Elektronen andererseits entlang atomarer Ketten fokussiert werden, kann es in diese Richtungen zu starken Mehrfachstreuungen kommen [19]. Da die Rekonstruktionsalgorithmen nicht für solche Fälle konzipiert sind, wird die direkte Richtung $-\mathbf{r}/r$ bei der Rekonstruktion ebenfalls vernachlässigt [18].

Natürlich liefern alle Möglichkeiten das Volumen zu rekonstruieren dasselbe Ergebnis, wenn in alle Raumrichtungen dieselbe Feinrasterung erreicht wird.

Die Idee hinter der Holographie ist, daß das Hologramm alle benötigten Informationen über die atomare Umgebung des Detektor- bzw. Emitter-Atoms enthält. Es sind daher keine weiteren Vorkenntnisse über die Probe von Nöten. In den folgenden Kapiteln wird nur der Rekonstruktionsalgorithmus von Barton verwendet, ohne daß weitere Strukturinformationen zur Aufbereitung der Hologramme herangezogen werden.

Kapitel 2

Inverse Elektronenholographie an Germanium und Silizium

Die inverse (reziproke) Holographie hat gegenüber der direkten Methode einige experimentelle Vorteile. Da das Hologramm durch ein beliebiges Sekundärsignal des Detektor-Atoms aufgenommen werden kann, stehen verschiedene Meßgrößen und Detektionsmethoden zur Verfügung. Bisher wurde diese Methode nur auf die Röntgenfluoreszenzholographie angewandt. Dieses Kapitel beschäftigt sich nun mit der Frage, ob es auch möglich ist, die reziproke Holographie mit Elektronen zu betreiben. Das Ziel sind Messungen, die der inversen Röntgenfluoreszenzholographie vergleichbar sind, die aber zu ihrer Realisierung keine Synchrotronstrahlung und somit keinen Speicherring, sondern nur eine Elektronenkanone benötigen, und daher mit einem wesentlich geringeren technischen Aufwand realisiert werden können.

Im nun folgenden Kapitel geht es anfangs um die eigentliche Erzeugung des Hologramms mit Hilfe von Elektronen und anschließend um dessen Detektion sowohl mittels der Fluoreszenzstrahlung der Probe als auch mit der von ihr emittierten Augerelektronen.

Die Interaktion von Elektronen mit Materie ist wesentlich komplexer als die von Photonen. Der elastische Streuquerschnitt der hochenergetischen Elektronen ist um einen Faktor 10^3 größer als der von Photonen. Er zeigt eine starke Anisotropie und ist abhängig von der Energie der Elektronen: Für niedrige Energien dominiert die Rückstreuung, die in erster Näherung als isotrop angesehen werden kann. Bei höheren Energien im Bereich von mehreren keV dominiert dann eine starke Vorwärtsstreuung. Die geringe Eindring- bzw. Austrittstiefe zusammen mit der isotropen Rückstreuung niederenerge-

tischer Elektronen hat bisher in der Elektronenholographie die Untersuchung von Oberflächenstrukturen begünstigt.

In einer Veröffentlichung von 1998 schlugen S. Y. Tong und H. Huang vor, die reziproke Methode auch für die Elektronenholographie zu verwenden, bzw. bestehende Experimente zu einfallswinkelabhängigen Feinstrukturen (z.B. der Desorption) entsprechend als reziproke Elektronenholographie zu deuten [20]. Dabei trifft ein Elektronenstrahl mit einer Energie von einigen 100 eV als ebene Welle auf die Probe. Diese Energie entspricht in etwa der Energie der Photoelektronen in direkten Elektronenholographie-Experimenten. Ein Teil der Welle wird bei diesen Energien an den Atomen der Probe zurück gestreut und überlagert sich dann an einem Adsorbat-Atom auf der Oberfläche mit dem ungestreuten Anteil der Welle. Als Sekundärsignal kommen dann alle Prozesse in Frage, die proportional zur lokalen Intensität der Elektronenwelle sind, z.B. die Emission von Augerelektronen oder auch die Desorption der Atome. Schließlich schlugen sie vor, die Experimente mit Positronen durchzuführen, da deren Mehrfachstreuung in Materie geringer und ihr Streuquerschnitt isotroper als der von Elektronen ist.

Dieser Form der inversen Holographie mit Elektronen scheint also nichts im Wege zu stehen. Sie kann allerdings, bedingt durch die geringe Eindringtiefe der verwendeten niederenergetischen Elektronen, nur genutzt werden, um Oberflächenstrukturen zu untersuchen.

In dem in diesem Kapitel beschriebenen Experiment wird ein anderer Ansatz zur reziproken Elektronenholographie verfolgt. Es soll nicht die Oberfläche sondern die Festkörperstruktur der Probe untersucht werden. Um etwas von der Festkörperstruktur der Probe zu sehen, braucht man hochenergetische Elektronen im Bereich von 10-20 keV als Referenzstrahl, die in den Festkörper hineingestreut werden, und damit die Holographie mit internem Detektor überhaupt erst möglich machen. Bei diesen Energien beträgt die Eindringtiefe der Elektronen einige hundert nm. Im Gegensatz zu Energien unter 1 keV dominiert hierbei die Vorwärtsstreuung. Bei diesen kinetischen Energien können die Elektronen noch als nicht-relativistisch betrachtet werden. Ihre Wellenlänge liegt im Bereich von 0,1 Å und ist somit ausreichend, um atomare Auflösung zu erreichen (siehe Tabelle 2.1).

Neben der starken Anisotropie der elastischen Streuung wird die Holographie auch durch die zahlreichen inelastischen Wechselwirkungen der Elektronen mit Materie, sowie deren Mehrfachstreuung erschwert. Während ein Photon, mit Ausnahme der Comptonstreuung, bei der Interaktion mit Materie vernichtet wird und somit nicht mehr zur Formation des Hologramms beiträgt, bleiben die Elektronen auch nach einem Energieverlust existent und

können das Experiment weiterhin beeinflussen. Um die Effekte zu verstehen, die auftreten, wenn ein hochenergetischer Elektronenstrahl auf eine Probe trifft, kann man sich an der Elektronenmikroskopie orientieren [21]:

Es gibt verschiedene Prozesse, bei denen das Elektron einen Teil seiner kinetischen Energie an die Probe abgeben kann:

1. Anregung von Molekülschwingungen [22] und Phononen [23]. Der Energieübertrag bei diesen Prozessen liegt im Bereich von 20 meV - 1 eV und ist damit, im Vergleich mit der Energiebreite des Elektronenstrahls in der Größenordnung von 1 eV und den verwendeten Elektronenenergien von $10\text{-}20\text{ keV}$ für die Holographie nicht von belang.
2. Intra- und Interband-Anregungen der äußeren Elektronen sowie Anregung des Elektronengases zu kollektiven Schwingungen (Plasmonen) [24]. Die Energieverluste dieser Prozesse belaufen sich auf $1\text{-}50\text{ eV}$ und führen damit zu einer leichten Verbreiterung der Elektronenenergie.
3. Ionisation der kernnahen Elektronen der inneren Schalen. Dieses ist der Prozeß, der zur Detektion des Hologramms benötigt wird.

	nicht-relativistisch ($E \ll E_0$)	relativistisch ($E \sim E_0$)
Masse	$m = m_0$	$m = m_0 / \sqrt{1 - v^2/c^2}$
Energie	$E = eU = \frac{1}{2}m_0v^2$	$mc^2 = m_0c^2 + eU = E_0 + E$ $m = m_0(1 + E/E_0)$
Geschwindigkeit	$v = \sqrt{2E/m_0}$	$v = c\sqrt{1 - \frac{1}{(1+E/E_0)^2}}$
Impuls	$p = m_0v = \sqrt{2m_0E}$	$p = \sqrt{2m_0E(1 + E/2E_0)}$ $= \frac{1}{c}\sqrt{2EE_0 + E^2}$
Wellenlänge	$\lambda = \frac{h}{p} = h/\sqrt{2m_0E}$	$\lambda = h/\sqrt{2m_0E(1 + E/2E_0)}$ $= hc/\sqrt{2EE_0 + E^2}$

Tabelle 2.1: Eigenschaften der Elektronen

Als generelles Ergebnis der Betrachtungen in [21] sei hier für die inelastische Streuung der Elektronen nur folgendes festgehalten:

Das Verhältnis zwischen den totalen Streuquerschnitten beträgt

$$\nu = \frac{\sigma_{inel}}{\sigma_{el}} \approx \frac{20}{Z} \quad (2.1)$$

mit der Kernladungszahl Z der Probe.

Der Streuquerschnitt $d\sigma/dW$ für einen Energietransfer zwischen dem einfallenden und einem Probenelektron in der Größenordnung von W und $W + dW$ ist invers-proportional zur kinetischen Energie E des Elektrons und zum Quadrat des Energieübertrags W^2 :

$$\frac{d\sigma}{dW} = \frac{\pi e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{1}{EW^2} \quad (2.2)$$

Dieses bedeutet, daß kleine Energieüberträge mit größerer Wahrscheinlichkeit vorkommen. Die Ionisation eines K- oder L-Schalen-Elektrons ist also wesentlich unwahrscheinlicher als die Anregung eines Valenzelektrons.

Der Streuwinkel θ um den das einfallende Elektron beim Stoß abgelenkt wird, hängt vom Energieübertrag W auf folgende Weise ab:

$$\sin^2 \theta = W/E. \quad (2.3)$$

Aufgrund der Wahrscheinlichkeit geringer Energieüberträge, dominiert hier die Kleinwinkelstreuung. Die Streuwinkel der inelastischen Streuung sind durchschnittlich wesentlich geringer als die der elastischen Streuung.

Insgesamt ergibt sich für die reziproke Holographie mit einfallenden Elektronen im Energiebereich von 10-20 keV folgendes Bild: Der elastische Streuquerschnitt der Elektronen ist größer als der der inelastischen Streuung. Innerhalb der inelastischen Streuung ist wiederum der Wechselwirkungsquerschnitt für die Ionisation von K- und L-Schalen-Elektronen am geringsten. Da diese trotzdem in meßbaren Größenordnungen stattfindet beweisen die charakteristischen Linien der Röntgenröhren. Hat sich eine Ionisation ereignet, sind dieser mehrere elastische und inelastische Streuungen vorausgegangen. Aufgrund der Kleinwinkelstreuung der inelastischen Prozesse wirken sich diese kaum auf die Richtung der Elektronen aus, führen aber zu einer Verbreiterung ihres Energiespektrums. Da die mittlere freie Weglänge der elastischen Streuung kleiner als die der inelastischen ist, ist der Ionisation am wahrscheinlichsten eine elastische Streuung vorausgegangen.

Insofern sollte die reziproke Holographie mit Elektronen vergleichbar der mit Röntgenstrahlung verlaufen, wobei allerdings zum einen die energetische Verbreiterung der Elektronen durch die inelastische Streuung und zum anderen die Mehrfachstreuung der Elektronen berücksichtigt werden muß.

Zur Hologramm-Detektion in Abhängigkeit von der Einfallsrichtung des Elektronenstrahls wurden verschiedene Sekundärsignale der Probe gemessen. Die Interferenz des Referenz- und des Objekt-Strahls der Elektronen führt zu einer Modulation des Feldes am Ort des Detektor-Atoms, abhängig von der Einfallsrichtung des Elektronenstrahls. Durch dieses Feld wird das Atom ionisiert. In der darauf folgenden Relaxation des Atoms wird entweder ein Fluoreszenzphoton oder ein Augerelektron freigesetzt [25]. Sofern ihre kinetische Energie ausreicht, können die Elektronen beim Verlassen der Probe weitere Sekundärelektronen (SE) erzeugen. Sowohl die Fluoreszenzstrahlung als auch die Augerelektronen wurden in den im Folgenden beschriebenen Experimenten detektiert.

2.1 Experimenteller Aufbau

Das Experiment zur inversen Elektronenholographie ist folgendermaßen aufgebaut:

Eine RHEED-Kanone dient als Quelle für die ebene Elektronenwelle mit kinetischen Energien von bis zu 20 keV . Die Elektronen-Kanone benötigt ein Vakuum von $1 \times 10^{-5}\text{ mbar}$ um zu arbeiten. Das Experiment wurde in einer Vakuumkammer mit einem Druck nicht größer als 10^{-6} mbar durchgeführt.

In Abb. 2.1 ist der experimentelle Aufbau schematisch dargestellt: Der Elektronenstrahl trifft auf die an einem Manipulator befestigte Probe. Im rechten Winkel zur Einfallsrichtung ist ein Röntgen-Detektor hinter einem Berylliumfenster angebracht. Zusätzlich ist die Probe noch über einen einige μm -dicken Draht geerdet. Mit diesem kann der von der Probe abfließende Strom gemessen werden.

Der Manipulator besteht aus dem Probenhalter, der auf der Drehachse eines kleinen vakuumtauglichen Schrittmotors befestigt ist. Mit ihm wird die Rotation um die ϕ -Achse realisiert. Dieser Motor ist im rechten Winkel an einer Vakuum-Drehdurchführung angebracht (siehe Abb. 2.2). Mit dieser kann die Probe samt ϕ -Motor mit Hilfe eines außerhalb der Vakuumkammer angebrachten zweiten Motors um die θ -Achse gedreht werden.

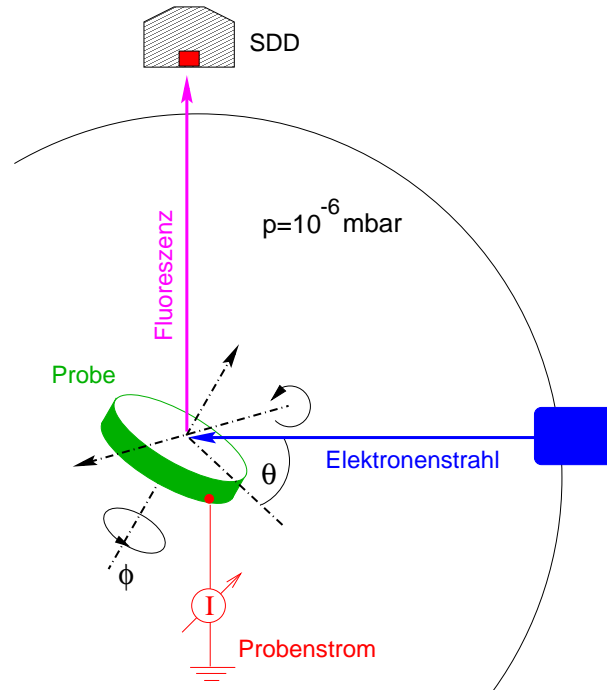


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau des Elektronenholographie Experiments. Die Probe befindet sich in einer Vakuumkammer mit einem Druck von 1×10^{-6} mbar. Ihre Oberflächennormale lässt sich mittels eines Manipulators um θ gegen den einfallenden Strahl der Elektronenkanone verkippen. Zusätzlich kann sie noch um ϕ um die Oberflächennormale gedreht werden. Die von der Probe emittierte Fluoreszenzstrahlung wird mit einem außerhalb der Kammer befindlichen Röntgendetektor gemessen. Zusätzlich ist die Probe noch über einen Draht geerdet, mit dessen Hilfe der von der Probe abfließende Strom gemessen kann.

Das Signal des Probenstroms wird mit einem Keithley Stromverstärker zuerst in eine Spannung und danach mit Hilfe eines Spannung-Frequenz-Konverters in ein zählbares Signal umgewandelt.

Für die Holographie-Messungen ist eine exakte Probenjustage erforderlich. Dabei müssen sich die θ -Achse, die ϕ -Achse und der einfallende Elektronenstrahl in einem Punkt direkt auf der Probenoberfläche treffen. Außerdem muß die Probenoberfläche dabei möglichst senkrecht zur ϕ -Achse stehen.

Die Position der Drehachsen und der Probenoberfläche kann außerhalb der Vakuumkammer eingestellt werden. Die Justage der Strahlage des Elektronenstrahls kann aber erst im Vakuum geschehen. Die Position des Strahlflecks

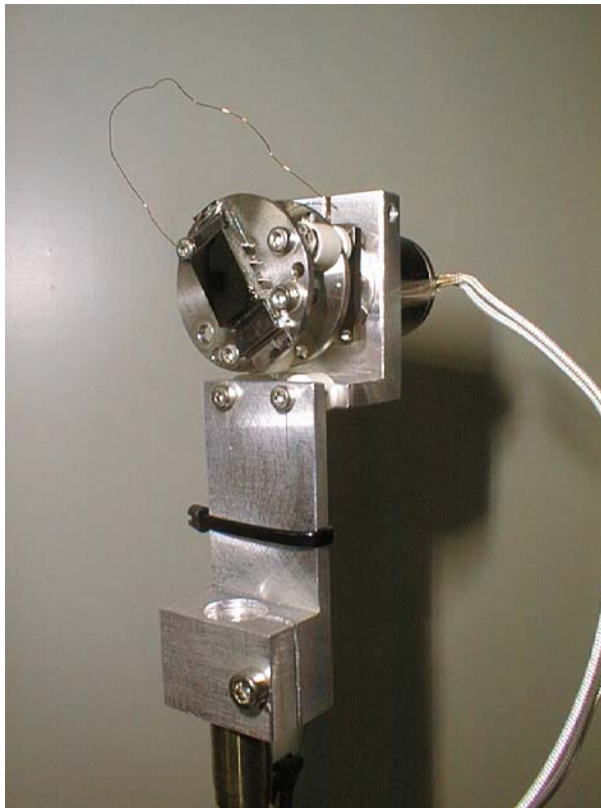


Abbildung 2.2: Photo des Probenmanipulators. Man erkennt die Probe auf dem Probenhalter sowie den vakuumtauglichen Motor für die Rotation um die ϕ -Achse.

auf der Probe kann mit Hilfe magnetischer Spulen in der Horizontalen und Vertikalen verstellt werden. Da es in der Vakuumkammer keine fluoreszierenden Markierungen gibt, muß man mit Hilfe des Probenstrom-Signals den Strahl mittig auf der Probe positionieren. Dazu wird der Elektronenstrahl horizontal und vertikal über den kreisrunden Probenhalter bewegt und dabei der Probenstrom gemessen. Aus dem Ein- und wieder Aussetzen des Signals lassen sich die Ränder des Probenhalters, und so dessen Mitte, bestimmen und mit den Spulen angefahren. Damit trifft der Elektronenstrahl genau die Drehachse des Φ -Motors.

Die Messung des Probenstroms muß mit einem Draht erfolgen, da es keine Dreh- oder Schleifkontakte gibt, die die auftretenden Ströme im nA -Bereich störungsfrei übertragen. Deshalb muß die Probe nach jeder 360° Phi-Rotation wieder zurück in die Ausgangsposition gedreht werden, da sich ansonsten der

Meßdraht aufwickelt. Dabei muß auch vermieden werden, daß der Draht in den Strahl gerät, damit es zu keiner Abschattung auf der Probe kommen kann.

Eine weitere Quelle von Störungen sind die Vakuum-Meßröhren. Sie bestimmen den Druck innerhalb der Vakuumkammer, indem sie mittels eines Glühdrahts Elektronen emittieren und deren Absorption durch das Restgas messen. Treffen diese freien Elektronen die Probe, kommt es zu einem Anstieg des Probenstroms, welcher die Messung verfälscht.

2.2 Meßdaten

Mit dem oben beschriebenen Aufbau wurden Messungen an einer Germanium (100) und einer Silizium (111) Probe vorgenommen. Am Germanium wurden sowohl die emittierten Photonen als auch der Probenstrom, am Silizium nur der Probenstrom gemessen.

2.2.1 Messungen der Germanium- $K\alpha$ -Fluoreszenz

Da der Röntgendetektor nicht im Vakuum betrieben werden konnte, mußte er außerhalb der Vakuumkammer, hinter einem Berylliumfenster, angebracht werden. Dadurch betrug der Abstand von Probe zu Detektor ca. 20 cm. Bei einer aktiven Detektorfläche von 5 mm^2 bedeutet dies, daß nur 1×10^{-5} des gesamten Raumwinkels, in den die Photonen der Fluoreszenzstrahlung emittiert werden, bei der Messung berücksichtigt werden konnte. Dementsprechend gering war die Ausbeute der Fluoreszenzphotonen in den Messungen. So wurden pro Datenpunkt und Sekunde durchschnittlich 2×10^3 Photonen gemessen.

Aus Gleichung B.40 für die Intensität des Hologramms ergibt sich für ein einzelnes Atom eine maximale Signalamplitude von $\chi(\mathbf{k}) = -2r_e f_0 / r_j$, dabei ist r_e der klassische Elektronenradius, f_0 der Streufaktor des Atoms in Forwärtsrichtung und r_j der Abstand des Atoms vom Detektor-Atom. Für Photonen ergibt sich daraus ein Verhältnis von 1×10^{-4} zwischen Hologramm und Untergrund. Man benötigt daher in der Röntgenholographie Zählraten von 1×10^8 Photonen, damit der Hologrammanteil wenigstens in der Größenordnung der Standardabweichung der Messung liegt. Die gemessenen Photonen sind also für eine holographische Auswertung der Daten nicht ausreichend.

Um die Photonenausbeute zu verbessern, wurden die Messungen bis zu zehnmal wiederholt und die Datensätze aufaddiert. Durch Anwendung der Symmetrieoperationen des Kristallstruktur kann die Statistik noch einmal verbessert werden. Bedingt durch die vierzählige Symmetrie der [001]- und die zweizählige der [110]-Achse kann damit die Photonenzahl pro Datenpunkt noch mal um einen Faktor acht auf $1,6 \times 10^5$ gesteigert werden. Dieses ist zwar für eine erfolgreiche holographische Rekonstruktion immer noch zu wenig, es lassen sich aber schon einzelne Strukturen in den Meßdaten erkennen (vgl. Abb. 2.3).

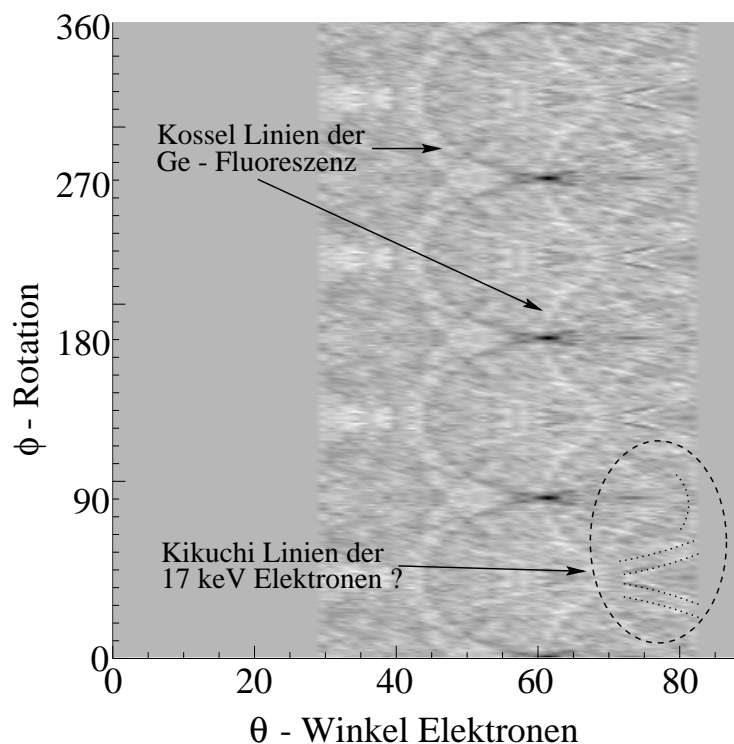


Abbildung 2.3: Fluoreszenzsignal der Germanium(001) Probe mit 17 keV Elektronen in ebener Darstellung. Es lassen sich bogenförmige Strukturen erkennen, die scheinbar in die falsche Richtung ausgerichtet sind. Dieses läßt sich dadurch erklären, daß sich die θ -Winkel auf den Einfallswinkel des Elektronenstrahls beziehen, die Kossel-Linien aber auf der ausfallenden Seite entstehen und damit der Winkel zwischen Probenoberfläche und Detektor relevant ist. Einige schwache Strukturen bei großen θ -Winkeln könnten Kikuchi-Linien der einfallenden Elektronen sein.

Bei den bogenförmigen Strukturen in den in den Meßdaten handelt es sich um Kossel-Linien der Germanium-K α -Fluoreszenz. Es fällt dabei auf, daß die Bögen anscheinend falsch herum liegen. Ihr Zustandekommen und ihre Ausrichtung läßt sich durch den Meßaufbau erklären:

Da der Röntgendetektor nicht bewegt werden konnte, war es nicht möglich, seine Position bezüglich der Probe konstant zu halten. Deshalb konnte nur in der gemischten Methode gemessen werden, d.h. es überlagert sich das Hologramm der Elektronen auf der einfallenden Seite mit dem Hologramm der Fluoreszenzstrahlung auf der ausfallenden Seite. Da Elektronenkanone und Detektor zu der Probe in einem Winkel von 90° stehen, sind die θ -Positionen dieser beiden Hologramme entsprechend gegenläufig. Einem Einfallswinkel der Elektronen von 80° entspricht für den Röntgendetektor ein Detektionswinkel von 10° .

Ein Vergleich mit einem berechneten Kossel-Linien Muster für die Ge K α Fluoreszenz (vgl. Abb. 2.4a) zeigt, daß die Kossel-Linien in den Datensätzen offensichtlich zu der Germanium Fluoreszenz, d.h. zu dem Hologramm auf der ausfallenden Seite gehören. Daher muß für die Messungen die θ -Achse umgekehrt werden, da diese ursprünglich zu der Einfallrichtung der Elektronen gehörte. Deshalb liegen die Fluoreszenzdaten der Germanium-Messungen in einem Winkelbereich von $\theta = 9^\circ - 61^\circ$ vor und dem entsprechend $\theta = 29^\circ - 81^\circ$ für die Elektronen.

Ein Einfluß des Hologramms der einfallenden Elektronen auf die Proben-Fluoreszenz, wie sie in diesem Experiment erwartet wurde, ist dagegen nicht zu sehen. Einzig einige schwache Strukturen bei hohen Einfallswinkeln der Elektronen lassen sich mit Kossel-Linien des Elektronen-Hologramms in Verbindung bringen (vgl. 2.3).

Die Beobachtung, daß in den Fluoreszenzdaten überhaupt Kossel-Linien auftreten, ist nicht neu. Man kann die Elektronen-Kanone zusammen mit der Vakuumkammer und der Probe als Anode als eine primitive Form einer Röntgenröhre betrachten. Schon in den 30er Jahren wurden die ersten Kossel-Linien von Walther Kossel in der charakteristischen Fluoreszenzlinie einer Röntgenröhre nachgewiesen [13].

In Abbildung 2.4 b)-d) sind die Fluoreszenzdaten der Messungen bei einer Elektronenenergie von 17, 19 und 20 keV dargestellt. Trotz der geringen Zahl von detektierten Photonen wurde eine holographische Rekonstruktion der Daten versucht. Die Rekonstruktion des Hologramms für 17 keV ist in Abb. 2.5 dargestellt. Wie zu erwarten war, ergab sie kein befriedigendes Ergebnis. Keines der Maxima in der Rekonstruktion stimmt mit einer der durch Kreise markierten Atomposition überein.

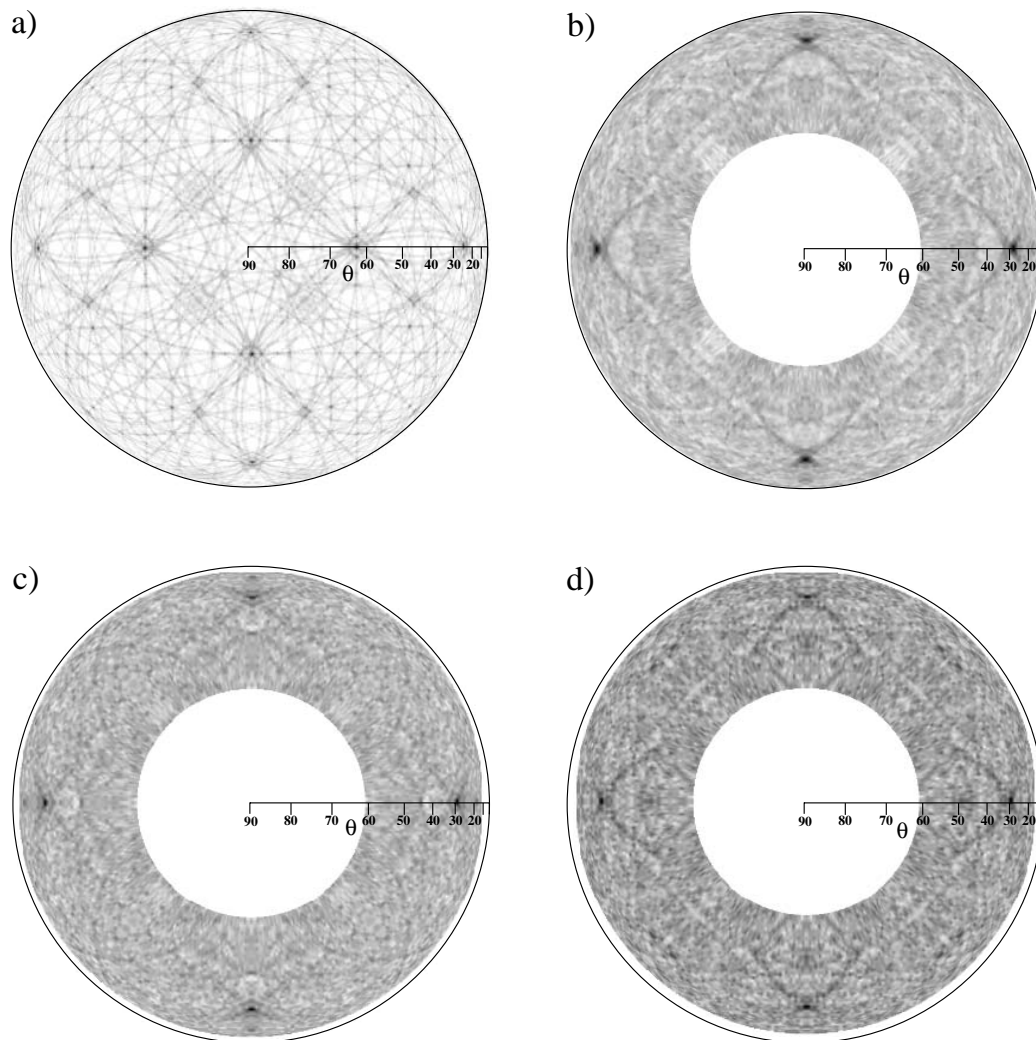


Abbildung 2.4: Germanium- $K\alpha$ -Fluoreszenz Daten in sphärischer Projektion:

a) Berechnete Kossel-Linien für Germanium bei $9,8 \text{ keV}$

b)-d) Gemessene $K\alpha$ -Fluoreszenz der Germanium-Probe bei einer kinetischen Energie der einfallenden Elektronen von 17 , 19 und 20 keV .

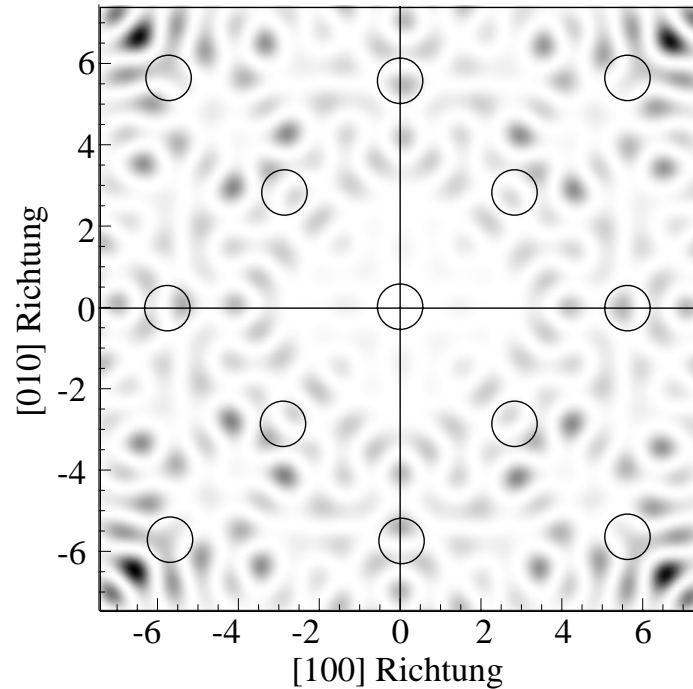


Abbildung 2.5: Rekonstruktion der Germanium-Fluoreszenz Messungen bei einer kinetischen Energie der Elektronen von 17 keV . Dargestellt ist ein Schnitt in der $Z = 0\text{ \AA}$ Ebene. Die Kreise bezeichnen die zu erwartenden Atompositionen

2.2.2 Messung des Probenstroms

Als zusätzliches holographisches Signal wurde der Probenstrom gemessen. Er ist ein Maß für die neben den Fluoreszenzphotonen ebenfalls erzeugten und die Probe verlassenden Augerelektronen.

Die einfallenden Elektronen werden in der Probe auf ihrem Weg durch den Festkörper ihre gesamte Energie durch inelastische Streuung und die Ionisation einzelner Atome verlieren, bis sie von einem ionisierten Atom absorbiert werden oder als Probenstrom zur Erdung abfließen. Aufgrund der starken Vorwärtsstreuung bei Energien über 1 keV wird nur ein kleiner Teil der primären Elektronen durch Mehrfachstreuung die Probe als rückgestreute Elektronen wieder verlassen. Wie später noch gezeigt werden wird, betragen die üblichen Bragg-Winkel für die einfallenden Elektronen nur einige Grad.

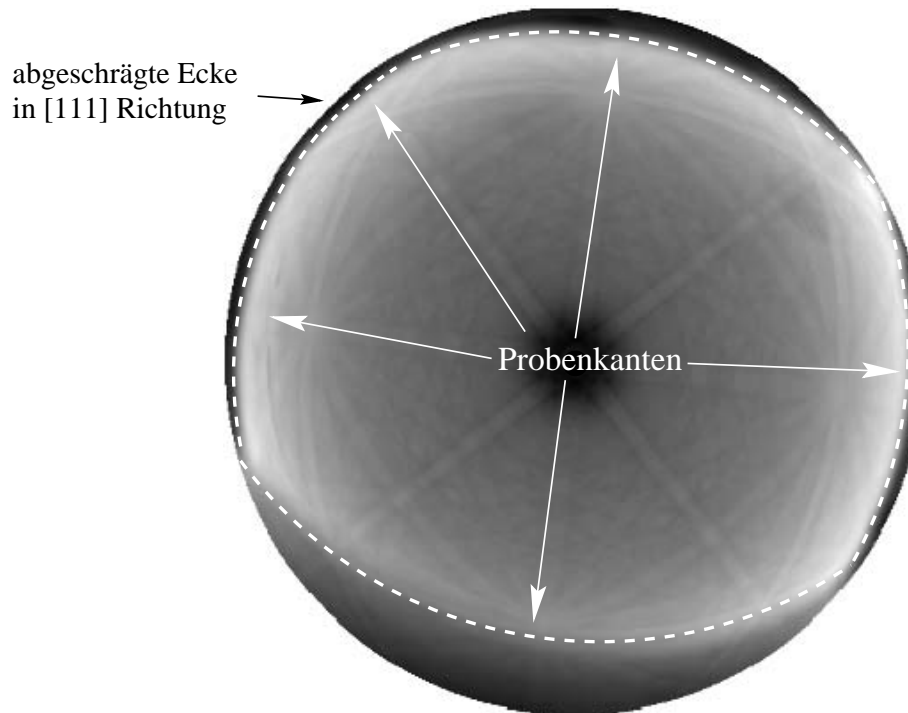


Abbildung 2.6: Probenstrom des Germaniums bei einer Elektronen-Energie von 20 keV . Aus den dunklen Gebieten bei flachen Einfallswinkeln ($< 30^\circ$) läßt sich die Form der Germanium-Probe inklusive der die $[111]$ Richtung markierende abgeschrägten Ecke erkennen. Ein klarer Hinweis auf eine durch Aufladungseffekte hervorgerufene Wechselwirkung von einfallendem Strahl und Probe.

Daher werden fast alle Bragg-Reflexionen des Elektronenstrahls unter der Laue-Geometrie erfolgen, und aufgrund der Dicke der Probe in dieser absorbiert werden.

Die primären Elektronen erzeugen einen Probenstrom, der sich während einer Rotation der Probe um die Oberflächennormale nicht ändert. Nur die sich mit dem Einfallswinkel θ des Elektronenstrahls ändernde Eindringtiefe der Elektronen wird zu einer Variation des Probenstroms führen. Die sekundären Elektronen werden von den Atomen in *alle* Richtungen emittiert, können daher die Probe verlassen und machen sich als eine Verminderung des Probenstroms bemerkbar. Die Modulation des Probenstroms ist also invers zur Zahl der die Probe verlassenden Elektronen, unabhängig von deren Richtung. Somit ist er ein idealer, über den gesamten Raumwinkel über der Probe integrierender Detektor für die reziproke Holographie.

Da die die Probe verlassenden Elektronen über den gesamten Raumwinkel integriert werden, mitteln sich richtungsabhängige Effekte auf der ausfallenden Seite heraus. Übrig bleibt nur die Richtungsabhängigkeit auf der einfallenden Seite.

Die Halbleiternatur der verwendeten Proben macht sich durch eine Aufladung der Kristalle bemerkbar, wenn die Elektronen aus der RHEED-Kanone

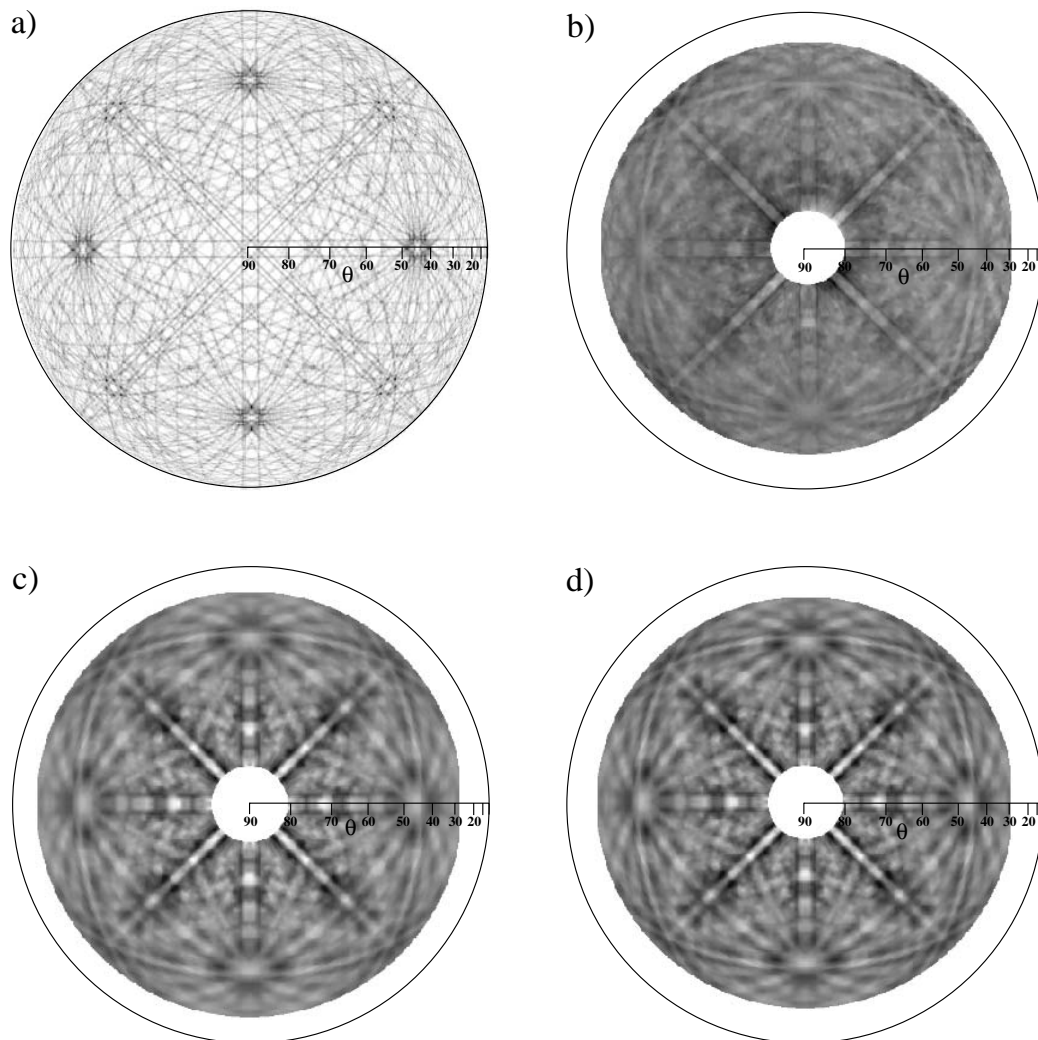


Abbildung 2.7: Probenstrom des Germanium-Kristalls in sphärischer Projektion:

- a) Berechnete Kossel-Linien für Germanium für 20 *keV* Elektronen
- b)-d) Gemessener Probenstrom des Germanium-Kristalls bei einfallenden Elektronen mit einer kinetischen Energie von 17, 19 und 20 *keV*.

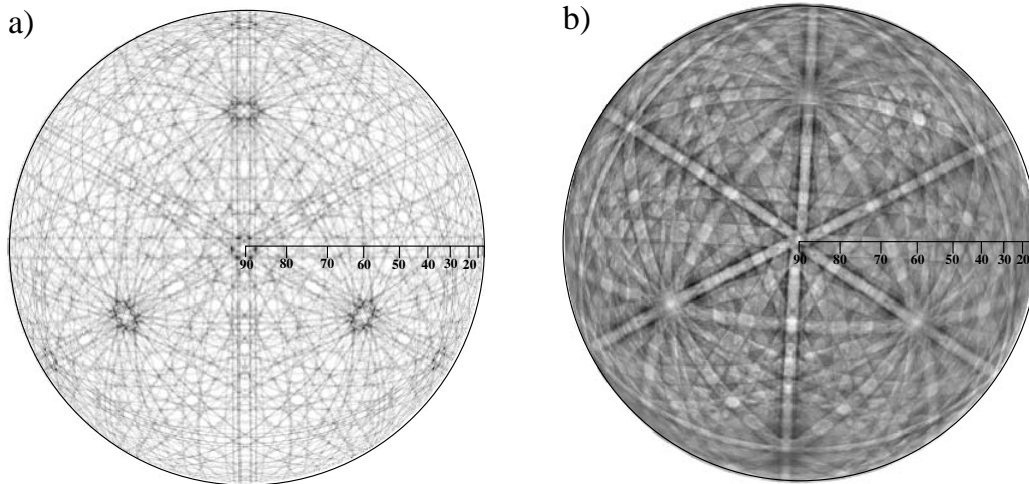


Abbildung 2.8: a) Berechnete Kossel-Linien für einen Silizium-Kristall mit (111) Orientierung für Elektronen mit einer kinetischen Energie von 18 keV
b) Gemessenes Probenstrom-Signal

nicht sofort von ihnen abfließen können. Der Einfluß dieser Ladung auf die Messungen läßt sich bei flachen Einfallswinkeln des Elektronenstrahls beobachten. In Abb. 2.6 sieht man bei θ -Winkeln unter 30° dunkle Gebiete. Aus ihrer Form erkennt man, daß es sich bei ihnen um Kanteneffekte der verwendeten Probe handeln muß. Man sieht ein Rechteck, dessen Zentrum gegen den Pol bei 90° leicht verschoben ist. Ein Vergleich mit dem Photo des auf dem Manipulator befestigten Ge(001) Kristalls (Abb. 2.2) zeigt eine Übereinstimmung mit der rechteckigen Probe, die ebenfalls nicht genau zentrisch auf dem Probenhalter befestigt ist. Sogar die abgeschrägte Ecke der Ge-Probe läßt sich in den Daten erkennen. Für zukünftige Experimente bedeutet dieses, daß am besten scheibenförmige Kristalle mit großem Durchmesser z.B. Si-Waver verwendet werden sollten.

Das Probenstrom-Signal zeigt ausgeprägte Doppellinien-Strukturen, (vgl. Abbildung 2.7b-d, 2.8b). In ihnen läßt sich die vierzählige Symmetrie des Ge(100) bzw. die dreizählige Symmetrie des Si(111) erkennen. Eine mögliche Erklärung ist, daß es sich bei den Linien um *inverse* Kikuchi-Linien handelt (siehe auch Kapitel 1.3).

Die de Broglie Wellenlänge der einfallenden Elektronen ist kleiner als bei Photonen vergleichbarer Energie. Sie liegt bei den verwendeten Energien von 12-20 keV in der Größenordnung von $0,1 \text{ \AA}$. Das entspricht Photonenenergien von ca. 140 keV. Damit ergibt sich aus dem Bragg-Gesetz, $\sin \theta_B = \lambda / 2d_{hkl}$, mit einer Gitterkonstanten d_{hkl} von ca. 1 \AA für den Elektronen-

strahl ein Bragg-Winkel θ_B von ca. $2,5^\circ$. Die Kossel-Kegel um die reziproken Gittervektoren \hat{H}_{hkl} und $-\hat{H}_{hkl}$ entarten deshalb aufgrund ihres großen Öffnungswinkels ($180 - 2\theta_B$) zu einer Doppellinie mit ca. 5° Abstand zueinander, die parallel zur hkl-Netzebene verläuft und diese einschließt. Dieses ist in Abb. 2.9 noch einmal dargestellt. Ein Vergleich der berechneten Kikuchi-Linien-Muster in Abbildung 2.7a) und 2.8a) mit den jeweiligen Messdaten zeigt eine große Übereinstimmung.

Es wurden Rekonstruktionen der ungefilterten Meßdaten mit dem Barton-Algorithmus vorgenommen. In Abbildung 2.10 erkennt man in der Rekonstruktion der Daten des Silizium (111) aus Abbildung 2.8b) sechs Maxima im Abstand von $3,8 \text{ \AA}$ vom Detektor-Atom. Diese Positionen entsprechen den nächsten Nachbaratomen in der (111) Ebene. In Abb. 2.11 ist dementsprechend die Rekonstruktion der Germanium-Messdaten bei 17 keV aus Abb. 2.7 b) dargestellt. Es zeigen sich ebenfalls Maxima an einigen Atompositionen.

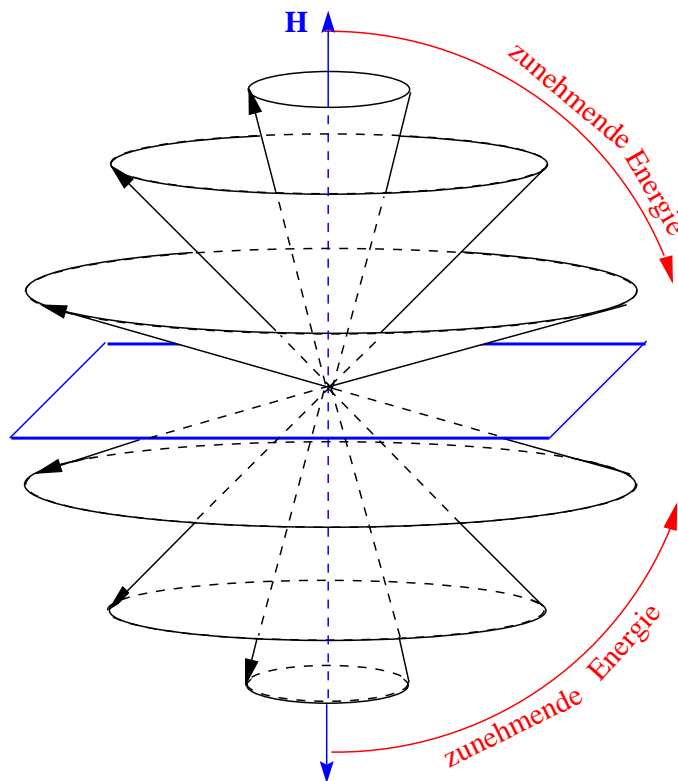


Abbildung 2.9: Der abnehmende Bragg-Winkel bei zunehmender Energie führt zu einer Doppellinie um die zugehörige Netzebene.

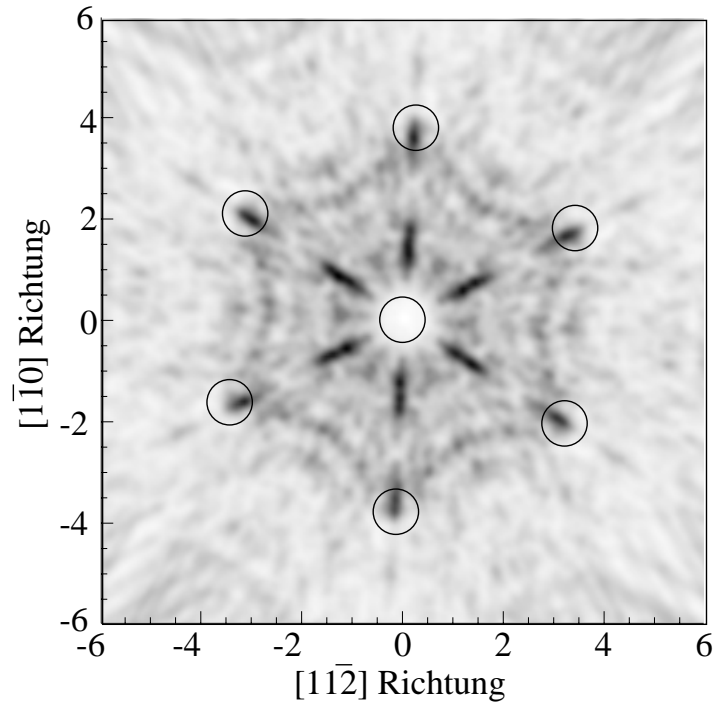


Abbildung 2.10: Rekonstruktion des Silizium(111) Kristalls in der $z = 0 \text{ \AA}$ Ebene aus dem Hologramm in Abbildung 2.8b

2.3 Fazit

Das Konzept der reziproken Holographie wurde erstmals auf die Elektronenholographie mit hochenergetischen Elektronen angewandt. Dabei wurden zwei verschiedene Meßmethoden verwendet, um die Hologramme zu detektieren.

Die Detektion der Fluoreszenz war mit Problemen behaftet. Es zeigte sich, daß der experimentelle Aufbau zur Detektion der Proben-Fluoreszenz geändert werden muß. Es wird ein schneller, energieauflösender und vakuumtauglicher Röntgendetektor benötigt, der klein genug ist, um innerhalb der Vakuumkammer zusammen mit der Probe bewegt zu werden. Dadurch wird gewährleistet, daß die Hologramme nicht in der gemischten Methode gemessen werden. Gleichzeitig wird die Fluoreszenz-Ausbeute durch den größeren vom Detektor abgedeckten Raumwinkel verbessert.

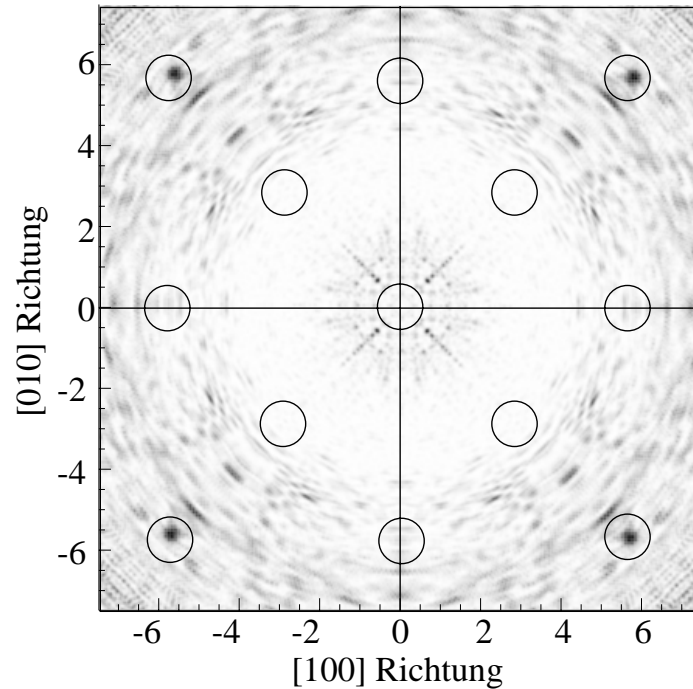


Abbildung 2.11: Rekonstruktion des Probenstroms für 17 keV Elektronen.

Die Messung des Probenstroms hat sich als ein gutes Verfahren herausgestellt, um die von der Probe insgesamt emittierten Elektronen direkt zu messen. Der einzige Nachteil dieser Detektionsmethode ist die fehlende Energieauflösung. Sie macht es unmöglich, die Sekundärsignale verschiedener Atome in der Probe zu trennen. Unter Umständen könne in den Experimenten die Augerelektronen verschiedener Elemente durch Anlegen einer Gegenspannung getrennt werden.

Obwohl die Rekonstruktionen der Probenstrom-Daten Maxima an den richtigen Atompositionen liefern, bedeutet dieses nicht zwangsläufig, daß die *holographische* Information im Meßsignal zu diesem Ergebnis führt. In den Probenstrom-Daten dominieren Linienmuster, die zwar Teil des Hologramms sind, für die aber nicht die Voraussetzung einer kleinen Objektwellen-Amplitude gilt, mit der der Rekonstruktionsalgorithmus hergeleitet wurde. In Kapitel 4 wird gezeigt, daß das Auftreten dieser Maxima auch alleine durch das Kossel-Linien-Muster zustande kommen kann.

Die Meßdaten lassen sich am ehesten mit der winkelaufgelösten Augerelektronen-Spektroskopie vergleichen. Aufgrund der starken Vorwärtsstreuung der

hochenergetischen Elektronen kommt es zur Mehrfachstreuung in Richtung atomarer Ketten. Dieser Effekt ist in verschiedenen Arbeiten untersucht worden [19], [26]. Aus Augerelektronen-Messungen sind Abhängigkeiten des Signals von der Einfallrichtung des anregenden Elektronenstrahls bekannt [27] [28]. Diese werden benutzt, um Modellstrukturen mit den gemessenen Daten zu vergleichen.

Es kann also festgestellt werden, daß die Elektronenholographie mit hochenergetischen Elektronen aufgrund der starken Forwärtsstreuung der Elektronen in Materie mit Schwierigkeiten behaftet ist und in dieser Form kein adäquater Ersatz für die Röntgenholographie ist. Zu prüfen ist die Möglichkeit, aus den vorgestellten Meßdaten Realraum-Informationen zu gewinnen, ähnlich denen, die Pavel Korecki für weiße Röntgenstrahlung vorgeführt hat [29].

Kapitel 3

Neue Meßmethoden in der Röntgenfluoreszenzholographie

In der Röntgenholographie liegt das Verhältnis von Signal zu Untergrund in der Größenordnung von 10^4 . Daher benötigt man 10^8 gezählte Photonen damit das holographische Signal größer als die statistische Streuung \sqrt{N} der Messung ist. In diesem Kapitel werden verschiedene Experimente vorgestellt, die die Vorteile der inversen Holographie nutzen, um die Signalausbeute der holographischen Messungen zu verbessern.

Bisher wurden in den reziproken Röntgenholographie-Experimenten dieselben Röntgen-Detektoren wie in der direkten Methode verwendet. Dabei handelt es sich um Silizium-Drift-Detektoren (SDD). Ihre Funktionsweise wird am Ende dieses Abschnitts noch genauer beschrieben. Diese Detektoren zeichnen sich durch eine gute Energieauflösung von ca. 170 eV aus. Damit ist es möglich, das Fluoreszenz-Signal vom elastisch gestreuten Untergrund der anregenden Röntgenstrahlung zu trennen. Zudem können die Signale verschiedener Elemente in der Probe separiert und so die atomaren Umgebungen verschiedener Atome mit einer einzigen Messung bestimmt werden. Trotzdem sind diese Detektoren im Sinne einer Optimierung der Signalausbeute für die Röntgenholographie nur bedingt geeignet.

Es können im Prinzip zwei verschiedene, ungünstige experimentelle Situationen eintreten. Untersucht man verdünnte Systeme, wie zum Beispiel die atomare Umgebung einzelner Dotieratome, ist das Meßsignal nur sehr gering. Da die SDDs nur eine aktive Fläche von $5\text{-}10\text{ mm}^2$ besitzen, können sie nur einen kleinen Teil der emittierten Fluoreszenzstrahlung detektieren, während der größte Teil der Emission ungenutzt verloren geht.

In der anderen denkbaren Situation hat man ein sehr starkes Fluoreszenz-Signal. Dieses kann jedoch nur bedingt zur Holographie genutzt werden, da die Detektoren in ihrem linearen Meßbereich nur einige 10^5 Photonen pro Sekunde verarbeiten können. Ein abschwächen des Signals ist zwar jederzeit möglich, läuft jedoch dem Bemühen um eine Optimierung der Meßstatistik und gleichzeitige Minimierung der Meßzeit entgegen.

Für schwache Signale ist also die aktive Fläche des Detektors zu klein und für starke Signale die mögliche Zählrate zu gering. In diesem Kapitel werden nun verschiedene neue Meßmethoden vorgestellt, die die Signalausbeute der holographischen Messungen verbessern.

Im Falle eines schwachen Proben-Signals kann die Meßstatistik verbessert werden, indem das Signal über einen größeren Raumwinkel gemessen wird. Dazu kann entweder ein Analysator verwendet werden, der einen größeren Teil der Fluoreszenzstrahlung auf die aktive Fläche des SDD's projiziert, oder man kann, dem Beispiel des vorangegangenen Kapitels folgend, die gesamte Emission von Augerelektronen als Sekundärsignal integral messen.

Bei einer starken Fluoreszenzstrahlung der Detektor-Atome bieten sich Detektoren mit höheren Zählraten, wie zum Beispiel APDs (Avalanche Photo Diodes) an. Da diese Detektoren jedoch eine sehr schlechte Energieauflösung besitzen, müssen sie ebenfalls zusammen mit einem Analysator kombiniert werden. Dabei dient dieser nicht alleine der Fokussierung der Fluoreszenzstrahlung, sondern wirkt hauptsächlich energieselektiv um das Fluoreszenz-Signal vom Untergrund und der Fluoreszenz anderer Atome zu trennen.

Im Folgenden wird im Abschnitt 3.1 ein Experiment beschrieben, das zur Detektion des Hologramms einen mit Graphit (HOPG) beschichteten Analysator mit einer einfachen PIN-Diode kombiniert. Abschnitt 3.2 geht näher auf einen neu entwickelten Detektor zur integralen Messung der von der Probe emittierten Augerelektronen ein. Die Ergebnisse dieser Experimente werden mit Röntgen-Hologrammen verglichen, die konventionell mit Silizium-Drift-Detektoren aufgenommen wurden.

Silizium Drift Detektoren (SDD) Diese Detektoren bestehen aus einer p-i-n Silizium-Diode, die in Sperrichtung betrieben wird. Der Aufbau der Diode ist in Abb. 3.1 dargestellt. Die Unterseite der Diode, die gleichzeitig als Fenster für die Röntgenquanten dient, besteht aus einem einzigen p-dotierter Kontakt, während auf der Oberseite eine Anzahl von ringförmigen, ebenfalls p-dotierten Kontakten sowie in der Mitte eine n-dotierte Anode aufgebracht sind.

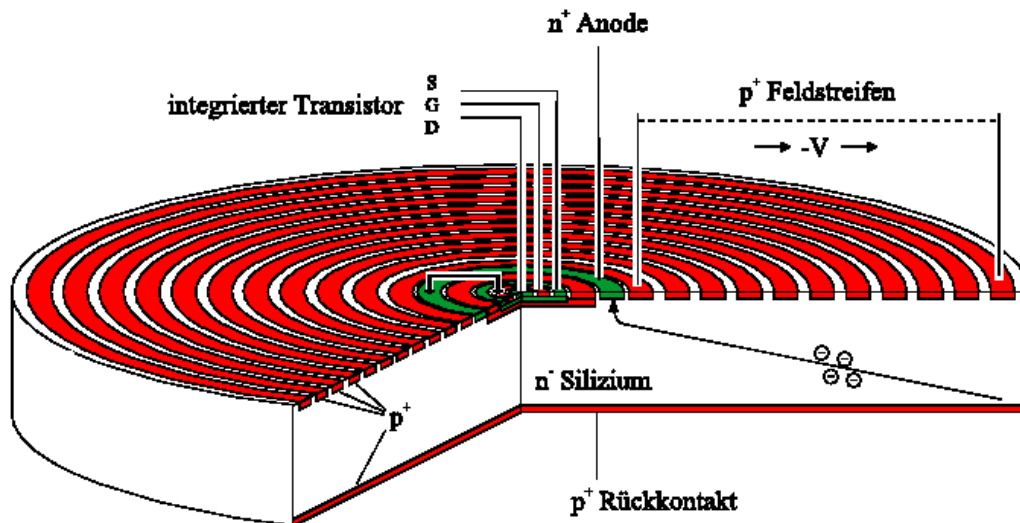


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau eines Silizium Drift Detektors [30]

Der Detektor funktioniert auf folgende Weise: Ein Photon erzeugt in der intrinsischen Schicht der Diode eine Zahl von Elektron-Loch-Paaren, proportional zu dessen Energie. Die erzeugten Löcher fließen zu den p-dotierten Kontakten. An diesen liegen, mit dem Radius der Diode nach Außen zunehmende, negative Spannungen an. Sie erzeugen ein trichterförmiges Potential, welches bewirkt, daß alle Elektronen, die im Silizium erzeugt wurden, zur Anode wandern. Das Signal der Elektronen wird dann noch durch einen in der Diode integrierten Transistor verstärkt.

Um im Silizium ein Ladungsträger-Paar zu erzeugen, wird nur eine Energie von $3,62\text{ eV}$ benötigt. Dieses bewirkt, daß diese Röntgendetektoren bei Raumtemperatur für die $\text{MnK}\alpha$ -Linie eine Energieauflösung von unter 200 eV haben. Ein Nachteil dieser Detektoren ist ihre kleine aktive Fläche von 5 mm^2 , die nur die Detektion in einem kleinen Raumwinkelbereich über der Probe ermöglicht. In der direkten Holographie ist eine kleine aktive Fläche des Detektors nötig, da diese die Winkelauflösung des Hologramms bestimmt. Im Gegensatz dazu hängt die Auflösung des Hologramms in der reziproken Holographie von der Divergenz des einfallenden Strahls ab. Es ist also möglich, das Sekundärsignal des Atoms über einen wesentlich größeren Raumwinkel integriert zu messen, um eine größere Photonenausbeute zu erreichen. Dazu kann man mehrere solcher Detektoren zu einer größeren Matrix kombinieren. Solche Detektorsysteme werden zur Zeit entwickelt, stehen aber noch nicht für die Holographie zur Verfügung [31] [32].

3.1 Messungen mit Hilfe eines Analysator-kristalls

Ein Ansatz, in der reziproken Holographie die Signalausbeute zu steigern, ist die Verwendung zusätzlicher optischer Elemente. Diese nutzen die Bragg-Reflexion an gebogenen kristallinen Strukturen, um die Röntgenstrahlung zu fokussieren.

Diese Analysatoren haben verschiedene mögliche Anwendungen. Mit ihrer Hilfe können die von der Probe emittierten Photonen aus einem größeren Raumwinkel auf die aktive Fläche eines Detektors fokussiert werden. Diese Anwendung eignet sich gut zur Untersuchung verdünnter Systeme, bei denen das Fluoreszenzsignal sonst aufgrund der geringen Zahl von Emittlern zu gering ist.

Auch im Fall, daß für eine holographische Analyse genug Photonen pro Sekunde in den vom Detektor abgedeckten Raumwinkel emittiert werden, erweisen sich spezielle Analysatoren als nützlich. Unter diesen Umständen begrenzt die maximale Zählrate der Silizium-Drift-Detektoren die Meßstatistik. Diese Detektoren sind für Photonenflüsse von bis zu 10^6 Photonen pro Sekunde ausgelegt, doch die im linearen Bereich verarbeitbare Zahl von Signalen ist, abhängig vom verwendeten Verstärker, auf maximal einige 10^5 Photonen pro Sekunde beschränkt.

Eine Möglichkeit, mehr Röntgenphotonen zu detektieren ist die Verwendung einer *Avalanche-Photo-Diode (APD)*. Vereinfacht betrachtet ist dies eine als p-n-Übergang ausgelegte Diode, die nahe der Durchbruchspannung betrieben wird. An ihr liegt ein elektrisches Feld in der Größenordnung von $1 \times 10^5 \text{ V/cm}$ an. Dadurch werden die in der Diode bei der Absorption eines Photons erzeugten Ladungsträger so stark beschleunigt, daß sie weitere Elektron-Loch-Paare erzeugen und sich somit eine Lawine von Ladungsträgern ausbildet. Dieser einfache intrinsische Verstärkungseffekt macht es möglich, daß die APD wesentlich mehr Photonen pro Sekunde zählen kann als die Silizium-Drift-Detektoren. Gleichzeitig führt er aber auch zu einer schlechten Energieauflösung der Diode. Um mit den Avalanche-Photo-Dioden trotzdem die Fluoreszenz einer bestimmten Atomsorte selektieren zu können, kann man ebenfalls röntgenoptische Elemente nutzen.

Es wurden in der Vergangenheit schon Experimente mit Graphitanalysatoren präsentiert, z.B. in [33]. In diesem Abschnitt wird kurz ein einfaches Experiment beschrieben, bei dem ein ringförmiger, mit Graphit beschichteter Analysator in Kombination mit einer herkömmlichen PIN-Diode verwendet

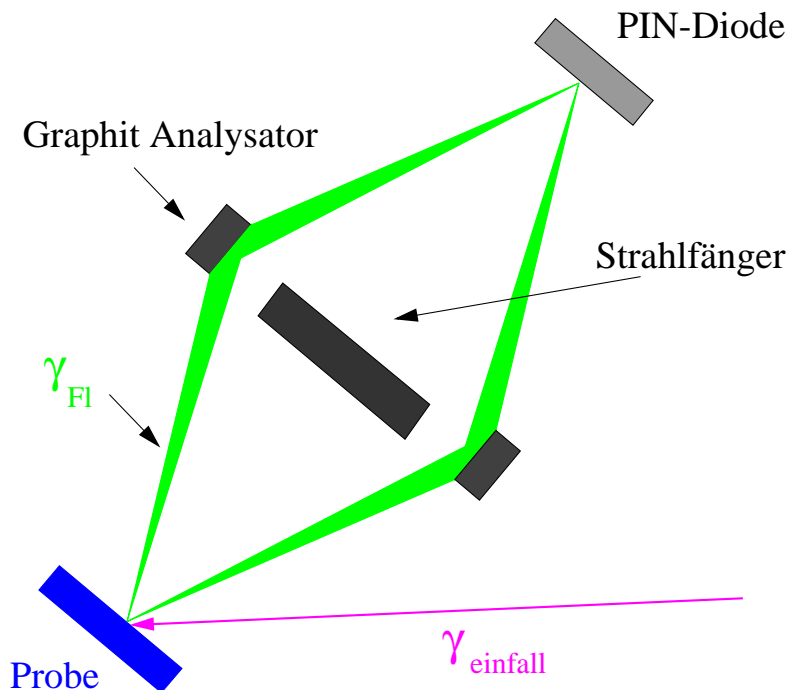


Abbildung 3.2: Funktionsweise des Graphit-Analysators. Der primäre Röntgenstrahl mit einer Energie von 12 keV trifft die Probe. Die vom Germanium-Atom emittierte Fluoreszenzstrahlung von $9,8\text{ keV}$ trifft unter einem Bragg-Winkel von $10,77^\circ$ auf den Graphit-Analysator und wird von diesem auf die PIN-Diode reflektiert. Der Strahlfänger verhindert, daß die Fluoreszenz der Probe und der elastisch gestreute Primärstrahl den Detektor direkt treffen.

wurde, um die Fluoreszenzemission von dotierten Germanium-Atomen in einer Siliziumprobe zu detektieren.

Die Experimente wurden während einer Meßzeit im Frühjahr 2000 an der ESRF in Grenoble am Meßplatz ID22 von D. Novikov, Y. Nishino und mir durchgeführt. Es wurde ein mit 3.5% Germanium dotierter Silizium (111) Kristall untersucht. Um die Position der Germanium-Atome in der Probe zu bestimmen, wurden reziproke Hologramme der atomaren Umgebung von Germanium-Atomen aufgenommen.

Zur Fokussierung der Germanium-Fluoreszenz wurde ein ringförmiger Analysator verwendet. Er bestand aus einem mit HOPG (Highly Oriented Pyrolytic Graphite) beschichteten Aluminium-Ring mit 3 cm Durchmesser und einer Tiefe von 1 cm . Diese Art des Analysators ist nicht energiselektiv. Je-

de Energie wird unter ihrem Bragg-Winkel von ihm reflektiert. Nur durch die Wahl des Abstands von der Probe zum Analysator und vom Analysator zum Detektor wird die auf den Detektor fokussierte Energie bestimmt. Für die Germanium-Fluoreszenz mit einer Wellenlänge von $1,26 \text{ \AA}$ ergibt sich aus der Gitterkonstante des HOPG von $3,355 \text{ \AA}$ ein Bragg-Winkel von $10,85^\circ$. Aus dem Durchmesser des Analysators von 3 cm ergibt sich schließlich ein Abstand von $7,8 \text{ cm}$ von der Probe zum Analysator und von diesem zum Detektor.

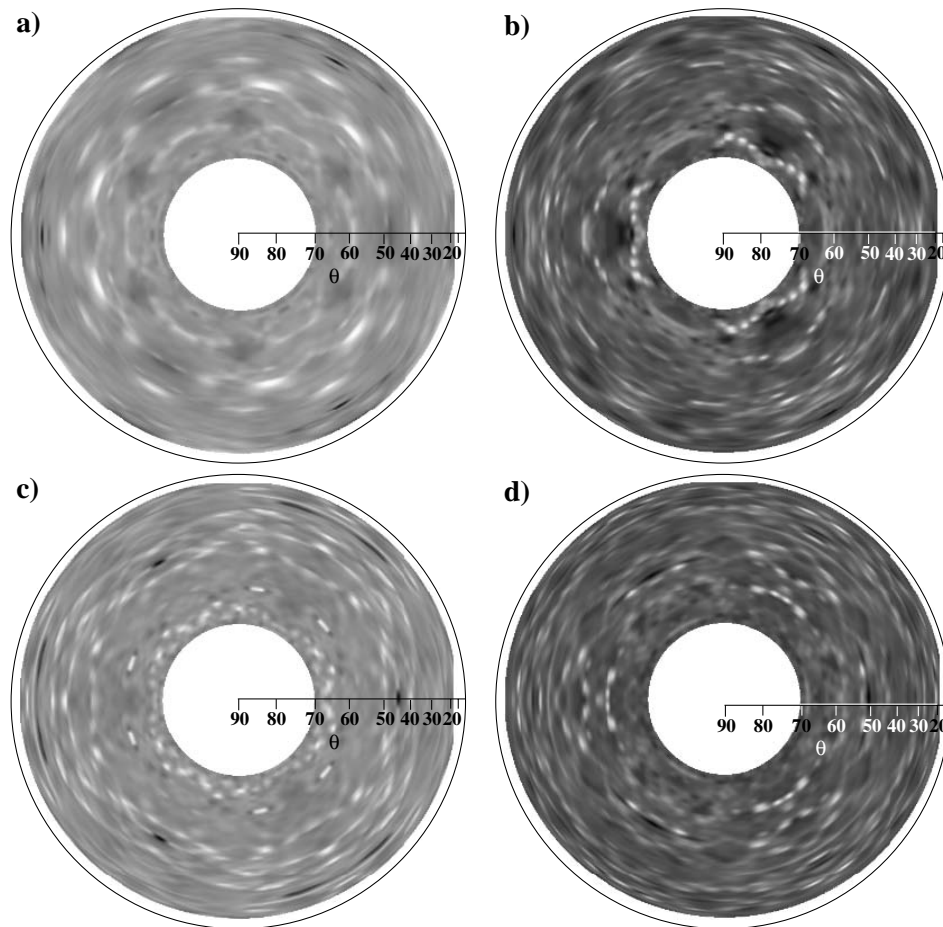


Abbildung 3.3: Gemessene Hologramme der Germanium-Fluoreszenz für Germanium dotiertes Silizium(111), aufgenommen bei Energien der einfallenden Röntgenstrahlung von a) 12, b) 14, c) 16 und d) 18 keV in einem Winkelbereich von $\theta = 20^\circ$ - 71° . Man erkennt in den Daten einige ausgeprägte Maxima mit der dreizähligen Symmetrie der (111)-Oberfläche.

In der Mitte des Rings war ein Strahlfänger aus 1 mm Blei mit einem Durchmesser von 1 cm befestigt. Er sollte verhindern, daß ein Teil der Proben-Fluoreszenz den Detektor direkt trifft. Als Detektor diente eine Silizium-PIN-Diode, die in Sperrrichtung betrieben wurde.

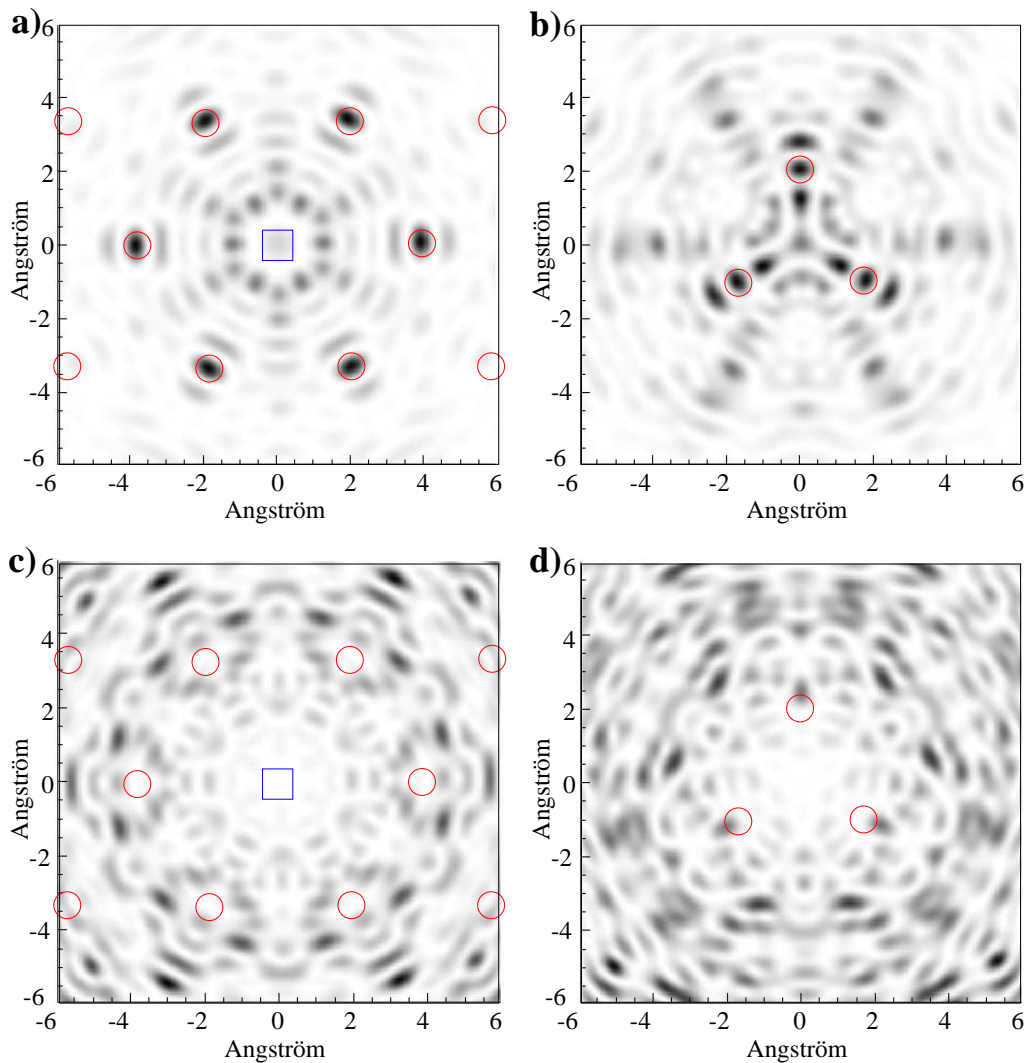


Abbildung 3.4: Rekonstruktion der atomaren Umgebung des Germaniums. a) bei 12 keV in der Ebene des Detektor-Atoms und b) $0,78\text{ \AA}$ darüber. c) bei einer Energien von 14 keV in der Ebene und d) $0,78\text{ \AA}$ darüber. Die Kreise markieren die Positionen der Nachbaratome, das Quadrat die Position des Detektor-Atoms

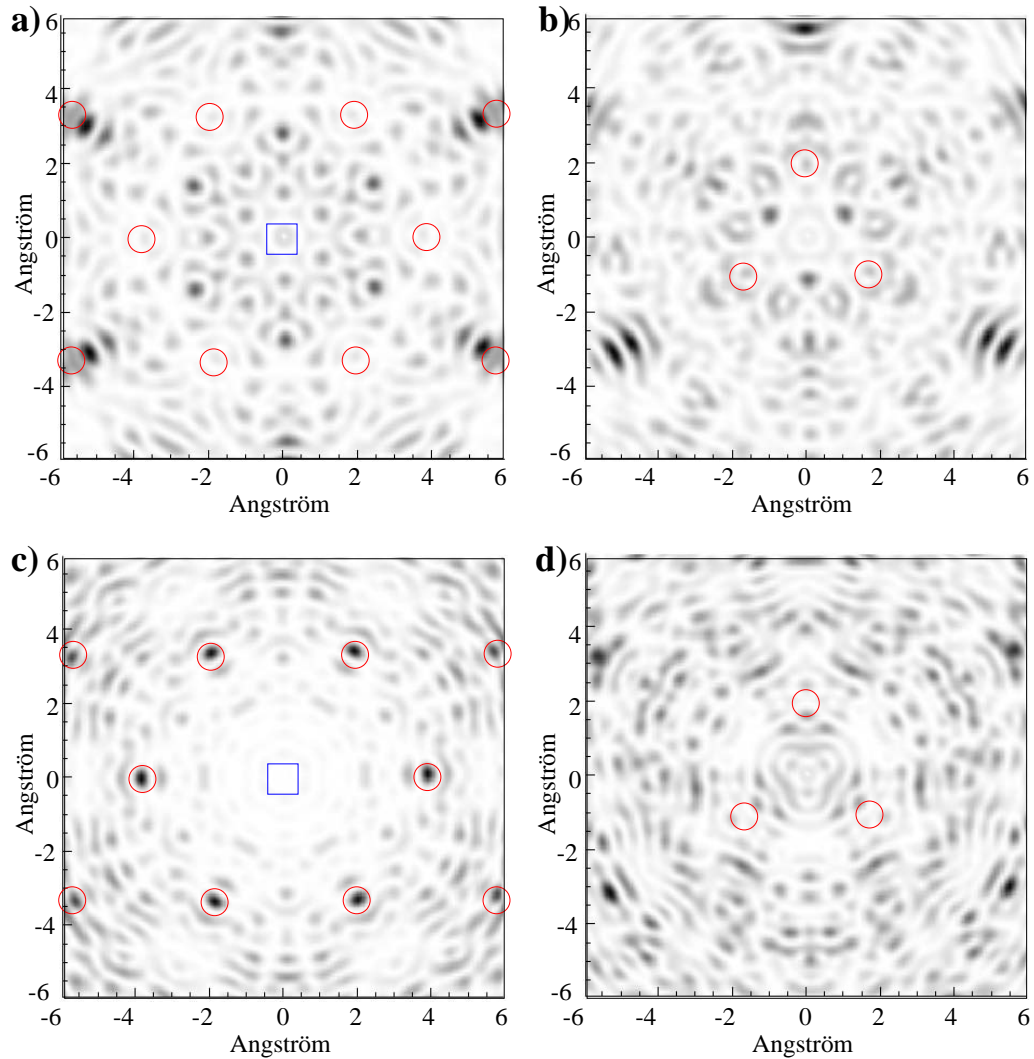


Abbildung 3.5: Rekonstruktion der atomaren Umgebung des Germaniums. a) bei 16 keV in der Ebene des Detektor-Atoms und b) $0,78 \text{ \AA}$ darüber. c) bei einer Energien von 18 keV in der Ebene und d) $0,78 \text{ \AA}$ darüber. Die Kreise markieren die Positionen der Nachbaratome, das Quadrat die Position des Detektor-Atoms

In Abbildung 3.3 ist das gemessene Hologramm der Germanium-Fluoreszenz dargestellt. Es wurde bei Energien der einfallenden Strahlung von 12-18 keV in einem Winkelbereich von $\theta = 20^\circ$ - 71° aufgenommen. Die Meßdaten werden von einigen starken Maxima dominiert. In ihnen spiegelt sich die dreizählige Symmetrie der Probe wieder. Bei diesen Maxima handelt es sich um Bragg-

Reflexionen des einfallenden Strahls an der Probe, die trotz des Strahlfängers durch Luftstreuung den Detektor getroffen haben.

In Abb. 3.4 und Abb. 3.5 sind Schnitte durch die Rekonstruktion der Meßdaten dargestellt. Es ist einmal die Ebene des Detektoratoms selber und zum anderen die Ebene der nächsten Nachbarn, $0,78 \text{ \AA}$ darüber, gezeigt. Es finden sich Maxima in der Nähe der richtigen Atompositionen. Wie in Abschnitt 3.2.1 gezeigt werden wird, können diese Strukturen in den Rekonstruktionen zumindest teilweise eine Folge weniger einzelner Bragg-Maxima sein, die nicht aus den Meßdaten entfernt wurden.

3.2 Messungen an Cu_3Au

Eine andere Möglichkeit, in der reziproken Holographie die Statistik der Meßdaten zu verbessern, ist es, nicht die Fluoreszenzstrahlung sondern die ebenfalls bei der Relaxation der Atome erzeugten Augerelektronen zu detektieren. Diese können mit einem Elektronendetektor, ähnlich den Photonen, direkt gemessen werden. Dazu muß allerdings das gesamte Holographie-Experiment unter UHV-Bedingungen durchgeführt werden. Desweiteren unterliegt man weiterhin der Beschränkung, daß auch der Elektronendetektor nur einen kleinen Raumwinkel über der Probe abdeckt und dazu noch ortsfest zur Probenoberfläche gehalten werden muß. Auf den ersten Blick stellt die Detektion der Augerelektronen also eher eine Erschwernis der experimentellen Bedingungen dar.

Was die Nutzung der Augerelektronen für die Holographie so interessant macht ist die Möglichkeit, den Strom aller die Probe verlassen Elektronen direkt zu messen, vergleichbar dem Probenstrom in Kapitel 2.2.2. Dazu baut man die zu untersuchende Probe in eine Art Ionisationskammer ein, deren eine Elektrode die Probe selbst ist. Die die Probe verlassenden Augerelektronen werden dann im Füllgas der Kammer absorbiert und erzeugen eine Ladungswolke aus Elektronen und ionisierten Gasatomen. Diese wird dann durch das elektrische Feld zwischen den Elektroden der Kammer separiert und kann schließlich als Strom, der über die Platten abfließt, gemessen werden.

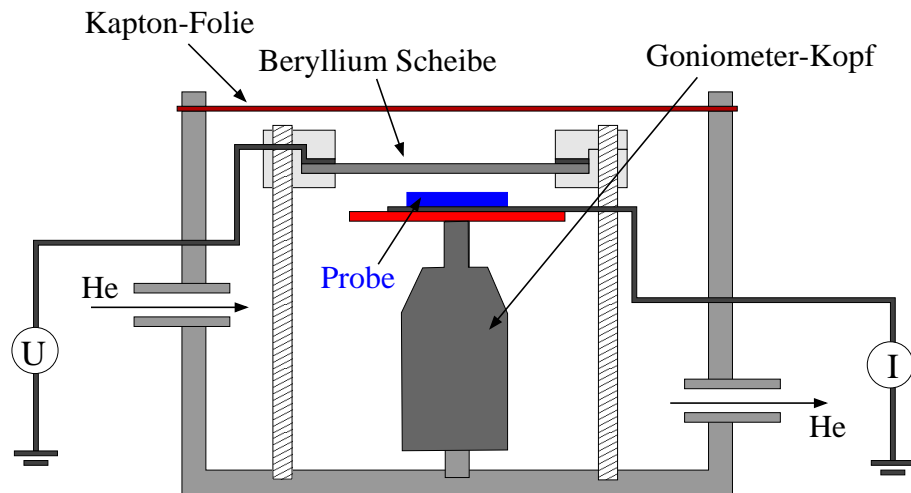


Abbildung 3.6: Aufbau des Elektronendetektors

Der Nachteil dieser Methode ist die fehlende Energieauflösung. Man kann im Detektorsignal die Augerelektronen verschiedener Elemente und die ebenfalls entstehenden Photoelektronen nicht voneinander trennen. Deshalb muß die Energie der anregenden Röntgenstrahlung am besten so wählen, daß in der Probe nur eine Atomsorte angeregt wird.

Der zur Holographie mit Augerelektronen entwickelte Detektor stellt eine Weiterentwicklung des von Tina Hiort in ihrer Dissertation [34] beschriebenen Detektors dar. Er ist folgendermaßen aufgebaut, siehe auch Abb. 3.6:

Eine scheibenförmige Grundplatte aus Aluminium mit ca. 20 cm Durchmesser ist direkt auf einem Drehkreis der Firma Huber befestigt. Ein Zylinder aus Aluminium bildet die Wand des Detektors. Nach oben hin wird er durch eine Kaptonfolie als Fenster für die einfallende Röntgenstrahlung abgeschlossen. Als Füllgas dient Helium, mit dem der Detektor gespült wird.

Auf der Grundplatte ist ein Goniometerkopf angebracht, auf dem sich der isolierende Probenhalter aus Kunststoff befindet. Mit Hilfe des Goniometerkopfes kann die Probe so ausgerichtet werden, daß ihre Oberflächennormale parallel zur ϕ -Achse des Drehkreises ausgerichtet ist.

Die Probe selber stellt eine Elektrode der Ionisationskammer dar, mit der der Fluß der Augerelektronen gemessen werden soll. Sie ist über einen Keithley-

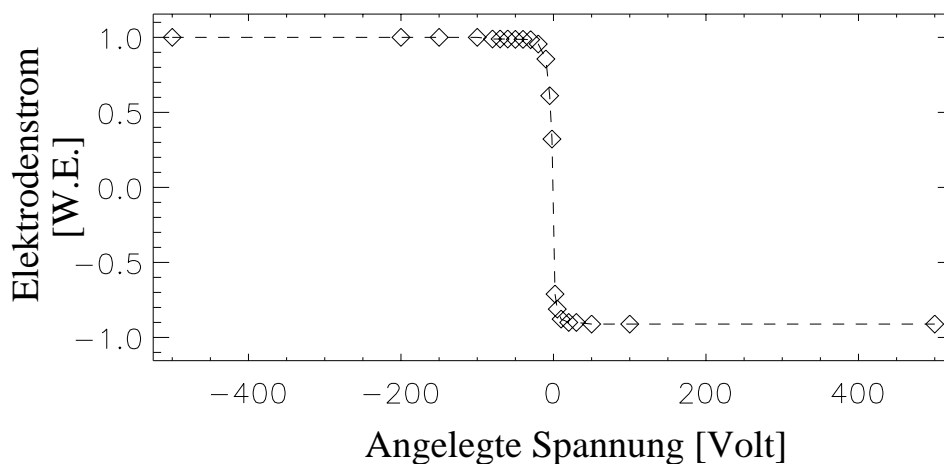


Abbildung 3.7: Kennlinie des Elektrodenstroms der Meßzelle. Dargestellt ist der gemessene Strom in willkürlichen Einheiten als Funktion der zwischen den Elektroden angelegten Spannung.

Verstärker geerdet. Mit ihm ist es während des Experiments möglich, den von der Elektrode abfließenden Strom zu messen. Über der Probe ist in einem Abstand von ca. 8 – 10 mm die zweite Elektrode angebracht. An ihr liegt eine Spannung von 300 Volt an, die dafür sorgt, daß die bei der Absorption der Augerelektronen im Helium erzeugten Ladungswolken separiert werden.

Um die Probe zu treffen, muß der Röntgenstrahl diese zweite Elektrode passieren. Im ursprünglichen Aufbau diente eine 50 μm dicke Aluminiumfolie als Elektrode. Da sie sich nicht ohne Verformung in ihrer Halterung befestigen ließ, wurde sie durch eine 1 mm dicke Beryllium-Scheibe mit 5 cm Durchmesser ersetzt. Sie absorbiert den Strahl kaum und ist aufgrund ihrer Dicke steif genug, um sich im Probenhalter nicht zu verformen.

Um nichtlineare Effekte zu vermeiden, mußte sichergestellt werden, daß die bei der Ionisation des Meßgases erzeugten Ladungswolken im elektrischen Feld zwischen den Elektroden nur separiert und nicht so stark beschleunigt werden, daß sie ihrerseits weitere Gasatome ionisieren. Dazu wurde eine Kennlinie der Meßzelle aufgenommen. In Abbildung 3.7 ist der gemessene Elektrodenstrom, abhängig von der Spannung zwischen den beiden Elektroden in willkürlichen Einheiten aufgetragen. Man sieht, daß sich der Detektor bei den 300 V, die bei den Messungen angelegt wurden, im linearen Bereich der Kennlinie befindet

Um die Hologrammdetektion mit Augerelektronen zu testen, wurden im April 2001 am Meßplatz C1 (CEMO) des HASYLAB Messungen sowohl mit SDD-Röntgendetektoren als auch mit einem Detektor für die Augerelektronen vorgenommen. Als Probe wurde ein Cu_3Au -Einkristall ausgewählt, um die Ergebnisse der Experimente mit früheren Messungen vergleichen zu können.

Cu_3Au besitzt eine kubische Struktur, sie ist in Abbildung 3.8 dargestellt: In den Ecken der Einheitszelle mit einer Gitterkonstanten von 3,75 Å befinden sich Goldatome, auf den flächenzentrierten Positionen sitzen Kupferatome.

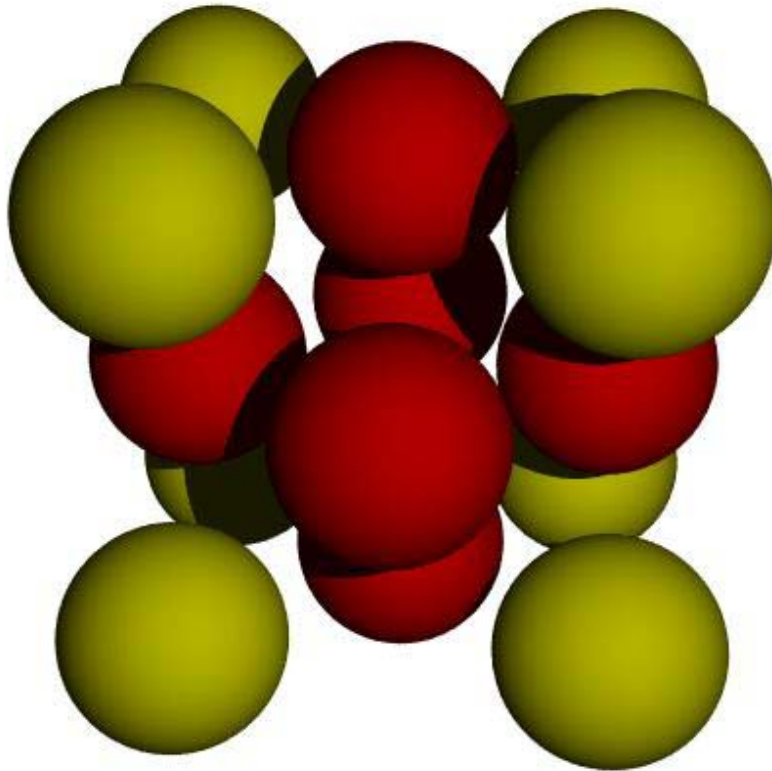


Abbildung 3.8: Struktur von Cu_3Au . In den Ecken der kubischen Elementarzelle mit einer Gitterkonstanten von 3.75 \AA liegen die Gold-Atome, auf den flächenzentrierten Positionen die Kupfer-Atome.

3.2.1 Messungen mit Silizium-Drift-Detektoren

Um einen unmittelbaren Vergleich mit konventionell gemessenen Hologrammen zu haben, wurde zuerst eine reziproke Messung mit 2 Silizium-Drift-Detektoren der Firma Röntek durchgeführt. Es wurde 12 keV als Energie der einfallenden Röntgenstrahlen gewählt. Sie liegt über der Kupfer K- und der Gold L-Kante. Von der in der Probe angeregten Fluoreszenz wurde die Kupfer $K\alpha$ Linie bei 8 keV und die Gold $L\alpha$ Linie bei $9,7\text{ keV}$ in derselben Messung aufgezeichnet. Damit konnte in einer Messung sowohl das Hologramm der atomaren Umgebung des Goldes als auch der des Kupfers getrennt untersucht werden.

Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 3.9 dargestellt:

Von der Elektronen-Meßzelle wurden die Zylinderwand, das Kaptonfenster und die Beryllium-Elektrode entfernt. Die Probe wurde mit dem Probenhalter auf dem Goniometerkopf der Zelle befestigt. Dieser war zusammen mit der Grundplatte auf dem Huber-Drehkreis angebracht.

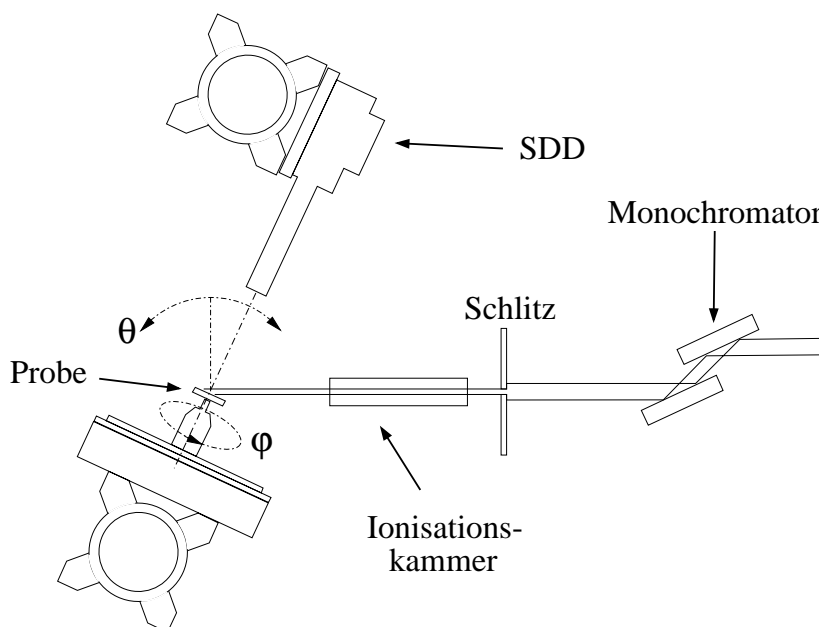


Abbildung 3.9: Erstes Experiment. Zwei Detektoren sind über der Probe angebracht. Der erste genau senkrecht über der Probenoberfläche, der zweite etwas schräg dazu. Dieser ist in dieser Abbildung nicht dargestellt da er von ersten Detektor verdeckt wird.

Mit dem Drehkreis wurde die ϕ -Rotation der Probe durchgeführt. Um die Probenoberfläche um θ gegen die Einfallrichtung des Röntgenstrahls kippen zu können, wurde der Huber-Kreis am θ -Arm des Diffraktometers am Meßplatz befestigt. Die Röntgendetektoren wurden ebenfalls an diesem θ -Arm angebracht, so daß sie in θ , mit der Probe zusammen, gekippt werden konnten. Um eine gemischte Messung zu vermeiden, mußte der Detektor auch in ϕ mit der Probe gedreht werden. Da dieses in dem Experiment nicht möglich war, wurde einer der Detektoren, in Verlängerung der ϕ -Achse, in einem Abstand von ca. 20 cm über der Probe angebracht, so daß er senkrecht auf die Probenoberfläche schaute. Unter diesen Bedingungen ist es möglich, eine reine Messung durchzuführen, ohne den Detektor in ϕ mit zu drehen.

Ein zweiter Detektor wurde auf gleicher Höhe neben dem ersten angebracht. Dieser schaute allerdings unter einem leicht schrägen Winkel auf die Probe, so daß die Meßdaten dieses Detektors die typischen Streifen einer gemischten Messung zeigen (vgl. Abb. 3.14). Da die Detektoren über der Probe angebracht waren, war es nicht möglich, bei hohen Einfallswinkeln der Röntgenstrahlung zu messen, da dort der einfallende Strahl die Detektoren getroffen hätte. Die Hologramme konnten aus diesem Grunde nur in einem Bereich von $\theta = 20 - 65^\circ$ aufgenommen werden.

Als Quelle der Röntgenstrahlung für das Experiment diente die Synchrotronstrahlung des Doris-Speicherrings. Mit Hilfe eines Monokromators wurde aus dieser die Energie von 12 keV ausgewählt. Nach dem Monokromator wurde das Strahlprofil mit Hilfe eines Schlitzsystems auf $0,2\text{ mm} \times 0,2\text{ mm}$ verkleinert. Als Monitor zur Stabilisierung der einfallenden Strahlung wurde das Signal einer Ionisationskammer direkt hinter dem Schlitz verwendet. Das Diffraktometer des Meßplatzes wurde schließlich so justiert, daß der Strahlfleck die Kristalloberfläche genau am Kreuzungspunkt von θ - und ϕ -Achse traf.

Um sowohl qualitative als auch quantitative Aussagen über die Messung machen zu können, wurde aus dem Energiespektrum der beiden Detektoren mit Hilfe von jeweils drei Ein-Kanal-Analysatoren (kurz SCA - *single channel analyzer*) die Photonenrate bei der Gold- und Kupfer-Fluoreszenz sowie die Gesamtzählrate der Detektoren aufgezeichnet.

Auswertung der Daten des im Pol liegenden Detektors: In den Meßdaten fallen ausgeprägte Maxima auf. Ihre Symmetrie legt es nahe, daß es sich bei ihnen um Braggreflexionen des einfallenden Strahls handelt, die direkt die Öffnung des Röntgendetektors treffen. Die Maxima sind in allen drei

Signalkanälen an den selben Positionen zu finden. Besonders deutlich sind sie zu erkennen, wenn vom Gesamtsignal die Gold- und Kupfer-Fluoreszenz subtrahiert wird. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.10 dargestellt.

Mit Hilfe der Wellenlänge der einfallenden Strahlung, $\lambda = 1,0325 \text{ \AA}$ und dem Einfallswinkel des Röntgenstrahls kann man die in Frage kommenden Bragg-reflexe identifizieren (siehe Tabelle 3.1). Man findet Reflexe der (135), (226) und (117) Ebenen. Keiner dieser Reflexe verläßt direkt die Probe in Richtung der Oberflächennormalen. Die Abweichungen betragen zwischen $-3,2^\circ$ und $+1,2^\circ$. Aus der Größe des Strahlflecks, dem Abstand des Detektors von der Probe und dem Durchmesser der Detektoröffnung ergibt sich eine Winkelauflösung der Bragg-Reflexe von ca. 3° . Damit lassen sich die berechneten Ausfallswinkel der Reflexe miteinander vereinbaren, sofern man davon ausgeht, daß der Detektor nicht parallel der Oberflächennormalen, sondern ca. -1° dagegen verkippt ausgerichtet war.

Die Maxima werden von der einfallenden Strahlung erzeugt. Daher ist es nötig, zu klären, wieso sie sich auch in den Gold- und Kupfer-Fluoreszenz-Daten finden lassen. Zu diesem Zweck habe ich an mehreren Punkten eines

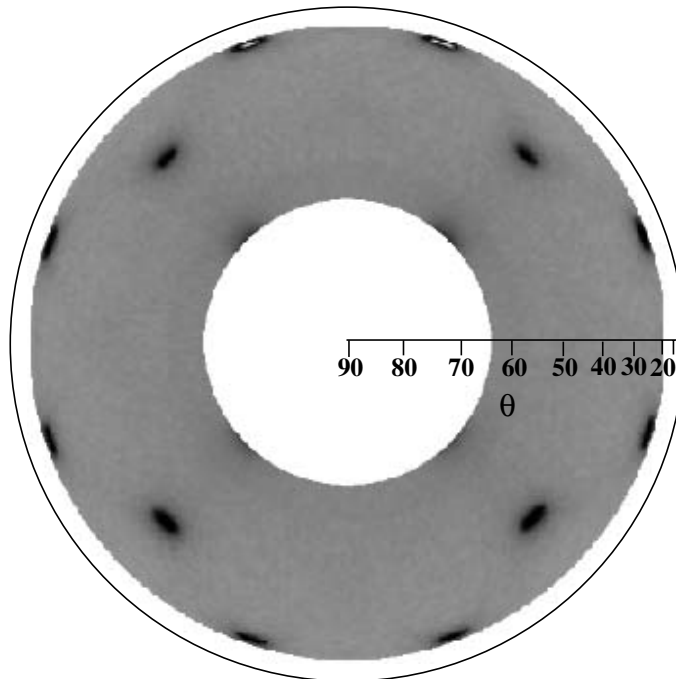


Abbildung 3.10: Untergrundsignal des ersten Detektors bei einer Energie der einfallenden Strahlung von 12 keV

Datensatzes das Verhältnis der Beiträge von Kupfer- und Gold-Fluoreszenz sowie der Untergrundstrahlung zum Gesamtsignal untersucht. Dabei habe ich zwei den Reflexen weit entfernte Punkte, einen Punkt an der Flanke und einen Punkt direkt im Maximum eines Reflexes untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.2 aufgelistet.

Man findet, daß für einen beliebigen Punkt im Hologramm das Verhältnis der Gold- zur Kupfer-Fluoreszenz ca 56% beträgt. Beide zusammen machen 94% des Gesamtsignals aus. Die Zählraten betragen für die Kupfer- ca. 40.000 und für die Gold-Fluoreszenz ca. 30.000 Photonen pro Sekunde. Damit ist der lineare Bereich des Detektors mit seinen 10^5 Photonen pro Sekunde gut ausgenutzt.

Nähert man sich nun der Flanke eines Reflexes, bleibt die Anzahl der Photonen der Kupfer-Fluoreszenz in etwa gleich. Die Zahl der Gold-Fluoreszenz-Photonen steigt dagegen auf 72% der Kupfer-Photonen an. Der elastisch gestreute Untergrund ist dabei schon so weit gestiegen, daß er inzwischen 35% des Gesamtsignals ausmacht.

Direkt im Maximum eines Reflexes kann man folgendes beobachten: Sowohl die Kupfer- als auch die Goldfluoreszenz wird mit über 200.000 Photonen pro Sekunde detektiert. Das Gesamtsignal beträgt an diesem Punkt aber nur 375.000 Photonen, also weniger als die Summe seiner Beiträge. Das bedeutet, daß man sich bei Zählraten von über 200.000 Photonen schon weit in den Totzeiteffekten des verwendeten Detektors befindet.

Die Ergebnisse lassen sich folgendermaßen deuten. Sobald man sich mit dem einfallenden Strahl einem Bragg-Reflex nähert, der in den Detektor reflektiert wird, nimmt der elastisch gestreute Anteil des Signals drastisch zu. Durch die hohe Zählrate in diesem Energiekanal verschlechtert sich die Energieauflösung des Detektors. Da die Gold-Fluoreszenz mit $9,7\text{ keV}$ näher am elastischen Reflex liegt als die Kupfer-Fluoreszenz bei 8 keV macht sich dieser Effekt im

Theta gemessen	Phi	Reflex	Theta berechnet	Abw. von \hat{n}
22,5°	18°, 71°, 108°, 161°, 198,5°, 251°, 288,5°, 341°	(135)	22,2°	-3,2°
41°	45°, 135°, 225°, 315°	(226)	40,7°	1,2°
67,5°	45°, 135°, 225°, 315°	(117)	68,0°	0,9°

Tabelle 3.1: Einfallrichtungen der in den mittigen Detektor Bragg-reflektierten Strahlen aus Abb. 3.10.

Hologramm der Goldatome früher und stärker bemerkbar. Steigt die Zahl der Photonen noch weiter an, erreicht der Detektor seinen nichtlinearen Bereich und es kommt zu Totzeiteffekten, die eine Detektion der wirklich vorhandenen Fluoreszenzstrahlung der Probe nicht mehr zulassen.

Den Einfluß der Bragg-Reflexe auf die Hologramme und deren Rekonstruktion läßt sich in Abb. 3.11 zeigen: In a) ist das Hologramm der Kupfer- und in b) das der Goldfluoreszenz gezeigt. Wie eben beschrieben, machen sich die Bragg-Reflexe in den Gold-Daten besonders stark bemerkbar. Daher konnten sie auch nicht vollständig aus dem Hologramm entfernt werden. In c) und d) sind die jeweiligen Rekonstruktionen der Hologramme in der [100]-[010]-Ebene, parallel zur Probenoberfläche, dargestellt.

In der Rekonstruktion der Kupferfluoreszenz findet man starke Maxima nur für die übernächsten Nachbarn, d.h. für die Goldatome in den Ecken der Elementarzelle. Die Positionen der Maxima sind um ca. $0,7 \text{ \AA}$ gegenüber den Atompositionen bei $3,75 \text{ \AA}$ verschoben und liegen bei ca. $4,5 \text{ \AA}$. Diese Abweichung der Atompositionen in den Rekonstruktionen ist auch aus anderen Arbeiten bekannt [34].

Punkt	A	B	C	D
Theta	50°	32°	23°	22°
	Ph./Sek	Ph./Sek	Ph./Sek	Ph./Sek
Gesamt	69.067	71.951	117.248	375.266
Untergr.	4.765 = 6%	4.545 = 6%	40.690 = 35%	??
Cu	41.170 = 60%	42.550 = 59%	44.468 = 38%	227.499
Au	23.132 = 34%	24.856 = 35%	32.090 = 27%	217.537
Au/Cu	57%	55%	72%	95%

Tabelle 3.2: Meßdaten an vier verschiedenen Punkten. Punkt A und B liegen mitten im Hologramm, weit entfernt von allen Peaks. Punkt C befindet sich auf der Flanke und Punkt D an der Spitze eines Bragg-Maximums. Es ist jeweils aufgeführt:

Die θ -position des Punktes im Datensatz.

Die gesamte Zählrate des Detektors.

Die Photonen des Untergrundsignals und dessen Anteil am Gesamtsignal.

Die Zählraten und Anteile am Gesamtsignal für die Kupfer- und Goldfluoreszenz, sowie das Verhältnis zwischen den beiden Raten.

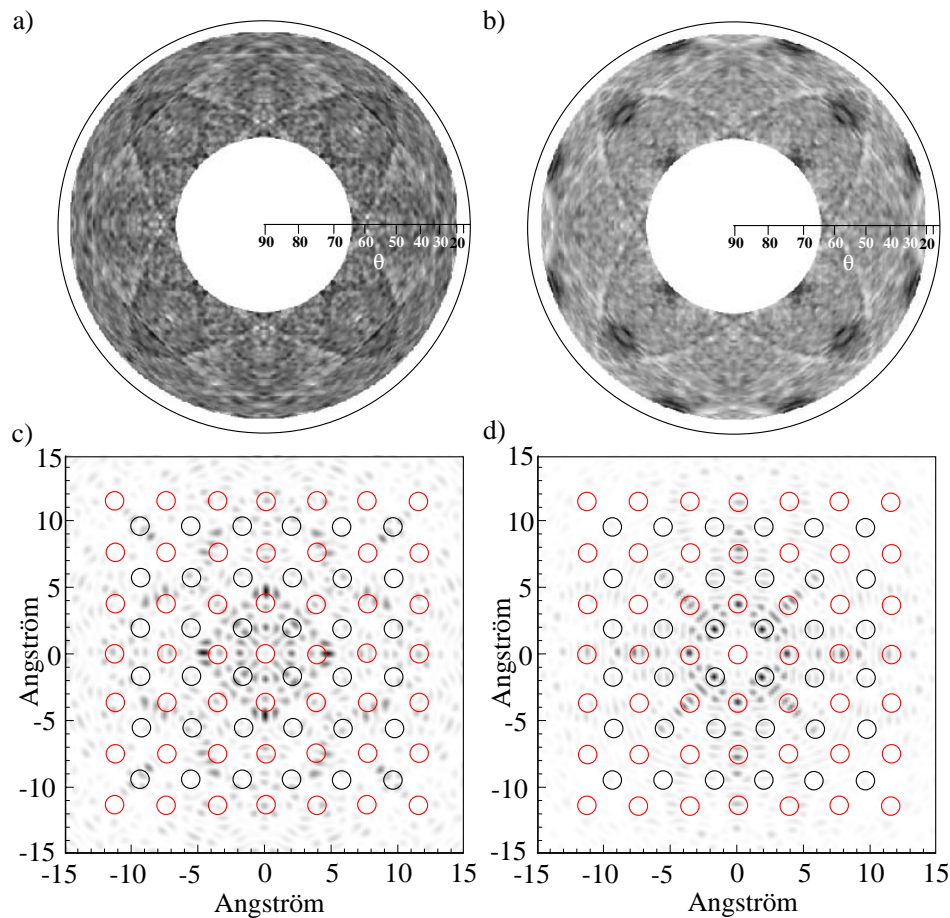


Abbildung 3.11: Fluoreszenz-Daten des ersten Detektors. Es ist dargestellt:

- a) Das Hologramm der Kupferfluoreszenz bei 8 keV
- b) Das Hologramm der Goldfluoreszenz bei $9,7 \text{ keV}$
- c) Die Rekonstruktion der Kupfer-Fluoreszenz-daten
- d) Die Rekonstruktion der Gold-Fluoreszenz-daten.

In den Rekonstruktionen der Kupfer-Daten findet man die Maxima der übernächsten Nachbarn, allerdings nicht im richtigen Abstand von $3,75 \text{ \AA}$, sondern verschoben bei $4,5 \text{ \AA}$. Aus den Gold-Daten konnten die Bragg-Reflexe der einfallenden Strahlung nicht komplett entfernt werden. In der Rekonstruktion der Daten findet man Maxima an den exakten, nicht verschobenen Positionen der nächsten und übernächsten Nachbarn.

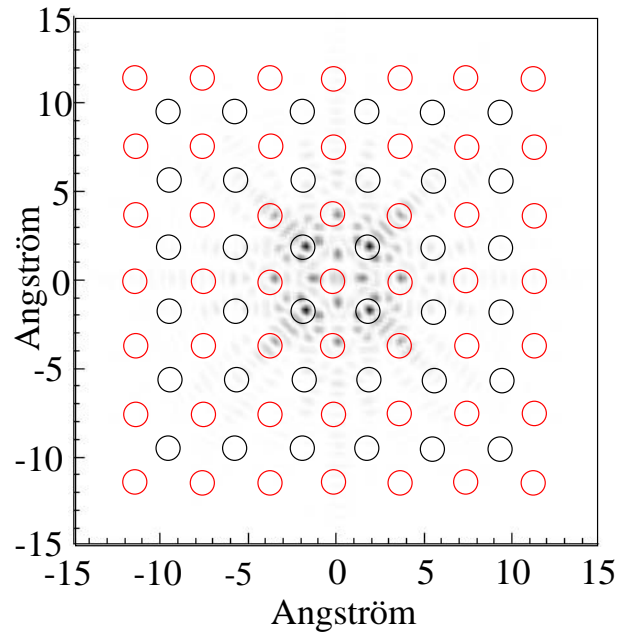


Abbildung 3.12: *Rekonstruktion* des vom im Pol gelegenen Detektor gemessene elastisch gestreuten Untergrunds (siehe Abb. 3.10) mit Hilfe des Algorithmus von Barton. Es zeigen sich Maxima an den selben Positionen wie in der Rekonstruktion der Gold-Fluoreszenz-Daten in Abb. 3.11 d)

In der Rekonstruktion der Gold-Fluoreszenz-Daten findet man dagegen Maxima an den Positionen der nächsten und übernächsten Nachbarn. Sie zeigen keine Verschiebung der Atomposition sondern passen genau. Dieses eigentlich positive Ergebnis stimmt mißtrauisch. Daher wurde das Signals des elastisch gestreuten Untergrunds, das in Abb. 3.10 dargestellt ist, ebenfalls mit Hilfe des Barton-Algorithmus rekonstruiert. Das Ergebnis hiervon ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Es finden sich die selben Maxima an den Positionen der nächsten und übernächsten Nachbarn wie in der Rekonstruktion der Gold-Fluoreszenz-Daten. Die Maxima stammen dort also nicht ausschließlich vom Fluoreszenz-Hologramm, sondern teilweise auch aus den nicht vollständig entfernten Bragg-Reflexen in diesen Daten.

Auswertung der Daten des verkippten Detektors: Der zweite Detektor war neben dem ersten auf gleicher Höhe angebracht, allerdings etwas zur Seite verschoben. Dadurch blickte er unter einem Winkel von ca. 25° schräg auf die Probe. In den vom Detektors gemessenen Daten lassen sich ebenfalls

Bragg-Reflexe finden. Da in diesem Fall allerdings die Aufnahmegeometrie zwischen einfallendem Strahl, Drehachse der Probe und Blickrichtung des Detektors komplizierter ist als bei dem ersten Detektor, ergibt sich ein etwas anderes Bild. In Abb. 3.13 ist der elastische Untergrund dargestellt.

Da der Detektor nicht mit der Probe in ϕ mitgedreht werden konnte, führte dieses dazu, daß die Hologramme von diesem Detektor nur in gemischter Methode detektiert werden konnten. Das bedeutet, dem reziprok detektierten Hologramm der einfallenden Strahlung überlagert sich ein direktes Hologramm der ausfallenden Strahlung. Da die θ -Position des Detektors bezüglich der Probenoberfläche konstant gehalten wurde, überlagert sich dem Hologramm bei jeder Rotation um ϕ dasselbe direkte Hologramm. Es ergibt sich also ein Streifenmuster im Datensatz, siehe Abbildung 3.14.

Man kann diese Streifen beseitigen, indem man die gemessenen Meßwerte über alle θ -Werte integriert und daraus das direkte Hologramm erhält, welches der Messung überlagerte ist. Dieses subtrahiert man dann für alle θ -Werte aus den Daten.

Die Hologramme der Kupfer- und Gold-Fluoreszenz die man nach dieser Korrektur der Daten erhält, sind in Abb. 3.15 a),b) dargestellt. Wieder konnten

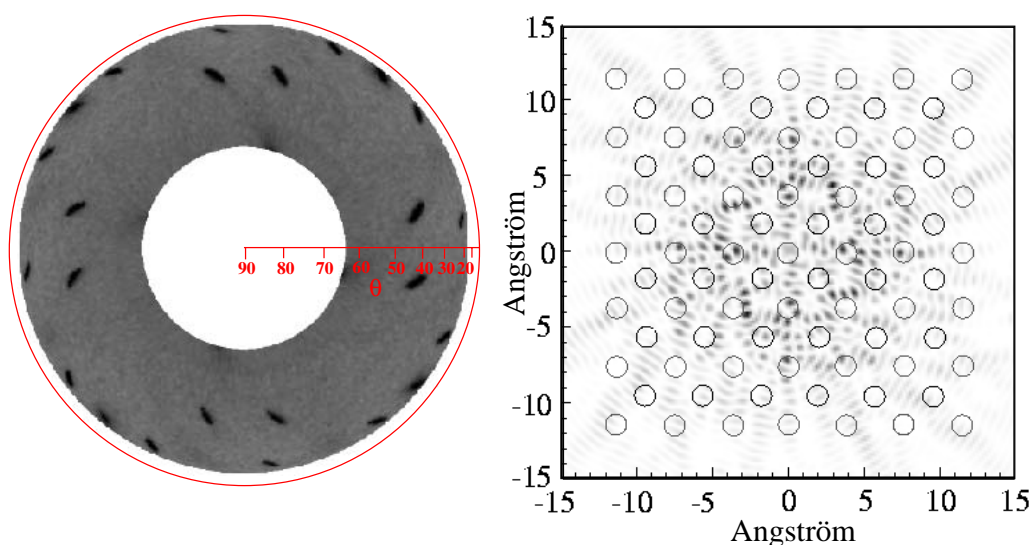


Abbildung 3.13: Links das Untergrundsignal des verkippten Detektors bei einer Energie von 12 keV . Aufgrund der etwas anderen Geometrie zwischen einfallendem Strahl, Probenoberfläche und Detektor werden andere Reflexe gefunden als bei dem ersten Detektor. Rechts die Rekonstruktion dieser Daten.

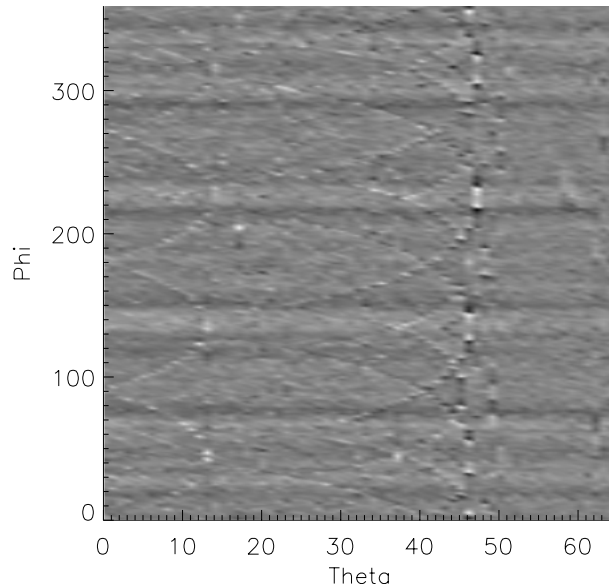


Abbildung 3.14: Streifenmuster im Hologramm der Kupferfluoreszenz aufgrund der gemischten Methode.

die Beiträge der Bragg-Reflexe aus den Fluoreszenz-Daten der Goldatome nicht vollständig entfernt werden. Die Rekonstruktionen der Daten sind in Abb. 3.15 c),d) dargestellt. Für die Kupfer-Fluoreszenz findet man Maxima in den Rekonstruktionen im Abstand von einer und von drei Gitterkonstanten in $[100]$ und $[010]$ Richtung. Die Gold-Fluoreszenz liefert Maxima in einem Abstand von zwei Gitterkonstanten. Da auch in diesen Messungen die Bragg-Reflexe nicht vollständig aus den Daten entfernt werden konnten, ist davon auszugehen, daß die Maxima in den Rekonstruktionen ebenfalls zu einem großen Teil auf diese Reflexe zurückzuführen sind.

3.2.2 Messungen mit dem Elektronendetektor

Nach den Messungen mit den Röntgendetektoren wurde der experimentelle Aufbau geändert und die Meßzelle zur Detektion der Augerelektronen eingebaut. Da bei dem vorangegangenen Experiment die Probe schon auf dem Goniometerkopf des Elektronendetektors justiert war, mußte dazu nur die Berylliumelektrode eingebaut und die Meßzelle geschlossen werden.

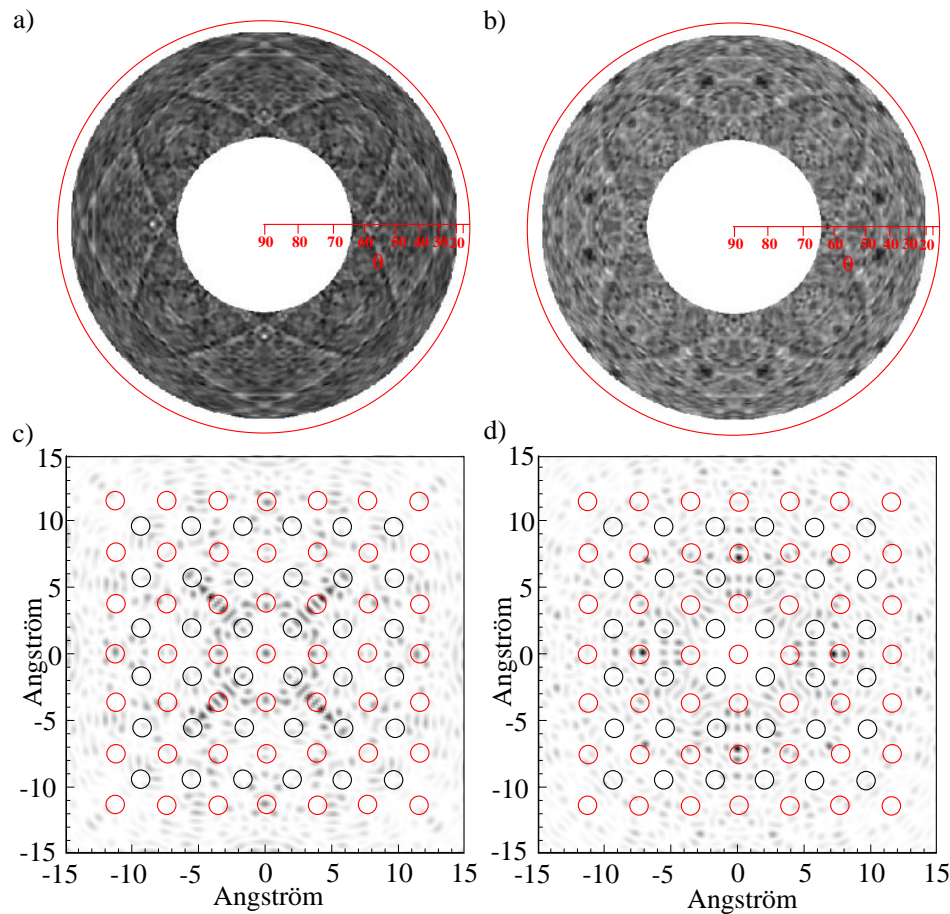


Abbildung 3.15: Meßdaten des zweiten Detektors. Es ist dargestellt:

- a) Das Hologramm der Kupferfluoreszenz bei 8 keV
- b) Das Hologramm der Goldfluoreszenz bei $9,7\text{ keV}$
- c) Die Rekonstruktion der Kupfer-Daten
- d) Die Rekonstruktion der Gold-Daten.

In den Rekonstruktionen der Kupfer-Daten findet man die Maxima in der (100)- und (010)-Richtung im Abstand von einer und von drei Gitterkonstanten. Die Gold-Daten liefern Maxima in denselben Richtungen, allerdings im Abstand von zwei Gitterkonstanten.

Der Meßaufbau ließ genug Platz, daß bei diesem Experiment die SDD's weiter verwendet werden konnten. Beide Detektoren wurden so angebracht, daß sie in gemischter Methode schräg auf die Probe schauten. Damit war es möglich, bis zum senkrechten Einfall des Röntgenstrahls, d.h. bis zu $\theta = 90^\circ$ zu messen.

Zusätzlich zu der ursprünglichen Ionisationskammer wurde ein NaI-Detektor als Monitor verwendet. Dazu wurde ein Teil der einfallenden Strahlung mit einer Kaptonfolie in Richtung des senkrecht zum Strahl angebrachten Detektors gestreut.

Es wurden Messungen mit Röntgenstrahlen von 10, 10.5 und 11 keV Energie vorgenommen. Diese Energien liegen unterhalb der Gold L-Kante, so daß die Augerelektronen nur von der Relaxation der Kupferatome stammen können.

Meßdaten des Elektronendetektors In Abbildung 3.17 a) sind die Meßdaten des Elektronendetektors für eine Energie der einfallenden Röntgenstrahlung von 10 keV dargestellt. Es wurden dafür die Datensätze von sieben unabhängigen Messungen kombiniert. Im Vergleich zu den Messungen der Fluoreszenz der Detektor-Atome mit SDD's in den vorangegangenen Experimenten zeigen die Daten ein gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis. Auch feine Details lassen sich in den Daten erkennen.

In 3.17 b) ist ein simuliertes Hologramm für einen Cu_3Au -Cluster mit 37 Å, also 10 Gitterkonstanten Radius dargestellt. Es wurde für eine Energie der einfallenden Strahlung von 10 keV und ein Kupfer-Atom als Detektor berechnet. Ein Vergleich zwischen den Meßdaten und der Simulation zeigt eine gute Übereinstimmung. Es zeigen sich dieselben inversen Kossel-Linien niedrig-indizierter Gitterebenen, welche benachbarte Hologramm-Gebiete mit unterschiedlicher Intensität voneinander trennen. Sie erscheinen in den Simulatio-

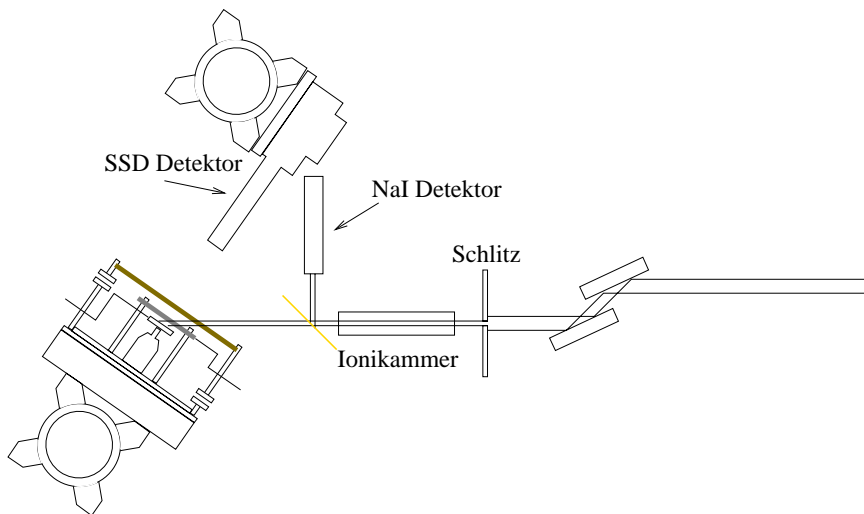


Abbildung 3.16: Geänderter Aufbau zur Detektion der emittierten Augerelektronen

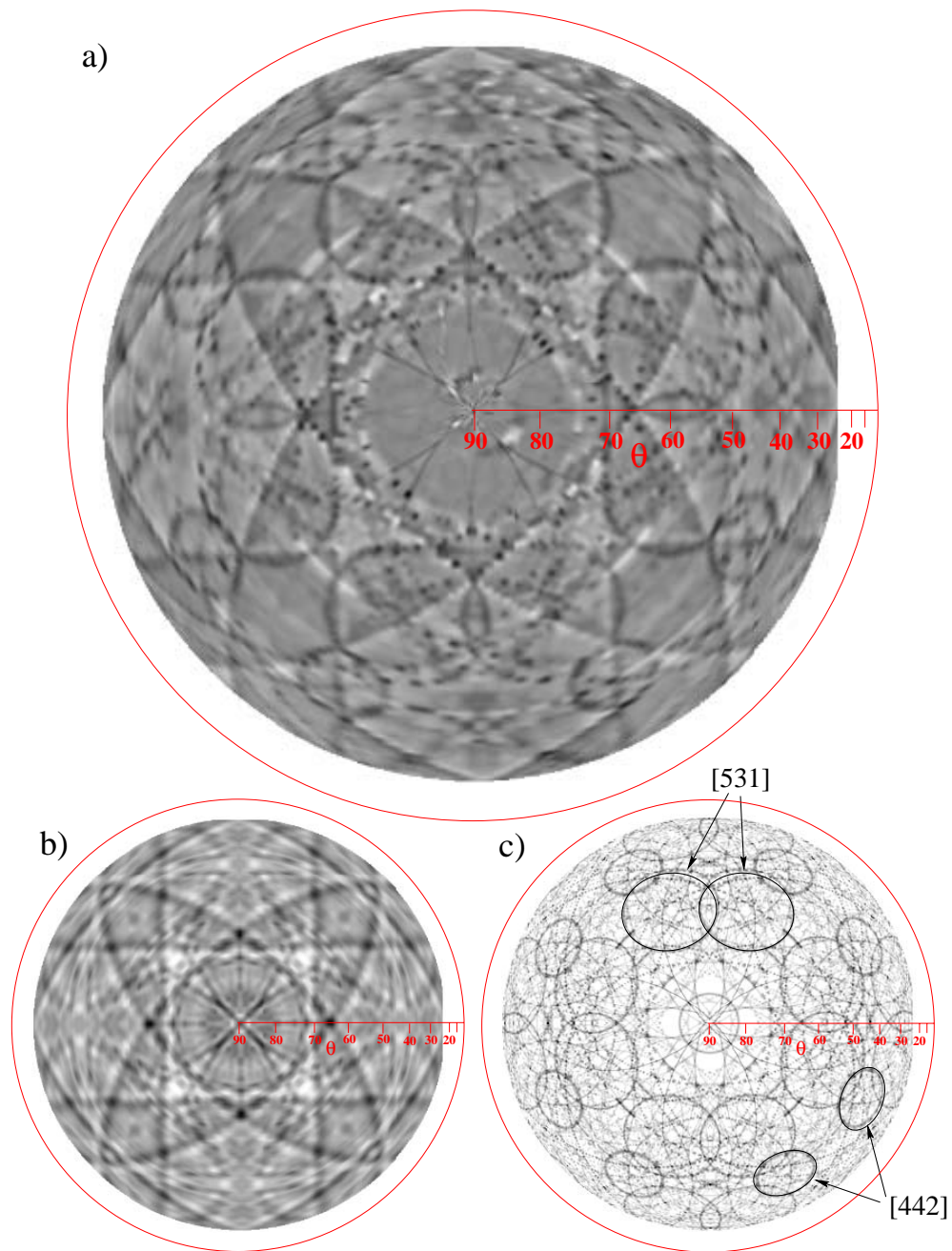


Abbildung 3.17: Vergleich des gemessenen Signals der Augerelektronen bei 10 keV (a) mit einem simulierten Hologramm (b) und den berechneten Kossel-Linien (c)

nen und Meßdaten als eine Linie mit einer hellen und einer dunklen Seite. Dieses liegt am Profil der Kossel-Linien, welches eine Winkelabhängigkeit aufweist (siehe Kapitel 4.1).

Zusätzlich zeigen die Meßdaten aber auch scharfe Linien, ohne Feinstruktur, die in den Simulationen nicht vorkommen. Ein Vergleich mit einem berechneten Kossel-Linien-Muster zeigt, daß sie genau an den Positionen von hoch-indizierten Kossel-Linien, z.B. (442) und (513), liegen.

Diese zusätzlichen Linien beruhen jedoch nicht auf detektierten Augerelektronen, sondern sind eine unmittelbare Folge der Reflexion des einfallenden Strahls. Trifft dieser unter dem Bragg-Winkel auf eine Netzebene, so wird er braggreflektiert und verläßt die Probe wieder, sofern die Reflexion in der Bragg- und nicht in der Laue-Geometrie erfolgt. Dadurch durchquert der Röntgenstrahl ein zweites mal das Füllgas der Meßzelle und erzeugt durch dessen Ionisation ein zusätzliches Strom-Signal im Detektor.

In Abbildung 3.17 c) sind genau diese Kossel-Linien, die einer Reflexion des einfallenden Strahls in Bragg-Geometrie entsprechen dargestellt. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit den zusätzlichen Linien in den Meßdaten.

In Abbildung 3.18 sind die Meßdaten des Elektronendetektors für die Einfallenergien von 10, 10,5 und 11 keV mit den jeweiligen Rekonstruktionen in der $Z = 0$ Ebene dargestellt. Während sich die zusätzlichen Linien, die auf der Bragg-Reflexion des einfallenden Strahls beruhen, von Energie zu Energie stark ändern, bleibt das eigentliche Hologramm fast unverändert. Die Rekonstruktionen zeigen, trotz der im Vergleich zu den Fluoreszenz-Messungen hervorragenden Signalqualität, keine Maxima an richtigen Atompositionen. Es existieren zwar sehr stark ausgeprägte Maxima, diese sind jedoch gegenüber den eigentlichen Atom-Positionen um fast ein Angström verschoben.

In Abbildung 3.19 sind die Meßdaten eines der beiden Röntgendetektoren für die drei verwendeten Energien nach Abzug des gemischten Anteils und deren Rekonstruktion dargestellt. Die Daten zeigen ein wesentlich schlechteres Signal-zu-Rausch-Verhältnis als die Elektronen-Daten, doch die groben Strukturen der Hologramme lassen sich trotzdem in ihnen wiederfinden. Die Rekonstruktionen der Daten zeigen zum Teil Maxima an völlig anderen Positionen als die der Elektronenmessungen bei gleicher Energie. Lediglich die Maxima der Messung bei 10 keV scheinen bei beiden Detektionskanälen zu den selben Atompositionen gehören. Dieses kann unter Umständen darauf zurückgeführt werden, daß im Falle der 10 keV -Daten die Meßstatistik gerade ausreichend ist, da diese Messung insgesamt sieben mal wiederholt wurde, während die Statistik bei den anderen Energien, die jeweils nur einmal gemessen wurden, noch zu gering ist.

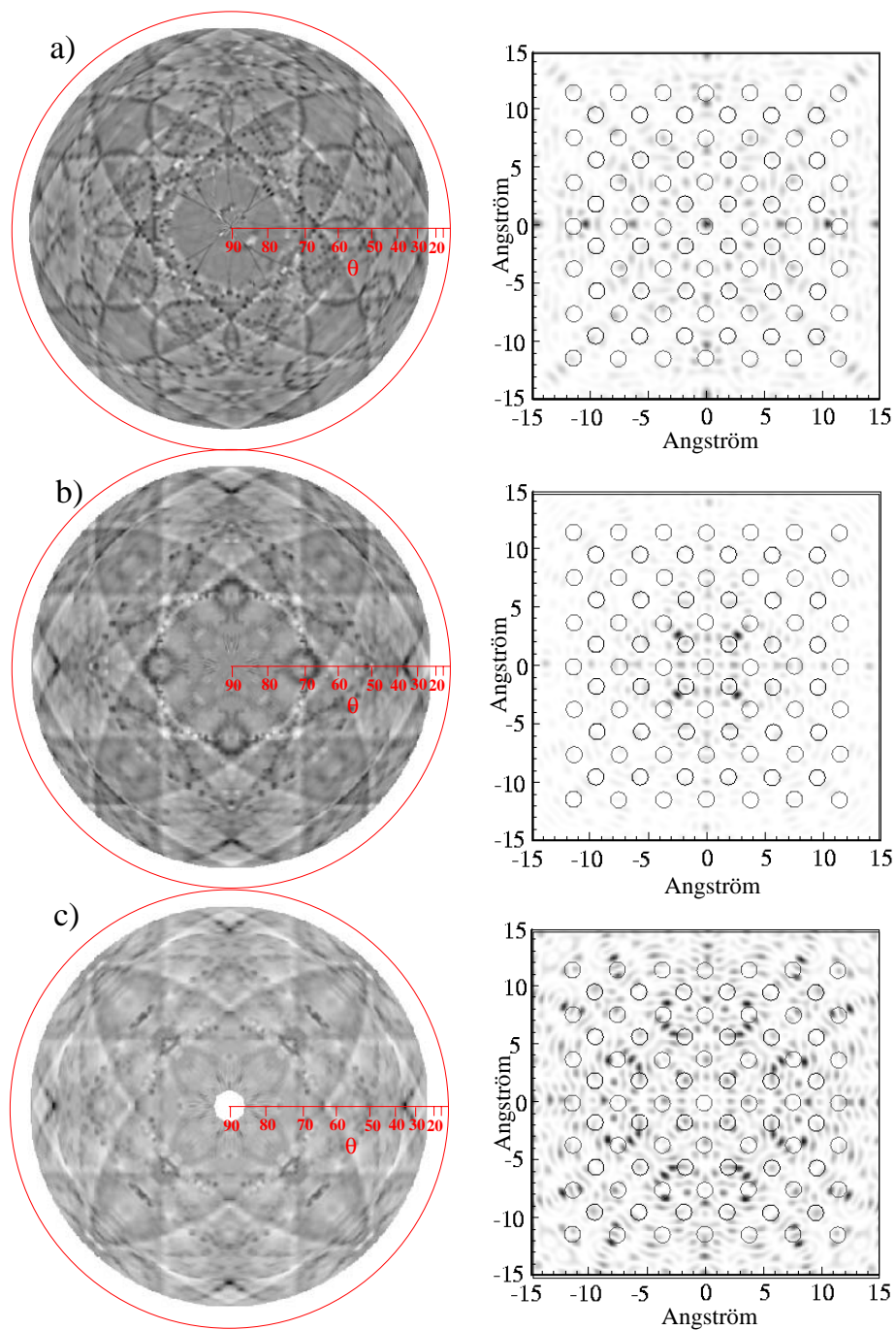


Abbildung 3.18: Meßdaten und Rekonstruktion des Probenstrom-Signals bei: a) 10 keV, b) 10,5 keV, c) 11 keV

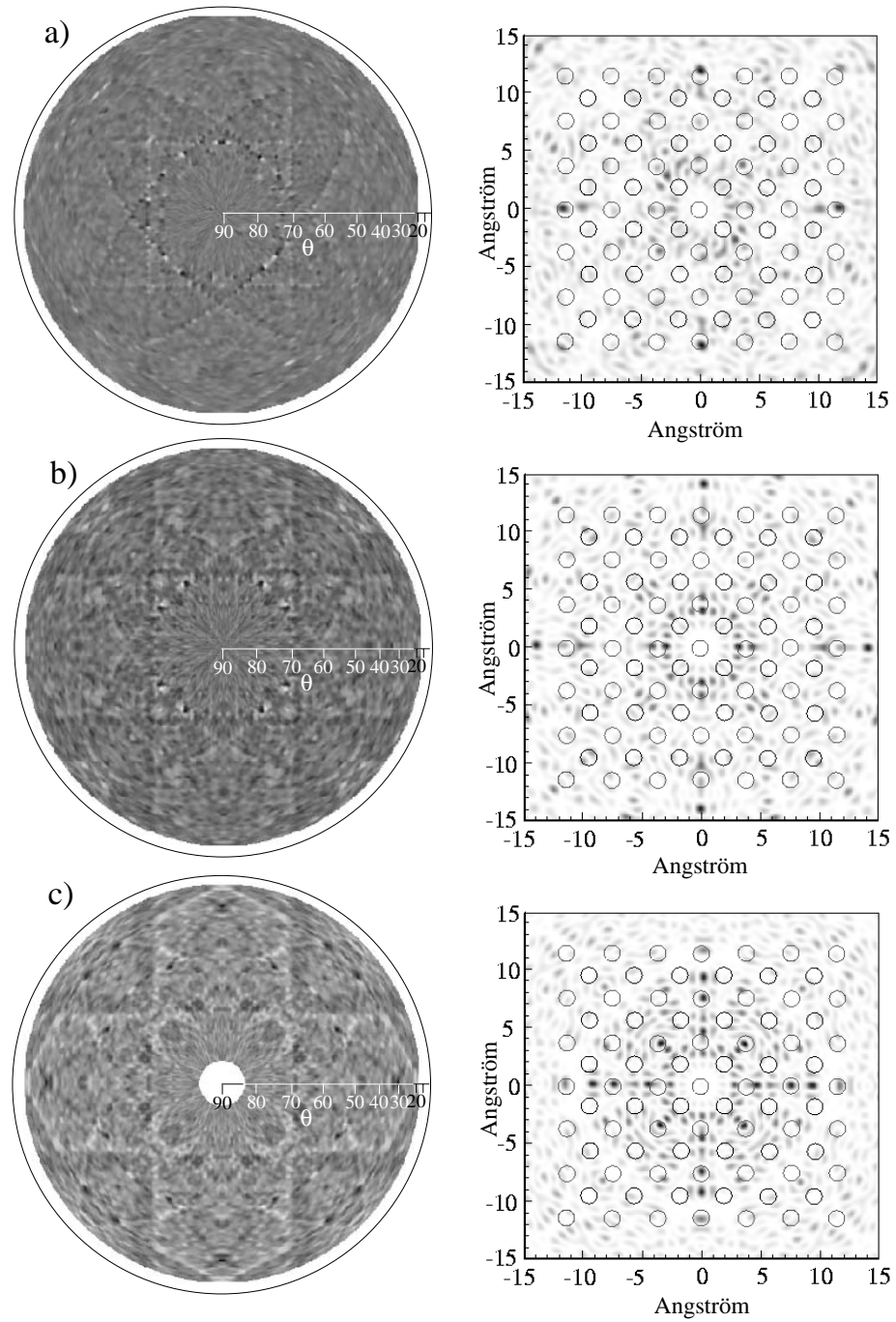


Abbildung 3.19: Meßdaten und Rekonstruktion der Kupfer-Fluoreszenz, gemessen mit SDD1: a) 10 keV, b) 10,5 keV, c) 11 keV

3.3 Fazit

Es hat sich gezeigt, daß die verwendete Meßzelle bei der Detektion der Augerelektronen ein gutes Signal zu Rausch Verhältniss liefert. Mit ihr war es zum ersten mal möglich, in der reziproken Holographie das Sekundärsignal des Detektor-Atoms über den gesamten Raumwinkel oberhalb der Probe zu messen. Dementsprechend zeigen die Hologramme aufgrund der hohen Zählrate ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Ein weiterer Vorteil dieser Meßmethode ist, daß es nicht nötig ist, den Detektor mit der Probe in ϕ zu drehen, da immer über das gesamte emittierte Signal integriert wird.

Die Analyse der verschiedenen holographischen Messungen in diesem Kapitel zeigt, daß die Bragg-Reflexionen der einfallenden Strahlung zu Artefakten in den Hologrammen führen. Wird der Primärstrahl in den Fluoreszenz-Detektor reflektiert, führt die drastisch gestiegene Zahl von Photonen zu Totzeiteffekten. Dieses hat zu Folge, daß sich die Bragg-Reflexe der einfallenden Strahlung auch in den Meßdaten der Fluoreszenz der Probenatome wiederfinden. Im Falle der Meßzelle führen die Reflektionen des Primärstrahls, bedingt durch denn großen vom Detektor abgedeckten Raumwinkel, zu ringförmigen Artefakten.

Da die Reflexe des einfallenden Strahls einiges an Information über das Kristallgitter der Probe enthalten, liefern sie in der Rekonstruktion richtige Gitterpositionen. Gerade für die Untersuchung der atomaren Nachbarschaft von Dotieratomen oder Ähnlichem hat dieses schwerwiegende Konsequenzen. Durch die Bragg-Reflexe in den Daten erhält man in der Rekonstruktion die Gitterstruktur des Wirtsgitteres, selbst wenn das untersuchte Atom nicht auf einer Gitterposition sitzt.

Aus den Fluoreszenzdaten lassen sich diese Artefakte aufgrund der im Detektor auftretenden nichtlinearen Effekten nicht ohne weiteres entfernen. Bei der Augerelektronen-Detektion sieht es besser aus. Da die Absorption des Primärstrahls nur zu einem zusätzlichen linearen Effekt führt, besteht die Chance, diese Artefakte aus den Daten entfernen zu können. Dieses ist prinzipiell machbar, dazu müssen jedoch zusätzliche Informationen über die Struktur der Probe verwendet werden. Da dieses vom Ansatz der Modell-Freiheit in der Holographie abweicht, wurde diese Idee in dieser Arbeit nicht weiter verfolgt.

Die Verwendung von Analysatorkristallen kann die Lösung des Problems sein, da hier die von der Probe ausgehende Röntgenstrahlung unterschiedlicher Energie räumlich trennen wird, bevor sie den Detektor trifft. In Kombination

mit Detektoren die auch große Zählraten verarbeiten können, erhält man so Hologramme mit einer guten Meßstatistik. Die in diesem Kapitel gezeigten Messungen mit dem mit HOPG beschichteten Ring haben gezeigt, daß das Design des Analysators so gewählt werden muß, daß keine diffuse Streuung oder Luftstreuung den Detektor treffen kann.

Kapitel 4

Einfluß der kristallinen Probenstruktur

Ein Merkmal aller in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten sind die in den Meßdaten auftretenden Linienmustern. Dabei handelt es sich, je nach Art der Messung, um inverse Kossel- bzw. Kikuchi-Linien oder um die Bragg-Reflexion der einfallenden Strahlung. Die Linien sind daher eine Folge der langreichweitigen Ordnung in den untersuchten Kristallen und der großen mittleren freien Weglänge der für die Experimente verwendeten Strahlung.

In Kapitel 1.3 wurde gezeigt, wie sich mit wachsender Zahl der beteiligten Atome im Hologramm durch interne Bragg-Reflexion der Fluoreszenzstrahlung Kossel-Linien ausbilden. Sie sind nichts anderes als die konstruktive Überlagerung der $\mathbf{R}^*\mathbf{O}$ -Terme für alle Atome im untersuchten Volumen. Das bedeutet, daß für Kossel-Linien die Annahme der Röntgenholographie, nämlich daß die Interferenz von Referenz- und Objektwelle sowie das Amplitudenquadrat der Objektwelle klein sind im Vergleich zur Referenzwelle, nicht mehr erfüllt ist. Daher müssen die Kossel-Linien aus dem Hologrammen entfernt werden.

In Abschnitt 4.1 wird zum einen die Feinstruktur der Kossel-Linien näher beschrieben, und zum anderen untersucht, in welcher Weise sich die Linienmuster auf die holographische Rekonstruktion auswirken, falls sie nicht aus dem Hologramm entfernt werden. Im Abschnitt 4.2 wird anschließend gezeigt, daß die Methode der Filterung der hohen Frequenzen, wie sie M. Tezge und G. Faigel in [35] vorschlagen, um die Einflüsse der weit entfernten Atome aus den Hologrammen zu entfernen, zu zusätzlichen Artefakten in der direkten Umgebung des Detektor-Atoms führt.

4.1 Rekonstruktion der Kossel-Linien-Muster

Strukturinformationen im Profil der Kossel-Linien J. P. Hannon und G. T. Trammel zeigten in ihren Arbeiten [36] [37], daß es möglich ist, aus dem Profil der Kossel-Linien die Phase des Strukturformfaktors zu bestimmen. Die Überlagerung der direkt in $\hat{\mathbf{k}}$ Richtung emittierten und der an den Netzebenen in diese Richtung gestreuten Strahlung bewirkt eine Modulation der Intensität der Kossel-Linie im Bereich von deren Darwinbreite. Aus der Form der Modulation läßt sich die Phase des Strukturformfaktors für die zugehörige Netzebene bestimmen.

Die Modulation der auf die Untergrundintensität I_0 normierten Intensität I_{hkl} der Kossel-Linie läßt sich abhängig vom verallgemeinerten Winkel η ausdrücken:

$$\frac{I_{hkl}(\eta)}{I_0} = 1 - \frac{\cos(2\theta_B)}{C} \sqrt{|\mathbf{b}|} \left(\frac{e^{i\Phi_h}}{\eta + \sqrt{\eta^2 - 1}} + c.c. \right) + \frac{\mathbf{b}}{|\eta + \sqrt{\eta^2 - 1}|^2} \quad (4.1)$$

η ist der Abstand vom dynamischen Bragg-Winkel, in Einheiten der halben Darwin-Breite w_{hkl} des zugehörigen Bragg-Reflexes,

$$w_{hkl} = C \frac{e^2 \lambda^2}{\pi m c^2 \sin(2\theta_B)} \frac{|F_{hkl}|}{\sqrt{|\mathbf{b}|}}. \quad (4.2)$$

C ist der Polarisationsfaktor, also entweder 1 oder $\cos\theta$, \mathbf{b} ist der Asymmetriefaktor des Reflexes – ein Maß für die Verkippung der Netzebene zur Kristalloberfläche.

Φ_h ist die gesuchte Phase des Strukturformfaktors. Der erste Term in Gl. 4.1 ist der Beitrag der direkten Welle. Der letzte Term gehört zu der gestreuten Welle und der mittlere beschreibt die Überlagerung der beiden.

Im allgemeinen Fall erhält man für $|\eta| > 1$, außerhalb der Totalreflexion

$$\frac{I_{hkl}(\eta)}{I_0} = 1 - \frac{2 \cos(2\theta_B)}{C} \frac{\sqrt{|\mathbf{b}|}}{\eta \pm \sqrt{\eta^2 - 1}} \cos \Phi_h + \frac{\mathbf{b}}{[\eta \pm \sqrt{\eta^2 - 1}]^2}, \quad (4.3a)$$

mit einem positiven Vorzeichen der Wurzel für $\eta > 1$ und einem negativen für $\eta < -1$.

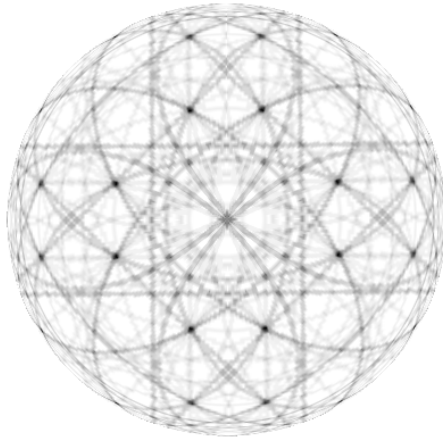


Abbildung 4.1: Simuliertes Kossel Muster der Gold $L\alpha$ Fluoreszenz für einen Cu_3Au -Kristall.

Im Bereich der Totalreflexion, $|\eta| < 1$ erhält man:

$$\frac{I_{hkl}(\eta)}{I_0} = 1 - \frac{2 \cos(2\theta_B)}{C} \sqrt{|\mathbf{b}|} \left[\eta \cos \Phi_h + \sqrt{1 - \eta^2} \sin \Phi_h \right] + \mathbf{b} \quad (4.3b)$$

Ist die Winkelaufösung der Meßdaten fein genug, so daß das Profil der Kossel-Linie bestimmt werden kann, ist es daher möglich, die Phase des Struktur-faktors für die zu dieser Linie gehörende Netzebene zu bestimmen. Um eine Struktur mit N Atomen in der Elementarzelle vollständig zu lösen, benötigt man daher $3N$ Kossel-Linien.

Rekonstruktion des Musters der Kossel-Linien Reicht die Winkel-aufösung der Messung nicht aus, um das Profil der Kossel-Linien zu messen, erhält man nur deren integrale Intensität. Unter diesen Umständen enthalten die Meßdaten ein Linienmuster, das keine direkte Phaseninformation enthält, aber in seiner Intensität stärker als der Rest des Hologramms ist.

In Kapitel 3.2.2 wurde gezeigt, wie auch die Bragg-Reflexion des einfallenden Strahls zu einem Muster in der Form von Kossel-Linien führen kann. Es stellt sich daher die Frage, in wie weit ein solches Linienmuster in den Meßdaten einen Einfluß auf die holographische Rekonstruktion hat.

Dazu kann man ein einfaches Kossel-Linien-Muster simulieren, das keinerlei Phaseninformationen enthält. Die Intensität der Linien sei dabei proportional

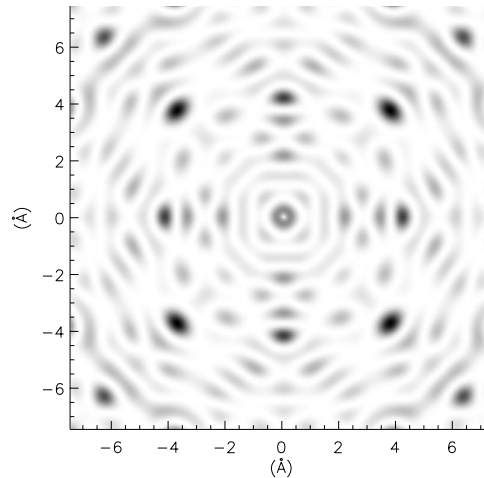


Abbildung 4.2: Rekonstruktion des Musters aus Abb 4.1 mit dem normalen Barton-Algorithmus.

zur Stärke des zugehörigen Bragg-Reflexes. In Abbildung 4.1 ist das simulierte Muster für die Gold-L α -Fluoreszenz von 9.7 keV eines Cu_3Au -Kristalls dargestellt.

Rekonstruiert man dieses Muster mit dem normalen Barton-Algorithmus, erhält man Maxima an den richtigen Positionen der Atome (siehe Abbildung 4.2).

Um zu verstehen, wieso sich aus der Rekonstruktion eines Kossel-Linien-Musters ohne Phaseninformation das Punktgitter des untersuchten Kristalls ergibt, betrachte man die Rekonstruktion eines einzelnen Kossel-Doppelkegels:

Gemäß des Barton Algorithmus (Gl. 1.7) ergibt sich die Feldstärke $U(\mathbf{r})$ zu

$$U(\mathbf{r}) = \int_{\Omega} \chi(\hat{\mathbf{k}}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} |\mathbf{k}|^2 \cos \theta \, d\theta \, d\phi, \quad (4.4)$$

dabei erfolgt die Integration über sämtliche Richtungen von $\hat{\mathbf{k}}$.

Der Doppelkegel läßt sich in die Summe zweier einzelner Kegel aufspalten. Der zu den Kegeln gehörige reziproke Gittervektor \mathbf{H} möge in Richtung der Z -Achse zeigen. Zuerst wird der Beitrag des Kegels (1), in Richtung der positiven Z -Achse, bestimmt. Aufgrund der Symmetrie des Kegels betrachtet man einen Schnitt in der $X - Z$ Ebene mit $y = 0$. Die geometrischen Verhältnisse sind in Abb. 4.3 dargestellt.

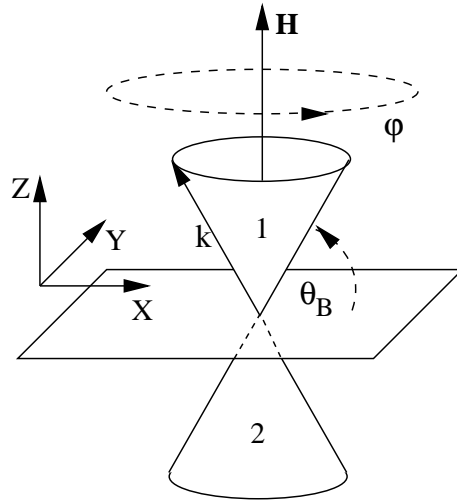


Abbildung 4.3: Skizze der geometrischen Verhältnisse zu den Gl. 4.4-4.11

Da der Wert von $\chi(\hat{\mathbf{k}})$ auf dem Kossel-Kegel konstant und ansonsten Null ist, läßt sich die Integration in Gleichung 4.4 vereinfachen:

$$U_1(x, z) = \chi(k) |\mathbf{k}|^2 \cos \theta_B \int_0^{2\pi} e^{i(xk_x + zk_z)} d\phi \quad (4.5)$$

Da k_z nicht von ϕ abhängt, kann man es aus dem Integral herausziehen. k_x läßt sich mit $k_x(\phi) = |\mathbf{k}| \cos \theta_B \sin \phi$ substituieren:

$$U_1(x, z) = \chi k^2 \cos \theta_B e^{izk_z} \int_0^{2\pi} e^{ix|\mathbf{k}| \cos \theta_B \sin \phi} d\phi \quad (4.6)$$

Damit ergibt sich aus dem Integral die Besselfunktion J_0 . Einsetzen von $k_z = |\mathbf{k}| \sin \theta_B$ in die Exponentialfunktion vor dem Integral ergibt:

$$U_1(x, z) = \text{const.} \exp(ikz \sin \theta_B) J_0(kx \cos \theta_B) \quad (4.7)$$

Unter Verwendung der Bragg-Bedingung $2d_{\mathbf{H}} \sin \theta_B = \lambda$ und $k = 2\pi/\lambda$ erhält man für die Feldstärke eines Kegels schließlich:

$$U_1(x, z) = \text{const.} \exp\left(i\pi \frac{z}{d_{\mathbf{H}}}\right) J_0(kx \cos \theta_B) \quad (4.8)$$

Die Gesamtfeldstärke des Doppelkegels beträgt dann:

$$\begin{aligned} U(x, z) &= U_1(x, z) + U_2(x, z) \\ &= \chi k^2 \cos \theta_B J_0(kx \cos \theta_B) \cdot \end{aligned} \quad (4.9)$$

$$\begin{aligned} &[\exp(i|k|z \sin \theta_B) + \exp(i|k|z \sin(-\theta_B))] \\ &= \text{const.} \cdot J_0(kx \cos \theta_B) \cdot 2 \cos\left(\pi \frac{z}{d_{\mathbf{H}}}\right) \end{aligned} \quad (4.10)$$

Die Intensität der Rekonstruktion ergibt sich damit zu:

$$\begin{aligned} I(x, z) &= |U(x, z)|^2 \\ &= \text{const.}^2 \cdot J_0^2(kx \cos \theta_B) 4 \cos^2\left(\pi \frac{z}{d_{\mathbf{H}}}\right) \end{aligned} \quad (4.11)$$

Das bedeutet, in der Rekonstruktion eines Kossel-Doppel-Kegels erhält man in Richtung des reziproken Gittervektors \mathbf{H} , entlang der Kegellachse, eine Intensitätsverteilung mit einer Periode von $z/d_{\mathbf{H}}$, im Abstand der zugehörigen Netzebenen. Senkrecht dazu fällt die Intensität mit dem Quadrat der Besselfunktion J_0 ab. In Abbildung 4.4 ist die Rekonstruktion eines Kossel-Doppel-Kegels dargestellt.

Bei der Rekonstruktion eines ganzen Musters aus vielen Doppelkegeln werden sich die Feldstärken aller Beiträge überlagern ($U = U_1 + U_2 + \dots + U_n$). Im

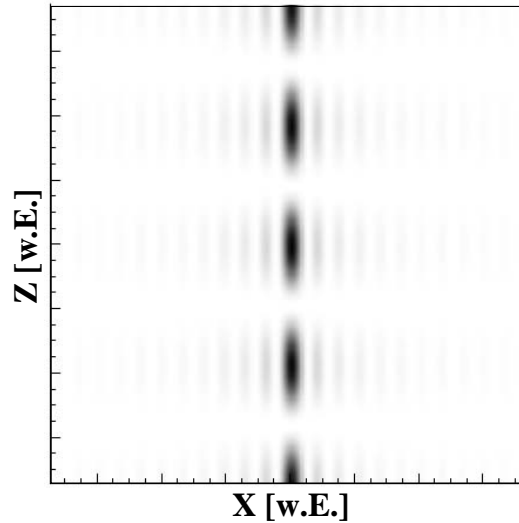


Abbildung 4.4: Rekonstruktion eines Kossel-Doppel-Kegels in der X - Z -Ebene.

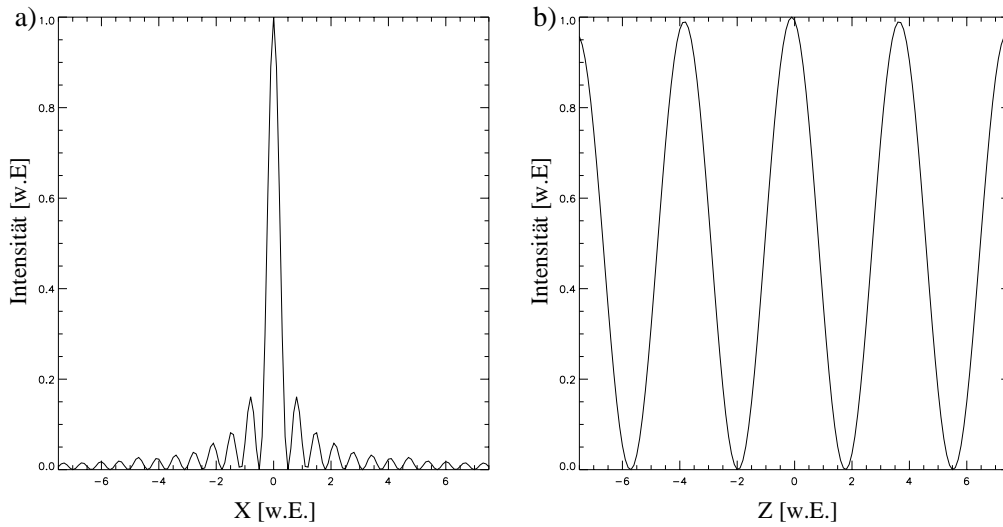


Abbildung 4.5: Schnitte durch die Rekonstruktion aus Abb. 4.4. Man erkennt das Quadrat der Besselfunktion in Z -, bzw. das Quadrat des Sinus in X -Richtung.

zeitlichen Mittel $|U|^2$ der Intensität werden sich alle gemischten Beiträge zu Null aufheben und nur die $\exp(i\pi z/d_{\mathbf{H}}) + \exp(-i\pi z/d_{\mathbf{H}})$ Paare werden zur Intensität beitragen. Man erhält in der Rekonstruktion ein Muster, in dem für jeden reziproken Gittervektor eine Kette von Maxima durch den Ursprung mit dem richtigen Abstand $d_{\mathbf{H}}$ der Netzebenen existiert. Sofern es sich bei dem untersuchten System um eine kubische Struktur handelt, erhält man auf diese Weise aus der Rekonstruktion das primitive kubische Gitter zurück. Was dabei fehlt, ist die Information über die Basis dieses Gitters.

Als Fazit läßt sich also festhalten, daß die Kossel-Linien zwar die Phaseninformation über die Kristallstruktur enthalten, sich diese aber nur in Messungen mit geeigneter Winkelauflösung bestimmen läßt. Ansonsten Produzieren sie zwar Maxima in der holographischen Rekonstruktion, bilden dabei aber nur das Punktgitter ab. Eine wirkliche Rekonstruktion der kompletten Kristallstruktur wird dadurch beeinträchtigt, da die von den Kossel-Linien herrührenden Maxima wesentlich Stärker als die des restlichen Hologramms sind.

4.2 Der Einfluß der weiter entfernten Atome

Theoretische Abschätzungen Wie im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, haben die weit vom Detektor-Atom entfernt liegenden Atome aufgrund ihrer langreichweitigen Ordnung in Form von Kossel-Linien einen starken Einfluß auf die Rekonstruktion der Hologramme. Um die Beiträge dieser Atome aus den Hologrammen zu entfernen, schlugen Tegze und Faigel eine Frequenzfilterung der Meßdaten vor [35]. Sie argumentieren dabei, daß die hochfrequenten Anteile des Hologramms aufgrund des $\exp(ikr)$ -Terms in der Hologrammintensität nur von den weit entfernten Atomen stammen und daher durch Filterung der hochfrequenten Anteile der Hologramme diese Atome aus der Rekonstruktion entfernt werden können.

Im folgenden Abschnitt wird gezeigt werden, daß zwar die hohen Frequenzen im Hologramm nur von Atomen mit großem Abstand zum Detektor-Atom stammen, diese aber auch einen niederfrequenten Anteil am Hologramm haben, welcher nicht vernachlässigt werden darf. Entfernt man durch Filtern nur den einen Anteil, führt dieser verbliebene Rest zu Artefakten in der unmittelbaren Umgebung des Detektor-Atoms. Die Argumentation folgt dabei der Veröffentlichung von S. Fanchenko [38].

Für die Streuung an einer Zahl punktförmiger Atome an den Positionen \mathbf{r}_m mit Formfaktoren f_m kann das Hologramm im Fernfeld ($kr_m \gg 1$) laut Barton [4] [10] geschrieben werden als

$$\chi(\mathbf{k}) = -r_e \Re \sum_m f_m \frac{e^{i(kr_m - \mathbf{k}\mathbf{r}_m)}}{r_m}, \quad (4.12)$$

wobei f_m der atomare Streufaktor ist und die Summation über alle Atome erfolgt.

Die Exponentialfunktion in Gl. 4.12 kann als eine Serie von Sphärischen Harmonischen entwickelt werden:

$$e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}_m} = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1)(-i)^l J_l(kr_m) P_l(\cos \theta), \quad (4.13)$$

wobei θ der Winkel zwischen \mathbf{k} und \mathbf{r}_m , J_l die Besselfunktion und P_l das Legendre-Polynom l^{ten} Grades ist.

Einsetzen dieser Entwicklung in Gl. 4.12 liefert dann

$$\chi(\mathbf{k}) = -r_e \Re \left[\sum_{l=0}^{\infty} (-i)^l (2l+1) \sum_m P_l(\cos \theta) J_l(kr_m) f_m \frac{e^{ikr_m}}{r_m} \right]. \quad (4.14)$$

Es gilt für die Besselfunktion für $l > kr + 2$ der Grenzwert $J_l(kr) = 0$. Daher ist aus Gl. 4.14 ersichtlich, daß die hochfrequenten Hologramm-Anteile nur von den weit entfernten Atomen stammen können.

Nun soll der Beitrag der fernen Atome zu den niederfrequenten Harmonischen untersucht werden. Dazu werden für große atomare Abstände $|r_m|$ und niedrige Ordnungen l , also für $kr \gg l(l+1)$, die ersten beiden Terme der Entwicklung der Bessel Funktion benutzt:

$$J_l(kr) \approx \frac{\sin(kr - \frac{\pi}{2}l)}{kr} + \frac{l(l+1)}{2} \frac{\cos(kr - \frac{\pi}{2}l)}{(kr)^2} \quad (4.15)$$

Setzt man diese Näherung unter Verwendung von

$$\sin x = \frac{e^{ix} - e^{-ix}}{2i} \quad (4.16a)$$

und

$$\cos x = \frac{e^{ix} + e^{-ix}}{2} \quad (4.16b)$$

in Gl. 4.14 ein, gelangt man zu folgendem Ausdruck für den Beitrag der entfernten Atome zur l^{ten} Harmonischen des Hologramms:

$$\begin{aligned} \chi_l^{far}(\mathbf{k}) &= -r_e \Re \sum_{r_m > 2l} f_m P_l(\cos \theta) (2l+1) \\ &\times \left(\frac{i(1 - e^{i2kr}(-1)^l)}{2kr^2} + \frac{l(l+1)(1 + e^{i2kr}(-1)^l)}{4k^2r^3} \right), \end{aligned} \quad (4.17)$$

wobei die Summation über alle Atome mit einem Abstand $kr_m > 2l$ erfolgt.

Vernachlässigt man die Beiträge der hochfrequenten Terme e^{i2kr} und berücksichtigt, daß in großen Proben die Anzahl der Atome in der Summe $\sum_{r_m > 2l}$ in Gl. 4.17 mit r^2 anwächst, erhält man folgende Hologramm-Funktion:

$$\begin{aligned} \chi_l^{far}(\mathbf{k}) &\sim r_e \Im \sum_{r_m > 2l} \frac{f_m P_l(\cos \theta) (2l+1)}{2k} \\ &\quad - r_e \Re \sum_{r_m > 2l} \frac{f_m P_l(\cos \theta) (2l+1) l(l+1)}{4k^2r}. \end{aligned} \quad (4.18)$$

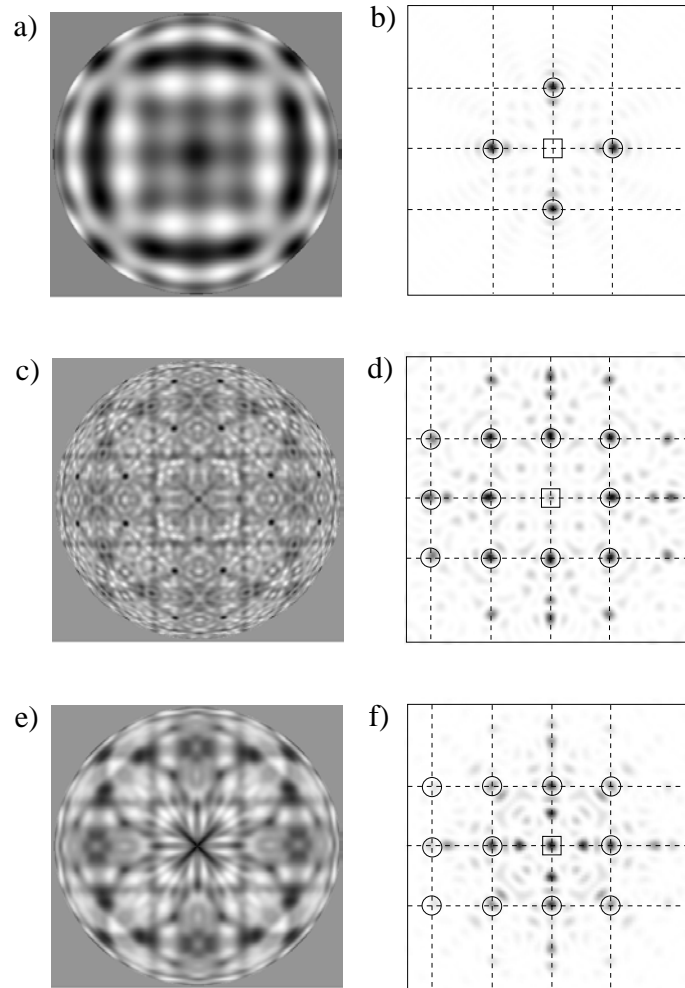


Abbildung 4.6: Simulierte Hologramme von Cu_3Au Clustern mit (a) $4,6 \text{ \AA}$ und (c) $27,4 \text{ \AA}$ Radius, berechnet für die Gold $L\alpha_1$ Emissionslinie. Das Hologramm (c) nach der Tiefpaßfilterung ist in (e) gezeigt. Die Barton Rekonstruktionen in der (001) Ebene durch das Gold-Emitteratom der originalen Hologramme (a), (c) und des gefilterten Hologramms (e) werden in (b), (d) und (f) gezeigt. Das Quadrat in der Mitte markiert die Position des Gold-Emitteratoms, die Kreise die Positionen der anderen Goldatome des Kristalls. Die Bilder der Kupfer-Atome sind aufgrund der gewählten Wellenlänge stark unterdrückt [4, 10].

Da der atomare Streufaktor f_m immer einen kleinen imaginären Anteil in der Größenordnung von 10^{-2} des Realteils hat, ist der Beitrag der entfernten Atome zu den niederfrequenten Harmonischen in Gl. 4.18 linear divergent mit dem Abstand zum Zentralatom. Diese Divergenz korrespondiert direkt zum linearen Term in der Entwicklung des Absorptionskoeffizienten $e^{-\mu R} = 1 - \mu R + \dots$

Für den Realteil des Streufaktors heben die nahegelegenen sphärischen Atomlagen die lineare Divergenz auf, so daß die Summe über alle Atome mit der Entfernung logarithmisch divergiert. Daher gibt es keinerlei Hinweis dafür, daß die niederfrequenten Beiträge der entfernten Atome in einer großen Probe klein im Vergleich zu den Beiträgen der nahegelegenen Atome sind.

Modellrechnungen Die Ergebnisse der vorangegangenen theoretischen Abschätzung sollen im Folgenden noch einmal mit Hilfe von Modellrechnungen überprüft werden. Abbildung 4.6 zeigt die berechneten Hologramme von Cu_3Au -Clustern mit einem Radius bis zum 3^{ten} bzw. 100^{ten} Nachbarn (Fig. 4.6-a und -c). Abbildung 4.6-e zeigt das Hologramm des großen Clusters nach einer Tiefpaßfilterung, mit einer Abschneidegrenze, welche das Hologramm des kleinen Clusters nicht verändert. Schon vor der Rekonstruktion ist es offensichtlich, daß sich das gefilterte Hologramm stark von dem der unmittelbaren atomaren Nachbarschaft unterscheidet, also nicht alle Einflüsse der fernen Atome beseitigt wurden. Die Ergebnisse der Barton-Rekonstruktion werden in Abb. 4.6-b, -d und -f dargestellt. Wie schon aus den vorangegangenen Berechnungen vorhergesagt, produziert das gefilterte Hologramm Artefakte in der Umgebung des Zentralatoms, welche nicht von den richtigen Maxima der Atome unterschieden werden können.

An einem anderen Beispiel lassen sich die obigen Aussagen noch deutlicher zeigen. Es wurde für den Cu_3Au -Cluster die Hologramme der 3^{ten} und der 8^{ten} Koordinationsschale nach den exakten Gleichungen (Gl. B.39) aus [39] für die $\text{Au-}L\alpha_1$ -Fluoreszenzlinie berechnet. Anschließend wurden die Hologramme in ihre sphärischen Harmonischen zerlegt. In Abbildung 4.7-a werden die maximalen und minimalen Amplituden der Sphärischen Harmonischen beider Hologramme dargestellt. Offensichtlich sind die niederfrequenten Beiträge der nächsten Nachbarn und der weiter entfernten Atome von vergleichbarer Amplitude. Zusätzlich werden in 4.7-b die integralen Beiträge der Harmonischen zum Gesamthologramm gegenübergestellt. Auch hier liegen die Beiträge der beiden Koordinationsschalen in der selben Größenordnung.

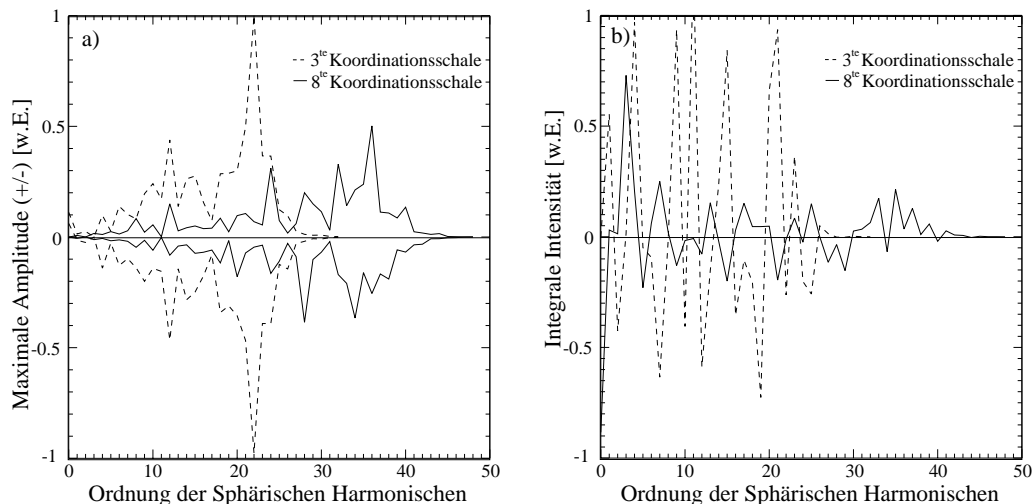


Abbildung 4.7: a) Maximale Amplituden der Beiträge der Sphärischen Harmonischen zu den Hologrammen verschiedener Cu_3Au -Koordinationsschalen. Die durchgezogene bzw. gestrichelte Linie gehört zum Hologramm der 3^{ten} bzw. 8^{ten} Koordinationsschale, d.h. 4.6\AA bzw. 7.4\AA entfernt von dem zentral gelegenen Gold-Emitter-Atom. b) Gesamtbeiträge der einzelnen Sphärischen Harmonischen zu den beiden Hologrammen. In beiden Abbildungen sieht man, daß die Beiträge der Koordinationsschalen zu den niederfrequenten Harmonischen von der gleichen Größenordnung sind.

In Abbildung 4.8-a) ist das Hologramm der 8^{ten} Koordinationsschale als Summe aller sphärischen Harmonischen dargestellt. Rekonstruiert man dieses, erhält man als Ergebnis ausgeprägte Maxima an den richtigen Atompositionen, wie in Abbildung 4.8-b) gezeigt wird.

Um die Auswirkungen der Filterung der Hologramme zu untersuchen, ist in Abb. 4.8-c) die Summe der ersten 20 Sphärischen Harmonischen dargestellt. Rekonstruiert man nun dieses mit dem Barton-Algorithmus, erhält man Bild 4.8-d). In der Umgebung der eigentlichen Atompositionen gibt es stark verbreiterte Maxima. Außerdem sind schwache Artefakte in unmittelbarer Umgebung des Zentral-Atoms erkennbar.

Als Beispiel für eine sehr starke Filterung der Meßdaten ist in Abbildung 4.8-e) die Summe der ersten 10 Sphärischen Harmonischen des Hologramms dargestellt. Abbildung 4.8-f) zeigt dessen Rekonstruktion. Die ursprünglichen Atome sind nun vollständig verschwunden, was auch das eigentliche Ziel der Filterung war. Allerdings treten nun stark lokalisierte Artefakte in der Nähe des Emitteratoms auf.

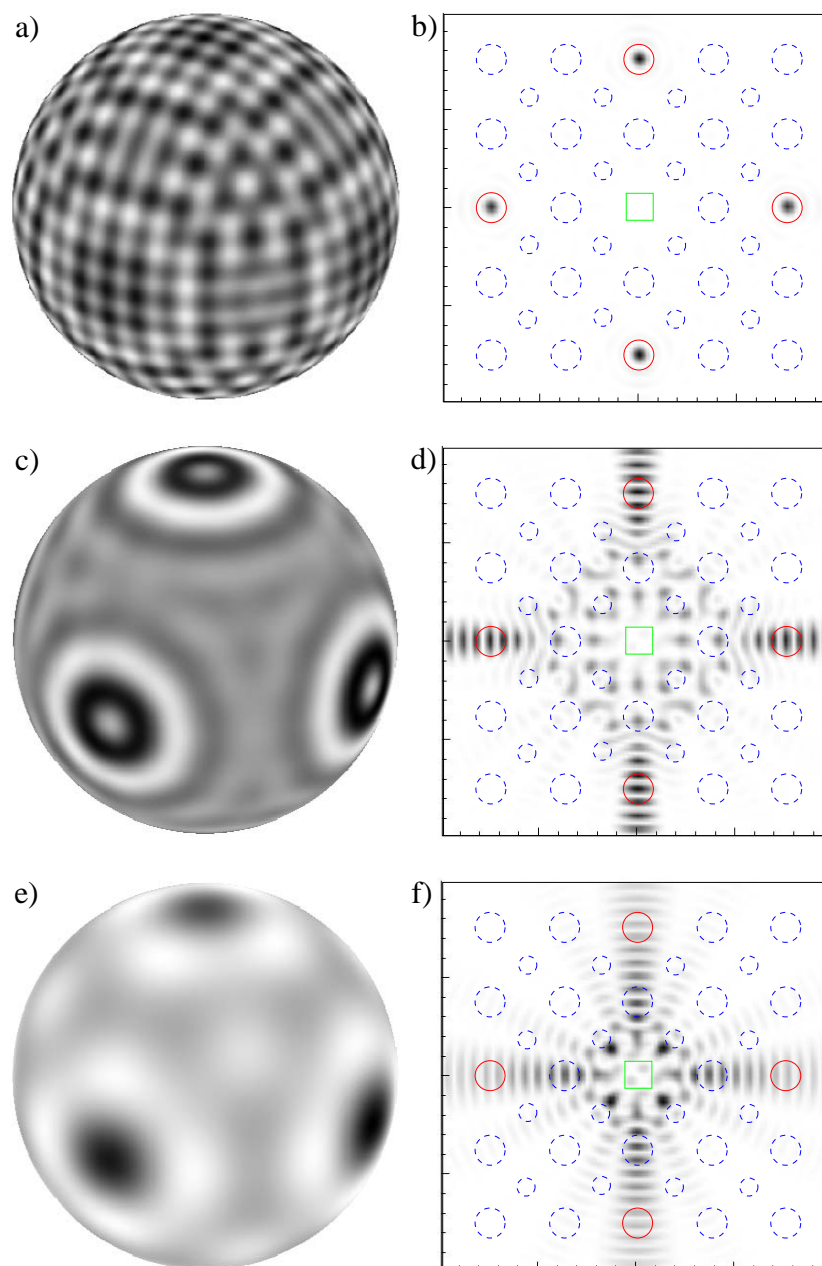


Abbildung 4.8: Auswirkung der Filterung hochfrequenter Frequenzen aus dem Hologramm:

a) Das vollständige Hologramm der 8^{ten} Koordinationsschale von Cu_3Au , d.h. der sechs achtnächsten Nachbarn des Zentralatoms.

Zum Schluß soll kurz darauf eingegangen werden, ob sich die Symmetrie der Atompositionen auf das Spektrum der Sphärischen Harmonischen im Hologramm auswirkt. Dieses ist bedeutend für die Frage, ob es in Zukunft möglich sein wird, biologische Proben mit Hilfe der atomar auflösenden Holographie zu untersuchen. Nimmt man zum Beispiel ein großes Makromolekül mit einem aktiven Zentrum um ein schweres Atom, z.B. Eisen, dann sind die Atome, die mit dem Eisen chemisch verbunden sind, gut geordnet. Alle weiteren Atome weisen jedoch keine langreichweitige Ordnung auf. Es gilt nun zu untersuchen, ob die Fourier-Filterung die Beiträge der ungeordneten Umgebung außer der ersten Koordinationsschale beseitigen kann.

Als einfaches Modell für ein ungeordnetes biologisches System ist in Abbildung 4.9 das Hologramm von sechs zufällig angeordneten Atomen dargestellt, die allerdings alle den selben Abstand von $7,5 \text{ \AA}$ zum Zentral-Atom haben. Dieses macht es im Folgenden möglich, dieses Hologramm direkt mit dem der 8^{ten} Koordinationsschale in Cu_3Au aus dem vorangegangenen Abschnitt zu vergleichen.

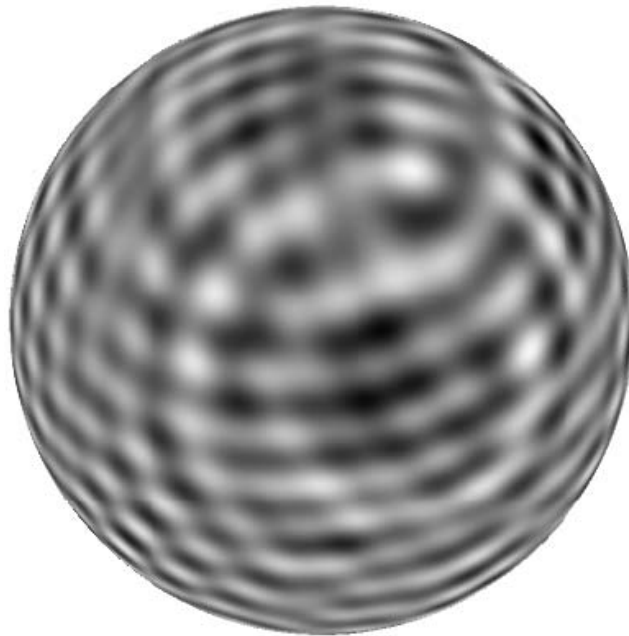


Abbildung 4.9: Als Beispiel für eine ungeordnete biologische Probe ist hier das Hologramm eines ungeordneten Clusters von sechs Gold-Atomen dargestellt. Alle Atome haben den selben Abstand von $7,5 \text{ \AA}$ zum Zentral-Atom, die Position der Atome untereinander ist jedoch zufällig gewählt.

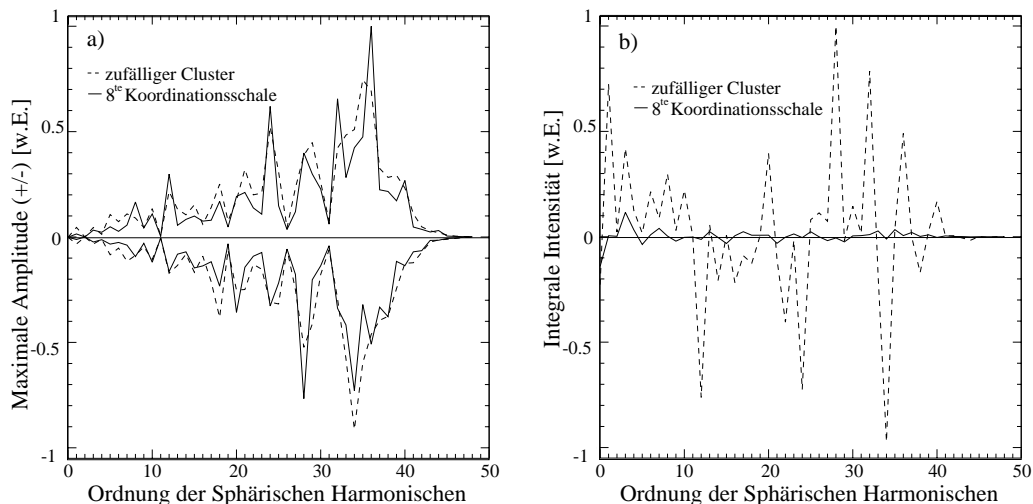


Abbildung 4.10: a) Vergleich der maximalen und minimalen Amplituden von geordnetem und zufälligem Cluster. Die Amplituden zeigen eine ähnliche Frequenzverteilung.

b) Vergleich des Spektrums der integralen Intensitäten. Die Beiträge des ungeordneten Clusters sind eine Größenordnung stärker als die des geordneten Clusters.

Abbildung 4.10-a) vergleicht die Spektren des zufälligen Clusters und der 8^{ten} Koordinationsschale aus Abbildung 4.7. Die Verteilung der maximalen und minimalen Amplituden der einzelnen Harmonischen zeigt keine großen Unterschiede zwischen der geordneten und der ungeordneten Struktur. Der Vergleich der integralen Spektren (Abb. 4.10-b) zeigt jedoch für den ungeordneten Cluster eine Varianz der Beiträge der verschiedenen Sphärischen Harmonischen zum Hologramm, die eine Größenordnung größer ist, als die der geordneten Koordinationsschale.

Das bedeutet, daß in ungeordneten Strukturen der Einfluß der weiter entfernt liegenden Atome auf die niedrigen Frequenzen der Sphärischen Harmonischen sogar noch stärker als in den geordneten Kristallen sein kann.

4.3 Fazit

Untersucht man mit der atomar auflösenden Holographie die Festkörpereigenschaften einer Probe, so benötigt man Strahlung mit einer großen Eindringtiefe. Das hat automatisch zur Konsequenz, daß auch weit entfernte

Atome zur Hologramm-Intensität beitragen. Die Untersuchungen in diesem Kapitel haben gezeigt, daß das Spektrum dieser Atome nicht nur einen hochfrequenten, sondern auch einen niederfrequenten Anteil hat, der in der selben Größenordnung liegt, wie das Spektrum nahe gelegener Atome. Daher ist es nicht möglich, den Beitrag der weit entfernten Atome im Hologramm vollständig zu beseitigen. Unabhängig davon, ob diese Atome eine langreichweitige Ordnung aufweisen, wie in kristallinen Proben, oder zufällig verteilt sind, wie in biologischen Molekülen.

Ein Herausfiltern der hochfrequenten Sphärischen Harmonischen, wie es in [35] vorgeschlagen wird, beläßt den niederfrequenten Anteil der fernen Atome im Hologramm, was in der Rekonstruktion schließlich zu Artefakten in der näheren Umgebung des Zentral-Atoms führt.

Andererseits ist es offensichtlich auch nicht möglich, ein Hologramm in endlicher Zeit mit einer so großen Abtastrate zu vermessen, daß selbst die höchsten Frequenzen der weit entfernten Atome noch aufgelöst werden können. Daher liefern auch ungefilterte Hologramme in der Rekonstruktion Artefakte.

Bedingt durch den Einfluß der weit entfernten Atome macht sich die langreichweitige Ordnung der kristallinen Proben im Hologramm in Form von Kossel-Linien bemerkbar. Diese Linien enthalten genug Information über die Gitterstruktur der Probe, um in der holographischen Rekonstruktion zu Maxima an den richtigen Atompositionen zu führen. Da die Intensität der Kossel-Linie im Vergleich zur Intensität der restlichen Hologrammstruktur sehr groß ist, überdecken diese Maxima in den holographischen Rekonstruktionen das eigentliche Hologramm.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden neue Meßmethoden in der atomar auflösenden Holographie entwickelt und der Einfluß der kristallinen Probenstruktur auf das Hologramm untersucht.

Als erstes wurde eine neue Methode entwickelt, welche zur Hologrammerzeugung keine Synchrotronstrahlung benötigt. Dazu wurde ein Experiment zur reziproken Holographie mittels einfallender Elektronen realisiert. Die Fluoreszenzausbeute dieser Messungen zeigte bis auf ein paar schwache Kosselinien eines direkten Hologramms keine sonstigen Strukturen, die sich dem Hologramm der einfallenden Elektronenstrahlung zuordnen lassen. Insgesamt war die Photonenausbeute in dem von mir durchgeführten Experiment für eine erfolgreiche holographische Rekonstruktion zu gering. Wäre es möglich gewesen, sich mit dem Photonendetektor bis auf 3 cm der Probe zu nähern, hätte die Photonenausbeute noch mal um einen Faktor 40 auf ca. 80000 Photonen pro Sekunde gesteigert werden können. Unter diesen Umständen ist eine bessere Qualität der Hologramm-Daten zu erwarten.

Die Detektion des Probenstroms erwies sich dagegen als hervorragende Meßgröße um mit den die Probe verlassenden Augerlektronen das reziproke Hologramm zu detektieren. Die Meßdaten zeigen sehr viele Feinstrukturen, die sich als inverse Kikuchi-Linien deuten lassen. Neben diesen Linien lassen sich allerdings keine weiteren holographischen Strukturen erkennen, was auf die ausgeprägte Forwärtstreuung und die kleinen Bragg-Winkel der hochenergetischen Elektronenstrahlung zurückzuführen ist.

Aufgrund ihrer starken Forwärtstreuung und dem großen Anteil der inelastischen Streuung sind die hochenergetischen Elektronen offensichtlich für die holographische Untersuchung von Festkörpern nicht geeignet. Daher ver-

bleibt nur ihre Anwendung auf Oberflächenstrukturen. Gerade für die Untersuchung an biologischen Proben ist die stärkere Streuung der Elektronen an deren leichten Atomen besser zur Strukturuntersuchung geeignet als die Röntgenstrahlung. Dazu könnte man einzelne biologische Makromoleküle auf einem amorphen Substrat, welches keine Hologramm-Informationen liefert, aufbringen und mittels eines Elektronenstrahls ein reziprokes Hologramm erzeugen, welches dann entweder mit Hilfe der Fluoreszenzstrahlung oder der Elektronen-Emission der Probe detektiert werden kann.

Als nächstes wurden neue Detektionsmethoden für die reziproke Holographie mit einfallender Röntgenstrahlung vorgestellt und mit konventionellen Methoden verglichen. Zum einen wurden Analysatorkristalle verwendet, um die Fluoreszenzemission der Probe auf einen Photonen-Detektor mit hoher Zählrate zu fokussieren. Zum anderen wurden die von den Atomen neben der Fluoreszenz auch emittierten Augerelektronen mittels einer neu entwickelten Meßzelle detektiert. Beide Methoden zeigen im Vergleich zur Verwendung konventioneller Röntgen-Detektoren eine deutliche Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses, wobei es bei dem Elektronendetektor nicht einmal nötig ist, ihn mit der Probe in ϕ mit zu drehen, um nicht in der gemischten Methode zu messen.

Es wurde gezeigt, daß sich auch in diesen neuen Meßverfahren die Bragg-Reflexion der einfallenden Strahlung in den Hologramm-Daten wiederfinden kann und damit zu Artefakten in den holographischen Rekonstruktionen führt. Einzig die Weiterentwicklung der Meßtechniken mit Analysatorkristallen verspricht eine Lösung dieses Problems, da diese die verschiedenen Energien von einfallender und Fluoreszenzstrahlung auch bei hohen Photonenflüssen trennen können, bevor diese den eigentlichen Detektor treffen.

Die gute Meßstatistik der Daten machte eine erneute theoretische Betrachtung der Holographie nötig. Zum ersten mal wurde die Zerlegung nach Sphärischen Harmonischen benutzt, um den Einfluß der weit entfernten Atome auf das Hologramm zu untersuchen. Es stellte sich dabei heraus, daß der Anteil dieser Atome an den niedrigen Frequenzen der Sphärischen Harmonischen von der selben Größenordnung ist, wie die Beiträge der nahe gelegenen Atome. Daher lassen sich die weit entfernten Atome nicht, wie in [35] vorgeschlagen, durch Filterung aus den Hologrammen entfernen. Die Konsequenz hieraus ist, daß sich somit auch der Einfluß der langreichweitigen Ordnung in den Kristallen nicht aus den Hologrammen beseitigen läßt. Dieses äußert sich durch eine große Zahl von Kossel-Linien in den Hologrammen. Es wurde schließlich gezeigt, daß das Muster dieser Linien alleine schon ausreicht, um in den Rekonstruktionen die Gitterstruktur der Probe wiederzugeben.

Dabei ist allerdings keine Information über die Basis des Kristallgitters enthalten, sofern die Auflösung der Messdaten keine Analyse des Profils der Kossel-Linien erlaubt oder weitere holographische Details zugänglich sind.

Das Ergebnis dieser Arbeit ist also, daß die Röntgenfluoreszenzholographie in der existierenden Form an Kristallen nicht funktioniert, da die langreichweitige Ordnung in den Proben in der Rekonstruktion zu Artefakten an richtigen Gitterpositionen führt und nicht durch Filterung der Daten beseitigt werden kann. Das bedeutet, daß in allen bislang veröffentlichten Ergebnissen [9], [11], [40], [41],[42], [43], [44], [45], [46], die aus gefilterten Daten von Kristallen gewonnen wurden, davon auszugehen ist, daß ein Großteil der Maxima nicht von dem Hologramm, sondern von nicht vollständig entfernten Kossel-Linien stammen.

Um die in dieser Arbeit aufgezeigten Schwierigkeiten zu umgehen, ist die Entwicklung neuer Auswertungsmethoden für die holographischen Daten nötig. Diese müssen von der Modellfreiheit der Holographie abkehren und neben dem eigentlichen Hologramm auch weitere Probeninformationen nutzen, um die Artefakte aus den Kossel-Linien und Bragg-Reflexen in den Griff zu bekommen.

Anhang A

Kohärenz

Wenn sich zwei Wellen überlagern, so wie in der Holographie die Referenz- mit der Objekt-Welle, hängt es von ihrer Kohärenz zueinander ab, wie stark sie miteinander interferieren.

Es werde ganz allgemein die eine Welle durch $A_1 \exp(i\Phi_1(\mathbf{r}, t))$ und die andere durch $A_2 \exp(i(\Phi_2(\mathbf{r}, t) + \phi))$ beschrieben. Unterscheiden sich die Exponenten der beiden Wellen nur um eine konstante Phase ϕ , also $\Phi_1 = \Phi_2$, sind sie zueinander total kohärent. Die Intensität ihrer Interferenz hängt dann nur von ϕ ab. Bei $\phi = 0$ liegt z.B. konstruktive und bei $\phi = \pi$ destruktive Interferenz vor.

Weichen die beiden Wellen in ihren Exponenten noch zusätzlich um eine von Ort und Zeit abhängige Phase voneinander ab, also $\Phi_1 = \Phi_2 + \delta\Phi(\mathbf{r}, t)$, stört dieses ihre Interferenz.

Eine elektromagnetische Welle wird beschrieben durch

$$E(\mathbf{r}, t) = E_0 e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)}. \quad (\text{A.1})$$

Die zusätzliche Phase $\delta\Phi(\mathbf{r}, t)$ zwischen zwei Wellen kann auf einer Differenz der Wellen in ωt , in $\mathbf{k}\mathbf{r}$ oder auch in beidem beruhen.

Je nachdem, was zu der zusätzlichen Phase führt, unterscheidet man die verschiedenen Formen der Kohärenz.

A.1 Zeitliche Kohärenz

Unterscheiden sich die Wellen im ωt -Term des Exponenten, spricht man von zeitlicher oder *longitudinaler* Kohärenz. Sie beschreibt die Stabilität der Lichtquelle im zeitlichen Mittel, und ist damit ein Maß dafür, wie lange sie ungestört (ohne Phasensprung) einen monochromatischen Lichtzug aussendet, siehe Abb. A.1b. Das heißt, sie ist anschaulich ein Maß für die Länge eines ununterbrochenen Lichtstrahls.

Ein klassisches Experiment zur Veranschaulichung der longitudinalen Kohärenz ist das Michelson-Interferometer. Dabei wird der Strahl der Lichtquelle durch einen Strahlteiler in zwei Strahlen aufgeteilt, die dann nach verschiedenen langen Wegen, also nach verschiedenen langen Laufzeiten, am Ort des Detektors wieder überlagert werden.

Neben einer charakteristischen Zeit Δt beeinflusst auch eine Frequenzverbreiterung $\Delta\omega$ die Kohärenz des Lichts. In diesem Fall laufen die Phasen zweier Lichtstrahlen, die anfangs in Phase sind, mit der Zeit auseinander, bis sie völlig außer Phase sind, siehe Abb. A.1a. Eine Überlagerung dieser Wellen führt dann zu einer Schwebung.

Für eine Quelle der mittleren Wellenlänge $\overline{\lambda_0}$ lässt sich damit eine longitudinale Kohärenzlänge Δl definieren:

$$\Delta l = c\Delta t \approx \frac{\overline{\lambda_0}^2}{\Delta\lambda_0} \quad (\text{A.2})$$

A.2 Räumliche Kohärenz

Unterscheiden sich die Wellen im $\mathbf{k}\mathbf{r}$ -Term des Exponenten spricht man von räumlicher oder *transversaler* Kohärenz.

Eine Quelle transversaler Kohärenz liegt bei einer ausgedehnten Lichtquelle vor. Dieses läßt sich am einfachsten in Abb. A.2a mit Hilfe des Youngschen Doppelspaltversuchs erläutern:

Eine Punktquelle direkt auf der optischen Achse produziert ein Interferenzmuster auf einem Schirm. Wird die Quelle senkrecht zur optischen Achse bewegt, verschiebt sich die Phase dieses Musters, bis es bei einer Verschiebung $\Delta\mathbf{r}$ komplett gegenphasig zu dem ursprünglichen Muster ist. Daraus folgt nun, daß eine ausgedehnte Quelle mit Radius $\Delta\mathbf{r}$, bei der die einzelnen

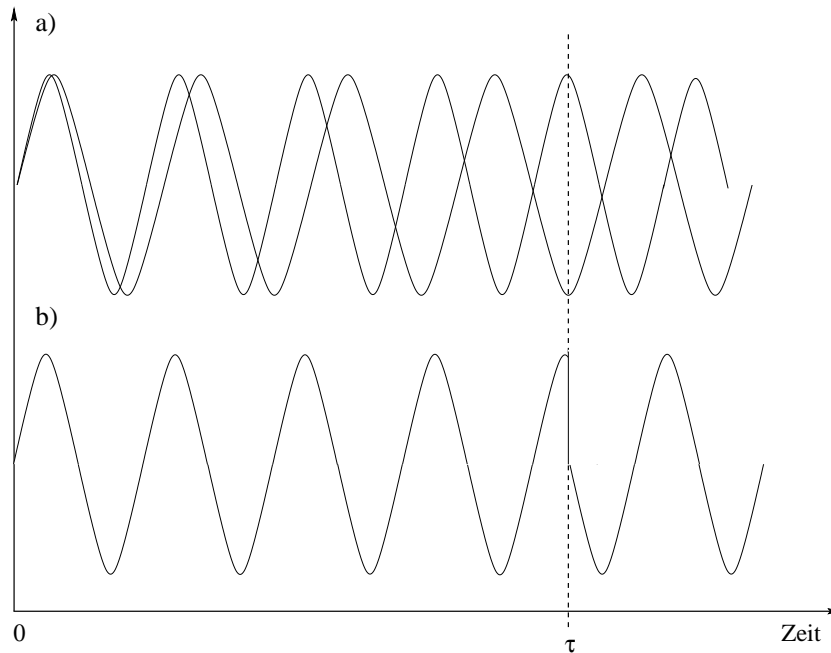


Abbildung A.1: Verschiedene Quellen zeitlicher (longitudinaler) Kohärenz: a) Zwei Wellen unterschiedlicher Frequenz, ω und $\omega + \Delta\omega$ sind nach einer charakteristischen Zeit τ außer Phase. b) Ein monochromatischer Wellenzug erleidet nach einer Zeit τ einen Phasensprung.

Punktquellen in ihrer Phase statistisch verteilt sind, auf dem Schirm keinerlei Interferenzmuster mehr zeigt, also *inkohärent* ist.

Auch eine ideale punktförmigen Quelle kann aufgrund der Winkeldivergenz $\Delta\mathbf{k}$ ihrer Abstrahlung eine transversale Kohärenz haben. Dieses ist in Abbildung A.2b gezeigt: Trifft die von einer Punktquelle emittierte Kugelwelle auf einen ebenen Schirm, ergibt sich dort aufgrund der unterschiedlich langen Wegstrecken von Quelle zum Schirm eine radiale Phasenverschiebung. Wieder existiert ein maximaler Radius r bei dem die Phase der Welle genau gegenphasig zu dem Aufpunkt der Quelle auf dem Schirm ist.

Aus dem Abstand a zweier Punkte der Quelle und dem Abstand d dieser Quelle zum Schirm ergibt sich als Bedingung für die transversale Kohärenzlänge l_t :

$$l_t \approx \frac{\lambda a}{2d} \quad (\text{A.3})$$

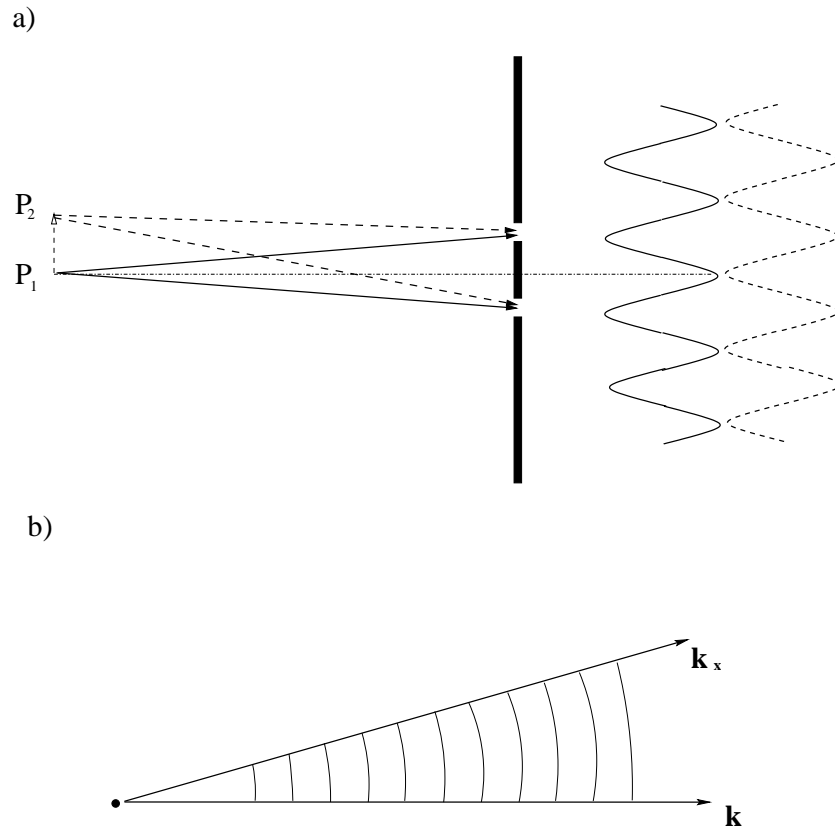


Abbildung A.2: Verschiedene Quellen räumlicher (transversaler) Kohärenz:
 a) Zwei Wellen derselben Frequenz gehen von verschiedenen Punkten einer ausgedehnten Quelle aus. Die an einem Doppelspalt entstehenden Beugungsbilder werden sich im zeitlichen Mittel aufheben, wenn es keine feste Phasenbeziehung zwischen den Punkten gibt. b) Ein divergenter Strahl einer monochromatischen Punktquelle. Aufgrund der unterschiedlichen Weglängen ändert sich die Phase ortsabhängig auf einem Schirm.

Anhang B

Streuung von Photonen

Herleitung nach [47]. Klassisch wird die Streuung von Röntgenstrahlen an Elektronen dadurch beschrieben, daß die einfallende elektromagnetische Welle die Elektronen zu Schwingungen anregt. Die schwingenden Elektronen werden dann ihrerseits als Dipole eine elektromagnetische Welle aussenden. Diese emittierte Welle stellt dann die gestreute Welle da.

Um das Dipolfeld zu berechnen, benutzt man die Definition des Vektorpotentials

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad (\text{B.1})$$

mit dem Vektorpotential

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int_V \frac{\mathbf{J}(\mathbf{r}', t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/c)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}'. \quad (\text{B.2})$$

Da die Ausbreitungsgeschwindigkeit der elektromagnetischen Welle endlich ist, geht in das Vektorpotential $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ die Stromdichte \mathbf{J} zu einer früheren Zeit $t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/c$ ein. Man spricht vom *retardierten* Vektorpotential.

Da die abgestrahlte Welle nur im Fernfeld gebraucht wird, ist die Dipolnäherung möglich. Sie erlaubt die Vernachlässigung von \mathbf{r}' im Vergleich zu \mathbf{r} :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \approx \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int_V \frac{\mathbf{J}(\mathbf{r}', t - r/c)}{|\mathbf{r}|} d\mathbf{r}' \quad (\text{B.3})$$

Die Stromdichte \mathbf{J} ist das Produkt von Ladungsdichte ρ und der Geschwindigkeit \mathbf{v} . Für eine diskrete Ladungsverteilung, wie bei einzelnen Elektronen,

geht daß Integral in eine Summe über:

$$\int_V \mathbf{J} d\mathbf{r}' = \int_V \rho \mathbf{v} d\mathbf{r}' = \sum_i q_i \mathbf{v}_i = \frac{d}{dt'} \sum_i q_i \mathbf{r}'_i \quad (\text{B.4})$$

Der letzte Term ist nichts weiter, als die Ableitung des Dipolmoments nach der Zeit, $\dot{\mathbf{p}}$.

Es sei der Einfachheit halber angenommen, die einfallende Welle wäre in der Z-Richtung polarisiert. Dann existiert in der Ladungsverteilung nur ein Dipolmoment in dieser Richtung. Entsprechend besitzt das Vektorpotential auch nur eine Z-Komponente.

Für einen einzelnen Dipol im Ursprung ergibt sich dann das Vektorpotential zu:

$$A_z = \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2 r} \right) \dot{p}(t') \quad (\text{B.5})$$

mit $A_x = A_y = 0$.

Mit Gleichung [B.1] kann man nun die Komponenten des \mathbf{B} Felds berechnen:

$$B_x = \frac{\partial A_z}{\partial y}; B_y = -\frac{\partial A_z}{\partial x}; B_z = 0 \quad (\text{B.6})$$

Für die x -Komponente des \mathbf{B} Felds ergibt sich aus der partiellen Ableitung von A_z nach y :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_z}{\partial y} &= \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \right) \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{\dot{p}(t')}{r} \right) \\ &= \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \right) \left[\frac{1}{r} \frac{\partial \dot{p}(t')}{\partial y} - \frac{\dot{p}(t')}{r^2} \frac{\partial r}{\partial y} \right] \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

In der Fernfeld Näherung kann der zweite Term in der Klammer vernachlässigt werden.

Die partielle Ableitung nach y läßt sich durch die Abhängigkeit der retardierten Zeit t' von Ort \mathbf{r} umschreiben nach:

$$\frac{\partial}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial t'} \frac{\partial t'}{\partial y} = -\frac{1}{c} \left(\frac{y}{r} \right) \frac{\partial}{\partial t'} \quad (\text{B.8})$$

Damit ergibt sich die x Komponente des \mathbf{B} Felds in der Fernfeld-Näherung schließlich zu:

$$B_x \approx - \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \right) \frac{1}{cr} \ddot{p}(t') \left(\frac{y}{r} \right) \quad (\text{B.9})$$

Verallgemeinert auf eine beliebige Polarisationsrichtung ergibt sich:

$$\mathbf{B} \approx - \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \right) \frac{1}{cr} \ddot{\mathbf{p}}(t') \times \hat{\mathbf{r}} \quad (\text{B.10})$$

wobei $\hat{\mathbf{r}}$ der Einheitsvektor $(x/r, y/r, z/r)$ ist. Das Ergebnis des Betrages des Kreuzprodukts ist $\dot{p} \cos \psi$ wobei ψ der Winkel des Einheitsvektors senkrecht zur Polarisationssebene ist.

Aus den Maxwellgleichungen erhält man entsprechend für das elektrische Feld:

$$\mathbf{E} = - \left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \right) \frac{1}{r} \ddot{\mathbf{p}}(t') \cos \psi \quad (\text{B.11})$$

Bestimmt man die Abhängigkeit von \ddot{p} vom anregenden einfallenden Feld $E_{in} = E_0 e^{-i\omega(t-r/c)}$ erhält man:

$$\ddot{p} = q\ddot{z} = q \frac{\text{Kraft}}{\text{Masse}} = q \frac{qE_{in}}{m} = \frac{q^2}{m} E_0 e^{-i\omega(t-r/c)} \quad (\text{B.12})$$

Mit $q = -e$ und $\omega/c = k$ ergibt sich:

$$\mathbf{E} = - \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m c^2} \right) \frac{e^{ikr}}{r} E_{in}(t) \cos \psi \quad (\text{B.13})$$

Für das Verhältnis von abgestrahlter zu einfallender Strahlung erhält man die Thomson Streuformel:

$$\frac{E(t)}{E_{in}(t)} = -r_0 \left(\frac{e^{ikr}}{r} \right) \cos \psi \quad (\text{B.14})$$

Mit dem klassischen Elektronenradius $r_0 = \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m c^2} \right)$.

B.1 Streuung am Atom

Die Streuung von Röntgenstrahlung an einem Atom setzt sich aus den Beiträgen der Streuung an den einzelnen Elektronen zusammen. In der klassischen Beschreibung hat man es mit einer Ladungsdichte $\rho(\mathbf{r})$ zu tun.

Je nach Richtung des Streuvektors \mathbf{k} ändert sich die Phasenverschiebung zwischen den Streubeiträgen der einzelnen Volumina der Ladungsdichte. Bezüglich

des Ursprungs in der Mitte der Ladungsverteilung beträgt die Phasenverschiebung des Streubeitrags eines Volumenelements am Ort \mathbf{r} :

$$\Delta\phi(\mathbf{r}) = (\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r} = \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r} \quad (\text{B.15})$$

Für elastische Streuung gilt $|\mathbf{k}'| = |\mathbf{k}|$. Damit ergibt sich für den Streuvektor $|\mathbf{Q}| = 2|\mathbf{k}| \sin \theta = (4\pi/\lambda) \sin \theta$.

Jedes Volumenelement $d\mathbf{r}$ am Ort \mathbf{r} wird also mit einem Beitrag $-r_0\rho(\mathbf{r})d\mathbf{r}$ mit der Phase $e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}}$ zur Streuung beitragen. Die Streustärke des gesamten Atoms ergibt sich dann zu

$$-r_0 f^0(\mathbf{Q}) = -r_0 \int \rho(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}} d\mathbf{r}, \quad (\text{B.16})$$

wobei $f^0(\mathbf{Q})$ der *atomare Formfaktor* genannt wird.

B.2 Dispersionskorrekturen

In den bisherigen Betrachtungen wurde noch nicht berücksichtigt, das die atomaren Elektronen nicht frei sondern gebunden sind und eine Eigenfrequenz ω_S besitzen.

Das Model der Thomsonstreuung muß dann erweitert werden. Die Bewegungsgleichung des Elektrons enthält nun einen geschwindigkeitsabhängigen Term, der die Energiedissipation des einfallenden Felds repräsentiert, und einen ortsabhängigen Term, der die Eigenfrequenz des Elektrons berücksichtigt:

$$\ddot{x} + \Gamma\dot{x} + \omega_s^2 x = - \left(\frac{eE_0}{m} \right) e^{-i\omega t} \quad (\text{B.17})$$

Es ergibt sich für die Auslenkung des Elektrons:

$$x_0 = - \left(\frac{eE_0}{m} \right) e^{-i\omega t} \frac{1}{\omega_S^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma} \quad (\text{B.18})$$

Damit erhält man schließlich die neue Gleichung für das Verhältnis von abgestrahltem zu einfallendem Elektrischen Feld:

$$\frac{E_{rad}(R, t)}{E_{in}} = -r_0 \frac{\omega^2}{(\omega^2 - \omega_S^2 + i\omega\Gamma/m)} \frac{e^{ikR}}{R} \quad (\text{B.19})$$

Die atomare Streustärke, also die Amplitude der auslaufenden Kugelwelle, ist damit in Einheiten von $-r_0$:

$$f_S = \frac{\omega^2}{(\omega^2 - \omega_S^2 + i\omega\Gamma/m)} \quad (\text{B.20})$$

Für Frequenzen die groß gegen die Resonanzfrequenz ω_S sind, kann das Elektron als frei betrachtet werden und es gilt weiter die Thomson Formel. Der totale Streuquerschnitt für ein einzelnes freies Elektron beträgt:

$$\sigma_T = \left(\frac{8\pi}{3}\right) r_0^2 \quad (\text{B.21})$$

Die Form des totalen Streuquerschnitts für ein gebundenes Elektron ist dementsprechend:

$$\sigma_T = \left(\frac{8\pi}{3}\right) \frac{\omega^4}{(\omega^2 - \omega_S^2)^2 + (\omega\Gamma)^2} r_0^2 \quad (\text{B.22})$$

und wird im Limes für Frequenzen klein gegen die Resonanzfrequenz und unter Vernachlässigung der Dämpfung:

$$\sigma_T = \left(\frac{8\pi}{3}\right) \left(\frac{\omega}{\omega_S}\right)^2 r_0^2 \quad (\text{B.23})$$

Dieser Limes gilt für die Streuung elektromagnetischer Wellen im sichtbaren Spektrum und ist als *Rayleigh* Gesetz bekannt. Dementsprechend spricht man bei der Streuung von Röntgenstrahlung an Atomen auch von Rayleigh Streuung.

Der Ausdruck für f_S in Gleichung [B.20] kann umgeformt werden zu:

$$\begin{aligned} f_S &= 1 + \frac{\omega_S^2 - i\omega\Gamma}{(\omega^2 - \omega_S^2 + i\omega\Gamma)} \\ &\approx 1 + \frac{\omega_S^2}{(\omega^2 - \omega_S^2 + i\omega\Gamma)} \end{aligned} \quad (\text{B.24})$$

In dieser Form läßt sich leicht erkennen, daß die ursprüngliche Streuamplitude um die Dispersionskorrektur erweitert wurde:

$$f(\mathbf{Q}, \hbar\omega) = f^o(\mathbf{Q}) + f'(\hbar\omega) + i f''(\hbar\omega) \quad (\text{B.25})$$

Diese ist nur von der Energie $\hbar\omega$ der einfallenden Welle, nicht aber von der Streurichtung abhängig.

B.3 Herleitung der Hologrammintensität für die direkte Röntgenfluoreszenzholographie

Das Fluoreszenzatom möge sich im Ursprung \mathbf{O} des Koordinatensystems befinden. Die Intensität des anregenden Feldes beträgt dort im zeitlichen Mittel:

$$I_i(\mathbf{O}) = \langle |\mathbf{E}_i(\mathbf{O}, t)|^2 \rangle \quad (\text{B.26})$$

Die zeitliche Mittelung $\langle \rangle$ erfolgt dabei über einen Zeitraum, der groß gegen die Periode $T = 2\pi/\omega_i$ des einfallenden elektrischen Feldes \mathbf{E}_i ist.

Proportional zum Photoionisationsquerschnitt σ_p wird das Atom ein K-Schalen Elektron verlieren. Für die anschließende Relaxation des Atoms kommen zwei Prozesse in Frage, die Emission eines Fluoreszenzquants oder eines Augerelektrons. Die Wahrscheinlichkeit w_f für die K-Fluoreszenz hängt von der Ladung des Atoms ab und kann mit

$$w_f = 1/(1 + \alpha Z^{-m}) \quad (\text{B.27})$$

angegeben werden. Z ist die Ordnungszahl des Atoms und $\alpha = 7.92 \times 10^5$, $m = 3.94$ sind Konstanten.

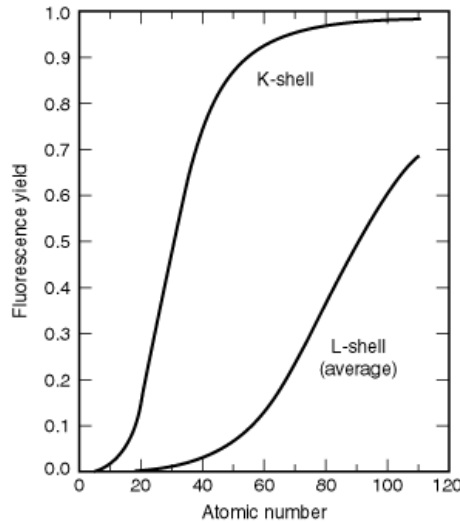


Abbildung B.1: Wahrscheinlichkeit w_f dafür, daß ein Atom mit einem K-Schalen Loch durch die Emission eines Fluoreszenzquants relaxiert.[48]

Damit beträgt die Wahrscheinlichkeit, ein Atom zur Fluoreszenz anzuregen $\sigma_p \cdot w_f \cdot I_i(\mathbf{O})$.

Herleitung nach [39]:

Das elektrische Dipolfeld des Fluoreszenzatoms beträgt an einem Punkt \mathbf{r} :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = k^2 \mathbf{p}_{\hat{\mathbf{n}}'} \frac{e^{ikr}}{r} + [3\hat{\mathbf{n}}'(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}] \left(\frac{1}{r^2} - \frac{ik}{r} \right) \frac{e^{ikr}}{r}, \quad (\text{B.28})$$

dabei ist $\hat{\mathbf{n}} = \mathbf{r}/|\mathbf{r}|$ der Einheitsvektor in Richtung \mathbf{r} und $\mathbf{p}_{\hat{\mathbf{n}}'}$ steht für das doppelte Kreuzprodukt $(\hat{\mathbf{n}}' \times \mathbf{p}) \times \hat{\mathbf{n}}'$. Der erste Term in Gl. B.28 beschreibt das Fernfeld des Dipols, während der zweite Term die Nahfeldeffekte berücksichtigt.

Das Dipolmoment des Fluoreszenzatoms kann beschrieben werden durch:

$$\mathbf{p}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{p}_0 e^{i(k_f r - \omega_f t)} \quad (\text{B.29})$$

Dabei ist $|\mathbf{p}_0|^2$ proportional zu $\langle |\mathbf{E}_i(\mathbf{O}, t)|^2 \rangle$, die Fluoreszenzintensität ist also direkt proportional zu $I_i(\mathbf{O})$.

Wird die Dipolstrahlung von einem Atom am Ort \mathbf{r} im Nahfeld gestreut, erhält man im Fernfeld, an einem Beobachtungsort \mathbf{R} , die Thomson-Streuamplitude:

$$\mathbf{E}_r(\mathbf{R}) = \frac{e^2}{mc^2} (\hat{\mathbf{n}} \times [\hat{\mathbf{n}} \times \mathbf{E}(\mathbf{r})]) \frac{e^{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}|}}{|\mathbf{R}-\mathbf{r}|} \quad (\text{B.30})$$

Einsetzen von Gl. B.28 in Gl. B.30 liefert unter Verwendung von $\mathbf{k} = k\hat{\mathbf{n}}$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_r(\mathbf{R}) &= -r_e \frac{e^{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}|}}{|\mathbf{R}-\mathbf{r}|} \frac{e^{ikr}}{r} \\ &\times \left[[\mathbf{p}_{\hat{\mathbf{n}}'}]_{\mathbf{k}} + [3\hat{\mathbf{n}}'(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}]_{\mathbf{k}} \left(\frac{1}{kr^2} - \frac{i}{kr} \right) \right], \quad (\text{B.31}) \end{aligned}$$

mit dem klassischen Elektronenradius $r_e = e^2/mc^2 = 2.818 \times 10^{-5} \text{Å}$ und dem Einheitsvektor $\hat{\mathbf{n}} = (\mathbf{R} - \mathbf{r})/|\mathbf{R} - \mathbf{r}|$.

Am Punkt \mathbf{R} ergibt sich das detektierte Hologramm $\mathbf{E}_D(\mathbf{R})$ als Überlagerung des Fernfeldanteils der Fluoreszenz, Gl. B.28, und der Summe über deren Streuung an allen Nachbaratomen an den Positionen \mathbf{r}_j , Gl. B.31. Da für den Beobachtungsort immer $|\mathbf{r}_j| \ll |\mathbf{R}|$ gilt, können die Näherungen $|\mathbf{R} - \mathbf{r}_j|^{-1} \approx |\mathbf{R}|^{-1}$, $\exp(ik|\mathbf{R} - \mathbf{r}_j|) \approx \exp(ik|\mathbf{R}| - ikr_j)$ und $\hat{\mathbf{n}} \approx \mathbf{R}/|\mathbf{R}|$ gemacht werden.

Man erhält schließlich

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_D(\mathbf{R}) &= k^2 \mathbf{p} \hat{\mathbf{n}} \frac{e^{ikR}}{R} - r_e \sum_j \frac{e^{ikr_j}}{r_j} \frac{e^{ik|\mathbf{R}-\mathbf{r}_j|}}{|\mathbf{R}-\mathbf{r}_j|} f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \\ &\quad \times \left[[\mathbf{p} \hat{\mathbf{n}}']_{\mathbf{k}} + [3\hat{\mathbf{n}}'(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}]_{\mathbf{k}} \left(\frac{1}{kr_j^2} - \frac{i}{kr_j} \right) \right] \end{aligned} \quad (\text{B.32})$$

$$= \frac{e^{ikR}}{R} \cdot \left[\mathbf{p}_{\mathbf{k}} - r_e \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \mathbf{k}r_j)}}{r_j} f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \cdot [\dots] \right]. \quad (\text{B.33})$$

Dabei ist $f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k})$ der *Atom-Form-Faktor* für die Streuung aus der Richtung \mathbf{r}_j in Richtung \mathbf{k} .

Mit $(\hat{\mathbf{n}}' \times \mathbf{p}) \times \hat{\mathbf{n}}' = \mathbf{p} - (\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}'$ kann man die vielfachen Vektorprodukte in Gl. B.32 umformen:

$$\begin{aligned} [\mathbf{p} \hat{\mathbf{n}}']_{\mathbf{k}} &= (\mathbf{k} \times (\mathbf{p} - (\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}')) \times \mathbf{k} \\ &= (\mathbf{k} \times \mathbf{p} - \mathbf{k} \times (\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}') \times \mathbf{k} \\ &= (\mathbf{k} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{k} - (\mathbf{k} \times (\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}') \times \mathbf{k} \\ &= \mathbf{p}_{\mathbf{k}} - (\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}'_{\mathbf{k}} \end{aligned}$$

und entsprechend

$$\begin{aligned} [3\hat{\mathbf{n}}'(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}]_{\mathbf{k}} &= (\mathbf{k} \times (3\hat{\mathbf{n}}'(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p})) \times \mathbf{k} \\ &= \mathbf{k} \times 3\hat{\mathbf{n}}'(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \times \mathbf{k} - \mathbf{k} \times \mathbf{p} \times \mathbf{k} \\ &= 3(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}'_{\mathbf{k}} - \mathbf{p}_{\mathbf{k}}. \end{aligned}$$

Für den Klammerausdruck in Gl. B.33 ergibt sich dann:

$$[\dots] = \mathbf{p}_{\mathbf{k}} - (\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}'_{\mathbf{k}} + (3(\hat{\mathbf{n}}' \cdot \mathbf{p}) \hat{\mathbf{n}}'_{\mathbf{k}} - \mathbf{p}_{\mathbf{k}}) \left(\frac{1}{kr_j^2} - \frac{i}{kr_j} \right) \quad (\text{B.34})$$

Unter Verwendung von $\hat{\mathbf{n}}' = \mathbf{r}_j/|\mathbf{r}_j|$ und nach Umsortieren der Terme erhält man schließlich:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_D(\mathbf{R}) &= \frac{e^{ikR}}{R} \cdot \left\{ \mathbf{p}_{\mathbf{k}} - r_e \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \mathbf{k}r_j)}}{r_j} f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \right. \\ &\quad \times \left[\left(1 - \frac{1}{k^2 r_j^2} + \frac{i}{kr_j} \right) \mathbf{p}_{\mathbf{k}} + \left(\frac{3}{k^2 r_j^2} + \frac{3i}{kr_j} - 1 \right) \frac{(\mathbf{r}_j \cdot \mathbf{p})(\mathbf{r}_j)_{\mathbf{k}}}{r_j^2} \right] \left. \right\} \end{aligned} \quad (\text{B.35})$$

Mit den Abkürzungen

$$A_k(\mathbf{r}_j) = 1 - \frac{1}{(kr_j)^2} + \frac{i}{kr_j} \quad (\text{B.36a})$$

und

$$B_k(\mathbf{r}_j) = -\frac{2}{(kr_j)^2} + \frac{2i}{kr_j} \quad (\text{B.36b})$$

läßt sich Gl. B.35 kompakter schreiben als:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_D(\mathbf{R}) = & \frac{e^{ikR}}{R} \cdot \left\{ \mathbf{p}_k - r_e \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j)}}{r_j} f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \right. \\ & \left. \times \left[A_k(\mathbf{r}_j) \mathbf{p}_k + [A_k(\mathbf{r}_j) + B_k(\mathbf{r}_j)] \frac{(\mathbf{r}_j \cdot \mathbf{p})(\mathbf{r}_j)_k}{r_j^2} \right] \right\} \quad (\text{B.37}) \end{aligned}$$

Die am Detektor gemessene Intensität ist proportional zum Quadrat des elektrischen Feldes. Sie besteht aus dem Quadrat der Referenzwelle, dem Quadrat der gestreuten Welle und zwei mal dem Realteil des Interferenzterms von Referenz- und Objektwelle. Vernachlässigt man den kleinen Beitrag des Quadrats der Objektwelle ($|O|^2$), so erhält man:

$$\begin{aligned} |\mathbf{E}_D(\mathbf{R})|^2 = & \frac{1}{R^2} \cdot \left\{ |\mathbf{p}_k|^2 - 2r_e \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j)}}{r_j} f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \right. \\ & \left. \times \left[A_k(\mathbf{r}_j) |\mathbf{p}_k|^2 + [A_k(\mathbf{r}_j) + B_k(\mathbf{r}_j)] \mathbf{p}_k \frac{(\mathbf{r}_j \cdot \mathbf{p})(\mathbf{r}_j)_k}{r_j^2} \right] \right\} \quad (\text{B.38}) \end{aligned}$$

Da die Polarisation der Fluoreszenzstrahlung statistisch verteilt ist, muß man Gl. B.38 über 4π , also alle möglichen Orientierungen von \mathbf{p} , integrieren. Ausgedrückt in Abhängigkeit von \mathbf{k} anstatt von \mathbf{R} beträgt die Intensität des Hologramms im Fernfeld dann

$$\begin{aligned} \langle |\mathbf{E}_D(\mathbf{k})|^2 \rangle = & \frac{2k^4 |\mathbf{p}|^2}{3R^2} \left[1 - 2r_e \Re \sum_j \frac{e^{i(kr_j - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j)}}{r_j} f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \right. \\ & \left. \times \left(A_k(\mathbf{r}_j) \frac{1 + \cos^2(\mathbf{k}, \mathbf{r}_j)}{2} - B_k(\mathbf{r}_j) \frac{\sin^2(\mathbf{k}, \mathbf{r}_j)}{2} \right) \right] \quad (\text{B.39}) \end{aligned}$$

Der zweite Term in Gl. B.39 stellt das Hologramm $\chi(\mathbf{k})$ dar, während der erste die Referenzwelle ist. Das Hologramm läßt sich vereinfacht schreiben als

$$\chi(\mathbf{k}) = -2r_e \Re \epsilon \sum_j \frac{f_S(\mathbf{r}_j, \mathbf{k})}{r_j} e^{i(kr_j - \mathbf{k}\mathbf{r}_j)} \quad (\text{B.40})$$

mit dem verallgemeinerten Streufaktor $f_S(\mathbf{r}_j, \mathbf{k})$,

$$f_S(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) = f(\mathbf{r}_j, \mathbf{k}) \times \left(A_k(\mathbf{r}_j) \frac{1 + \cos^2(\mathbf{k}, \mathbf{r}_j)}{2} - B_k(\mathbf{r}_j) \frac{\sin^2(\mathbf{k}, \mathbf{r}_j)}{2} \right) \quad (\text{B.41})$$

Anhang C

Auflistung der Messungen

Probe	Energie d. Elektronen	Anzahl d. Messungen
Germanium (001)	17 <i>keV</i>	10
Germanium (001)	19 <i>keV</i>	8
Germanium (001)	20 <i>keV</i>	11

Tabelle C.1: Messungen des Elektronenholographie-Experiments, bei denen sowohl die Ge $K\alpha$ -Fluoreszenz als auch der Probenstrom gemessen wurde

Probe	Energie d. Elektronen	Anzahl d. Messungen
Silizium (111)	18 <i>keV</i>	1
Germanium (001)	20 <i>keV</i>	1

Tabelle C.2: Messungen des Elektronenholographie-Experiments, bei denen nur der Probenstrom gemessen wurde

Energie d. Photonen	Anzahl d. Messungen
12 <i>keV</i>	2
14 <i>keV</i>	2
16 <i>keV</i>	2
18 <i>keV</i>	2

Tabelle C.3: Messung der Germanium-Fluoreszenz mit Hilfe eines ringförmigen Analysatorkristalls

Energie d. Photonen	Anzahl d. Messungen	Detektor
10,0 keV	7	Probenstrom
10,0 keV	7	Cu-Fluoreszenz SDD 1
10,0 keV	7	Cu-Fluoreszenz SDD 2
10,5 keV	1	Probenstrom
10,5 keV	1	Cu-Fluoreszenz SDD 1
10,5 keV	1	Cu-Fluoreszenz SDD 2
11,0 keV	1	Probenstrom
11,0 keV	1	Cu-Fluoreszenz SDD 1
11,0 keV	1	Cu-Fluoreszenz SDD 2

Tabelle C.4: Kombinierte Messungen an Cu_3Au mit Elektronendetektor und 2 *Silicon-Drift-Detektoren*

Literaturverzeichnis

- [1] D. Gabor. A New Microscopic Principle. *Nature*, (4098):777–778, 1948.
- [2] A. Szöke. X-ray and Electron Holography using a Local Reference Beam. In D. T. Attwood and J. Brooker, editors, *Short Wavelength Coherent Radiation: Generation and Applications*, number 147, 1986. AIP Conf. Proceedings.
- [3] W. Lauterborn, T. Kurz, and M. Wiesenfeldt. *Kohärente Optik: Grundlagen für Physiker und Ingenieure*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1993.
- [4] John J. Barton. Photoelectron Holography. *Phys. Rev. Lett.*, 61(12):1356–1359, 1988.
- [5] S. Hucek, I. S. Tilinin, and J. Zemek. Angular Distribution of Photoelectrons Emitted from Solids. *Journ. of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 85:263, 1997.
- [6] J. J. Barton, S. W. Robey, and D. A. Shirley. Theory of angle-resolved photoemission extended fine structure. *Phys. Rev. B*, 34(2):778–791, 1986.
- [7] G. R. Harp, D. K. Saldin, and B. P. Tonner. Atomic-resolution Electron Holography in Solids with Localized Sources. *Phys. Rev. Lett.*, 65(8):1012–1015, 1990.
- [8] D. K. Saldin and P. L. de Andreas. Holographic LEED. *Phys. Rev. Lett.*, 64(11):1270–1273, 1990.
- [9] M. Tegze and G. Faigel. X-ray Holography with Atomic Resolution. *Nature*, 380:49, 1996.
- [10] J. J. Barton. Removing Multiple Scattering and Twin Images from Holographic Images. *Phys. Rev. Lett.*, 67(22):3106–3109, 1991.

- [11] T. Gog, P. M. Len, G. Materlik, D. Bahr, C. S. Fadley, and C. Sanches-Hanke. Multiple-energy X-ray Holography: Atomic Images of Hematite(Fe_2O_3). *Phys. Rev. Lett.*, 76(17):3132–3135, 1996.
- [12] Max von Laue. *Röntgenstrahl-Interferenzen*. Akademische Verlagsgesellschaft Frankfurt am Main, 3rd edition, 1960.
- [13] W Kossel, V. Loeck, and H. Voges. Die Richtungsverteilung der in einem Kristall entstandenen charakteristischen Röntgenstrahlung. *Zeitung für Physik*, 94:134, 1934.
- [14] S. Kikuchi. *Jap. J. Phys*, 5:83, 1928.
- [15] B. Sur, R. B. Rogge, R. P. Hammond, V. N. P. Anghel, and J. Katsaras. Observation of Kossel and Kikuchi Lines in Thermal Neutron Incoherent Scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 88(6), 2002.
- [16] M Born and E. Wolf. *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge University Press, Cambridge, 6th edition, 1997.
- [17] P. M. Len, S. Thevuthasan, and C. S. Fadley. Atomic Imaging by X-ray-fluorescence Holography and Electron-emission Holography: A Comparative Theoretical Study. *Phys. Rev. B*, 50(15):11275–11278, 1994.
- [18] S. Thevuthasan, G. S. Herman, A. P. Kaduwela, R. S. Saiki, Y. J. Kim, W. Niemczura, M. Burger, and C. S. Fadley. Electron Emission Holography at keV Energies: Estimates of Accuracy and Limitations. *Phys. Rev. Lett.*, 67(4):469, 1991.
- [19] M-L. Xu, J. J. Barton, and M. A. van Hove. Electron Scattering by Atomic Chains: Multiple-scattering Effects. *Phys. Rev. B*, 39(12):8275, 1989.
- [20] S. Y. Tong and H. Huang. Time-reversed Internal-source Holography. *Surf. Rev. and Lett.*, 5(5):971, 1998.
- [21] Ludwig Reimer. *Transmission Elektron Microscopy*, volume 36 of *Optical Sciences*. Springer, 4th edition, 1997.
- [22] J. Geiger and K. Wittmaack. Wirkungsquerschnitte für die Anregung von Molekülschwingungen durch schnelle Elektronen. *Z. Phys.*, 187:433, 1965.

- [23] H. Boersch, J. Geiger, and A. Bohg. Wechselwirkung von Elektronen mit Gitterschwingungen in NH_4Cl und NH_4Br . *Z. Phys*, 227:141, 1969.
- [24] H. Raether. *Excitation of Plasmons and Interband Transitions by Electrons*, volume 88 of *Springer Tracts in Modern Physics*. Springer Verlag, 1979.
- [25] T. Mayer-Kuckuk. *Atomphysik*, chapter 8.3, page 180. Teubner Studienbücher Physik, first edition, 1977.
- [26] M. L. Xu and M. A. van Hove. Surface Structure Determination with Forward Focused Electrons. *Surf. Sci.*, 207:215, 1989.
- [27] S. Valeri, A. di Bona, and G. C. Gazzadi. Angular Anisotropy of Electron-excited Secondary Electron Emission. *Surf. Sci.*, 311:422, 1994.
- [28] S. Valeri and A. di Bona. Modulated Electron Emission by Scattering-interference of Primary Electrons. *Surf. Rev. and Lett.*, 4(1):141, 1997.
- [29] P. Korecki and G. Materlik. Real-Space Imaging of Atomic Structure with White X Rays.
- [30] MPI Halbleiterlabor München. <http://www.hll.mpg.de>.
- [31] K. Hansen and L. Tröger. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 47:2748, 2000.
- [32] Peter Kappen. *Multi-Element-Silizium-Drift-Detektoren zur Untersuchung von Katalysatoren sowie Photonen-Interferenz-Absorptionsspektroskopie als neue Methode*. PhD thesis, Universität Hamburg, Fachbereich Physik, 2002.
- [33] Stefano Marchesini. *X Ray Fluorescence Holography*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble I Sciences & Géographie, 2000.
- [34] Tina Hiort. *X-Ray Fluorescence Holography and Multiple Energy X-Ray Holography: A Comparative Study*. PhD thesis, Universität Hamburg, Fachbereich Physik, 2000.
- [35] M. Tegze and G. Faigel. Atomic-resolution X-ray Holography. *Europhys. Lett.*, 16(1):41, 1991.
- [36] J. P. Hannon, N. J. Carron, and G. T. Trammell. Mössbauer Diffraction. III. Emission of Mössbauer γ rays from crystals. B. Dynamical solutions. *Phys. Rev. B*, 9(7):2810–2831, 1974.

- [37] J. T. Hutton, G. T. Trammel, and J. P. Hannon. Determining the phase of the structure factor by Kossel cone analysis. *Phys. Rev. B*, 31(2):743–751, 1985.
- [38] S. S. Fanchenko, D. V. Novikov, A. Schley, and G. Materlik. Invalidation of low pass filtering in atom resolving X-ray holography. *Phys. Rev. B*, 2002.
- [39] B. Adams, D. V. Novikov, T. Hiort, G. Materlik, and E. Kossel. Atomic Holography with X-rays. *Phys. Rev. B*, 57(13):7526–7534, 1998.
- [40] K. Hayashi, T. Yamamoto, J. Kawai, M. Suzuki, S. Goto, S. Hayakawa, K. Sakurai, and Y. Gohshi. *Anal. Sci.*, 14:987, 1998.
- [41] M. Tegze, G. Faigel, S. Marchesini, M. Belakhovsky, and A. I. Chumakov. Three Dimensional Imaging of Atoms with Isotropic 0,5 Å Resolution. *Phys. Rev. Lett.*, 82(24):4847, 1999.
- [42] E. Busetto, M. Kopecký, A. Lausi, R. H. Menk, M. Miculin, and A. Savoia. *Phys. Rev. B*, 62:5273, 2000.
- [43] M. Tegze, G. Faigel, S. Marchesini, M. Belakhovsky, and O. Ulrich. *Nature (London)*, 407:38, 2000.
- [44] K. Hayashi, M. Matsui, Y. Awakura, T. Kaneyoshi, H. Tanida, and M. Ishii. *Phys. Rev. B*, 63:41201, 2001.
- [45] G. Faigel, M. Tegze, S. Marchesini, and M. Belakovsky. X-Ray fluorescence holography.
- [46] M. Kopecky, A. Lausi, E. Busetto, J. Kub, and A. Savoia. X-ray Absorption Holography. *Phys. Rev. Lett.*, 88(18), 2002.
- [47] Jens Als-Nielsen and Des McMorrow. *Elements of Modern X-ray Physics*. John Wiley & Sons, Ltd, 2001.
- [48] Center of X-Ray Optics and Advanced Light Source, editor. *X-Ray Data Booklet*. Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, 2001.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, die diese Arbeit möglich gemacht haben.

Zuerst bedanke ich mich bei Prof. Gerhard Materlik für die interessante Aufgabenstellung und seine Betreuung, auch wenn er mich vielleicht nicht so häufig zu Gesicht bekommen hat, wie es ihm lieb war.

Ich danke Prof. G. Zimmerer, der sich trotz gedrängtem Terminplan bereitgefunden hat, meine Dissertation zu begutachten.

Ich danke dem DESY, das mir mit meiner Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter die Promotion erst ermöglicht hat.

Ich bedanke mich bei allen *Holographen* der Arbeitsgruppe Materlik für die Unterstützung auf vielfältige Weise:

Dr. Dimitri Novikov – für die Betreuung meiner Arbeit,

Dr. Tina Hiort – an deren Arbeit ich anknüpfen konnte,

Elke Kossel – dafür, daß sie mich zur Holographie *überredet* hat.

Außerdem bei Dr. Bernhard Adams, Tilman Donath, Dr. Pawel Korecki, Dr. Yoshinori Nishino und Gerd Wellenreuther.

Ganz besonders möchte ich mich bei meinen *Mit-Doktoranden* Dr. Karin Anduleit, Thorsten Eickhoff, Jan Ingo Flege und Dr. Peter Kappen bedanken. Euch allen vielen Dank für die familiäre Atmosphäre, die gemeinsamen Unternehmungen und die manchmal auch sachlichen Diskussionen in all den Jahren. Besonders Karin noch mal ein Dankeschön für Deine geduldige und ausdauernde Unterstützung.

Auch allen anderen ehemaligen und aktuellen Mitarbeitern am HASYLAB gilt mein Dank: Dr. Felix Beckmann, Dr. Serguei Botcharov, Dr. Wolfgang Drube, Dr. Rachel Eisenhower, Prof. Jens Falta, Dr. Goutam Kuri, Jan Müller, Dr. Thomas Schmidt, Dr. Horst Schulte-Schrepping, Michael Siebert, Dr. John Sutter und Martin Tolkieln.

Ebenso den Mitarbeitern der Vakuum-Gruppe, der IT-Gruppe, der Elektronik-Gruppe und der mechanischen Werkstatt, H.-G. Schmidt für die technische Umsetzung mancher Idee und schließlich Helmut Weiß.

Schließlich bedanke ich mich auch noch mal besonders herzlich bei allen meinen Freunden, die mich in all den Jahren unterstützt haben und die zum Glück nicht alle was mit Physik zu tun haben:

Thomas, Jasmin & René, Yvonne & Jens, Meike & Ole, René & Liz und Sabine.

*“The universe, they said, depended for its operation
on the balance of four forces which they identified as
charm, persuasion, uncertainty and bloody-mindedness.”*

– *Terry Pratchett, The Light Fantastic*