

Anpassung und Optimierung des  
ptychographischen Modells für die quantitative  
Mikroskopie mit kohärenter Röntgenstrahlung  
und sichtbarem Laserlicht

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
an der Fakultät für Mathematik, Informatik und  
Naturwissenschaften Fachbereich Physik  
der Universität Hamburg

vorgelegt von

Robert Hoppe

Hamburg

2019



Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. Christian G. Schroer Prof. Dr. Jochen Geck
Zusammensetzung der Prüfungskommission:	Prof. Dr. Daniela Pfannkuche Prof. Dr. Christian G. Schroer Prof. Dr. Jochen Geck Prof. Dr. Andreas Stierle Prof. Dr. Markus Drescher
Vorsitzende der Prüfungskommission:	Prof. Dr. Daniela Pfannkuche
Datum der Disputation:	01.02.2019
Vorsitzender Fach-Promotionsausschusses PHYSIK:	Prof. Dr. Wolfgang Hansen
Leiter des Fachbereichs PHYSIK:	Prof. Dr. Michael Potthoff
Dekan der Fakultät MIN:	Prof. Dr. Heinrich Graener



Ptychography is a microscopy technique that combines coherent small-angle scattering and raster-scanning to solve the phase problem. At each scan point a far-field image of the illuminated object is recorded. The set of images must be reconstructed afterwards commonly to get the complex-valued illumination wave field and transmission function of the object. The complex wave field completely defines the illumination in the interaction plane and thus along the optical axis. By this feature the ptychography is perfectly suited to investigate optical elements and coherent sources. I demonstrate this unique capability by the characterization of a focused free-electron-laser beam and a comparison of two modes of an optical laser. Based on the absorption and phase shift, of the as well complex valued reconstructed object, all optical properties of the sample can be derived. Using the example of nano-porous gold, I demonstrate ptychographic imaging in a sample environment with an artificial dynamic atmosphere and at elevated temperature, functioning without restrictions. To understand the catalytic reaction the valence state of the catalyst must be measured separately. I present a method to determine the spatial resolved valence state by energy-dependent ptychographic imaging. Using optical-light ptychography the photorefractive characteristics of iron doped  $\text{LiNbO}_3$  is investigated. The change of the refractive index and the dynamic behavior of the light induced charge transport are measured and quantitatively described. Furthermore I can proof that the interaction planes inside a thick sample can be determined, even if the illumination is parallel throughout the sample.

---

Die Ptychographie ist ein rasterndes indirektes Mikroskopieverfahren zur Lösung des Phasenproblems. Das Objekt wird an jedem Rasterpunkt beleuchtet und die Intensität im Fernfeld vermessen. Alle Messungen werden anschließend gemeinsam rekonstruiert. Als Resultat liefert die Ptychographie ein komplexwertiges Beleuchtungsfeld und die komplexwertige Transmissionsfunktion des Objektes. Das Beleuchtungsfeld in der Objektebene ist vollständig charakterisiert und damit auch das Wellenfeld im gesamten Bereich entlang der optischen Achse. Die Ptychographie eignet sich damit besonders für die Charakterisierung von Optiken und kohärenten Quellen. Anhand der Untersuchung eines fokussierten Strahls einer Freie-Elektronen-Laser-Quelle und dem Vergleich zweier Moden eines optischen Lasers wird diese einzigartige Fähigkeit demonstriert. Aus der Absorption und Brechkraft, des ebenfalls komplexwertig rekonstruierten Objektes, lassen sich außerdem alle optischen Eigenschaften der Probe gewinnen. Am Beispiel von nanoporösem Gold demonstriere ich, dass die Ptychographie auch in einer Probenumgebung mit künstlicher dynamischer Atmosphäre und bei erhöhter Temperatur, ohne Einschränkungen funktioniert. Zur Untersuchung von Katalysatoren sind damit alle notwendigen Voraussetzungen erfüllt. Zudem zeige ich die orts aufgelöste Messung des Oxidationszustandes mittels energieabhängiger ptychographischer Abbildung. Über Ptychographie mit sichtbarem Licht wurde die Änderung des Brechungsindex von eisendotiertem  $\text{LiNbO}_3$  untersucht. Es wird der lichtinduzierte Ladungstransport im Material sichtbar gemacht und dessen Dynamik quantitativ beschrieben. Außerdem zeige ich, dass bei dicken Proben eine eindeutige Tiefenzuordnung der Wechselwirkungsebenen auch möglich ist, wenn die Beleuchtung über die gesamte Probendicke quasi konstant bleibt.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einführung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Betrachtung</b>	<b>5</b>
2.1	Abtasttheorem . . . . .	5
2.2	Fourier-Transformation . . . . .	5
2.3	Ebene Welle . . . . .	6
2.4	Wellenfeldpropagation . . . . .	7
2.5	Wechselwirkung mit Materie . . . . .	9
2.6	Kramers-Kronig-Relation . . . . .	11
2.7	Kohärenz . . . . .	11
<b>3</b>	<b>Ptychographie</b>	<b>13</b>
3.1	Einführung . . . . .	13
3.1.1	Kohärente Beugungsabbildung . . . . .	13
3.1.2	Ptychographie . . . . .	16
3.2	Daten . . . . .	17
3.2.1	Kissenverzerrung . . . . .	19
3.3	Rekonstruktionsalgorithmus . . . . .	22
3.4	Ptychographische Subiteration . . . . .	23
3.4.1	Strahlungs-Materie Wechselwirkung . . . . .	24
3.4.2	Propagation in die Detektorebene . . . . .	24
3.4.3	Anpassung an die Beugungsbilder . . . . .	25
3.4.4	Rückpropagation in die Objektebene . . . . .	25
3.4.5	Aufteilen der Transmission in Beleuchtung und Objekt . . . . .	25
3.5	Erweiterungen . . . . .	27
3.5.1	Propagation . . . . .	27
3.5.2	Updatevarianten . . . . .	29
3.5.3	Rauschen . . . . .	29
3.5.4	Residuum . . . . .	32
3.5.5	Positionsverfeinerung . . . . .	37
3.5.6	Normierungsanpassung . . . . .	39
3.5.7	Dicke Proben . . . . .	41

---

<b>4 Implementierung</b>	<b>45</b>
4.1 Systemauswahl . . . . .	46
4.2 Vergleich CPU - GPU . . . . .	47
4.3 GPU Speicherhaltung . . . . .	49
4.4 Programmteile . . . . .	50
4.4.1 Externe Bibliotheken . . . . .	52
4.4.2 Testroutinen . . . . .	54
4.4.3 Ablauf . . . . .	55
<b>5 Experimente</b>	<b>59</b>
5.1 Temperaturabhängige Ptychographie . . . . .	60
5.1.1 Ptychographie unter künstlicher Atmosphäre . . . . .	61
5.1.2 Nanoporöses Gold bei steigender Temperatur . . . . .	63
5.1.3 Stabilisierte nanoporöses Gold bei erhöhter Temperatur . . . . .	65
5.1.4 Zusammenfassung . . . . .	66
5.2 Resonante kohärente Röntgenabbildung . . . . .	66
5.2.1 Probe . . . . .	67
5.2.2 Strahlcharakterisierung . . . . .	68
5.2.3 Resonante Untersuchungen . . . . .	69
5.2.4 Auflösungsbestimmung . . . . .	72
5.2.5 Zusammenfassung . . . . .	73
5.3 Freie-Elektronen-Röntgen-Laser . . . . .	73
5.3.1 Testobjekt . . . . .	75
5.3.2 Experiment . . . . .	75
5.3.3 Rekonstruktion . . . . .	78
5.3.4 Zusammenfassung . . . . .	80
5.4 Optische Ptychographie . . . . .	81
5.4.1 Messaufbau . . . . .	82
5.4.2 Charakterisierung des Lasers . . . . .	82
5.4.3 Photorefraktive Materialien . . . . .	86
5.4.4 Ein-Zentren-Modell . . . . .	88
5.4.5 Tiefenverlauf in $\text{LiNbO}_3$ . . . . .	90
5.4.6 Dicke Proben . . . . .	99
5.4.7 Zusammenfassung . . . . .	105
5.5 Ausblick . . . . .	107
5.6 Résumé . . . . .	107
<b>6 Ausblick</b>	<b>109</b>
<b>7 Zusammenfassung</b>	<b>111</b>







# Kapitel 1

## Einführung

Seit der Entwicklung des Mikroskops können Objekte untersucht werden, die mit dem bloßen Auge nicht zu erkennen sind. Allen Transmissionsmikroskopen, ganz gleich welche Sonde verwendet wird, ob nun Licht oder gar Elektronen, ist die Verwendung von Linsen zur Abbildung des Objekts gemein. Heutige Lichtmikroskope erreichen die Grenze ihres Auflösungsvermögens  $d$  nach der von Abbe gefundenen Gleichung  $d = \lambda / (2n) \sin(\alpha)$ .  $\lambda$  beschreibt die Wellenlänge des verwendeten Lichtes,  $n$  die Brechzahl des umgebenden Mediums und  $\alpha$  den halben Öffnungswinkels der ersten Objektivlinse. Durch die enorme Weiterentwicklung der optischen Fertigung ist die Linsengröße und damit der Öffnungswinkel der Linse nahezu ausgereizt. Der weiteren Erhöhung der Brechkraft relativ zum umgebenden Medium, wie zum Beispiel durch die Verwendung von optischem Öl oder Linsen aus Rutil mit  $n = 3,1$ , sind enge Grenzen gesteckt. Nur durch das Verkürzen der Wellenlänge sind Auflösungserhöhungen um viele Größenordnungen zu erwarten. Durch Verkürzung der Wellenlänge  $\lambda$  von sichtbarem Licht  $\lambda \approx 500 \text{ nm}$  hin zu Röntgenstrahlen  $\lambda \approx 1 \text{ \AA}$  stößt die Mikroskopie sehr schnell an Begrenzungen technischer Art. Linsen für Licht im sichtbaren Spektrum lassen sich aus Quarzglas oder anderen transparenten Materialien sehr gut herstellen. Im sichtbaren Bereich übersteigt die Brechkraft des Materials um viele Größenordnungen die Absorptionsstärke. Linsen lassen sich somit mit nahezu beliebiger numerischer Apertur herstellen. Im Röntgenbereich ist der Brechungsindex sehr nahe bei 1. Die geringe Abweichung wird durch die Formel  $n = 1 - \delta + i\beta$  beschrieben [1].  $\beta$  und  $\delta$  bezeichnen die Absorption beziehungsweise die Brechkraft des Materials. Der Realteil des Brechungsindex wird durch  $1 - \delta$  berechnet. Für harte Röntgenstrahlung ist  $\delta$  positiv und liegt in der Größenordnung  $10^{-6}$ . Die Brechkraft ist für harte Röntgenstrahlung sehr nahe an der des Vakuums. Da  $\delta > 0$  ist die Brechkraft kleiner als die des Vakuums. Anders als bei sichtbarem Licht ist damit das Material das optisch dünnere Medium. Für Sammellinsen wird deshalb eine konkave Form benötigt. Durch die um mehrere Größenordnungen kleinere Brechkraft liegt die numerische Apertur  $NA$  von Röntgenoptiken im Bereich von  $1 \cdot 10^{-3}$ . Bei  $\lambda = 1 \text{ \AA}$  ergibt sich eine direkte Fokusgröße von etwa  $100 \text{ nm}$  [87]. Damit lassen sich Auflösungen in der selben Größenordnung erreichen [88]. Eine weitere Erhöhung Auflösung erhöht den technischen Aufwand erheblich.

Die schwer herzustellenden röntgenoptischen Elemente werfen die Frage auf, ob Mikroskope auch ohne Linsen funktionieren können. Eine Abbildung in Transmission, Nahfeldab-

bildung genannt, wie sie normalerweise in der Medizin verwendet wird kommt ohne abbildende Optik aus. Durch die direkte Abbildung ist die Bildauflösung durch die Detektorauflösung bestimmt. Bei im Fernfeld gemessenen Bildern entkoppelt die Abbildungsauflösung von der Detektorauflösung [1]. Im Fernfeld ist das Bild aber für den Menschen leider nicht mehr zu interpretieren. Zur Entschlüsselung der Informationen werden computergestützte Rekonstruktionsalgorithmen verwendet [64]. Im Fall von lokalisierten Beugungsreflexen ist der Vergleich mit bekannten Modellen ausreichend. Nicht periodische Objekte sind deutlich aufwendiger zu rekonstruieren. Das Problem der linsenfremen Röntgenmikroskopie liegt in der Messung der Fernfeldbilder. Die Frequenz des elektromagnetischen Feldes ist bei harter Röntgenstrahlung und selbst bei Licht bereits zu hoch um das Lichtfeld in Amplitude und Phase zu vermessen. Es ist demnach lediglich möglich, die Intensität der Strahlung in einem Pixel zu messen, die Phasenlage der Strahlung bleibt verborgen. Das Problem ist bereits seit den Anfängen der Untersuchung mit Röntgenstrahlung bekannt und wird „Phasenproblem“ genannt. Zur Lösung des Phasenproblems sind verschiedene Wege denkbar. Mit der Holographie hat D. Gabor 1948 [29] eine Möglichkeit zur Lösung dieses Problems vorgeschlagen. Dabei werden die Interferenzeigenschaften des Lichts ausgenutzt und Phaseninformation in das messbare Intensitätsprofil übertragen. Aber auch für die Holographie sind optische Elemente notwendig, weshalb die Methode im Röntgenregime extrem schwer zu realisieren ist [24, 82, 22]. Die Methode wird aufgrund der hohen experimentellen Anforderungen nur in sehr speziellen Fällen angewendet. Ein anderes Verfahren zur Lösung des Phasenproblems wurde nach der Entwicklung computergestützter Detektoren vorgeschlagen, die kohärente Beugungsabbildung [31]. Aus dem kirchhoffschen Beugungsintegral geht hervor, dass die Intensität des Fernfeldes auch Informationen über die Struktur der Aperturblende enthält [1]. Es ergibt sich die Frage, ob es möglich ist, ausschließlich mit Hilfe der Intensitätsdaten das Beugungsintegral zu invertieren und so aus den Intensitäten des Fernfeldbildes die komplexe Wellenfunktion innerhalb der Apertur zu bestimmen [27]. Die kohärente Beugungsabbildung (**C**oherent **D**iffraction **I**maging) kann aus einer gemessenen Intensitätsverteilung die komplexwertig Transmissionsfunktion des kohärent beleuchteten Objektes bestimmen [65]. Im Vergleich zur linsengestützten Abbildung im Mikroskop ist der nötige Versuchsaufbau bei Fernfeldabbildung aus Lichtquelle, Objekt und Detektor sehr einfach. Das Fernfeldbild ist allerdings für den Betrachter nicht aussagekräftig und muss durch einen Rekonstruktionsalgorithmus in ein für Menschen verständliches Bild des Objektes umgewandelt werden. Der erste Vorschlag für einen Algorithmus stammt aus dem Jahr 1952 von Sayre [83]. Dabei wird das Feld iterativ an die gemessene Intensitätsverteilung angepasst und an die Randbedingungen der Objektform. Für einen iterativen Algorithmus sind zwei abwechselnd anzuwendende Projektoren notwendig. Der erste Schritt ist die Projektion des Feldes auf die gemessene Intensitätsverteilung. Der zweite Projektor wirkt in der Objektebene. Die Wirkungsebenen der Projektoren sind über das Fresnel-Kirchhoff-Integral verknüpft. Die Projektoren können so alternierend angewendet werden, bis das Wellenfeld in einen stabilen Zustand konvergiert ist. Ein Ergebnis des Rekonstruktionsalgorithmus ist die komplexe Wellenfunktion. Für die Objektebene ist aus der Wellenfunktion sofort die Absorption und der Phasenschub des Objektes ablesbar. Die kohärente Beugungsabbildung liefert beeindruckende Ergebnisse [65, 79],

hat aber zwei wesentliche Einschränkungen. Erstens kann nicht zwischen der Struktur des Objektes und der beleuchtenden Wellenfront unterschieden werden und zweitens muss es isoliert liegen. Ein weiteres Problem ist die fehlende Vorgabe für die Orientierung der Objektwelle. Die verlorenen Phaseninformationen enthalten die Information über die Orientierung und Positionierung des Objektes im Bildfeld. Die CDI rekonstruiert ein komplexes Wellenfeld das die Beleuchtungswellenfunktion nach der Modulation durch das Objekt abbildet. Ohne exakt bekannte Eingangswellenfunktion kann lediglich geraten werden, welche rekonstruierten Strukturen vom Objekt stammen. Die zweite Einschränkung ergibt sich aus der Überlegung zur Informationsmenge. Es stehen  $N \times M$  Pixel im gemessenen Beugungsbild als Informationen zur Verfügung. Für eine komplexe Wellenfunktion derselben Größe mit Real- und Imaginärteil braucht man mindestens  $2 \times N \times M$  Informationseinheiten. Zur eindeutigen Rekonstruktion müssen noch zusätzliche Informationen beschafft werden. Diese Informationen werden beispielsweise eingebracht, indem die Wellenfunktion auf einen Teilbereich des Gesichtsfelds beschränkt wird. Die Umgebung muss also frei von weiteren Objekten sein, damit das Streubild die gemessene Intensitätsverteilung gut beschreiben kann. Die Größe des Objektes ist damit durch die Experimentparameter begrenzt. Sollen größere Objekte abgebildet werden, muss die kohärente Streuabbildung zu einem rasternden Verfahren, Ptychographie genannt, erweitert werden.

Die Ptychographie rastert das gewünschte Gesichtsfeld mit kohärenter Beugungsabbildung ab und rekonstruiert alle Rasterpunkte in einem Prozess. Damit überwindet die Ptychographie das größte Problem von CDI, das begrenzte Gesichtsfeld. Dieser frühe Ptychographiealgorithmus (**P**tychographic **I**terative **E**ngine) setzt das Beleuchtungsfeld als gegeben voraus [80]. Die Rekonstruktion mit mehreren Beugungsbildern, von sich überlappenden Bereichen, konvergiert wesentlich stabiler und schneller [81] als die CDI-Rekonstruktion. Die ursprüngliche fixierte Beleuchtungsfunktion [80] entspricht nicht der wahren Beleuchtung und erzeugt Rekonstruktionsartefakte in der Objektfunktion. Auch dieses Problem kann die moderne Ptychographie lösen, indem gleichzeitig zur komplexen Objektfunktion die Beleuchtungsfunktion rekonstruiert wird [105]. Der erweiterte Algorithmus wird ePIE (**e**xtended **P**tychographic **I**terative **E**ngine) genannt [64]. Es können so alle Strukturen einer der beiden Funktionen zugeordnet werden. Die komplexe Objektfunktion stellt die Absorption und den Phasenschub der Probe dar. Die ebenfalls komplexe Beleuchtungsfunktion bildet die verwendete Sonde ab. Die Rekonstruktion der vollständigen Information der Beleuchtungsfunktion ist ein Alleinstellungsmerkmal der modernen Ptychographie und erlaubt so neben der Mikroskopie, mit höchster Auflösung die Untersuchung des Strahls und der verwendeten optischen Elemente. Mit keiner anderen Methode kann das komplexwertige Wellenfeld so hochauflösend bestimmt werden.

Mein Ziel war eine Auflösung im einstelligen Nanometerbereich mit ptychographischer Bildgebung zu realisieren und das Verfahren routinemäßig nutzbar zu machen. Für die Rekonstruktion war es notwendig, dass Model an die experimentellen Gegebenheiten anzupassen. Dafür wurde das Model so verändert, dass es inkohärente Störstrahlung mit berücksichtigt. Die Anwendbarkeit konnte durch die erhebliche Verkürzung der Laufzeiten verbessert werden. Die technischen Weiterentwicklungen wirken sich auf das Design und den Aufbau des

Röntgenmikroskops an der P06 bei PETRA III in Hamburg aus [87]. Es wurde im Vergleich zum Prototypen am ESRF in Grenoble eine erhöhte Stabilität erreicht und bei der Planung die Nutzung von Strahlfängern vorgesehen. Für die Betrachtung von Störstrahlung in den Beugungsbildern wurde der ePIE Algorithmus um ein Störstrahlungsfeld erweitert [10]. Dieses Feld sammelt alle nicht in das ursprüngliche Modell passende Photonen im Beugungsbild ein und filtert so inkohärente Streuung, zum Beispiel vom Flugweg oder am Beamstop heraus. Für die Verringerung der Rechenzeit habe ich aus einem bestehenden Programmpaket, das eine Grundform des ePIE Algorithmus für die Berechnung auf NVIDIA Graphikkarten implementiert, ein nutzerfreundliches Rekonstruktionsprogramm gebaut, das inzwischen an mehreren Mikroskopen weltweit genutzt wird. Dabei wurden viele bekannte, oder von mir entwickelte Erweiterungen mit eingebaut.

Im Rahmen dieser Arbeit zeige ich vier ausgewählte Experimente. Zur Untersuchung der Dynamik von Katalysatoren und deren Verhalten während der Katalyse stelle ich ein *in-situ* Experiment vor, in dem die quasi-live Bildgebung demonstriert wird [6]. Das Ptychographische Rekonstruktionsprogramm lieferte bereits wenige Sekunden nach Abschluss der Datennahme erste Ergebnisse.

Für die *operando* Analyse von Katalysatoren wird neben der mikroskopischen Materialverteilung auch der Valenzzustand der katalytisch wirkenden Atome benötigt. Solche Informationen konnten bisher nur mit spektroskopischen Methoden mit geringer Ortsauflösung gemessen werden. Es wird der Nachweis geführt, dass mit energieabhängiger Ptychographischer Messungen verschiedene Elemente voneinander unterschieden werden können und die Bestimmung der Valenzzustandes möglich ist [51].

Die Positionierung der Probe relativ zum Strahl, erfordert eine höhere Genauigkeit als die angestrebte Ortsauflösung. Bei einem Experiment am Freie-Elektronen-Laser für harten Röntgenstrahlung in Stanford, USA, wurde die Positionierung durch mechanische Schwingungen gestört [93]. Das Finden der echten Positionen für die Rekonstruktion stellt eine anspruchsvolle Aufgabe dar. Mein Programm kann aus einer minimalen Initialrekonstruktion das Objekt und die Beleuchtung mit der mit den Daten möglichen Auflösung rekonstruieren.

Die einzigartigen Informationen durch den komplexen Brechungsindex des Objekts und zusätzlich dem komplexen Wellenfeld der Beleuchtung, ermöglicht tiefe Einblicke in das Verhalten von Material unter Beleuchtung. Für  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ , als Musterbeispiel für die Photorefraktivität (Veränderung unter Beleuchtung) und Ausgangsmaterial für holographische Datenspeicher, haben wir die für Photorefraktivität charakteristischen Parameter untersucht und das dynamische Verhalten bei der Ladungswanderung abgebildet [10]. Mit optischem Licht wird gezeigt, dass die Trennung von verschiedenen Ebenen innerhalb des Objekts möglich ist. Die Probe kann damit, auch bei parallelem Strahl, dreidimensional dargestellt werden.

# Kapitel 2

## Theoretische Betrachtung

Die für meine Arbeit notwendigen mathematischen Voraussetzungen werden in diesem Kapitel besprochen. Dazu gehören neben dem Abtasttheorem für die Diskretisierung von kontinuierlichen Funktionen (Abschnitt 2.1) auch die Eigenschaften der Fouriertransformation (Abschnitt 2.2). Außerdem werden verschiedene physikalische Begriffe eingeführt. Als eine Beschreibungsform der elektromagnetischen Strahlung werden die ebenen Wellen (Abschnitt 2.3) besprochen. Die Propagation von elektromagnetischen Wellen durch freien Raum besprechen wir in Abschnitt 2.4, die Wechselwirkung mit Materie in Abschnitt 2.5 und den Kohärenzbegriff von Wellenfeldern in Abschnitt 2.7.

### 2.1 Abtasttheorem

Alle in der Natur vorkommende Signale sind analoge und damit kontinuierliche Signale. Die digitale Datenverarbeitung kann auf Grund der Datenstruktur nur mit der diskreten Darstellung von Signalen arbeiten [116]. Die Überführung eines kontinuierlichen Signals in den diskreten Datensatz erfordert das Abtasten des Signals. Die Abtastrate bestimmt die Häufigkeit mit der ein Signal zeitlich oder räumlich abgetastet wird. Die übernommene Informationsmenge hängt direkt von der Frequenz der Abtastrate ab und kann nur Signale mit Frequenzen von weniger als der halben Abtastrate aufnehmen [62].

### 2.2 Fourier-Transformation

Jedes stetige Signal kann in ein kontinuierliches Spektrum zerlegt werden [47]. Die Zerlegung nennt man Fourier-Transformation oder auch Spektralzerlegung. Der zugehörige Raum wird als Fourier- beziehungsweise Spektralraum bezeichnet. Die Zerlegung ist ein Isomorphismus [56] was eine verlustfreie Hin- und Rücktransformation möglich macht. Für ein kontinuierliches Signal  $f(x)$  hat die Transformation  $\mathcal{FT}$  die Form

$$\tilde{f}(k) = \mathcal{FT}[f(x)](k) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2}} \int_{\mathbb{R}^n} f(x) e^{-ikx} dx. \quad (2.1)$$

Das  $n$ -dimensionale Volumenelement  $dx$  durchläuft den gesamten Raum und bildet die Funktion auf den Fourierraum mit gleicher Dimension ab [56]. Die komplexwertige Funktion  $f(x)$  wird in die spektralen Anteile zerlegt [56]. Der Informationsgehalt bleibt bei der Transformation vollständig erhalten, wird aber in anderer Form dargestellt. Die Rücktransformation  $\mathcal{FT}^{-1}$  besitzt die gleiche Form

$$f(x) = \mathcal{FT}^{-1}[\tilde{f}(k)](x) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2}} \int_{\mathbb{R}^n} \tilde{f}(k) e^{+ikx} dk \quad (2.2)$$

mit einem umgekehrten Vorzeichen im Exponenten der Exponentialfunktion.

Ist die Funktion auf einen beschränkten Raumbereich begrenzt, ergeben sich diskrete Frequenzbeiträge [47]. Die diskreten Werte sind nicht mit diskreten Messwerten zu vergleichen, viel mehr besitzt das Spektrum auf Grund der endlichen Ausdehnung nur diskrete Werte. In dieser Arbeit wird mit diskreten Feldern (Matrizen) gearbeitet, die auf Grund der diskreten Struktur sind nicht mit der kontinuierlichen Form transformieren lassen. Die Fourierzerlegung muss hierfür in eine diskrete Form überführt werden. Die kontinuierliche Integration einer Fouriertransformation  $\mathcal{FT}$  wird zur Summation diskreter Beiträge der diskreten Fouriertransformation  $D\mathcal{FT}$ . Für diskrete Vektoren der Länge  $N$  ergibt sich aus (2.1) die Form

$$\tilde{a}_k = D\mathcal{FT}[a_j]_k = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{j=0}^N a_j e^{-i2\pi \frac{jk}{N}}. \quad (2.3)$$

Der Zielvektor  $\tilde{a}_k$  besitzt die selbe Dimension  $N$  wie der Ausgangsraum von  $a_j$ . Die inverse Propagation besitzt die gleiche Struktur, aber wieder mit positivem Vorzeichen in der Exponentialfunktion:

$$a_j = D\mathcal{FT}^{-1}[\tilde{a}_k]_j = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k=0}^N \tilde{a}_k e^{+i2\pi \frac{jk}{N}}. \quad (2.4)$$

Für die Rekonstruktion in der Ptychographie müssen Matrizen transformiert werden. Die diskrete Fouriertransformation einer 2-dimensionalen Struktur der Dimension  $N \times M$  stellt sich als Doppelsumme

$$\tilde{a}_{kl} = D\mathcal{FT}[a_{uv}]_{kl} = \frac{1}{\sqrt{MN}} \sum_{u=0}^N \sum_{v=0}^M e^{-i2\pi(\frac{uk}{N} + \frac{vl}{M})} a_{uv} \quad (2.5)$$

dar. Die inverse Transformation bildet sich Analog zur 1D Variante ((2.3) wird zu (2.4)) mit positivem Vorzeichen im Exponenten der Exponentialfunktion.

## 2.3 Ebene Welle

Elektromagnetische Strahlung kann sowohl durch Teilchen, als auch als Welle dargestellt werden [23]. Aus der Elektrodynamik ist die Wellennatur des Lichts abgeleitet, welche in dieser



Arbeit hauptsächlich verwendet wird [11]. Die Teilchennatur wird bei der Photonendetektion am Detektor berücksichtigt. Ist der Ursprungspunkt der Welle ein Punkt, so breitet sich diese als Kugelwelle aus. Der Krümmungsradius der Welle entspricht dabei dem Abstand bis zur Quelle. Für sehr große Abstände zur Quelle verschwindet die Krümmung der Wellenfront. Es ergibt sich eine ebene Wellenfront. Zur Beschreibung der ebenen Welle eignet sich eine komplexe Funktion

$$W(x, y) = A(x, y)e^{i\phi(x, y)} \quad (2.6)$$

die durch 2 Felder bestimmt wird. Die Amplitude der Welle  $A$  und der Phase im Exponent  $\phi$ . Dabei können beide Kenngrößen von den Koordinaten  $(u, v)$  abhängen. Ebene elektromagnetische Wellen breiten sich mit konstanter Lichtgeschwindigkeit  $c$  aus und haben für den Phasenwert  $\phi$  die Form

$$\phi(\vec{r}, t) = \omega t + \vec{k}\vec{r}. \quad (2.7)$$

Die Kreisfrequenz  $\omega = 2\pi f$  wird durch Frequenz  $f$  und damit durch die Energie der Strahlung  $E = hf$  festgelegt. Der Wellenvektor  $\vec{k}$  definiert die Ausbreitungsrichtung und ist maßgeblich durch die Wellenlänge  $\lambda$  bestimmt ( $|\vec{k}| = 2\pi/\lambda$ ). Der Zusammenhang zwischen Energie der Welle  $E$ , der Frequenz der Strahlung und der Wellenlänge ist durch die Dispersionsrelation  $f\lambda = c$  festgelegt [11].  $h$  entspricht dem planckschen Wirkungsquantum. Die Amplitude gibt die Stärke der Welle an. Im Teilchenbild des Lichts entspricht die Intensität  $I = |A|^2$  der Photonenzahl in der Wellenmode. Für echte ebene Wellen ändert sich die Photonendichte nicht. Daher muss die Amplitude als konstant angenommen werden. Das Wellenfeld ist damit auch unendlich ausgedehnt. Photonen besitzen eine weitere Eigenschaft, die Polarisation. Die elektromagnetische Strahlung ist eine transversale Schwingung und damit immer senkrecht zur optischen Achse  $\vec{k}$  [11]. Ist diese Schwingungsrichtung ausgerichtet, spricht man von polarisierter Strahlung. Die Polarisation  $\vec{p}$  beschreibt damit maßgeblich die Vektoreigenschaft der Strahlung:

$$\vec{W}(\vec{r}, t) = \vec{p}Ae^{i(\omega t + \vec{k}\vec{r})}. \quad (2.8)$$

Der Einfachheit halber betrachten wir hier  $\vec{k} \parallel x$ . Daraus ergibt sich für die ebene Welle

$$\vec{W}(x, t) = \vec{p}Ae^{i(\omega t + kx)}. \quad (2.9)$$

Die Propagation von ebenen Wellen lässt sich einfach berechnen, da die analytische Feldverteilung bekannt ist. Bei Wellenfeldern, von denen die Feldverteilung nur numerisch bekannt ist, wird die Propagation mit dem Beugungsintegral berechnet.

## 2.4 Wellenfeldpropagation

Wellenfelder verändern sich entlang der Ausbreitungsrichtung  $x$  leicht vorhersagbar. Die Berechnung des Wellenfeldes  $\vec{W}(x, u, v)$  kann mit Hilfe des Beugungsintegrals von Kirchhoff

ausgeführt werden [11]

$$\tilde{W}(x, u, v) = \frac{1}{i\lambda} \iint P(0, y, z) \frac{e^{ikr}}{r} \cos(\Theta) dydz \quad (2.10)$$

$$r = \sqrt{x^2 + (u - y)^2 + (v - z)^2}. \quad (2.11)$$

$\lambda$  bezeichnet die Wellenlänge der Strahlung und  $r$  den Abstand zwischen den Punkten im Ausgangs- und Zielraum. Der Wellenvektor  $\vec{k} = 2\pi/\lambda \vec{e}_k$  zeigt bei dieser Nomenklatur entlang der  $x$ -Achse. Die exakte Berechnung mit Lösung eines Doppelintegrals in (2.10) ist numerisch auf Grund der vielen Datenzugriffe für Computersysteme sehr aufwendig. Die Propagation läuft dabei entlang der  $x$ -Achse des Systems. Für große Abstände tragen jedoch nur kleine

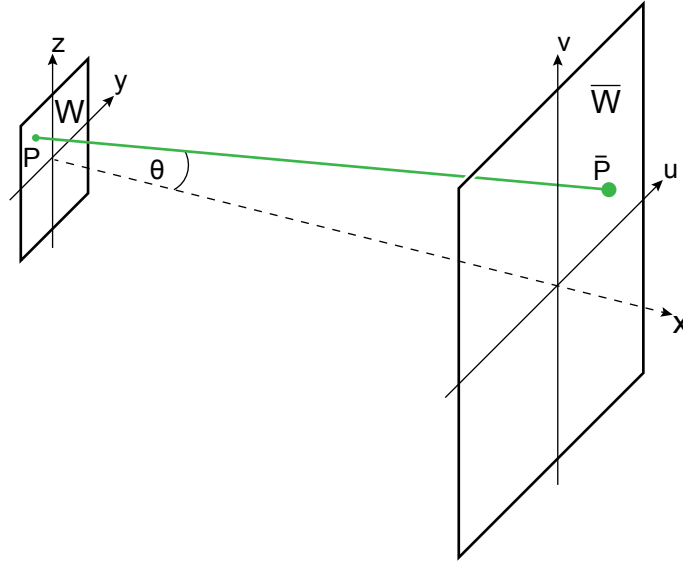


Abbildung 2.1: Das Feld  $W$  wird entlang der optischen Achse um den Wert  $x$  propagiert. Das Wellenfeld im Punkt  $\bar{P}(x, u, v)$  der gebeugten Welle entspricht der Summe aller gewichteten Beiträge der Punkte  $P(0, y, z)$  der Ausgangswelle.

Winkel  $\Theta$  zum Ergebnis bei. Diese Näherung wird paraxiale Näherung, oder Kleinwinkelnäherung, genannt [11]. Für sehr große Abstände vereinfacht sich damit die Propagation

$$\tilde{W} = \mathcal{FT} [W] \quad (2.12)$$

zu einer einfachen Fouriertransformation [11]. Hierbei sind Abstände als sehr groß angenommen, wenn die zugehörige Kenngröße, die Fresnelzahl

$$F = \frac{a^2}{L\lambda}, \quad (2.13)$$

viel kleiner 1 ist.  $\lambda$  bezeichnet die Wellenlänge der Strahlung und  $L$  die Propagationsdistanz. Die Größe  $a$  entspricht der charakteristischen Größe des Wellenfeldes, beispielsweise der

Durchmesser einer Scheibe oder die Halbwertsbreite (FWHM) einer Gaußverteilung. Für Fresnelzahlen von der Größenordnung 1 muss die weniger stark genäherte Fresnel-Lösung genutzt werden [11]. Eine Variante dieser Näherung ist die Berechnung als Fouriertransformation mit je einer komplexen Multiplikation davor und danach. In Operatorschreibweise stellt sich die Transformation folgendermaßen dar

$$\tilde{W} = K_2 * \mathcal{FT} * K_1 \quad (2.14)$$

$$K_1 = e^{i\frac{\pi}{\lambda x}(y'^2+z'^2)} \quad (2.15)$$

$$K_2 = -i \operatorname{sign}(x) e^{i\frac{\pi}{\lambda x}(y^2+z^2)}. \quad (2.16)$$

Die Propagation läuft entlang der  $x$ -Achse des Systems und der Ausdruck  $\operatorname{sign}(x)$  gibt die Richtung der Propagation an. Dabei ist zu beachten, dass die Koordinaten in (2.15) der Ursprungsebene entsprechen und für Kernel  $K_2$  den Koordinaten der Zielebene verwendet werden müssen.

Interagiert ein Wellenfeld mit Materie können die beiden Kenngrößen des Feldes verändert werden. Absorption oder Emission des Materials beeinflussen die Amplitude des Feldes. Zudem kann durch die Interaktion ein Phasenschub gegenüber der ungestörten Ausbreitung verursacht werden. Die Wechselwirkung wird über die physikalische Kenngröße, den komplexen Brechungsindex im Material, beschrieben.

## 2.5 Wechselwirkung mit Materie

Die Wechselwirkung mit Materie kann in zwei Arten eingeteilt werden. Auf der einen Seite steht die elastische Wechselwirkung ohne Energieveränderung der Strahlung. Ein Beispiel dieser Art ist die Rayleigh-Streuung [120] von Licht an Teilchen, die kleiner sind als die Wellenlänge. Diese Effekte können Interferenzen erzeugen und sind weiterhin kohärent. Inelastische Streuung mit Energieübertrag, wie die Raman-Streuung [77] oder der Compton Effekt [16], sind inkohärent. Die veränderte Energie lässt bei der Propagation keine konstante Phasenbeziehung zu, wodurch diese Effekte keine Interferenzen erzeugen können. Für kohärente Abbildungsverfahren sind demnach nur elastische Streuprozesse innerhalb eines Kohärenzvolumens im Bereich der Probe zu betrachten. Inkohärente Streuung heißt Streuung mit Energieübertrag oder solche, die außerhalb des Kohärenzvolumens liegt. Diese werden auf dem Detektor als störende Signale gemessen. Für die Abbildung des Objekts ist nur die kohärente Streuung am Objekt von Interesse und wird in diesem Abschnitt als makroskopische Wechselwirkung eingeführt.

Die Interaktion wird dabei als Multiplikation des Wellenvektors  $k$  mit dem komplexen Brechungsindex  $\tilde{n} = n + in_i$  dargestellt,

$$\vec{W}(x, t) = \vec{p}A e^{i(\omega t + \tilde{n}kx)}. \quad (2.17)$$

Bei der Ausbreitung der Welle in einem Medium

$$\vec{W}(x, t) = \vec{p}A \underbrace{e^{-n_i kx}}_{\text{Absorption}} \underbrace{e^{i(n-1)kx}}_{\text{Phasenschub}} e^{i(\omega t + kx)} \quad (2.18)$$

erzeugt der imaginäre Anteil des Brechungsindex eine Absorption der Welle und der Realteil einen zusätzlichen Phasenschub. Die beiden zusätzlichen Anteile sind nur von der Flächendichte abhängig, vorausgesetzt es gibt keine Beugungseffekte des Lichts innerhalb des Materials. Bei geringer Materialdicke kann der Interaktionsterm durch einen komplexen Faktor

$$O = \text{Abs} \cdot e^{i\phi} \quad (2.19)$$

beschrieben werden. Der Faktor  $\text{Abs} = e^{-n_i kd}$  entspricht dabei der Absorption bei der Materialdicke  $d$  und  $\phi = (n-1)kd$  dem erzeugten Phasenschub gegenüber ungestörter Ausbreitung. Die Interaktion einer Welle  $W(x, y, z, k_x, \omega)$  mit dem Material  $O$  wird durch eine komplexe Multiplikation

$$W = W_0(x, y, z) \cdot O(y, z) \quad (2.20)$$

berechnet.

Für harte Röntgenstrahlung wird der komplexe Brechungsindex

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (2.21)$$

durch zwei kleine Größen beschrieben. Die Form  $1 - \delta$  erklärt sich aus der Form des Phasenterms in Gleichung (2.18). Damit ergibt sich für den Phasenterm  $P$  und die Transmission  $T$ :

$$P = e^{i\delta kd} \quad (2.22)$$

$$T = e^{-\beta kd} \quad (2.23)$$

Der aus dem Phasenterm  $P$  berechnete Winkel  $\phi = \delta kd$  bestimmt die Änderung der Materialdicke  $d$  oder des Brechungsindex  $\Delta n$ .

Sowohl in der Amplitude, als auch in den Phasenwerten der gestreuten Strahlung sind Strukturinformationen über das Objekt enthalten. Im Fernfeld sind diese Informationen zerlegt in ihre spektralen Anteile. Dabei ist die durch die jeweiligen Beiträge repräsentierte Strukturgröße abhängig vom Impulsübertrag  $q$  während der Wechselwirkung. Für höhere Auflösungen müssen Intensitäten, beziehungsweise Amplituden, mit höheren Impulsüberträgen  $q$  gemessen werden [52]. Der Streuquerschnitt  $\sigma$  fällt jedoch zu großen Winkeln/Impulsüberträgen hin stark ab. Die Abhängigkeit des Streuquerschnitts vom Impulsübertrag besitzt für generische kugelförmige Objekte den Zusammenhang:

$$\sigma \propto q^{-3.7} \quad (2.24)$$

Die Erhöhung der Auflösung durch Messung von Streuinformationen bei höheren Impulsüberträgen ist damit nur schwer möglich. Neben der Begrenzung durch die zur Verfügung stehende Photonenzahl und der Messzeit ist auch die Strahlungsfestigkeit vieler Proben eng begrenzt.

## 2.6 Kramers-Kronig-Relation

Für jedes Material kann der Brechungsindex aus den Bindungseigenschaften der Elektronen abgeleitet werden [11]. Real- und Imaginärteil des komplexen Brechungsindex sind dabei nicht unabhängig voneinander. Die Beziehung zwischen den beiden Komponenten definiert die Kramers-Kronig-Relation [106]. Der reelle Anteil des Brechungsindex

$$\delta(\omega) = \frac{1}{\pi} \cdot \text{CH} \int_0^\infty \frac{\Omega \cdot \beta(\Omega)}{\Omega^2 - \omega^2} d\Omega \quad (2.25)$$

kann aus dem Verlauf des Absorptionsanteils berechnet werden [55]. Die Größe  $\Omega$  bezeichnet die Kreisfrequenz und damit Energieabhängigkeit des Integranden. Die Berechnung des imaginären Anteils aus dem Phasenschub ist ebenso möglich [36]. Die Messwerte verschiedener Verfahren können so direkt ineinander überführt und verglichen werden.

## 2.7 Kohärenz

Bildgebende Verfahren, die aus dem Fernfeld das Objekt orts aufgelöst bestimmen können, verwenden kohärentes Licht [27, 80]. Kohärenz bedeutet, das Licht muss sich gleichartig ausbreiten [11]. Dabei ist die Kohärenz keine Eigenschaft, die das Licht besitzt oder nicht, sondern Licht besitzt eine Kohärenzlänge. Als Kohärenzlänge bezeichnet man dabei den Abstand für den sich die Phasenlage maximal um  $2\pi$  ändert. Es gibt 2 Arten von Kohärenz: transversale und longitudinale Kohärenz.

Als longitudinale Kohärenzlänge  $l_{cl}$  bezeichnet man eine Länge parallel zur Ausbreitungsrichtung, auf der sich die Phasenlage bei Propagation mit verschiedenen Wellenlängen, beziehungsweise Energie um  $2\pi$  ändert. Dabei spielt die Energie der Strahlung die entscheidende Rolle. Die longitudinale Kohärenzlänge kann durch einen Monochromator gesteigert werden. Durch Eingrenzen des Spektrums wird der Gangunterschied pro Länge verringert und die longitudinale Kohärenzlänge damit erhöht. Für  $l_{cl}$  ergibt sich

$$l_{cl} \approx \lambda \frac{E}{\Delta E} \quad (2.26)$$

aus der Energie  $E$  und der Energiebreite  $\Delta E$  der Strahlung [11].  $\lambda$  bezeichnet die mittlere Wellenlänge.

Die typische Energiebreite eines Si-Monochromators für harte Röntgenstrahlung liegt bei  $\Delta E/E = 10^{-4}$ . Daraus ergibt sich bei  $E = 12,4 \text{ keV}$ ,  $\bar{\lambda} = 1 \text{ \AA}$  eine Kohärenzlänge von  $l_{cl} = 1 \text{ \mu m}$ . Für optische Laserstrahlung erreichen die Kohärenzlängen Strecken im Kilometerbereich.

Die transversale Kohärenzlänge  $l_{ct}$  wird senkrecht zur Ausbreitungsrichtung gemessen und ist maßgeblich durch die Quellgröße bestimmt. Für eine gaußförmige Quelle ergibt sich nach Patommel [1, 74]

$$l_{ct} = 0.88 \frac{\lambda L}{S}. \quad (2.27)$$

Die Kohärenzlänge der Strahlung  $l_{ct}$  einer quasi monochromatischen Quelle ist damit direkt proportional zur Wellenlänge  $\lambda$  und der Entfernung  $L$  zur Quelle. Der Wert  $S$  repräsentiert die Halbwertsbreite der Quelle. Der Vorfaktor 0.88 ergibt sich für eine gaußische Quelle [11]. Durch Veränderung des Strahls mit optischen Elementen kann demnach die Kohärenzlänge nicht erhöht werden. Einzig ein vergrößerter Abstand zur Quelle ist möglich.

Für eine typische Synchrotronquelle ( $\lambda = 1 \text{ \AA}$ ) mit einigen Mikrometern Quellgröße ( $S = 10 \text{ }\mu\text{m}$ ) und  $L = 100 \text{ m}$  Abstand zur Quelle ergibt sich daraus ein Kohärenzlänge von  $l_{ct} = 880 \text{ }\mu\text{m}$ . Bei Laserquellen mit optimierten Resonatoren und damit optimierter Quelle ist die ausgehende Wellenfront wohl definiert. Dieser Zustand ermöglicht transversale Kohärenzlängen von einigen Kilometern.

Die beiden Längen  $l_{cl}, l_{ct}$  definieren ein Volumen  $V_c = l_{cl} \times l_{ct} \times l_{ct}$ , Kohärenzvolumen genannt, in dem Interferenzen entstehen können. Dabei gibt es nicht einen Punkt um den herum das Kohärenzvolumen besteht, vielmehr kann kohärente Überlagerung zwischen Wellenteilen nur stattfinden, wenn die Wellenfronten sich innerhalb des selben Kohärenzvolumens befinden.

# Kapitel 3

## Ptychographie

Im Folgenden wird die Ptychographie als neuartiges Mikroskopieverfahren im Detail vorgestellt. Zu Beginn werden die bekannten Algorithmen erläutert und anschließend die von mir eingefügten Erweiterungen besprochen. Der erste Abschnitt befasst sich mit dem der Ptychographie vorausgehenden Verfahren der kohärenten Beugungsabbildung. Anschließend werden die für die ptychographische Rekonstruktion zur Verfügung stehenden Messwerte und alle weiteren bekannten Daten besprochen. Im Abschnitt 3.3 beschreibe ich den Algorithmus zur Interpretation der Daten und im Anschluss in Abschnitt 3.4 wird eine ptychographische Iteration in 5 Teilschritte zerlegt. Es werden im Kapitel 3.5 beispielhaft bereits veröffentlichte Erweiterungen des Standardalgorithmus besprochen, im Abschnitt 3.5.3 die Erweiterung für einen inkohärenten Hintergrund beschrieben.

### 3.1 Einführung

Der Vorläufer der Ptychographie ist die kohärente Beugungsabbildung. Bei der Entwicklung der kohärenten Beugungsabbildung werden die grundlegenden Verfahren und Begriffe für die Ptychographie entwickelt, so dass dieses Verfahren zuerst dargestellt wird. Im Rahmen der Darstellung werden die durch die Ptychographie gelösten Probleme der kohärenten Beugungsabbildung aufgezeigt.

#### 3.1.1 Kohärente Beugungsabbildung

Die kohärente Beugungsabbildung (**C**oherent **D**iffraction **I**maging) ist eine indirekte Vollfeldmikroskopiemethode mit der das Phasenproblem gelöst wird [27]. Dieses entsteht, da mit den Detektoren lediglich die Intensität der komplexen, kohärenten gebeugten Welle gemessen werden kann. Vollfeld bedeutet, dass der gesamte Gesichtsbereich mit einer einzigen kohärenten Beleuchtung in einer Aufnahme abgebildet wird. Das Objekt wird mit einer homogenen ebenen Beleuchtung abgebildet und die Intensitätsverteilung im Fernfeld mittels eines Flächendetektors gemessen, skizziert in Abbildung 3.1. Da die gemessene Intensitätsverteilung

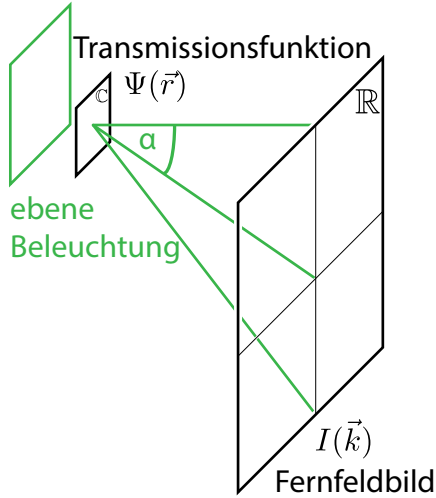


Abbildung 3.1: Ein kohärentes Beugungsexperiment besteht aus einem homogen beleuchteten Objekt, einer freier Propagationsstrecke zum Erreichen des Fernfeldes und einem Flächen-detektor. In der Probe wechsel-wirkt die Beleuchtung mit dem Objekt. Die so entstandene kohärente Streuung  $\Psi(\vec{r})$  propagiert bis zum Detektor ins Fernfeld  $I(\vec{k})$ .

$I(\vec{k})$  eine Darstellung der Transmissionsfunktion des Objektes  $\Psi(\vec{r})$  im Fourier-Raum ist,

$$I(\vec{k}) = \left| \mathcal{P}[\Psi(\vec{r})](\vec{k}) \right|^2 \quad (3.1)$$

muss diese geeignet in den Real-Raum übersetzt werden, um das Objekt zu erhalten. Die Wechselwirkung innerhalb des Objektes ist dabei nicht genauer spezifiziert. Zur Wiederherstellung der verloren gegangenen Phaseninformationen wird ein iterativer Algorithmus verwendet. Als Abweichung zwischen dem gemessenen Daten und dem rekonstruierten Wellenfeld  $\Psi(\vec{r})$  wird die Fehlersumme

$$E = \sum_{u,v} \left[ \left| \tilde{\Psi}(\vec{k}) \right|^2 - I(\vec{k}) \right] \quad (3.2)$$

verwendet.

Notwendig ist dieses Verfahren, um die Auflösung des rekonstruierten Bildes von der Pixelgröße des verwendeten Detektors zu entkoppeln. Möglich ist die Entkopplung durch die Messung des Wellenfeldes im Fernfeld. Dabei gibt nicht die Größe der Detektorpixel die erreichbare Auflösung vor, sondern der größte Beugungswinkel unter dem noch Photonen gemessen werden. Bilder die in einer Ebene im Fernfeld aufgenommen werden, nennt man Fernfeldbeugungsbilder. Bei dem Messprozess kann ausschließlich die Intensität des Wellenfeldes gemessen werden, nicht jedoch die Phasenlage. Die fehlenden Phaseninformationen machen eine direkte Rückrechnung des Feldes in die Objektebene unmöglich. Ziel der Auswertung ist die komplexwertige Transmissionsfunktion des Objektes zu berechnen. Daraus lassen sich, unter Annahme einer homogenen flachen Beleuchtung, verschiedene Objekteigenschaften extrahieren. Die Rekonstruktion wird vielfach durchgeführt. Bei jeder Rekonstruktion startet der Algorithmus mit einem zufällig gewählten Objekt und passt das Objekt iterativ an, so dass die gemessenen Intensitäten und die Randbedingungen in der Objektebene optimal beschrieben werden. Aus den vielen Rekonstruktionen werden die mit den niedrigsten



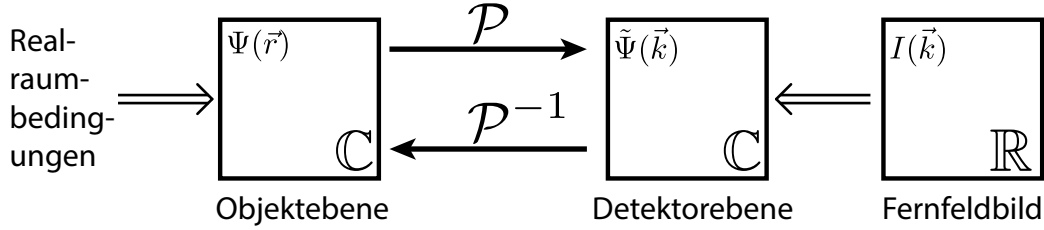


Abbildung 3.2: Zur Rekonstruktion der komplexwertigen Transmissionsfunktion wird wechselseitig zwischen Objekt- und Detektorebene, mittels eines Propagators  $\mathcal{P}$ , hin und zurück propagiert. Bei jeder Iteration wird in beiden Ebenen die Wellenfunktion an die entsprechende Randbedingung angepasst. Durch iteratives Anwenden der Einschränkungen wird eine konsistente Lösung des Phasenproblems errechnet und so das Wellenfeld rekonstruiert.

Fehlerwerten ausgewählt und dann nur diese weiterverwendet. Der iterative Algorithmus propagiert dabei das Wellenfeld zwischen der Objektebene, dem Realraum, und der Detektorebene, dem Fourierraum, hin und her. Bei jeder Anpassung wird das Wellenfeld an die Randbedingungen der jeweiligen Ebene angepasst. Im Fourierraum legen die Messwerte die Amplitude des Wellenfeldes fest. Die Pixelzahl des komplexen Wellenfeldes entspricht, bei der Propagation mittels diskreter Fouriertransformation, der Pixeldimension der gemessenen realwertigen Intensitätsverteilung. Damit enthält die Wellenfunktion pro Pixel zwei Freiheitsgrade (Amplitude und Phase) für jeden gemessenen Intensitätswert. Die Menge der gemessenen Informationen ist damit gerade halb so groß wie die Freiheitsgrade des Wellenfeldes. Für eine stabile Rekonstruktion muss die Zahl der Freiheitsgrade deutlich kleiner sein als die gemessene Informationsmenge. Dafür müssen zusätzliche Einschränkungen in der Objektebene getroffen werden. Die Einschränkungen in der Objektebene müssen die zu rekonstruierenden Freiheitsgrade soweit verringern, dass das sich ergebende Gleichungssystem durch die gemessenen Intensitäten überbestimmt ist. Die gängigste ist die Beschränkung des Objekts auf einen Teil des Gesichtsfeldes in der Objektebene. Das Objekt muss dafür isoliert platziert sein. Bereiche neben dem Objekt werden als leer angenommen und reduzieren so die Zahl der Freiheitsgrade. Außerdem kann, durch Festlegen auf einen reinen Absorber oder auf ein transparentes Phasenobjekt, die Zahlen der Freiheitsgrade halbiert werden. Ist das System nicht mehr unterbestimmt, sind also mehr Messwerte als Freiheitsgrade vorhanden, kann die verlorene Phaseninformation wieder hergestellt werden. Die zur Verfügung stehenden Kleinwinkelstreuinformationen definieren in der von Abbe beschriebenen Weise die kleinste auflösbare Struktur. Dabei definiert die numerische Apertur  $NA = n \sin \alpha$ , gemeinsam mit der Wellenlänge  $\lambda$  und dem Brechungsindex  $n$  die Pixelgröße in der Objektebene

$$px_{\text{Obj}} = \frac{\lambda}{nNA} = \frac{\lambda}{n \cdot \sin(\alpha)} \quad (3.3)$$

$$= \frac{\lambda L}{nNpx_{\text{Det}}}. \quad (3.4)$$

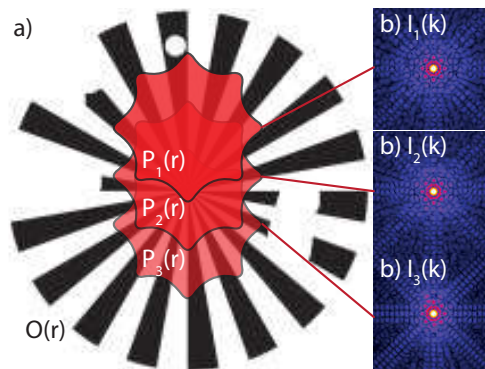
Die Pixelgröße ergibt sich damit direkt aus der Geometrie des Experiments und der Energie

der Strahlung. Der Beugungswinkel  $\alpha$  wird aus der Breite des Detektors  $Npx_{\text{Det}}$  und dessen Abstand zur Objektebene  $L$ , sowie der Wellenlänge im Medium  $\lambda/n$  berechnet. Die numerische Apertur kann in Luft ( $n \approx 1$ ) mit Hilfe der Fraunhofer-Näherung ( $\text{NA} = n \cdot \sin \alpha \approx \alpha$ ) vereinfacht werden. Der Winkel  $\alpha$  ergibt sich dann aus der Detektorgröße  $Npx_{\text{Det}}$  und dem Abstand Objekt-Detektor  $L$ . Verwendet man also einen Detektor mit größeren Pixeln, erhöht die Strahlungsenergie, oder verringert die Entfernung zwischen Objekt und Detektor, steigt die messbare numerische Apertur und damit auch die maximal erreichbare Auflösung. Das heißt die Pixel im Objekt werden kleiner. Im gleichen Maße wie die Pixelgröße verringert sich dabei auch das Gesichtsfeld. Des Weiteren muss beachtet werden, dass das komplette Objekt innerhalb des Beleuchtungsfeldes liegt und trotzdem genügend leere Pixel vorhanden sind oder anders gesagt das Beugungsbild muss entsprechend dem Abtasttheorem, aus Abschnitt 2.1, ausreichend überabgetastet ist. Außerdem muss für die Abbildung des Objektes die Fernfeldnäherung gültig sein. Für ein typisches Experiment mit Röntgenstrahlung ergibt sich damit bei einer Photonenenergie von 19,37 keV, 2 m Abstand des Detektors vom Objekt und einem Detektor mit  $256 \times 256$  quadratischen Pixeln, jedes mit einer Kantenlänge von 100  $\mu\text{m}$ , in der Objektebene eine Kantenlänge pro Pixel von 5 nm. Das Gesichtsfeld, bestehend aus  $256 \times 256$  Pixeln, betrachtet in dieser Geometrie ein Quadrat mit 1,25  $\mu\text{m}$  Kantenlänge. Dieses Gesichtsfeld wird durch die Realraumbedingungen weiter beschränkt, und trotz der hinzugefügten Einschränkung ist die Lösung nicht eindeutig. Ist der freigelassene Bereich größer als das eigentliche Objekt, ist die Position innerhalb des Bereichs nicht festgelegt und auch die Orientierung ist bei Phasenobjekten nicht eindeutig. Das Verfahren kann somit die Objektauflösung von der Detektorauflösung entkoppeln, leidet aber stark unter den Schwierigkeiten bei der Interpretation. Die Rekonstruktion ist instabil und besitzt mehrere entartete Lösungen. Außerdem muss das Objekt vollständig isoliert liegen und klein gegenüber dem Gesichtsfeld sein. All diese Probleme lassen sich durch rasternde kohärente Beugungsabbildung, genannt Ptychographie, lösen.

### 3.1.2 Ptychographie

Die Ptychographie verbindet die kohärente Beugungsabbildung mit einem rasternden Verfahren und kann so die großen Probleme der CDI lösen. Durch die Beugungsabbildung können ebenso Vorteile gegenüber der konventionellen Mikroskopie erreicht werden. Mit dem Begriff Mikroskopie wird konventionelle Vollfeldmikroskopie unter Absorptionskontrast benannt. Für Objekte ohne nennenswerte Absorptionsvariationen ist die konventionelle Vollfeldmikroskopie daher nicht geeignet. Es gibt eine Reihe von Verfahren zur Untersuchung solcher Proben. Dabei können aber nur mit sehr begrenzter lateraler Auflösung absolute Werte für die untersuchten Materialeigenschaften bestimmt werden. Diese Probleme der herkömmlichen Mikroskopie wird mit der Ptychographie überwunden. Die ptychographische Bildgebung ist ein indirektes, rasterndes Abbildungsverfahren und kann als Erweiterung der kohärenten Beugungsabbildung verstanden werden. Der Unterschied zur kohärenten Beugungsabbildung liegt im Abrastern der Probe und einem damit frei wählbaren Gesichtsfeld. Die Realraumbedingungen unterscheiden sich erheblich von denen der CDI.

Abbildung 3.3: a) Das Objekt, ein schwarz-weißer Stern, wird an verschiedenen Rasterpunkten (1, 2, 3) mit der Beleuchtungsfunktion  $P(\vec{r})$ , dem roten Stern, bestrahlt. Die Beleuchtungspositionen sind nahe beieinander und überlappen sich zu großen Teilen. Benachbarte Rasterpunkte beleuchten so zum großen Teil den selben Objektbereich. Der Überlappungsbereich benachbarter Beleuchtungsfunktionen führt zu einem überbestimmten Gleichungssystem und sehr ähnlichen Beugungsbildern b)  $I_1(\vec{k}), I_2(\vec{k}), I_3(\vec{k})$ . Die Überbestimmung ermöglicht die Aufspaltung der Transmissionsfunktion  $\Psi(\vec{r})$  in Beleuchtung  $P(\vec{r})$  und Objekt  $O(\vec{r})$ .



Bei der Ptychographie wird das Objekt mit einem begrenzten Strahl abgerastert. In diesem Punkt unterscheidet sich die kohärente Beugungsabbildung, bei der von einer homogenen Beleuchtung ausgegangen wird. Aus dem Set an Beugungsbildern wird mit Hilfe eines computergestützten Algorithmus das komplexwertige Beleuchtungsfeld und die komplexwertige Transmissionsfunktion des Objekts bestimmt. Bei der Ptychographie wird ein Set an Beugungsbildern genutzt, nicht nur ein einzelnes wie bei der CDI. Ein einzelnes Intensitätsbild verspricht eine extrem schnelle Messung, andererseits hat die geringe Datengrundlage aber einen großen Aufwand bei der Rekonstruktion zur Folge. Für die Ptychographie ist durch die vielen Fernfeldbilder die Rekonstruktion deutlich vereinfacht. Bei der CDI existiert außerdem für die Transmissionsfunktion ein Satz entarteter, gleichwertiger Lösungen. Außerdem kann nicht zwischen Beleuchtungsvariationen und Objektstrukturen unterschieden werden. All diese Probleme werden durch die Ptychographie gelöst. Zusätzlich ist die ptychographische Rekonstruktion durch die weit größere Überbestimmung erheblich robuster gegenüber Fehlern wie Rauschen in den Intensitätsverteilungen. Ein rasterndes Verfahren stellt jedoch viel höhere Ansprüche an die mechanische Stabilität und die größere Datenmenge benötigt eine leistungsstarke Rechentechnik.

## 3.2 Daten

Für eine ptychographische Abbildung wird das gewählte Gesichtsfeld mit dem begrenzten Strahl abgetastet und an jedem Rasterpunkt wird die Intensitätsverteilung im Fernfeld mit einem Flächendetektor gemessen. Aus der Gesamtheit aller Beugungsbilder lassen sich, zusammen mit den Informationen über die Experimentgeometrie, die gewünschten Felder für Beleuchtung und Objekt rekonstruieren. Die Rasterpunkte müssen so gewählt werden, dass benachbarte Punkte einen relevanten Überlappungsbereich der Beleuchtungsintensität haben. Als Optimum sind dabei 60 % bis 80 % Überlapp des beleuchteten Bereichs gefunden worden [26]. Diese Nebenbedingung ist essentiell für die ptychographische Rekonstruktion. Die Überlappung gewährleistet dass die benachbarten Beleuchtungspunkte teilweise den gleichen Objektbereich beleuchten und nicht an jedem Rasterpunkt voneinander unabhängige kohärente Beugungsabbildungen stattfinden. Die Überlappung übernimmt damit die Aufgabe der Realraumbeschränkung aus der kohärenten Beugungsabbildung. Das Objekt wird

im gesamten Rasterbereich mehrfach abgetastet. In Abbildung 3.3 a) ist dieser Effekt für 3 beispielhafte Beleuchtungspunkte dargestellt. Die Beleuchtung ist als roter sternförmiger Bereich dargestellt. Bereiche die mehrfach beleuchtet und damit abgetastet werden, bekommen ein satteres Rot. Das sich ergebende Gleichungssystem zur Rekonstruktion des Objektes ist damit überbestimmt und ermöglicht so die Aufteilung in Objekt und Beleuchtungsfeld. Leicht zu sehen ist die Überbestimmung und die damit einhergehende Ähnlichkeit der Intensitätsverteilungen den dargestellten Intensitätsverteilungen in Abbildung 3.3 b)  $I_1(\vec{k})$  bis  $I_3(\vec{k})$ . Die Beugungsbilder sind an drei benachbarten Punkten simuliert worden. Die drei Beugungsbilder zeigen klar die 8-zählige Symmetrie der sternförmigen Beleuchtungsverteilung und ähnliche Strukturen des Sterns. Die Unterschiede der Intensitätsbildern werden durch die unterschiedlichen Objektstrukturen erzeugt. Durch die gleich bleibenden Strukturen der Beleuchtung und Unterschiede im Objekt wird die Separation von Beleuchtungs- und Objektfunktion möglich. Die Beleuchtungsfunktion nimmt die immer gleichen Strukturen der Intensitätsbilder auf. Wohingegen die Unterschiede über eine selbstkonsistente Zusammenfügung in die Objektfunktion eingebaut werden. Unter der Voraussetzung das die Beleuchtungspunkte um ein  $1/4$  des Gesichtsfeldes der Beleuchtung zueinander verschoben sind, werden für die Ptychographie mindestens 6 Beugungsbilder benötigt.

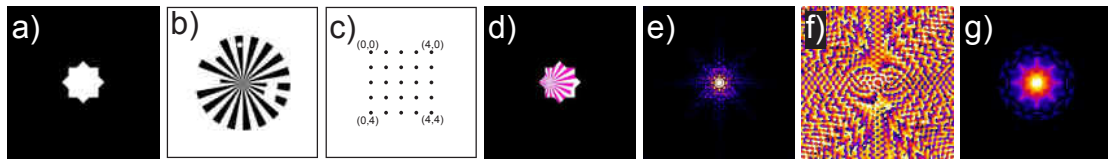


Abbildung 3.4: a) Zur Simulation verwendete Beleuchtung. Eine ebene Wellenfront wird mit sternförmiger Aperturblyende beschnitten. b) Simulierte Teststruktur für 500 nm Gold. Die Form entspricht sowohl der Absorption von 5,7 %, als auch dem Phasenschub von  $-0,459$  rad. c) Zeigt die Positionen an denen das Objekt beleuchtet wurde. d) Zeigt die Transmissionsfunktion nach der Beleuchtung am Punkt (2,3) in Falschfarben. Die Anteile des Objektes sind rot eingefärbt. e) Amplituden des Fernfeld-Beugungsbildes von d) in Falschfarbendarstellung. Für ideale Photonenstatistik und bei idealem Detektor würde genau dieses Bild gemessen werden. Als Phasenproblem wird der bei der Messung auftretende Verlust der Phaseninformationen, in Falschfarben in f) gezeigt, bezeichnet. Ohne diese Informationen ist eine Rückpropagation nicht möglich. Die Rücktransformation ohne genaue Phaseninformation ist im Bild g) dargestellt. Der Unterschied zwischen d) und g) soll durch die ptychographische Rekonstruktion überbrückt werden.

Für die zur Veranschaulichung erstellten Simulationen wird als Beleuchtung eine binäre Struktur in Form eines Sternes, Abbildung 3.4 a), mit homogener Ausleuchtung und flacher Phase verwendet. Das Beleuchtungsfeld besteht aus  $256 \times 256$  Pixeln mit 5 nm Kantenlänge. Das Objekt ist ein Strahlenstern mit gebrochener Symmetrie. Die Form ist in Abbildung 3.4 b) gezeigt. Die Pixelgröße der Objektfunktion ist identisch mit der der Beleuchtung. Die Pixeldimension ist aber mit  $356 \times 356$  Pixeln deutlich größer als die der Beleuchtung. Diese Pixelzahl setzt sich zusammen aus der Größe der Beleuchtung und der Rastergröße. In den weißen Bereichen ist das Objekt vollständig transparent und prägt keinen Phasenschub auf. In den dunklen Bereichen liegt die Amplitude bei 0,943 und die Phase bei  $-0,459$  rad. Als komplexe Werte ergibt sich für das Objekt  $O(\text{hell}) = 1 e^{i \cdot 0}$  und  $O(\text{dunkel}) = 0.943 e^{-i \cdot 0.459}$ .

Das Raster ist ein Rechteckgitter, siehe Skizze in Abbildung 3.4 c), mit  $5 \times 5$  Punkten und 100 nm (20 Pixel) Rasterweite. Es wird an jedem Rasterpunkt aus der Transmissionsfunktion, in Bild 3.4 d) beispielhaft für Punkt (2, 3) dargestellt, ein Beugungsbild, Bild 3.4 e), berechnet. Die Phasenlage, gezeigt in f), der Bilder geht bei der Intensitätsmessung verloren. Würde man versuchen diese Phasenlage als konstant anzunehmen, kann man lediglich die Autokorrelation der Transmissionsfunktion berechnen, Bild 3.4 g), nicht aber die komplexwertige Transmissionsfunktion in Bild 3.4 d). Diese volle Information soll durch die Verarbeitung der Daten in einem iterativen Algorithmus rekonstruiert werden. Das bedeutet, dass der Unterschied zwischen den Bildern 3.4 g) ohne Phaseninformation und 3.4 d) bei Rückpropagation mit bekannter Phasenlage soll durch die Ptychographie überbrückt werden soll. Für die ptychographische Rekonstruktion benötigt der Algorithmus außerdem Informationen über die verwendete Strahlung und das Raster. Für einen ebenen Detektor ist noch die Korrektur der Kissenverzerrung nötig.

### 3.2.1 Kissenverzerrung

Die Messung eines Wellenfeldes mit einem flachen Detektor erzeugt eine kissenartige Verzerrung. Die Beugungsbilder werden mit flachen Detektoren aufgenommen, die Wellenfelder propagieren aber kugelförmig. Für große Entfernungen der Quelle vom Detektor ist die Propagationslänge  $R$  in allen Bereiche des Beugungsbildes quasi gleich ( $\Delta R \approx 0$ ). Genau diese Bedingung ist im Fresnelregime nicht mehr erfüllt und es ist eine Korrektur erforderlich. Die sogenannte Kissenverzerrung erzeugt bereits bei einem halben Öffnungswinkel des Detektors von  $15^\circ$  zu eine 3,4%igen Verbreiterung. Das erscheint nicht viel, aber gerade bei den hohen Winkeln erzeugt die falsche Positionierung einen signifikanten Einfluss und führt zu einem deutlich schlechterem Rekonstruktionsergebnis.

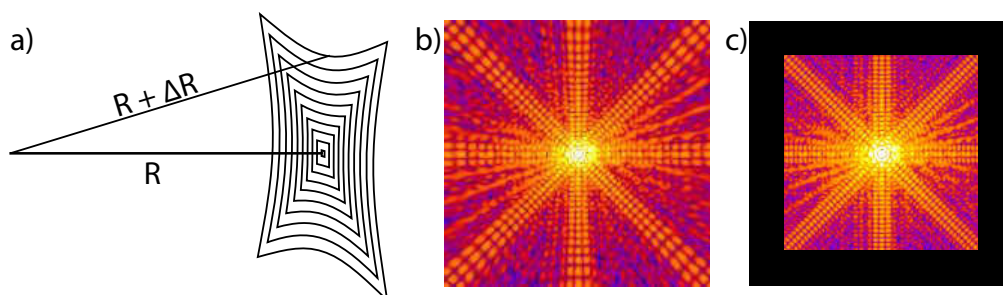


Abbildung 3.5: Bereiche unter großem Winkel zur optischen Achse haben einen längeren Propagationsweg  $R + \Delta R$  bis zum Detektor. Dieser in Skizze a) dargestellte zusätzliche Weg  $\Delta R$  schlägt sich in einer Verzerrung der Beugungsbilder nieder. In Abbildung b) ist ein beispielhaftes Beugungsbild in Falschfarben und logarithmischer Darstellung gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Speckle der nach außen gehenden Strahlen mit zunehmender Entfernung vom Mittelpunkt gestreckt werden. Die korrigierte Version in c) ist auf Grund der notwendigen Stauchung kleiner. Der schwarze Hintergrund beschreibt dabei Bereiche ohne Informationsgehalt.

Zur Korrektur muss das Beugungsbild derart verändert werden, dass für alle Pixel die gleiche Projektionsentfernung besteht. Das Problem verfälschter Winkelmessung bei Diffrak-

togrammen bei flachen Detektoren ist in der Kristallographie hinlänglich bekannt und gilt als problemlos behebbar. Für jeden der vereinzelt Reflexe der Kristallographie kann der Mittelpunkt bestimmt werden und die zugehörigen Koordinaten dann korrigiert werden. Bei ptychographischen Daten ist diese einfache Korrektur auf Grund des ausgedehnten Signals nicht durchführbar. Es können nicht die Positionen der einzelnen Reflexe korrigiert werden, sondern für ein ausgedehntes Signal ist die entzerrte Feldverteilung zu berechnen. Das erfordert die Pixel entweder lokal in ihrer Größe zu verändern oder die Feldverteilung neu zu interpolieren. Eine konstante Propagationslänge im gesamten Bild benötigt die Projektion einer flachen Karte auf eine Kugeloberfläche. Der Projektionsursprung ist dabei der Interaktionspunkt der Strahlung mit dem Objekt und liegt im Kugelmittelpunkt. Diese Art der Projektion wird gnomonische Projektion genannt. Ich habe die Korrektur der Beugungsbilder für diese Art der Projektion implementiert. In den Außenbereichen kommt es dann zu einer Komprimierung der Information. Für die numerische Stabilität habe ich die Berechnung invers implementiert. Das bedeutet das für jedes Pixel im Zielbild der Wert im Originalbild zu suchen ist. Üblicherweise wird die Berechnung anders herum durchgeführt. Bei der von mir angewendeten Berechnung wird die Struktur des Objektes beibehalten und keine Glättung in irgend einer Art vorgenommen. Im selben Schritt lassen sich Rotationen des Detektors, relativ zur optischen Achse, korrigieren. Nachteilig wirkt sich dabei aus, dass nach der Transformation Teile des Beugungsbildes nach dem Stauchen keine Informationen mehr enthalten, da die Informationen Richtung Zentrum verschoben werden. Im Buch von F. Pearson [28] wird die Herleitung der Abbildungsgleichungen erläutert. Für eine stabile numerische Implementierung ist eine invertierte Strahlverfolgung zu verwenden. Es wird dann jedem Pixel des Zielfeldes genau ein Wert des Ausgangsfeldes zugeordnet und eine Doppelbesetzung des Zielfeldes in einigen Pixeln kann nicht vorkommen. Für kontinuierliche analytische Beschreibung ist die Transformation äquivalent. Bei einem diskretisierten Feld mit konstanter Pixelzahl ist entweder eine aufwändige Auswahl bei Mehrfachbesetzung notwendig, oder es wird die beschriebene inverse Koordinatenberechnung verwendet. Für die Beschreibung wird das Koordinatensystem entsprechend der kartographischen Lagebeschreibung verwendet. Die optische Achse liegt dabei entlang der Nord-Süd-Achse, bei den Werten  $(\phi_o, \lambda_o) = (90^\circ, 0^\circ)$ . Die Kartenfläche und damit der Detektor, berührt die Kugel tangential am Nordpol. Soll zusätzlich eine Verkippung des Detektors korrigiert werden, Skizze 3.6 b), muss lediglich der Berührungspunkt um den entsprechenden Winkel verschoben werden. Für einen verschobenen Berührungspunkt muss anschließend der Koordinatenursprung wieder richtig gesetzt werden. Außerdem verändert sich durch die Verkippung des Detektors der zur Berechnung verwendete Abstand. Es wird wie in Skizze 3.6 a) dargestellt für die Entzerrung der kürzeste (orthogonale) Abstand  $R$  des Detektors zum Objekt verwendet. Nicht der eigentliche Abstand  $L$  zwischen Objekt und Schnittpunkt der optischen Achse zum Detektor. Dieser kleinere Abstand  $R$  berechnet sich aus den Verkippungswinkeln des Detektors und dem Abstand  $L$  entlang der optischen Achse. Bei verkipptem Einfall wird die Transformation bei  $(\phi, \lambda)$  vorgenommen. Zur Berechnung des verringerten Abstandes trägt allein  $\phi$  bei und es ergibt sich

$$R = L \cdot \cos(\phi). \quad (3.5)$$

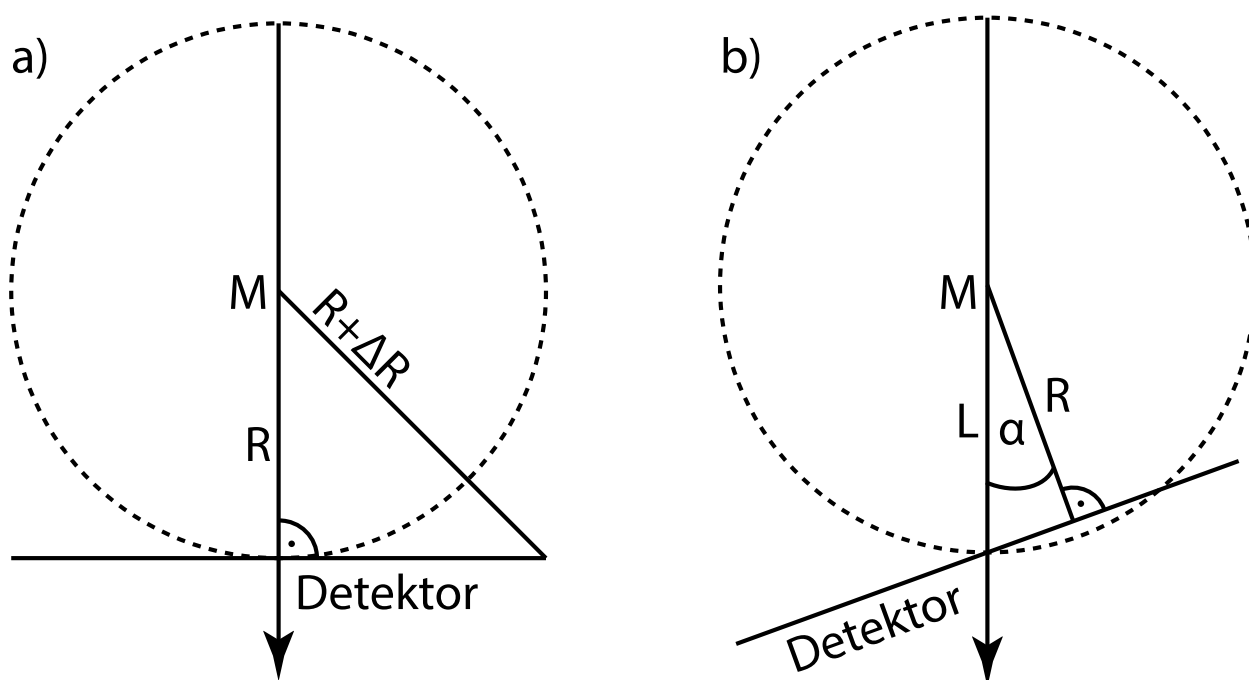


Abbildung 3.6: Das Streuzentrum liegt für diese Darstellung bei Punkt M. a) Skizzierte Darstellung von Bild 3.5 a). b) Bei verkipptem Detektor entsteht ein zusätzlicher Winkel  $\alpha$  der in der Kartographie  $\lambda$  entspricht.

Die Entzerrung passt in den Außenbereichen die Propagationslänge an, die nicht wie in der Kleinwinkelnäherung angenommen überall gleich lang ist. Unter größeren Beugungswinkeln erreichen die Photonen den Detektor erst nach größerer Propagationslänge. Bei größerem Abstand zur Quelle decken die Pixel einen kleineren Raumwinkel ab und messen damit zu kleine Intensitäten. Zur Korrektur wird die Intensität entsprechend dem relativen Abstandes aus Bild 3.5 a)  $(\Delta R + R)/R$  angepasst. Die Korrektur ist für Messwerte, die einzig aus dem Streulicht der Probe bestehen, korrekt. Für reale Detektoren erzeugt dieser Algorithmus allerdings ungewollt zu intensive Bereiche. Am stärksten tritt dieser Effekt in den Ecken des Detektors auf. Diese Bereiche sind besonders weit entfernt und bekommen deshalb einen besonders hohen Wert zugeordnet. Das Hintergrundrauschen ist, anders als das Probensignal, unabhängig von der Propagationslänge. Ebenso verhält es sich bei parasitärem Streulicht aus der Umgebung. Beide Effekte sollen nicht verstärkt werden, andernfalls würde dies zu starken Artefakten in der Bildgebung führen. Die Verstärkung tritt in den äußeren Bereichen besonders stark auf, so dass der Algorithmus weitere Beleuchtungspunkte an den Rändern der Fernfeldbilder rekonstruiert. Diese Effekte lassen sich am einfachsten durch ein Gitter im Objekt beschreiben. Abbildung 3.5 zeigt in Bild c) die Veränderung des Beugungsbildes nach der Kissenkorrektur. Die äußeren Bereiche der durch die Korrektur gestauchten Bilder enthalten dann keine Informationen mehr. Die erreichbare Auflösung wird geringfügig gemindert. Die Bereiche werden in der Graphik 3.5 c) schwarz dargestellt. Die Korrektur verändert den Propagationsabstand und bei der zu Grunde liegenden Kugelwelle auch die Helligkeit der Bereiche. In den äußeren Bereichen, besonders in den Ecken des Bildes wird

bei der Korrektur ein heller Wert berechnet. Die Rekonstruktion konvergiert schneller und stabiler mit der korrekt angeordneten und skalierten Intensitätsverteilung.

Der zur Auswertung nötige Algorithmus wird im nächsten Kapitel beschrieben.

### 3.3 Rekonstruktionsalgorithmus

Ausgehend von dem Set an Beugungsbildern soll das komplexe Objekt und das komplexwertige Beleuchtungsfeld rekonstruiert werden. Das hier beschriebene Verfahren beruht auf einem Vorschlag von Maiden und Rodenburg aus dem Jahr 2009 [64]. Der Algorithmus hat für die Rekonstruktion ausschließlich das Set an Beugungsbildern und die Informationen über die Energie der Strahlung, die Geometrie des Experimentes und das Raster zur Verfügung. Basierend darauf wird die Größe des Beleuchtungsfeldes festgesetzt. Hierfür wird die Dimension der quadratischen Beugungsbilder genommen und mit einem Initialwert gefüllt. Für die Initialisierung ist keine besondere Genauigkeit beim Schätzen nötig. Es ist ebenso möglich beinahe willkürliche Beleuchtungsstrukturen vorzugeben. Allerdings ist, gerade bei stark fehlerbehafteten Messungen, eine verlangsamte Konvergenz möglich. Als weitere Einschränkung sollte beachtet werden, dass die Propagation mittels Fouriertransformation periodische Randbedingungen annimmt. Die Intensitätsverteilung sollte sich deshalb nicht bis zum Rand hin ausdehnen, um ein Übersprechen zur gegenüberliegenden Feldseiten zu vermeiden.

Über das Objekt ist a priori nichts bekannt. Das Gesichtsfeld des Objektes ist durch die Pixelgröße (nach Gleichung (3.4)) in der Objektebene, der Beleuchtungsfeldgröße und dem Raster festgelegt. Das Objektfeld ist damit so groß wie das um die Rasterausdehnung erweiterte Beleuchtungsfeld. Üblicherweise wird das Objekt, da unbekannt, vollständig transparent,  $O(\vec{r}) = 1$ , initialisiert. Der Algorithmus passt die Beleuchtungs- und Objektfunktion iterativ derart an, dass die berechneten Fernfeldbilder die Beugungsbilder möglichst gut beschreiben. Ideal beschrieben werden die Beugungsbilder wenn die Fehlerwert (3.6) null wird. Das ist der Fall wenn keine Abweichungen der simulierten Intensitäten von den gemessenen Werten mehr bestehen. Die als Fehlersumme eingeführte Formel (3.2) der kohärenten Beugungsabbildung wird für die Ptychographie um die Summation über alle Beugungsbilder  $b$  erweitert

$$E = \sum_{u,v,b} \left[ \left| \tilde{\Psi}_b(\vec{k}) \right|^2 - I_b(\vec{k}) \right]^2. \quad (3.6)$$

Dabei wird die quadratische Abweichung der Beugungsbilder von der simulierten Intensitätsverteilung summiert und für alle Bilder zusammengezählt. Die Rekonstruktion endet unmittelbar, wenn die Fehlersumme auf 0 reduziert werden konnte. Bei nicht-idealen Daten ist das jedoch nicht möglich. Eine Iteration beinhaltet dabei die einmalige Anpassung an jedes Beugungsbild. Für jedes gemessene Bild wird der gleiche Ablauf durchgeführt und als Subiteration bezeichnet. Die Reihenfolge der Subiterationen beeinflusst das Ergebnis. Wir verändern daher bei jeder Iteration die Reihenfolge.

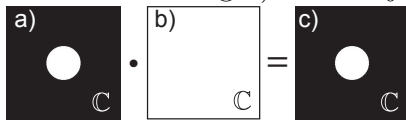


### 3.4 Ptychographische Subiteration

An allen Positionen des Rasters wird eine Intensitätsverteilung aufgenommen. Die Beleuchtung und ein Ausschnitt des Objektes sollen so angepasst werden das die Intensitätsverteilung möglichst gut beschrieben wird. Zur Anpassung an das Beugungsbild werden immer die gleichen 5 Schritte ausgeführt, allerdings mit unterschiedlichen Daten. Die Schritte sind kurz dargestellt, eine ausführliche Diskussion jedes Schnittes folgt im Anschluss.

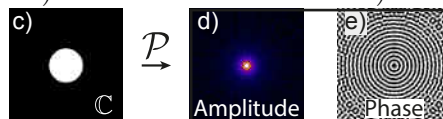
**1. Strahlungs-Materie Wechselwirkung**

Aus Beleuchtung a) und Objekt b) berechnet sich die Transmissionsfunktion c)s



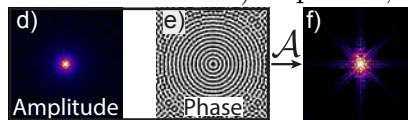
**2. Propagation in die Detektorebene**

Aus der Objektebene c ) in die Detektorebene d) & e) propagieren



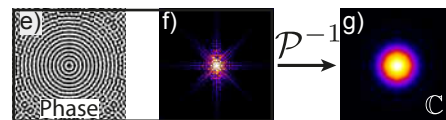
**3. Anpassung an die Beugungsbilder**

Amplitude des Fernfeldbildes d) an die Messwerte f) anpassen, Phase e) beibehalten



**4. Rückpropagation in die Objektebene**

Aus der Detektorebene wird die aus e) & f) bestehende Wellenfunktion zurück in die Objektebene g) propagiert



**5. Aufteilen der Transmission in Beleuchtung und Objekt**

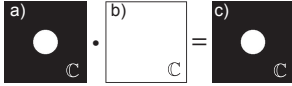
Die Beleuchtung a) und das Objekt b) werden mit der verbesserten Transmissionsfunktion aktualisiert



Das Symbol  $\mathbb{C}$  kennzeichnet komplexwertige Felder. Zur besseren Übersicht sind bei komplexwertigen Feldern nur die Beträge dargestellt. Im Fernfeld ist das komplexe Wellenfeld in einem schwarzen Rahmen in Amplitude und Phase aufgeteilt. Bei jedem der 5 Schritte einer

Subiteration wird eine Matrixoperation durchgeführt. Bei Schritt 1 wird eine pixelweise Multiplikation aus Beleuchtung und Objekt berechnet. Schritte 2 propagiert die Transmissionsfunktion in die Detektorebene. Bei Schritte 3 werden die Amplituden des Fernfelds ersetzt. Bei Schritt 4 wird die inverse Propagation in die Objektebene berechnet und bei Schritt 5 wird die angepasste Transmissionsfunktion wieder in Beleuchtung und Objekt aufgeteilt. Die Operationen werden im folgenden detailliert besprochen.

### 3.4.1 Strahlungs-Materie Wechselwirkung

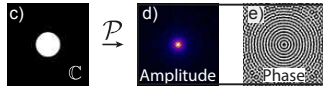


Der 1. Schritt jeder Subiteration  $n$  ist die Berechnung der Transmissionsfunktion  $\Psi$ . Die aktuelle Beleuchtungsfunktion  $P$  wechselwirkt am Ort des Rasterpunktes  $\vec{r}_n$  mit der Objektfunktion  $O$ . Die Wechselwirkung zwischen Beleuchtung und einem dünnen Objekt wird durch die in Abschnitt 2.5 beschriebene komplexe Multiplikation realisiert.

$$\Psi_n(\vec{r}) = P(\vec{r}) \cdot O(\vec{r} + \vec{r}_n) \quad (3.7)$$

Das komplexwertige Objekt repräsentiert den projizierten komplexen Brechungsindex des abgetasteten Materials. Der Betrag des Objektfeldes entspricht dabei dem imaginären Teil des Brechungsindex; anders gesagt, beschreibt der Betrag die Absorption im Objekt und die Phase dementsprechend den Realteil des Brechungsindex, den Phasenschub.

### 3.4.2 Propagation in die Detektorebene

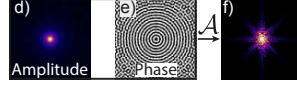


Der 2. Schritt umfasst die Propagation der Transmissionsfunktion in die Detektorebene. Die Propagation  $\mathcal{P}$  wird unter Fraunhofer-Näherung als eine symmetrisch-normierte diskrete Fouriertransformation (DFT) ausgeführt.

$$\tilde{\Psi}_n(\vec{k}) = \mathcal{P}[\Psi_n(\vec{r})](\vec{k}) \quad (3.8)$$

Andere Propagationsroutinen, wie die weniger stark genäherte Varianten der Fresnel-Kirchhoff-Propagation sind möglich. Eine Möglichkeit wird als Erweiterung in Abschnitt 3.5.1 beschrieben. Allerdings verändern sich dabei unter Umständen die Geometriebeziehungen und die Pixelgrößen können nicht mehr nach Gleichung (3.4) berechnet werden. Es wird daher entweder die von Maiden und Rodenburg vorgeschlagene einfache Fouriertransformation unter Fraunhofer-Näherung verwendet [64], oder eine erweitertere Fresnelpropagation, die aus zwei komplexen Multiplikationen und einer zwischengeschalteten Fouriertransformation besteht, siehe Abschnitt 2.2.

### 3.4.3 Anpassung an die Beugungsbilder

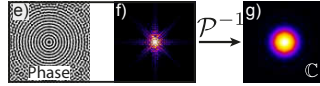


Im 3. Schritt geschieht die Anpassung der Intensitäten. Die gemessenen Intensitäten  $I_n(\vec{k})$  werden dafür in Amplitudenwerte umgerechnet und in das berechnete Fernfeld eingebaut. Die Phasen bleiben dabei erhalten. Auf diese Weise wird das Phasenproblem gelöst. Die berechneten Phasenwerte werden anstatt der wahren Werte verwendet. Nach vielen Iterationen nähern sich die berechneten Werte den wahren Werten an.

Die Funktion zum Ersetzen der Amplituden  $\mathcal{A}$  wird hier eingeführt. Der Nutzen einer solchen Funktion erschließt sich in den Abschnitten 3.5.3 und 3.5.4 um Erweiterungen einzubauen. Der Standardalgorithmus verwendet die einfachste Variante und ersetzt die Werte des Fernfeldes  $\tilde{\Psi}$  mit den gemessenen Werten.

$$\tilde{\Psi}'_n(\vec{k}) = \mathcal{A}[I_n(\vec{k}), \tilde{\Psi}_n(\vec{k})] \quad \mathcal{A}[I, \tilde{\Psi}] = \sqrt{I_n} \frac{\tilde{\Psi}}{|\tilde{\Psi}|} \quad (3.9)$$

### 3.4.4 Rückpropagation in die Objektebene

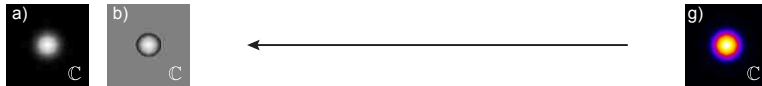


Im 4. Schritt wird die angepasste Transmissionsfunktion zurück in die Objektebene propagiert.

$$\Psi'_n(\vec{r}) = \mathcal{P}^{-1}[\tilde{\Psi}'_n(\vec{k})](\vec{r}) \quad (3.10)$$

Dabei muss dieselbe Näherung wie für die Propagation in Schritt 2 verwendet werden. Einzig die Richtung der Propagation ist umgekehrt.

### 3.4.5 Aufteilen der Transmission in Beleuchtung und Objekt



Der 5. Schritt umfasst die Aktualisierung. Die aktualisierte Transmissionsfunktion muss wieder in die beiden Felder  $O$  und  $P$  aufgeteilt werden. In Operatorschreibweise wird das Update mit dem Operator  $\mathcal{U}$  bezeichnet, [63]. Der Operator ist dabei abhängig vom einfallenden Wellenfeld  $P$ , dem Objekt  $O$  an der entsprechenden Beleuchtungsposition  $i$  und der aktualisierten Transmissionsfunktion  $\Psi'_i$ :

$$P' = \mathcal{U}[P, O, \Psi'_n, \beta] \quad (3.11)$$

$$O' = \mathcal{U}[O, P, \Psi'_n, \alpha] \quad (3.12)$$

Die Konstanten  $\alpha$  und  $\beta$  bezeichnen die Anpassungsstärken für die Felder. Die Werte müssen im Bereich  $(0, 1]$  liegen um eine Anpassung zu ermöglichen. Werte außerhalb des Intervalls lassen entweder keine Anpassung zu ( $\leq 0$ ) oder erzeugen eine Überanpassung der Beleuchtungsbereiche ( $> 1$ ). Der Operator muss die Anteile der aktualisierten Transmissionsfunktion für das Update der Beleuchtung und des Objektes aufteilen und entsprechend anwenden. Es ergeben sich daraus für die beiden Felder  $O$  und  $P$  die symmetrischen Anpassregeln:

$$\mathcal{U}[A, B, \Psi, \mu] = A + \mu \frac{B^*}{|B|_{\max}^2} (\Psi - A \cdot B) \quad (3.13)$$

Die komplexe Multiplikation muss dafür invertiert werden. Die Größe  $B^*$  bezeichnet den komplex konjugierten Wert von  $B$ . Die Inversion kann nur das richtige Ergebnis liefern, wenn die aktualisierte Wellenfront  $\Psi'$  und die originale Wellenfront  $\Psi$  gleich sind. Andernfalls ist die Invertierung nicht exakt, da die aktualisierte Wellenfront sich aus der aktualisierten Variante von Objekt und Beleuchtung zusammensetzt. Damit ergibt dieses Update nur für den konvergierten Fall eine exakt richtige Lösung. Die Erfahrung zeigt, dass durch die iterative Anpassung eine Konvergenz eintritt. Einen mathematischen Beweis für diese gelebte Annahme konnte jedoch bis heute nicht vorgelegt werden. Ausgeschrieben ergibt sich für Beleuchtung und Objekt die Form

$$P'(\vec{r}) = \mathcal{U}[P, O, \Psi'_n, \beta] = P(\vec{r}) + \beta \frac{O^*(\vec{r} + \vec{r}_n)}{|O(\vec{r} + \vec{r}_n)|_{\max}^2} (\Psi'_n(\vec{r}) - \Psi_n(\vec{r})) \quad (3.14)$$

$$O'(\vec{r}) = \mathcal{U}[O, P, \Psi'_n, \alpha] = O(\vec{r}) + \alpha \frac{P^*(\vec{r} - \vec{r}_n)}{|P(\vec{r} - \vec{r}_n)|_{\max}^2} (\Psi'_n(\vec{r}) - \Psi_n(\vec{r})). \quad (3.15)$$

Dabei dürfen die Größen  $r$  und  $r_n$  nicht vermischt werden.  $\vec{r}$  bezeichnet den Pixel im jeweiligen Feld, der Wert  $\vec{r}_n$  entspricht der Verschiebung des Beleuchtungsfeldes.

Die Ptychographische Rekonstruktion berechnet aus dem Set an Fernfeldintensitätsmessungen die Beleuchtungs- und Objektfunktion. Die Ergebnisfelder der Ptychographie sind komplexe Zahlen, die sich entweder als Real- und Imaginärteil oder als Amplitude und Phase darstellen lassen. Dabei ist die Darstellung als Amplitude und Phase auf Grund der physikalischen Beziehung zu Absorption und Phasenschub sinnvoll. Die komplexe Objektfunktion beschreibt den komplexen Brechungsindex der Probe. Die Amplitude des Feldes entspricht der Absorption im Objekt und die Phasen des Objektfeldes dem Phasenschub. Der größte Winkel unter dem noch Informationen gemessen werden können bestimmt die Auflösung, diese ist damit beugungsbegrenzt. Neben der Objektfunktion wird die Beleuchtung mit gleicher Auflösung in Amplitude und Phase rekonstruiert und enthält alle Informationen über das Beleuchtungsfeld entlang der optischen Achse. Die Intensitätsverteilung der Beleuchtung kann damit pixel-genau ermittelt werden. Zusätzlich wird die Phasenlage jedes Intensitätsbereiches bestimmt. Entgegen allen anderen Verfahren wird für die Beleuchtung nicht nur das Intensitätsmuster bestimmt, sondern die volle komplexe Information über das elektromagnetische Feld, die ortsabhängige Amplitude und Phase. Insbesondere für die Entwicklung von Optiken ist die Information sehr wichtig.

## 3.5 Erweiterungen

Der Standardalgorithmus behandelt eine ideale Situation eines Beugungsexperiments mit perfekt bekannten Ausgangsdaten und ohne experimentelle Schwierigkeiten. Perfekt bedeutet, dass zum Beispiel die Beugungsbilder die wahre Wahrscheinlichkeitsverteilung der Fernfeldintensitätsverteilung zeigen, die Dosis je Beugungsbild exakt übereinstimmt und die Positionen exakt bekannt sind.

Reale Experimente erfüllen diese idealen Bedingungen nicht und der Algorithmus muss darauf angepasst werden. So kann die Formel für die Aufteilung zwischen Beleuchtung und Objekt verändert werden oder auch das Modell der Strahlung-Materie Wechselwirkung. Sind bei der Messung Positionsveränderungen aufgetreten lassen diese sich ebenfalls korrigieren. Bei den genannten Erweiterungen sind die Schritte 1 oder 5 verändert. Die Propagationsschritte 2 und 4 lassen sich an die Geometrie anpassen, falls die Kleinwinkelnäherung nicht erfüllt ist und die Propagation nicht durch eine einzelne Fouriertransformation beschrieben wird. Bei der Anpassung an die Intensitätsverteilung in Schritt 3 wird die nicht-ideale Photonensstatistik betrachtet, sowie zusätzliche Fitparameter für Beleuchtungsdosis und verfälschende Messwerte eingeführt. In der Auflistung sind die von mir eingearbeiteten Erweiterungen aufgeführt; die Zahlen stehen für die veränderten Schritte der Subiterationen:

- 2, 4 Veränderte Näherungen bei der Propagation
- 5 Variationen der Updatevorschrift von Beleuchtung und Objekt
- 3 Adaption der Amplitudenanpassung an die gegebene Statistik
- 3 Korrektes Behandeln des inkohärenten Hintergrundes
- 1, 5 Positionsanpassung der Beleuchtungspunkte
- 3 Normierungsoptimierung der Beugungsbilder relativ zueinander
- 1, 5 Erweiterung der Strahlungs- und Materiewechselwirkung

Die Ziffern bezeichnen die zu verändernden Schritte in jeder Subiteration aus Kapitel 3.4. Die Reihenfolge entspricht dabei der Relevanz der einzelnen Erweiterungen bei typischen Experimenten.

### 3.5.1 Propagation

Der erste Vorschlag für die Ptychographie [80] geht von der Fraunhofer-Näherung bei der Propagation in das Fernfeld aus. Die Gültigkeit kann über die Fresnelzahl

$$F = \frac{a^2}{L \cdot \lambda} \quad (3.16)$$

abgeschätzt werden. Die Fraunhofer-Näherung ist erfüllt wenn  $F \leq 1$ . Die Größe  $a$  beschreibt die charakteristische transversale Ausdehnung des Wellenfeldes,  $L$  den Abstand der Propagationsebenen und  $\lambda$  die Wellenlänge der Strahlung. Im Röntgenregime mit Wellenlängen um  $1 \text{ \AA}$ , typischen Strukturgrößen von hundert Nanometer und Abständen  $L$  im Bereich einiger Meter, liegt die Fresnelzahl in der Größenordnung  $10^{-4}$ . Die Fraunhofer-Näherung ist damit immer erfüllt und der Propagationskern besteht aus einer diskreten 2D Fouriertransformation  $DFT$ , siehe Abschnitt 2.2.

$$\mathcal{P}_{F \ll 1} = DFT \quad (3.17)$$

Bei sichtbarem Licht,  $\lambda = 532 \text{ nm}$  mit typischen Strukturgrößen von  $a = 50 \text{ }\mu\text{m}$  und Abständen um  $5 \text{ cm}$  liegt die Fresnelzahl in Bereich von 1. Damit ist die Fraunhofer-Näherung nicht mehr erfüllt und man befindet sich im Fresnelregime. Beide Spektren werden in diese Arbeit verwendet. Im Fresnelregime lässt sich das Doppelintegral der Fresnel-Kirchhoff-Propagation zwar auch noch auf eine Fouriertransformation zurückführen, es müssen aber Korrekturterme eingeführt werden. In diesem Fall ist das eine diskrete Fouriertransformation  $DFT$  mit zwei komplexen Phasenfaktoren.

$$\mathcal{P}_{F \geq 1} = K_1 * DFT * K_2 \quad (3.18)$$

Die beiden ortsabhängigen Faktoren  $K_1$  und  $K_2$  sind Phasenterme gemäß der Fresnel-Kirchhoff-Integrale [11]

$$K_1 = e^{i \frac{\pi}{\lambda z} (x^2 + y^2)} \quad K_2 = -i \frac{z}{|z|} e^{i \frac{\pi}{\lambda z} (x^2 + y^2)} \quad (3.19)$$

Diese Faktoren  $K$  sind für  $F \ll 1$  ortsunabhängig und lassen sich als globale Phasenfaktoren vernachlässigen. Die Fresnelpropagation geht dann in die, in Formel 3.17 gezeigte, Fraunhoferpropagation über. Diese sehr stark genäherte Form stellt für die rechnergestützte Auswertung eine große Beschleunigung dar. Für Fouriertransformationen gibt es hoch-optimierte Bibliotheken, die auf die verschiedenen Rechenarchitekturen angepasst sind. In den meisten Fällen wird die am stärksten vereinfachte Form der Propagation, die reine Fouriertransformation, verwendet. Nur bei großen Streuwinkeln wie sie in der optischen Ptychographie gemessen werden, wird die aufwendigere Form aus 3.18 verwendet. Bei Nutzung der Näherung im Randbereich ihrer Gültigkeit, oder sogar darüber hinaus, kommt es zu Fehlern in der Abbildung, die korrigiert werden müssen. Idealerweise durch eine angepasste Propagation. Allerdings ist die Lösung des vollen Doppelintegrals eine numerisch sehr langsame Operation. Deutlich einfacher ist die Korrektur der Fehler in den Beugungsbildern. Die stärkste Aberration ist die Verzerrung der Beugungsbilder bei der Messung mit einem flachen Detektor. Die Strahlen weit außen am Detektor haben einen längeren Propagationsweg als solche in der Mitte. Die notwendige Korrektur wurde im Abschnitt 3.2.1 vorgestellt. Neben der Propagation wird häufig auch das Update, der Amplituden im Fernfeld an die gemessenen Intensitäten, an die experimentellen Gegebenheiten angepasst.

### 3.5.2 Updatevarianten

Neben der von Maiden und Rodenburg [64] vorgestellten ePIE Variante gibt es noch weitere Möglichkeiten. Andere Möglichkeit haben Vorteile wie erhöhte Stabilität oder Artefaktunterdrückung ebenso wie mögliche Nachteile einer langsameren Konvergenz. Dabei ist der von P. Thibault [104] vorgestellte Ansatz erst alle Änderungen für Beleuchtung und Objekt über alle Beugungsbilder aufzusammeln und am Ende der Iteration die Ausgangsfunktionen wie folgt zu aktualisieren

$$O'(\vec{r}) = \frac{\sum_n P^*(\vec{r} - \vec{r}_n) \Psi'_n(\vec{r})}{\sum_n |P(\vec{r} - \vec{r}_n)|^2} \quad (3.20)$$

eine sehr stabile Methode. Dabei bezeichnet  $\vec{r}_n$  die Verschiebung der Beleuchtung für das  $n$ -te Beugungsbild.

$$P'(\vec{r}) = \frac{\sum_n O^*(\vec{r} + \vec{r}_n) \Psi'_n(\vec{r})}{\sum_n |O(\vec{r} + \vec{r}_n)|^2} \quad (3.21)$$

Die „Difference Map“ genannte Variante zeichnet sich durch eine besonders stabile Rekonstruktion aus. Die Stabilität geht dabei zulasten der Geschwindigkeit der Konvergenz. Viele weitere Varianten sind veröffentlicht und können vom interessierten Leser in anderen Veröffentlichungen nachgelesen werden [104, 103].

Bei der Implementation hat A. Schropp ein asymmetrisches Update der Beleuchtung entwickelt, siehe Formel (3.14). Das Update des Objektes wird nicht symmetrisch zur Beleuchtung ausgeführt, sondern bereits mit dem aktualisierten Beleuchtungsfeld

$$O'(\vec{r}) = O(\vec{r}) + \alpha \frac{P'^*(\vec{r} - \vec{r}_n)}{|P'(\vec{r} - \vec{r}_n)|^2 + \delta} \left( \Psi'_n(\vec{r}) - P'(\vec{r} - \vec{r}_n) O(\vec{r}) \right). \quad (3.22)$$

Für sehr kleine Beleuchtungswerte divergiert die Anpassung. Um das zu verhindern wird die Konstante  $\delta$  hinzugefügt. Diese Variante konvergiert mit idealen Daten langsamer als der ePIE Algorithmus. Schwankt hingegen die Beleuchtungsintensität kann diese Schwankung besser durch das asymmetrische Verfahren beschrieben werden. Hier wird erst die Beleuchtung aktualisiert und übernimmt quasi alle Helligkeitsschwankungen. Etwaige Schwankungen die durch das Objekt verursacht werden sind auf diese Weise auch nicht zugänglich. Ist die Phase aber bereits richtig korrigiert wird nachträglich die Objektamplitude sichtbar, da jetzt bis auf die Helligkeitssprünge keine weiteren Änderungen der Beleuchtung mehr stattfinden.

### 3.5.3 Rauschen

Beugungsbilder können nur mit begrenzter Belichtungszeit und damit begrenzter Photonenzahl aufgenommen werden. Die Bilder sind daher immer mit Rauschen behaftet. Für Röntgenstrahlung fällt der Streuquerschnitt zu großen Impulsüberträgen  $q$  hin stark ab, siehe Formel (2.24). In den Randbereichen des Detektors  $N(q_x, q_y)$ , bei großen Impulsüberträgen  $q$ , erzeugt die Probe nur ein schwaches Signal. Die Intensität  $I$  ist durch die Unsicherheit nicht

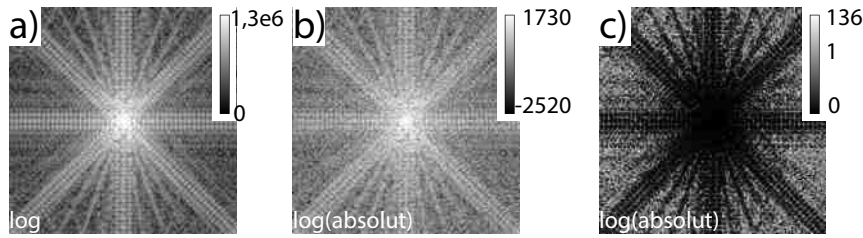


Abbildung 3.7: Das Fernfeldbeugungsbild, Bild a), wurde ohne Photonenrauschen simuliert. Bei realen Experimenten sind jedoch alle Messwerte mit Photonenrauschen behaftet. Zur Modellierung des Effektes wird jedem Pixel des Beugungsbildes eine zufällige poissonische Photonenzahl ersetzt. Der Erwartungswert  $\lambda$  entspricht dabei der simulierten Intensität  $I_S$  in diesem Pixel. Die absoluten Abweichungen der Intensitätswerte zu den idealen, simulierten Daten sind im Bild b) logarithmisch dargestellt. Intensive Bereiche im Beugungsbild verursachen hohe absolute Abweichungen. Problematisch sind aber nur Bereiche, in denen das Photonenrauschen die Größenordnung des Signals hat. Diese Bereiche haben in der relativen Abweichung  $R/N$  in Bild c) den Wert  $\leq 1$ .

mehr exakt zu bestimmen. Diese Unsicherheit der Messwerte muss im physikalischen Modell berücksichtigt werden. In Bild 3.7 a) ist die Intensität  $I$  eines beispielhaften Beugungsbildes gezeigt. Diese Darstellung zeigt ein simuliertes Beugungsbild bei idealer Photonenzahl und  $1,3 \cdot 10^6$  Photonen im intensivsten Pixel. Bei wenigen gemessenen Ereignissen wird das bei der Messung auftretende Photonenrauschen durch die Poissonstatistik beschrieben. Die Variationen durch das Photonenrauschen können näherungsweise durch die Erzeugung von poissonverteilten Zufallszahlen für die Intensitäten  $I_p$  simuliert werden. Für jedes Pixel wird dabei der Erwartungswert  $\lambda$  der simulierten Intensität gleichgesetzt. Für das beispielhafte Beugungsbild sind die simulierten Abweichungen im Bild 3.7 b) logarithmisch gezeigt. Intensive Bereiche des Beugungsbildes haben dabei die größten Rauschsignale. Relativ gesehen sind diese intensiven Bereiche trotzdem gut bestimmt, da der Variationskoeffizient Standardabweichung/Erwartungswert  $= 1/\sqrt{\lambda}$  für größere Werte abfällt. Besonders problematisch sind Bereiche in denen die Variation größer als der Erwartungswert ist. Diese Bereiche sind in der relativen Abweichung  $(I - I_p)/I$  mit Werten  $\leq 1$  bewertet. Für das beispielhafte Beugungsbild ist die relative Abweichung in Bild 3.7 c) abgebildet. Deutlich ist zu erkennen das besonders in den schwach beleuchteten Bereichen des Beugungsbildes große relative Abweichungen vorhanden sind. Die Abweichungen sind für jedes Beugungsbild statistisch unterschiedlich und werden vom Modell als Standardvariante abgebildet. Zusätzlich kann der Detektor weitere Störsignale erzeugen. Bei Detektoren mit Einzelphotonenzählung ist dieser Anteil unterdrückt. Nutzt man allerdings Detektoren mit Dunkelrauschen, wie beispielsweise bei CCDs, müssen die Signalphotonen vom Einfluss des Detektors getrennt werden. Eine einfache Korrektur besteht aus zusätzlich gemessenen Dunkelfeldbildern. Die Dunkelfeldbilder werden bei abgeschalteter, oder besser noch abgeschirmter, Lichtquelle und ohne Probe aufgenommen. Ohne primäre Lichtquelle trägt so nur parasitäres Streulicht und das Dunkelrauschen des Detektors zum Messsignal bei. Es wird dabei angenommen das diese parasitären Effekte während der Messung konstant vorhanden sind. Die Dunkelfelder unterscheiden sich von Aufnahme zu Aufnahme durch das Rauschen des Analog-Digital-Konverters und des Photonenrauschens der parasitären Quellen. Zum Aus-



gleich muss über viele Dunkelfeldaufnahmen gemittelt werden. Die Mittelung erlaubt die Bestimmung des mittleren Hintergrundlevels, nicht jedoch des Photonenrauschens in jedem Pixel des Beugungsbildes. Für starke Streusignale ist damit eine gute Korrektur gegeben und keine weitere Betrachtung notwendig. Starke Signale sind alle sehr dunklen Bereiche in Bild 3.7 c). Schwache Signale verschwinden dagegen schnell im Rauschen, oder das Rauschen wird als Signal vom Algorithmus interpretiert und als Strukturen eingebaut. Das Rauschen folgt im allgemeinen nicht der Poissonstatistik. Die Werte sind um einen Mittelwert herum symmetrisch verteilt und folgen damit der Normalverteilung. Diesem veränderten Verhalten des Rauschsignals muss Rechnung getragen werden. Die Anpassung wird im Fourierraum vorgenommen und es wird in den 3. Schritt, siehe Aufzählung 3.4, der Subiteration eingegriffen. Die Amplitudenanpassung wird durch eine veränderte Vorschrift ersetzt [33]. Dabei wird die Statistik der Messwerte berücksichtigt, in dem die Funktion  $\mathcal{A}[I, \Psi]$  verändert wird. Von Godard et al. wurden 4 Varianten vorgestellt [33]. Die Standardvariante entspricht der Variante bei Poissonstatistik, Formel 3.23, Gaußstatistik mit Formel 3.24 und zwei weiteren Spezialfällen.

$$\mathcal{A}_P[I, \Psi] = \sqrt{I_n} \frac{\Psi}{|\Psi|} \quad (3.23)$$

$$\mathcal{A}_G[I, \Psi] = \sqrt{\frac{\sqrt{I_n}}{|\Psi|}} \Psi \quad (3.24)$$

Beide Varianten verhalten sich bei Nullmessungen, heißt ohne gemessene Photonen im jeweiligen Pixel gleich. Das Fernfeld wird auf Null gesetzt. Dieser Wert ist aber nur in Bereiche mit tatsächlichen Minima richtig. In Bereichen mit geringer Intensität wird die 0-Photonen Information verwendet, obwohl mit weit höherer Wahrscheinlichkeit nicht lang genug belichtet wird, um ein Photon zu registrieren. Diese Besonderheiten bei Nullmessungen tragen die beiden weiteren Modell von Godard et al. Rechnung [33]. Ich habe in diesem Zusammenhang eine weitere Möglichkeit eingeführt. Nullen in den Messwerten werden durch Absenkung der Amplitude auf einen Bruchteil, beispielsweise  $p = 1\%$ , des Ausgangswertes berücksichtigt. Das Funktional hierfür hat folgende Form

$$\mathcal{A}_Z[I, \Psi] = \begin{cases} 0,01 \cdot \Psi & \text{falls } I_n = 0 \\ \mathcal{A}_{G|P}[I, \Psi] & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.25)$$

Dabei wird die Anpassungsfunktion für Poisson- oder Gaußstatistik verwendet, wenn die aufgenommene Photonenzahl nicht 0 ist. In diesem Spezialfall wird keine Null eingeführt, sondern die entsprechenden Frequenzen auf einige Prozent reduziert. Damit werden keine exakte Nullen eingefügt und trotzdem die Werte in Richtung der gemessenen angepasst.

Die unterschiedlichen Anpassungsvarianten adaptieren den Algorithmus der Ptychographie für verschiedene statistische Zustände, abhängig von der Art des Rauschens.

Durch die Anpassung des Updates an die vorhandene Photonenstatistik kann die Konvergenz stabilisiert werden. Im Falle von wenigen Photonen wird die Poissonstatistik verwendet, um ein glatteres Ergebnis zu erzielen. Die Spezialformen können verwendet werden, liefern aber meist keine bedeutende Verbesserung.

### 3.5.4 Residuum

Der Detektor zeichnet, zusätzlich zu den Probensignalen, Photonen aus anderen Quellen auf. Diese Hintergrundsignale stammen nicht aus der Beleuchtungsfunktion und werden deshalb im ptychographischen Modell nicht berücksichtigt. Die inkohärenten Signale können aus verschiedenen Quellen stammen. Eine mögliche Ursachen ist die Streuung des Primärstrahls an Luftmolekülen, Fenstermaterial oder dem Detektor selbst. Ohne Berücksichtigung der zusätzlichen inkohärenten Beiträge werden alle Streuintensitäten mit einbezogen. Signale der Probe und auch die Störsignale gehen so in die Rekonstruktion gleichermaßen ein. Das kohärente Signal trägt zur Rekonstruktion bei. Die nicht modellgerechten Signale erzeugen, je nach Stärke, leichte Bildfehler oder aber diese zusätzlichen Anteile verhindern eine sinnvolle Rekonstruktion vollständig. Für bekannte Ursachen von Streustrahlung lässt sich der Beitrag simulieren und kann durch Subtrahieren korrigiert werden. Beispielsweise können die parasitären Effekte, die der Primärstrahl in Luft erzeugt, simuliert und von den Beugungsbildern subtrahiert werden [51]. Diese statische Methode entspricht einer Dunkelfeldkorrektur wie sie bei vielen Experimenten mit CCD-Kameras üblich ist. In Bild 3.8 a) ist ein ideales, simuliertes Beugungsbild gezeigt. Im Bild 3.8 b) ist das Beugungsbild durch einen Hintergrund verdeckt, wie er zum Beispiel durch eine weitere Lichtquelle entstehen kann. Dieser Hintergrund setzt sich aus 2 Teilen zusammen. Zum Einen aus einer flächigen Struktur, die aus dem Minimum in der linken oberen Bildhälfte heraus in alle Richtungen hin ansteigt. Als zweites Element ist ein heller Bereich im III Quadranten zu erkennen. Die Aufteilung des mit dem Hintergrund überlagerten Streubildes, Bild 3.8 c), in kohärenten und inkohärenten Anteil soll autonom durch den Algorithmus erfolgen. Besonders bei hohen Hintergrundniveaus benötigt der Algorithmus einen Startwert. Eine in Experimenten bewährte Methode diesen Startwert zu berechnen stützt sich auf die gemessenen Beugungsbilder. Dabei wird von allen Bildern das pixelweise Minimum ausgewählt und daraus der Startwert des Hintergrunds zusammengesetzt. Bei realen Experimenten sind die Beugungsbilder verrauscht. Für simulierte, verrauschte Bilder ist der berechnete Hintergrund in Bild 3.8 d) gezeigt. In verrauschten Beugungsbildern ist der Informationsgehalt gegenüber der idealen Photonenzustatistik deutlich verringert. Durch das Rauschen werden die schwachen Signale überdeckt. In den äußeren Bereichen des Bildes 3.8 e) sind deshalb keine Strukturen zu erkennen. Diese Art von Hintergrund muss vom Streusignal sicher getrennt werden. Weitere Effekte wie Störereignisse, die durch Streuung des Primärstrahls am Detektormaterial entstehen, können ebenfalls simuliert werden, da auch hier alle Geometrieparameter bekannt sind. Den Einfluss eines kleinen zentralen Strahlfängers zu simulieren stellt deutlich höhere Anforderungen. Die genaue Form und Ausrichtung des Strahlfängers ist schwer zu bestimmen. Weitere Störeffekte wie Streuung an Fenstern in der Propagationsstrecke, an der (Proben-)Halterung, an Aperturblenden, an Strahlmonitoren oder an der verwendeten Optik, sind nicht oder nur ungenau zu bestimmen und mit einem vorab berechneten Feld nur unzureichend zu korrigieren. Diese Effekte lassen sich nicht durch Dunkelfeldmessungen beheben, da zur Bestimmung des Streuniveaus die Beleuchtung bekannt sein muss. Die Beleuchtung selbst darf aber nicht abgezogen werden, da sonst das Modell der Ptychographie die Situation nicht beschreibt.

Ich habe zur Korrektur der Beugungsbilder ein selbstkonsistent rekonstruiertes Hinter-

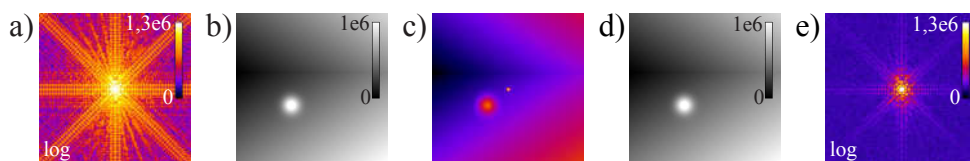


Abbildung 3.8: a) Ideales, simuliertes Beugungsbild unter logarithmischer Darstellung. Im gesamten Bild sind feine Strukturen zu erkennen. Diese feinen Strukturen sind bis zum äußeren Rand hin deutlich zu erkennen. b) Aus 2 Teilen, flächiger Gradient und hohe Kuppe, bestehender Hintergrund. c) Falschfarbendarstellung von b. Es sind alle Informationen des Streubildes a enthalten. d) Enthält das Bild jedoch Photonengeräusch, werden durch den Hintergrund Informationen überdeckt. e) Nach Entfernen des idealen Hintergrunds sind im Beugungsbild deutlich weniger feine Strukturen vorhanden.

grundfeld eingeführt, dass alle nicht beschreibbaren Effekte der Beugungsbilder aufnehmen kann [10]. Die beiden Anteile des Beugungsbildes, das kohärente und das inkohärente Signal, können auf Grundlage ihrer physikalischen Ursache und Definition unterschieden werden. Der kohärente Anteil ist probenabhängig und kann konsistent rekonstruiert werden. Der inkohärente Anteil wird nicht im Rahmen des ptychographischen Modells beschrieben und kann nicht konsistent rekonstruiert werden. Dieser Unterschied wird ausgenutzt um die beiden Anteile des Beugungsbildes unterscheiden zu können. Hierfür wird ein selbstkonsistentes Feld verwendet, das den Fehler beheben soll, ohne jedoch dessen genaue Ursachen zu kennen. Dafür habe ich wie von Godard et al. [33] beschrieben einen zusätzlichen Term, das Residuum  $R$ , eingeführt. Nicht aber zum Zweck der Rauschsimulation, sondern um inkohärente Anteile  $H$  des Beugungsbildes zu beschreiben. Diese Anteile sind Bestandteil der gemessenen Fernfeldbilder  $I = S + H$ . Die gemessene Intensität setzt sich dann zusammen aus dem Signal  $S$  welches durch Beleuchtung und Probe erzeugt wird, und dem Hintergrund  $H$  für jedes Bild. Der Hintergrund ist für jedes gemessene Pixel unterschiedlich und kann sowohl positive, als auch negative Werte annehmen. Positive Anteile sind alle Arten von zusätzlichen Signalen wie Luftstreuung, Streuung an Staubpartikeln im Strahlengang, andere Lichtquellen und so weiter. Negative Anteile können durch Interferenzeffekte an Partikeln im Strahlengang verursacht werden. Weitere mögliche negative Beiträge sind Totzeiteffekte bei einzelphotonenzählenden Detektoren und Abweichungen von der linearen Intensitätsantwort eines Pixels. Das Residualfeld kann auch als zweite Mode der Beugungsbilder verstanden werden. Die erste Mode entspricht dem kohärenten Beugungssignal der Beleuchtung am Objekt, die Zweite enthält dann alle anderen Anteile.

Zur Einführung des Residuums wird die Berechnung der Fehlersumme verändert und auch die Amplitudenanpassung  $\mathcal{A}_\bullet$  für die entsprechende Statistik  $\bullet$  der Fernfeldfunktion ändert sich entsprechend. Bei der Fehlersumme wird die Differenz zwischen Messwert und Rekonstruktion um das Residuum verringert. In gleicher Weise verändert das Residuum auch

das Amplitudenupdate  $\mathcal{A}$ .

$$E(I, \tilde{\Psi}) \rightarrow E(I, R, \tilde{\Psi}) = E(I - R, \tilde{\Psi}) = \frac{\sum_{i,u,v} \left[ |\tilde{\Psi}_i|^2 - (I_i - R) \right]}{\sum_{i,u,v} I_i} \quad (3.26)$$

$$\mathcal{A}_\bullet[I, \tilde{\Psi}] \rightarrow \mathcal{A}_\bullet[I, R, \tilde{\Psi}] = \mathcal{A}_\bullet[I - R, \tilde{\Psi}] \quad (3.27)$$

In das Residuum  $R$  sollen alle Anteile der gemessenen Intensitäten übernommen werden, die sich nicht mit dem kohärenten Streumodell der Ptychographie erklären lassen. In den Fernfeldbildern  $\tilde{\Psi}$  wird hingegen die Amplitude ersetzt. Bei der Auswertung werden nicht die Intensitäten der Beugungsbilder, sondern die entsprechenden Amplituden benötigt. Für eine schnellere Rekonstruktion werden die Amplituden vorgehalten. Damit wird der wiederholte Rechenschritt „Wurzel ziehen“ vermieden. Aus diesem Bestand heraus könnte man den Fehler auch im *Amplitudenbild* versuchen zu korrigieren. Numerisch ist dies möglich, widerspricht aber dem physikalischen Modell und wird deshalb nicht verwendet.

Das Residuum ist im Allgemeinen für jedes Beugungsbild unterschiedlich. Wird jedem Beugungsbild ein individuelles Residuum zugeordnet übersteigt die Zahl der Freiheitsgrade die vorhandene Informationsmenge und es ist keine stabile, wiederholbare Rekonstruktion mehr möglich. Ein gemeinsames Residuum beeinträchtigt die Überbestimmung nur wenig. Werden verschiedene Zustände, beispielsweise Messserien mit und ohne Strahlfänger gemeinsam rekonstruiert, muss jeder Geometrie ein eigenes Residualfeld zugeordnet werden. Die verschiedenen Residualfelder tragen den unterschiedlichen Streuquerschnitten Rechnung. Außerdem kann das Residuum für jedes Bild entsprechend der Normierungswerte angepasst werden. Bei Beugungsbildern mit höherer Dosisleistung und damit einem höheren Normierungswert ist mehr Hintergrundsignal zu erwarten. Dieser Effekt ist natürlich nicht für alle einzufangenden Effekte vorhanden. Zum Beispiel Streulicht aus einer parasitären Quelle kann so nicht beschrieben werden, da dieses ausschließlich von der Belichtungszeit abhängt. Diese Anpassung spielt aber nur in Ausnahmefällen eine Rolle. Ausschließlich am Röntgen-Freie-Elektronen-Laser (XFEL) in Stanford muss die stark variierenden Dosis je Aufnahme korrigiert werden. An Synchrotronstrahlungsquellen ist die Dosis im Rahmen der Messgenauigkeit konstant. Über die Verteilung von Nicht-Signalphotonen ist a priori nichts bekannt. Wie bereits im Abschnitt 3.5.4 beschrieben kann das Residualfeld vorher nicht vollständig bestimmt werden und muss während der Rekonstruktion aufgebaut werden. Bis auf einen Sockelwert sollen keine Vorgaben gemacht werden müssen. Dieser Wert sollte etwas höher liegen als der erwartete Hintergrund, um von Beginn an nicht die falschen Photonen mit in das Ergebnis einzubauen. Die Anpassung lehnt sich an die Anpassung des Objekts und der Beleuchtung an und wird vor der Anpassung an die gemessene Amplituden vorgenommen. Zur stabilen Rekonstruktion wird während einer Iteration das selbe Residualfeld verwendet. Während der Iteration existiert noch eine neuere Variante des Residuums  $R_a$  in die alle Änderungen während einer Subiteration übernommen werden. Nach Abschluss der Iteration wird dieses aktualisierte Feld für die Korrektur des nächsten Feldes übernommen.

$$R'_a = R_a + \Delta \left( I - |\tilde{\Psi}|^2 - R \right). \quad (3.28)$$

Die Anpassungsstärke  $\Delta \in [0, 1]$  definiert den relativen Anteil der nicht beschriebenen Intensität eines Beugungsbildes  $I$ , der in das Residualfeld  $R$  umverteilt wird. Bei  $\Delta = 0$  ist die Anpassung abgeschaltet und das Residualfeld verändert sich nicht weiter. Liegt dieser Faktor bei 1, so wird die gesamte nicht beschriebene Intensität übertragen. Allerdings werden dann ebenfalls alle Streuanteile des Probensignals übernommen, die momentan nicht erklärt werden und es findet keine Anpassung von  $\tilde{\Psi}$  statt. Damit die Rekonstruktion funktionieren kann, muss ein Anpassungswert sehr viel kleiner als 1 gewählt werden. Für jede Konfiguration und Messgeometrie hat sich eine unterschiedliche Anpassungsstärke als optimal erweisen und es konnte kein optimaler Wert bestimmt werden. Kleinere Werte entwickeln eine verzögerte Konvergenz, was einer Optimierung entgegenläuft. Außerdem wird angenommen, dass kein exakter Zahlenwert benötigt wird, sondern die Größenordnung den Ausschlag gibt. Bei Anwendungen hat sich als Größenordnung  $O(N^{-2})$  als günstige erwiesen.  $N$  bezeichnet die Anzahl aller gemessenen Beugungsbilder. Die Optimierung der Rechenzeit ist besonders beim Einsatz als Beobachtungstool für Experimente wichtig.

Bei konstantem Hintergrund und idealer Photonostatistik ist der Hintergrund eine exakte Addition auf die simulierten Beugungsbilder und könnte, wenn bekannt, vor der Rekonstruktion abgezogen werden. Während eines Experiments ist der Hintergrund jedoch nicht einfach berechenbar.

Als bessere Schätzung des Hintergrunds kann der pixelweise Minimalwert aller Beugungsbilder verwendet werden. Pixel der Beugungsbilder, in denen wenigstens einmal keine objektbezogenen Signale gemessen wurden, bekommen so den gemessenen Hintergrundwert. Bereiche in denen bei allen Beugungsbildern objektbezogene Beugungsdaten oder die Beleuchtung gemessen worden, bekommen einen zu hohen Wert. In Abbildung 3.9 e) ist diese Schätzung zu sehen. Der Bereich des Zentralstrahls muss dabei gesondert betrachtet werden. Andernfalls würde mit der vorgeschlagenen Prozedur beinahe der gesamte zentrale Strahl entfernt. Die Rekonstruktion kann nur bei vorhandenem Primärstrahl gelingen. Aber wenn der zentrale Peak nicht in der Schätzung des Residualfeldes enthalten ist, sind im Hintergrund weiterhin Teile der Beleuchtungsfunktion enthalten. Die nach der Bearbeitung enthaltenen Teile sind vergleichbar mit dem nach der Rekonstruktion enthaltenen Anteilen, zu sehen in Bild 3.9 h). Diese einfache Art der Berechnung des Hintergrundes ist auf Grund der zurückbleibenden Anteile nicht optimal, liefert aber bessere Ergebnisse als ein konstanter Hintergrund oberhalb der vermuteten Hintergrundschwelle, oder gar einem als leer initialisiertem Hintergrund. Bei Initialisierung des Hintergrundes weit oberhalb des vermuteten Rauschlevels gelingt eine Rekonstruktion in geringerer Güte als bei einer mit geschätzten Hintergrund. Bei leer initialisiertem Hintergrund konvergiert die Rekonstruktion nur bei sehr schwachem und lokalen Hintergrundeffekten. In dem hier gewählten Simulationsrahmen ergibt sich keine funktionierende Rekonstruktion bei leer initialisiertem Residualfeld. Als Gütekriterium für die Rekonstruktion wird die Abweichung der rekonstruierten Daten von den Originalwerten verwendet. Dabei ist es nicht möglich verschiedene Experimente zu vergleichen, sondern lediglich die Rekonstruktionsgüte bei Simulationen zu bestimmen.

Für das Szenario eines konstanten Hintergrundes, mit und ohne idealer Statistik in den Beugungsbildern zeige ich ein Beispiel für die Verbesserung der Rekonstruktion durch er-

weitem des Algorithmus, um einen inkohärenten Hintergrund. Für die Simulationen in Abbildung 3.9 werden ein Siemensstern<sup>1</sup> als Objekt und eine sternförmige Beleuchtung verwendet. Der intensivste Pixel im Beugungsbild enthält  $1,63 \cdot 10^6$  Photonen. Als Hintergrund wird ein von links einlaufendes Spitztal mit zusätzlichem gaußförmigen Hügel im linken unteren Quadranten verwendet. Die Zahl der Hintergrundphotonen liegt im Bereich  $1 \cdot 10^5$  bis  $9,4 \cdot 10^5$ .

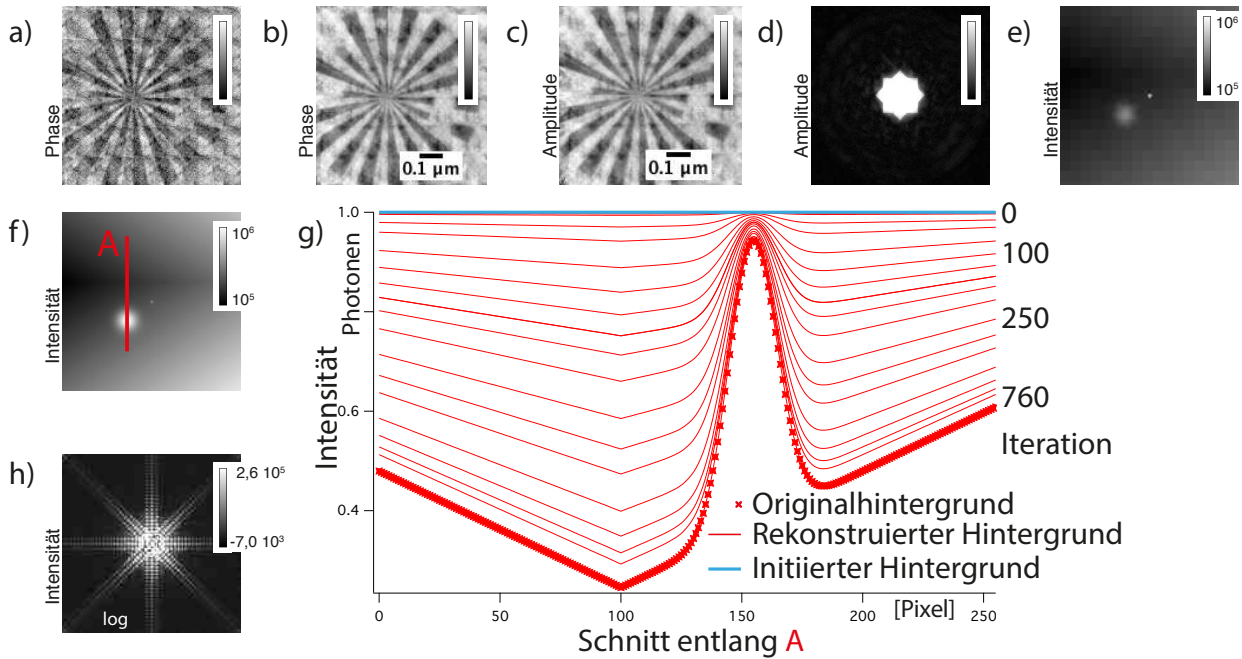


Abbildung 3.9: a) Wird der Hintergrund als fixes Feld vorgegeben und kann nicht weiter verändert werden, ergibt sich eine schlechte Rekonstruktion. Die erwartete Amplitude verliert sich vollständig im Rausche und ist hier deshalb nicht gezeigt. Wird der Hintergrund mit angepasst, ergibt sich eine bessere Annäherung an die originalen Felder. In den Bildern b) und c) sind die Phase und Amplitude gezeigt für eine Rekonstruktion mit Schätzung des Hintergrundes wie in Bild e), jedoch wurde der zentrale Strahl aus dem Hintergrund vor der Rekonstruktion entfernt. Der daraus rekonstruierte Hintergrund enthält große Teile der Beleuchtung. Die Abweichungen sind in Bild g) logarithmisch dargestellt. Bei einem konstanten Startwert passt sich das Hintergrundlevel bei der gewählten Updatestärke vom  $\Delta = 0,00016$  in etwa 1000 Iterationen dem wahren Wert an und beinhaltet bei Abschluss der Rekonstruktion eine ähnliche Menge und Beleuchtungsdaten wie beim Start mit einer optimierten Schätzung.

Ohne Rauschen der Beugungsbilder ist eine exakte Rekonstruktion möglich. Enthalten die Beugungsbilder einen additiven Anteil als Hintergrund wird bei korrekter Vorgabe das Ergebnis der idealen Beugungsbilder rekonstruiert, vergleiche Bild 3.10 a). Der Algorithmus kann bei bekanntem Hintergrund die Daten während der Rekonstruktion korrigieren. Ist der Hintergrund unbekannt und wird leer initialisiert, ist in dieser Konfiguration keine Rekonstruktion möglich. Ist der Hintergrund viel schwächer oder lokal ist ein leeres Startfeld kein

<sup>1</sup>Ein Siemensstern ist eine binäre Struktur mit auf ein Zentrum zulaufenden dünner werdenden Strukturen.

Problem, besser ist jedoch immer einen ungefähren Anfangswert vorzugeben. Je genauer der Hintergrund zu Beginn der Rekonstruktion mit dem wahren Wert übereinstimmt, desto schneller konvergiert die Rekonstruktion. Im Bild 3.9 a) ist der entscheidende Ausschnitt der Objektphase für ein konstantes Hintergrundlevel von  $10^6$  Photonen als Startwert zu sehen. Das Objekt ist zu erkennen, wird jedoch vom strukturierten Hintergrund beeinträchtigt. Diese Strukturen werden durch Fehlanpassungen des Hintergrundes verursacht.

In Bild 3.9 g) wird die Konvergenz des Hintergrundes für die ersten 1000 Iterationen dargestellt. Danach bleibt der Hintergrund auf dem Niveau des tatsächlichen Wertes. Der Startwert liegt bei  $10^6$  pro Pixel. Im Verlauf der ersten 1000 Iterationen passt sich der Hintergrund bis auf weniger als 1% Abweichung vom Realwert an. Die Anpassung geschieht gleichmäßig, über die ersten knapp 1000 Iterationen und ist beispielhaft in Abbildung 3.9 g) gezeigt. Die Abweichung des Hintergrundes ist in Abbildung h) logarithmisch dargestellt. Die größten Abweichungen entstehen durch Anteile der Beleuchtung die in den Hintergrund verschoben werden. Der in allen Bildern präzise ungestreute Strahl wird bei der Simulation mit in den Hintergrund übernommen, da dieser konstant ist und nicht ausreichend variiert. Dieses Verhalten ist nicht vorgesehen, aber bei der Art der Hintergrundanpassung möglich. Besonders da bei dieser Simulation die Konvergenz nur einsetzt, wenn der Hintergrund bereits nahe am wahren Wert angepasst wurde. Bei den realen Experimenten, siehe Kapitel 5, ist der Effekt ebenfalls vorhanden, spielt jedoch kaum eine Rolle. Der zentrale Strahl wird umso stärker in den Hintergrund übernommen, je langsamer das Objekt konvergiert. Ist bereits nach wenigen Iterationen die Beleuchtung und das Objekt gut rekonstruiert, werden die entsprechenden Anteile im Folgenden nicht vom Hintergrund erfasst. Aus diesem Grund muss besonders bei starken inkohärenten Anteilen in den Beugungsbildern eine genaue Schätzung für den Startwert des Hintergrundes vorgenommen werden. Der Effekt, dass die Beleuchtung in den Hintergrund umgesetzt wird, kann durch einen verzögerten Start der Anpassung des Hintergrundes erreicht werden. Dafür wird erst nach einer definierten Anzahl von Iterationen eine Anpassung des Hintergrundes vorgenommen.

### 3.5.5 Positionsverfeinerung

Neben den Intensitätsverteilungen sind auch die Positionen des Rasters fehlerbehaftet. Beispielsweise können Drifts oder Vibrationen die Rasterpunkte relativ zueinander verschieben. Die Messdaten passen bei falschen Positionen nicht mehr zum ptychographischen Modell und erzeugen Bildfehler. In Abbildung 3.10 sind Rekonstruktionen mit verschiedenen Positionsangaben dargestellt. Die erste Rekonstruktion wurde mit den idealen Positionen durchgeführt. Das rote Gitter zeigt die verwendeten Positionen. Im Vergleich zum verwendeten Original in Bild 3.4 b) sind kaum Unterschiede nach der Rekonstruktion zu erkennen. Die Rekonstruktion in Bild 3.10 b) wurde mit falschen Positionen rekonstruiert. Der Kasten mit blauen Punkten in der unteren linken Ecke zeigt die verfälschten Positionen. In der Rekonstruktion ist der Siemensstern schemenhaft zu erkennen allerdings mit verringertem Kontrast und starken Artefakten. Details der Struktur sind nicht mehr rekonstruierbar, zum Beispiel verschwindet das Loch im oberen senkrechten Arm des Sterns völlig im Rauschen. Der sichtbare Rand

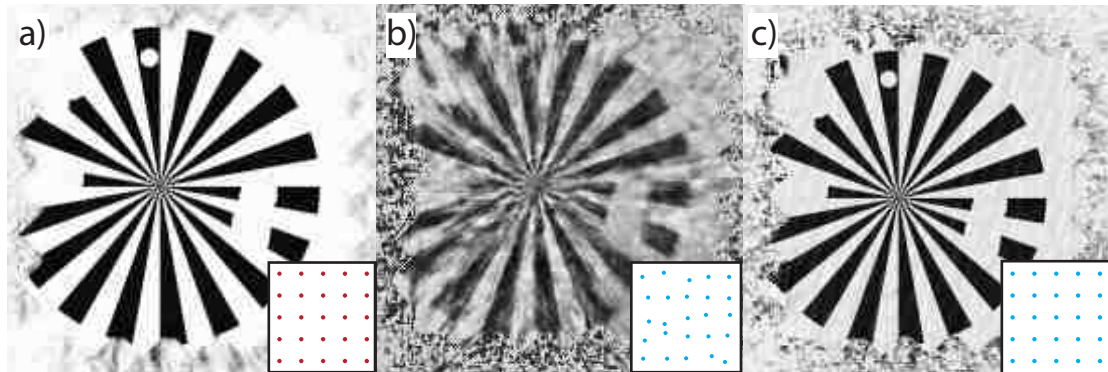


Abbildung 3.10: Es ist ausschließlich die Objektphase der Rekonstruktionen dargestellt. Die Amplitude der komplexen Objektfunktion zeigt ein äquivalentes Verhalten. Die Beleuchtungen zeigen keine signifikanten Unterschiede. a) Objektphase der mit den idealen Positionen durchgeführten Rekonstruktion. Das Positionsraster wird im Kasten rechts unten im Bild dargestellt. b) Für die Rekonstruktion wurden falsche Positionen (Kasten unten im Bild) verwendet. Die Rekonstruktion ist deutlich abberationsbehaftet und zeigt nur schemenhaft die Struktur des Sterns. Das Loch im oberen senkrechten Arm des Sterns verschwindet vollständig im Rauschen. c) Nach Nutzung der Positionskorrektur gleicht das Objekt der Rekonstruktion mit idealen Positionen.

um den Stern herum schließt den vom Primärstrahl abgetasteten Bereich ein und entsteht durch die kompakte Beleuchtung, Abbildung 3.4 a). Ausgehend von den falschen Positionen, Inset in Abbildung 3.10 b), soll der Algorithmus während der Rekonstruktion und ohne Zutun des Nutzers selbstständig die richtigen Positionen bestimmen. Das Ergebnis ist als Objektphase in Abbildung 3.10 c) zu sehen. Die Positionen (im Kasten unten rechts in den Abbildungen in 3.10) wurden richtig gefunden. Nach der Rekonstruktion mit der Positionskorrektur sind die Bilder den wahren Positionen zugeordnet und die Objektphase entspricht dem der Vergleichsrekonstruktion. Es sind leichte Artefakte zu sehen, die durch Neustarten der Rekonstruktion mit den richtigen Positionen vollständig behoben werden können. Das Bild entspricht dann exakt der Vergleichsrekonstruktion mit den wahren Positionen.

Es stehen zwei Verfahren zur Verfügung und beide nutzen die gemessenen Fernfeldbilder als Referenz. Bei beiden wird für alle im Suchraum des Beugungsbildes vorhandenen Positionen die Fehlersumme, Formel (3.6), berechnet und die optimale Position im Objekt bestimmt. Das bedeutet umgekehrt, sind die Positionen zu weit von den eigentlichen Ort entfernt, funktioniert die 'initiale' Rekonstruktion nicht und auch die Positionskorrektur kann nicht arbeiten. Das einfachere Verfahren sucht in einem Kasten um die bisherige Position nach einem geringeren Fehlerwert und nimmt die Position mit dem geringsten Fehlerwert. Das zweite Verfahren funktioniert prinzipiell genauso. Zur Beschleunigung des Suchvorgangs wird hier der Kasten durch eine Suchrichtung ersetzt. Die Richtung wird durch einen Gradienten festgelegt. Die Richtung wird über die Ableitung des Fehlerwertes nach den Positionen bestimmt. Die Berechnung des Gradienten ist in [42] ausgeführt.

Für beide Varianten gibt es Variationsmöglichkeiten, um das genaue Verhalten abzustecken. So wird die Iteration angegeben, ab der die Positionsverfeinerung beginnen soll. Außerdem



kann die Größe der Box als Suchbereich vorgegeben werden. Da die zu durchsuchende Box meist nur 1 oder 2 Pixel um die derzeitige Position groß ist, muss viele Male die Position verbessert werden bis die ideale Position gefunden ist. Würde man einen größeren Schritt wählen, kommt es zu dramatischen Veränderungen im Bild was die Konvergenz behindern kann. Außerdem ist es dann möglich, dass die Bilder bei periodischen Objekten um eine Periode verrutschen und dort die Rekonstruktion verfälschen. Aufgetreten ist dieses Verhalten vor allem bei sehr stark vibrierenden Probenumgebungen wie sie während der Experimente in Abschnitt 5.3 am LCLS gegeben waren. Das einfachere Verfahren liefert stabiler und schneller, das bedeutet nach weniger Iterationen, die richtigen Positionen. Der erhöhte Rechenaufwand wird damit ausgeglichen. Deshalb wird dieses Verfahren im Weiteren bei Verwendung der Positionskorrektur eingesetzt.

Die Positionsverfeinerung wird vor der eigentlichen Subiteration für ein Beugungsbild durchgeführt. Dabei werden die Fehlerwerte aller zu durchsuchenden Positionen berechnet und verglichen. Eine neue Position wird angenommen, wenn der neue Fehlerwert kleiner ist als der Fehlerwert an der ursprünglichen Position. Besonders für verrauschte Daten muss eine Schwelle festgelegt werden, ab wann eine Position besser als der Startwert ist. Für die Simulationen habe ich 5% des Fehlerwertes verwendet. Nach der Positionsveränderung verändert sich das Objekt, was von neuem zu einer Positionsveränderung führen kann. Dieser Veränderung wird Rechnung getragen, in dem zwischen den Positionsverfeinerungsschritten einige Iterationen keine Veränderung an den Positionen vorgenommen wird. Die Positionsverfeinerung versucht damit auch eine selbstkonsistente Lösung zu finden unter Optimierung der Positionen.

### 3.5.6 Normierungsanpassung

Neben der Positionierung ist auch die Beleuchtungsdosis Schwankungen unterworfen. Eine mögliche Ursache sind Intensitätsschwankungen des Lasers. In anderen Fällen kann der Ort oder die Richtung des Strahls verändert werden und damit die Fokussierungsoptik mit anderer Intensität beleuchtet werden, wie es am XFEL in Stanford der Fall ist. Selbst kleinste Änderungen können dann einen großen Einfluss auf die tatsächlich gemessene Dosis haben. Außerdem ist die Portionierung der Strahlungsdosis fehleranfällig. Einerseits durch schwankende Strahlintensitäten und andererseits entstehen Ungenauigkeiten durch die variierenden Öffnungszeiten der Verschlussblende. Bei typischen Belichtungszeiten von 100 ms sind Abweichungen von wenigen Millisekunden bereits Fehler von einigen Prozent und sind damit in der gleichen Größenordnung wie die typische Absorption im harten Röntgenbereich. Im simulierten Beispiel beträgt die Absorption nur 5,1%. Eine falsche Gesamtintensität im Beugungsbild erzwingt bei konstanter Beleuchtung eine falsche Absorptionsvariation im Objekt. Diese Fluktuationen sind im Model der Ptychographie nicht vorgesehen und führen nicht selten zu vollständig verrauschten Objektamplituden. Dieser Umstand kann im Vorfeld berücksichtigt werden, indem man die Dosis unmittelbar vor der Probe misst. Die Intensitätsmessung muss dafür nach allen optischen Elementen vorgenommen werden und deutlich genauer sein als die zu erwartende Absorptionsvariation. Bisher ist keine so kleine, genaue

und transmittierende Messeinrichtung eingesetzt worden. Die auftretenden Fehler können aber gleichfalls bei der Rekonstruktion berücksichtigt werden. Es wird dabei ausschließlich eine Dosisänderung angenommen, die Struktur der Beleuchtung bleibt jedoch konstant. Das Model muss lediglich um einen Parameter je Beugungsbild erweitert werden. In der Fernfeldebene wird beim Einsetzen der Intensitäten zusätzlich ein Normierungswert  $\eta_n$  für jedes Beugungsbild  $n$  eingefügt. Durch diesen weiteren freien Parameter verliert das Verfahren die Aussagefähigkeit zur absoluten Größe der Absorption. Die Amplitude des Objektes sollte dabei immer eine obere Schranke bei 1 besitzen, um unphysikalische Verstärkungen der Beleuchtung zu verhindern und ist nach unten nur bei zusätzlichem Wissen über die Probe zu beschränken.

Die Transmissionsfunktion des Objektes und der Beleuchtung ist durch eine Multiplikation der beiden komplexen Felder beschrieben. Dabei entsteht die Freiheit der Faktoren. Letztlich zählt nur das Produkt der Beiden, wie die Faktoren verteilt sind, ist dabei nicht festgelegt. Zur Bestimmung von absoluten Zahlen ist damit immer ein Referenzpunkt notwendig in dem die Transmission bekannt ist. In den meisten Fällen genügt dafür ein vollständig transparenter Bereich des Objektes an dem die Transmission kalibriert werden kann.

Besonders bei Röntgenexperimenten, aber auch bei optischem Licht, ist zwischen der verwendeten Strahlformungsoptik und dem Objekt zu wenig Platz für eine handelsübliche Messeinrichtung. Außerdem darf keine zusätzliche Streuung erzeugt werden. Messungen nach der Probe führen unweigerlich zu Problemen, da hier bereits die Absorption durch das Objekt mit eingeht. Eine Korrekturmöglichkeit ist die Beugungsbilder alle auf den selben Helligkeitswert zu skalieren. Auf diese Art und Weise wird jedoch der Einfluss der Absorption des Objektes unterdrückt. Erst durch eine systematische Anpassung der Normierungswerte ist die Amplitude rekonstruierbar. Passt man die Normierung der Beugungsbilder während der Iteration an, werden die Bilder nicht auf das selbe Objekt normiert und es kann so leicht zu einem sich selbst verstärkenden Effekt kommen. Wird die Anpassung vor der Iteration vorgenommen, ist der Effekt unterdrückt. Für ein stabiles Ergebnis müssen die Normierungswerte aller Beugungsbilder mit der selben Beleuchtung und dem gleichen Objekt angepasst werden.

Für die Normierung wird ein Gleichungssystem aufgestellt  $\mathbf{V} = \mathbf{W} \times X$ . Die Matrix  $\mathbf{V} \in \mathbb{R}^S$  enthält dabei die gemessenen Intensitätswerte des Beugungsbildes,  $\mathbf{W} \in \mathbb{R}^S$  enthält die simulierten Intensitätswerte ohne Normierung und die Normierungskomponente  $X \in \mathbb{R}$ .  $S$  entspricht der Anzahl der Pixel im Beugungsbild. Die skalare Normierung wird dabei so angepasst, dass die Gesamtabweichung über das Beugungsbild minimiert wird. Dieser Anpassungsschritt wird über alle Iterationen der Rekonstruktion hinweg wiederholt. Durch die falsche Normierung zu Beginn sind im Objekt Amplitudenschwankungen entstanden, die sich erst nach sehr vielen Anpassungsschritten glätten lassen. Aus diesem Grund sollte auch nicht der neue Normierungswert übernommen werden. Zur stabileren Rekonstruktion wird die Veränderung der Normierungswerte nicht vollständig, sondern in Teilschritten, vorgenommen.

Zur Illustration habe ich wieder das Beispiel aus Kapitel 3.2 verwendet. Die Beugungsbilder wurden ohne Rauschen des Detektors simuliert. Alle Intensitätswerte, auch solche

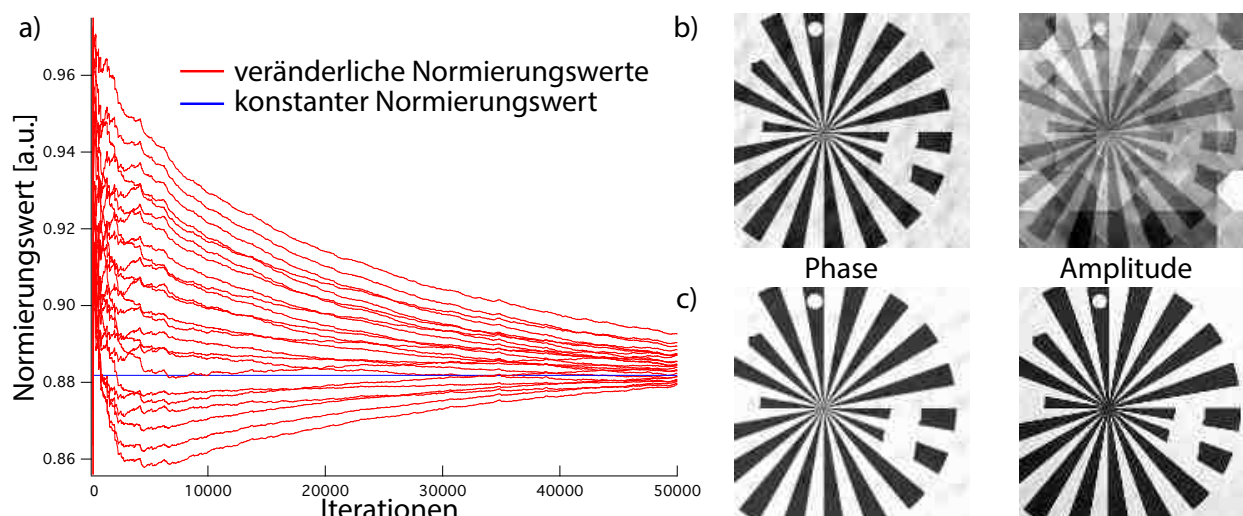


Abbildung 3.11: a) Verlauf der rekonstruierten Normierungswerte bei falschen Startwerten. Die Werte werden korrekt rekonstruiert, wenn alle den gleichen Wert erreichen. b) Bei Rekonstruktion mit falschen Normierungswerten, heißt falscher Helligkeit der Beugungsbilder wird das Phasenbild richtig rekonstruiert, die Amplitude hingegen zeigt starke Artefakte und für die Auswertung unbrauchbar. c) Nach Einführung von veränderlichen Normierungswerten rekonstruiert der Algorithmus eine passende Objektfunktion. Dabei wurde alle 10 Iterationen eine 70 prozentige Anpassung vorgenommen. Nach 50 000 Iterationen ist beinahe kein Unterschiede mehr zum Original in Bild 3.4 mehr zu erkennen.

mit sehr kleinen Werten, sind exakt wiedergegeben. Allerdings sind für die Rekonstruktion falsche Normierungswerte im Bereich 0,9 bis 1,1 vorgegeben. Bei der Simulation wurden alle Normierungswerte mit exakt 1 angenommen. Die falschen Werte gehen einher mit zum Beispiel ungenauer Belichtungszeit, oder Schwankungen bei der Laserleistung. Der Algorithmus übersetzt die schwankende Helligkeit der Beugungsbilder in starke Absorptionsstrukturen des Objektes. Wird die Rekonstruktion mit falschen Normwerten durchgeführt ist eine deutliche Gitterstruktur im Objekt zu erkennen, Abbildung 3.11 b). Die Rekonstruktion mit einem für zu bestimmende Normierungswerte erweiterten Model, verschwinden alle Helligkeitsschwankungen. Das Bild am Beleuchtungspunkt  $\{3,3\}$  wurde als Referenz nicht mit angepasst. Ohne einen bekannten Transmissionswert im Bild ist keine Angabe absoluter Transmissionswerte möglich.

### 3.5.7 Dicke Proben

Zu untersuchende Proben sind im Allgemeinen „dicke“ Objekte. Das sind Objekte innerhalb deren Material sich die Wellenfront stark verändert. Die Wechselwirkung von Objekt und Beleuchtung wird, im Widerspruch dazu bei der Ptychographie als Interaktion der Wellenfront mit einer dünnen Schicht beschrieben [64]. Bei Testproben, bestehend aus aufgedampften Schichten (mit Dicken von einigen Nanometern), ist diese Annahme gerechtfertigt. Auch bei dünnen Proben, wie einem Gewebeschnitt (Dicke  $100\ \mu\text{m}$ ), ist die Voraussetzung noch erfüllt. Ändert sich das Wellenfeld innerhalb der Probe jedoch maßgeblich, muss die Wechsel-

wirkung als eine in einer dicken Probe betrachtet werden [17]. Anlehnend an den Übergang von dünnen zu dicken Linsen, muss bei dicken Proben die Wechselwirkung in verschiedene Ebene aufgeteilt werden. Die eine dünne Objektebene wird in mehrere Ebenen aufgespalten. Jede Ebene für sich bildet dann eine Wechselwirkungsebene einer dünnen Schicht mit dem Strahlungsfeld. In der Abbildung 3.12 ist in den Skizzen a) II und b) II der Übergang von einer Schicht zu 3 Ebenen beispielhaft gezeigt. Auf Grundlage dieses Übergangs

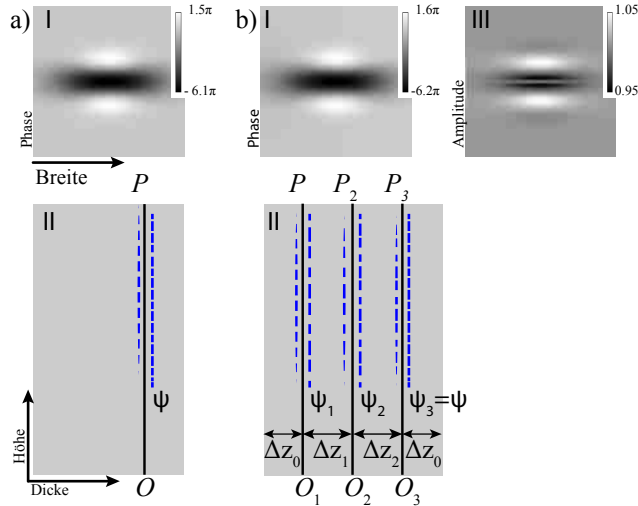


Abbildung 3.12: a) Das Standardmodell der Ptychographie beschreibt das Objekt als dünne Schicht mit einem komplexwertigen Feld  $O$ , dessen Phase im Bild oben links dargestellt ist. Bei dicken Proben ist diese Annahme keinesfalls gerechtfertigt. Für drei Wechselwirkungsebenen sind in Abbildung b) II die Ebenen und zugehörigen Felder dargestellt. Als dicke Probe wurden 50 Ebenen mit einem reinen Phaseneffekt wie in Bild a) I angenommen. Bei der Simulation mit Mehrfachwechselwirkung ergeben sich die in den Bildern b) in Phase (I) und Amplitude (III) gezeigten Objekteigenschaften.

habe ich ein Phasenobjekt mit 50 Ebenen simuliert. Bei nur einer dünnen Ebene wie in a) II ergibt sich für die Transmissionsfunktion, bei homogener Beleuchtung, kein Unterschied zum Objekt. Bei einem dicken Phasenobjekt mit 50 Ebenen ergibt sich für die auslaufende Welle  $\Psi$  ein anderes Bild. Der Phasenschub zeigt eine ähnliche Struktur, quantitativ ergeben sich Unterschiede von knapp 10 %. Die Simulation eines dicken Objektes mit gleichem projizierten Phasenschub ergibt einen stärkeren Phasenschub als bei einer dünnen Schicht. Außerdem wird die Amplitude bei dieser Simulation verändert. Zum einen ist die Amplitude nicht konstant und zweitens erzeugt die Amplitude in einigen Bereichen eine Verstärkung der Beleuchtungsfunktion. Diese Effekte sind im Experiment 5.4.5 aufgetreten und können mit dem Multisliceansatz gut erklärt werden. Im Mittel über das gesamte Bild behält die Amplitude den Wert 1, es wird also lediglich die Intensität durch die spezielle Phasenstruktur umverteilt. Die speziellen Eigenschaften einer solchen Struktur werden in Kapitel 5.4.5 besprochen.

Der Multisliceansatz [63] verändert den ersten und letzten Schritt einer ptychographischen Subiteration. Im ersten Schritt wird die Wechselwirkung der Beleuchtung mit dem

Objekt berechnet und im letzten Schritt die Aufteilung der Änderungen auf die beiden Felder. Für die Beschreibung der Wechselwirkung mittels dynamischer Theorie ist bisher keine inverse Beschreibung, beziehungsweise Algorithmus zur Aufteilung gefunden worden und ist daher nicht nutzbar. Als Näherung wird die Wechselwirkung in mehreren Ebenen aufgeteilt und zwischen den Ebenen des Wellenfeldes ein Teilstück  $\Delta z$  propagiert, dargestellt in Abbildung 3.12 b) II. Als Propagator  $\mathcal{P}$  zwischen den Ebenen wird eine Näherung des Fresnel-Kirchhoff-Integrals verwendet, bei der die Pixelgröße erhalten bleibt [1]. In der Literatur ist diese Art der Propagation als *Angular Spectrum Propagation* bekannt [35]. Das Doppelintegral wird für diesen Fall in einer Faltungsform dargestellt. Der Faltungskern kann, je nach Näherung, im Fourierraum analytisch berechnet werden, oder muss für jede Matrixgröße separat berechnet und Fouriertransformiert werden [11]. Zur Berechnung der Transmissionsfunktion wird ein Operator  $\mathcal{T}$  eingeführt, der ein Lichtfeld übernimmt, bis zur Ebene  $e$  propagiert und mit dem entsprechenden Objekt das Lichtfeld nach der Wechselwirkung mit der Ebene bestimmt.

$$\Psi_e(\vec{r}) = \mathcal{T}_e [P(\vec{r})] = O_e(\vec{r} + \vec{r}_n) * \mathcal{P}_e [P_{e-1}(\vec{r})] \quad (3.29)$$

Der Operator  $\mathcal{T}$  wird für jede Objektebene einmal angewendet, wobei die Propagationsabstände des Propagators  $\mathcal{P}_e$  zwischen den Ebenen unterschiedlich gewählt werden können. Die übliche Variante ist dabei jedoch eine gleichmäßige Aufteilung der Ebenen in der Probe. Zu bemerken ist hier die im Vergleich zur Gleichung (3.7) abweichende Bedeutung des Indexes. Der Index  $e$  beschreibt die betrachtete Ebene, nicht die verwendete Beleuchtungsposition  $i$ . Für alle Ebenen (Anzahl  $d$ ) angewendet, ergibt sich die Transmissionsfunktion  $\Psi$ , beziehungsweise  $\Psi_i$ , des Objektes.

$$\Psi = \prod_{e=1}^d \mathcal{T}_e [P(\vec{r})] \quad (3.30)$$

Die Beleuchtung wird unmittelbar vor der ersten Objektebene betrachtet, die erste Propagation entfällt damit. Für alle Ebenen wird der gleiche Operator ausgeführt und für jede Objektebene  $e$  wird ein Beleuchtungsfeld  $P_e$  direkt vor der Wechselwirkung definiert. Für die erste Ebene entspricht das Beleuchtungsfeld gerade der einfallenden Beleuchtung, für alle weiteren Ebenen der propagierten Transmissionsfunktion der vorherigen Ebene. Mit dem so gewonnenen  $\Psi_i(\vec{r})$  können die Schritte 2 bis 4 aus Abschnitt 3.4 wie gehabt durchgeführt werden.

Ein zweiter Eingriff ist bei Schritt 5 der Subiteration (Abschnitt 3.4.5) nötig. Analog zum Standardvorgehen wird für jede Ebene das Objekt und die Beleuchtung aktualisiert. Die Beleuchtung definiert dabei die Ausgangsdaten zur Anpassung der nächsten Ebene. Entsprechend dem ersten Schritt, wird der inverse Operator  $\mathcal{T}^{-1}$  definiert. Dieser Operator aktualisiert die Beleuchtung und Objektfunktion der Ebene und propagiert die Beleuchtung

in die nächste zu aktualisierende Ebene.

$$\mathcal{T}_e^{-1} = \begin{cases} 1. & O'_e = \mathcal{U}[O_e, P_e, \Psi'_e, \alpha] \\ 2. & P'_e = \mathcal{U}[P_e, O_e, \Psi'_e, \beta] \\ 3. & \Psi'_{e-1} = \mathcal{P}_e^{-1}[P_e] \end{cases} \quad (3.31)$$

Der Operator  $U$  entspricht dem in Gleichung (3.13). Das Objekt wird dabei in jeder Ebene angepasst und gespeichert. Die Beleuchtungsfunktion  $P_e$  wird ebenfalls angepasst, in die davor liegende Ebene  $e - 1$  propagiert und dort als aktualisierte Transmissionsfunktion  $\Psi_e$  verwendet. Bei  $e = 1$  entfällt der 3. Schritt und die Beleuchtungsfunktion wird als Ausgangspunkt für die nächste Subiteration verwendet.

Die mögliche laterale Auflösung<sup>2</sup> entspricht dabei der bei Ptychographie mit nur einer Ebene und wird durch die zusätzliche Dimension nicht beeinflusst. Es werden aber zusätzliche Freiheitsgrade durch weitere Objektebenen hinzugefügt. Diesen müssen genügend Messwerte in den Beugungsbildern gegenüberstehen, andernfalls ist das System nicht eindeutig bestimmt. Die Lösung des Phasenproblems bleibt durch die Erweiterung des Objektraumes unangetastet. Der einzige Unterschied besteht in der Zahl der Objektschnitte die rekonstruiert werden. Ebenso wird unverändert im Fourierraum die Anpassung an die Beugungsbilder vorgenommen.

Als Ergebnis wird das Objekt in mehreren Ebenen rekonstruiert. Dabei wird aus der Projektionsaufnahme eine dreidimensionale Information gewonnen. Jede der Ebenen beschreibt dabei die Wechselwirkungsstärke im halben Raum bis zur nächsten Ebene. Die beiden äußeren Ebenen nehmen nur im ersten Blick einen Sonderstatus ein. Das ptychographische Modell sieht ausschließlich innerhalb des Probenvolumens eine Wechselwirkung vor. Die beiden äußeren Ebenen liegen dementsprechend nicht an der Außenseite, sondern um einen halben Ebenenabstand,  $(\Delta z_0)$  innerhalb des Objektvolumens. Das Objekt ist somit vollständig beschrieben und auch Mehrfachwechselwirkungen können innerhalb des Objektes so beschrieben werden. Die Einschränkung auf dünne Proben ist mit dieser Erweiterung überwunden.

---

<sup>2</sup>Die laterale Auflösung beschreibt das Auflösungsvermögen in der Propagationsrichtung des Feldes.

# Kapitel 4

## Implementierung

Durch das Phasenproblem ist es nicht direkt möglich aus den gemessenen Beugungsbildern die Beleuchtungs- und Objektfunktion zu bestimmen. Die Felder müssen zur Lösung des Phasenproblems iterativ an die Daten angepasst werden. Die Umsetzung des iterativen Ptychographiealgorithmus in ein Computerprogramm ist der einzig gangbare Weg, um in kurzer Zeit die Beleuchtungs- und Objektfunktion aus den Beugungsbildern zu rekonstruieren.

Die Anforderungen liegen dabei in der einfachen Nutzbarkeit des komplexen und numerisch aufwendigen Algorithmus. Nur bei der Wahl der richtigen Parameter kann die Rekonstruktion gelingen. Die Parameter sind für jedes Experiment unterschiedlich. Die Rekonstruktion bedeutet außerdem eine immense Rechenleistung. In jeder Iteration werden für die Anpassung an jedes der  $n$  Beugungsbilder  $2n$  Fouriertransformationen und für die restlichen Schritte der Subiteration mindesten  $11nMN$  komplexwertige Multiplikationsoperationen durchgeführt. Für einen typischen Datensatz aus 512 Beugungsbildern mit  $256 \times 256$  Pixeln entspricht das für 100 Iterationen im einfachsten Fall 36,9 Milliarden Gleitkommaoperationen und 1024 Fouriertransformationen. Die notwendigen Operationen für das Einlesen und Ausgeben der Daten sind dabei nicht berücksichtigt. Für sich genommen sind die Zahlen keine Herausforderung für die heutige Rechentechnik. Bei den 512 Beugungsbildern handelt es sich um einen Datensatz von etwas 550 MB.

Nimmt man einen Prozessor neuester Bauart, mit einer Taktrate von einigen Gigahertz, sollte die Rekonstruktion nach wenigen Sekunden erledigt sein. Die hohe Peakrechenrate kann aber nicht durchgehend erreicht werden. Die Rekonstruktion, bei theoretischer Dauer von wenigen Sekunden, verlängert sich durch Speicheroperationen auf einige Stunden. Diese Zeit auf einen nutzbaren Rahmen zu begrenzen ist eine weitere Anforderung an die Implementierung. An das Rekonstruktionssystem werden so 3 Ansprüche formuliert:

1. Die Rekonstruktion muss verlässlich funktionieren, einfach benutzbar und in möglichst kurzer Zeit durchgeführt sein.
2. Die Funktionalität der Software besteht in der Abarbeitung des in Kapitel 3 beschriebenen Algorithmus.

3. Die Art der Nutzung und das Erreichen einer möglichst schnellen, einer quasi Live-Rekonstruktion, werden in diesem Kapitel besprochen.

Zu Beginn, Abschnitte 4.1 bis 4.3, wird die Wahl des Systems besprochen, dass zur Rekonstruktion notwendig ist. Die schnelle Rekonstruktion erfordert eine hohe Rechenleistung mit einer außerordentlich engen Anbindung des Speichers. Der zentrale Prozessor kann diese Aufgabe meistern, es gibt aber Systemerweiterungen die deutlich besser auf die Aufgabe zugeschnitten sind. Solche spezialisierten Strukturen werden als co-Prozessoren bezeichnet. Damit wird Punkt 1 der Anforderungen gewährleistet. Punkte 2 und 3 sind durch das Softwaredesign erreicht, das ab Abschnitte 4.4 behandelt wird.

## 4.1 Systemauswahl

Damit die Rekonstruktion verteilt möglich ist soll kein Großrechner verwendet werden, sondern handelsübliche Desktopsysteme oder Laptops. Zur Rekonstruktion eines Ptychogramms selbst bei vergleichsweise geringer Datenmenge, ist eine Rekonstruktion auf einem 1-Kern-Rechner nur mit langer Laufzeit möglich. Die Rechenleistung kann aber durch Erweiterungen des Rechnersystems deutlich erhöht werden. In modernen Desktopsystemen steigt die Rechenleistung durch die Einführung von Mehrkernprozessoren. Die kleine Zahl von Rechenkernen (Größenordnung 10) erzeugt bereits eine spürbare Beschleunigung für parallelisierte Probleme. Eine starke Skalierbarkeit ist dabei durch die Systemarchitektur allerdings nicht gegeben.

Die Kerne arbeiten unabhängig und müssen für die Zusammenarbeit extra koordiniert werden. Außerdem verschlechtert sich die Verbindung zum Speicher drastisch bei steigender Systemgröße, was zu großen Zeitverlusten führt. Große Rechencluster mit sehr vielen Kernen sind auf Grund der hohen Kosten schwer verfügbar und stehen in der Regel nicht exklusiv zur Verfügung. Außerdem kann die Infrastruktur nur mit großen Kosten erweitert oder verlegt werden.

Eine andere Lösung sind Beschleunigerkarten, wie sie seit vielen Jahren für die Grafikdarstellung als co-Prozessoren verwendet werden. Die **Graphic Processing Unit** bringt eine massive Parallelisierung mit sich. Die GPU verfügt, im Gegensatz zur CPU<sup>1</sup>, über sehr viele *einfache Kerne*<sup>2</sup> (einige 1000), die darauf optimiert sind alle gleichzeitig die gleichen Rechenoperationen für unterschiedliche Daten auszuführen. Dieses Designmerkmal eignet sich optimal für elementweise Matrixoperationen, die den größten Teil der Berechnungen ausmachen. Der eigene Speicher der GPU mit einer extrem schnellen Anbindung an die Rechenkerne ist ein weiterer Vorteil der GPU-Karten (Grafikkarten).

Systeme mit einer Grafikkarte auszurüsten ist bei fast allen Rechnern möglich und im Vergleich zur Bereitstellung von Rechenclustern sehr preiswert und schnell möglich. Der Stromverbrauch pro Rechenoperation bei Graphikkarten ist geringer als bei Computersystemen mit vergleichbar großer Anzahl an traditionellen Rechenkernen. Die Rechenarchitektur

---

<sup>1</sup>Central Processing Unit

<sup>2</sup>Einfach weil die Kern nicht einzeln ansteuerbar sind und nicht über einen eigenen Cache verfügen.



der GPU ist auf das Problem zugeschnitten. Es müssen auf große Datenmengen die immer gleichen Rechenoperationen angewendet werden. Die Grafikkarten sind damit als Co-Prozessoren für die Nutzung als Beschleuniger der ptychographischen Rekonstruktion optimal. Für die Handhabung der Daten stehen auf der Karte große und schnelle Speicherbereiche zur Verfügung. Weitere Vorteile sind die geringe physische Größe, eine große Verfügbarkeit und der im Vergleich zu Großrechnern geringere Preis.

Die komplette Rekonstruktion wird deshalb auf einer GPU ausgeführt. Die Co-Prozessoren besitzen jedoch auch Nachteile. So benötigen solche Systeme immer einen Host<sup>3</sup>, meist eine eigene Programmierung und zusätzliche Datentransfers innerhalb des Computers. Der nächste Abschnitt beleuchtet genauer worin die Unterschiede beim Einsatz einer GPU, im Vergleich zur CPU-basierten Rechnung liegen. Als Vergleich wird eine Berechnung auf dem Hauptprozessor herangezogen.

## 4.2 Vergleich CPU - GPU

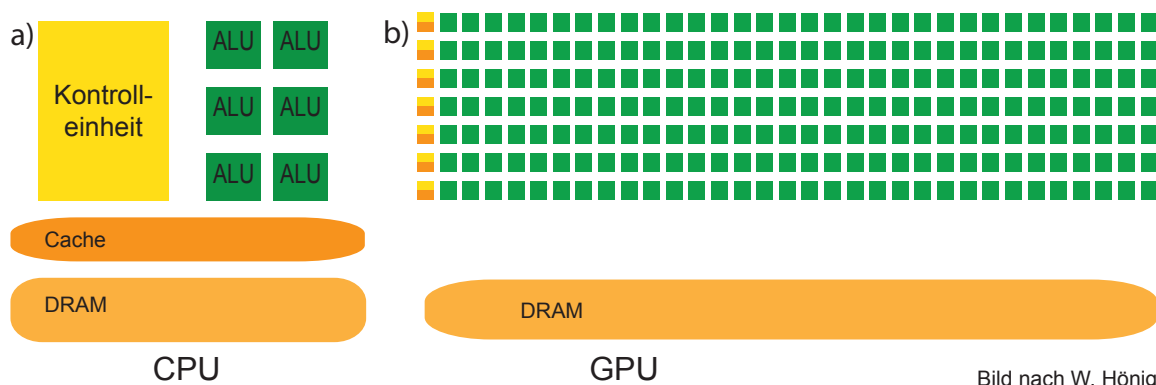


Bild nach W. Hönig

Abbildung 4.1: a) Das Hostsystem mit der CPU als zentrale Steuerungs- und Recheneinheit besitzt eine gänzlich andere Struktur als eine GPU. Sowohl die CPU des Hostsystems in a) als auch die GPU, b), besitzen einen flüchtigen Speicher (DRAM). Die CPU besteht aus wenigen, sehr komplexen Rechenkernen (ALU) die von einer zentralen Einheit vollkommen unabhängig gesteuert werden können. Die GPU besitzt im Gegensatz dazu viele einfache Kerne die gruppenweise angesteuert werden und je Gruppe einen gemeinsamen Cache besitzen.

Bildreferenz: In Anlehnung an W. Hönig [50].

Die Kernkomponente aller Computer ist der Hauptprozessor. Diese hoch entwickelten Prozessoren arbeiten mit Taktraten von einigen Gigaherz und haben typischerweise 4, 6 oder 8 Rechenkern [54]. Sie sind vielseitig einsetzbar, hoch optimiert und bei vielseitigen Anwendungen sehr schnell. In Bild 4.1 a) ist eine 6-Kern-CPU skizziert. Diese CPU kann gleichzeitig 6 unabhängige Operationen sehr schnell durchführen. Soll beispielsweise eine Matrixoperation ausgeführt werden, wiederholt der Prozessorkern für jedes Matrixelement

<sup>3</sup>Grafikkarten können nicht ohne CPU basierten Rechner betrieben werden.

die exakt gleichen Schritte mit jeweils unterschiedlicher Datenbasis. Trotz Vektorisierungsmöglichkeit<sup>4</sup> bei der Ausführung gleichartiger Operationen auf unterschiedliche Daten, kann die Berechnung auf spezialisierten Architekturen, wie einer GPU, wesentlich paralleler und damit schneller ausgeführt werden. Grafikkarten weisen für das vielfache Ausführen von gleichen Anweisungen auf unterschiedliche Daten eine ideale Struktur auf. In einer GPU sind sehr viele einfache Kerne verfügbar, die gruppenweise je einem Steuerzentrum folgen. Jede Gruppe berechnet mit einer Befehlsabgabe parallel einen ganzen Bereich der Matrix. Die Arbeitsverteilung an und innerhalb der Gruppen stellt einen wichtigen Parameter für die Performance des Systems dar. Die Aufgabenreihenfolge wird vom Hostsystem vorgegeben und es übernimmt auch die Ein- und Ausgabe von Daten, Ergebnissen und Parametern. Innerhalb einer zugewiesenen Aufgabe entzieht sich die Reihenfolge aufgrund der unabhängigen Steuerung der Kontrolle des Hostsystems. Wie so zum Beispiele die Aufgabe der Punktweise Addition zweier Matrizen an die GPU übertragen, kann nicht festgelegt werden welcher Reihenfolge die Pixel des Ergebnisses berechnet werden. Alle Eingabewerte müssen vor der Nutzung entweder direkt mitgeteilt oder bei wiederverwendeten Daten in den Speicher der Grafikkarte geladen werden. Die Ausgabewerte liegen anschließend ebenfalls auf der GPU vor und müssen zwischengespeichert werden. Grafikkarten besitzen für diesen Zweck einen eigenen Speicher mit schneller Anbindung an die GPU-Kerne.

Wolfgang Hönig zeigte, dass für die Ptychographie die Speicheranbindung an die Rechenkerne den Flaschenhals für die Geschwindigkeit der ptychographischen Rekonstruktion auf einer GPU darstellt [50]. Daraus folgt, dass wenn alle Daten auf der Grafikkarte vorgehalten werden, die GPU am effizientesten arbeiten kann. Ein häufiger Datenaustausch zwischen Host und Grafikkarte bewirkt auf Grund der zusätzlichen Aufgaben und Wartezeiten eine deutliche Verlangsamung der Rekonstruktion. Daten sollen nur einmal vom Host Speicher in den Speicher der GPU verschoben werden müssen und sollen dann für die gesamte Rekonstruktion genutzt werden. Den bei weitem größten Speicherplatz auf der Grafikkarte benötigen dabei die Beugungsbilder. Besonders bei ausgedehntem Gesichtsfeld, großen Beugungswinkeln oder kleiner Beleuchtung übersteigt der Speicherbedarf schnell den verfügbaren Platz im Speicher der Grafikkarte. Bei „gewöhnlichem“ Host-RAM lagert das System, automatisch, gerade nicht verwendete Speicherbereiche aus und legt die Daten auf der Festplatte ab. Bei GPU-RAM ist diese Auslagerung nicht vorgesehen und es muss für diesen Zweck eine angepasste Speicherverwaltung entwickelt werden. Eine Möglichkeit ist nur die, für die aktuelle und die folgende Subiteration, nötigen Beugungsbilder auf der Grafikkarte vorzuhalten. Parallel zur Subiteration wird dabei das Beugungsbild für eine folgende Subiteration an die Grafikkarte übertragen. Diese Parallelübertragung ist mit weniger Zeitverlust verbunden als eine Übertragung des Bildes direkt vor der Subiteration, erfordert aber auch einen größeren programmtechnischen Aufwand.

Programme die eine GPU verwenden, können auf die Rechenkapazitäten von einigen tausend parallel arbeitenden Kernen mit einem gemeinsamen schnellen Speicher zurückgreifen. Diese Kerne können aber nur parallel die gleiche Befehlskette abarbeiten. Das ausführen von

---

<sup>4</sup>Vektorisierung bedeutet das eine mehrfach auszuführende Befehlsfolge mit Zeitversatz parallel ausgeführt wird um alle Register eines Prozessors zu verwenden.

hochverzweigten Abfolgen ist so nicht effizient möglich. Diese sich verzweigenden Pfade können effizienter auf den unabhängigen Kernen des Hauptprozessors ausgeführt werden. Der Ptychographiealgorithmus besteht aber hauptsächlich aus pixel-weisen Matrixoperationen und ist daher für die parallele Ausführung auf einer GPU sehr gut geeignet. Das spezielle Design der Grafikkarten hat im Vergleich zur Ausführung auf dem Hauptprozessor einige Besonderheiten. Die Unterschiede werden im nächsten Kapitel genauer besprochen.

### 4.3 GPU Speicherhaltung

Co-Prozessoren sind für einen speziellen Zweck konzipiert. Die GPU ist dafür ausgelegt einmal erteilte Aufgaben ohne weitere Kontrolle durch das Hostsystem abzuarbeiten und die Ergebnisse bereit zu stellen. Eine direkte Rückgabe von Werten und Fortschritt an den Host ist nicht vorgesehen. Eine direkte Rückmeldung erfordert, dass das Hostsystem auf die Rückmeldung warten muss, was der GPU-Auslegung widerspricht. Der Ausführungsstrang von Befehlen im Hauptprogramm auf der CPU verläuft streng sequentiell, abgesehen von extra angelegten Seitenpfaden (Threads). Die Synchronität der Arbeitsabläufe von Hauptprozessor und GPU ist durch die Auslegung der GPU nicht gegeben. Das Zeitablaufschema in Bild 4.2 zeigt einen schematisierten Ablauf einer GPU mit einem Hostsystem. Nach dem Start eines Arbeitsauftrages, Kernel genannt, durch das Hostsystem muss der Abschluss der Berechnungen (Punkt 3.1 in Abbildung 4.2) nicht vom Host abgewartet werden. Das Host-

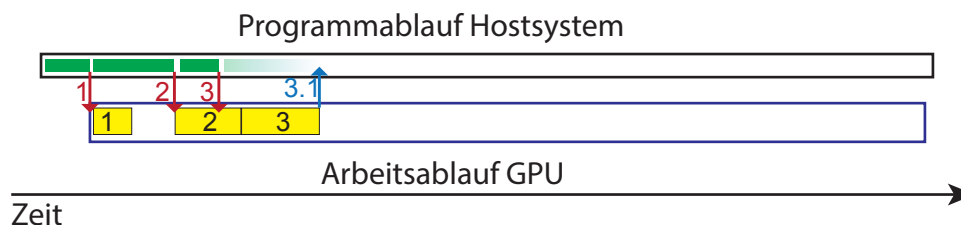


Abbildung 4.2: Die grünen und gelben Rechtecke stellen Arbeitspaket im Ausführungsstrang des Hostsystems und im Rechenablauf der GPU dar. Die verschiedenen Aufträge werden an die GPU übergeben und dort ohne Synchronisation abgearbeitet. Benötigt das Hostsystem eine Rückgabe (3.1) muss auf die GPU gewartet werden. Das Hostsystem kann nicht effektiv arbeiten, da auf den Rückgabewert nach Fertigstellung der Aufgaben gewartet wird.

system ist damit wieder frei für den weiteren Programmablauf. Abhängig von der Größe des Problems und der Geschwindigkeit beider Systeme kann die GPU beim Start eines Kernels, Kernel 3 im Ablaufschema in Bild 4.2, noch mit dem vorhergehenden Kernel beschäftigt sein. Arbeitsaufträge die während laufender Berechnung gestartet werden, verzögern sich bis diese an der Reihe sind. Das Hostsystem wird hingegen sofort wieder frei, und muss so keine Wartezeiten einhalten. Wartezeiten der CPU verlängern die Programmlaufzeit. Rückmeldungen sind nicht auf die Statusmeldungen begrenzt. Auch das Kopieren aus dem Grafikkartenspeicher zum Hostsystem stellt eine Art Rückmeldung dar. Kopieren vom Host in den Speicher der GPU ist dagegen unproblematisch, da hier eine Kopie der Daten im Hostsystem bis zum

Abschluss der Kopieroperation durch die GPU vorgehalten werden kann, ohne das Hostsystem aufzuhalten. Außer bei Kopieroperationen entstehen Probleme, wenn Speicherplatz auf der GPU freigegeben werden soll. Hierfür muss sichergestellt sein, dass auf den Speicherbereich nicht mehr zugegriffen wird. Es obliegt dem Programmierer dafür zu sorgen, dass nicht mehr auf den Speicher zugegriffen wird. Das Reservieren und Freigeben geschieht im Befehlsablauf des Hostsystems und erfordert damit wie das Kopieren zum Host für jedes Freigeben eine Synchronisierung und damit Zeitverzug. Zur optimalen Nutzung muss Speicherplatz möglichst häufig wiederverwendet werden, ohne dass dieser zwischenzeitlich freigegeben und neu reserviert wird. Ich habe zur Lösung des Problems eine Speicherverwaltung integriert die Speicherbereiche während der Laufzeit hält und bei passender Größe wiederverwendet. Die als nicht mehr genutzten Bereiche werden nach Größe sortiert, weiterhin vorgehalten und können so von der GPU wiederverwendet werden. Erst zum Programmende oder zu vorher festgelegten Punkten werden nicht genutzte Speicherbereiche freigegeben.

Die 3 Hauptunterschiede bei Berechnungen auf einer GPU im Vergleich zur Nutzung des Hauptprozessors sind die parallele, asynchrone Ausführung von Befehlsketten und ein eigener Speicher. Diese Vorteile werden für das Programmdesign genutzt und steigern die Effektivität nochmals. Die parallele und asynchrone Ausführung der Rechnungen auf der GPU bringt aber auch Nachteile. Beispielsweise muss vor dem Freigeben von Speicher im Speicherbereich der GPU vollständig synchronisiert werden. Des Weiteren muss vor dem Auslesen der Ergebnisse der Rechenpakete auf den Rechenabschluss gewartet werden. Das Kopieren von der GPU in das Hostsystem stellt dabei einen Sonderfall dar, der nicht komplett umgangen werden kann. Die Minimierung der Kopiervorgänge lässt den Einfluss auf einen irrelevanten Anteil sinken. So wird beispielsweise während einer Subiteration kein Kopiervorgang verwendet und erst nach der Iteration der Fehlerwert kopiert. Der Ptychographische Algorithmus lässt sich sehr gut in ein GPU-basiertes Programm umsetzen. Die Umsetzung wird im nächsten Abschnitt behandelt.

## 4.4 Programmteile

Die Umsetzung der Rekonstruktion in ein schnell laufendes Computerprogramm ist der einzige Weg aus gemessenen Beugungsbildern, mittels des abstrakten Algorithmus die Beleuchtungs- und Objektfunktion zu rekonstruieren. Bei Ptychografischen Rekonstruktionen wird der größte Teil der Rechenzeit für elementweise Matrix-Matrix-Operationen und Fouriertransformationen verwendet. Diese Operationen lassen sich besonders gut mit Grafikkarten ausführen. Wolfgang Hönig hat in seinem großen Beleg [50] gezeigt, dass durch die Nutzung von NVIDIA-Grafikkarten neuester Bauart und unter Verwendung der CUDA-Erweiterungen für C++ eine wesentliche Verkürzung der Rechenzeit möglich ist. W. Hönig hat eine Software geschrieben, die den direkten Vergleich mit und ohne Verwendung einer GPU-Einheit ermöglicht. Mit Hilfe des Testprogramms ist der Vergleich der Rekonstruktionsgeschwindigkeit möglich.

Das Testprogramm wurde in C++ mit CUDA-Erweiterung als textbasiertes Kommandozeilenprogramm entwickelt. Dabei stand im Vordergrund, die Rechenzeiten für den Durch-

lauf des Algorithmus mit verschiedenen Rechenarchitekturen zu vergleichen. Es wurde für alle numerischen Berechnungen 2 Varianten ausgearbeitet. Eine Variante führt alle Berechnungen auf der Grafikkarte durch. Als Vergleich wurde eine Variante geschrieben, die alle Berechnungen auch auf dem Hauptprozessor ausführen kann. Das zum Vergleich erstellte Programmpaket war Ausgangspunkt für meine Arbeit.

Während meiner Arbeit habe ich das Testprogramm zu einer schnellen und produktiven Software umgearbeitet und die in Abschnitt 3.5 vorgestellten Erweiterungen des ptychographischen Algorithmus eingearbeitet. Die Vorteile für die Berechnung aller Schritte auf der GPU wurden durch W. Hönig klar belegt. Die Vergleichsoption wurde nicht mehr benötigt und von mir im Laufe der Arbeit entfernt. Für eine Nutzung unter verschiedenen Bedingungen rund um die Welt habe ich die notwendigen Optionen und Einstellmöglichkeiten eingearbeitet. Das Arbeiten an verschiedenen Experimentierstationen erfordert zusätzlich den Umgang mit verschiedenen Dateistrukturen und Datenformaten. Die 4 gängigen Datenverfahren tiff, edf, cbf und hdf5 können als Quelle genutzt werden. Alle Ausgaben werden entweder im tiff- oder edf-Format ausgegeben. Zusätzlich wird eine Farbdarstellung für komplexe Zahlen als farbiges Bild im pgm Format ausgegeben. Zur Vermeidung von Kopiervorgängen werden alle Beugungsbilder in den Speicher der Grafikkarte geladen, dort weiterverarbeitet und zur Nutzung bereitgehalten. Das Ziel dabei ist, möglichst wenig Speicherplatz zu belegen und für die weitere Verwendung die notwendige Rechenkapazität zu minimieren. Zusätzlich müssen folgende Daten im Speicher der GPU vorgehalten werden: Masken für die Beugungsbilder, Felder für einen inkohärenten Hintergrund, die komplexe Beleuchtung des Objekts als komplexwertiges Feld und die für die Propagation genutzten Arbeitsmatrizen. Den bei weitem größten Speicheranteil belegen dabei die Beugungsdaten. Die Datenmenge übersteigt um ein Vielfaches die Menge aller anderen auf der GPU gespeicherten Daten. Daher wurde versucht die gemessenen Beugungsbilder so klein wie möglich zu speichern; alle von der Maske abgedeckten Bereiche werden automatisch entfernt und nicht gespeichert. Bereits in der Testversion von W. Hönig wurde die Genauigkeit der Kommazahlen von 64 bit auf 32 bit herabgesetzt. Die reduzierte Genauigkeit hat keinen nachweisbaren Einfluss auf die Rekonstruktion [50]. Diese Verringerung hatte einen zweiten Vorteil. Alle Rechnungen mit verringerter Genauigkeit werden doppelt so schnell ausgeführt.

Trotz aller Versuche die Datenmenge so klein wie möglich zu halten, erreicht die Datenmenge sehr schnell das Speicherlimit der Grafikkarte. Die Limitierung wird umgangen indem die Beugungsbilder nicht auf der Grafikkarte vorgehalten werden, sondern im Host-RAM gespeichert bleiben. In den GPU-Speicher wird dann nur das gerade zur Verarbeitung anstehend Bild kopiert. Die Nutzung des Hauptspeichers hat den Vorteil eines quasi unbegrenzten Speichers. Dafür muss jedoch in Kauf genommen werden, dass bei jeder Subiteration das Beugungsbild vom Hostsystem in den GPU Speicher kopiert wird und damit die Rekonstruktionsgeschwindigkeit beeinträchtigt. Für sehr große Datenmengen, die auch nicht im RAM des Hostsystems vorgehalten werden können gibt es eine weitere Erweiterung. Die Daten können als Binärdaten in temporären Ordnern auf einem Festspeicher vorgehalten werden. Diese Variante verlangsamt das System erheblich und sollte nur eingesetzt werden, wenn keine andere Möglichkeit besteht die Daten zu reduzieren oder den Rekonstruktions-

bereich aufzuteilen. Alle Operationen, die eine Matrix verändern, sind als Kernel ausgeführt. Dabei sind große Arbeitspakete gegenüber mehreren kleineren Kernels vorzuziehen. Bei jedem Kernel wird die Matrix aus dem Speicher geladen und nach der Transformation wieder gespeichert. Je Matrixpixel wird ein eigener Thread bei jeder Aufgabe gestartet. Es können so alle Matrixoperationen ohne Transfer zum Hostsystem durchgeführt werden. Das gesamte Programm ist darauf ausgelegt, nur die rekonstruierten Funktionen zurück zu kopieren. Weiterhin ist das Programm auf einfache Erweiterung ausgelegt. Zur Erweiterung des Grundprogramms können einzelner Kernels ersetzt werden, um das Programm so zu erweitern oder zu verändern. Das Gesamtprogramm besteht aus etwa 50 000 Zeilen selbstgeschriebener C/C++ Codes und die Dokumentation umfasst nochmals fast 10 000 Zeilen. Zum Übersetzen in Maschinensprache und zur Installation sind Skripte mit insgesamt weit über 1000 Zeilen Länge notwendig. Dabei wurden, wenn möglich frei verfügbare externe Bibliotheken verwendet um die Entwicklungszeit zu reduzieren und die Fehleranfälligkeit zu verringern.

#### 4.4.1 Externe Bibliotheken

Während der Entwicklung wurde darauf geachtet, dass das Programm so unkompliziert wie möglich gewartet, weiterentwickelt und genutzt werden kann. Durch den Einsatz der folgenden Bibliotheken wird eine schnellere und einfachere Entwicklung ermöglicht:

**CMake** Zur Installation und Konfiguration der Übersetzung des Quellcodes in eine ausführbare Datei wird das CMake-System verwendet. Damit wird die Konfiguration zum großen Teil übernommen, ohne dass der Nutzer eingreifen muss.

URL: <https://cmake.org>

**CUDA** Notwendige Programmbibliothek zur Installation. Die CUDA Umgebung stellt die Schnittstelle zum Rechnen auf der GPU bereit. Dabei werden neben dem Compiler `nvcc`, verschiedene Bibliotheken für bestimmte Einsatzbereiche wie Fouriertransformationen und BLAS-Routinen zur Verfügung gestellt. Die von NVIDIA zur Verfügung gestellten Routinen sind in größtmöglichem Umfang verwendet worden. Besonders sind hier die Routinen der BLAS-Bibliothek zu erwähnen, da diese einen extrem großen Geschwindigkeitsvorteil bieten.

URL: <https://developer.nvidia.com/cuda-zone>

**libconfig** Die externe Bibliothek ist vollständig integriert und leicht angepasst. Die bereitgestellte Übersetzung einer hierarchischen Konfigurationsdatei wird zur Eingabe aller Parameter und Algorithmeinstellungen verwendet. Durch die vollständige Integration ist die Verwendung für den Nutzer nach außen hin nicht sichtbar.

URL: <http://www.hyperrealm.com/libconfig>

**g3log** Zur Ausgabe von Statusmeldungen und eines Logfiles wird die asynchrone Ausgabe verwendet. Die Bibliothek ist mit dem Quellcode vollständig integriert und leicht an-

gepasst.

URL: <https://github.com/KjellKod/g3log>

**TIFF** Die Bibliothek wird zur Ein- und Ausgabe von Bilddaten verwendet und muss vom System bereitgestellt werden.

URL: <http://www.simplesystems.org/libtiff/>

**HDF5** [optional] Die Bibliothek wird für das Einlesen von Daten aus Nexusdateien oder die Ausgabe verwendet. Die Bibliothek ist als shared library eingebunden und muss während des Programmbaus und zur Laufzeit vorliegen.

URL: <https://support.hdfgroup.org/HDF5/>

**CBF** [optional] Zum Laden von Daten aus CBF Dateien muss die Programmbibliothek während des Programmbaus zur Verfügung stehen und ist anschließend vollständig integriert.

URL: <http://www.bernstein-plus-sons.com/software/CBF/>

**CImg** [optional] Während der Vorbereitungen und Rekonstruktion können ausgewählte Fenster dargestellt werden. Diese vollständig integrierte Bibliothek stellt die notwendigen Funktionen bereit. Zur Nutzung wird die X11 Fensterverwaltung benötigt.

URL: <http://cimg.eu>

**X11** [optional] Die für die Fensterverwaltung verwendete Bibliothek wird von CImg benötigt und von den meisten Betriebssystemen bereitgestellt.

URL: <http://www.x.org>

Die verwendeten Bibliotheken sind frei verfügbar und dürfen ohne lizenzrechtliche Abgaben verwendet werden. Zum Teil sind die Bibliotheken im Quellcode einbezogen und erfordern keine gesonderte Installation, die notwendigen Lizenzvernetzungen sind im Quellcode ebenfalls mit angegeben. Das betrifft die Bibliothek zur Konfiguration der Parameter libconfig und die CImg-Routinen. Beide sind vollständig in das Projekt integriert und so ohne gesonderte Konfiguration verwendet. Die anderen 6 Bibliotheken müssen vorher bereits installiert sein, soweit benötigt. Zum erstellen des Programms muss während der Konfiguration der Ort der externen Bibliotheken angegeben werden. Sind die zusätzlichen Pakete bereits vorhanden sind zur Installation des Programms nur grundlegende Computerkenntnisse nötig. Nach der Installation kann das Programm sofort ohne Einschränkungen genutzt werden. Die Rekonstruktion wird durch eine Konfigurationsdatei gesteuert. Diese wird der Instanz während des Programmstarts übergeben. Eine aktuelle Konfigurationsdatei kann aus dem Programm selbst heraus erzeugt werden. Darin sind alle notwendigen Parameter und weitere Optionen aufgeführt. Die Rekonstruktion selbst läuft ohne weitere Eingriffe des Nutzers ab. Alle Anweisungen für die Rekonstruktion sind im Konfigurationsfile aufgeführt. Während der Rekonstruktion kann die Live-Darstellung angepasst und zusätzliche Speicherpunkte festgesetzt werden. In der Konfigurationsdatei ist das gesamte Verhalten des Algorithmus festgelegt. Abweichungen vom gewünschten Verhalten während der Rekonstruktion sind dabei

als Fehler anzusehen. Die Fehlerrate gering zu halten, ist ein bestreben jeder Softwareentwicklung. Ich habe die Rate durch mehrere Maßnahmen auf einem geringen Level gehalten. Einerseits werden durch die Mitarbeit mehrerer Entwickler die Routinen mehrfach überprüft und verbessert. Andererseits ist für jeden Rechenkernel, heißt jede Rechenaufgabe die die GPU übernimmt, eine Testroutine geschrieben worden. Diese Routinen testen sowohl die richtige Berechnung als auch die korrekte Fehlerbehandlung der Implementierung. Dabei werden hauptsächlich Rechenroutinen geprüft. Die Konfigurationsabläufe sind zu komplex, um mit diesem Verfahren getestet zu werden. Hier wird über Systemtests mit verschiedenen Konfigurationen das Gesamtsystem getestet und über das Ergebnis der Rekonstruktion validiert.

#### 4.4.2 Testroutinen

Als Maßnahme zur Qualitätssicherung werden Softwaretests parallel entwickelt und angewendet. Es werden 2 verschiedene Testansätze verwendet. Der erste umfangreichere Test prüft Subroutinen des Programms, genannt Modultest. Der zweite Test wird als Systemtest bezeichnet und prüft das Gesamtsystem auf Funktionalität. Vorher bekannte Testdatensätze werden rekonstruiert und die Abweichung vom erwarteten Ergebnis geprüft.

Bei dem Modultest handelt es sich um vom Programmierer selbst erstellte Abläufe zur Überprüfung von Subroutinen. Das heißt für verschiedene Teilmodule der Software wird eine Testroutine vom Programmierer entwickelt. Damit wird sichergestellt, dass für alle bedachten Fälle die getestete Funktion die gewünschte Wirkung entfaltet. Dabei haben wir zur Durchführung der Einzeltests das externe Paket „gtest“ verwendet. Diese Programmbibliothek kann automatisiert die Tests durchführen und auswerten. Die Testumgebung ist das Softwareprojekt einiger Googlemitarbeiter. Die Bibliothek stellt eine Umgebung zur Verfügung in der die Tests wiederholbar unter definierten Bedingungen ablaufen. Es wird hierfür ein zusätzliches (Test-) Programm geschaffen. Dieses zusätzliche Programm nutzt die zu testenden Routinen und führt einen vom Programmierer festgelegten Testablauf durch. Alle Routinen sollen mittels einer eigenen Testroutine überprüft werden. Für sehr komplexe Routinen ist das nur schwer möglich. Wir haben uns dabei auf die zugrundeliegenden Arbeitsroutinen beschränkt. Funktionen, die ausschließlich die Auswahl der zu verwendenden Arbeitsroutine durchführen, unterliegen keinen systematischen Tests. Die Testroutinen sind jederzeit wiederholbar und so auch für den Endanwender nutzbar. Als Einschränkung ist anzusehen, dass auch die Tests vom Programmierer entworfen und implementiert sind. Dieser Ringschluss, heißt der Entwickler prüft sich selbst ob seine Implementierung korrekt funktioniert, kann leichter zu Fehlern führen als eine unabhängige Testung. Aus Kapazitätsgründen wird auf eine vollkommen unabhängige Prüfung (Blackboxtest) verzichtet. Diese fehlende Unabhängigkeit des Tests kann zu unentdeckten Fehlern führen, wenn nicht alle Grenzfälle korrekt getestet werden oder nicht bedachte Zustände eintreten. Der Quellcode ist verfügbar und jeder Nutzer kann selbst den genauen Programmablauf nachvollziehen und prüfen.

Die Systemtests werden mit verschiedenen Testdatensätzen durchgeführt. Dabei werden Testdatensätze erzeugt oder gemessen und anschließend für die Prüfung herangezogen. Dabei



können sowohl einfache Durchlauftests stattfinden, bei denen geprüft wird ob das Programm wie erwartet abläuft, ohne jedoch das Ergebnis zu prüfen. Besonders zur Untersuchung der Algorithmeinstellung ist das sinnvoll. So kann beispielsweise geprüft werden wie der Algorithmus auf Fehler bei der Einstellung oder Datenübernahme reagiert. Um zu prüfen, ob die Rekonstruktion erwartungsgemäß funktioniert, sind Testdatensätze beigefügt und stehen zum Testen zu Verfügung. Bei simulierten Datensätzen wird das Resultat direkt mit den Ausgangsbildern verglichen und kann so die korrekte Funktion des Programms zeigen. Bei realen Datensätzen kann lediglich die konsistente Rekonstruktion geprüft werden. Es ist so möglich mit realistischen Daten bei der Optimierung von Programmteilen die richtige Funktionsweise zu prüfen.

Beide Methoden ermöglichen die Prüfung der Implementierung und die Funktionsgrenzen von Algorithmusänderungen und Erweiterungen. Jede Veränderung des Algorithmus soll bessere Ergebnisse liefern. Über einen Vergleich zwischen den Algorithmen kann so die Verbesserung belegt werden. Bei Erweiterungen des Algorithmus werden zusätzliche Freiheitsgrade dem Algorithmus zur Anpassung überlassen. Eben diese zusätzlichen Freiheitsgrade können verfälscht werden, bis hin zum Zusammenbruch der Rekonstruktion. Anschließend wird das Programm mit der Erweiterung geprüft. Aus den falschen Werten müssen, für einen bestanden Test, die Parameter korrekt wiederhergestellt werden. Dabei kann für den zu bestimmenden Parameter ein kritischer Startwert ermittelt werden, bei dem die Rekonstruktion gerade noch funktioniert. Dieser Wert hat allerdings nur für den speziellen Testfall Aussagekraft. Je nach Streukraft, Photonenstatistik der Beugungsbilder und Vorhandensein anderer Fehlerquellen kann der kritische Bereich sehr unterschiedlich ausfallen. Die so bestimmten Werte zeigen aber kein wiederholbar verlässliches Bild für die Grenze der Rekonstruierbarkeit.

Die Testroutinen eignen sich daher nicht für die Bewertung von Rekonstruktionserfolgen, können aber Einzelteile des Programms prüfen. Systematisch werden mit diesen 2 Testmethoden die Rechenschritte der Rekonstruktion geprüft und Teilweise das korrekte Verhalten der Konfigurationsabläufe.

### 4.4.3 Ablauf

Das Programm ist in drei Teile gegliedert. Die Vorbereitung mit Datenakquise, die Rekonstruktion und die anschließende Datenausgabe. Im ersten Teil wird die komplette Konfiguration vorgenommen und alle Daten eingelesen. Danach führt das Programm die eigentliche Rekonstruktion durch. Die klare Trennung zwischen Konfiguration und Rekonstruktion ermöglicht eine sehr eindeutige Datengrundlage auf der die Rekonstruktion (theoretisch mehrfach) ausgeführt werden kann. Die Rekonstruktionsschritte beginnen nachdem alle Daten eingelesen und die gesamte Konfiguration vorgenommen ist. Damit kann die Rekonstruktionsroutine quasi ungestört ablaufen und es muss kein weiterer Konsistenzcheck oder Konfiguration durchgeführt werden. Als Ausnahme ist hier die Liveausgabe für den Nutzer zu betrachten. Dabei kann aber kein Einfluss auf die Parameter der Rekonstruktion genommen werden.

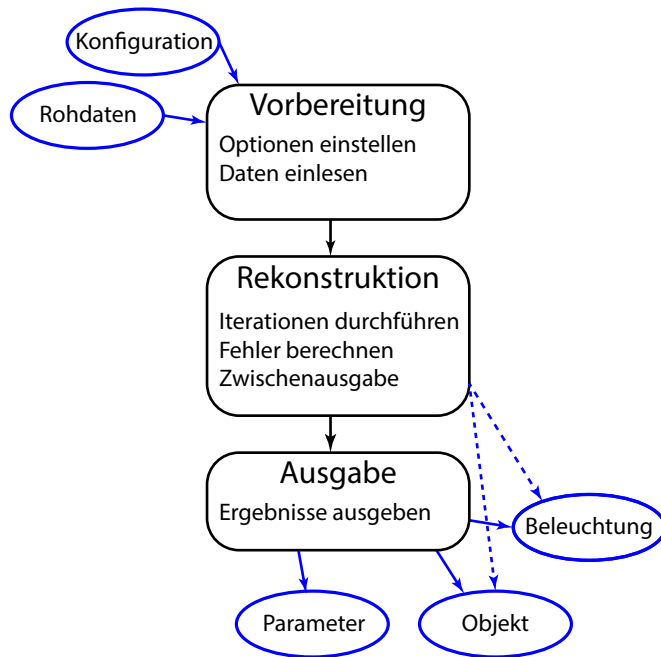


Abbildung 4.3: Das Programm ptycho ist intern in drei Teile gegliedert. Der Erste Konfiguriert alle Optionen und stellt die Rohdaten zur Verfügung. Im zweiten Schritt wird die eigentliche Rekonstruktion durchgeführt und der dritte Komplex schreibt alle berechneten Daten weg.

Im dritten Teil, Ausgabe, werden die Ergebnisse, allen voran die Objekt- und Beleuchtungsfunktion für weitere Nutzung bereitgestellt. Residualfelder, Fehlerwerte, Positionshistorien und alle weiteren, während der Iterationen berechneten Kenngrößen gibt das Programm unterschiedlich zusammengestellt und in verschiedener Form als Dateien im Ausgabeordner aus.

### Vorbereitung

In der ersten Phase werden alle Konfigurationsparameter eingestellt, sowie die Rohdaten eingelesen. Außerdem müssen die Anfangszustände aller Ergebnis- und Arbeitsmatrizen berechnet oder eingelesen werden. Auch die Vorbereitung gliedert sich in 3 Phasen.

Phase 1: Initialisierung und Konfiguration. Alle für die Rechenoperationen notwendigen Einstellungen werden vorgenommen, wie die Auswahl der GPU und die Bereitstellung der gewählten Rechenabläufe. Außerdem stellt die Konfiguration alle zum Einlesen der Beugungsbilder notwendigen Werte bereit und prüft diese.

Phase 2: Nach der Initialisierung wird eine Schleife über alle ausgewählten Beugungsbilder abgearbeitet. Innerhalb dieser Schleife werden die Beugungsbilder sequentiell eingelesen und so vorbereitet, dass die Bilder den geringst möglichen Speicher belegen, ohne dass Informationen verloren gehen, wobei die Speicherung auf Rechenaufwand und Zugriffszeit optimiert ist. Vor dem Laden des ersten Beugungsbildes werden die notwendigen Informationen über den Detektor in Form einer Pixelmaske und eines Flatfields bereitgestellt. Die Masken werden auf alle Rohdaten angewendet. Anschließend sieht der Ablauf das Beschneiden der erzeugten Bilder vor und aus den Intensitätswerten werden durch Wurzelbildung Amplituden berechnet. Eine spätere Veränderung der Bilder ist nicht vorgesehen und nötig. Die Beugungsbilder können zur Kontrolle dem Nutzer angezeigt werden und laufen dann als Film, synchron zum Ladevorgang.

Phase 3: Mit dem vollständigen Satz der Beugungsbilder und der relativen Positionen kann die Objektfunktion und die Beleuchtungsfunktion initialisiert werden. Außerdem müssen die Felder für den Hintergrund initialisiert werden und alle nicht mehr benötigten Felder werden freigegeben.

Die Vorbereitung für die Rekonstruktion ist damit abgeschlossen. Im nächsten Teil wird die Rekonstruktion iterativ durchgeführt.

## Rekonstruktion

Die Hauptarbeit des Programms wird im zweiten Teil durchgeführt. Aus den vorbereiteten Beugungsbildern und den Startwerten für Beleuchtung und Objekt wird, entsprechend des in Kapitel 3.1.1 beschriebenen Algorithmus und den konfigurierten Erweiterungen, iterativ die selbstkonsistente Lösung rekonstruiert. Dabei werden alle Rechenoperationen auf der Grafikkarte ausgeführt.

Die GPU arbeitet die Aufgaben ohne direkte Kontrolle des Hostsystems ab. Das Hostsystem beschränkt sich damit vollständig auf die Steuerung, während die Grafikkarte durchweg hochparallel die Operationen ausführt. Die asynchrone Vorgehensweise verlangt aber, dass für jede Rückmeldungen beide Systeme zu synchronisieren sind. Aus Performanzgründen soll das möglichst selten geschehen. Speicherhaltung und Rückgabewerte habe ich so optimiert, dass wenn möglich keine Synchronisation durchgeführt wird. Wenn unumgänglich dann ist es auf ein Mindestmaß reduziert, also nur einmal je Iteration als Block. Damit wird die Beschleunigerkarte optimal ausgenutzt und eine bestmögliche Leistung erreicht. Die Iterationen laufen linear ab. Alle verwendeten Beugungsbilder werden nacheinander angewendet, wobei die Reihenfolge in jeder Iteration variieren kann. Wird die Reihenfolge nicht verändert fördert das die Entstehung von Mustern, entsprechend des Scanrasters, in der Objektfunktion. Theoretisch ist jede mögliche Reihenfolge gleich oft umzusetzen, um ein gleichmäßige Rekonstruktion zu gewährleisten. Schon bei 10 Beugungsbildern bedeutet das mehr als dreieinhalb Millionen verschiedene Möglichkeiten. Bereits ein einziger Durchlauf jeder Reihenfolge ist nicht praktikabel. Um einen möglichst großen Parameterraum abzudecken, wird bei jeder Iteration eine zufällige Reihenfolge der Subiterationen durchlaufen.

Während der Rekonstruktion ist es möglich das Beleuchtungsfeld und die Objektfunktion in jedem Schritt auszugeben. Dabei können, neben den Ergebnissen der Rekonstruktion, auch ausgewählte Parameter, wie die Beugungsbildposition, dem Fehler- und Normierungswert dargestellt werden. So kann live bewertet werden, ob die Konvergenz in den Ausgabefeldern eintritt und eventuelle Korrekturen an den Parametern für weiter Rekonstruktionen abgeschätzt werden.

Wird die maximale Iterationszahl erreicht oder bricht der Nutzer das Programm ab, wird der Zustand der Rekonstruktion eingefroren und an die Ausgaberroutinen übergeben.

## Datenausgabe

Der letzte Abschnitt hat zum Ziel alle bei der Rekonstruktion genutzten Daten, soweit nicht bei der Eingabe definiert, auszugeben. Alle Daten werde in einem vom Nutzer vorher festgelegten Ordner abgelegt. Dabei wird nicht geprüft, ob eine vorherige Rekonstruktion dort liegt. Einzig die Konfigurations- und Abschlussausgaben bekommen einen eindeutigen Zeitstempel versehen. Damit ist gewährleistet, dass bei vielen Versuchen, zur Bestimmung der optimalen Parameterwerte, die Historie bekannt ist, jedoch nicht alle Zwischenergebnisse ge-

speichert bleiben. Würden die Ergebnisfelder ebenfalls mit Zeitstempel versehen und so nicht überschrieben, würden sich schon bei wenigen Optimierungsschritten riesige Datenmenge ansammeln. Da die Konfigurationshistorie erhalten bleibt, kann so auch im Nachhinein jedes Zwischenergebnis wiederhergestellt werden.

Neben der Beleuchtungs- und Objektfunktion sowie Hintergrundfeldern werden zum Beispiel auch sämtliche Fehlerwerte, Positionsveränderungen und Anpassgrößen für Intensität gespeichert. Diese Parameter jedes Beugungsbildes werden für jedes Bild und jede Iteration aufbereitet ausgegeben. Nur so ist eine vollständige Darstellung des Rekonstruktionsverlaufs auch im Nachhinein möglich. Für weitere Untersuchungen der Objektfunktion wird in den meisten Fällen die Amplitude und Phase verwendet. Die Amplitude ist dabei die Transmission und im Bereich  $[0, 1]$ . Die Phase wird bei der Umrechnung aus der Darstellung in Real- und Imaginärteil in Amplitude und Phase auf den Bereich  $\pm\pi$  beschränkt. Diese Beschränkung ist der Natur der Phase geschuldet und erzeugt willkürliche Phasensprünge in der Phasendarstellung. Zur besseren Auswertung kann die Ausgabe der Phasenwerte, neben der direkten Ausgabe, auch als entrollte Version konfiguriert werden. Für das konsistente Zusammenfügen der Phasenwerte stehen verschiedene Algorithmen zur Verfügung. Neben einfachen zeilen- oder spaltenbasierten Sprungsuchen steht auch ein globaler Algorithmus zur Verfügung. Durch Beschränkung des Gradienten des fouriertransformierten Phasenbildes sind die Phasensprünge nach der Rücktransformation konsistent zusammengefügt [32]. Dabei können im Phasenbereich unbestimmte Punkte auftreten, die beim Zusammenfügen der Phasenwerte nicht konsistent behandelt werden können. Die globale Methode glättet diese unstetigen Bereiche und erzeugt in der unmittelbaren Umgebung einen Bereich nicht vertrauenswürdige Phasenwerte. Außerhalb der unmittelbaren Umgebung beeinflussen die unstetigen Punkte die Werte nicht relevant und können für die Charakterisierung verwendet werden. Neben den rekonstruierten Daten ist auch die Programmausgabe in der Kommandozeile und die Eingabewerte Teil des Protokolls.

Mit Abschluss des dritten Teils ist die Rekonstruktion abgeschlossen. Für weitere Optimierungsschritte wird das Konfigurationsdokument verändert und kann ohne weiteres für einen weiteren Schritt genutzt werden. Diese Variante der Optimierung ist besonders bei den ersten Rekonstruktionen eines Experimentes wichtig, da hier die nötigen Parameter, wie beispielsweise Objekt-Detektor-Abstand, nicht genau genug bekannt sind. Diese Parameter können durch Testexperimente mit bekannten stark streuenden Strukturen ermittelt werden. Bei den wissenschaftlich bedeutsamen Experimenten ist der für die Rekonstruktion optimale Satz an Parametern dann bereits bekannt.

# Kapitel 5

## Experimente

Die im Kapitel 3.5 beschriebenen Erweiterungen des Algorithmus, kombiniert mit speziell für die Ptychographie entwickelten Aufbauten, verschieben die Auflösungsgrenze hin zu wenigen Nanometern [78]. Die Ptychographie ist sehr flexibel und kann, durch den einfachen experimentellen Aufbau, leicht mit anderen Verfahren kombiniert werden. Wird der Aufbau mit einem System zur Temperatursteuerung erweitert, können temperaturabhängige Messungen durchgeführt werden [6]. Diese Messungen stellen hohe Anforderungen an die Rekonstruktionsgüte und Geschwindigkeit. Nur bei Quasi-Live-Beobachtung des Verlaufs lässt sich der interessante Temperaturbereich finden und untersuchen.

So hoch auflösende Informationen gewähren Einblicke in die kleinsten funktionellen Strukturen von zum Beispiel Katalysatoren. Zur vollen Information über das System wird noch das chemische Verhalten des Materials selbst benötigt. Diese Daten konnten wir mit Ptychographie unter Ausnutzung der resonanter Streuung messen [51]. Wir konnten zeigen, dass mittels resonanter Ptychographie nicht nur Elementunterscheidung möglich ist, ebenso ist der Valenzzustand des Materials bestimmbar. Das Experiment wird in Abschnitt 5.2 beschrieben. Ausschließlich die Ptychographie ist in der Lage, das verwendete komplexe Beleuchtungsfeld mit Nanometerauflösung zu bestimmen. So kann auch das Beleuchtungsfeld mit höchsten Auflösungen untersucht werden. Diese Eigenschaft ist besonders bei der Charakterisierung neuer optischer Systeme von Nutzen. Wir haben die Ptychographie zur Abbildung des kohärenten Strahlprofils des Freie-Elektronen-Lasers LCLS in Stanford, USA, verwendet. Wir zeigen, dass der fokussierte Strahl eine Halbwertsbreite von 125 nm aufweist [93]. Außerdem kann aus dem komplexen Beleuchtungsfeld die Phasenlage jedes Pixels relativ zueinander bestimmt werden.

In diesem Kapitel wird eine Auswahl von Experimenten beschrieben, wobei jedes die Entwicklung einer Erweiterung oder einer anderen Eigenschaft bedingt, um aus den Messdaten das Objekt und die Beleuchtung zu rekonstruieren. Im ersten Experiment, in Abschnitt 5.1, liegt das Augenmerk in dieser Arbeit auf der Rekonstruktionstechnik. Mit Hilfe des von mir entwickelten Programms kann die für ein indirektes Verfahren nötige Rekonstruktion bereits während der Messung beginnen. Es ist so möglich, bereits Sekunden nach dem Abschluss der Messung erste Ergebnisse zu bekommen. Die Ptychographie bildet Größenordnungen bis hinunter zu wenigen Nanometer großen Strukturen ab und kann auf Grund

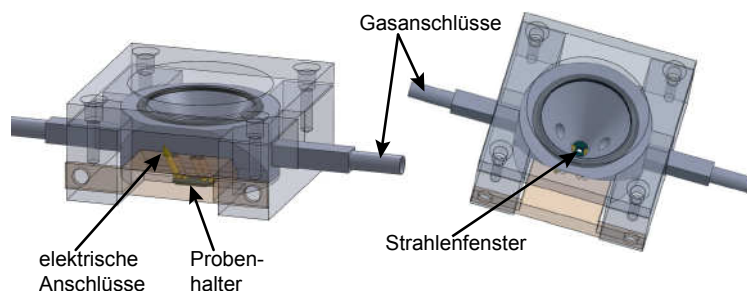
des hohen Durchdringungsvermögens von Röntgenstrahlung auch vollständig umschlossene Objekte abbilden. Der bisher in separaten Experimenten bestimmte chemische Zustand kann im ptychographischen Standardverfahren nicht bestimmt werden. Durch Messung von energiedispersiven Ptychogrammen konnte ich zeigen, dass die Ptychographie auch für die Messung des chemischen Zustandes geeignet ist. Das Experiment ist in Abschnitt 5.2 beschrieben. Zumeist werden für ptychographische Experimente Synchrotronstrahlungsquellen der 3. Generation verwendet. Diese Quellen bieten neben der hohen Intensität, ein ausreichend hohe Kohärenzlänge. Noch größere Kohärenzlängen liefern im harten Röntgenbereich nur SASE-Prozess basierte Quellen mit Linearbeschleuniger. Der statistische SASE-Prozess stellt für die Ptychographie ein besonders Hindernis dar. Das von mir entwickelte Programm enthält Positionskorrekturmechanismen die selbst die sehr ungenauen Positionierung bei diesem Experiment ausgleichen können, beschrieben in Abschnitt 5.3. Optische Laser bieten bei quasi frei wählbarer Intensität extrem hohe Kohärenzgrade mit Kohärenzlängen von einigen Kilometern. Das sind ideale Voraussetzungen für Ptychographie im optischen Spektrum. Unter meiner Führung wurde in mehreren Experimente, Abschnitt 5.4, das photorefraktive Material  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$  untersucht und verschiedene Materialeigenschaften im Zusammenhang mit dem photovoltaischen Tensor untersucht.

## 5.1 Temperaturabhängige Ptychographie

Ptychographische Experimente sind im Vergleich zu anderen hochauflösende Röntgenmikroskopieverfahren mit relativ geringem experimentellen Aufwand möglich [5, 6]. Die linsenfreie Abbildung erlaubt die Gestaltung des Experiments mit großem Freiraum um das Objekt. Der zur Verfügung stehende Raum erlaubt Aufbauten zur Beeinflussung der Probe [49]. Ein Parameter ist beispielsweise die Temperatur der Probe. Zwei weitere Variablen sind die Zusammensetzung der Atmosphäre und deren Druck [37]. Damit sind wichtige Stellschrauben vorhanden, um die Wirkungsweise von Katalysatoren zu studieren.

Die Wirkungsweise von Katalysatoren kann nur durch *operando* Studien direkt untersucht werden [48]. Zur Bestimmung der Wirkungsweise müssen Informationen über alle Größenskalen unter Reaktionsbedingungen gemessen werden. Von der Makrostruktur bis hinunter zum chemischen Zustand des Katalysators werden genaue Informationen benötigt. Mit spektroskopischen Verfahren kann der chemische Zustand und das Verhalten während der Reaktion bestimmt werden [114]. Die Ortsauflösung der Verfahren ist durch die Strahlgröße und Probenstabilität auf einige Quadratmikrometer Mittelungsfläche beschränkt [89]. Die TEM-Bildgebung kann einzelne Atome auflösen, muss aber unter Vakuum durchgeführt werden []. In beschränktem Maße kann eine Niederdruck-Gasatmosphäre im TEM verwendet werden [111, 100]. Unter speziellen Bedingungen ist mit einer besonderen Zelle eine Untersuchung bei Umgebungsdruck möglich [18]. Größere Strukturen lassen sich mit Röntgenstrahlen, Dank des höheren Durchdringungsvermögens, besser untersuchen als mit Elektronen. Es können so auch große Strukturen mit künstlicher Umgebung *operando* untersucht werden. Für mittlere Größen bis hinunter zu 50 nm eignet sich die vergrößernde Röntgenmikroskopie [41]. Die Ptychographie schließt die Lücke der Untersuchungsmöglichkeit zwischen den chemischen

Abbildung 5.1: Die Zelle zur Untersuchung von Proben mit erhöhter Temperatur und verschiedenen Atmosphären. Die Zelle ist entworfen um die Probe sowohl mit einem Röntgenstrahl, als auch mit einem TEM untersuchen zu können.



Untersuchungen mittels spektroskopischer Analysen mit sehr geringer Ortsauflösung und der vergrößernden Röntgenmikroskopie. In einem späteren Experiment zeige ich, dass die Ptychographie sich auch zur Bestimmung des chemischen Zustandes eignet, siehe Abschnitt 5.2.

In diesem Experiment wurden 3 Proben untersucht [5, 6]. Im Abschnitt 5.1.1 wurde an einem Cluster aus Gold-Nanopartikeln der Einfluss einer künstlichen dynamischen Atmosphäre und von Temperaturerhöhung auf die ptychographische Bildgebung untersucht. Außerdem wurde der Aufbau mit dieser Probe charakterisiert. Mit dem charakterisierten Aufbau wurden die Degeneration zweier nanoporöser Goldschichten (np-Au) unter Temperaturerhöhung untersucht. Im Abschnitt 5.1.2 wird reines np-Au untersucht und im Vergleich dazu mit  $\text{CeO}_2$  stabilisiertes np-Au, beschrieben in Abschnitt 5.1.3.

In Kooperation mit dem Institut für chemische Technologie und Polymerchemie des Karlsruher Instituts für Technologie haben wir das Verhalten von Goldnanopartikeln und nanoporösem Gold unter künstlicher Atmosphäre und Temperaturveränderung untersucht [6]. Für diese Art von Untersuchungen ist zur Experimentführung eine ständige Beobachtung der Probe notwendig. Auf Grund des indirekten Charakters der ptychographischen Bildgebung ist eine nachgelagerte computergestützte Verarbeitung der Messdaten notwendig. Mit Hilfe des von mir entwickelten Programms zur Rekonstruktion ist eine Quasi-Live-Abbildung möglich. Alle Rekonstruktionen dieses Experimentes konnten, nach der Bestimmung aller Parametern am ersten Testobjekt, schnell und ohne Wartezeit durchgeführt werden. Eine genaue Beschreibung ist im entsprechenden Absatz auf Seite 63 zu finden.

### 5.1.1 Ptychographie unter künstlicher Atmosphäre

Für die Untersuchung wurde eine *in-situ* Zelle verwendet, Bild 5.1, [6]. Neben der möglichen röntgenmikroskopischen Untersuchungen sind ebenfalls *ex-situ* TEM-Untersuchungen möglich. Die Zelle schließt die Atmosphäre im Gehäuse ein. Zur Untersuchung mit Röntgenstrahlung sind 2 Fenstern vorhanden, eines im TEM Chip, als dünne SiN-Membran, das auch elektronentransparent ist. Das Andere ist eine röntgentransparente Kapton<sup>®</sup>-Folie. Über elektrische Zugänge kann das Heizelement des Proto-E-Chips<sup>™</sup> aktiviert und geheizt.

Die im Mittel 50 nm großen Partikel sind auf die einige 10 nm dünne SiN-Membran des Protochips aufgebracht. Zu Beginn wurde der Cluster unter natürlicher Atmosphäre und im zweiten Schritt bei Spülung der Zelle mit künstlicher Luft untersucht. Die Rekonstruktionen

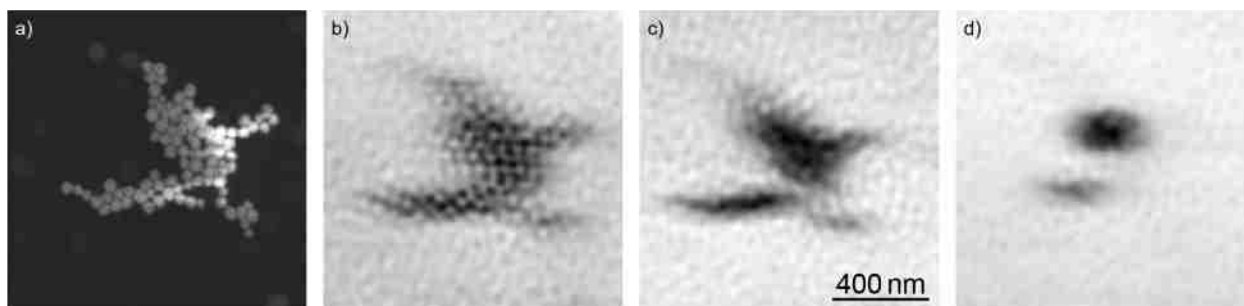


Abbildung 5.2: a) SEM Bild der Goldkugelanordnung auf der SiN-Membran b) Ptychographisches Phasenbild des Goldkugelclusters bei einem Gasfluss von  $1 \text{ mL min}^{-1}$ . c) Phasenbild bei Raumtemperatur nach einer ersten Wärmeinwirkung mit  $180 \text{ mW}$  Heizleistung (entspricht etwa  $720 \text{ K}$ ). Die Kugeln beginnen zu aggregieren. d) Nach einer zweiten Wärmebehandlung mit  $260 \text{ mW}$  Leistung (entspricht  $870 \text{ K}$ ) sind die Kugeln vollständig degeneriert.

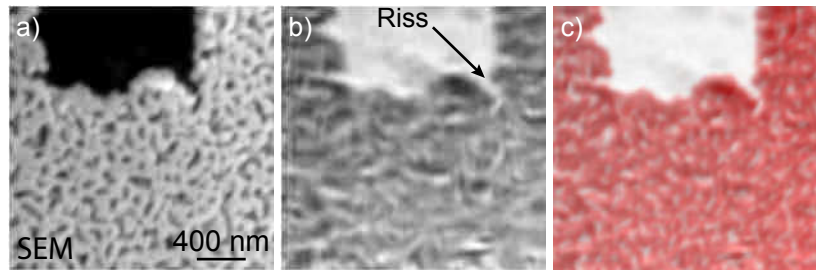
mit und ohne Gasfluss liefern, im Bezug auf Auflösung und Clusterform, gleiche Ergebnisse. Das Phasenbild des Partikelclusters ist unter Gasfluss von  $1 \text{ mL min}^{-1}$  synthetischer Luft in Abbildung 5.2 b) dargestellt. Damit ist gezeigt das ptychographische Bildgebung auch unter Gasfluss mit gleicher Auflösung funktioniert.

Anschließend wurde das Verhalten der Gold-Nanopartikel bei Temperatursteigerung untersucht. Die dynamische Atmosphäre bestand weiterhin aus synthetischer Luft. Als Test der Heizung wurden die Partikel mit  $180 \text{ mW}$  Heizleistung auf etwa  $720 \text{ K}$  erwärmt und mit dieser Leistung für  $25 \text{ min}$  behandelt. Nachdem die Probe wieder abgekühlt war, ist der Kugelcluster ptychographisch abgebildet worden. Die rekonstruierten Phasenwerte für das Objekt sind in Bild 5.2 c) dargestellt. Die Form des Nanopartikelclusters ist zu erkennen. Im Vergleich der Bilder 5.2 b) vor und c) nach der Wärmebehandlung sind jedoch deutliche Unterschiede erkennbar. Innerhalb der Struktur sind nach der Behandlung (Bild 5.2 c)) keine Nanopartikel mehr zu erkennen. Das wenige Material und die damit einhergehende geringe Streukraft bewirkt nur schwache Streusignale, besonders hin zu hohen Impulsüberträgen. Aus der Streuung der Goldkugeln wird die Auflösung auf  $30 \text{ nm}$  angenommen. Bei dieser Auflösung können einzelne  $50 \text{ nm}$  Kugeln nicht im Detail aufgelöst werden. Für höhere Auflösungen müssten Informationen bei höheren Impulsüberträgen gemessen werden. Die Fläche des Detektors ist bei der gegebenen Photonanzahl nicht voll ausgeleuchtet und besonders in den äußeren Regionen konnten wir keine Streusignale detektieren. Ein größerer Informationsgehalt setzt voraus, dass die Beugungsbilder mit mehr Photonen und so einem besseren Signal-Zu-Rausch-Verhältnis, gemessen werden. Das Verhältnis wird durch Reduktion des Hintergrundsignals, mittels eines Strahlfängers, verbessert und die Photonenzahl steigt bei der Verlängerung der Belichtungszeit [78].

Ein ptychographischer Scan wie in Bild 5.2 b) besteht aus  $1681$  Bildern, mit  $256 \times 256$  Pixeln je Bild. Mit der von mir entwickelten Software benötigt die Rekonstruktion bis zur Ausgabe der ersten Ergebnisse weniger als  $30 \text{ s}$ . Das Programm wird nach dem Abschluss des Scans gestartet und ermöglicht so eine schnelle Auswertung. Die in der Arbeit dargestellten Phasenwerte sind Ausgaben nach  $500$  Iterationen, mit  $40 \text{ nm}$  Auflösung. Wird das



Abbildung 5.3: a) Oberfläche der nanoporösen Goldschicht, abgebildet durch ein SEM. b) Phasenbild der Schicht bei Raumtemperatur und unter Schutzgas. Der Pfeil zeigt den beobachteten Riss. c) In der Überlagerung des invertierten SEM Bildes in rot mit dem Phasenbild bei Raumtemperatur.



Programm bereits vor Abschluss der Messung gestartet, können erste Ergebnisse mit eingeschränktem Gesichtsfeld noch während der Messung vorliegen und bereits wenige Sekunden nach Abschluss sind auch Ergebnisse mit vollem Gesichtsfeld möglich. Liegen Ergebnisse bereits wenige Sekunden nach dem Abschluss der Messung vor, kann vorbehaltlos von einer Live-Abbildung der ptychographischen Bildgebung gesprochen werden.

### 5.1.2 Nanoporöses Gold bei steigender Temperatur

Strukturen aus nanoporösem Gold (np-Au) sind durch die extrem große Oberfläche hoch reaktive Katalysatoren. Metalle mit so großer Oberfläche sind jedoch, gerade durch die große Oberfläche, bei höheren Temperaturen nicht stabil. Die aus der großen Oberfläche resultierende Energie drängt das Material seine Struktur schon weit unterhalb der Schmelztemperatur zu verändern, um die potentielle Energie der Oberfläche zu verringern. Damit verringert sich die katalytische Wirkung und deshalb der Vorteil von nanoporösen Strukturen. Die Oberfläche kann durch Überziehen mit  $\text{CeO}_2$  stabilisiert werden, ohne dabei die Wirkung als Katalysator relevant zu beeinträchtigen [6].

Als Model für einen Katalysator wird eine 100 nm dicke Schicht nanoporösen Goldes verwendet. Das nanoporöse Gold entsteht durch Herauslösen der Silberkomponente mit Salpetersäure aus einer Folie einer AgAu-Legierung. Die Probe wird anschließend mit deionisiertem Wasser gewaschen und auf ein Kupfer-TEM-Gitter (100ter Maschenweite) übertragen. Zur besseren Orientierung und Stabilisierung wird auf die Schicht ein Aluminiumrahmen aufgebracht. Die schwammartige Goldprobe ist nicht temperaturstabil genug um als Katalysator optimal zu funktionieren, kann aber durch Überziehen der Oberfläche mit Ceroxid stabilisiert werden. Die zu stabilisierende Schicht wird mit Cernitrat in Ethanollösung benetzt und getrocknet. Anschließend wird während dem Backen der Probe die Beschichtung in Ceroxid umgewandelt.

Am Verhalten des reinen np-Au wird der Einfluss der Temperatur auf die Bildgebung untersucht. Die Probe wird steigenden Temperaturen ausgesetzt und bei jedem Schritt die Veränderung des Materials abgebildet. Die Atmosphäre besteht dabei wieder aus synthetischer Luft. Im Vorfeld wurde die Oberfläche der Probe mit einem Elektronenmikroskop unter Sekundär-Elektronen-Kontrast untersucht, dargestellt in Bild 5.3 a). Bei Raumtemperatur stellt die Ptychographie dieselbe Struktur in Projektion dar, das Phasenbild ist in Abbildung 5.3 b) gezeigt. In der Überlagerung beider Bilder (Elektronenmikroskopie invertiert in rot, das ptychographische Phasenbild als Graustufen, Bild 5.3 c)) ist zu erkennen, dass beide

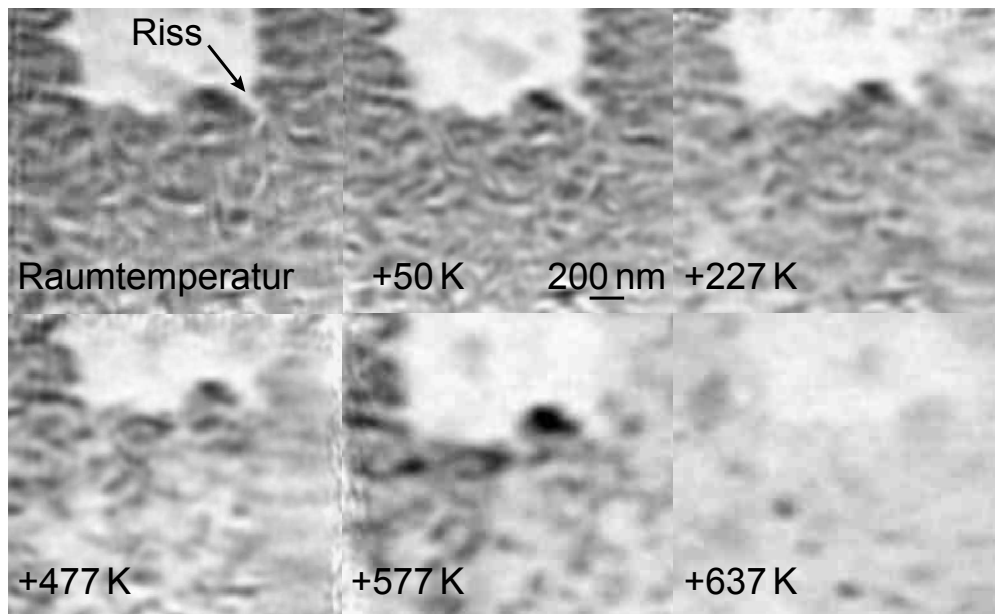


Abbildung 5.4: Ptychographische Phasenbilder bei der jeweils angegebenen erhöhten Temperatur. Der Pfeil markiert den beobachteten Riss. Ab +50 K sind erste Änderungen erkennbar, bis +577 K ist der Riss eindeutig zu erkennen. Während des letzten Temperaturschritts verändert sich die Struktur stark. Das kann auf das Schmelzen des Aluminiumrahmens zurückgeführt werden.

bildgebenden Verfahren trotz grundsätzlich unterschiedlichem Kontrastmechanismus die selbe Struktur abbilden. Die Sekundär-Elektronen-Mikroskopie bildet die Oberflächenstruktur ab, die ptychographische Bildgebung hingegen wertet die projizierte Materialdicke aus. An einem Riss bietet sich die beste Möglichkeit beide Kontrastmechanismen in Übereinstimmung zu bringen. Im Bild 5.3 b) ist der ptychographische Phasenkontrast gezeigt. In der rechten unteren Ecke ist ein gut zu beobachtender Riss zu erkennen und mit einem Pfeil markiert. Der selbe Riss ist in Abbildung 5.4 bei Raumtemperatur mit einem Pfeil gezeigt. Das Verhalten des reinen np-Au-Materials wird bei steigender Temperatur als Test der ptychographischen *in-situ* Bildgebung untersucht und gleichzeitig als Vergleichsprobe für den stabilisierten Goldschaum verwendet.

Für 6 Heizleistungen (0, 59, 130, 194, 270 und 315 mW) wird die Struktur der np-Au Schicht ptychographisch abgebildet. Die Temperatur kann als proportional zur Heizleistung anzusehen und wurde als Vergleichswert an anderen strukturell gleichen Chips gemessen. Zwischen baugleichen Chip beträgt die Abweichung bis zu 50 K. Die Heizleistungen entsprechen damit relativ zur Raumtemperatur  $\Delta T = 0$  K, 50 K, 227 K, 477 K, 577 K und 637 K. Der bei Raumtemperatur zu erkennende Riss, markiert durch den Pfeil im Bild 5.4, verändert sich bei steigender Temperatur. Bereits bei +50 K sind im Bild 5.4 kleine strukturelle Veränderungen zu erkennen. Mit steigender Temperatur verändert sich die Probe drastisch, der Riss bleibt auch während der ersten 4 Schritte bis +577 K sichtbar. Im letzten Schritt auf +637 K verändert sich die Probe am stärksten. Der Aluminiumrahmen ist während dieses Schrittes geschmolzen. Die Probe verliert durch den fehlenden Rahmen an Stabilität und

verändert sich strukturell.

Die Veränderung unterhalb der Schmelztemperatur von Gold wird mit der starken inneren Triebfeder der Oberflächenspannung erklärt. Besonders bei nanoporösen Strukturen mit extrem großer Oberfläche wirkt sich dieser Effekt aus. Die Struktur geht dabei verloren und die vorteilhaften Eigenschaften als Katalysator verschwinden. Zur Erhaltung der Oberfläche muss die gesamte Struktur stabilisiert werden, ohne jedoch die Reaktivität zu beeinflussen.

### 5.1.3 Stabilisierte nanoporöses Gold bei erhöhter Temperatur

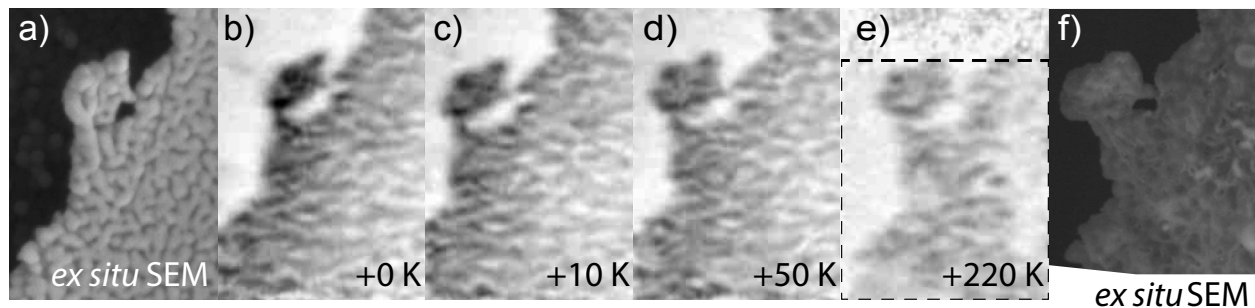


Abbildung 5.5: a) *Ex-situ* SEM-Bild vor der Wärmebehandlung b) Ptychographisches Phasenbild des Objekts der gleichen Strukturen c) Ptychographisches Phasenbild bei geringer Heizleistung von 24 mW, ungefähr 10 K über Raumtemperatur d) Bei +50 K verändert sich die stabilisierte Struktur einmalig e) Bei +227 K verändert sich die Struktur nicht weiter. Der Rahmen entspricht dem abgetasteten Bereich f) Nach der Temperaturbehandlung entspricht die Struktur bei SEM Bildgebung der Ptychographischen Bildgebung im letzten Schritt.

Bereits bei geringen Temperaturen setzen bei nanoporösen Gold Strukturveränderung ein und verhindern eine technische Anwendung als hochaktiver Katalysator. Nur durch Temperaturstabilisierung kann das Material als industrieller Katalysator eingesetzt werden. Die extrem große Oberfläche zieht sich unter Energiegewinnung zusammen und vernichtet dabei die feinen Strukturen. Das zu unterbinden ist eine Voraussetzung zur industriellen Anwendung. Als Ansatz wird die Oberfläche mit inertem Cerdioxid überzogen und dadurch weitestgehend stabilisiert. Die Stabilisierung kann nicht vollständig verhindern, dass feine Strukturen beim einmaligen Ausheilen bereits bei +50 K verschwinden, siehe Bild 5.5. Weitere Änderungen sind durch den Überzug aber unterdrückt. Während des Schritts bei +50 K verändert sich das reine np-Au bereits und die stabilisierte Form ebenfalls. Dieser Schritt wird für die stabilisierte Struktur als Ausheilen bezeichnet, da hier die Form sich einmalig ändert und anschließend bei allen weiteren Behandlungen keine weiteren Veränderungen zeigt. In Bild 5.4 d) ist die ausgeheilte Struktur dargestellt und im Bild e) ist der Temperaturschritt bei +220 K zu sehen. Die veränderte Struktur bleibt jetzt und auch bei höheren Temperaturen stabil. Nach der Temperatursequenz wurde *ex situ* noch ein SEM-Bild aufgenommen. Das in Abbildung 5.5 f) gezeigte SEM-Bild zeigt die selben ausgeheilten Strukturen wie die Ptychographische Aufnahme e). Das mit  $\text{CeO}_2$  als Stabilisator auf der Oberfläche des np-Au verhindert demnach die vollständige Degeneration des Katalysators und stellt damit den ersten Schritt in Richtung Anwendung von nanoporösen Strukturen dar.

### 5.1.4 Zusammenfassung

Die Ptychographie ist in der Lage hochaufgelöste Nanostrukturen in einem chemischen Reaktor darzustellen darzustellen [48]. Auch die durch Hitze angeregten Veränderungen der Struktur kann die Ptychographie abbilden.[5, 6] In dem Experiment konnten wir nachweisen das die Ptychographie unter künstlicher Atmosphäre funktioniert und auch hochaufgelöste Abbildungen unter erhöhter Temperatur möglich sind.

Die Temperaturschritte müssen während des Experimentes gesteuert und kontrolliert werden. Hier liegt der Vorteil direkte Bildgebung, die unmittelbar nach der Messung das Bild liefert. Indirekte Verfahren, wie die Ptychographie, benötigen eine Weiterverarbeitung der Messdaten. Für ptychographische Datensätze ist die Rekonstruktionszeit rechenintensiv und benötigen viele Ressourcen und vor allem Zeit. Mit Hilfe des von mir entwickelten Programms gelingt die Rekonstruktion in kurzer Zeit und ermöglicht die Daten quasi-live zur Verfügung zu stellen. Die Analyse kann direkt nach der Datenaufnahme beginnen. Der Nachteil einer indirekte Methode, dass die Messdaten rekonstruiert werden müssen, ist durch die schnelle und unmittelbare Rekonstruktion ausgeglichen. Die Ptychographie eignet sich so zur Überwachung von Experimenten.

## 5.2 Resonante kohärente Röntgenabbildung

In diesem Kapitel stelle ich ein Experiment vor, dass neben der bekannten hohen Ortsauflösung, die element-spezifische Bestimmung des Valenzzustandes (Oxidationszustand) zeigt. Die ortsauflöste Kenntnis des elementspezifischen Oxidationszustandes ist eine Grundvoraussetzung für das Verständnis der mikroskopischen Wirkungsweise von Katalysatoren. Nahezu alle chemischen Produkte kommen heutzutage während der Herstellung mit einem Katalysator in Berührung. Zur Entwicklung neuer Katalysatoren und die Verbesserung bereits bekannter Verfahren, in Bezug auf Aktivität, Lebensdauer und die Selektivität, ist es elementar notwendig, die Funktionsweise des Katalysators unter realen Reaktionsbedingungen zu verstehen [107, 113, 38]. Dafür muss während der Reaktion der chemische Zustand des Katalysators untersucht werden. Die Untersuchungen müssen dabei die Elektronenbindungszustände auf atomaren Längen genauso abdecken wie die makroskopische Struktur [8, 37, 112, 108].

Die Röntgenmikroskopie ist die ideale Methode zur Untersuchung unter Reaktionsbedingungen. Besonders die elementspezifische Absorptionsspektroskopie eröffnet Zugänge zur Funktionsweise [41] der Katalysatoren. Die Untersuchung unter realen Experimentierbedingungen ist mit Röntgenstrahlung auf Grund der hohen Eindringtiefe in Material möglich. Auf diese Weise können, im Inneren von abgeschlossenen Reaktoren, Reaktionen *in operando* untersucht werden [39, 45, 40, 44]. In Kombination mit einem tomographischen Verfahren können so die chemischen Zustände innerhalb des Katalysators in 3D gemessen werden [89]. Röntgenabsorptionmikroskopie, wie sie bisher verwendet wird, hat ein Auflösungsvermögen bis hinunter zu etwa 100 nm. Zwischen atomarer Auflösung von Röntgenbeugungsexperimenten und Elektronenstrahlmikroskopie liegt ein Bereich den keine der vorhandenen Techno-

logien gut abdecken kann. Die Ptychographie schließt diese Lücke zwischen der atomaren Auflösung in der Röntgenbeugung und der unteren Grenze der konventionellen Röntgenmikroskopie [67, 86, 102].

Als Modell eines Katalysators werden Au-Nanopartikel verwendet, die mit kohärenten Photonen mit Energien im Bereich der Gold-L<sub>3</sub>-Kante bei 11,92 keV abgebildet werden. Der Verlauf des rekonstruierten Brechungsindex in der Probe lässt direkte Rückschlüsse auf das Material und dessen chemischen Zustand zu. Aus dem Verhalten des komplexen Brechungsindex an einer Absorptionskante kann direkt auf die Elementverteilung innerhalb der Probe geschlossen werden. Dieses Verfahren wurde bereits mit weicher Röntgenstrahlung demonstriert [7]. Mit weicher Röntgenstrahlung wurde um die Sauerstoff K-Kante herum gemessen und daraus die Elemente von einigen Mikrometer großen Kugeln, hergestellt aus entweder SiO<sub>3</sub> oder PMMA, bestimmt [7]. Im harten Röntgenbereich konnte bereits die Unterscheidung von Gold- und Silber-Nanopartikeln demonstriert werden [101]. Wir haben in unserem Experiment ebenfalls zwischen verschiedenen Elementen unterscheiden können. Zusätzlich ist auch die Untersuchung des lokalen chemischen Zustandes der Partikel mit hoher lateraler Auflösung möglich ist [51].

Für eine verlässliche Analyse werden in der Spektroskopie die Absorptionssignale verwendet. Diese lassen sich relativ einfach messen, bieten aber nur geringe laterale Auflösung. Bei der Ptychographie mit harter Röntgenstrahlung eignet sich die Amplitudeninformation, auf Grund des stärkeren Rauschens, nicht für eine quantitative Analyse. Der Phasenschub kann bei schwachen Proben deutlich verlässlicher und rauscharmer rekonstruiert werden, vergleiche Bild 5.6 b) und c). Beide Anteile des Brechungsindex, Real- und Imaginärteil, sind über die Kramers-Kronig-Relation gekoppelt und enthalten die gleiche Information über die Probe [1]. Aus den, in der konventionellen Spektroskopie ermittelten, Transmissionsverläufen können so Referenzkurven für den Verlauf des Realteils (Phasenschub) des Brechungsindex berechnet werden. Über Vergleiche mit den Referenzkurven für verschiedene chemische Zustände kann der Zustand der Probe ermittelt werden. Wir haben dafür den Verlauf von metallischem Gold und Au<sup>3+</sup> bestimmt, in Phasenschub umgerechnet und mit den aus der Ptychographie ermittelten Werten verglichen.

### 5.2.1 Probe

Ziel des Versuches war mittels ptychographischer Bildgebung den Valenzzustand von Gold zu bestimmen. Die Testprobe sollte außerdem zeigen, dass eine Elementunterscheidung möglich ist. In diesem Experiment soll Platin von Gold unterschieden und für das Gold der Oxidationszustand angegeben werden. Das Gold wurde in Form von Nanopartikeln aus einer Colloidlösung auf eine 20 nm dicke Silizium-Nitrit-Membran (TEMwindows.com) aufgebracht. Die Lösung enthielt 95 % kugelförmige Partikel, mit im Mittel 100 nm Durchmesser. Die restlichen 5 % der Partikel sind nicht kugelförmig. Im oberen Cluster in Bild 5.6 a) ist eines der nicht kugelförmigen Partikel zu erkennen. Als Materialunterscheidung wurde Platin ausgewählt, aufgrund der Nähe von Platin und Gold im Periodensystem. Die beiden Elemente Pt und Au besitzen eine sehr ähnlich besetzte Elektronenhülle: Pt[5d<sup>9</sup>6s<sup>1</sup>], Au[5d<sup>10</sup>6s<sup>1</sup>]. Die

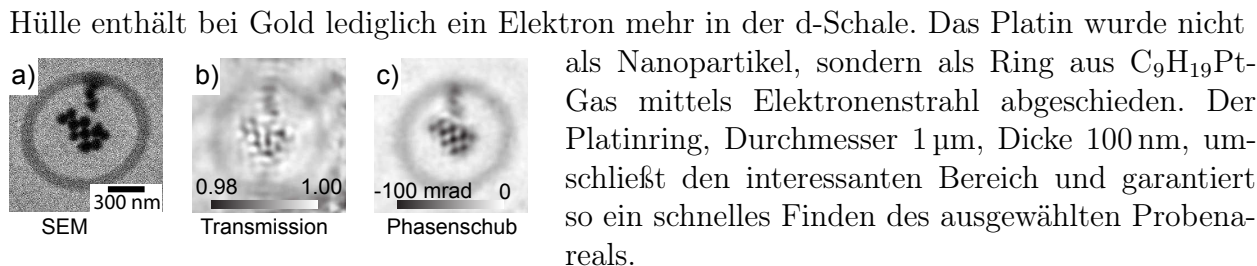


Abbildung 5.6: a) Das Testobjekt wurde im SEM vorher ausgewählt und der Pt-Ring aus der Gasphase abgeschieden. b) Bei 11 896 eV rekonstruiert der Algorithmus Transmissionsunterschiede bis zu 2% und einen negativen Phasenschub von bis zu  $-100$  mrad.

Eine ptychographische Rekonstruktion des betreffenden Bereiches zeigt die gleichen Strukturen wie das SEM-Bild 5.6 a). Die aus der ptychographischen Rekonstruktion, für  $E=11\,896$  eV, rekonstruierte Transmission und der Phasenschub ist in den Bildern 5.6 b) und c) gezeigt. Die Absorption von  $A = 2\%$  und der gemessene Phasenschub von  $-100$  mrad passen gut zu den berechneten Werten für reines Gold theoretisch erwarteten Werten von  $\Delta\phi_T = -109$  mrad und  $A_T = 1,5\%$ .

## 5.2.2 Strahlcharakterisierung

Das Experiment wurde an der Beamline P06 der Synchrotronstrahlungsquelle PETRA III. [87] in Hamburg durchgeführt. Das Röntgenmikroskop für harte Röntgenstrahlung ist für die Ptychographie, auf Grund der hohen Kohärenzlänge und der Möglichkeit das Objekt mit dem Strahl abzutasten, sehr gut geeignet [91, 95].

Die Photonenenergie der Strahlung wird mittels eines Si-(111)-Monochromators mit 2 Kristallen, mit festem Austrittsfenster, festgelegt. Während des Experiments wurde der Speicherring mit 240 Bunches und insgesamt 100 mA Ringstrom bei TopUp  $-1\%$  betrieben. Der Strahl wird am Mikroskop, 98 m nach der Strahlungsquelle im Undulator, von einem Satz aus 2 orthogonal angeordneten NFLs fokussiert [84].

Die Form des verwendeten Strahls wurde unmittelbar vor dem eigentlichen Experiment mit Hilfe eines andern Testobjekts, genannt Siemensstern, ptychographisch charakterisiert. Für die Charakterisierung wurde eine Energie oberhalb der Kante von 11,69 keV verwendet. Die Energie wurde oberhalb gewählt, um während der Vorbereitung des Experimentes die Gold  $L_3$  Kante mit anzuregen und so den Kontrast zu verbessern. Der Siemensstern besteht aus sternförmig angeordneten Ta-Strukturen mit kleinsten Stegbreiten von 50 nm in der Mitte der Struktur. In Bild 5.7 a) und b) sind die Amplitude und Phase des Rekonstruierten Objektes zu sehen. Der in Bild 5.7 a) rot umrandete Bereich entspricht der abgerasterten Fläche von  $2\,\mu\text{m} \times 2\,\mu\text{m}$ . Das Gesichtsfeld wurde mit  $50 \times 50$  Schritten, insgesamt 2601 Beugungsbildern, abgetastet. An jedem Rasterpunkt ist mit einem, auf der optischen Achse 2,1 m hinter vom Objekt positionierten Pilatus-300k [46], ein Beugungsbild gemessen. Jedes Bild wurde 0,5 s belichtet, das entspricht einer Dosis von etwa  $2,8 \cdot 10^6$  ph je Bild.

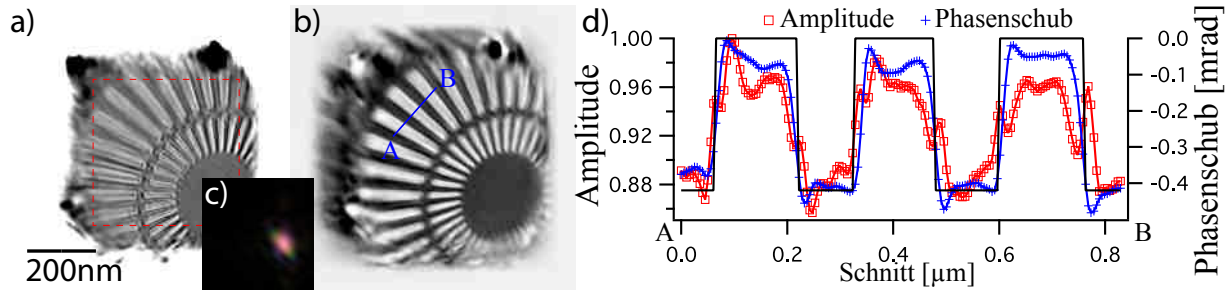


Abbildung 5.7: a) Ptychographische Amplitude des Testobjekts. Der rote Rahmen umschließt den vom Scan abgefahrenen Bereich der Probe. b) Ptychographisch rekonstruierter Phasenschub des Testobjekts. c) Komplexwertiges Beleuchtungsfeld. Die Helligkeit kodiert die Amplitude des Feldes, die Farbe die Phasenlage. d) Das Profil entlang des Schnittes  $\overline{AB}$  ist für die rekonstruierte Amplitude und Phase dargestellt. Die glatte schwarze Linie kennzeichnet den Verlauf des Materials in der Referenzprobe.

Genauso wie bei der eigentlichen Probe in Bild 5.6 ist die Phase des Testobjekts deutlich verlässlicher rekonstruiert als die Amplitude. Entlang des Schnittes  $\overline{AB}$  ist in d) die Amplitude und Phase aufgetragen. Der erwartete Verlauf ist als schwarze durchgehende Linie eingefügt und wird durch den Phasenverlauf genauer beschrieben als durch die Amplitudenwerte. Für die angegebenen 500 nm Ta sind eine Transmission von 82,4 % und ein Phasenschub von  $-568$  mrad zu erwarten. Berechnet man nach Formel 2.22 die Dicke aus den gemessenen Werten für den Phasenschub  $\Delta\phi = -350$  mrad ergibt sich eine Dicke  $d = 319$  nm. Eine ähnliche Dicke  $d = 301$  nm ergibt sich bei der in Bild 5.7 c) rekonstruierten Transmission  $T = 89\%$  aus Formel 2.23. Da in vorhergehenden Experimenten ähnliche Werte gemessen wurden kann davon ausgegangen werden das entweder das Material weniger dicht als der Standardwert von  $\rho = 16,624$  g/cm<sup>3</sup> ist oder die nominelle Dicke nicht erreicht wird. Da Transmission und Phasenschub vergleichbare Dicken ergeben und die Messungen mit früheren Messungen übereinstimmen [91], können die Rekonstruktionen als vertrauenswürdig angesehen werden.

Aus dem Vorexperiment ist die komplexwertige Beleuchtungsfunktion, Bild 5.6 c), bekannt und kann als Startwert für die Beleuchtung bei weiteren Rekonstruktionen verwendet werden. Die Beleuchtung ist nur näherungsweise bekannt, da sich bei jeder Änderung der Energie die Fokalebene der Linsen verschieben und so die Kaustik des Strahls verändert wird. Im Energiebereich von 50 eV ist dabei eine Verschiebung um nur wenige Mikrometer zu erwarten, der Fokus wird demnach nicht wesentlich verändert.

### 5.2.3 Resonante Untersuchungen

Für die Untersuchung des chemischen Zustandes der Gold Nanopartikel wurde in einem 50 eV breiten Energiebereich, um die Gold-L<sub>3</sub> Kante bei 11,920 keV Messungen durchgeführt. Der gesamte Bereich von 11,900 keV bis 11,950 keV wurde in 5 eV Schritten abgetastet und der Nahbereich um die Kante 11,910 keV bis 11,921 keV in 1 eV Schritten. Insgesamt ergeben sich daraus 21 Energien rund um die Absorptionskante. Der feine abgetastete Bereich wurde

auf Grund von Justagefehlern im Monochromator nicht oberhalb, sondern unterhalb, der Kante positioniert. Der wichtige Teil von 11,918 keV bis 11,921 keV wird aber abgedeckt.

Bei jedem Energiepunkt wurde ein Ptychogramm aufgenommen. Die Datensätze besteht aus jeweils 441 Fernfeldbildern, die ein Gesichtsfeld von  $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$  abdecken. Das Gesichtsfeld wird mit  $20 \times 20$  Schritten abgerastert. Das entspricht einem Abstand von 50 nm zwischen benachbarten Beleuchtungspunkten. Die Beugungsbilder wurden wie bei der Strahlcharakterisierung mit einem Pilatus-300k [46] auf der optischen Achse, 2,1 m nach der Probe, aufgenommen. Für die Datensätze im Abstand von 5 eV ist pro Beugungsbild 1,5 s integriert worden. Ein Ptychogramm dauert dann knapp 15 min. Für die Ptychogramme mit 1 eV Abstand wurden nur 0,3 s pro Bild gemessen. Damit reduziert sich die Zeit pro Scan auf ungefähr 3 min.

Jeder Energieschritt wurde unabhängig rekonstruiert. Der Startwert war jeweils das bei der Strahlcharakterisierung bestimmte komplexe Beleuchtungsfeld und ein leeres Objekt. Das komplexwertige Beleuchtungsfeld muss bei jeder Rekonstruktion mit angepasst werden, um der Verschiebung durch die Energieänderung Rechnung zu tragen. Die rekonstruierten Beleuchtungsfelder sind für den Energiebereich sehr ähnlich. Beispielhaft sind in Bild 5.8 für 5 Energien die komplexen Beleuchtungsfelder dargestellt. Die Verschiebung der Fokusebenen sind dabei nur indirekt über die Veränderung der Intensitätsverteilung zu sehen. Eine Verschiebung von einigen Mikrometern erzeugt aber keine wesentliche Veränderung der Beleuchtung und damit gleichbleibende Voraussetzungen für die Messung.

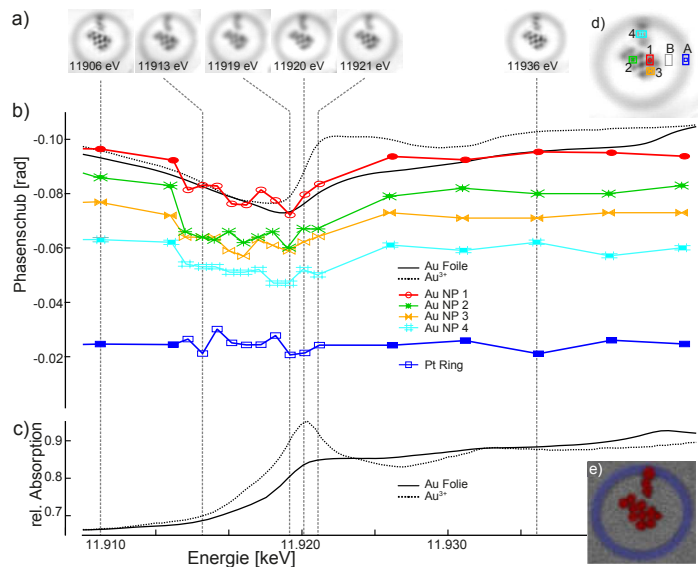


Abbildung 5.8: Für 5 beispielhafte Energien ist das rekonstruierte komplexe Beleuchtungsfeld in der Objektebene dargestellt. Die makroskopische Form und Phasenlage ist bei allen Energien gleich. Durch die Verschiebung der Fokusebenen beim Energiewechsel werden die Seitenbereiche des Primärstahls mit steigender Energie breiter und auch die Nebenmaxima gewinnen leicht an Stärke.

In Abhängigkeit von der Energie wurde mit ptychographischer Rekonstruktion die Absorption und der Phasenschub im gesamten Gesichtsfeld bestimmt. Die Ergebnisse der Rekonstruktionen sind in Bild 5.9 a) dargestellt. Dabei wird nur die Phase der Objektfunktion dargestellt. Die Amplitude ist zu verrauscht um einen Unterschied erkennen zu können. Der Phasenschub korreliert mit der Absorption und zeigt so die gleichen Informationen wie die Absorption. Aus dem Verlauf, im Bezug auf die Energie, kann das Material und der Oxidationszustand ermittelt werden. Für Photonenergien rund um die Au- $L_3$  Kante ist bei Platin keine Veränderung des Phasenschubs zu erwarten, da keine Absorptionskante in diesem Energiebereich liegt. Die Variation des rekonstruierten Phasenschubs für Platin gibt damit eine Abschätzung für die Ungenauigkeit der Messung. Der in Abbildung 5.9 b) dargestellte Graph



Abbildung 5.9: a) Ptychographisch bestimmter Phasenschub des Objekts bei 6 ausgewählten Energien. b) Das Diagramm zeigt für die 4 in d) markierten Au-Nanopartikel und den Platinring energieabhängig den Phasenschub. Ausgefüllte (offene) Symbole markieren Messungen mit 1,5 s (0,3 s) Belichtungszeit pro Scanpunkt. Der Phasenschub des Pt-Rings (quadratische Symbole) zeigt keine Veränderung bei Energien um die  $L_3$ -Kante von Gold. c) Als Referenz für die Oxidationszustände sind die Absorptionskurven für Goldfolie (durchgezogene Linie) und für dreiwertiges Gold ( $\text{HAuCl}_4$ ) in wässriger Lösung (gestrichelte Linie) dargestellt. d) Auswahlmaske für die verschiedenen Signale. e) Die als metallisches Gold identifizierte Bereiche sind rot eingefärbt und der Bereich mit Material ohne Phasenänderung ist blau eingefärbt. Bild nach [51], mit freundlicher Genehmigung von Appl. Phys. Lett.



für den Platinring zeigt eine Standardabweichung von 2,4 mrad, der Min-Max-Abstand beträgt 9,5 mrad. Der in 5.9 d) mit B bezeichnete Bereich wird als Phasenreferenz für den freien Raum verwendet. Für die Darstellung der Auswertung wurden 4 Nanopartikel ausgewählt. Die ausgewählten Partikel sind in der Darstellung 5.9 d) markiert. Für jedes Partikel ist der Phasenschub im Diagramm 5.9 b) dargestellt. Die 4 ausgewählten Goldnanopartikel weisen eine starke Änderung an der Gold- $L_3$  Kante auf. Das eine Absorptionskante auftritt, zeigt das Vorhandensein von Gold im Messbereich. Die Elementbestimmung ist damit erfolgreich demonstriert. Das Bild 5.9 e) zeigt Farbcodiert die verschiedene Elemente, in rot sind alle goldene Anteile eingefärbt und in blau die Platinbereiche. Für die Bestimmung des Oxidationszustandes wird eine Referenz benötigt. Für metallisches und dreiwertiges Gold sind Absorptionsmessungen als Referenz, in Abbildung 5.9 c), gezeigt. Metallisches Gold wird durch die durchgezogene Linie dargestellt, dreiwertiges Gold mit der gestrichelten Linie. Über die Kramers-Kronig-Relation können die Absorptionskurven in Phasenverläufe umgerechnet und in dieser Form mit den ptychographisch rekonstruierten Werten verglichen werden. Die Absorptionskurve für dreiwertiges Gold zeigt eine starke Absorptionslinie direkt oberhalb der Absorptionskante, genannt 'Whiteline'. Die Whiteline in der Absorptionsmessung verursacht über die Kramers-Kronig-Relation im Phasenverlauf einen steilen Anstieg bei der Energie der Whiteline. Der steile Anstieg ist im Phasenverlauf für dreiwertiges Gold (gestrichelte Linie in Bild 5.9 b)) bei Energie 11 920 eV zu sehen. Metallisches Gold zeigt an dieser Stelle keine Absorptionsspitze. Die Absorptionskurve für metallisches Gold, ohne Whiteline, korrespondiert mit einem breiten Tal im Phasenverlauf.

Die ptychographisch rekonstruierten Phasenwerte stimmen mit der Referenzkurve für metallisches Gold überein. Für dreiwertiges Gold beschreibt die Referenzkurve nicht die ptychographisch bestimmten Werte. Besonders der Verlauf im Absorptionskantenbereich folgt

dem Verlauf für metallisches Gold. Wird der Verlauf als Superposition der Referenzkurven für metallisches und 3-wertiges Gold beschrieben trägt ergibt sich nur ein relevanter Anteil für metallisches Gold. Der Anteil für  $\text{Au}^{+3}$  liegt innerhalb der Fehlertoleranz. Es ist damit nachgewiesen das auch im Inneren der Nanopartikel Gold ausschließlich metallisches vorliegt und nicht als  $\text{Au}^{+3}$ .

Es konnte gezeigt werden, dass mit Ptychographie und harter Röntgenstrahlung eine eindeutige Elementanalyse möglich ist. Außerdem konnte für Gold, über den Vergleich mit Referenzspektren, der Oxidationszustand bestimmt werden. Der Vorteil der Ptychographie gegenüber konventionellen Spektroskopieverfahren ist die hohe Ortsauflösung. Die Auflösung der Ptychographie liegt nicht in der Größenordnung des Strahls sondern theoretisch in der Größenordnung der Wellenlänge. Die Auflösung ist abhängig von vielen Einflüssen und muss für jedes Experiment neu bestimmt werden.

## 5.2.4 Auflösungsbestimmung

Die Auflösung muss für jedes Experiment gesondert bestimmt werden. Mit Messungen an Testobjekten kann nur eine Anhaltspunkt für die Auflösung gefunden werden. Da die Auflösung von der Photonendosis und der Streukraft des Objektes abhängt, muss die Auflösung unter realen Bedingungen bestimmt werden. Bei den Photonenenergien 11 912 eV und 11 936 eV sind nach Diagramm 5.9 b) für Gold der etwa gleiche Wert für den Realteil des Brechungsindex zu erwarten. Der Phasenschub für beide Energien ist damit ebenfalls vergleichbar. Der Unterschied in den Ptychogrammen ist allein auf die unterschiedliche Belichtungszeit, 1,5s beziehungsweise 0,3s, der Scans zurückzuführen. Die rekonstruierten Objektfunktionen der beiden Scans zeigen die Anordnung der Nanopartikel und des Platinrings. Der Unterschied besteht dabei in der erreichten Auflösung. Um die Auflösung zu bestimmen, habe ich die rekonstruierten Aufnahmen aus dem SEM, Bild 5.10 a), und zwei Ptychogramme, eines für jede Belichtungszeit, Bild

Ausgehend von der SEM-Aufnahme 5.10 a) habe ich ein Transmissionsmodell der Goldpartikel erstellt. Die untersuchten Nanopartikel sind als ideale Kugeln, aus Gold mit einer Dichte von  $\rho = 19,3 \text{ g/cm}^3$ , modelliert. Das ideale Transmissionsbild ist in Abbildung 5.10 b) gezeigt. Zur Simulation der geringeren Auflösung wurde das ideale Transmissionsfeld mit

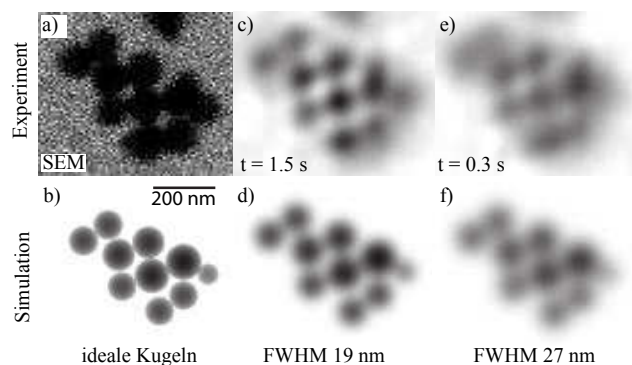


Abbildung 5.10: a) Das SEM Bild der Probe zeigt die Anordnung und Größe der Nanopartikel. b) Transmission der simulierten Probe. c) Ergebnis bei 1,5s Belichtungszeit. d) Die mit einer Gaußfunktion, FWHM=19 nm, gefaltete Simulation passt am besten zur Messung. e) Ergebnis bei nur 0,3s Belichtungszeit. f) Mit einer Gaußfunktion FWHM=27 nm gefaltete Simulation in b).

Bild entnommen aus [51], mit freundlicher Genehmigung von Appl. Phys. Lett.

einer Gaußfunktion gefaltet. Die Faltung verwischt kleine Strukturen der Objektfunktion. Die scharfen Kanten der Kugeln und das Profil der Partikel wird so verändert. Aus der ideal simulierten Transmissionfunktion wird eine weniger genau aufgelöstes Bild. Die Halbwertsbreite (FWHM) der zur Faltung verwendeten Gaußfunktion wird als Auflösung angegeben. Die Simulation wird dann an die gemessene Phasenverteilung quantitativ angepasst. Dabei ist die Halbwertsbreite der Gaußfunktion der einzige Variationsparameter zur Anpassung der Simulation an die Experimente. In den Bildern 5.10 c) und d) ist das Phasenbild und die am besten passende Simulation dargestellt. Für das Experiment mit 5.10 c) und e), mit Simulationen verglichen. Bei 1,5s Belichtungszeit pro Bild ist die optimale Anpassung bei 19 nm (FWHM). Im Vergleich dazu bei kürzerer Belichtungszeit von 0,3s, gezeigt in Bildern 5.10 e) und f), ergibt eine Auflösung von 27 nm (FWHM).

Die transversale Auflösung der ptychographischen Rekonstruktion hängt direkt von der Statistik der Beugungsbilder ab [91, 95]. Und die Statistik hängt maßgeblich vom Dosisdichte auf der Probe ab. Unter der Dosisdichte versteht man die Zahl an Photonen die pro Fläche das Objekt getroffen haben. Für das hier beschriebene Experiment wurde bei Messungen mit 1,5s pro Messpunkt ein Photonenfluß von etwa 6900 ph/nm<sup>2</sup> gemessen. Bei nur 0,3s wurden noch 1700 ph/nm<sup>2</sup> gemessen. Bei 5-facher Dosis ergibt sich nach Formel (2.24) für den Auflösungsunterschied ein Faktor 1,5. Die gemessene Auflösung bei 1,5s Belichtungszeit ist 1,4 mal besser, als für die kürzere Belichtungszeit (0,3s). Dieses Verhältnis passt sehr gut zu dem theoretisch erwarteten Auflösungsunterschied für Kugeln. Der theoretische und experimentelle Auflösungsunterschied zwischen den Rekonstruktionen von Ptychogrammen mit unterschiedlichen Belichtungszeiten passt zueinander. Wir konnten damit zeigen, dass die Ptychographie der Auflösungsformel folgt. Für eine aussagekräftige Untersuchung realer Proben muss die Auflösung weiter gesteigert werden. Im verbesserten Folgeexperiment sind die Daten für die Rekonstruktion mit der höchsten Auflösung von 8 nm gemessen worden [78].

### 5.2.5 Zusammenfassung

Mit diesem Experiment ist gezeigt, dass resonante Ptychographie eindeutige Materialbestimmung ermöglicht und auch der Oxidationszustand des Materials bestimmbar ist. Der Vergleich mit einer Referenzmessung hat gezeigt, dass die Gold-Nanopartikel vollständig aus metallischem Gold bestehen und keinen Anteil an dreiwertigen Goldionen enthalten. Die Auflösung für die Rekonstruktionen konnte auf 19 nm bestimmt werden. Dabei kann mittels Verlängerung der Messzeit die Auflösung um beinahe den theoretische Wert gesteigert werden. Mit einer Serie energieabhängiger Ptychogramme ist es möglich die Probe hochaufgelöst spektroskopisch zu vermessen.

## 5.3 Freie-Elektronen-Röntgen-Laser

Die neuesten und brillantesten Röntgenquellen unserer Zeit ist ein Freie-Elektronen-Laser (FEL) [53] mit SASE Anregung. Dieser Ansatz erlaubt eine weitaus höhere Brillanz als es

mit einem Elektronenspeicherring möglich ist und erzeugt nebenher eine bisher unerreichte Zeitauflösung. Die genaue Kenntnis der Intensitätsverteilung im Strahl ist für viele Experimente, besonders solche mit intensitätsabhängigen Effekten [70] unerlässlich. Ptychographie ist, mit der Möglichkeit die Beleuchtung als hochaufgelöstes komplexes Wellenfeld zu rekonstruieren, hierfür die optimale Lösung [93].

Ptychographie basiert auf der Annahme einer konstanten Beleuchtung, die das Objekt abtastet. Der Unterschied in den Beugungsbildern wird damit einzig vom Objekt ausgelöst. Wird als Quelle ein Freie-Elektronen-Laser (FEL) mit SASE Prozess verwendet, ist diese Bedingung möglicher Weise nicht erfüllt und eine ptychographische Untersuchung unmöglich. Proben mit einzelnen FEL-Pulsen abzubilden ermöglicht es biologische Proben zu untersuchen [61, 59, 14]. Würden zur Untersuchung Synchrotronstrahlungsquellen verwendet sind die Proben lange vor Erreichen des nötigen Photonenflusses zerstört. Ein einzelner kurzer Puls, von weniger als 50 fs, kann alle nötigen Informationen abtasten bevor die Probe durch die intensive Strahlung zerstört wird [71, 30]. So wird die größte Einschränkung im Bereich der Proteinkristallographie überwunden [122]. Die kurzen Pulse erlauben die Untersuchung von Zuständen auf, bisher für andere Röntgenquellen unzugänglich, kurzen Zeitskalen. Mit dem FEL lassen sich so dynamische Prozesse in Materialien untersuchen [94] und das Verhalten unter extremen Bedingungen abbilden [109]. Ein FEL liefert über den SASE Prozess eine pro Puls wesentlich höhere Strahlungsleistung ab, als bei Synchrotronstrahlung möglich ist. Trotzdem wird für die meisten Experimente der Strahl stark fokussiert, um den Fluss auf der Probe weiter zu steigern. Zu diesem Zweck wurden verschiedene röntgenoptische Systeme entwickelt [68, 19, 85]. Diese Optiken fokussieren die Puls, auf einen gut hundert Nanometer großen Brennfleck und können der hohen Strahlungsleistung eines Röntgen-Freie-Elektronen-Lasers standhalten. Die Fokussierung der Röntgenpulse erhöht den Photonenfluss auf der Probe weiter um einige Größenordnungen und erlauben so noch höhere Informationsdichten. Mit den so zur Verfügung stehenden extrem intensiven Pulsen kann mit bisher unerreichter Auflösung und auf ultra kurzen Zeitskalen untersucht werden. Eine quantitative Auswertung der Experimente setzt meist eine genaue Kenntnis der Feldverteilung voraus, die mit der Ptychographie bestimmt werden kann.

Wir haben ortsaufgelöst den fokussierten Strahl des XFEL untersucht [93]. Diese Untersuchungen sind anspruchsvoll, da einerseits die Strahlungsintensität deutlich über der Belastungsgrenze jeglichen Materials liegt und andererseits der Strahl von Puls zu Puls in Intensität und Richtung fluktuiert. Die bisher gängigen Verfahren setzen eine Platte dem Strahl aus und analysieren das ablatierte Muster. Aus der Tiefe und Form des Kraters lässt sich das Strahlprofil ableiten [19, 13]. Diese Technik lässt Rückschlüsse auf die Größe und Form des Strahlprofils zu. Es können aber weder Aussagen mit hoher Auflösung über die interne Struktur getroffen werden, noch können Teile des Strahls unterhalb der Schadensschwelle des Materials untersucht werden. Eine Methode zur Gewinnung des komplexen Wellenfeldes aus nur einem Beugungsbild [76] konnte in keinem praktischen Beispiel zur Probenuntersuchung eingesetzt werden. Die Ptychographie bestimmt das komplexe Beleuchtungsfeld mit gleicher Auflösung wie das Objekt und ist damit zur Untersuchung ideal geeignet. Allerdings ist die Voraussetzung eines sich nicht verändernden Beleuchtungsfeldes

auf Grund des stochastischen SASE-Prozesses nicht a priori erfüllt. Die Ergebnisse zeigen, dass die Fluktuationen des fokussierten Wellenfeldes des XFEL klein genug sind, um eine konstante Beleuchtung anzunehmen. Nur damit ist eine ptychographische Rekonstruktion der gemessenen Daten möglich.

### 5.3.1 Testobjekt

Für die Untersuchung der Feldverteilung wird ein strukturiertes Objekt benötigt, das keine Anforderungen an Ausrichtung und Justage stellt und dem Strahlungsfeld widerstehen kann. Des Weiteren muss das Objekt vor der Untersuchung bekannt sein, um die Qualität der Rekonstruktion bewerten zu können. Gut für diese Anforderungen geeignet ist eine dünne Wolframschicht auf einem Diamantsubstrat. Zur Strukturierung der Schicht wurde ein Dreischichtsystem zur lithographischen Formgebung verwendet. Der Ausschnitt a) in 5.11 zeigt die Stapelfolge des Dreischichtsystems. Die  $1\ \mu\text{m}$  dicke Wolframschicht wurde direkt auf das  $100\ \mu\text{m}$  CVD-Diamant Substrat gesputtert. Der Diamant dient nicht nur als transparentes Substrat, sondern leitet auch die entstehende Absorptionswärme ab. Als Verbindungselement wird darauf per Elektronstrahlverdampfer eine  $30\ \text{nm}$  Hartmaske aufgebracht. Für die Formübertragung aus dem Computer wird als Deckebene  $100\ \text{nm}$  ein mit Elektronenstrahl beschreibbarer Lack aufgebracht. Der Lack wurde durch einen Elektronenstrahl beschrieben und die Struktur durch ein  $\text{Cl}_2 / \text{O}_2$ -Plasma per reaktivem Ionenätzen in die Cr-Hartmaske übertragen. Mit Hilfe der Hartmaske konnte dann schließlich das Wolfram strukturiert werden. Die Wolframstruktur ist bei geändertem Ätzgas ( $\text{SF}_6$ ) wieder mit reaktivem Ionen entsprechend der Hartmaske strukturiert worden. Das Objekt bestand aus einem Gitter von  $40 \times 40$  Siemenssternen, ausschnittsweise dargestellt in Abbildung 5.11 b).

Die Längenskalen jedes Wolframsterns reichen von  $50\ \text{nm}$  bis zu  $200\ \text{nm}$ . Die sich wiederholenden Strukturen ermöglichen ptychographische Scans mit kleinen Objektstrukturen ohne zeitintensives Ausrichten der Probe zum Strahl. So kann die knappe Experimentierzeit am XFEL für Untersuchungen genutzt werden. Außerdem ermöglicht dieser Aufbau einen destruktiven Ptychographiemodus, ähnlich der Untersuchung von biologischen Proben. Für jeden Messpunkt wird ein neues Muster verwendet und die zerstörten Strukturen des vorhergehenden Bildes sind nicht mehr im Bild zu sehen.

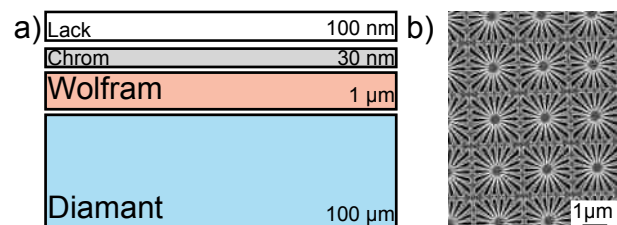


Abbildung 5.11: a) zeigt die Stapelfolge des Dreilaggenprozesses. Die gewünschte Struktur aus dem Lack in die Cr-Hartmaske übertragen, mit der das Wolfram strukturiert wird. b) Die Wolframstruktur zeigt ein Gittermuster aus  $2\ \mu\text{m}$  großen Siemenssternen.

### 5.3.2 Experiment

Der Strahl des Röntgenlasers konnte bisher nur ungenau untersucht werden. Besonders die Form eines fokussierten Pulses konnte auf Grund der extremen Intensität nicht ausreichend

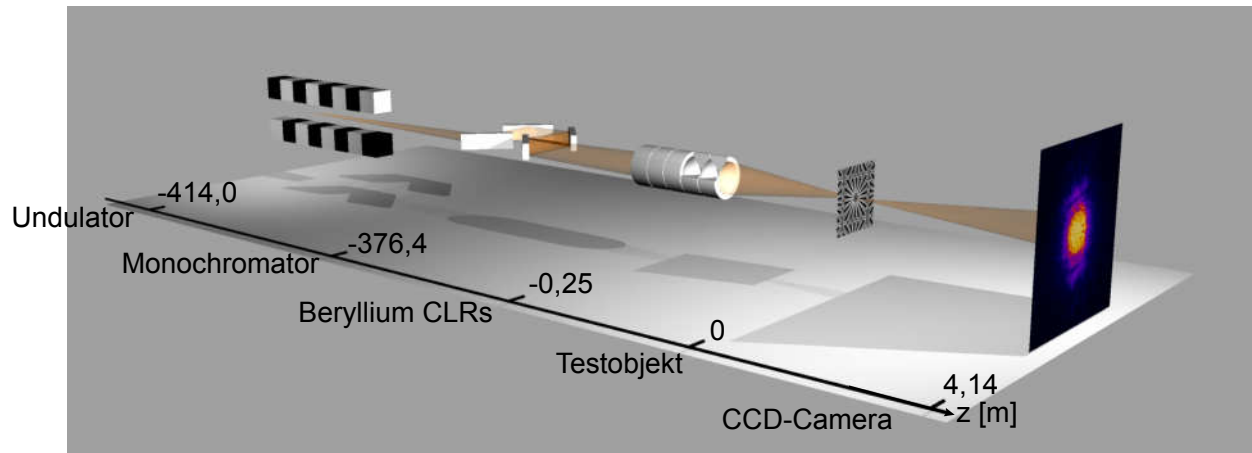


Abbildung 5.12: Skizzierte Darstellung der wichtigsten Teile des ptychographischen Experimentes (nicht masstabgerechte Abstände und Objektgrößen). Ganz links befindet sich die Strahlungsquelle, der Undulator. Die Probe ist 464 m vom Ausgang des Undulators entfernt. Danach folgen die beiden optischen Elemente des Experimentes, der 4-Kristall-Bartels-Monochromator und die CRL-Linsen [90]. In den Objekten interagiert die Strahlung mit dem Testobjekt und propagiert anschließend 4,14 m zum CCD-Detektor. Bild nach [94]

vermessen werden. Wir haben ptychographisch den fokussierten XFEL-Strahls der LCLS [25] untersucht. Dafür haben wir in der Strahlhütte des Experiments zur Untersuchung von Materie in extremen Zuständen (MEC [69]) ein ptychographisches Experiment durchgeführt. Die Experimentierkammer befindet sich in der "Far Hall" des LCLS, 464 m nach dem Undulator. Der SASE-Prozess erzeugt von Puls zu Puls ein variierendes Energiespektrum. Nur durch den Einsatz eines hochauflösenden Monochromators kann die Energiebreite auf ein nutzbares Maß eingeschränkt werden. Der verwendete 4-Kristall-Bartels-Monochromator, 376,4 m vor der Probe, wurde so eingestellt, dass nur Photonen mit einer Energie von  $E = 8,2 \text{ keV}$  transmittiert werden. Das variable Energiespektrum verursacht damit eine starke Intensitätsschwankung nach dem Monochromator.

Zur Fokussierung wurden 25 cm vor dem Objekt Röntgenlinsen aus Beryllium eingesetzt [90]. Ein Stapel aus 20 rotationssymmetrischen parabolischen Einzellinsen, Krümmungsradius  $R = 50 \mu\text{m}$  im Zentrum und geometrischer Öffnung von  $300 \mu\text{m}$ , hat bei der Energie von  $8,2 \text{ keV}$  eine Brennweite von  $f = 250 \text{ mm}$ . Die Absorption in den äußeren Bereichen der Linse, in denen viel Material vorhanden ist, verringert die Aperturgröße der Linse auf einen effektiven Aperturdurchmesser von  $250 \mu\text{m}$ . Für eine vollkohärente Quelle ergibt sich damit eine theoretische Größe für den beugungsbegrenzten Beleuchtungsfleck von  $115 \text{ nm}$ . Die erreichte Erhöhung der Photonendichte gegenüber dem unfokussierten Strahl liegt bei etwa  $2 \cdot 10^6$ . Für das Experiment muss das Objekt überlappend abgerastert werden. Der fokussierte Strahl würde dabei jedes Material im Fokusbereich zerstören und benachbarte Punkte unmöglich machen. Ein Beispiel für die destruktive Interaktion des Strahls mit der Probe ist in Bild 5.13 gezeigt. Beispielhaft sind hier die Abdrücke für 3 Pulse mit verschiedener Intensität dargestellt. Dabei hatte der Puls, der den Abdruck aus Bild 5.13 a) verursacht hat, fast keinen Schaden hinterlassen. Der dritte Abdruck erreicht die Ausdehnung eines Sterns

Abbildung 5.13: Drei beispielhafte Ablationsmuster, die ein Röntgenpuls im Objekt hinterlassen hat. Jedes der Objekte ist mit einem Puls bestrahlt worden. Die drei Bilder zeigen verschiedene intensive Pulse, erzeugt durch die stochastische Natur des SASE Prozesses.

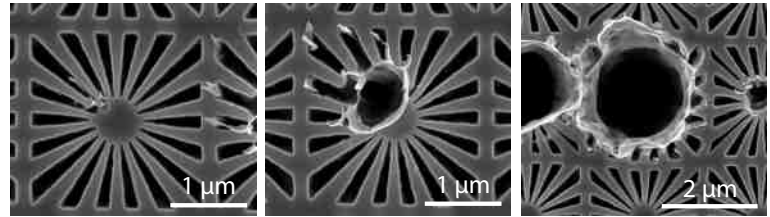
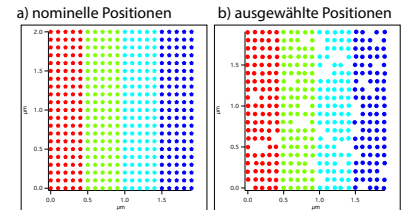


Abbildung 5.14: Jede der 4 farbig kodierten Gruppen, mit 50 Scanpositionen, wird mit einem Scan aus aufeinanderfolgenden Pulsen aufgenommen. a) An jeder der Positionen werden durch jeweils einen Röntgenpuls zwei Fernfeldbilder aufgenommen. b) Es wird das hellere Bild je Punkt ausgewählt und anschließend nur die hellsten 90% für die Rekonstruktion verwendet.



und gehört zu den hellsten von uns auf diese Weise untersuchten Pulsen. Diese Puls-zu-Puls-Schwankungen überdecken mehrere Größenordnungen im Bezug auf die Intensität.

Für den ptychographischen Scan wurde der Strahl mit monokristallinen Siliziumplatten auf 1% abgeschwächt. Die Abschwächung stellt sicher, dass die Probe nicht zerstört wird und verschiebt den Intensitätsbereich in den dynamischen Bereich des Detektors. Als Detektor wird 4,14 m nach der Objektebene eine CCD von Princeton Instruments (PIXIS-XF 2048B,  $16\ \mu\text{m} \times 16\ \mu\text{m}$  Pixelgröße) verwendet. Während der Untersuchungen wird die Kamera mit  $4 \times 4$  Binning betrieben. Damit reduziert sich die Pixelzahl auf  $512 \times 512$  Pixel mit einer effektiven Pixelgröße von  $54\ \mu\text{m} \times 54\ \mu\text{m}$ . Aus den Geometrieparametern und der Energie ergibt sich eine Pixelgröße von 22,7 nm.

Direkt im Fokalbereich ist die Strahlungsleistung trotz Abschwächung über der Schadensschwelle des Materials. Zur Verringerung der Temperatur- sowie Strahlungslast und zur Verbreiterung der Beleuchtungsbereiche wird die Probe bei  $z = 0,5\ \text{mm}$  hinter der Fokalebene platziert. Mit der numerischen Apertur von  $NA = 5 \cdot 10^{-4}$  ergibt sich eine Fokusgröße in der Probenebene von  $b = 275,2\ \text{nm}$ . Für den ptychographischen Scan werden Beugungsbilder in 4 Gruppen an insgesamt  $20 \times 20$  Punkten aufgenommen. Die Gruppen sind in Bild 5.14 a) farbig codiert. Der Abstand zwischen den nächsten Nachbarn beträgt dabei in beide Richtungen 100 nm. Jede Gruppe entspricht einem ohne Unterbrechungen ablaufenden Scan. Die 4 Scans wurden mit kurzer Pause durchgeführt, da nach jedem Scan eine Optimierung des Scanablaufs nötig war. In Abbildung 5.14 werden die geplanten Positionen der 4 Gruppen dargestellt. Die stochastische Natur des FEL-Pulses verursacht eine Puls-zu-Puls-Fluktuation der Helligkeit. Der Scan kann nur rekonstruiert werden wenn der Abstand zwischen benachbarten Beugungsbildern nicht größer als der Strahldurchmesser wird. Um die ausfälle auszugleichen wurden an jeder Position zwei Beugungsbilder aufgenommen, beleuchtet von jeweils einen Röntgenpuls. Das intensivere der Beiden wurde für die weitere Rekonstruktion ausgewählt und weiterverarbeitet. Trotz der Auswahl des helleren der beiden Beugungsbilder haben die Beugungsbilder weiterhin sehr unterschiedliche Helligkeitswerte. Zur Begrenzung des Bereichs haben wurden für die Rekonstruktion nur Bilder mit mehr als 10% der Gesamtintensität des hellsten aller Bilder verwendet. Durch die Intensitätsauswahl

fallen aus den 400 Positionen 35 ohne verwertbares Beugungsbild heraus. Die verbleibenden Beugungsbilder decken fast alle Positionen ab, Skizze b) in Bild 5.14. Dabei entstehen Löcher im Raster kann der Algorithmus auf Grund des günstigen Verhältnisses von Strahlgröße zu Schrittweite ohne Qualitätsverlust überbrücken. Die restlichen 365 Bilder wurden für die Rekonstruktion auf die Pulsintensität normiert. Die Erweiterung zur Intensitätsnormierung aus Abschnitt 3.5.6 stand noch nicht zur Verfügung und wurde erst im Nachgang entwickelt. Mit dieser Erweiterung ist auch die Rekonstruktion ohne Normierung möglich.

### 5.3.3 Rekonstruktion

Unmittelbar nach Aufnahme der ersten Gruppe wurde versucht, den Scan zu rekonstruieren. Die erläuterten Auswahlregeln wurden sinngemäß angewendet auf entsprechend weniger Bilder. Dabei konnten keine konvergenten Rekonstruktionen erreicht werden. Zur Positionierung

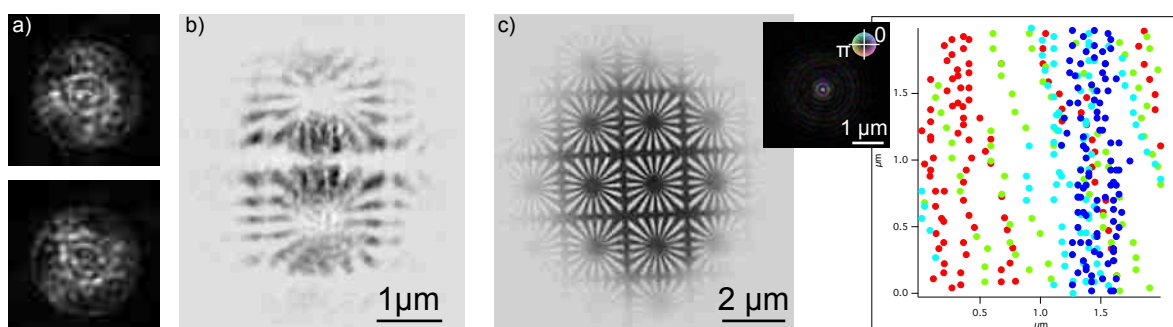


Abbildung 5.15: a) Zwei Beugungsbilder der gleichen Probenposition. Die Strukturen unterscheiden sich klar und es ist anzunehmen, dass trotz nominell gleicher Position und Ausleuchtung eine andere Probenposition beleuchtet wurde. b) Phasenabbild der Probe, entstanden aus der Rekonstruktion der 4. Gruppe (dunkelblaue Punkte in Bild 5.14). Schemenhaft ist die Struktur des Siemenssterns zu erkennen. c) Mit angepassten Positionen ist ein sehr gutes Rekonstruktionsergebnis möglich.

wurde eine Festkörpergelenkspositionierung mit Piezoantrieb verwendet (P-615 NanoCube von PhysikInstruments), mit einer spezifizierten Genauigkeit von besser als 10 nm. Vergleicht man die Beugungsbilder für den ersten Scanpunkt, Bild 5.15 a), ist klar zu erkennen das die beiden Beugungsbilder, nominell an der selben Probenposition aufgenommen, nicht die gleichen Beugungsstrukturen zeigen. Es ist anzunehmen, dass thermisch und mechanisch verursachte Drifts, sowie Vibrationen die Probenpositionen zueinander stark verändert haben müssen. Mit den nominellen Positionen ist keine Rekonstruktion möglich. Spätere Ergebnisse bestätigen diesen Verdacht. Vor der Messung der 1. Gruppe wurden Teile der Vakuumanlage abgeschaltet, so dass die Vibrationen der Anlage mit der Zeit abklingen. Die 4. Gruppe konnte deshalb mit erhöhter mechanischer Stabilität aufgenommen werden. Die erhöhte Stabilität ermöglicht für den letzten Scan als einzige Gruppe eine Rekonstruktion ohne weiteres Vorwissen.

Ohne Positions Korrektur kann der Algorithmus das Objekt trotzdem nur schemenhaft rekonstruieren. In Bild 5.15 b) ist die Phase des rekonstruierten Objekts zu sehen. Dabei sind die groben Strukturen des Siemenssterns ab etwa 100 nm zu erkennen. Es sind zwei



komplette Sterne abgebildet, die nächsten Nachbarn sind angedeutet, aber nur ansatzweise rekonstruiert. Die Amplitude ist, da Strukturlos, nicht dargestellt. Da die Beugungsbilder relativ zueinander normiert wurden, sind auch keine Strukturen zu erwarten. Ausgehend von dieser initialen Rekonstruktion hat der Algorithmus die optimalen Positionen für alle zur Rekonstruktion ausgewählten Beugungsbilder ermittelt. Zur Bestimmung der Position wurde ausgehend von der Beleuchtung und dem Objekt der initialen Rekonstruktion das Beugungsbild unter Verwendung verschiedener Beleuchtungspunkte berechnet und mit dem gemessenen Bild verglichen. Über den Least-Square-Fit konnte so die Position mit der optimalen Anpassung an das Beugungsbild bestimmt werden. Die Position wurde dabei nicht völlig frei gesucht, sondern in einer Umgebung von  $20 \text{ Pixeln} \times 20 \text{ Pixeln}$  um die bisherige Position des Beleuchtungspunktes. Mit den so ermittelten optimalen Positionen wird anschließend die Rekonstruktion neu gestartet. Die Rekonstruktion liefert dann ein deutlich besseres, schärferes und kontrastreicheres Ergebnis. Auch hier konnte die Positionserweiterung aus Abschnitt 3.5.5 nicht eingesetzt werden, da noch nicht entwickelt. Mit der neuesten Version ist keine externe iterative Positionskorrektur mehr nötig, diese kann intern während der Rekonstruktion geschehen.

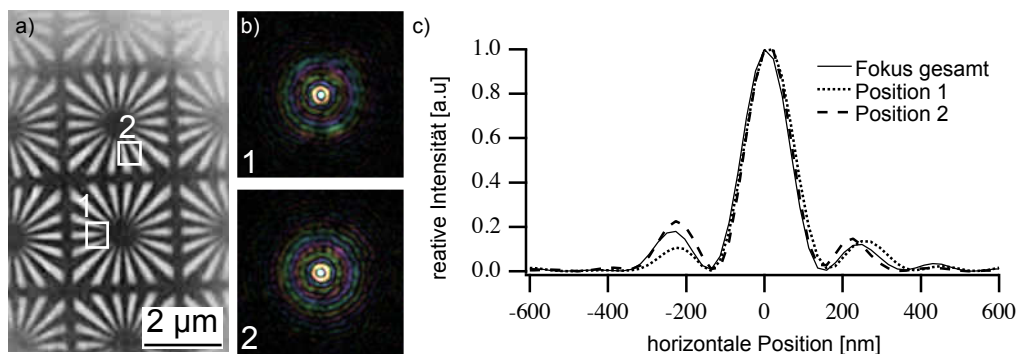


Abbildung 5.16: a) Für die beiden markierten Positionen im Objekt sind Rekonstruktionen zum Vergleich der Beleuchtungen gezeigt. Für diese Bereiche sind unterschiedliche Beleuchtungen zugelassen. Die komplexwertigen Beleuchtungsfelder sind in b) dargestellt. c) Horizontale Schnitte durch die Intensitätsverteilung der beiden Felder zeigen ein sehr ähnliches Verhalten der Felder. Der zentrale Strahl ist von Höhe und Breite gleich, wobei die Höhe normiert wurde. Die Nebenmaxima unterscheiden sich um maximal 7% der Maximalintensität. Bild nach [94]

Im sechsten Positionsverfeinerungsschritt war keine relevante Änderung der Positionen mehr zu erkennen. Die Ergebnisse mit den konvergierten Positionen sind sehr viel besser als aus der initialen Rekonstruktion zu erwarten. In Bild 5.15 c) ist die Phase des rekonstruierten Objektes dargestellt, das komplexe Wellenfeld der Beleuchtung sowie die ermittelten Positionen im Objekt. Klar zu erkennen sind dunkelblaue Punkte des letzten, vierten Scans mit erhöhter Stabilität. Alle anderen Punkte sind relativ lose über das Gesichtsfeld verteilt. Wie vermutet, ist die Stabilität nur bei lange abgeschalteter Vakuumanlage hoch genug, um eine verlässliche Rekonstruktion zu ermöglichen.

Das Objekt gleicht dem SEM-Bild der Probe, siehe Bild 5.11 b). Das Objektfeld ist korrekt rekonstruiert und damit ist auch die Beleuchtung in gleichem Maße korrekt rekonstruiert. Die

Voraussetzung der Ptychographie, eine über alle Beleuchtungspunkte konstante Beleuchtung, ist nicht gesichert. Die Pulsstruktur des XFEL lässt eine starke Variation der Beleuchtung von Puls zu Puls erwarten. Zur Prüfung der Annahme, dass sich ein sinnvolles Mittel aller Beleuchtungen und Pulse bilden lässt, wurden ausgehend von der Rekonstruktion mit allen Bildern, einzelne Bereiche separiert und einzeln rekonstruiert. Für die zwei Positionen in Bild 5.16 a) sind die rekonstruierten komplexen Beleuchtungsfunktionen gezeigt. Die beiden Beleuchtungsfelder sind vom ersten Anschein her sehr ähnlich. Beide zeigen neben dem starken zentralen Fokuspunkt starke Nebenmaxima in Form von Ringen. Horizontale Schnitte durch die Intensitätsverteilung der Felder zeigen die gleiche Halbwertsbreite des zentralen Spots. Außerdem sind die Ringe gleich angeordnet und unterscheiden sich von der mittleren Beleuchtung um maximal 7% der Maximalintensität. Die Einzelrekonstruktionen sind jedoch nicht im selbem Maße glatt wie die Mittelung. Das erhöhte Rauschen ist auf Grund der verringerten Datenbasis zu erwarten. Die Fluktuationen im Außenbereich bewegen sich im sub-Prozent-Bereich und können deshalb vernachlässigt werden. Bis auf Fluktuationen im Prozentbereich in den Nebenmaxima gleichen sich die Beleuchtungen. Aus der Übereinstimmung wird geschlossen dass die Beleuchtung über den gesamten Scan hinweg die selbe Form hatte. Die Voraussetzung der Ptychographie ist erfüllt und die Methode kann zur Untersuchung des XFEL eingesetzt werden. Aus dem komplexen Wellenfeld kann die Intensitäts- und Phasenverteilung entlang der optischen Achse berechnet werden. In Bild 5.17 a) ist die Fokusebene mit dem intensivsten Zentralstrahl gezeigt. Die Halbwertsbreite des Fokus liegt mit 125 nm nur gering über dem theoretisch ermittelten Limit von 115 nm für die numerische Apertur der Linsen. Der Fokus wird aber von starken Ringen umgeben. Die erste Ordnung erreicht etwa 18% des Hauptstrahls. Es wird vermutet, dass diese starken Nebenmaxima von der Apertur der Blende vor den Linsen stammen, oder durch Formfehler der Linse erzeugt werden.

Aus der 3-dimensionalen Feldverteilung kann dann auf die Aberrationen der verwendeten Optik geschlossen werden. In der Intensitätsverteilung sind zwei Fokalfunkte zu erkennen, markiert mit den Ziffern 1 und 2 in Abbildung 5.17 b). Die mit 1 markierte Ebene entspricht der Designebene der Linsen. In dieser Ebene wurden die Fokusberechnungen vorgenommen. Die Ebene 2 liegt bei etwas kleinerer Brennweite und ist weniger intensiv ausgeprägt. Es handelt sich um sphärische Aberration im Zentrum der Linse, die durch eine Phasenplatte korrigiert werden können [97]. Die Linsenform erzeugt demnach nicht die Nebenmaxima, sondern eine zweite Fokalebene auf der optischen Achse, während die kohärente Beleuchtung der Linsenkanten die Nebenmaxima erzeugt.

### 5.3.4 Zusammenfassung

Der Strahl eines XFEL mit SASE-Prozess ist eine neuartige hochbrillante Röntgenquelle, deren Intensitätsprofil bisher nicht genau vermessen werden konnte. Wir haben mittels Ptychographie den fokussierten Strahl mit sehr hoher Auflösung untersucht und die verwendete Optik analysiert. Ein periodisches Testobjekt wurde mit abgeschwächten Einzelpulsen abgerastert und je Puls ein Beugungsbild aufgenommen. Nach positionskorrigierter

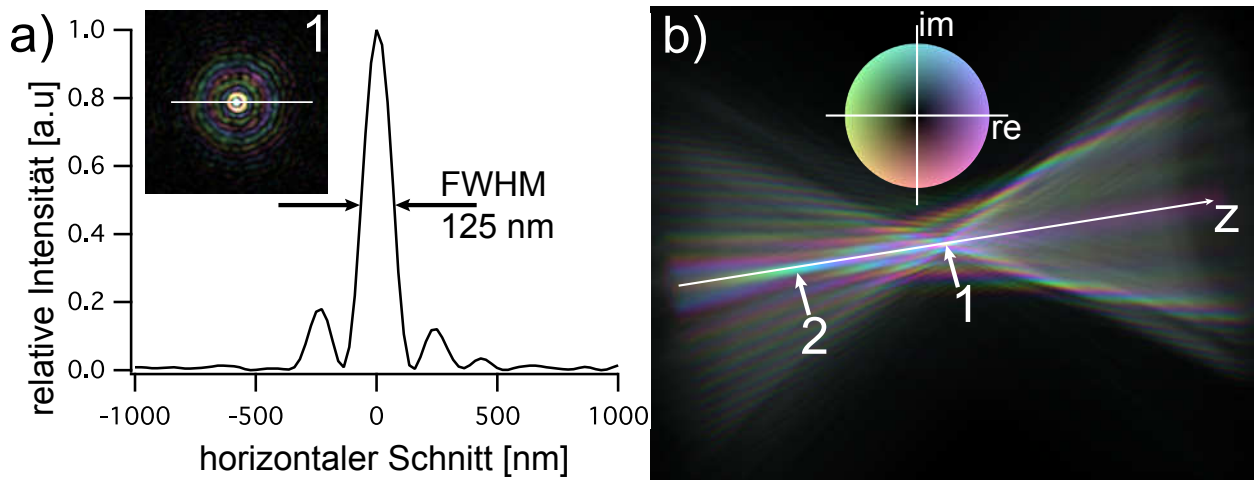


Abbildung 5.17: a) In der Fokalebene weist die Intensitätsverteilung ein starkes Maximum auf und zeigt starke Nebenmaxima in Form von Ringen um den zentralen Strahl. Der hellste Fleck ist mit einer Halbwertsbreite von 125 nm nur leicht größer als das Beugungslimit von 115 nm. b) Die Intensitätsverteilung entlang der optischen Achse zeigt zwei Fokalebene, zurückzuführen auf Formfehler der verwendeten Linsen. Diese Fehler lassen sich durch eine Brille korrigieren [97].

Rekonstruktion wurden die 50 nm Strukturen des Testobjekts klar aufgelöst. Die mit gleicher Genauigkeit berechnete komplexe Beleuchtung enthält alle Informationen über das optische System und die Quelle. Über eine abgewandelte ptychographische Rekonstruktion konnten wir zeigen, dass die stochastische Puls-zu-Puls-Fluktuation im fokussierten Strahl klein genug ist, um eine aussagekräftige Mittelung zu ermöglichen. Die Ptychographie kann jetzt an FEL-Quellen eingesetzt werden um den kohärenten Strahl vollständig zu vermessen. Ebenso haben wir gezeigt, dass die Untersuchung von Objekten mit höchster Auflösung an einem Freie-Elektronen-Laser mit harter Röntgenstrahlung möglich ist.

## 5.4 Optische Ptychographie

Optische Mikroskopie erreicht beinahe die mögliche Auflösung, die nach dem Abbe-Limit theoretisch möglich ist. Neuartige Standardmikroskope können die Transmissionsaufnahmen mittels Flächendetektor an einen Computer übertragen, so dass eine quantitative Analyse möglich wird. Über Relativmessungen zu objektfreien Bereichen ist mit konventioneller Mikroskopie der Absorptionswert mit hoher Auflösung bestimmbar. Phasenkontrast unterstützte Informationen können qualitativ mit Dunkelfeldmikroskopie bestimmt werden [121], eine quantitative Analyse von Brechungsindexvariationen ist dabei aber leider nicht möglich. Ptychographische Untersuchungen erfordern im Vergleich zu konventioneller optischer Mikroskopie einen höheren experimentellen Aufwand. Andererseits ermöglicht die Methode den direkten Zugang zu quantitativen Werten des komplexen Brechungsindex des Objekts und die vollständigen, komplexen Werte der Beleuchtung. Mit einer Messung ist es damit möglich, absolute Absorptionswerte des Objekts und mit gleicher Auflösung die Phasenanteile

des Brechungsindex zu untersuchen. Neben den absoluten Zahlenwerten für das Objekt liefert die Ptychographie die komplexwertige Beleuchtungsfunktion und damit die komplette Information über die verwendete kohärente Strahlungsquelle. Die Ptychographie wird daher nicht nur zur Objektanalyse eingesetzt, sondern auch zur Charakterisierung der kohärenten Strahlungsquelle und optischer Elemente verwendet. Im ersten Abschnitt 5.4.2 wird mit Hilfe der Ptychographie eine Lasermodulation untersucht. In den Kapiteln 5.4.4 bis 5.4.5 werden die Materialeigenschaften des photorefraktiven Materials  $\text{LiNbO}_3$  untersucht. Der Abschnitt 5.4.6 untersucht die Möglichkeiten aus den Beugungsdaten eine dreidimensionale Brechungsindexverteilung des Objekts zu rekonstruieren.

### 5.4.1 Messaufbau

Für alle optischen Ptychogramme steht ein von F. Wittwer aufgebauter [118] und charakterisierter [119] experimenteller Aufbau auf einem luftgelagerten Tisch zur Verfügung. Als Abschirmung gegen parasitäres Streulicht und als Sicherheitselement ist der Strahlengang komplett eingefasst. Der gesamte Tisch ist von einer 26 cm hohen schwarzen Schutzwand umgeben. Darauf liegen geschwärzte Platten, die den Aufbau nach oben abschließen. Der Strahlengang im Inneren der Einfassung ist mit Trennwänden abgeteilt, um parasitäres Streulicht zu vermeiden. Der gesamte Messplatz ist zusätzlich durch lichtschluckende schwarze Vorhänge umschlossen. Als Lichtquelle wird ein „Coherent Verdi V5“-Laser, mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 532 \text{ nm}$  und Leistungen zwischen 200 mW und 5 W, verwendet. Selbst die geringste Laserleistung ist für ptychographische Aufnahmen mit der Kamera zu intensiv und muss mit Hilfe von Neutralgraufiltern und Polarisationsfiltern abgeschwächt werden. Der Strahl propagiert über 4 Spiegel etwa 2 m weit bis zur Objektebene. Der Strahl wird vor der Kondensoroptik auf etwa 25 cm angehoben. Dabei wird die Polarisation über Drehung von  $\lambda/2$ -Plättchen und Polarisatoren auf die gewünschte Orientierung eingestellt und mit einem für jedes Experiment angepassten Kondensator auf die Probe fokussiert. Dabei ist eine Verschlussblende zur Belichtungsdefinition integriert und es sind weitere Blenden vorhanden, um störende Strahlung zu blockieren. Die Probe ist motorisiert gehalten und kann frei um die vertikale Achse gedreht werden. Nach der Wechselwirkung mit der Probe wird das Wellenfeld durch kein weiteres optisches Element verformt. Diese Eigenschaft bezeichnet man als linsenlose Abbildung. Zur Abbildung wird eine *FLI ProLine PL09000* Kamera verwendet, mit  $3056 \times 3056$  quadratischen Pixeln mit je  $12 \mu\text{m}$  Kantenlänge und 16 bit Dynamik. Der CCD-Chip wird zur Verringerung des Dunkelrauschens auf  $-25^\circ\text{C}$  gekühlt.

Der Aufbau wurde für jedes Experiment entsprechend angepasst. Beispielsweise ist über einen zusätzlichen Ablenkspiegel, zwischen Objekt und Kamera, und eine Diode die dauerhafte Transmissionsbestimmung möglich. Die Details der Strahlführung sind in den Arbeiten der ausführenden Studenten festgehalten [118, 119, 9, 72, 75, 96, 117].

### 5.4.2 Charakterisierung des Lasers

Kohärente Strahlungsquellen sind in vielen Anwendungen und Produktionsabläufen unverzichtbar. Ob als Lichtquelle zur Informationsspeicherung in Hologrammen, zur Informati-

onsübertragung, in medizinischen Anwendungen wie zum Beispiel zur Überwachung, zur Diagnose, bei chirurgischen Eingriffen, bei der Bearbeitung von Material, der Belichtung von Photolacken, beim Schweißen, beim Erhitzen oder Kühlen von Materialien. Dies sind nur einige der Anwendungsmöglichkeiten von Laserstrahlungsquellen.

Für alle Anwendungen entscheidet das Strahlprofil über die Nutzbarkeit der Quelle und genauen Einsatzgrenzen in der Anwendung. Zur Optimierung muss das Strahlprofil an die Anwendung angepasst werden. Die Anpassung ist dabei nur möglich, wenn der Ist-Zustand mit den Soll-Werten verglichen werden kann. Zum Vergleich muss das Strahlprofil des Lasers bezüglich Intensität und Phase bekannt sein. Für die allermeisten Anwendungen ist es zur Optimierung ausreichend die Intensitätsverteilung des Strahls zu kennen. Eine Anwendung, bei der nicht nur die Intensität des Lichtes verwendet wird, sondern auch die Phase, ist die Holographie [20]. Das bedeutet, es wird die komplette komplexe Information über den Strahl benötigt. Mit der komplexen Information ist es möglich, die Feldverteilung entlang der optischen Achse zu berechnen. Die daraus entstehende 3-dimensionale Feldverteilung zeigt die Feldentwicklung im Bereich der optischen Achse. Mit diesen Informationen kann direkt auf die Eigenschaften der Quelle des Feldes geschlossen und Maßnahmen zur Optimierung abgeleitet werden. Die Eigenschaften des optischen Elements oder der Quelle sind direkt zugänglich und müssen nicht indirekt über die Auswirkungen im Fokus abgeschätzt werden. Die volle komplexe Information erlaubt so den direkten Zugriff auf die optischen Eigenschaften der Quelle und aller weiteren optischen Elemente im Strahlengang, Vergleiche Kapitel 5.3.

Im Rahmen einer Bachelorarbeit hat Felix Wittwer unter meiner Anleitung ein ptychographisches Mikroskop mit optischem Licht ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) aufgebaut [118] und die Auflösung während der Masterarbeit [119] untersucht. Die Arbeit wurde im Rahmen einer Masterarbeit von C. Bernert weitergeführt [9].

Die Auflösung bei ptychographischer Untersuchung ist dabei mit der erreichbaren Auflösung von konventionellen Lichtmikroskopen vergleichbar. In Abbildung 5.18 sind, für die selbe Teststruktur, die Absorptionsbilder konventioneller Lichtmikroskopie und ptychographischer Bildgebung gezeigt. Mit beiden Verfahren sind die kleinsten Strukturen mit Strukturgrößen von 500 nm aufgelöst. Große homogene Flächen werden von konventioneller Lichtmikroskopie problemlos und objektgetreu dargestellt. Die ptychographische Rekonstruktion zeigt bei großflächigen Strukturen hingegen Abweichungen bei der Homogenität der Flächen. Kleine Strukturen hingegen werden von beiden Verfahren mit der gleichen Auflösung abgebildet. Die Graphen im Bild 5.18 c) zeigen Schnitte durch die kleinsten Strukturen des Testobjekts. Die höhere Pixelzahl im optischen Mikroskop bedingt die glatter aussehende Linie. Trotzdem werden die scharfen Kanten der Probe nicht korrekt abgebildet. Die Verbreiterung der Kanten ist weiter ausgedehnt als bei der Ptychographie. Konventionelle Mikroskopie erreicht damit, trotz höher Pixelzahl, nur eine mit der Ptychographie vergleichbare Auflösung und Informationsmenge. Außerdem kann die Ptychographie nicht nur die Amplituden wiedergeben, sondern auch Modulationen im Brechungsindex quantitativ abbilden. Eine quantitative Analyse ist mit der Lichtmikroskopie nicht möglich. Phasenwerte können interferometrisch untersucht werden [60, 58, 21]. Die Interferometrie ist aber wieder-

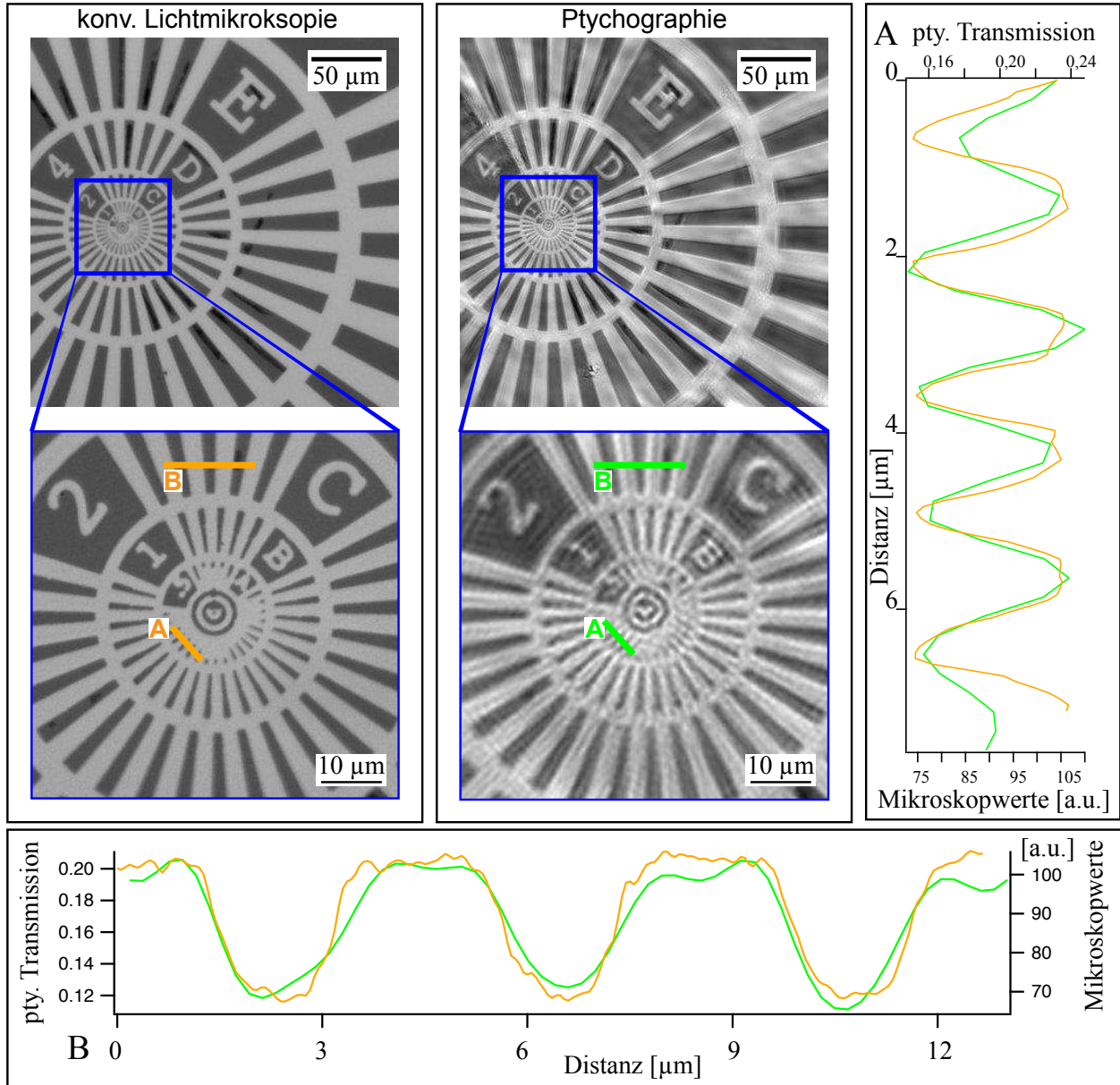


Abbildung 5.18: Konventionelle lichtmikroskopische Aufnahme der metallischen Teststruktur. Alle Strukturen, bis unterhalb von  $1,5\ \mu\text{m}$  Periode sind klar zu erkennen, ebenso die Ringe in der Mitte. Ptychographische Bildgebung kann die Teststruktur mit vergleichbarer Auflösung abbilden. Die kleinsten Balken und auch die halbrunde Aussparung sind deutlich rekonstruiert. Größere Flächen sind aber nicht im gleichen Maße glatt abgebildet, wie bei der lichtmikroskopischen Aufnahme. Die Graphen zeigen den Kontrastverlauf entlang der Schnitte in Bild a) und b).

um nicht sensitiv für die Absorption des Materials. Im Vergleich zur Ptychographie ist die Interferometrie experimentell aufwändiger und erreicht nicht die laterale Auflösung der Ptychographie. Unter allen Verfahren bestimmt aber einzig die Ptychographie die Beleuchtung der Lichtquelle.

Der verwendete Laser liefert laut Spezifikation einen idealen Gauß-Strahl mit bekannter Divergenz. Bei dem von uns benutzten Gerät wird jedoch nur eine, von normalerweise zwei Pumpquellen, verwendet. Außerdem kann durch Verstimmung des Resonators oder Rückkopplung von Licht das Profil verändert werden. Im Folgenden wird eine derartige Veränderung des Strahlprofils untersucht.

Durch Rückreflektion an einem Absorber wird Laserlicht in den Resonator zurückgekoppelt und so die Abstimmung des Laserresonators verändert. Wir können mit der Ptychographie den Effekt auf das Strahlprofil vollständig bestimmen und charakterisieren.

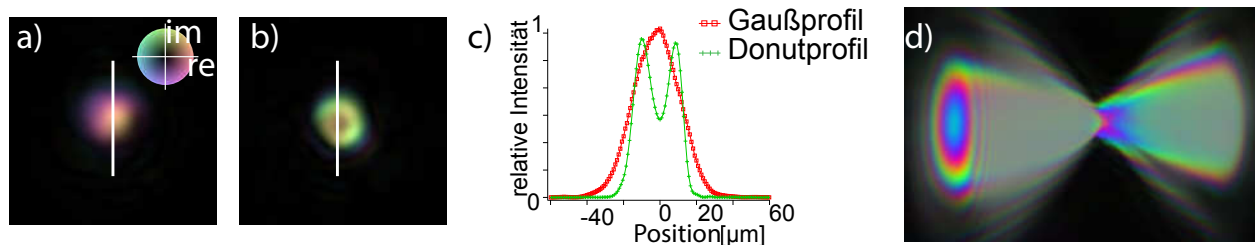


Abbildung 5.19: a) Wellenfeld des Lasers mit standard Gaußprofil. Der vertikale Schnitt durch die Intensitätsverteilung ist im Graph in c) in rot (mit Kästchen) dargestellt. b) Nach Modulation des Lasers konnte eine Donutform erreicht werden. Der Schnitt ist im Bild c) grün mit Kreuzen dargestellt. Die Pixelgröße in beiden Bildern beträgt 923 nm. d) 3D Feldverteilung der 1-1-Mode des Lasers bei freier Propagation  $\pm 40 \mu\text{m}$  um die Objektebene herum.

Die Ptychographie liefert als einziges Verfahren die volle komplexe Information über das verwendete Wellenfeld. In Bild 5.19 a) und b) sind die Felder für 2 Lasereinstellungen dargestellt. Die Helligkeit kodiert dabei die Intensität des Feldes und über die Farbe wird die Phasenlage beschrieben. Aus dem komplexen Wellenfeld kann die dreidimensionale Feldverteilung entlang der optischen Achse berechnet werden, Abbildung 5.19 d). Deutlich sind die Unterschiede im Wellenfeld zwischen dem Gaußprofil 5.19 a) und einem ringartige Strahlprofil in 5.19 b) zu erkennen. Für beide Mikroskopieverfahren sind Profile im Graphen 5.19 c) dargestellt.

Für die hochgenaue Bestimmung des Lichtfeldes muss der Algorithmus um die in Abschnitt 3.5.4 beschriebene adaptive Hintergrundkorrektur erweitert werden. Der zentrale Ausschnitt eines HDR-Beugungsbildes ist in Abbildung 5.20 a) dargestellt. Auf Grund der verwendeten CCD-Kamera muss der Hintergrund sowie alle Störeinflüsse vom Streusignal getrennt werden. Nur die adaptive Hintergrundreduktion ermöglicht Auflösungen im Bereich des theoretischen Limits. Ohne Korrektur des Hintergrunds bei Nutzung einer CCD-Kamera und eines optischen Lasers können Strukturen mit  $8 \mu\text{m}$  Periode aufgelöst werden. Eine beispielhafte rekonstruierte Transmissionsfunktion eines Siemenssterns ist in Bild 5.20 a) gezeigt. Alle kleineren Probenstrukturen werden durch Strukturen überdeckt; die durch Hin-

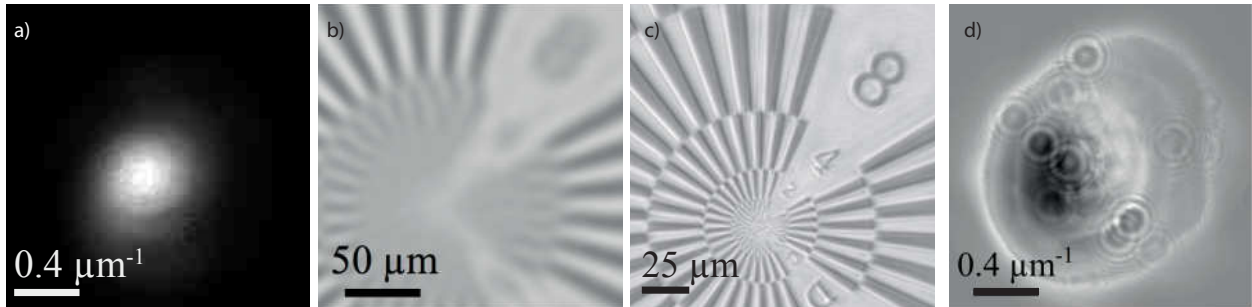


Abbildung 5.20: a) Zentraler Ausschnitt eines HDR-Fernfeldbildes mit erkennbarer Streuung b) Transmission des Siemenssterns in Bild 5.18 ohne Korrektur des Hintergrundsignals. c) Rekonstruierte Transmission mit einem um die adaptive Hintergrundkorrektur aus Abschnitt 3.5.4 erweiterten ptychographischen Algorithmus. d) Der Hintergrund zeigt Artefakte, die bei der Bildung der HDR Bilder entstehen und zusätzlich Streuungen von Staubteilchen auf der Glasplatte vor der Kamera.

tergrundsignale bei der Rekonstruktion hervorgebracht werden. Bei Entfernen dieser Hintergrundsignale können Strukturen mit  $1\ \mu\text{m}$  aufgelöst werden. Die verbesserte Rekonstruktion des selben Bereichs ist in Bild 5.20 b) dargestellt. Im Vergleich sind die Verbesserungen bei der Auflösung von Faktor 8 deutlich zu erkennen. Der entfernte Hintergrund ist in Bild 5.20 c) dargestellt. Am deutlichsten treten hier die Streuungen von Staubpartikeln auf der Kameraverglastung hervor. Daneben sind Artefakte aus der HDR-Bildberechnung zu sehen. Diese entfernten Artefakte erzeugen direkt die erreichte Verbesserung der Auflösung, zu sehen im Vergleich von Bild 5.20 a) und b).

Mit Hilfe dieser einzigartigen komplexwertigen Information ist es möglich, das Wellenfeld, einer kohärenten Strahlungsquelle entlang der optischen Achse zu berechnen. Daraus können alle Eigenschaften des Wellenfeldes bestimmt werden. Außerdem ist es mit der hohen Auflösung, Pixelgröße  $923\ \text{nm}$ , des Beleuchtungsfeldes möglich, das Verhalten von Materialien unter der lokal sehr genau bekannten Feldstärke zu untersuchen. Bei intensitätsabhängigen Vorgängen, wie der Photorefraktivität, ist die exakte Kenntnis der Feldstärke unumgängliche Voraussetzung für quantitative Ergebnisse.

### 5.4.3 Photorefraktive Materialien

Die Wechselwirkung von Licht mit Materie wird durch den komplexen Brechungsindex  $n = \delta + i\zeta$  beschrieben. Dabei repräsentiert der komplexe Anteil  $\zeta$  die Absorption oder Verstärkung im Material und über den Realteil  $\delta$  werden die Phasenänderungen der Lichtwelle im Material beschrieben. Die Beschreibung geht von konstanten unveränderlichen Materialparametern aus, die das Lichtfeld beeinflussen. Beeinflusst das Lichtfeld jedoch auch das Material, nennt man das Photoaktivität. Dabei können verschiedene Effekte auftreten, wie das Erzeugen von Brechungsindexmodulationen [4]. Diese Veränderung der Materialeigenschaften durch ein Lichtfeld wurde bereits 1966 durch A. Ashkin beschrieben [4] und

<sup>1</sup>Die übliche Bezeichnung mit  $\beta$  überschneidet sich mit der Nomenklatur des elektrooptischen Tensors  $\beta_{ijk}$



sind bis heute ein aktives Feld der Forschung [43]. Beispielsweise bei der Datenspeicherung als „Holographische Datenträger“ [15, 43]. Als Materialbeispiel mit den stärksten bekannten Wechselwirkungseffekten nutzen wir Lithium-Niobat mit Eisendotierung ( $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ ) für unsere Experimente.

### Materialbeschreibung

$\text{LiNbO}_3$  ist ein künstlicher farbloser kristalliner Feststoff und kann mit dem Czochralski-Prozess als Einkristall gezüchtet werden [110]. Für das Auftreten von Photorefraktivität ist eine Eisendotierung notwendig, die den Kristall rot-braun färbt. Die Farbintensität steigt mit dem Eisengehalt. Der Anteil von Lithium und Sauerstoff im Kristall ist durch die  $\text{Li}_2\text{O}$ -Konzentration bestimmt und beträgt für diesen Kristall  $c_{\text{LiO}_2} = 48,34 \text{ mol}\%$ . Der Kristall hat einen Brechungsindex von  $\delta \approx 2,3$ , der lokal mit Hilfe von Licht verändert werden kann. Die Photorefraktivität ist stark abhängig von der Polarisierung des einfallenden Lichts und zeichnet ausserdem im trigonalen Kristall eine Achse aus. Diese ausgezeichnete Achse nennen wir c-Achse, die beiden anderen Achsen a und b [110]. Die lokale Brechungsindexveränderung kann durch Licht der Wellenlänge  $\lambda = 532 \text{ nm}$  oder kürzer hervorgerufen werden. Setzt man das Material mehr als  $200^\circ\text{C}$ , aus homogenisiert sich die Ladungsverteilung wieder und die Brechungsindexvariation ist gelöscht.



Abbildung 5.21:  
 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ -Kristall

Die Photoaktivität wird durch aktive Zentren ermöglicht. Eisenatome sind die mit sichtbarem Licht aktivierbaren Zentren. Die Zentren liegen in der Bandstruktur etwa  $1 \text{ eV}$  unterhalb des Leitungsbands. Angeregt durch optisches Licht können sich die Ladungen frei bewegen. Ladungswanderung findet dabei, beschrieben durch den photovoltaischen Tensor  $\beta$ , hauptsächlich entlang der c-Achse und aus dem beleuchteten Feld heraus statt. Bei nicht zu hohen Intensitäten werden nur die Eisenniveaus aktiviert und das Verhalten wird durch das Ein-Zentren-Modell beschrieben [66]. Eine detailliertere Beschreibung der Ladungsumverteilung kann bei C. Bernert nachgelesen werden [9].

Bei höheren Intensitäten können weitere optische Zentren aktiviert werden [2]. Althoff und Krätzig [3] haben die Intensitätsabhängigkeit der Photorefraktivität untersucht und ermittelten, dass ab einer Strahlungsleistung von etwa  $5 \cdot 10^5 \text{ W/m}^2$  eine weitere Art von Zentren angeregt wird. Diese zusätzlichen Effekte werden mit dem sogenannten Zwei-Zentren-Modell beschrieben [57]. Die genaue Intensität für den Übergang zum Zwei-Zentren-Modell kann aber nur in Kombination mit der Intensitätsverteilung des Beleuchtungsfeldes bestimmt werden. Nur durch die Ptychographie ist der Zugang zur internen Feldverteilung der Lichtquelle gegeben. Die Intensität für den Übergang vom Ein- in das Zwei-Zentren-Modell wird in Abschnitt 5.4.4 untersucht. Die Untersuchung eines Tiefenprofils in  $\text{LiNbO}_3$ -Brechungsindexmuster wird in Abschnitt 5.4.5 vorgestellt. Der photovoltaische Tensor beschreibt die Antwort des Materials auf Beleuchtung. Betragsmäßig sind die Elemente des Tensors bekannt. Die relativen Vorzeichen konnten bisher nicht verlässlich bestimmt werden. Im Abschnitt 5.4.5 wird ein Verfahren besprochen, dass die Vorzeichen einiger Komponenten des photovoltaischen Tensors festgelegt.



Abbildung 5.22: Transmissionsmikroskopiebild für 4 Belichtungszeiten bei gleicher Beleuchtungsintensität. Die Randeffekte umreißen die beleuchteten Bereiche.

#### 5.4.4 Ein-Zentren-Modell

Mit meiner Anleitung hat Constantin Bernert im Rahmen seiner Masterarbeit [9] das Verhalten von  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  mittels Ptychographie untersucht [10]. Über Vergleich der Resultate mit Modellrechnungen ermittelten wir die Parameter der lichtinduzierten Ladungswandlung. Die aus der optischen Anregung resultierende Brechungsindexvariation wird durch das resultierende interne elektrische Raumladungsfeld der Ladungsverteilung erzeugt. Hauptsächlich wandern die Ladungen bei der vorliegenden Anordnung entlang der ausgezeichneten  $c$ -Richtung des Kristalls. Beschrieben wird das Verhalten durch die Komponenten des photovoltaischen Tensors.

Die Ladungsverschiebung findet während der Beleuchtung statt. Diese Zeit intensiver Beleuchtung wird Einschreiben genannt. Dabei werden die Ladungen aus dem beleuchteten Bereich heraus gedrückt. Die Ladungstrennung bewirkt ein Raumladungsfeld, das über den linearen elektrooptischen Effekt den komplexwertigen Brechungsindex verändert. Diese Wirkung ist qualitativ unter dem Mikroskop gut sichtbar. Abbildung 5.22 zeigt für 4 verschiedene Einschreibenzeiten die Absorptionkontrastaufnahme. Die runde Form des Strahls ist durch die Randeffekte klar erkennbar, nicht jedoch die innere Struktur oder die Phasenlage. Die Randeffekte der ptychographischen Rekonstruktion sind auch in der Absorption  $A = 1 - T$ ,  $T$  bezeichnet die Transmission, sichtbar, siehe Bild 5.23 T. Zusätzlich wird bei der Ptychographie der Phasenanteil  $\Delta\phi$  des Objekts rekonstruiert, Bild 5.23  $\Delta\phi$ . Die im Phasenbild vorhandenen  $2\pi$ -Sprünge müssen durch Entrollen konsistent zusammengefügt werden. Nach dem Entrollen der Phasensprünge ergibt sich aus

$$\Delta n = \Delta\phi \frac{\lambda}{2\pi \cdot d} \quad (5.1)$$

die Veränderung des Realteils des Brechungsindex, mit  $\lambda$  als Lichtwellenlänge und  $d$  als Kristalldicke. Mit steigender Belichtungszeit verstärkt sich das Brechungsindexmuster bis hin zu einem Sättigungswert. An den erzeugten Brechungsindexvariationen können, zusammen mit der zum Einschreiben verwendeten Intensitätsverteilung, genaue Erkenntnisse über die Mechanismen des Ladungstransports innerhalb des Materials gewonnen werden. Durch Anpassen des Ladungstransportmodells an die experimentellen Daten lässt sich aus den Brechungsindexvariationen beispielsweise die Ladungsträgerbeweglichkeit bestimmen [9]. Die in Abbildung 5.24 dargestellten vertikalen Profile zeigen das Brechungsindexmuster für verschieden lange Einschreibenzeiten. Bei Lichtleistungen im Bereich des Ein-Zentren-Modells

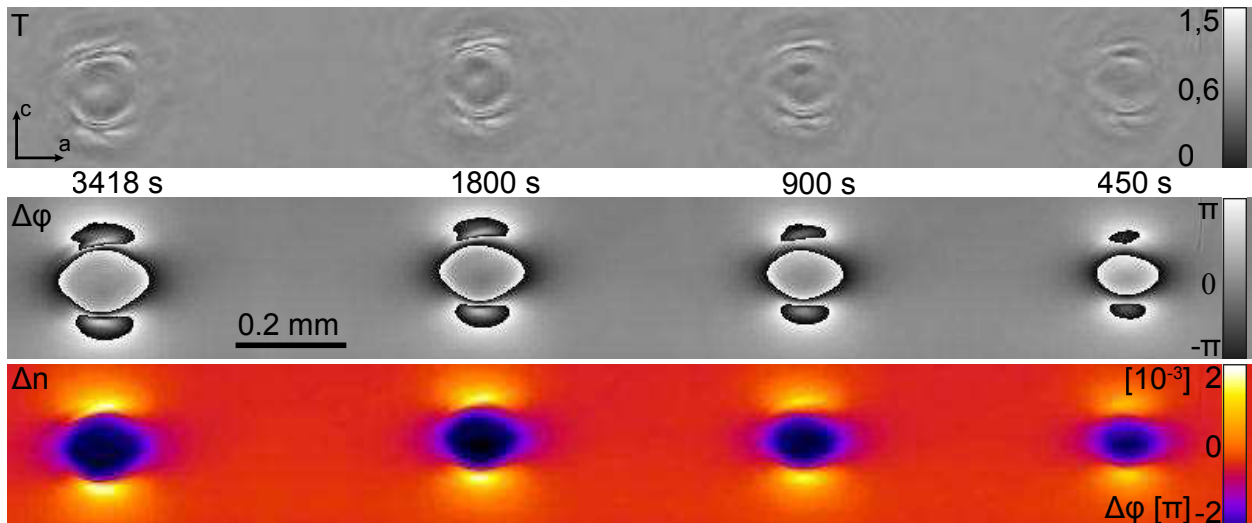


Abbildung 5.23: Die Transmission  $T$  der ptychographischen Rekonstruktion zeigt die gleichen Strukturen wie das Mikroskopiebild in Bild 5.22. Die Phasenrekonstruktion des Objekts zeigt den realen Anteil  $\delta$  des Brechungsindex. Der entrollte Phasenschub wird mit (5.1) in den Brechungsindex umgerechnet. Zusammen mit der Intensitätsverteilung der Beleuchtung, wie in Abbildung 5.19 a) dargestellt, können Analysen der Ladungswanderungen in Abhängigkeit der genauen Beleuchtungsintensität vorgenommen werden.

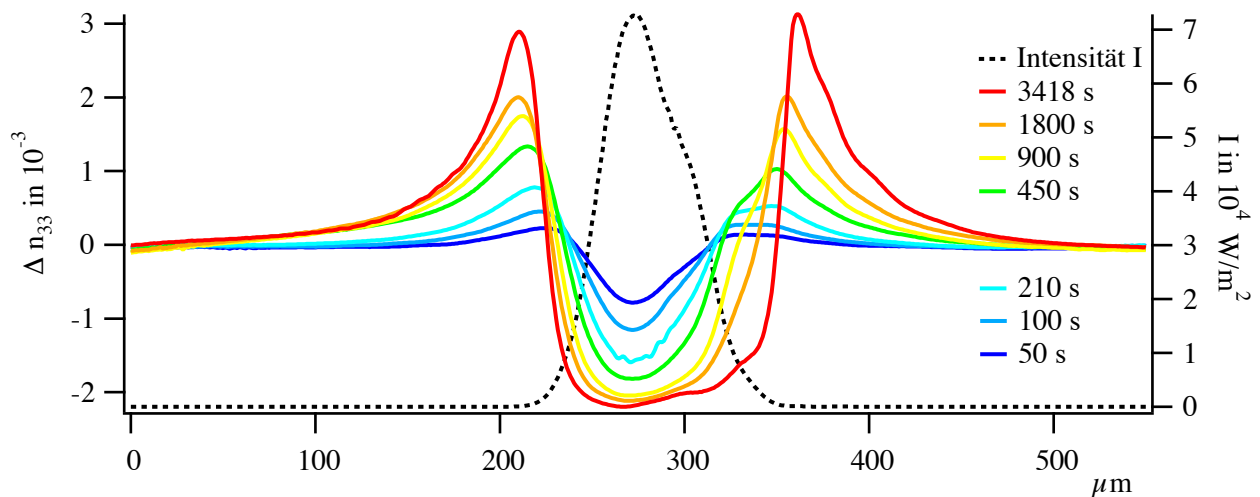


Abbildung 5.24: Mit steigender Einschreibeweit steigt die Wirkung bis zu einer maximalen Grenze mit maximaler Brechungsindexänderung. Wird mit höherer Dosis belichtet vergrößert sich der gesättigte Bereich weiter, allerdings mit einer anderen Dynamik.

steigt mit der Beleuchtungsdauer die erzeugte Brechungsindexvariation. Dabei gibt es eine Obergrenze für die negative Variation im beleuchteten Bereich. Über die Sättigung hinaus wird keine weitere Wirkung erzeugt. Unser berechnetes Modell der Ladungswanderung und dem sich daraus ergebenden Raumladungsfeld, kann die Brechungsindexvariation quantitativ und qualitativ berechnen. Durch Anpassung dieses Modells an die rekonstruierte Objektfunktion ergibt sich unter anderem die Ladungsträgerbeweglichkeit. Genauer ausgeführt ist die Bestimmung der Materialparameter und der zeitlichen Dynamik des Ladungstransportes in der Masterarbeit von C. Bernert [9].

Durch die einzigartige Möglichkeit der Beleuchtungsrekonstruktion erlaubt die Ptychographie den einfachen Zugang zu Materialparametern, die bisher nur schwer oder gar nicht messbar waren. Hinzu kommt, dass zum ersten Mal die Ladungstransport-Dynamik lokal als Funktion der Intensitätsverteilung bestimmt werden kann, da die Intensität der Beleuchtung lokal mit einer Ortsauflösung von  $5\ \mu\text{m}$  bestimmt wurde. Allerdings bleibt das Tiefenverhalten der Brechungsindexvariationen verborgen, da die ptychographische Bildgebung das Objekt als zweidimensionale Ebene erfasst. Eine Darstellung der dreidimensionalen Rekonstruktion, bei der das Objekt in einzelne Bereiche zerlegt wird, erfolgt in Kapitel 5.4.6. Um jedoch ohne diese 3-dimensionale Methode einen ersten Einblick in das Volumen zu erhalten, wurde ein dicker Kristall (Abbildung 5.25) entlang der b-Achse beleuchtet und senkrecht dazu entlang der a-Achse ptychographiert.

### 5.4.5 Tiefenverlauf in $\text{LiNbO}_3$

Der Verlauf der Brechungsindexänderung im Material kann durch eine Abbildung in Einschreibstrahlrichtung nicht untersucht werden, da die ptychographische Bildgebung das gesamte Volumen auf eine 2-dimensionale Ebene projiziert. Im Rahmen der Bachelorarbeit von Julian Pietsch untersuchten wir unter meiner Anleitung die Veränderungen des Brechungsindex [75], indem der Kristall nach dem Einschreiben um die c-Achse um  $90^\circ$  gedreht wurde. Der Untersuchungsablauf ist im Bild 5.25 skizziert. Während des Einschreibens liegt der Wellenvektor  $\vec{k}$  des Lichtes parallel zur b-Achse. Das Auslesen wird parallel zur a-Achse durchgeführt. Für beide Strahlrichtungen liegt die Polarisation des Beleuchtungsfeldes  $\vec{E}$  parallel der c-Achse des Kristalls. Damit kann die Brechungsindexänderung über die gesamte Kristallbreite entlang der b-Achse abgetastet werden. Der einschreibende Strahl,  $\lambda = 532\ \text{nm}$ , hatte eine Intensität von  $1,9 \cdot 10^6\ \text{W/m}^2$  und liegt damit oberhalb der kritischen Leistungsdichte, bis zu der die Wechselwirkung mit dem Ein-Zentren-Modell ( $1 \cdot 10^6\ \text{W/m}^2$ ) beschrieben werden kann [2]. Die Absorption innerhalb des Kristalls, die Divergenz des Strahls und die Streuung an den eingeschriebenen Strukturen führen jedoch schon wenige Millimeter nach dem Eintritt in den Kristall zum Unterschreiten der Schwelle für das 1-Zentren-Modell. Die Leistungsdichten liegen dann unter  $1 \cdot 10^6\ \text{W/m}^2$ . Der Einschreibevorgang wurde mit konstanter Intensität bis hin zur vermuteten Sättigung durchgeführt. Als Sättigung wurde gedeutet, dass die Diode zur Transmissionsmessung keine relevante Änderung mehr verzeichnet. Die Diode wurde ohne Probe auf den zentralen Bereich des Strahls ausgerichtet. Während des Einschreibens fällt die gemessene Intensität zu Beginn stark ab und steigt dann wieder bis

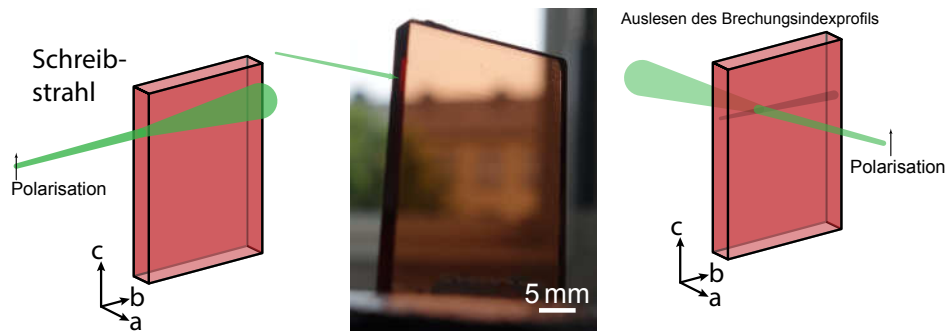
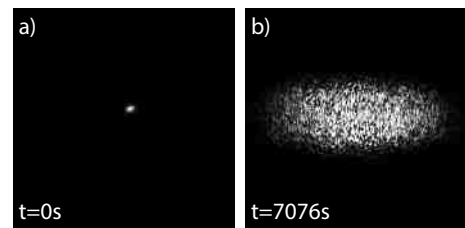


Abbildung 5.25: a) Schematische Darstellung des Einschreibevorgangs für einen Brechungsindexkanal. b) Im Kristall ist der Brechungsindexkanal mit bloßem Auge erkennbar. c) Zur Untersuchung des Kanals wird der Kristall mit einem abgeschwächten Strahl entlang der a-Richtung abgetastet. Die Polarisation ist weiterhin entlang der c-Achse ausgerichtet.

Abbildung 5.26: a) Vor dem Einschreiben des Tiefenprofils wird der Strahl nur in geringem Maß gestreut, der Kristall zeigt keine Struktur. b) Nach dem Einschreiben ist die Intensitätsverteilung weit über das Beugungsbild ausgebreitet und zeigt kleinteilige Muster, die auf eine ausgedehnte lichtinduzierte Struktur schließen lassen.



zur Sättigung hin an. Vor und nach dem Einschreiben wurden Beugungsbilder aufgenommen.

Das Bild 5.26 a) zeigt das Beugungsbild vor dem Einschreiben als propagiertes Gaußprofil. Der Strahl propagiert durch den Kristall und wird nur wenig gestreut. Ein, knapp 2 h nach dem Einschreiben, aufgenommenes Beugungsbild ist in Bild 5.26 b) dargestellt. Die Intensitätsverteilung nach dem Einschreiben unterscheidet sich deutlich von der Verteilung vorher. Nach dem Einschreiben ist die Intensitätsverteilung deutlich kleinteilig strukturiert und über einen größeren Bereich des Beugungsbildes verteilt. Die stärkere Streuung, mit kleinteiligem Muster, lässt auf eine große lichtinduzierte Änderung im Material schließen.

Für die Untersuchung des Kanals wurde der Strahl mittels eines Neutralgraufilters um 4 Größenordnungen abgeschwächt und auf die breite Seite (a-Achse in Bild 5.25), senkrecht zum eingeschriebenen Kanal, gerichtet, dargestellt in Abbildung 5.25 c). Auch für die auslesende Messung war die Polarisationsachse entlang der c-Achse ausgerichtet und um optimal an die erzeugte Brechungsindexänderung anzukoppeln. Das Profil wird durch das schwache und kurze Beleuchten beim Auslesen nicht verändert. Das Auslesen unter  $90^\circ$  entlang der a-Achse ermöglicht eine tiefenabhängige Untersuchung des eingeschriebenen Kanals. Dabei wird über die gesamte Kristalldicke gemittelt, entlang der a-Achse. Die Rekonstruktion zeigt daher ausschließlich ein projiziertes Brechungsindexprofil. Der Lesebereich erstreckt sich über  $1,4 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$  Höhe  $\times$  Breite. Auch der Rand des Kristalls mit dem Eintrittspunkt des Strahl ist abgetastet worden. Es wurde über den gesamten Bereich eine Schrittweite von  $100 \mu\text{m}$  realisiert. Insgesamt ergibt sich daraus eine Gesamtzahl von 211 641 Beugungsbildern, mit je  $0,1 \text{ s}$  Belichtungszeit. Der Datensatz umfasst  $3,68 \text{ TB}$  Rohdaten. Für die Rekonstruktion wurden die Beugungsbilder in beiden Richtungen um den Faktor 3 gebinnt, so



Abbildung 5.27: Rekonstruierter Bereich des Kristalls mit  $3,25\ \mu\text{m}$  großen Pixeln. a) Auf  $\pm\pi$  beschränkte Phase der Objektfunktion. Der rote Pfeil zeigt eine unbestimmte Stelle im Phasenbild, ein sogenanntes Residuum. b) Die rekonstruierte Amplitude zeigt starke Artefakte und nur schwache Probeneffekte. Aufgrund dessen wird die Amplitude im folgenden nicht weiter betrachtet.

dass aus einem Quadrat von  $3 \times 3$  Pixeln ein einziges Pixel wird. Dadurch reduziert sich die Datenmenge auf 409 GB. Auch nach der Reduktion ist die Datenmenge zu groß, um auf einer Graphikkarte vorgehalten zu werden. Trotz gut ausgerüsteter Host-Systeme kann auch der Host-RAM keine solche Datenmenge vorhalten. Durch die von mir eingeführte Speicherverwaltung, beschrieben in Kapitel 4.4, ist es möglich auch diese Datenmengen zu verarbeiten und in einem Bild zu rekonstruieren. Bei dieser Auswertung müssen die Phasenwerte über den gesamten Bildausschnitt verglichen werden. Die Phase ist nur innerhalb eines Bildes zueinander in fixer Beziehung, es ist daher im Allgemeinen nicht möglich das Gesichtsfeld aufzuteilen und teilweise zu vergleichen. Nur wenn im Gesamtfeld keine, oder in kleinen begrenzte Bereiche mit Phasensprünge vorhanden sind, kann über Angleichen des Hintergrundniveaus eine Aufteilung des Gesichtsfeldes gelingen.

Für die Rekonstruktion wurde der Algorithmus für 5000 Iterationen mit festgesetzter Beleuchtung iteriert. Die Beleuchtung ist, während der Arbeit von J. Pietsch [75], hochgenau bestimmt worden und kann für die Rekonstruktion des Tiefenprofils verwendet werden.

Anschließend ist über 10 000 Iterationen mit veränderlicher Beleuchtungsfunktion rekonstruiert worden. In Bild 5.27 sind die Phase und Amplitude des Objekts dargestellt. Die rekonstruierte Beleuchtung entspricht in Form und Struktur der gaußförmigen Beleuchtung aus Bild 5.19 a). Die Auflösung der Rekonstruktion wird durch Vergleich mit einer Mikroskopaufnahme anhand von Staubkörnern bestimmt und liegt bei  $5\ \mu\text{m}$ . Die Objektphase, Bild 5.27 a), zeigt den mit bloßem Auge in Bild 5.25 a) zu erkennenden Kanal mit quantitativen Phasenwerten. Die Phasenwerte sind bei der Amplituden-Phasen-Darstellung auf den Bereich  $\pm\pi$  beschränkt und müssen vor weiteren Analysen entrollt werden. Dabei stehen dem konsistenten Zusammenfügen der Phasenwerte die Residuen entgegen. Einer der unbestimmten Punkte in der Phasendarstellung ist im Bild 5.27 a) mit einem roten Pfeil markiert. Die Residuen werden während der Zusammenfügung als unstetige Stellen behandelt. Die Phasenwerte im Umfeld des Residuums sind durch die Unstetigkeit beeinflusst und die Phasenwerte dabei lokal verändert. Die Phasenwerte in der unmittelbaren Umgebung sind damit nicht vertrauenswürdig, außerhalb des Einflussbereichs sind die Werte unverändert und können verwendet werden [32]. Im unbeschränkten Phasenbild in Bild 5.28 a) ist der eingeschriebene Kanal gut zu erkennen. Vom Rand des Kristalls auf der linken Seite beginnend verbreitert

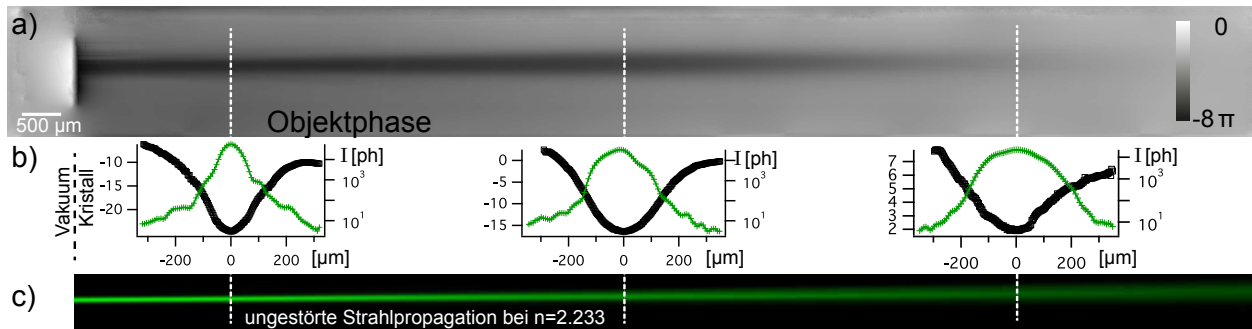


Abbildung 5.28: a) Aus der beschränkten Phase, Bild 5.27 a), werden die entrollten Phasenwerte berechnet. Zum Entrollen wurde ein global wirkender Algorithmus eingesetzt [32]. b) Für 3 beispielhafte Ebenen sind die Beleuchtungsprofile (logarithmisch) und die Kanalform dargestellt. c) Intensitätsdarstellung der Beleuchtung, frei propagiert in einem Medium mit  $n = 2,331$ .

sich der Kanal durchgehend und verliert dabei an Tiefe. Im Vergleich dazu ist im Bild 5.28 c) die Beleuchtungsintensität bei freier Propagation dargestellt. Auch dieser Strahl verbreitert sich mit zunehmender Propagationslänge und wird entsprechend weniger intensiv. Für 3 Ebenen wird die Intensitätsverteilung der Beleuchtung mit dem eingeschriebenen Phasenprofil verglichen (Abbildung 5.28 b)). Die Profile der Beleuchtung zeigen eine mit der Propagation ansteigende Halbwertsbreite der Intensitätsverteilung. Die Phasenverteilung zeigt eine im gleichen Maße wie die Beleuchtung steigende Breite des Kanals. Der gaußförmige Kanal ist in allen drei Ebenen erkennbar. Die Ausdehnung der Phasenwerte passt zur gaußartigen Intensitätsverteilung der Beleuchtung in der gleichen Ebene.

## Dynamikuntersuchungen

Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  mit grünem Laserlicht verändert lokal den Brechungsindex des Materials. Dabei entscheidet die Intensität des einfallenden Lichts über das Modell mit dem die Änderung beschrieben werden kann. Mit Messungen der Materialantwort auf verschiedene Beleuchtungsintensitäten hat J. Schultz die Wirkung von verschiedenen Beleuchtungsintensitäten untersucht und daraus die Grenze für den Übergang vom Ein- zum Zwei-Zentren-Modell bestimmt [96]. Im Rahmen der von mir betreuten Bachelor-Arbeit von J. Schultz wurden bei 8 verschiedenen Beleuchtungsleistungen ober- und unterhalb der in der Literatur angegebenen Grenze von  $1 \cdot 10^6 \text{ W/m}^2$  beleuchtet.

Zur Untersuchung des besagten Übergangs wurde mit 8 unterschiedlichen Strahlungsleistungen an unterschiedlichen Positionen bis in die Sättigung eingeschrieben und der Bereich anschließend ptychographisch untersucht. Die verschiedenen Leistungsstufen wurden unmittelbar nacheinander in den selben Kristall geschrieben, um vergleichbare Werte zu erhalten. Dabei sind die Punkte in einem zweizeiligen Gitter angeordnet. Die Einschreibepunkte sind so nah wie möglich beieinander, um ein kleines Gesichtsfeld zu erreichen. Der Abstand darf dabei nicht zu klein werden, um eine Beeinflussung untereinander zu vermeiden. Insgesamt überdeckt das Gitter eine Fläche von  $0,5 \text{ mm} \times 0,7 \text{ mm}$ . Das Einschreiben wurde mit steigender Leistung in steigenden Abständen vorgenommen. Die Lichtleistungsdichten entsprechen

folgenden Werten: 0,4, 2, 9, 45, 71, 107, 143 und 206 kW cm<sup>-2</sup>. Mit jedem Wert wurde ein Muster eingeschrieben.

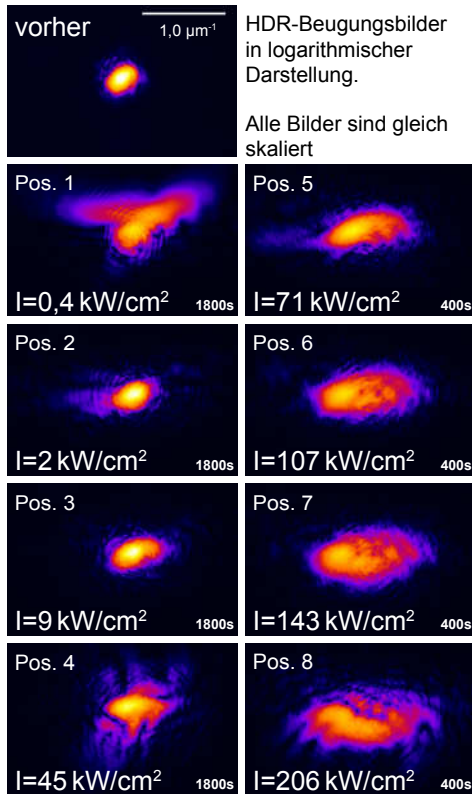


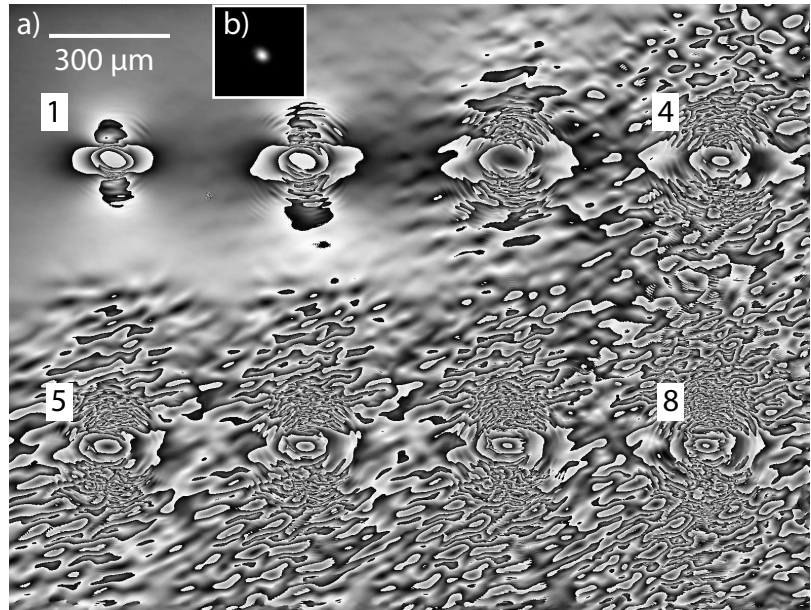
Abbildung 5.29:  
 vorher: Beugungsbild an Position 1 vor dem Einschreiben  
 Pos 1 bis 8: Beugungsbild an der entsprechenden Position mit Belichtungsintensität  $I$  und Belichtungszeit  $t$ .

Für die ersten 4 niedrigeren Schreibintensitäten wurde je Punkt 1800 s lang belichtet. Nach dem Einschreiben aufgenommene Beugungsbilder sind in der Abbildung 5.29 dargestellt. Während der Belichtungen wurde die Intensität des Zentralstahls gemessen. Nach etwa 700 s erreicht dieser Messwert ein Plateau und verändert sich nicht weiter. Ab diesem Zeitpunkt wird davon ausgegangen, dass die Sättigung der Brechungsindexänderung erreicht ist. Die Zeit bis zur Sättigung nimmt mit steigender Intensität ab und ist bei der 4. Intensität nur noch etwa 100 s lang. Für die weiteren 4 Einschreibepunkte, gezeigt in Abbildung 5.29 mit den Positionen 5 bis 8, wird deshalb die Einschreibzeit auf 400 s verringert. Die Fernfeldbilder in Abbildung 5.29 sind nach dem Abschluss aller Einschreibevorgänge als HDR-Bilder an den nominellen Positionen aufgenommen worden. Dabei wurde mit einem Bruchteil der Leistung beleuchtet um die CCD-Kamera nicht zu beschädigen und die eingeschriebenen Muster nicht zu verändern. Für die Auswertung ist der Bereich aller 8 Einschreibepunkte in einem 1,45 mm × 2,1 mm großem Ptychogramm abgetastet worden. An jedem der 100 × 145 Punkte wurden je 3 Beugungsbilder mit  $t = 0,5$  s, 2 s und 8 s Belichtungszeit gemessen und für die Rekonstruktion zu einem HDR-Bild verrechnet. Für eine schnellere Rekonstruktion ist die Pixelzahl der Bilder durch Aufsummieren von je 3 × 3 Pixeln reduziert worden. Dabei bleibt die Pixelgröße im Objekt erhalten, das Gesichtsfeld reduziert sich entsprechend. Die geringere Feldgröße reduziert die zur Rekonstruktion erforderliche Zeit um fast eine Größenordnung.

Die Rekonstruktion mit 13 534 Beugungsbildern ist auf einer NVIDIA Tesla K80 Karte durchgeführt worden. Insgesamt umfasst der Datensatz damit 13,2 GB und kann nicht vollständig im Speicher der Karte gehalten werden. Nur unter Verwendung der von mir entwickelten Speicherverwaltung mit Nutzung des Host-RAMs, beschrieben im 3. Absatz in Abschnitt 4.2, konnte die Rekonstruktion in einem Stück durchgeführt werden. Für derart große Datensätze benötigt das System dann etwa 19,6 s/Iteration. Die Rekonstruktionszeit steigt durch die Host-RAM auf etwa das doppelte. Der Phasenanteil des ptychographischen Objektfeldes ist in Bild 5.30 gezeigt. Deutlich sind dabei die Phasensprünge zu erkennen. Der durch die hohe Intensität und starke Dotierung mit 0,05 mol % Eisen photorefraktive Kristall



Abbildung 5.30: a) Ptychographisch rekonstruierte Objektphase des Schreibbereichs mit 8 verschiedenen intensiven Einschreibepunkten. Der Phasenbereich ist auf Grund der Periodizität der trigonometrischen Funktionen bei der Umrechnung auf den Bereich  $[-\pi, \pi]$  beschränkt. b) Rekonstruierte Beleuchtungsintensität des zum Abtasten verwendeten Strahls. Der Schreibstrahl wurde mir der selben Optik erzeugt, wobei der Strahl nicht durch Neutralgraufilter auf  $P = 1 \text{ mW}$  abgeschwächt wurde. Die Form des Schreibstrahls entspricht so der Form des gezeigten Profils.



von  $d = 650 \mu\text{m}$  verursacht Phasenschubvariationen von weit über  $2\pi$ . Dabei gibt es in dem Bereich der positiven Phasenänderung ober- und unterhalb der Einschreibepositionen viele un stetige Stellen, die eine konsistente Abwicklung der Phase unmöglich machen. Entlang horizontalen Verbindungslinien der Einschreibepunkte sind aber keine dieser un stetigen Stellen vorhanden. Es wird also nicht das gesamte Bild konsistent abgerollt, sondern 2 horizontale Bahnen die je 4 Einschreibepunkte schneiden. Aus den Phasenwerten werden mit Formel 2.22 die Brechungsindexvariationen berechnet. In Abbildung 5.30 sind die zwei Schnitte durch die Objektphase dargestellt. Beide Schnitte sind gleich skaliert, der Schnitt für Position 5 bis 8 ist aber zur besseren Übersicht um  $2 \cdot 10^{-3}$  nach unten verschoben. Die eingeschriebenen Brechungsindextöpfe an den Positionen 1 und 2 haben einen flachen Boden (Bild 5.30 Pos 1 und 2). Die Sättigung ist in diesen beiden Fällen nicht nur im intensivsten Pixel erreicht worden. Durch die lange Belichtungszeit haben auch weniger intensive Bereiche der Beleuchtung die maximal erreichbare Brechungsindexänderung erzeugen können. Die Form dieser beiden Töpfe unterscheidet sich grundlegend von der aller weiteren Modulationen. Daraus ist zu schließen, dass zwischen den Leistungsdichten für Position 2 und 3 die Grenze für die Beschreibung mit dem Ein-Zentren-Modell liegt. Die Form des eingeschriebenen Brechungsindex ändert sich von einem flachen Boden hin zu einem V-förmigen Einschnitt. Alle Punkt mit höherer Intensität, P 3 bis 8, zeigen dieses Verhalten. Die Seitenzacke in den Positionen 3 bis 8 ist ein Artefakt, dass beim Entrollen der beschränkten Phase auftritt und durch höher aufgelöste Messungen vermieden werden kann. Die V-förmigen Profile lassen auf eine grundlegende Änderung des Materialverhaltens schließen. Ab der Intensität bei Position 3 ist demnach das Ein-Zentren-Modell nicht mehr gültig. Althof et. al. führen als Erweiterung hier das Zwei-Zentren-Modell ein [2]. Die Tiefe der Täler sollte mit der Intensität ansteigen. Das sprunghafte Verhalten in der hier vorgestellten Messreihe ist ebenfalls auf die Phasenun stetigkeiten zurückzuführen. Abschließend kann festgestellt werden, dass zwischen den

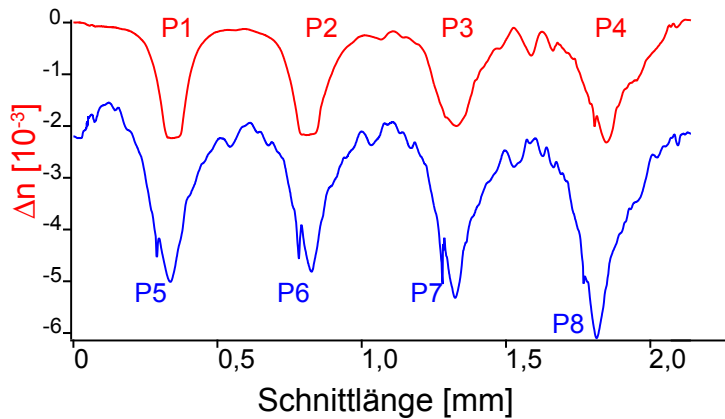


Abbildung 5.31: Phasenwerte der horizontalen Schnitte durch Bild 5.30 auf Höhe der Einschreibepunkte. Der obere der beiden Graphen schneidet die Positionen 1 bis 4. Der um  $\Delta n = -210^{-3}$  nach unten verschobene Graph schneidet die Positionen 5 bis 8. Bei P1 und P2 sind Plateaus entstanden, hier ist sicher die Sättigung auch außerhalb des intensiv beleuchteten Bereichs entstanden. Ab dem Punkt P4 wird das Brechungsindexprofil tiefer. Etwas unterhalb dieser Intensität ist der Übergang ins 2-Zentrenmodell zu erwarten.

Einschreibeintensitäten für Position 2 ( $2 \text{ kW cm}^{-2}$ ) und 3 ( $9 \text{ kW cm}^{-2}$ ) die Grenze für die Beschreibung mit dem Ein-Zentren-Modell liegt. Die Literatur gibt für die Grenze  $1 \text{ kW cm}^{-2}$  an [2]. Die Abweichungen könnten auf unterschiedliche Annahmen zur Flächenbestimmung des Fokus, oder auf die nicht genau genug bekannte lokale Intensitätsverteilung innerhalb des Strahls zurückgeführt werden. Durch die Nutzung der ptychographischen Bildgebung ist bei unseren Experimenten neben den hochaufgelösten Brechungsindexvariationen, die innere Intensitätsverteilung des Strahls mit gleicher Auflösung wie das Objekt bekannt.

Ptychographische Bildgebung vermittelt durch Vermessen der Materialantwort auf verschiedene intensive Beleuchtungen einen Zugang zur quantitativen Analyse der Dynamik des Materials. In diesem Versuch ist die obere Grenze für die Beschreibung des Materialverhaltens mit dem Ein-Zentren-Modell bestimmt worden. Die Abweichung vom Literaturwert wird durch genauere Flächenbestimmung und Fehler in der Intensitätsmessung abgedeckt.

## Material Eigenschaften

Existiert im  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  eine inhomogene Ladungsverteilung, entsteht ein inneres elektrisches Feld. Beispielsweise kann durch die Bestrahlung mit intensivem grünen Licht eine Umverteilung der Ladungen ( $\text{Fe}^{2+} \leftrightarrow \text{Fe}^{3+}$ ) erreicht werden. Die Umverteilung wird durch Materialparameter beschrieben, in diesem Fall dem photovoltaischen Tensor. Der photovoltaische Tensor  $\beta_{ijk}$  ist ein Tensor 3. Stufe. Aus Symmetriegründen bleiben von den 27 möglichen Komponenten für  $\text{LiNbO}_3$  nur 5 unabhängige Komponenten übrig [115]. Die Werte der Komponenten sind bereits hinreichend genau bestimmt worden und können in der Literatur nachgeschlagen werden [115]. Vorzeichen von Komponenten mit interferometrischen Messungen zu bestimmen ist eine experimentell anspruchsvolle Aufgabe. Die Ptychographie bietet, durch Messung verschiedener Polarisationsausrichtungen von lesendem und schreibendem Strahl, einen direkten Zugang zu den Vorzeichen und den Werten der Komponenten.

In der im Rahmen meiner Untersuchungen entstandenen Bachelorarbeit von Chi Dung Nguyen wurde das Vorzeichen zweier Komponentenpaare des elektrooptischen Tensors bestimmt [72]. Zur Bestimmung der Vorzeichen ist es notwendig, die Entstehung der Brechungsindexveränderung durch die Beleuchtung qualitativ zu verstehen.

Im Folgenden wird die Konvention verwendet, dass für die drei Indizes die ausgezeichnete  $c$ -Achse des Kristalls mit dem Index  $i_c = 3$  zusammenfällt, die Achsen  $a$  und  $b$  entsprechend mit  $i_a = 1$  und  $i_b = 2$ . Der photovoltaische Tensor  $\beta_{ikl}$  beschreibt die Ladungswanderung bei Beleuchtung des Materials auf

$$j_i = \beta_{ikl} \mathcal{E}_k^* \mathcal{E}_l \quad (5.2)$$

$$j_i = \beta_{ikk} |\mathcal{E}_k|^2 \quad (5.3)$$

in Abhängigkeit der einfallenden Strahlung  $\mathcal{E}_k$ . Der photovoltaische Tensor  $\beta_{ikl}$  lässt sich als  $6 \times 3$  Matrix darstellen [115] und baut sich aus 5 unabhängigen Komponenten

$$\beta_{ikl} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \beta_{113} & -2\beta_{222} \\ -\beta_{222} & \beta_{222} & 0 & \beta_{113} & 0 & 0 \\ \beta_{311} & \beta_{311} & \beta_{333} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (5.4)$$

auf. Das sich ergebene Ladungsfeld im Material ist eine Summe aller im Material vorhandenen Stromdichten. In diesem Fall soll nur die photovoltaische Stromdichte qualitativ betrachtet werden. Das Raumladungsfeld  $\rho(\vec{R})$  und damit auch das interne elektrische Feld  $E_i$  ist unter diesen Voraussetzungen direkt proportional zur photovoltaischen Stromdichte  $j_i$

$$E_i \propto \rho(\vec{r}) \propto j_i = \beta_{ikk} |\mathcal{E}_k|^2 \quad (5.5)$$

und damit zu den Komponenten von  $\beta_{ikl}$  und dem einschreibenden Feld  $\mathcal{E}_k$ .

Die verschobenen Ladungsträger erzeugen ein internes Raumladungsfeld  $E_i$ , dass über den elektrooptischen Tensor  $r_{ik}$  an den Brechungsindex  $n_{ik}$  koppelt und Variationen erzeugt. Der Brechungsindex besitzt dabei 2 Indizes  $ik$  um die Polarisierung und die Ausbreitungsrichtung des einfallenden Lichtes zu beschreiben.

Mit den gleichen Symmetriebetrachtungen, die zur Reduktion der Komponenten im photovoltaischen Tensor führen, lassen sich auch die Komponenten des elektrooptischen Tensors reduzieren und der Tensor so als  $3 \times 6$  Matrix darstellen. Die Darstellung des Tensors

$$r_{ik} = \begin{pmatrix} r_{11} & r_{12} & r_{13} \\ r_{21} & r_{22} & r_{23} \\ r_{31} & r_{32} & r_{33} \\ r_{41} & r_{42} & r_{43} \\ r_{51} & r_{52} & r_{53} \\ r_{61} & r_{62} & r_{63} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -r_{22} & r_{13} \\ 0 & r_{22} & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{42} & 0 & 0 \\ -r_{22} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.6)$$

beinhaltet 5 unabhängige Komponenten [115]. Die Beträge der Komponenten sind gut messbar; die Vorzeichen zu bestimmen stellt hingegen eine große Herausforderung dar. Das innere elektrische Feld  $E_i$  erzeugt messbare Brechungsindexvariationen

$$\Delta n_i = -2n_i^3 r_{ik} E_k. \quad (5.7)$$

Für linear polarisiertes Licht sind nur die Hauptdiagonalelemente  $i = \{1, 2, 3\}$  der Brechungsindexänderung zu betrachten.

Es müssen verschiedene Kombinationen der Polarisationsrichtung von einschreibender und auslesender Strahlung gemessen werden. Steht die Einschreiberichtung parallel zur a-Achse des Kristalls, wird das mit dem oberen Index ( $a$ ) markiert, entsprechend für die b-Achse mit ( $b$ ). Für  $\Delta n_{\{1,2\}}^{(x)}$  bestimmt sich die Abhängigkeit zu

$$\Delta n_1^{(a)} \propto [+r_{22}\beta_{222} + r_{13}\beta_{311}] \quad (5.8)$$

$$\Delta n_2^{(a)} \propto [-r_{22}\beta_{222} + r_{13}\beta_{311}] \quad (5.9)$$

$$\Delta n_1^{(b)} \propto [-r_{22}\beta_{222} + r_{13}\beta_{311}] \quad (5.10)$$

$$\Delta n_2^{(b)} \propto [+r_{22}\beta_{222} + r_{13}\beta_{311}]. \quad (5.11)$$

Durch paarweises Vergleichen der Messergebnisse wird das verwendete Vorzeichen geprüft. Beispielhaft wird das Vorzeichen der Tensoren durch Vergleich der Brechungsindexmodulationen, durch Gleichungen (5.10) und (5.11) beschrieben, entlang der Kristallachse b eingeschrieben. Ausgelesen wird dabei parallel der a-Richtung des Kristalls, Bild 5.32 a), und in Bild 5.32 b) liegt die Polarisation entlang der b-Achse.

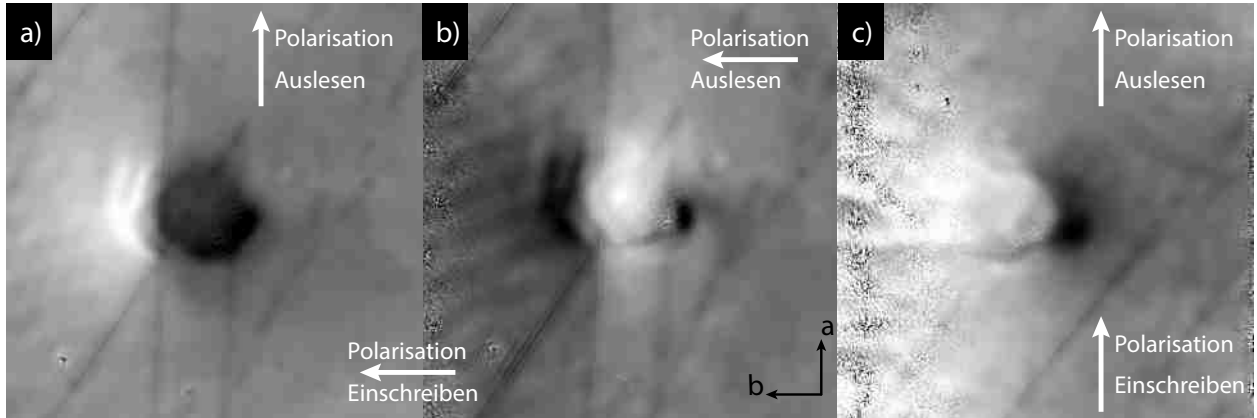


Abbildung 5.32: a) Gemessene Phasenvariationen bei gekreuzter Polarisation. Die mit  $\mathcal{E} \parallel b$  eingeschriebene Variation wird mit  $E \parallel a$  ausgelesen. Die Veränderungen im Beleuchtungsbereich weisen in negative Richtung. b) Die gleiche Indexvariation wie in Bild a); aber parallel zum Einschreiben ausgelesen. Die zentrale Brechungsindexvariation geht dabei in positive Richtung. Bereits im Bild b) ist dabei das unterschiedliche Vorzeichen bewiesen. c) Mit Licht  $\mathcal{E} \parallel a$  eingeschriebene und ausgelesene Variation zeigt gleichermaßen das stimmige Vorzeichen der Tensorkomponenten.

Die rekonstruierten Modulationen unterschiedlicher Kombinationen der Polarisierungen beim Einschreiben und Auslesen, zeigt die innere Konsistenz der Vorzeichen der Tensor-komponenten von  $\beta$  und  $r$ . Ist die Polarisation beim Einschreiben und Auslesen parallel, wird eine positive Änderung rekonstruiert. Eine gekreuzte Polarisation erzeugt eine negative Brechungsindexmodulation. Die Übereinstimmung der Artefakte und Kratzer in den Bildern 5.32 a) und b) zeigt eindeutig, dass der gleiche Bereich abgetastet wird. Die Variation wird demnach einzig durch die veränderte Polarisation beim Auslesen erzeugt. Der Bereich in Bild 5.32 c) kann anhand der Kratzer eindeutig einem anderen Probenareal zugeordnet werden und zeigt bei  $\mathcal{E} \parallel E$  eine wie zu erwartende positiv orientierte Brechungsindexmodulation.

Aus der Übereinstimmung der gemessenen Variationen mit den modellierten Vorzeichen kann abgeleitet werden, dass die bekannten Vorzeichen richtig gewählt sind. Mit der Ptychographie sind die Vorzeichen der Tensorkomponenten  $r_{12}$  und  $r_{22}$ , sowie des Komponentenpaares  $\beta_{21}$  und  $\beta_{22}$  eindeutig bestimmbar. Durch geeignete Wahl der Kombinationen lassen sich auch die anderen Komponenten bestimmen. Die Beträge sind auf Grund der quantitativen Natur der Ausgabe ebenso bestimmbar.

### 5.4.6 Dicke Proben

Die ptychographische Wechselwirkung ist als Wechselwirkung eines Wellenfeldes mit einer dünnen Schicht definiert, siehe Kapitel 3.4.1. Die Erweiterung der Wechselwirkungsbeschreibung für dicke Proben ist in Abschnitt 3.5.7 detailliert besprochen. Im Rahmen seiner Masterarbeit untersuchte Tobias Witt, ob die Unterscheidung verschiedener Ebenen auch bei quasi parallelem Strahlengang möglich ist [117]. Über Modellrechnungen mit und ohne Störungen, wie Rauschen oder nicht exakter Experimentgeometrie, zeigen wir, dass die Unterscheidung von verschiedenen Ebenen bei Volumenproben möglich ist. Die sich aus dem Modell ergebende These wurde an einer Probe aus 2 dünnen Ebenen im optischen Spektrum untersucht. Als Referenz ist die Probe mit einer diffusen Beleuchtung untersucht worden, Abbildung 5.33 zeigt ein Fernfeld dieser Beleuchtung. Diffuse Beleuchtung bedeutet in diesem Zusammenhang die Beleuchtung mit einem kohärenten Wellenfeld mit möglichst kleinteiliger Phasenverteilung. Eine solche Amplituden- und Phasenverteilung gewährleistet, dass sich die Wellenfront der Beleuchtung bereits bei sehr kleinen Propagationsabständen in der Größenordnung einiger Wellenlängen relevant verändert. Die Veränderungen in der Beleuchtungsstruktur generieren eine eindeutige Abfolge der Wechselwirkungsebenen und garantiert eine artefaktfreie Rekonstruktion. Im Vergleich zu dieser optimalen Beleuchtung wird die selbe Probe mit einer gaußförmigen Beleuchtung, die im Fokalbereich einen quasi parallelen Strahlengang aufweist, untersucht.

Die Möglichkeit, Wechselwirkungsebenen aus einer Gruppe von Beugungsbildern zu rekonstruieren, demonstrieren wir mit Hilfe eines Objekts, bestehend aus 2 voneinander entfernten Ebenen einer strukturierten Dünnschicht. Die in unterschiedlichen Ebenen liegenden dünnen Strukturen werden durch das Modell für dicke Proben in Kapitel 3.5.7 exakt beschrieben. Als Haftvermittler ist auf das Glassubstrat ( $10 \pm 4$ ) Å Titan aufgedampft und ( $20 \pm 2$ ) nm Gold. Die Schichten sind so gewählt, dass die Transmission und der Phasenschub in einem für die Ptychographie optimalen Bereich liegen. Die Transmission des Zweischichtsystems wird für Weißlicht auf 47% bestimmt. Der für die beiden Schichten berechnete Phasenschub beträgt  $\Delta\phi = 0,1$  rad. Damit sind die Werte klar vom Hintergrund zu unterscheiden, ohne dabei stark zu absorbieren oder durch einen großen Phasenschub Phasensprünge zu verursachen. Die ptychographische Abbildung kann

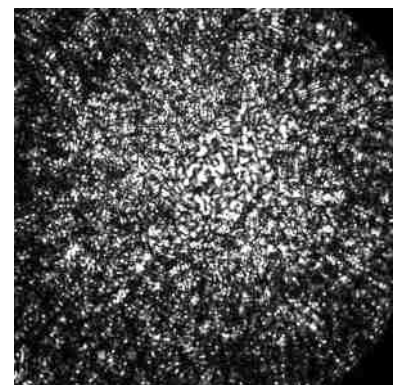


Abbildung 5.33: Fernfeldbild bei diffuser Beleuchtung

nur strukturierte Objekte abbilden. Die 1. Schicht zeigt dass von der US Luftwaffe entwickelte Muster USAF-Chart. In die 2. Schicht ist ein Siemensstern eingätzt. Bild 5.35 zeigt die Struktur in ptychographischer Bildgebung. Zwischen den Glassubstraten wird durch Abstandhalter ein  $(100 \pm 10) \mu\text{m}$  breiter Luftspalt erzeugt. Das ptychographische Modell sieht zwischen den Schichten eine Propagation vor. Zusammengenommen ergeben sich aus den beiden  $(130 \pm 20) \mu\text{m}$  dicken Glassubstraten und dem Luftspalt eine resultierende Propagationsdistanz von  $\Delta z = (386 \pm 34) \mu\text{m}$ .

### Diffuse Beleuchtung

Der Begriff diffuse Beleuchtung beschreibt keine schwache oder ungenaue Beleuchtung, sondern eine Beleuchtungsfunktion, deren Phasenverteilung sehr kleinteilige Strukturen aufweist und sich somit die Intensitätsverteilung entlang der Propagationsrichtung schnell ändert. Aus dem sehr glatten Laserstrahl wird durch einen Diffusor eine sich schnell verändernde Beleuchtung. Als Diffusor wird eine aufgeraute Plexiglasplatte mit 10 % bis 50 % Transmission eingesetzt. Die kilometerlange Kohärenzlänge verkürzt sich durch den eingesetzten Diffusor nicht relevant. In diesem Experiment wurde die Kondensorlinse ( $f = 27 \text{ mm}$ ) dahingehend verschoben, dass der Diffusor auf die Probe 4-fach verkleinert abgebildet wird. Die zu untersuchende Probe steht im Strahlengang 0,3 mm nach der Bildebene der Abbildung. Der Modus zur Aufnahme von Ptychogrammen eines dicken Objekts unterscheidet sich prinzipiell nicht von der mit einem dünnen Objekt. Es ist allerdings darauf zu achten, dass die Zahl der Freiheitsgrade im Rekonstruktionsraum durch die erhöhte Pixelzahl des Objekts zunimmt. In diesem Zuge werden mehr Informationen, beziehungsweise Beugungsbilder, benötigt als für ein Objekt mit einer einzelnen Wechselwirkungsebene. Die in Abschnitt 3.2 vorgegebenen minimalen 6 Bilder für ein Objekt verdoppeln sich bei einer 2. Ebene. Jede weitere Ebene lässt den Bedarf auf Grund der wachsenden Objektiefe sehr schnell steigen.

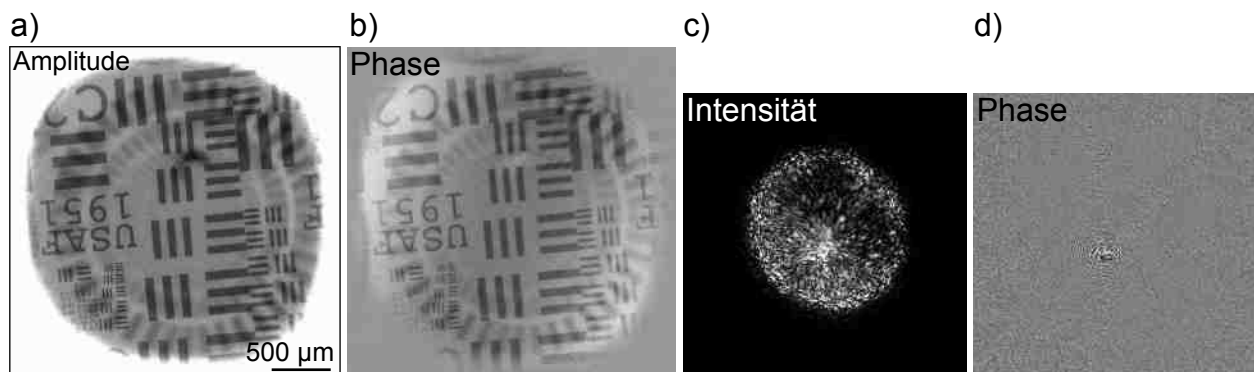


Abbildung 5.34: Bei nur einer Ebene wird das Objekt als Überlagerung der beiden Strukturen rekonstruiert. Dabei ist das USAF Test-Chart scharf dargestellt. Der Siemensstern liegt außerhalb der Ebene und ist durch die Defokussierung undeutlich dargestellt. Die Beleuchtung zeigt ein zum Aufbau passendes Intensitäts- und Phasenbild der Transmission des Diffusors. Alle Felder sind ausschnittsweise dargestellt.

In diesem Experiment sind 961 HDR-Bilder (bestehend aus je 3 Bildern mit 0,12 s, 0,48 s und 1,92 s Belichtungszeit) aufgenommen worden. Im Beugungsbild in Abbildung 5.33 ist

die kleinteilige Struktur der Beleuchtung zu erkennen. Im Gegensatz zu einer gaußförmigen Intensitätsverteilung wie in Abbildung 5.29, ist der Einfluss des Objekts bei der kleinteiligen Struktur nicht zu erkennen. Die flächigere Verteilung der Beleuchtungsintensität erlaubt außerdem eine bessere Ausnutzung der Dynamik der Kamera als bei anderen Beleuchtungsformen, beispielsweise bei einer gaußartigen Beleuchtung [78] oder einer eher scheibenförmigen Verteilung im zentralen Teil des Fernfeldbildes [19].

Als kritische Parameter für die Rekonstruktion hat sich der Startwert der Beleuchtung ergeben. Ohne vorherige Beleuchtungsmessung und Übergabe an den Rekonstruktionsalgorithmus enden die meisten Rekonstruktionsversuche ohne verwertbares Ergebnis. Nur durch wiederholtes Starten wurde in einem Testexperiment eine Lösung gefunden und für alle folgenden Experimente als Startwert eingesetzt. Die starke Variation der Phase verhindert eine effiziente Modulation der Beleuchtung und es fehlt ein geeigneter theoretischer Startwert.

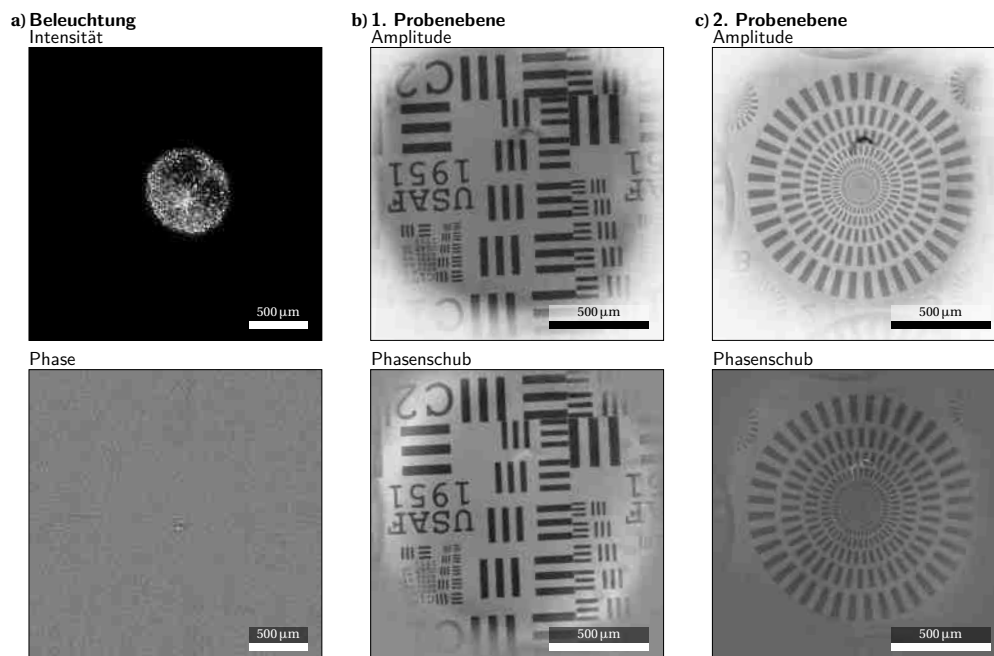


Abbildung 5.35: Ptychographisch rekonstruierte Objekte und Beleuchtung bei 2 Objektebenen. Das Modell wurde auf die Objektbeschaffenheit angepasst.

Mit freundlicher Genehmigung von T. Witt [117].

Die Rekonstruktionen mit nur einer Ebene, Abbildung 5.34, zeigt eine Überlagerung der beiden Objekte in Absorption und auch der Phase. Nur das USAF-Muster wird scharf dargestellt, der Siemensstern hingegen ist stark verschwommen abgebildet. Die Rekonstruktionsebene liegt in der 1. Ebene des Objekts und der Siemensstern wird unscharf abgebildet. Die Intensität und Phase der Beleuchtung passen zur erwarteten Struktur der Transmission des Diffusors. Dabei ist die Abweichung des Modells vom tatsächlichen Objekt Ursache für die Fehler im Objekt und daraus resultierend einer nicht korrekt rekonstruierten Beleuchtung. Wird das Modell jedoch auf die zur Realität passende zweite Ebene erweitert, kann für

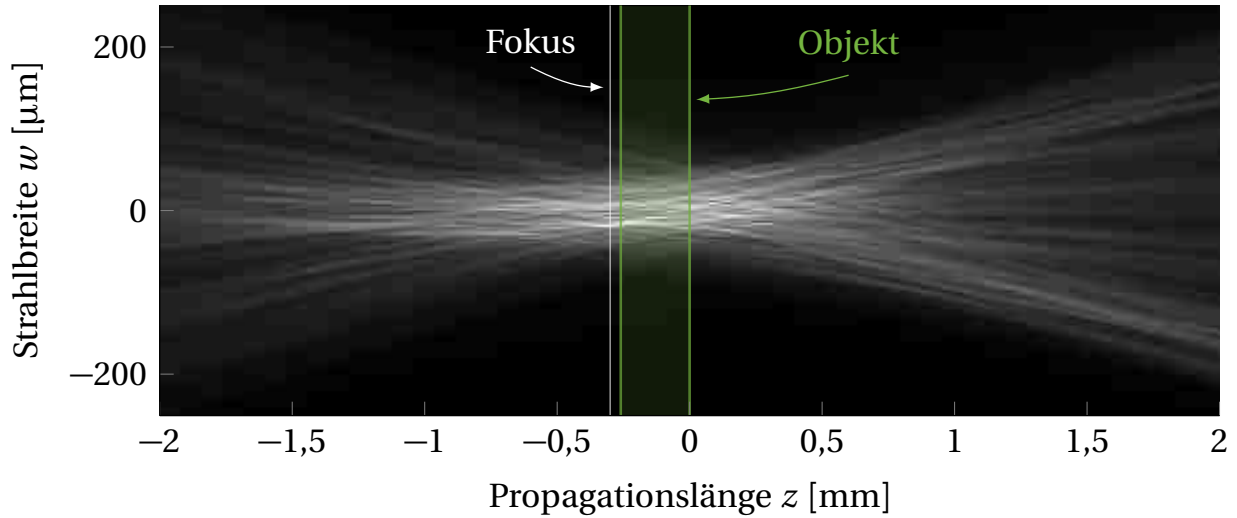


Abbildung 5.36: Intensitätsprojektion des Fokalbereichs bei diffuser Beleuchtung. Die kleinteilige Struktur der Beleuchtungsfunktion ist auch in der Projektion der Intensitäten klar erkennbar. Mit freundlicher Genehmigung von T. Witt [117].

jede Ebene das passende Objekt rekonstruiert werden und die Objekte lassen sich vollständig trennen, siehe Abbildung 5.35. Erst durch die Trennung der Objekte in die bekannten Strukturen ist anzunehmen dass auch die Beleuchtung korrekt rekonstruiert wurde.

Die rekonstruierte Beleuchtung für 2 Objektebenen (Abbildung 5.35 a)) zeigt die gleichen Intensitätsstrukturen wie bei nur einer Ebene (Abbildung 5.34 c)). Die scheibenförmige Verteilung der Speckle entspricht der Form des Laserstrahls und die Specklegröße entspricht der Struktur des Diffusors. Die Phase der Beleuchtung ist dabei auf der Größenordnung der Speckle stochastisch im Bereich  $[-\pi, +\pi]$  verteilt und erzeugt eine schnelle Änderung der Beleuchtung. Bereits nach wenigen Mikrometern Propagationslänge unterscheidet sich die Intensitätsverteilung stark. Eine derart propagierte Intensitätsverteilung wechselwirkt anders mit dem Objekt und würde sogar die Trennung von fast gleichen Objekten zulassen. Die mit passendem Modell rekonstruierte Beleuchtung (Abb. 5.36) zeigt entlang der optischen Achse als Intensitätsprojektion viele kleine Gebiete. Diese scheinen unabhängig voneinander zu propagieren. Im Bereich um die Abbildungsebene der Linse ist ein 1,5 mm langer Kanal mit nahezu gleichbleibender Helligkeit, aber sehr unterschiedlicher Intensitätsverteilung innerhalb der Ebenen vorhanden. Diese beiden Eigenschaften sind ideal für die Abbildung von dicken Proben.

Das dicke Objekt, bestehend aus einem USAF-Chart und einem Siemensstern, lässt sich mit einer sich entlang der optischen Achse schnell verändernden Beleuchtung ptychographisch abbilden. Die beiden Ebenen werden bei der Rekonstruktion eindeutig und ohne übersprechen zwischen den Ebenen, getrennt, Bild 5.35. In beiden Probenebenen wurde eine Ortsauflösung von  $3 \mu\text{m}$  erzielt. Zwischen Phase und Amplitude gibt es dabei keine Qualitätsunterschiede. Die Beleuchtung stellt somit für dicke Proben auf Grund des weiten Bereichs einer gleichförmiger Beleuchtungsgröße eine ideale Voraussetzung zur Abbildung von dicken



Proben dar.

### Gaußartige Beleuchtung

Das Einsetzen eines Diffusors verändert die Eigenschaften des Laserstrahls. Ohne Diffusor ist die innere Struktur der Beleuchtung großflächig und mit geringer Fluktuation. Entlang der optischen Achse verändert sich die nicht gestörte Beleuchtung auf viel größeren Längenskalen. Zur Untersuchung von Materialeigenschaften soll die Beleuchtung möglichst grob strukturiert sein, so dass die mit einem Diffusor veränderte Beleuchtung sich nicht für die Untersuchung photoaktiver Materialien eignet. Als Beispiel wird die dicke Probe mit einer Beleuchtung mit gaußartiger Apertur und großflächigen Phasenbereichen untersucht. Die Herausforderung besteht dabei in der langsamen Änderung der Beleuchtung. Die verschiedenen Ebenen der Probe interagieren deshalb mit ähnlichen Beleuchtungsfeldern und erzeugen schwer unterscheidbare Streubilder. Die Unterscheidung der Probenebenen ist dennoch möglich und soll hier demonstriert werden.

Der Diffusor mit Kondensoroptik wird durch eine einzelne Linse ( $f = 25 \text{ mm}$ ) ersetzt. Die Fokallänge der Optik wird auf etwa  $4 \text{ mm}$  berechnet. Im Vergleich zur Intensitätsverteilung der diffusen Beleuchtung in Abbildung 5.35, mit etwa  $1 \text{ mm}$  Durchmesser, verteilt sich die Intensität bei Fokussierung auf runde  $30 \mu\text{m}$  Halbwertsbreite. Die rekonstruierte Intensität und Phase der gaußartigen Beleuchtung ist in Bild 5.37 dargestellt. Damit ist der pro

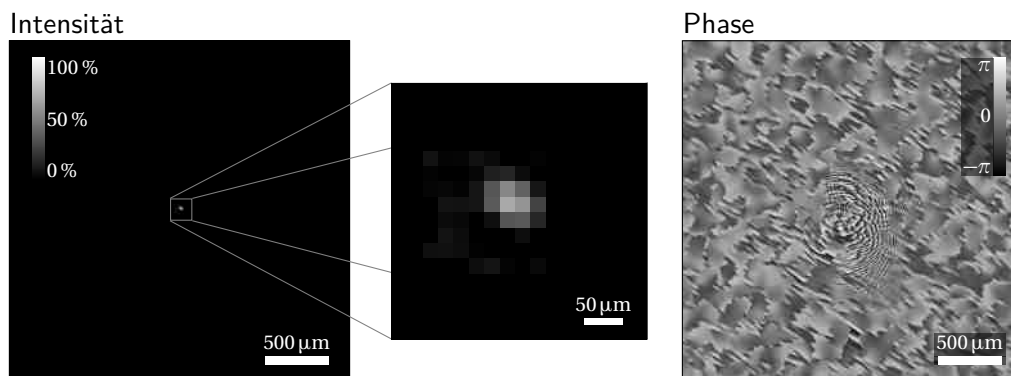


Abbildung 5.37: Rekonstruierte Intensitätsverteilung des gaußförmigen Strahls und die zugehörige Phase. Dabei ist die Phase nur im zentralen Bereich ausreichender Intensität aussagekräftig. Im Bereich schwacher Intensität entstehen numerische Fluktuationen.

Mit freundlicher Genehmigung von T. Witt [117].

Scanpunkt mit der gaußförmigen Beleuchtung abgetastete Bereich um mehrere Größenordnungen kleiner als bei diffuser Beleuchtung. Der deutlich kleinere Bereich der Beleuchtung verringert die pro Bild enthaltene Information, vereinfacht aber die Fernfeldmessung. Der kleine Beleuchtungsbereich korrespondiert mit großen Speckle im Beugungsbild und damit entsprechend kürzeren Abständen zwischen Objekt und Detektor.

Die Experimentparameter zur Messung entsprechen weitestgehend den Parametern mit diffuser Beleuchtung. Die kleinere Beleuchtung erzwingt eine kürzere Schrittweite und da-

mit bei gleicher Bilderzahl ein kleineres Gesichtsfeld. Die auf einen um Größenordnungen kleineren Bereich konzentrierte Intensität muss durch eine gesteigerte Dynamik in den Beugungsbildern ausgeglichen werden, um die schwachen Signale messen zu können. Die bereits bei diffuser Beleuchtung verwendeten Bilder mit vergrößerter Dynamik werden mit weiter vergrößertem Bereich für die Belichtungszeit (0,4 s, 1,6 s und 6,4 s) gemessen und können so auch die höhere Dynamik abbilden. Der Fokusbereich einer einfachen Fokussierung des Strahls

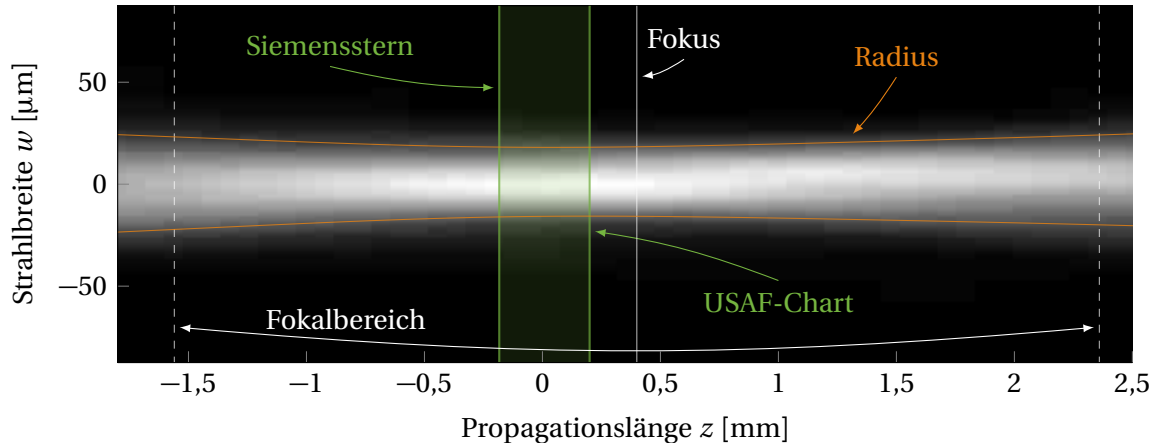


Abbildung 5.38: Intensitätsprojektion des gaußförmigen Strahlprofils im Fokusbereich senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, bei diffuser Beleuchtung. Die orange Linie beschreibt den Verlauf der Beleuchtungsgröße. Mit freundlicher Genehmigung von T. Witt [117].

ist dargestellt in Bild 5.38. Die Fokusslänge ist 3,9 mm lang. Die aus 2 Ebenen bestehende Probe liegt im Strahlengang  $100 \mu\text{m}$  von der Fokusebene entfernt. Die Wechselwirkung findet damit im Bereich der Fokallänge statt. Das bedeutet, die ungestörte Beleuchtung an beiden Ebenen ist beinahe identisch, was eine Unterscheidung der Ebenen erschwert. Da das Wellenfeld aber bereits am ersten Objekt gestreut wird, interagiert das zweite Objekt mit einer veränderten Wellenfront, wodurch die Unterscheidbarkeit wieder verstärkt wird. Die rekonstruierten Werte für die beiden Objektebenen sind in Abbildung 5.39 dargestellt. Die Trennung der Objekte ist gelungen. Jedoch reicht die Rekonstruktionsgüte nicht an die der diffusen Beleuchtung (Vergleich mit Abbildung 5.35) heran. Die erste Probenebene ist bis auf den innersten Ring des Sterns vollständig dargestellt. Die zweite Ebene zeigt alle im Objekt vorhandenen Strukturen. Es gibt ein Übersprechen sowohl in der Amplitude als auch in der Phase der Objekte. Besonders deutlich ist die Form des Siemenssterns aus der Objektebene 1 in der Amplitude und Phase von Ebene 2 zu erkennen. Das Übersprechen ist möglicherweise ein Artefakt der Rekonstruktionsparameter. In der ersten Iteration ist die Trennung durch die fehlenden Beleuchtungsdetails noch nicht möglich, so dass beide Objekte in der zweiten Ebene lokalisiert werden und anschließend keine vollständige Revision dieses Zustandes mehr erreicht wird.

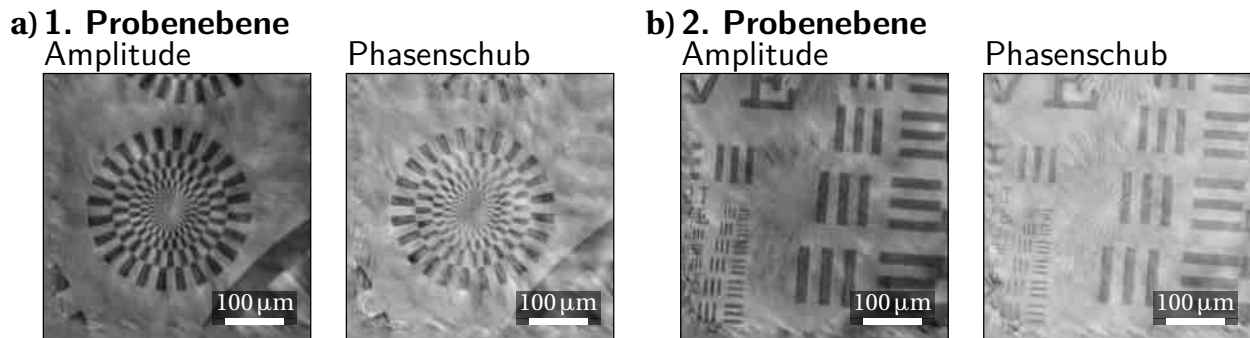


Abbildung 5.39: Komplexe Daten der beiden rekonstruierten Objektebenen bei der ptychographischen Untersuchung mit Hilfe eines fokussierten gaußartigen Laserstrahls. Mit freundlicher Genehmigung von T. Witt [117].

## Zusammenfassung

Die Ptychographie kann neben dünnen Objekten auch dicke Proben dreidimensional hochaufgelöst abbilden. Die dicke Probe wird auf mehrere Ebenen aufgeteilt, die das Objekt als komplexwertiges Volumenobjekt beschreiben. Zur Untersuchung ist eine sich entlang der optischen Achse schnell verändernde Beleuchtung von Vorteil. Schnell bedeutet dabei, dass sich die Beleuchtung von einer Objektebene zur nächsten relevant geändert hat. Die schnelle Änderung entlang der optischen Achse ist vorteilhaft für die Rekonstruktion, allerdings keine notwendige Voraussetzung für eine gelungene Rekonstruktion. Auch im Falle einer quasi parallelen Beleuchtung kann der Algorithmus die Ebenen trennen. Die Qualität der Rekonstruktionen erreicht in unserem Fall ein ähnliches Niveau wie die Rekonstruktion mit schnell veränderlicher Beleuchtung. Für ähnlichere Ebenen ist ein schlechteres Ergebnis bei paralleler Rekonstruktion zu erwarten. Die Abbildung mit einer einfachen, sich langsam verändernden Beleuchtungsfunktion ist aber für die Stabilität des Algorithmus von Vorteil. Die Rekonstruktion läuft durch größere Toleranzen bei der Beleuchtungsrekonstruktion stabiler und liefert verlässlich hochaufgelöste Rekonstruktionen, auch ohne initial bekanntes Beleuchtungsfeld.

### 5.4.7 Zusammenfassung

Die ptychographische Bildgebung ermöglicht die gleichzeitige Bestimmung des komplexen Wellenfeldes in der Objektebene und des komplexen Brechungsindex des Objekts. Am Beispiel von  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  konnte ich das Potential der Ptychographie als qualitative, als auch quantitative Analysemethode zeigen. Als Musterbeispiel eines photorefraktiven Materials und Ausgangsbasis für holographische Datenspeicher mit sehr hoher Speicherdichte untersuchten wir die Materialeigenschaften und deren Dynamik.

Neben dem direkten Zugang zu den Parametern des Ladungstransportes bei intensiver Bestrahlung durch die Untersuchung der Brechungsindexmodulation unter verschiedenen Einschreibparametern wie Dauer und Intensität, kann auch das sonst nicht bestimmbare Vorzeichen der Komponenten des elektrooptischen Tensors  $\beta$ , siehe Gleichung (5.4) gemessen

werden. Besonders der Zugang auf die hochaufgelöste Intensitätsverteilung des Strahls lässt eine genauere Untersuchung der Parameter zu.

Für harte Röntgenstrahlung ist beinahe jedes Objekt eine dünne Schicht, in der nur eine Wechselwirkung stattfindet. Im optischen Spektralbereich ist diese Näherung nur in Spezialfällen erfüllt. Durch die Erweiterung auf dicke Objektschichten mittels mehrerer Objektebenen können auch solche Objekte untersucht werden. Die Untersuchung ist auch mit quasi parallelen Strahlen ohne relevante Änderungen zwischen den Objektebenen möglich. Es können so mittels Ptychographie dicke Proben dreidimensional erfasst und dargestellt werden.

## 5.5 Ausblick

Für die Untersuchung dünner, nanoporöser Schichten mit harter Röntgenstrahlung wurden eine Ortsauflösung von wenigen Nanometern erreicht [51, 48]. Für die Untersuchung von dünnen Schichten, Oberflächen und deren katalytische Funktion [51, 5] muss die Auflösung aber weiter gesteigert werden. Die theoretische Auflösung ist dabei nur durch die numerische Apertur des Detektors und den zur Verfügung stehenden Photonenfluss begrenzt [95]. Durch den Einsatz eines Strahlfängers und damit einhergehender Reduktion des Untergrundes, wurde das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessert [78]. Außerdem lässt sich so das Gesamtbild deutlich länger beleuchten und auch schwache Signal über die Nachweisgrenze heben. Mit Einsatz des Strahlfängers kann die Belichtungszeit um eine Größenordnung gesteigert werden und die Auflösung um den Faktor 3. Kombiniert kann ein Partikel mit  $\approx 15$  nm Durchmesser, das aus nur  $10 \cdot 10^5$  Atomen besteht [51], dargestellt werden. Aus der Fourieranalyse wird für die Auflösung ein Wert von 8 nm bestimmt. Die Ptychographie geht mit jeder weiteren Auflösungsverbesserung einen entscheidenden Schritt hin zu Untersuchung atomarer Schichten. Im optischen Bereich liegt die ptychographische Bildgebung bei der Auflösung im Bereich moderner Mikroskope.

## 5.6 Résumé

Die ptychographische Bildgebung entwickelte sich in den letzten Jahren rasant. Ich konnte zeigen, dass mit Hilfe der hohen Eindringtiefe harter Röntgenstrahlung die Bildgebung ohne Qualitätsverlust auch in abgeschlossenen chemischen Reaktoren funktioniert [5]. Das Experiment in Abschnitt 5.1 zeigt, dass die ptychographische Bildgebung gegenüber dynamischer künstlicher Atmosphäre unempfindlich ist [6]. Und auch mit heißen Proben unter einer künstlichen Atmosphäre, innerhalb eines abgeschlossenen Reaktors, Höchstaufösungen möglich sind [6]. Besonderes Interesse für diese Möglichkeiten besteht bei *operando* Analysen von Katalysatoren. Für Untersuchungen von Katalysatoren wird auch das chemische Verhalten und damit der Valenzzustand benötigt [51]. Durch energieabhängige Messungen konnte ich zeigen, dass die Ptychographie den Oxidationszustand von Material orts aufgelöst bestimmen kann [51]. Über Vergleiche mit Referenzkurven wird der Verlauf des Phasenschubs an jedem Ort der Probe einem Material und des Zustands bestimmt. Die Vermessung der komplexwertigen Wellenfront und damit der Zugriff auf die volle Information über das Wellenfeld entlang der optischen Achse, ist für kohärente Quellen und Optiken elementar, um die Quelleigenschaften und die Güte der Optiken zu bestimmen [97]. Wir konnten ptychographisch das fokussierte komplexe Wellenfeld des LCLS in Stanford vermessen [93]. Einfache und schnelle Messungen an photorefraktiven Materialien liefern bisher die Absorption oder der Phasenschub in qualitativen Bildern. Die Ptychographie kann mit nahe am theoretischen Limit liegende Auflösung diese Werte quantitativ bestimmen und damit einen einfacheren Zugang zu den Kenngrößen des Materials eröffnen [118, 119, 9, 75, 96, 72, 72].



# Kapitel 6

## Ausblick

Die Entwicklung neuer kohärenter Röntgenquellen wird getrieben durch das Streben nach brillanteren Quellen mit großem Kohärenzgrad und Photonenfluss. Die Ptychographie bietet die einzigartige Möglichkeit, die komplexwertige Beleuchtungsfunktion zu untersuchen. Dieses Alleinstellungsmerkmal ermöglicht die vollständige Charakterisierung des Strahls und der zur Führung verwendeten optischen Elemente [92, 93]. Nicht die Ausdehnung des erzeugten Lichtflecks ist dabei ausschlaggebend für die erzielbare Auflösung, vielmehr der Beugungswinkel der am Objekt gestreuten Photonen [95]. Steigt der Photonenfluss der Quelle erhöht sich damit auch direkt die erreichbare Auflösung. Solche dynamischen Prozesse lassen sich in Zukunft beobachten insofern die Bildrate deutlich höher liegt als die charakteristische Prozessgeschwindigkeit.

Die Wellenlänge harter Röntgenstrahlung liegt unterhalb der meisten atomaren Dimensionen; einer atomaren Auflösung stehen somit rein technische Probleme entgegen. Einzelne Atome könnten detailliert abgebildet. Über diesen Weg lässt sich möglicher Weise auf verlässliche und einfache Weise das Phasenproblem der Strukturanalyse lösen. Bei Erreichen von atomarer Auflösung entspricht die komplexe Objektfunktion dem Strukturfaktor und ist sowohl qualitativ als auch quantitativ bestimmbar. Die Struktur wäre darüber vollständig bestimmt. Zusätzlich wird der Nachteil von kristallographischen Verfahren, die Mittelung über viele Einheitszellen, vermieden.

Resonante Ptychographie ist elementspezifisch und kann die Valenzzustände ortsaufgelöst bestimmen [51]. Durch gleichzeitiges Messen mit mehrerer Energien und Energietrennung vor oder im Detektor, könnte die Valenzzustandbestimmung in einem einzigen Scan durchgeführt werden. Wird Strahlung mit bestimmter Polarisierung verwendet, können auch andere Materialeigenschaften als der Brechungsindex  $n$  sichtbar gemacht werden. Beispielsweise können mit zirkular polarisierter Strahlung die magnetische Strukturen in der Probe abgebildet werden.





# Kapitel 7

## Zusammenfassung

Die ptychographische Bildgebung kann aus einem Set an Kleinwinkelstreubildern die volle komplexe Information über das Beleuchtungsfeld und die Probe bestimmen [105]. Die Fernfeldaufnahmen müssen allerdings durch einen computergestützten Algorithmus rekonstruiert werden [64]. Die Kombination von hochaufgelöster Probeninformation und dem mit gleicher Auflösung vorliegenden Strahlungsfeldes ist das Alleinstellungsmerkmal der Ptychographie. Das rekonstruierte komplexwertige Lichtfeld ermöglicht Einblicke in die optischen Eigenschaften der Quelle und der strahlführenden Elemente [92, 87, 93, 98, 97, 99]. Ziel meiner Arbeit war es, die ptychographische Bildgebung in eine leicht nutzbare und robuste experimentelle Methode umzusetzen und zu demonstrieren. Ich habe zu diesem Zweck ein Softwarepaket entwickelt, mit dem die ptychographische Rekonstruktion schnell, verlässlich und wiederholbar hochpräzise Ergebnisse liefert. Dafür habe ich aus einer Testumgebung ein anwenderfreundliches Programm erstellt das aus der Nutzung von Graphikkarten die nötige Rechenkraft bezieht, um die großen Datenmengen binnen kurzer Zeit (quasi-live) zu verarbeiten. Das rekonstruierte komplexwertige Beleuchtungsfeld erlaubt die Berechnung der 3-dimensionalen Feldverteilung entlang der optischen Achse [92]. Daraus lassen sich alle Informationen über die fokussierende Optik bestimmen [93, 98, 97, 73]. Für die Untersuchung von Proben mit strahlungsinduziertem Verhalten ist eine genau charakterisierte Feldverteilung notwendige Voraussetzung für quantitative Auswertungen [94, 69, 75, 96, 9, 72, 70]. Mit ptychographischer Bildgebung stehen diese Daten zur Verfügung.

Der Standardalgorithmus [64] geht von idealen, unverrauschten Daten aus. In meiner Arbeit erweiterte ich den Algorithmus zur ptychographischen Rekonstruktion um Parameter zur besseren Anpassung des ptychographischen Modells an die experimentellen Bedingungen. Eine Erweiterung ermöglicht das Ausgleichen von Positionierungsfehlern beim Abrastern der Probe [93]. Eine Zweite ermöglicht das selbstkonsistente Ausgleichen bei schwankender Beleuchtungsintensität. Neben dem kohärenten Probensignal registriert der Detektor auch inkohärente Signale, welche nicht im ptychographischen Modell enthalten sind. Mit der dritten Erweiterung werden nicht am Objekt gestreute Photonen herausgefiltert und nicht zur Objektrekonstruktion zugelassen. Das Entfernen der Störsignale reduziert Artefakte im rekonstruierten Bild [10]. Die statistische Unbestimmtheit bei der Intensitätsmessung, bei begrenzter Dosis, kann damit jedoch nicht ausgeglichen werden. Dafür habe ich je nach

Rauschquelle und Statistik geeignet modifizierte Anpassungsschritte der Wellenfunktion, an die Fernfeldbilder, implementiert [33].

Das hohe Durchdringungsvermögen von harter Röntgenstrahlung erlaubt die Untersuchung von Materialien in abgeschlossenen Probenumgebungen [39]. Für die Untersuchungen der Wirkungsweise von Katalysatoren ist diese Eigenschaften Voraussetzung [45]. Mit Ortsauflösungen im einstelligen Mikrometerbereich [78] kann die Ptychographie die Informationslücke zwischen gemittelter atomarer Strukturbestimmung [12] und der Röntgenmikroskopie mit deutlich größerer Auflösung [41] schließen. Genau in diesem Größenbereich liegt die funktionale Mikrostruktur von Katalysatoren. Auf Grund der schweren und sehr schweren Elemente kann das Katalysatormaterial gut mit Röntgenstreumethoden abgebildet werden [91]. Die Materialstruktur haben wir, auch durch Reaktoren hindurch, während der laufenden Prozesse beobachtet [6]. Zur vollständigen Untersuchung der Wirkungsweise der chemischen Reaktion ist zusätzlich der Valenzzustand des Katalysators vonnöten [45]. Durch energieabhängige ptychographische Abbildung konnte ich den Oxidationszustand mit hoher Ortsauflösung bestimmen [51].

An das Wellenfeld wird bezüglich der Wellenlänge keine spezielle Anforderung gestellt. Der Algorithmus funktioniert deshalb mit jeder Beleuchtung die durch ein kohärentes Wellenfeld beschrieben werden kann. In den bisher beschriebenen Experimenten wurde harte Röntgenstrahlung aus Synchrotronstrahlungsquellen genutzt. Moderne Freie Elektron Laser Quellen zeigen, auch für harte Röntgenstrahlung, sogar noch höhere Kohärenzlängen. Die Wellenfronten dieser Strahlen zu vermessen ist für die Weiterentwicklung sowohl der Quelle als der verwendeten Fokussierungsoptiken von großem Interesse [93].

Für die Untersuchung von optisch aktiven Materialien werden Ptychogramme mit optischem Licht gemessen. Am Beispiel von  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  habe ich zeigen können, dass aus den quantitativen Phasenwerten für das Objekt sich die Transporteigenschaften der Ladungen im Material berechnen lassen [10]. Ebenso kann die Dynamik der Ladungswanderung und die Konstanten und Grenzen der Modelle zur Beschreibung dieser Transportmechanismen bestimmt werden [72, 9, 96, 75]. Hier ist besonders die Kombination von Beleuchtung und Objekt gefragt, da sich das photorefraktive Material unter Lichteintrag verändert. Das ptychographische Modell geht von einer Materie-Wellen-Wechselwirkung in einer dünnen Probenschicht aus. Bei realen Objekten findet die Wechselwirkung nicht in einer dünnen Schicht sondern der ausgedehnten Probe statt. Durch Aufteilen der Wechselwirkung in verschiedene Ebenen können Proben 3-dimensional rekonstruiert werden [34]. Für die Rekonstruktion der dicken Proben eignen sich schnell variierende Beleuchtungsfelder am besten. Vergleichend zu diesem optimalen Zustand wurde ein Strahl mit gaußscher Apertur untersucht [117]. Dabei konnte nachgewiesen werden, dass auch bei einem quasi parallelen Strahlengang der Beleuchtung eine Unterscheidung möglich ist.

Das erweiterte ptychographische Modell in der erarbeiteten Form erfasst die meisten der im Experiment auftretenden Fehler wie Positionierungsungenauigkeit, Strahlschwankungen und Störhsignale sowie ein verrauschtes Bild und kann diese Probleme lösen. Mit dem entwickelte Programm können ptychographische Experimente quasi-live rekonstruiert, beobachtet und analysiert werden.





# Literaturverzeichnis

- [1] J. Als-Nielsen. *Elements of Modern X-Ray Physics*. John Wiley & Sons, Kopenhagen, 2002.
- [2] O. Althoff, A. Erdmann, L. Wiskott, and P. Hertel. The photorefractive effect in  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$  at high light intensity. *physica status solidi*, 128(K41), 1991.
- [3] Olaf Althoff and Eckhard E. Kraetzig. Strong light-induced refractive index changes in  $\text{LiNbO}_3$ . *Proc. SPIE*, 1273:12–19, 1990.
- [4] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, and K. Nassau. Optically induced refractive index inhomogeneities in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$ . *Applied Physics Letters*, 9(1):72–74, July 1966.
- [5] S. Baier, A. Wittstock, C. D. Damsgaard, A. Diaz, J. Reinhardt, F. Benzi, J. Shi, T. Scherer, D. Wang, C. Kübel, C. G. Schroer, and J.-D. Grunwaldt. Influence of gas atmosphere and ceria on the stability of nanoporous gold studied by environmental electron microscopy and in situ ptychography. *Nanoscale*, 2016. submitted.
- [6] Sina Baier, Christian D. Damsgaard, Maria Scholz, Federico Benzi, Amélie Rochet, Robert Hoppe, Torsten Scherer, Junjie Shi, Arne Wittstock, Britta Weinhausen, Jakob B. Wagner, Christian G. Schroer, and Jan-Dierk Grunwaldt. In situ ptychography of heterogeneous catalysts using hard x-rays: High resolution imaging at ambient pressure and elevated temperature. *Microscopy and Microanalysis*, 22(1):178–188, 002 2016.
- [7] Mike Beckers, Tobias Senkbeil, Thomas Gorniak, Michael Reese, Klaus Giewekemeyer, Sophie-Charlotte Gleber, Tim Salditt, and Axel Rosenhahn. Chemical contrast in soft x-ray ptychography. *Phys. Rev. Lett.*, 107(20):208101, 2011.
- [8] Alexis T. Bell. The impact of nanoscience on heterogeneous catalysis. *Science*, 299(5613):1688–1691, 2003.
- [9] Constantin Bernert. Untersuchung photorefraktiver Materialien mittels optischer Ptychographie. Master’s thesis, TU Dresden, Institut für Strukturphysik, <http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:bsz:14-qucosa-216063>, Oktober 2016.

- [10] Constantin Bernert, Robert Hoppe, Felix Wittwer, and Christian Schroer. Ptychographic analysis of the photorefractive effect in LiNbO<sub>3</sub>:Fe. *Optical Society of America*, 25(25):31640–31650, 2017.
- [11] Max Born and Emil Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [12] S. Boutet, L. Lomb, G. J. Williams, T. R. M. Barends, A. Aquila, R. B. Doak, U. Weierstall, D. P. DePonte, J. Steinbrener, R. L. Shoeman, M. Messerschmidt, A. Barty, T. A. White, S. Kassemeyer, R. A. Kirian, M. M. Seibert, P. A. Montanez, C. Kenney, R. Herbst, P. Hart, J. Pines, G. Haller, S. M. Gruner, H. T. Philipp, M. W. Tate, M. Hromalik, L. J. Koerner, N. van Bakel, J. Morse, W. Ghonsalves, D. Arnlund, M. J. Bogan, C. Caleman, R. Fromme, C. Y. Hampton, M. S. Hunter, L. C. Johansson, G. Katona, C. Kupitz, M. N. Liang, A. V. Martin, K. Nass, L. Redecke, F. Stellato, N. Timneanu, D. J. Wang, N. A. Zatsepin, D. Schafer, J. Defever, R. Neutze, P. Fromme, J. C. H. Spence, H. N. Chapman, and I. Schlichting. High-resolution protein structure determination by serial femtosecond crystallography. *SCIENCE*, 337(6092):362–364, Jul 2012.
- [13] J Chalupsky, J Krzywinski, L Juha, V Hajkova, J Cihelka, T Burian, L Vysin, J Gaudin, A Gleeson, M Jurek, A R Khorsand, D. Klinger, H Wabnitz, R. Sobierajski, M Störmer, K Tiedtke, and S Toleikis. Spot size characterization of focused non-Gaussian X-ray laser beams. *Optics Express*, 18(26):27836–27845, 2010.
- [14] H. N. Chapman, P. Fromme, A. Barty, T. A. White, R. A. Kirian, A. Aquila, M. S. Hunter, J. Schulz, D. P. DePonte, U. Weierstall, R. B. Doak, F. R. N. C. Maia, A. V. Martin, I. Schlichting, L. Lomb, N. Coppola, R. L. Shoeman, S. W. Epp, R. Hartmann, D. Rolles, A. Rudenko, L. Foucar, N. Kimmel, G. Weidenspointner, P. Holl, M. N. Liang, M. Barthelmess, C. Caleman, S. Boutet, M. J. Bogan, J. Krzywinski, C. Bostedt, S. Bajt, L. Gumprecht, B. Rudek, B. Erk, C. Schmidt, A. Homke, C. Reich, D. Pietschner, L. Struder, G. Hauser, H. Gorke, J. Ullrich, S. Herrmann, G. Schaller, F. Schopper, H. Soltau, K. U. Kuhnel, M. Messerschmidt, J. D. Bozek, S. P. Hau-Riege, M. Frank, C. Y. Hampton, R. G. Sierra, D. Starodub, G. J. Williams, J. Hajdu, N. Timneanu, M. M. Seibert, J. Andreasson, A. Rocker, O. Jonsson, M. Svenda, S. Stern, K. Nass, R. Andritschke, C. D. Schroter, F. Krasniqi, M. Bott, K. E. Schmidt, X. Y. Wang, I. Grotjohann, J. M. Holton, T. R. M. Barends, R. Neutze, S. Marchesini, R. Fromme, S. Schorb, D. Rupp, M. Adolph, T. Gorkhover, I. Andersson, H. Hirsemann, G. Potdevin, H. Graafsma, B. Nilsson, and J. C. H. Spence. Femtosecond x-ray protein nanocrystallography. *Nature*, 470(7332):73–U81, Feb 2011.
- [15] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser. Holographic storage in lithium niobate. *Applied Physics Letters*, 13(7):223–224, October 1968.
- [16] Arthur H. Compton. A quantum theory of the scattering of x-rays by light elements. *Phys. Rev.*, 21:483–502, May 1923.

- 
- [17] J.M. Cowley and A.F. Moodie. The scattering of electrons by atoms and crystals. i. a new theoretical approach. *Acta Crystallographica*, 10(10):609–619, Oct 1957.
- [18] J.F. Creemer, S. Helveg, G.H. Hoveling, S. Ullmann, A.M. Molenbroek, P.M. Sarro, and H.W. Zandbergen. Atomic-scale electron microscopy at ambient pressure. *Ultramicroscopy*, 108(9):993 – 998, 2008.
- [19] C. David, S. Gorelick, S. Rutishauser, J. Krzywinski, J. Vila-Comamala, V. A. Guzenko, O. Bunk, E. Farm, M. Ritala, M Cammarata, D. M. Fritz, R. Barrett, L. Samoylova, J. Gruenert, and H. Sinn. Nanofocusing of hard X-ray free electron laser pulses using diamond based Fresnel zone plates. *Scientific Reports*, 1:57, 2011.
- [20] Prof. Dr. Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik, Band 2: Elektrizität und Optik*. 3. Auflage. Springer, Berlin, 2004.
- [21] Fabrice Devaux, Virginie Coda, Mathieu Chauvet, and Rémy Passier. New time-dependent photorefractive three-dimensional model: application to self-trapped beam with large bending. *J. Opt. Soc. Am. B*, 25(6):1081–1086, Jun 2008.
- [22] Thomas A. Duckworth, Feodor Ogrin, Sarnjeet S. Dhesi, Sean Langridge, Amy Whiteside, Thomas Moore, Guillaume Beutier, and Gerrit van der Laan. Magnetic imaging by x-ray holography using extended references. *Opt. Express*, 19(17):16223–16228, Aug 2011.
- [23] Albert Einstein. Über die entwicklung unserer anschauungen über das wesen und die konstitution der strahlung. *Physikalische Zeitschrift*, 10(22):817–825, 1909.
- [24] S. Eisebitt, J. Lüning, W. F. Schlotter, M. Lörngen, O. Hellwig, W. Eberhardt, and J. Stöhr. Lensless imaging of magnetic nanostructures by x-ray spectro-holography. *Nature (London)*, 432:885–888, 2004.
- [25] P. Emma, R. A. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. Bucksbaum, R. Coffee, F. J. Decker, Y. Ding, D. Dowell, S. Edstrom, A. Fisher, J. Frisch, S. Gilevich, J. Hastings, G. Hays, Ph. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, M. Messerschmidt, A. Miahnahri, S. Moeller, H. D. Nuhn, G. Pile, D. Ratner, J. Rzepiela, D. Schultz, T. Smith, P. Stefan, H. Tompkins, J. Turner, J. Welch, W. White, J. Wu, G. Yocky, and J. Galayda. First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser. *Nature Photonics*, 4(9):641–647, 2010.
- [26] H. M. L. Faulkner and John M Rodenburg. Error tolerance of an iterative phase retrieval algorithm for moveable illumination microscopy. *Ultramicroscopy*, 103(2):153–164, 2005.
- [27] James R. Fienup. Phase retrieval algorithms: a comparison. *Appl. Opt.*, 21(15):2758, 1982.

- [28] H. Frederick Pearson. *Map Projections: Theory and Applications*. CRC Press, Inc., 1990.
- [29] Dr Dennis Gabor. A new microscopic principle. *Nature*, 161(4098):777–778, Mai 1948.
- [30] K. J. Gaffney and H. N. Chapman. Imaging atomic structure and dynamics with ultrafast x-ray scattering. *Science*, 316:1444, 2007.
- [31] R.W. Gerchberg and W. O. Saxton. A practical algorithm for the determination of the phase from image and diffraction plane pictures. *OPTIK*, 35(2):237–246, 1972.
- [32] Dennis C. Ghiglia and Mark D. Pritt. *Two-Dimensional Phase Unwrapping: Theory, Algorithms, and Software*. Wiley, 1998.
- [33] Pierre Godard, Marc Allain, Virginie Chamard, and John Rodenburg. Noise models for low counting rate coherent diffraction imaging. *Optics Express*, 20(23):25914–25934, 11 2012.
- [34] T. M. Godden, R. Suman, M. J. Humphry, J. M. Rodenburg, and A. M. Maiden. Ptychographic microscope for three-dimensional imaging. *Opt. Express*, 22(10):12513–12523, May 2014.
- [35] J. W. Goodman. *Introduction to Fourier optics*. Robert and Company Publisher, third edition edition, 2005.
- [36] Walter Greiner. *Klassische Elektrodynamik*. Europa Lehrmittel, 2005.
- [37] J.-D. Grunwaldt, J. B. Wagner, and R. E. Dunin-Borkowski. Imaging catalysts at work: A hierarchical approach from the macro- to the meso- and nano-scale. *Chem. Cat. Chem.*, 5:62–80, 2013.
- [38] Jan-Dierk Grunwaldt and Bjerne S. Clausen. Combining XRD and EXAFS with on-line catalytic studies for in situ characterization of catalysts. *Topics Catal.*, 18:37–43, 2002.
- [39] Jan-Dierk Grunwaldt, Stefan Hannemann, Christian G. Schroer, and Alfons Baiker. 2D-mapping of the catalyst structure inside a catalytic microreactor at work: Partial oxidation of methane over Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *J. Phys. Chem. B*, 110:8674–8680, 2006.
- [40] Jan-Dierk Grunwaldt, Bertram Kimmerle, Alfons Baiker, Pit Boye, Christian G. Schroer, Pieter Glatzel, Camelia N. Borca, and Felix Beckmann. Catalysts at work: From integral to spatially resolved x-ray absorption spectroscopy. *Catalysis Today*, 145:267–278, 2009.
- [41] Jan-Dierk Grunwaldt and Christian G. Schroer. Hard and soft x-ray microscopy and tomography in catalysis: Bridging the different time and length scales. *Chem. Soc. Rev.*, 39:4741, 2010.



- 
- [42] Manuel Guizar-Sicairos and James R. Fienup. Phase retrieval with transverse translation diversity: a nonlinear optimization approach. *Optics Express*, 16(10):7264–7278, 2008.
- [43] Pter Günther and Jean-Pierre Huignard, editors. *Photorefractive materials and their applications*, volume 113. Springer New York, 2006.
- [44] Stefan Hannemann, Jan-Dierk Grunwaldt, Bertram Kimmerle, Alfons Baiker, Pit Boye, and Christian Schroer. Axial changes of catalyst structure and temperature in a fixed-bed microreactor during noble metal catalysed partial oxidation of methane. *Topics Catal.*, 52(10):1360–1370, 2009.
- [45] Stefan Hannemann, Jan-Dierk Grunwaldt, Niels van Vegten, Alfons Baiker, Pit Boye, and Christian G. Schroer. Distinct spatial changes of the catalyst structure inside a fixed-bed microreactor during the partial oxidation of methane over Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *Catalysis Today*, 126:54–63, 2007.
- [46] B. Henrich, A. Bergamaschi, C. Broennimann, R. Dinapoli, E. F. Eikenberry, I. Johnson, M. Kobas, P. Kraft, A. Mozzanica, and B. Schmitt. PILATUS: A single photon counting pixel detector for X-ray applications. *Nucl. Instrum Methods A*, 607(1):247–249, 2009.
- [47] Harro Heuser. *Lehrbuch der Analysis Teil 2*. B. G. Teubner, 2004.
- [48] G. Hofmann, A. Rochet, E. Ogel, S. Baier, M. Casapu, S. Ritter, M. Ogurreck, and J.-D. Grunwaldt. Quasi in situ x-ray absorption tomography and characterization of sequentially aged model exhaust gas catalysts. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2014. in preparation.
- [49] G. Hofmann, G. Tofighi, G. Rinke, S. Baier, A. Ewinger, A. Urlab, A. Wenka, S. Heideker, A. Jahn, R. Dittmeyer, and J.-D. Grunwaldt. A microfluidic device for the investigation of rapid gold nanoparticle formation in continuous turbulent flow. *J. Phys. Conf. Ser.*, 2016. accepted for publication.
- [50] Wolfgang Hönig. Portierung einer ptychographie-anwendung auf das cuda gpu-modell. *TU Dresden*, 2010.
- [51] Robert Hoppe, Juliane Reinhardt, Georg Hofmann, Jens Patommel, Jan-Dierk Grunwaldt, Christian D. Damsgaard, Gerd Wellenreuther, Gerald Falkenberg, and Christian G. Schroer. High-resolution chemical imaging of gold nanoparticles using hard x-ray ptychography. *Appl. Phys. Lett.*, 102(20):203104, 2013.
- [52] M. R. Howells, T. Beetz, H. N. Chapman, C. Cui, J. M. Holton, C. J. Jacobsen, J. Kirz, E. Lima, S. Marchesini, H. Miao, D. Sayre, D. A. Shapiro, J. C. H. Spence, and D. Starodub. An assessment of the resolution limitation due to radiation-damage in x-ray diffraction microscopy. *J. Electron Spect.*, 170(1-3):4–12, 2009.

- [53] Zhirong Huang and Kwang-Je Kim. Review of x-ray free-electron laser theory. *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, 10:034801, Mar 2007.
- [54] Intel Inc. processor description, 01 2017. <http://www.intel.de/content/www/de/de/processors/core/core-i7-processor.html>.
- [55] John David Jackson. *Klassische Elektrodynamik*. De Gruyter, 2013.
- [56] Klaus Jänich. *Topologie*. Springer-Lehrbuch. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 8 edition, 2005.
- [57] F. Jermann and J. Otten. Light-induced charge transport in linbo3:fe at high light intensities. *J. Opt. Soc. Am. B*, 10(11):2085–2092, Nov 1993.
- [58] Zhao Jian-Lin, Zhang Peng, Zhou Jian-Bo, Yang De-Xing, Yang Dong-Sheng, and Li En-Pu. Visualizations of light-induced refractive index changes in photorefractive crystals employing digital holography. *Chinese Physics Letters*, 20(10):1748, 2003.
- [59] Linda C. Johansson, David Arnlund, Thomas A. White, Gergely Katona, Daniel P. Deponte, Uwe Weierstall, R. Bruce Doak, Robert L. Shoeman, Lukas Lomb, Erik Malmerberg, Jan Davidsson, Karol Nass, Mengning Liang, Jakob Andreasson, Andrew Aquila, Saša Bajt, Miriam Barthelmess, Anton Barty, Michael J. Bogan, Christoph Bostedt, John D. Bozek, Carl Caleman, Ryan Coffee, Nicola Coppola, Tomas Ekeberg, Sascha W. Epp, Benjamin Erk, Holger Fleckenstein, Lutz Foucar, Heinz Graafsma, Lars Gumprecht, Janos Hajdu, Christina Y. Hampton, Robert Hartmann, Andreas Hartmann, Guenter Hauser, Helmut Hirseman, Peter Holl, Mark S. Hunter, Stephan Kassemeyer, Nils Kimmel, Richard A. Kirian, Filipe R. N. C. Maia, Stefano Marchesini, Andrew V. Martin, Christian Reich, Daniel Rolles, Benedikt Rudek, Artem Rudenko, Ilme Schlichting, Joachim Schulz, M. Marvin Seibert, Raymond G. Sierra, Heike Soltau, Dmitri Starodub, Francesco Stellato, Stephan Stern, Lothar Strueder, Nicusor Timneanu, Joachim Ullrich, Weixiao Y. Wahlgren, Xiaoyu Wang, Georg Weidenspointner, Cornelia Wunderer, Petra Fromme, Henry N. Chapman, John C. H. Spence, and Richard Neutze. Lipidic phase membrane protein serial femtosecond crystallography. *Nature Methods*, 9(3):263, 2012.
- [60] L.F. Kanaev, V.K. Malinovsky, and B.I. Sturman. Investigation of photoinduced scattering in linbo3 crystals. *Optics Communications*, 34(1):95 – 100, 1980.
- [61] Rudolf Koopmann, Karolina Cupelli, Lars Redecke, Karol Nass, Daniel P. Deponte, Thomas A. White, Francesco Stellato, Dirk Rehders, Mengning Liang, Jakob Andreasson, Andrew Aquila, Saša Bajt, Miriam Barthelmess, Anton Barty, Michael J. Bogan, Christoph Bostedt, Sebastien Boutet, John D. Bozek, Carl Caleman, Nicola Coppola, Jan Davidsson, R. Bruce Doak, Tomas Ekeberg, Sascha W. Epp, Benjamin Erk, Holger Fleckenstein, Lutz Foucar, Heinz Graafsma, Lars Gumprecht, Janos Hajdu, Christina Y. Hampton, Andreas Hartmann, Robert Hartmann, Guenter Hauser, Helmut Hirseman, Peter Holl, Mark S. Hunter, Stephan Kassemeyer, Richard A. Kirian, Lukas

- Lomb, Filipe R. N. C. Maia, Nils Kimmel, Andrew V. Martin, Marc Messerschmidt, Christian Reich, Daniel Rolles, Benedikt Rudek, Artem Rudenko, Ilme Schlichting, Joachim Schulz, M. Marvin Seibert and Robert L. Shoeman, Raymond G. Sierra, Heike Soltau, Stephan Stern, Lothar Strueder, Nicusor Timneanu, Joachim Ullrich, Xiaoyu Wang, Georg Weidenspointner, Uwe Weierstall, Garth J. Williams, Cornelia B. Wunderer, Petra Fromme, John C. H. Spence, Thilo Stehle, Henry N. Chapman, Christian Betzel, and Michael Duszynski. In vivo protein crystallization opens new routes in structural biology. *Nature Methods*, 9(3):259, 2012.
- [62] Wladimir Alexandrowitsch Kotelnikov. On the transmission capacity of the ‘ether’ and of cables in electrical communications. *Izd. Red. Upr. Swjasi RSKA*, 1, 1933.
- [63] A M Maiden, M J Humphry, and J M Rodenburg. Ptychographic transmission microscopy in three dimensions using a multi-slice approach. *JOSA A*, 29(8):1606–1614, August 2012.
- [64] Andrew M. Maiden and John M. Rodenburg. An improved ptychographical phase retrieval algorithm for diffractive imaging. *Ultramicroscopy*, 109(10):1256–1262, 2009.
- [65] S Marchesini, HN Chapman, SP Hau-Riege, RA London, A Szoke, H He, MR Howells, H Padmore, R Rosen, JCH Spence, and U Weierstall. Coherent x-ray diffractive imaging: applications and limitations. *Optics Express*, 11:2344–2353, Jan 2003.
- [66] A. Mazur, U. van Stevendaal, K. Buse, M. Weber, O.F. Schirmer, H. Hesse, and E. Krätzig. Light-induced charge transport processes in photorefractive barium titanate crystals doped with iron. *Applied Physics B*, 65(4):481–487, 1997.
- [67] Jianwei Miao, Pambos Charalambous, Janos Kirz, and David Sayre. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature*, 400:342–344, 1999.
- [68] Hidekazu Mimura, Shinya Morita, Takashi Kimura, Daisuke Yamakawa, Weimin Lin, Yoshihiro Uehara, Satoshi Matsuyama, Hirokatsu Yumoto, Haruhiko Ohashi, Kenji Tamasaku, Yoshinori Nishino, Makina Yabashi, Tetsuya Ishikawa, Hitoshi Ohmori, and Kazuto Yamauchi. Focusing mirror for x-ray free-electron lasers. *Review of Scientific Instruments*, 79(8):083104, 2008.
- [69] Bob Nagler, Brice Arnold, Gary Bouchard, Richard F. Boyce, Richard M. Boyce, Alice Callen, Marc Campell, Ruben Curiel, Eric Galtier, Justin Garofoli, Eduardo Granados, Jerry Hastings, Greg Hays, Philip Heimann, Richard W. Lee, Despina Milathianaki, Lori Plummer, Andreas Schropp, Alex Wallace, Marc Welch, William White, Zhou Xing, Jing Yin, James Young, Ulf Zastra, and Hae Ja Lee. The matter in extreme conditions instrument at the linac coherent light source. *Journal of Synchrotron Radiation*, 22(3):520–525, May 2015.

- [70] Bob Nagler, Ulf Zastra, Roland R. Fäustlin, Sam M. Vinko, Thomas Whitcher, A. J. Nelson, Ryszard Sobierajski, Jacek Krzywinski, Jaromir Chalupsky, Elsa Abreu, Saša Bajt, Thomas Bornath, Tomas Burian, Henry Chapman, Jaroslav Cihelka, Tilo Döppner, Stefan Düsterer, Thomas Dzelzainis, Marta Fajardo, Eckhart Förster, Carsten Fortmann, Eric Galtier, Siegfried H. Glenzer, Sebastian Göde, Gianluca Gregori, Vera Hajkova, Phil Heimann, Libor Juha, Marek Jurek, Fida Y. Khatkhat, Ali Reza Khor-sand, Dorota Klinger, Michaela Kozlova, Tim Laarmann, Hae Ja Lee, Richard W. Lee, Karl-Heinz Meiwes-Broer, Pascal Mercere, William J. Murphy, Andreas Przystawik, Ronald Redmer, Heidi Reinholz, David Riley, Gerd Röpke, Frank Rosmej, Karel Saksl, Romain Schott, Robert Thiele, Josef Tiggesbäumker, Sven Toleikis, Thomas Tschentscher, Ingo Uschmann, Hubert J. Vollmer, and Justin S. Wark. Turning solid aluminium transparent by intense soft x-ray photoionization. *Nat Phys*, 5(9):693–696, 09 2009.
- [71] Richard Neutze, Remco Wouts, David van der Spoel, Edgar Weckert, and Janos Hajdu. Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses. *Nature*, 406:752–757, 2000.
- [72] Chi Dung Nguyen. Untersuchung des photorefraktiven effekts an einem  $\text{LiNbO}_3$ -schnitt mittels optischer ptychographie. Master’s thesis, Institut für Strukturphysik, November 2016.
- [73] Jens Patommel, Susanne Klare, Robert Hoppe, Stephan Ritter, Dirk Samberg, Felix Wittwer, Andreas Jahn, Karola Richter, Christian Wenzel, Johann W. Bartha, Maria Scholz, Frank Seiboth, Ulrike Boesenberg, Gerald Falkenberg, and Christian G. Schroer. Focusing hard x rays beyond the critical angle of total reflection by adiabatically focusing lenses. *Appl. Phys. Lett.*, 110(101103), 2017.
- [74] Jens Patommels. *Hard X-Ray Scanning Microscope Using Nanofocusing Parabolic Refractive Lenses*. PhD thesis, Institut für Strukturphysik, TU Dresden, 2010.
- [75] Julian Pietsch. Untersuchung der strahlpropagation in  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ . Master’s thesis, ISP, TU Dresden, 2016.
- [76] H. M. Quiney, A. G. Peele, Z. Cai, D. Patterson, and K. A. Nugent. Diffractive imaging of highly focused X-ray fields. *Nature Physics*, 2:101–104, 2006.
- [77] C. V. Raman and K. S. Krishnan. A new radiation. *Indian Journal of Physics*, 2(387-398):368–376, März 1928.
- [78] Juliane Reinhardt, Robert Hoppe, Georg Hofmann, Christian D. Damsgaard, Jens Patommel, Christoph Baumbach, Sina Baier, Amélie Rochet, Jan-Dierk Grunwaldt, Gerald Falkenberg, and Christian G. Schroer. Beamstop-based low-background ptychography to image weakly scattering objects. *Ultramicroscopy*, 173:52–57, 2017.

- [79] Ian K. Robinson, Franz Pfeiffer, Ivan A. Vartanyants, Yugang Sun, and Younan Xia. Enhancement of coherent X-ray diffraction from nanocrystals by introduction of X-ray optics. *Opt. Express*, 11(19):2329–2334, 2003.
- [80] J M Rodenburg and H M L Faulkner. A phase retrieval algorithm for shifting illumination. *Applied Physics Letters*, 85(20):4795–4797, November 2004.
- [81] J. M. Rodenburg, A. C. Hurst, A. G. Cullis, B. R. Dobsen, F. Pfeiffer, O. Bunk, C. David, K. Jefimovs, and I. Johnson. Hard-x-ray lensless imaging of extended objects. *Phys. Rev. Lett.*, 98:034801, 2007.
- [82] Axel Rosenhahn, Florian Staier, Thomas Nisius, David Schaefer, Ruth Barth, Christof Christophis, Lorenz-M. Stadler, Simone Streit-Nierobisch, Christian Gutt, Adrian Mancuso, Andreas Schropp, Johannes Gulden, Bernd Reime, Josef Feldhaus, Edgar Weckert, Bastian Pfau, Christian M. Guenther, Rene Koennecke, Stefan Eisebitt, Michael Martins, Bart Faatz, Natalia Guerassimova, Katja Honkavaara, Rolf Treusch, Evgueni Saldin, Siegfried Schreiber, Evgeny A Schneidmiller, Mikhail V. Yurkov, Ivan Vartanyants, Gerhard Gruebel, Michael Grunze, and Thomas Wilhein. Digital in-line holography with femtosecond VUV radiation provided by the free-electron laser FLASH. *Opt. Express*, 17(10):8220–8228, 2009.
- [83] D. Sayre. Some implications of a theorem due to shannon. *Acta Crystallographica*, 5(6):843, Nov 1952.
- [84] C. G. Schroer, O. Kurapova, J. Patommel, P. Boye, J. Feldkamp, B. Lengeler, M. Burghammer, C. Riekel, L. Vincze, A. van der Hart, and M. Küchler. Hard x-ray nanoprobe based on refractive x-ray lenses. *Appl. Phys. Lett.*, 87(12):124103, 2005.
- [85] Christian G. Schroer, Boris Benner, Marion Kuhlmann, Olga Kurapova, Bruno Lengeler, Federico Zontone, Anatoly Snigirev, Irina Snigireva, and Horst Schulte-Schrepping. Focusing hard x-ray FEL beams with parabolic refractive lenses. In S. G. Biedron, W. Eberhardt, T. Ishikawa, and R. O. Tatchyn, editors, *Fourth Generation X-Ray Sources and Optics II*, volume 5534 of *Proceedings of the SPIE*, pages 116–124, 2004.
- [86] Christian G. Schroer, Pit Boye, Jan Feldkamp, Jens Patommel, Andreas Schropp, Andreas Schwab, Sandra Stephan, Manfred Burghammer, Sebastian Schöder, and Christian Riekel. Coherent x-ray diffraction imaging with nanofocused illumination. *Phys. Rev. Lett.*, 101(9):090801, 2008.
- [87] Christian G. Schroer, Pit Boye, Jan M. Feldkamp, Jens Patommel, Dirk Samberg, Andreas Schropp, Andreas Schwab, Sandra Stephan, Gerald Falkenberg, Gerd Wellenreuther, and Nadja Reimers. Hard X-ray nanoprobe at beamline P06 at PETRA III. *Nucl. Instrum. Meth. A*, 616(2-3):93–97, 2010.

- [88] Christian G. Schroer, Pit Boye, Jan M. Feldkamp, Jens Patommel, Andreas Schropp, Andreas Schwab, Sandra Stephan, Manfred Burghammer, Sebastian Schöder, Christian Riekkel, and Walter H. Schröder. Hard x-ray scanning microscopy with fluorescence and diffraction contrast. In *9th International Conference on X-ray Microscopy*, volume 186 of *Journal of Physics: Conference Series*, page 012016, 2009.
- [89] Christian G. Schroer, Marion Kuhlmann, Til Florian Günzler, Bruno Lengeler, Matthias Richwin, Bernd Griesebock, Dirk Lützenkirchen-Hecht, Ronald Frahm, Eric Ziegler, Ali Mashayekhi, Dean Haeffner, Jan-Dierk Grunwaldt, and Alfons Baiker. Mapping the chemical states of an element inside a sample using tomographic x-ray absorption spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 82(19):3360–3362, 2003.
- [90] Christian G. Schroer, Bruno Lengeler, Boris Benner, Marion Kuhlmann, Til Florian Günzler, Johannes Tümmler, Christoph Rau, Timm Weitkamp, Anatoly Snigirev, and Irina Snigireva. Parabolic compound refractive lenses for hard x-rays. In A. K. Freund, T. Ishikawa, A. M. Khounsary, D. C. Mancini, A. G. Michette, and S. Oestreich, editors, *Advances in X-Ray Optics*, volume 4145 of *Proceedings of the SPIE*, pages 274–284, 2001.
- [91] A. Schropp, R. Hoppe, J. Patommel, D. Samberg, F. Seiboth, S. Stephan, G. Wellenreuther, G. Falkenberg, and C. G. Schroer. Hard x-ray scanning microscopy with coherent radiation: Beyond the resolution of conventional x-ray microscopes. *Appl. Phys. Lett.*, 100:253112, 2012.
- [92] Andreas Schropp, Pit Boye, Jan M. Feldkamp, Robert Hoppe, Jens Patommel, Dirk Samberg, Sandra Stephan, Klaus Giewekemeyer, Robin N. Wilke, Tim Salditt, Johannes Gulden, Adrian P. Mancuso, Ivan A. Vartanyants, Edgar Weckert, Sebastian Schöder, Manfred Burghammer, and Christian G. Schroer. Hard x-ray nanobeam characterization by coherent diffraction microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 96(9):091102, 2010.
- [93] Andreas Schropp, Robert Hoppe, Vivienne Meier, Jens Patommel, Frank Seiboth, Hae Ja Lee, Bob Nagler, Eric C. Galtier, Brice Arnold, Ulf Zastra, Jerome B. Hastings, Daniel Nilsson, Fredrik Uhlén, Ulrich Vogt, Hans M. Hertz, and Christian G. Schroer. Full spatial characterization of a nanofocused x-ray free-electron laser beam by ptychographic imaging. *Scientific Reports*, 3:1633 EP –, 04 2013.
- [94] Andreas Schropp, Robert Hoppe, Vivienne Meier, Jens Patommel, Frank Seiboth, Yuan Ping, Martha A. Beckwith, Gilbert W. Collins, Andrew Higginbotham, Justin S. Wark, Hae Ja Lee, Bob Nagler, Eric C. Galtier, Brice Arnold, Ulf Zastra, Jerome B. Hastings, and Christian G. Schroer. Imaging shock waves in diamond with both high temporal and spatial resolution at an XFEL. *Scientific Reports*, 5:11089, 2015.
- [95] Andreas Schropp and Christian G. Schroer. Dose requirements for resolving a given feature in an object by coherent x-ray diffraction imaging. *New J. Phys.*, 12:035016, 2010.

- 
- [96] Johannes Schultz. Ptychographische rekonstruktion des optical damage in lithiumniobat. Master's thesis, TU Dresden, 2016.
- [97] Frank Seiboth. *Refractive hard x-ray nanofocusing at storage ring and x-ray free-electron laser sources*. PhD thesis, DESY Photon Science, <https://beluga.sub.uni-hamburg.de/vufind/Record/860408418>, 2016.
- [98] Frank Seiboth, Maria Scholz, Jens Patommel, Robert Hoppe, Felix Wittwer, Juliane Reinhardt, Jens Seidel, M. Knaut, Andreas Jahn, K. Richter, K. W. Bartha, Gerald Falkenberg, and Christian G. Schroer. Hard x-ray nanofocusing by refractive lenses of constant thickness. *Appl. Phys. Lett.*, 105(131110), 2014.
- [99] Frank Seiboth, Andreas Schropp, Maria Scholz, Felix Wittwer, Christian Rödel, Martin Wünsche, Tobias Ullsperger, Stefan Nolte, Jussi Rahomäki, Karolis Parfeniukas, Stylianos Giakoumidis, Ulrich Vogt, Ulrich Wagner, Christoph Rau, Ulrike Boesenberg, Jan Garrevoet, Gerald Falkenberg, Eric C. Galtier, Hae Ja Lee, Bob Nagler, and Christian G. Schroer. Perfect x-ray focusing via fitting corrective glasses to aberrated optics. *Nature Communications*, 8:14623 EP –, 03 2017.
- [100] S.B. Simonsen, S. Dahl, E. Johnson, and S. Helveg. Ceria-catalyzed soot oxidation studied by environmental transmission electron microscopy. *Journal of Catalysis*, 255(1):1–5, 2008.
- [101] Yokio Takahashi, Akihiro Suzuki, Nobuyuki Zettsu, Yoshiki Kohmura, Kazuto Yamauchi, and Tetsuya Ishikawa. Multiscale element mapping of buried structures by ptychographic x-ray diffraction microscopy using anomalous scattering. *Appl. Phys. Lett.*, 99(13):131905, 2011.
- [102] Yukio Takahashi, Yoshinori Nishino, Ryosuke Tsutsumi, Hideto Kubo, Hayato Furukawa, Hidekazu Mimura, Satoshi Matsuyama, Nobuyuki Zettsu, Eiichiro Matsubara, Tetsuya Ishikawa, and Kazuto Yamauchi. High-resolution diffraction microscopy using the plane-wave field of a nearly diffraction limited focused x-ray beam. *Phys. Rev. B*, 80:054103, 2009.
- [103] P Thibault and M Guizar-Sicairos. Maximum-likelihood refinement for coherent diffractive imaging. *New Journal of Physics*, 14(6):063004–21, June 2012.
- [104] Pierre Thibault, Martin Dierolf, Oliver Bunk, Andreas Menzel, and Franz Pfeiffer. Probe retrieval in ptychographic coherent diffractive imaging. *Ultramicroscopy*, 109(4):338–343, 2009.
- [105] Pierre Thibault, Martin Dierolf, Andreas Menzel, Oliver Bunk, Christian David, and Franz Pfeiffer. High-resolution scanning x-ray diffraction microscopy. *Science*, 321(5887):379–382, 2008.

- [106] John S. Toll. Causality and the dispersion relation: Logical foundations. *Phys. Rev.*, 104:1760–1770, Dec 1956.
- [107] Henrik Topsøe. Developments in operando studies and in situ characterization of heterogeneous catalysts. *J. Catal.*, 216:155–164, 2003.
- [108] Atsushi Urakawa and Alfons Baiker. Space-resolved profiling relevant in heterogeneous catalysis. *Topics Catal.*, 52(10):1312–1322, 2009.
- [109] S. M. Vinko, O. Ciricosta, B. I. Cho, K. Engelhorn, H. K. Chung, C. R. D. Brown, T. Burian, J. Chalupsky, R. W. Falcone, C. Graves, V. Hajkova, A. Higginbotham, L. Juha, J. Krzywinski, H. J. Lee, M. Messerschmidt, C. D. Murphy, Y. Ping, A. Scherz, W. Schlotter, S. Toleikis, J. J. Turner, L. Vysin, T. Wang, B. Wu, U. Zastra, D. Zhu, R. W. Lee, P. A. Heimann, B. Nagler, and J. S. Wark. Creation and diagnosis of a solid-density plasma with an x-ray free-electron laser. *Nature*, 482(7383):59–62, Feb 2012.
- [110] Tatyana Volk and Manfred Wöhlecke. *Lithium Niobate (Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching)*, volume 115. Springer Berlin Heidelberg, 2009.
- [111] Jakob B. Wagner, Filippo Cavalca, Christian D. Damsgaard, Linus D.L. Duchstein, and Thomas W. Hansen. Exploring the environmental transmission electron microscope. *Micron*, 43(11):1169 – 1175, 2012. In situ {TEM}.
- [112] B. M. Weckhuysen. Chemical imaging of spatial heterogeneities in catalytic solids at different length and time scales. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 48(27):4910–4943, 2009.
- [113] Bert M. Weckhuysen. Snapshots of a working catalyst: possibilities and limitations of *in situ* spectroscopy in the field of heterogeneous catalysis. *Chem. Commun.*, page 97, 2002.
- [114] Bert Marc Weckhuysen, editor. *In-situ spectroscopy of catalysts*. American Scientific Publishers, March 2004.
- [115] R. S. Weis and T. K. Gaylord. Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure. *Applied Physics A*, 37(4):191–203, 1985.
- [116] Martin Werner. *Signale und Systeme*. Vieweg+Teubner Verlag, 2008.
- [117] Tobias Witt. Multi-slicing in der optischen ptychographie. Master’s thesis, ISP, TU Dresden, Dezember 2016.
- [118] Felix Wittwer. Aufbau und erprobung eines aufbaus für optische ptychographie. Master’s thesis, TU Dresden, Institut für Strukturphysik, Mai 2012.
- [119] Felix Wittwer. Untersuchung der auflösung der beugungsbilder in der ptychographie. Master’s thesis, TU Dresden, Institut für Strukturphysik, Januar 2015.



- 
- [120] Andrew T. Young. Rayleigh scattering. *Appl. Opt.*, 20(4):533–535, Feb 1981.
- [121] Frits Zernike. Das phasenkontrastverfahren bei der mikroskopischen beobachtung. *Z. tech. Phys*, 16:454–457, 1935.
- [122] B. Ziaja, H. N. Chapman, R. Faustlin, S. Hau-Riege, Z. Jurek, A. V. Martin, S. Toleikis, F. Wang, E. Weckert, and R. Santra. Limitations of coherent diffractive imaging of single objects due to their damage by intense x-ray radiation. *New Journal of Physics*, 14:115015, Nov 2012.



# Danksagung

Egal, ob lange Tage am Experiment oder die alltägliche Arbeit im Institut, immer war das tolle Team eine Motivation.

Mein besonderer Dank gebührt Prof. Christian Schroer. Von Beginn an schenkte er mir das Vertrauen auch schwierige Aufgaben selbstständig bewältigen zu können. Der Freiraum ermöglicht es eigene Ideen einzubringen und umzusetzen. Unermüdlich und mit scheinbar grenzenloser Energie und Optimismus hat er mir einen Weg in die Forschungslandschaft gezeigt. Vielen Dank für die zahlreichen Möglichkeiten.

Ebenso Danke ich Prof. Jochen Geck für die Möglichkeit, in seinem Institut meine Arbeit fortzuführen und abzuschließen. Besonders Theo Woike und Andreas Schropp haben viele Jahre meinen Arbeitsalltag begleitet. Als Gesprächspartner haben sie geduldig mit mir diskutiert und mit Erklärungen im Fachgebiet weitergeholfen und auch weit Abseits davon. Ich danke beiden Vorbildern für die schier unendliche Geduld mit mir und meiner Arbeit.

Jeden Bürotag als erster Ansprechpartner bei allen Programmierfragen und auch sonstigen Wissensfragen hatte Jens Patommel eigentlich immer die Antwort direkt parat. Vielen Dank für deine ausführlichen Erklärungen für einen nicht immer vorbildlichen Fragenden. Ohne die wertvolle Hilfe aller Kollegen im Institut wäre mir die Arbeit nicht möglich gewesen. Ich danke besonders Frank Seiboth für die gemeinsamen Projekte und Juliane Reinhardt, Stephan Ritter, Maria Scholz und Georg Hofmann für den regen Austausch, die Unterstützung, die vielen langen Schichten beim Experimentieren und auch so manche lange Nacht. Die Einführung junger Menschen in die wissenschaftliche Arbeit hat mich nicht vor allem Zeit gekostet, sondern neue Blickwinkel eröffnet und auch so manchen Fehler erkennen lassen. Dafür und für die viele Arbeit im Labor bedanke ich mich besonders bei Constantin, Felix, Julian, Johanne, Tobias und allen die an den verschiedenen Experimenten mitgewirkt haben. Gerade die Teilnahme an Experimenten an Großforschungsanlagen, zum Beispiel in Hamburg, Stanford und Grenoble, sind für mich Inspiration und Motivation gewesen. Allen Kolleginnen und Kollegen der Experimentierstationen von ID13 und P06, besonders Gerd, Manfred und Melissa, und aus anderen Forschungsgruppen danke ich für die gute und vertrauensvolle Zusammenarbeit.

Meiner ganzen Familie verdanke ich die Möglichkeit mich mit vollem Elan auf die Arbeit zu konzentrieren. Für die Unterstützung und Hilfe vor und während des Studiums und die Zeit danach bin ich zutiefst dankbar. Ich danke Ihnen inständig für Ihr bedachtes Handeln und die Hilfe, auch und besonders in Situationen großer Anspannung.



## Eidesstattliche Versicherung

Hiermit versichere ich an Eides statt, die vorliegende Dissertationsschrift selbst verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel und Quellen benutzt zu haben.

Die eingereichte schriftliche Fassung entspricht der auf dem elektronischen Speichermedium.

Die Dissertation wurde in der vorgelegten oder einer ähnlichen Form nicht schon einmal in einem früheren Promotionsverfahren angenommen oder als ungenügend beurteilt.

Dresden, den 12.06.2018

---

Robert Hoppe