

# V44 - Röntgenreflektometrie

## 1 Einleitung

Die Untersuchung von Grenzflächen und deren Eigenschaften mit der Hilfe der Röntgenreflektivität stellt einen wichtigen Bereich der aktuellen Forschung in der Festkörperphysik dar. Die Röntgenreflektivität bietet die Möglichkeit Strukturinformationen über eine nur wenige Nanometer dicke Schicht an der Oberfläche einer Probe zu gewinnen. Aus dem Streubild lassen sich Aussagen über die Elektronendichte, die Dicke und die Rauigkeit einer dünnen Schicht gewinnen. Dabei können Schichten auf festen als auch auf flüssigen Substraten untersucht werden.

In diesem Versuch sollen die Dichte, Rauigkeit und Schichtdicke eines Polysterolfilms auf einem Siliziumwafer bestimmt werden. Solche Schichten spielen heutzutage beispielsweise in der Mikroelektronik eine wesentliche Rolle.

## 2 Theorie

Um alle Aspekte dieses Versuches verstehen zu können, empfiehlt es sich, folgende Fragestellungen zu bearbeiten:

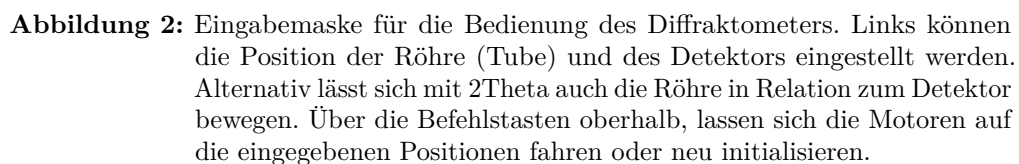
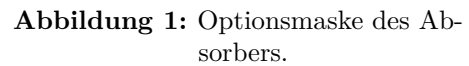
1. Wie entsteht die Röntgenstrahlung in einer Röntgenröhre?
2. Was ist ein Göbelspiegel und wie funktioniert er?
3. Warum ist der Realteil des Brechungsindex für Röntgenstrahlen kleiner als eins und welche Folgen hat das?
4. Wie lauten die fresnelschen Formeln und was beschreiben sie? Welche Besonderheit haben die fresnelschen Formeln im Fall von Röntgenstrahlung?
5. Was sind Kiessig-Oszillationen und wie entstehen diese?
6. Wie funktioniert der Parratt-Algorithmus (qualitativ)?
7. Wie wird der Parratt-Algorithmus modifiziert, um ihn bei rauen Oberflächen anwenden zu können?

Potenziell nützliche Literaturhinweise sind am Ende der Anleitung vermerkt.

## 3 Versuchsdurchführung

Die Röntgenreflektivitätsmessungen werden mit dem D8-Labordiffraktometer der Firma Bruker-AXS durchgeführt. Es ist ein für den Routinebetrieb konzipiertes sogenanntes  $\theta - \theta$  - Diffraktometer, bei dem die Röntgenröhre und der Detektor um den Probenstisch drehbar sind. Die Röntgenstrahlung wird von einer Kupferanodenröhre emittiert, die mit einem Strom von 35 mA und einer Spannung von 40 kV betrieben wird.

Das Programm „XRD Commander“ ist das Steuerprogramm des Diffraktometers, mit dessen Hilfe die Probe einjustiert und vermessen wird. Bevor mit der Justage begonnen wird, muss der Absorber auf „Auto“ eingestellt werden, um den Detektor vor einer Beschädigung zu schützen (siehe Abbildung 1). Nach dem Einschalten des Absorbers folgt die Justage der vorliegenden Probe mit dem Steuerprogramm. Über das Programm lassen sich die Motoren der Röntgenröhre, des Detektors und des Probenstisches bedienen. Die Motoren werden durch das Eintragen der gewünschten Position in das nebenstehende „Kästchen“ sowie über das Fixieren der Position durch das Setzen des daneben befindlichen „Häkchen“ bewegt. Mit dem Button „Move-Drives“ lassen sich die Motoren in die entsprechende Position fahren (vergleiche Abbildung 2).

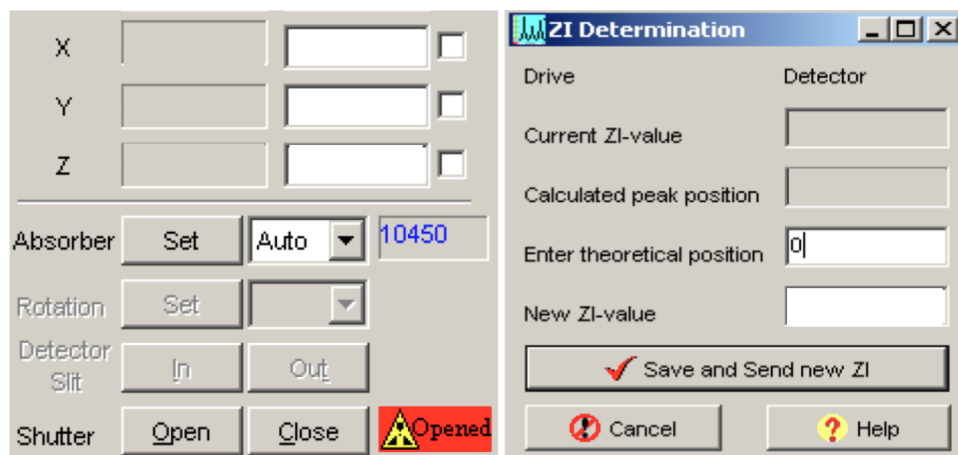


Um zum Beispiel die Röntgenröhre und den Detektor auf die Position 0 zu fahren, wird zuerst in das jeweils zugehörige „Kästchen“ der Wert 0 eingetragen und dieses mit dem „Häkchen“ daneben markiert. In den meisten Situationen sollte das Programm den zugehörigen „Haken“ von selbst setzen, so dass dieser nicht manuell gesetzt werden muss. Nach Betätigung des „Move-Drives“-Buttons fahren die Motoren auf die gewünschte Position.

**Achtung:** In der Symbolleiste befindet sich der Button „Init-Drives“, der dem „Move-Drives“-Button sehr ähnlich ist. Diesen Button bitte **NIE** anklicken, da dieser Button die Motoren wieder an ihre Ursprungsposition zurückfährt und diese erneut von Beginn an justiert werden müssen.

Für die Positionierung der Probe stehen mehrere Messmethoden zu Verfügung. Die jeweilige Messmethode kann über den entsprechenden Reiter unter „Scantype“ ausgewählt werden (siehe Abbildung 2). Zusätzlich müssen die jeweiligen Messbereiche und Schrittweiten angepasst werden. Nach der Durchführung der jeweiligen Justagescans sollten die Messungen im raw.-Format abgespeichert werden, da sie für die spätere Auswertung noch benötigt werden.

Zu Beginn der Justage muss die Probe mit Hilfe der Änderung der Z-Koordinate (siehe Abbildung 3) aus dem Strahl gefahren werden. Des Weiteren müssen sowohl die Röhre als auch der Detektor auf einen Winkel von  $0^\circ$  eingestellt werden.

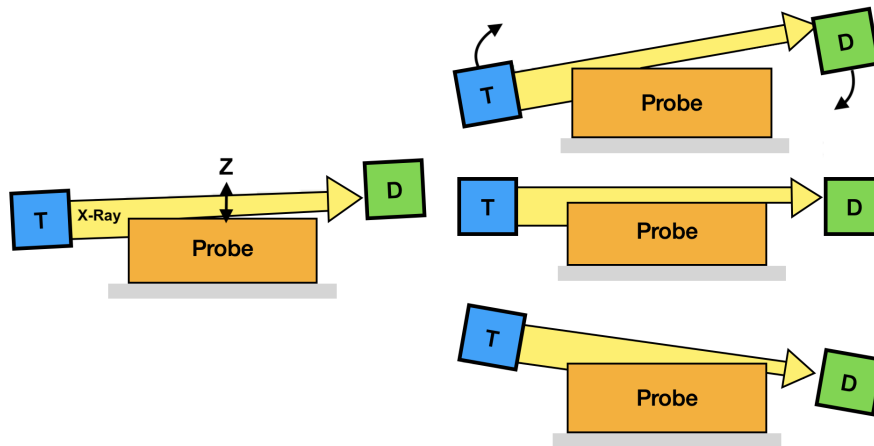


**Abbildung 3:** Links: Eingabemasken für die Justage der Probe in x, y und z-Richtung. Rechts: Eingabemaske „ZI Determination“ für die Rekalibrierung der Nulllage.

Anschließend kann ein **Detektorscan** gefahren werden, welcher der Justage des Primärstrahls dient. Der Detektor bewegt sich dabei in einem kleinen Winkelbereich um die Position der Röntgenröhre. Der sich ergebende Scan sollte einer Gaußverteilung ähneln (siehe Abbildung 5). Das Maximum dieser Verteilung soll die neue Nulllage des Detektors repräsentieren. Durch das Betätigen des „Zi“-Knopfes (vergleiche Abbildung 2)

in der Symbolleiste, wird der Schwerpunkt des gemessenen Peaks bestimmt. Gleichzeitig erscheint das Eingabefenster „ZI Determination“ (siehe rechtes Bild in Abbildung 3), über die die theoretische Nullposition an das Diffraktometer gesendet wird. Hierfür wird der Wert „0“ in das Feld „Enter theoretical Position“ eingegeben und der Button „Save and Send new Zi“ betätigt.

Im Anschluss daran sollte die Probe durch den Probentisch über die X-, Y- und Z-Koordinate mit Schrittmotoren grob nach Augenmaß positioniert werden (siehe linkes Bild in Abbildung 3). Hierzu wird die gewünschte Position für jede Koordinate eingegeben und mit dem „Move-Drives“-Button gefahren. Die Probe ist optimal justiert, wenn sie parallel zum Strahl steht und die halbe Intensität des Primärstrahls abschattet.

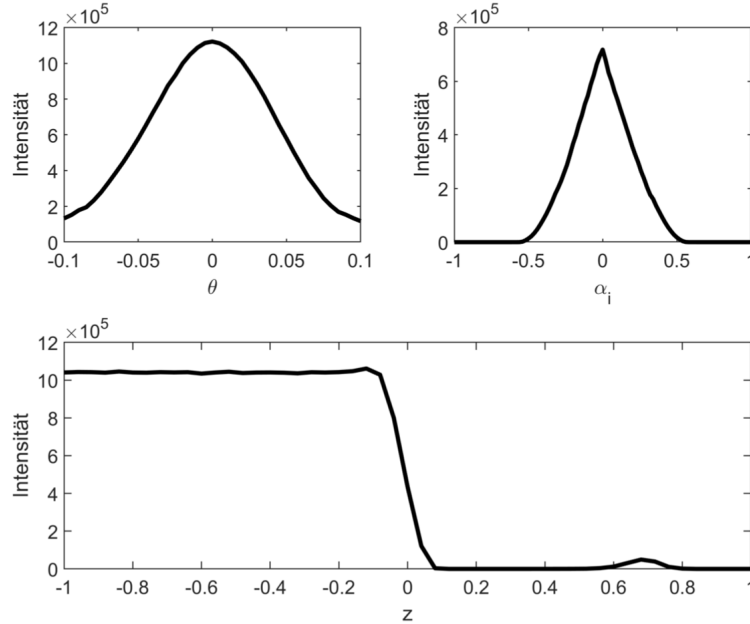


**Abbildung 4:** Auf der linken Seite befindet sich die Probe in halber Abschattung, nachdem sie durch einen Z-Scan so positioniert wurde. Allerdings verläuft der Strahl möglicherweise nicht parallel zur Probenoberfläche. Der Rockingscan auf der rechten Seite soll helfen die mögliche Fehlstellung, durch Ermittlung der maximalen Intensität, zu korrigieren.

Zuerst wird die Z-Koordinate mit Hilfe des **Z-Scans** bestimmt (siehe Abbildung 5). Der Z-Scan verschiebt die Probe in der Höhe und dient zur ersten Bestimmung der Abschattung der halben Intensität des Primärstrahls. Solange sich die Probe unterhalb des Strahls befindet, wird die volle Intensität  $I_{\max}$  gemessen. Die Intensität nimmt immer mehr ab, je weiter die Probe in den Strahl gefahren wird. Hierbei soll der Z-Wert abgeschätzt werden, bei dem die Intensität  $\frac{1}{2}I_{\max}$  beträgt. Für eine grobe Bestimmung der halben Abschattung wird auf die halbe maximale Intensität im dargestellten Graphen doppelt geklickt und „Z“ durch betätigen des „Move Drives“-Buttons an diese Position gefahren. Durch das Doppelklicken übernimmt die Z-Koordinate den entsprechenden Wert automatisch. Sofern sich die Probe entlang der X-Koordinate im Bereich des Strahls befindet, muss sie circa die Hälfte des Primärstrahls verdecken und ist somit an der richtigen Position.

Um zu gewährleisten, dass die Probe entlang der X-Koordinate richtig positioniert ist,

wird ein **X-Scan** durchgeführt. Dieser Scan sollte ein Plateau mit abgesenkter Intensität ergeben, innerhalb dessen Sie Ihre Position frei wählen können, je nach dem welchen Bereich der Probe Sie untersuchen möchten.



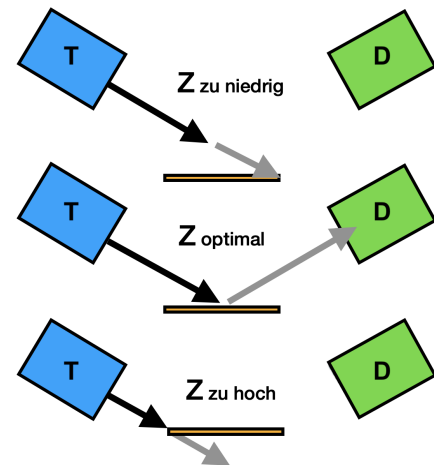
**Abbildung 5:** Beispielmessungen der unterschiedlichen Justagescans. Oben links: De-tectorscan; Oben rechts: Rockingscan bei  $2\Theta = 0^\circ$ ; Unten: Z-Scan.

Ist die Probe so justiert, dass die Intensität  $\frac{1}{2}I_{\max}$  beträgt, wird ein **Rockingscan** durchgeführt (siehe Abbildung 4). Dabei drehen sich die Röntgenröhre und der Detektor so um die Probe, sodass die Winkelsumme  $\alpha_i + \alpha_f = 2\Theta$  konstant bleibt. Dieser Scan entspricht eine Drehung der Probe im Strahl. Er liefert einerseits Informationen über die Verkipfung der Probe zum Strahl, andererseits kann er verwendet werden, um die Probe in Y-Richtung (in Strahlrichtung) in den Drehpunkt des Diffraktometers zu bringen. Die Messung sollte ein symmetrisches Dreieck ergeben. In der Realität kann das Dreieck asymmetrisch sein und auch der Höchstwert der Intensität wird nicht bei  $0^\circ$ , sondern bei einem anderen Wert erreicht. Im ersten Fall (Asymmetrie) trifft der Strahl die Probe nicht genau in der Mitte (d.h. die Probe liegt nicht im Drehpunkt des Diffraktometers). Falls das Dreieck asymmetrisch ist und z.B. der Anstieg auf der linken Seite flacher ist als auf der rechten Seite, muss die Y-Koordinate verkleinert werden (und umgekehrt). Im zweiten Fall stimmt die Winkeleichung der Röhre in Bezug auf die Probenoberfläche noch nicht. Sobald das Dreieck symmetrisch ist, wird über einen Doppelklick auf das Maximum dessen Position bestimmt und an die Motoren übermittelt. Mit „Move Drives“ lassen sich die Motoren an die entsprechenden Positionen fahren.

Die Röntgenröhre und der Detektor befinden sich nun in der Position, bei der der Rockingscan die maximale Intensität ermittelt hat. Diese Position ist normalerweise nicht exakt bei 0. Durch die parallele Ausrichtung des Röntgenstrahles liegt die Probe nicht mehr mittig im Strahl. Aus diesem Grund muss ein erneuter Z-Scan durchgeführt werden, um die Probe wieder auf die halbe Abschattung zu fahren.

Anschließend wird ein zweiter Rockingscan unter einem Winkel von  $2\Theta = 0,3^\circ$  durchgeführt, um eine noch exaktere Justage der Probe im Strahl zu gewährleisten. Ist ein deutlicher Reflex zu erkennen, kann durch das Drücken der „Zi“-Taste der Ein- und Ausfallswinkel auf  $0,15^\circ$  gesetzt werden. Hierzu wird nach dem Anklicken der „Zi“-Taste im Feld „Enter theoretical Position“ der Wert „0,15“ eingetragen und gespeichert.

Abschließend kann aus einem dritten Z-Scan die halbe Abschattung genauer bestimmt werden, da sie aus dem Maximum der Intensitätskurve abgelesen werden kann. Dementsprechend wird die Intensität des Primärstrahls in einem bestimmten Höhenbereich  $\Delta z$  vollständig reflektiert. Im Folgenden wird nun ein Z-Scan unter einem Winkel gefahren (siehe Abbildung 6). Der Scanbereich sollte in der Nähe des Nullpunktes liegen. Das Maximum wird durch das Doppelklicken auf den Schwerpunkt der Kurve bestimmt und die entsprechende Z-Position angefahren. Damit ist die Probe justiert.



**Abbildung 6:** Z-Scan unter einem Winkel von  $2\Theta = 0,3^\circ$ .

In Tabelle 1 sind die Justagemessungen mit allen wichtigen Werten zusammengefasst.

**Tabelle 1:** Orientierung für die Werte bei der Justierung. Es empfiehlt sich diese Werte der jeweiligen Situation anzupassen.

Typ	Messereich	Schrittweite	Messdauer pro Messpunkt
Detektorscan	-0,5 bis 0,5	0,02	1
Z-Scan	-1 bis 1	0,04	1
X-Scan	-20 bis 20	1	1
Rockingscan $2\Theta = 0$	-1 bis 1	0,04	1
Z-Scan	-0,5 bis 0,5	0,02	1
Rockingscan $2\Theta = 0,3$	0 bis 0,3	0,005	1
Z-Scan $2\Theta = 0,3$	-0,5 bis 0,5	0,02	1

### 3.2 Messung am D8-Labordiffraktometer

Der Messvorgang des Polymerfilmes auf einem Silizium-Wafer kann nun beginnen. Bei dieser Messung wird ein sogenannter Reflektivitätsscan durchgeführt. Der Einfallswinkel  $\alpha_i$  auf die Probe und der Winkel zwischen Probe und Detektor  $\alpha_f$  sind bei einem solchen Scan gleich. Hierfür wird der Scantype „Omega/2Theta“ genutzt. Für die Messung kann der Scanbereich von  $0^\circ$  bis  $2,5^\circ$  gewählt werden. Für diesen Messbereich müssen zusätzlich die Schrittweiten und die Zeit pro Schritt (Messpunkt) eingegeben werden. Für die Schrittweiten werden  $0,005^\circ$  vorgeschlagen. Die Messzeit sollte mindesten 5 s pro Messpunkt betragen. Um die „wahre Reflektivität“ zu erhalten, muss ein „Diffuser Scan“, der den Anteil der gestreuten Intensität an der Reflektivität bestimmt, durchgeführt werden. Aus diesem Grund wird eine zweite Messung durchgeführt, bei der der Detektorwinkel um  $0,1^\circ$  gegenüber dem Einfallswinkel verschoben wird. Der Messvorgang verläuft analog zu dem vorher beschriebenen Ablauf. Es sollten dieselben Schrittweiten und Zählraten wie bei dem Reflektivitätsscan verwendet werden. Jede Messung sollte im .raw-Format abgespeichert und über das Programm „File Exchange“ in .uxd umgewandelt werden. Damit ist der Messvorgang des Polymerfilmes auf einem Silizium-Wafer abgeschlossen und die Daten können ausgewertet werden.

### 3.3 Der Geometriefaktor

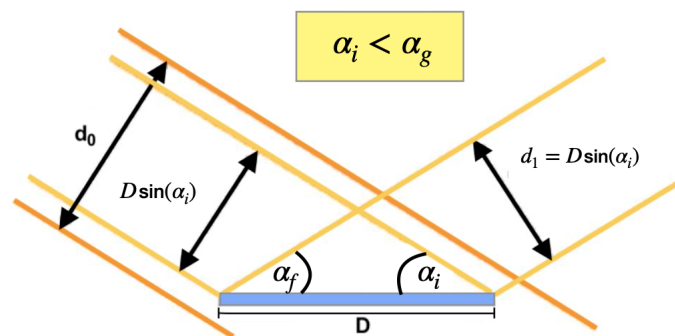


Abbildung 7: Strahlverlauf zur Veranschaulichung des Geometriefaktors  $G$ .

Der Geometriefaktor  $G$  (siehe Abbildung 7) berücksichtigt, dass erst bei einem genügend großen Einfallswinkel, dem sogenannten Geometriefaktor  $\alpha_g$ , der gesamte Strahl auf die Oberfläche trifft und reflektiert wird. Bei einem Durchmesser  $D$  der Probenoberfläche und der Höhe  $d_0$  des Strahls gilt für den Geometriefaktor

$$G = \frac{D \sin(\alpha_i)}{d_0} \quad \text{mit} \quad \alpha_i < \alpha_g,$$

wobei

$$G = 1 \quad \text{mit} \quad \alpha_i > \alpha_g \quad \text{ist.}$$

In diesem Fall sind die Einfallswinkel  $\alpha_i$  anfangs sehr klein. Folglich ist die Fläche, die der Strahl überstreicht, größer als die Probenoberfläche. Somit wird nicht die gesamte eingestrahlte Intensität von der Probenoberfläche reflektiert, die in den Detektor gelangen kann. Dieser Effekt hat einen Abfall der Reflektivität im Bereich sehr kleiner Winkel  $\alpha_i < \alpha_g$  zur Folge. Der Geometriefaktor  $G$  berücksichtigt diesen Effekt und wird als das Verhältnis der Strahlbreite  $D\sin(\alpha_i)$ , die die Probenoberfläche trifft, zur Gesamtstrahlbreite  $d_0$  definiert [3].

## 4 Aufgaben

**Ziel:** Bestimmen Sie die Dispersion und Rauigkeit des Siliziumwafers ( $D = 20$  mm) sowie die Schichtdicke, Dispersion und Rauigkeit der Polysterolschicht. Gehen Sie dabei wie folgt vor:

- a) Passen Sie an den Detektorscan eine Gaußfunktion an und bestimmen Sie dadurch die Halbwertsbreite und die maximale Intensität im Detektorscan.
- b) Veranschaulichen Sie in einer Graphik die aufgenommenen Messwerte des Reflektivitätsscans sowie des diffusen Scans. Ziehen Sie den diffusen Scan von dem Reflektivitätsscan ab und stellen Sie das Ergebniss in einem Diagramm dar. Zeichnen Sie zusätzlich die Fresnelreflektivität einer ideal glatten Siliziumoberfläche in das Diagramm ein.
- c) Berechnen Sie den Geometriewinkel  $\alpha_g$  der untersuchten Probe aus den Daten, die Sie bei der Justierung aufgenommen haben! Leiten Sie daraus den Korrekturfaktor  $G$  ab und korrigieren Sie mit diesem die aufgenommenen Daten. Berechnen Sie aus der Strahlbreite und der Probenlänge den Geometriewinkel und vergleichen Sie ihn mit dem gemessenen.
- d) Schätzen Sie die Schichtdicke über die aufgenommene Reflektionskurve ab.
- e) Berechnen Sie aus den Literaturwerten die Dispersion von Silizium und Polysterol und vergleichen Sie diese mit Ihren Ergebnissen. Literaturwerte:  
 Silizium:  $r_e\rho = 20 \cdot 10^{10}\text{cm}^{-2}$ ,  $\delta = 7,6 \cdot 10^{-6}$ ,  $\mu = 86\text{cm}^{-1}$ ,  $\alpha_c = 0,174^\circ$   
 Polysterol:  $r_e\rho = 9,5 \cdot 10^{10}\text{cm}^{-2}$ ,  $\delta = 3,5 \cdot 10^{-6}$ ,  $\mu = 4\text{cm}^{-1}$ ,  $\alpha_c = 0,153^\circ$
- f) Berechnen Sie die Lage des Kritischen Winkels und vergleichen Sie diese mit Ihrer Messung.
- g) Bestimmen Sie das Dispersionsprofil der untersuchten Probe unter der Verwendung des Parratt-Algorithmus. Verwenden Sie dabei modifizierte Fresnelkoeffizienten, um die Rauigkeit mit einzubeziehen. Sie können hierfür ein Programm Ihrer Wahl verwenden (Programmcode als Anhang beifügen).
- h) Vergleichen Sie Ihre Schätzung der Schichtdicke mit dem durch den Parratt-Algorithmus ermittelten Wert.



## 5 Potentiell nützliche Literatur

1. Heinz Kiessig, „Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten“, in: Annalen der Physik 402.7 (1931), S. 769-788.
2. L. G. Parratt, „Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays“, in: Phys. Rev. 95 (2 Juli 1954), S. 359-369.
3. Metin Tolan, „X-Ray Scattering from Soft-Matter Thin Films, Materials Science and Basic Research“, Springer-Verlag, (1999).