

V44: Röntgenreflektrometrie

Martin Schönfeld
martin.schoenfeld@udo.edu

Tim Sedlaczek
tim.sedlaczek@udo.edu

Durchführung: 07.11.2022

Abgabe: 11.11.2022

Korrektur: 05.12.2022

TU Dortmund – Fakultät Physik

1 Zielsetzung

Das Ziel dieses Versuchs ist es, ein Verständnis für die Röntgenreflektometrie zu entwickeln. Dazu wird die Dispersion, Rauigkeit und Schichtdicke einer Polysterolschicht auf einem Siliziumwafer bestimmt.

2 Theorie

Wenn eine elektromagnetische Welle von einem Medium mit Brechungsindex n_1 in ein anderes Medium mit Brechungsindex n_2 eintritt, findet Brechung statt. Hierbei muss gelten, dass $n_1 \neq n_2$ ist. Betrachtet wird in diesem Versuch Röntgenstrahlung mit einer Wellenlänge λ im Bereich $0,1 \text{ \AA} - 10 \text{ \AA}$. Der Brechungsindex ist definiert durch

$$n = 1 - \delta + i\beta,$$

mit δ als Korrekturterm (im Bereich $\delta \approx 10^{-6}$) und β als Absorption. Das Besondere an Röntgenstrahlung ist, dass für den Brechungsindex gilt, dass er kleiner als eins ist. Das Snelliussche Brechungsgesetz ergibt sich zu

$$\frac{n_1}{n_2} = \frac{\cos(\alpha_2)}{\cos(\alpha_1)}.$$

Damit und mit der Annahme, dass die Grenzfläche der Medien eine homogene Ebene ist, ergibt sich der kritischer Winkel α_C , bei welchem eine Totalreflexion auftritt. Für kleine Winkel lässt sich

$$\alpha_C \approx \sqrt{2\delta} = \lambda \sqrt{\frac{r_e \rho}{\pi}}$$

nähern, wobei r_e der klassische Elektronenradius ist und ρ bezeichnet die Elektronendichte des betrachteten Materials.

2.1 Fresnelsche Formeln

Die Polarisation elektromagnetischer Wellen muss bei Betrachtung von Reflexion und Transmission berücksichtigt werden. Umgesetzt wird dies durch die Fresnelschen Formeln. Wenn das Licht s-polarisiert ist, ergeben sich die Koeffizienten zu

$$r = \frac{n_1 \cos(\alpha_1) - n_2 \cos(\alpha_2)}{n_1 \cos(\alpha_1) + n_2 \cos(\alpha_2)},$$

$$t = \frac{2n_1}{n_1 \cos(\alpha_1) + n_2 \cos(\alpha_2)}.$$

Da $n_1 \approx n_2$ gilt, ist hier eine Unterscheidung zwischen p - und s -Polarisation nicht notwendig. Für Röntgenstrahlung ist die Fresnelreflektivität bei $\alpha_i > 3\alpha_C$ näherungsweise gegeben als

$$R_F = |r^2| = \left(\frac{\alpha_C}{2\alpha_i} \right)^4.$$

2.2 Mehrschichtsysteme

Im Folgenden werden Mehrschichtsysteme erklärt, da hier ein Polystyrolfilm auf einem Siliziumsubstrat betrachtet wird. Ein Beispiel für die Reflektivität eines solchen Systems ist in Abbildung 1 zu sehen.

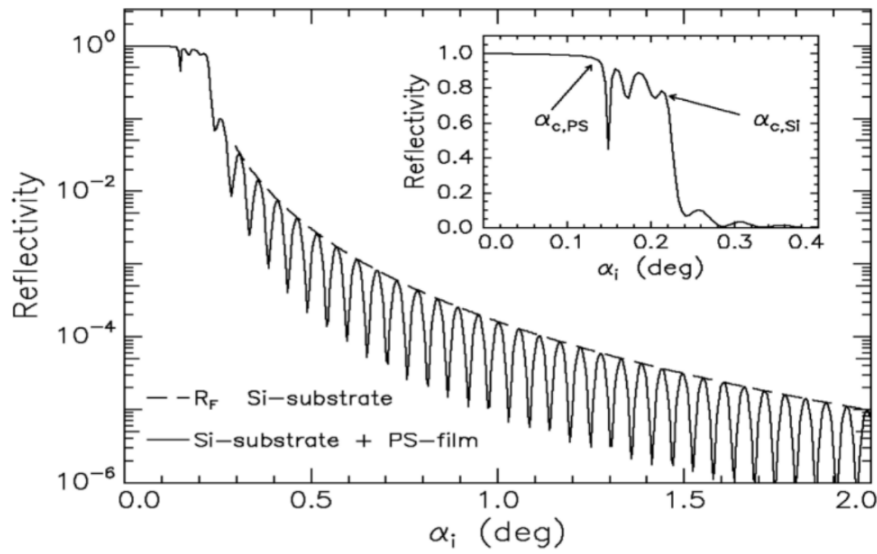


Abbildung 1: Die Reflektivität eines Mehrschichtsystems beispielhaft gegen den Einfallswinkel α_i aufgetragen.[Tol05]

In dem vergrößerten Ausschnitt sind zwei Totalreflexionen zu erkennen, welche zum einen vom Siliziumsubstrat und zum anderen vom Polystyrolfilm stammen. Oszillationen beim Abfall der Reflektivität treten auf wegen Interferenzeffekten an der Oberfläche. Hierdurch sind Rückschlüsse auf den Schichtabstand möglich. Bei einer destruktiven Interferenz muss ein Gangunterschied von einem ungeraden Vielfachen von $\frac{\lambda}{2}$ vorliegen. Es folgt

$$d = \frac{2\pi}{\delta q_z} = \frac{\lambda}{2\delta\alpha_1},$$

hierbei gilt $\vec{q} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ und $q_2 = 2k \sin(\alpha_1)$.

Bei $N + 1$ Schichten im betrachteten System kann die Reflektivität berechnet werden mit dem rekursiven Parratt-Algorithmus. Abbildung 2 zeigt ein solches System.

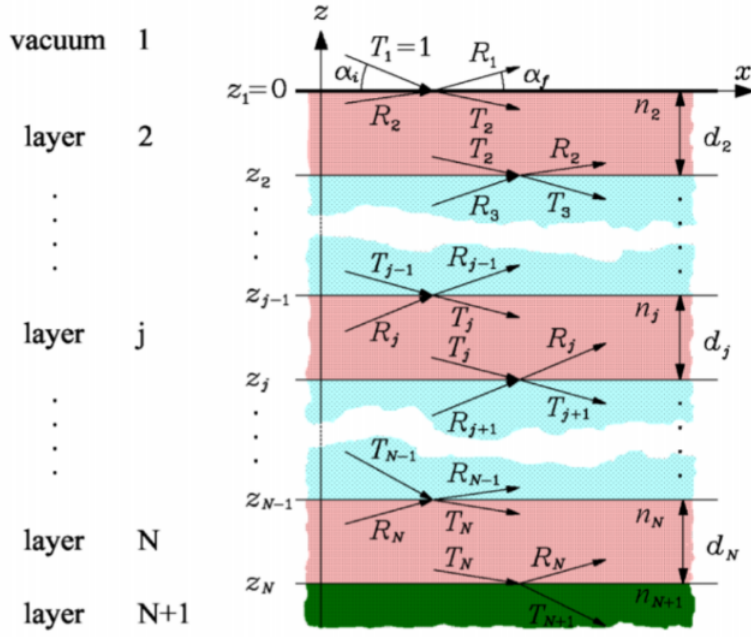


Abbildung 2: Eine Darstellung eines Mehrschichtsystems mit $N + 1$ Schichten.[Pyn]

Die unterste Schicht ist beim Parratt-Algorithmus unendlich dick, wodurch dort keine Transmission stattfinden kann. Die mathematische Beschreibung des Algorithmus ist

$$X_j = \frac{R_j}{T_j} = \exp(-2ik_{z,j}z_j) \cdot \frac{r_{j,j+1} + X_{j+1} \exp(2ik_{z,j+1}z_j)}{1 + r_{j,j+1}X_{j+1} \exp(2ik_{z,j+1}z_j)}.$$

$r_{j,j+1}$ beschreibt die Fresnelreflektivität an der j -ten Grenzfläche. Die Startbedingung ist, dass an der untersten Schicht keine Reflexion stattfindet $R_{N+1} = 0$. Somit kann jeweils das Verhältnis des reflektierten und transmittierten Anteils rekursiv von unten nach oben berechnet werden.

2.3 Rauigkeit

Die Oberfläche der Grenzfläche ist nicht perfekt glatt, was in der Berechnung der Reflektivität berücksichtigt werden muss. Dafür werden die Fresnelkoeffizienten modifiziert zu

$$\begin{aligned} \tilde{r}_{j,j+1} &= r_{j,j+1} \exp(-2k_{z,j}k_{z,j+1}\sigma_j^2), \\ \tilde{t}_{j,j+1} &= t_{j,j+1} \exp\left(\left(k_{z,j}-k_{z,j+1}\right)^2 \cdot \frac{\sigma_j^2}{2}\right). \end{aligned}$$

2.4 Geometriefaktor und Geometriewinkel

Abbildung 3 zeigt, dass der verwendete Strahl eine größere Fläche überstreicht als die Probenoberfläche.

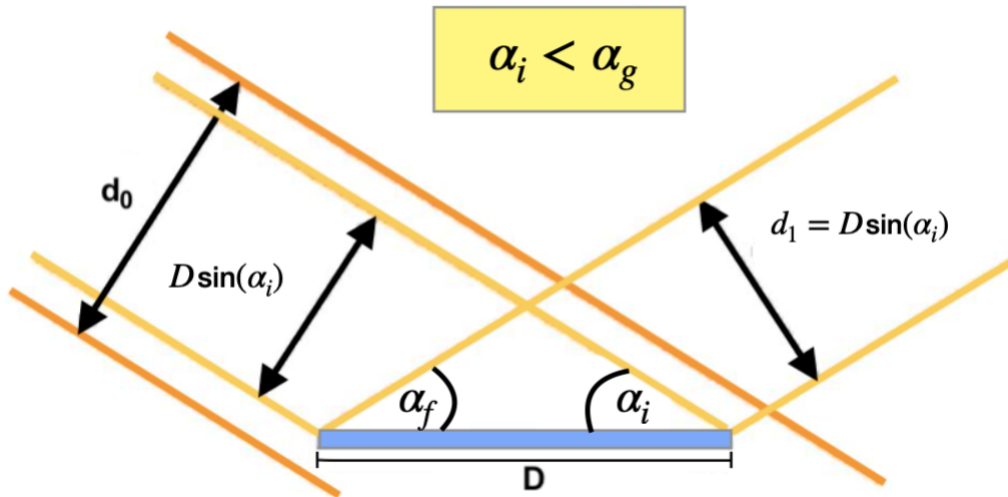


Abbildung 3: Eine beispielhafte Veranschaulichung des Geometriewinkels. [Dor]

Daher kann nur ein Teil der Intensität I reflektiert und im Anschluss detektiert werden. Berücksichtigt wird dies durch den Geometriefaktor G :

$$G = \frac{D \sin(\alpha_i)}{d_0} \quad \text{mit} \quad \alpha_i < \alpha_g, \quad (1)$$

$$G = 1 \quad \text{mit} \quad \alpha_i > \alpha_g. \quad (2)$$

Hierbei ist $D \sin(\alpha_i)$ die Strahlbreite, welche die Probenoberfläche trifft. d_0 ist die gesamte Breite des Strahls.

3 Versuchsaufbau

Durchgeführt wird der Versuch mit einem D8-Diffraktometer. Ein D8-Diffraktometer besteht unter Anderem aus einer Röntgenröhre mit Kupferanode. Diese wird mit einer Spannung von 40 kV und einer Stromstärke von 35 mA betrieben. Die dabei entstehende Strahlung trifft auf einen Göbelspiegel, welcher die Strahlung bündelt und monochromatisiert. Dies dient dazu, dass das nicht-polarisierte Licht, dass sich kugelförmig ausbreitet in eine detektierbare Richtung abgelenkt wird. Der daraus resultierende Strahl besitzt eine Wellenlänge von $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$.

4 Durchführung

Vor der eigentlichen Messung muss der Aufbau zunächst justiert werden.

4.1 Justage

Die Justage des Aufbaus erfolgt in sechs Schritten. Als erstes wird ein Detektorscan durchgeführt, wofür die Probe nicht im Strahlengang liegt. Der Detektor und die Röntgenröhre werden auf die Position 0° gefahren. Deren Lage wird nun variiert, um die tatsächliche Nulllage des Detektors zu finden. Dies wird getan, bis die Intensität des Primärstrahls das Maximum durchläuft. Genau diese Position ist die normierte Nullposition. Darauf folgt der erste Z-Scan. Hier wird die Probenjustage angepasst. Die Probe wird in den Strahlengang gebracht und die Intensität I wird für verschiedene z-Positionen gemessen. Die Position der Probe wird variiert, bis I auf den Wert $I = \frac{1}{2}I_{\max}$ sinkt. Nun misst man den ersten Rockingscan. Der Detektor und die Röntgenröhre werden um die Probe bewegt. Es wird ein konstanter Winkel $2\theta = 0^\circ$ beibehalten zwischen der Probe und dem Detektor. Das Maximum aus dem resultierenden Intensitätsverlauf wird abgelesen und für die weiteren Schritte verwendet. Darauf folgt der zweite Z-Scan. Weil die Position der Probe sich durch den Rockingscan verändert hat, wird ein erneuter Z-Scan durchgeführt. Hiernach wird ein zweiter Rockingscan durchgeführt für eine Erhöhung der Präzession. Es wird erneut das Maximum abgelesen während die Motoren entsprechend ausgerichtet werden. Als letztes wird ein dritter Rockingscan durchgeführt, bei dem mit genauerer Kalibration das Maximum vermessen wird.

4.2 Messung

Nach der Justage wird ein Reflektivitätsscan durchgeführt. Der Einfallswinkel α_i und der Winkel zwischen Probe und Detektor α_f sind hier gleich. Es wird ein Scanbereich von 0° bis $2,5^\circ$ und eine Schrittweite von $0,005^\circ$ gewählt. Die Messzeit beträgt 40 min. Zusätzlich wird ein diffuser Scan durchgeführt. Hier wird der Anteil der gestreuten Intensität an der Reflektivität bestimmt.

5 Auswertung

5.1 Detektorscan Gauß-Fit

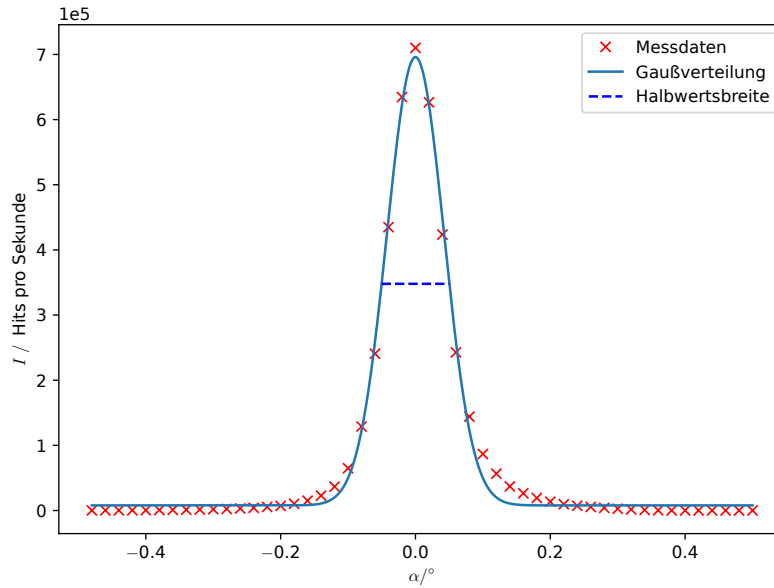


Abbildung 4: Detektorscan mit Gaußfunktion als Ausgleichskurve. Gemessene Intensität ist gegen den Winkel der Probe zum Detektor aufgetragen.

Der Detektorscan ist in Abb. 4 dargestellt. Es wird der Winkel der Probe zum Detektor gegen die gemessene Intensität aufgetragen. Es wird eine Fit gegen die Gaußfunktion durchgeführt.

$$I(\alpha) = \frac{a}{\sqrt{2 \cdot \pi \cdot \sigma^2}} \cdot \exp\left(-\frac{(x - \mu)^2}{2 \cdot \sigma^2}\right) + b \quad (3)$$

Mithilfe eines Fit werden folgende Parameter bestimmt:

$$\begin{aligned} a &= (7,29 \pm 0,10) \cdot 10^4 \\ b &= (7,8 \pm 2,1) \cdot 10^3 \\ \sigma &= (0,0423 \pm 0,0006)^\circ \\ \mu &= (0,0000 \pm 0,0006)^\circ. \end{aligned}$$

Die Halbwertsbreite $\text{FWHM} = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma$ und maximale Intensität I_{\max} ergibt sich zu:

$$\begin{aligned} \text{FWHM} &= 0,1003^\circ \\ I_{\max} &= 695\,956. \end{aligned}$$

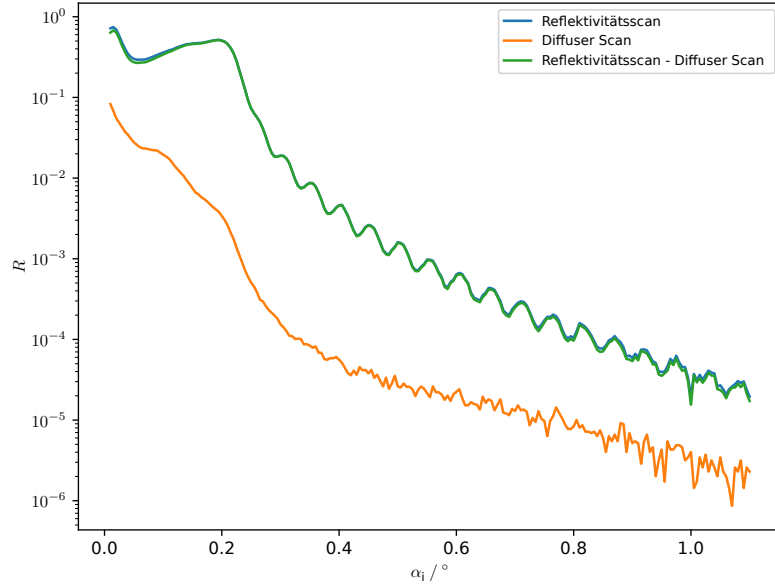


Abbildung 5: Messdaten des Reflektivitätsscans und diffusen Scans.

5.2 Reflektivitätsscan

Die Messung der Reflektivität, des diffusen Scans sowie der Differenz jener ist in Abb. 5 dargestellt.

5.3 Geometriefaktor

Der Z-Scan sowie Rockingscan mit $\theta = 0$ ist in Abb. 6 und Abb. 7 dargestellt. Aus dem Rocking-Scan lässt sich der Geometriewinkel ablesen:

$$\begin{aligned}\alpha_{g,\text{links}} &= 0,49^\circ \\ \alpha_{g,\text{rechts}} &= -0,47^\circ \\ \overline{\alpha_g} &= 0,48^\circ.\end{aligned}$$

Zur bestimmung des theoretischen Geometriewinkel wird die Strahlbreite d_0 am Z-Scan (Abb. 6) abgelesen zu $d_0 = 0,25$ und mit der Probenlänge $D = 20$ mm und Gl. 1 berechnet. Mithilfe des Geometriewinkels werden außerdem die Messdaten in Abb. 5 korrigiert.

$$\alpha_{g,\text{Theorie}} = 0,687^\circ$$

5.4 Schichtdicke aus Kissing Oszillationen bestimmen

Nun wird aus den Kiessig Oszillationen die Schichtdicke d bestimmt. Es werden die Minima bestimmt und deren Abstände zueinander bestimmt und gemittelt ($\overline{\Delta\alpha_i}$). Daraus ergibt sich dann über Gl. (2.2) die Schichtdicke d_{PS} .

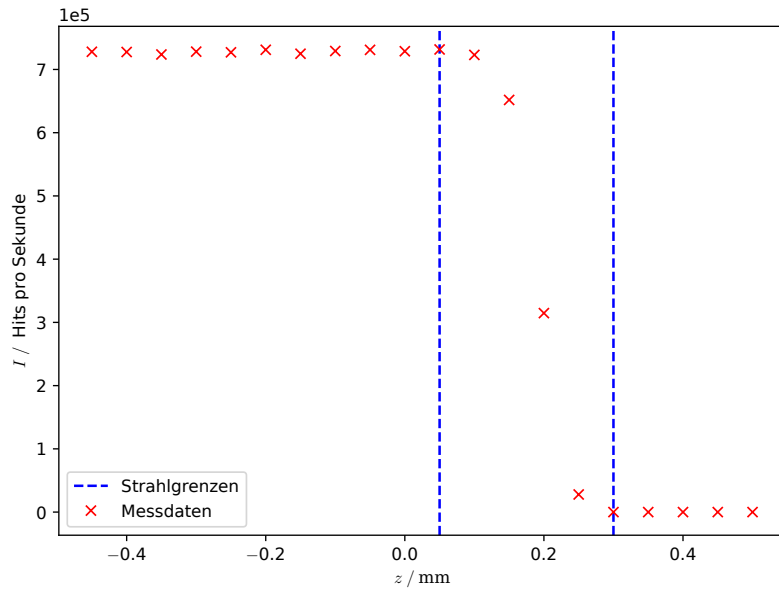


Abbildung 6: Die Messdaten des Z-scans. Die Schichtdicke ergibt sich zu $d_0 = 0,25$.

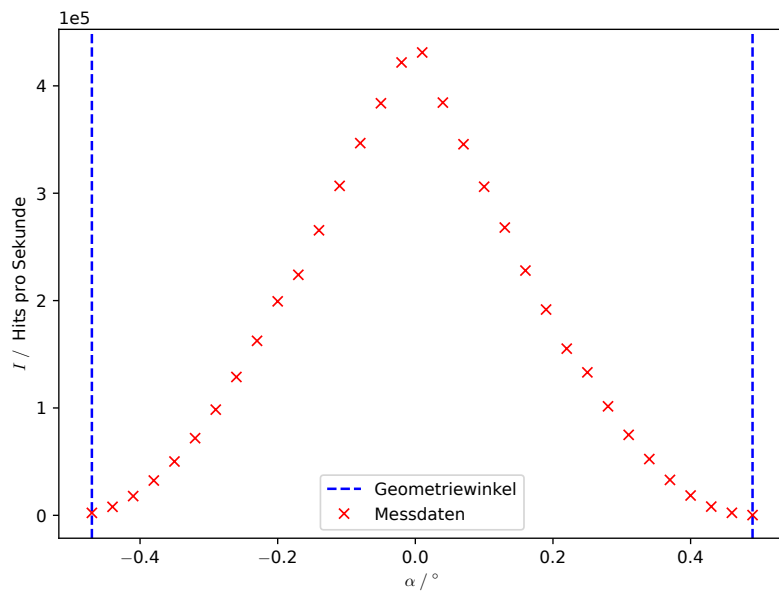


Abbildung 7: Die Messdaten des Rocking-scans. Der abgelesene Geometriewinkel ergibt sich zu $\bar{\alpha}_g = 0,48^\circ$.

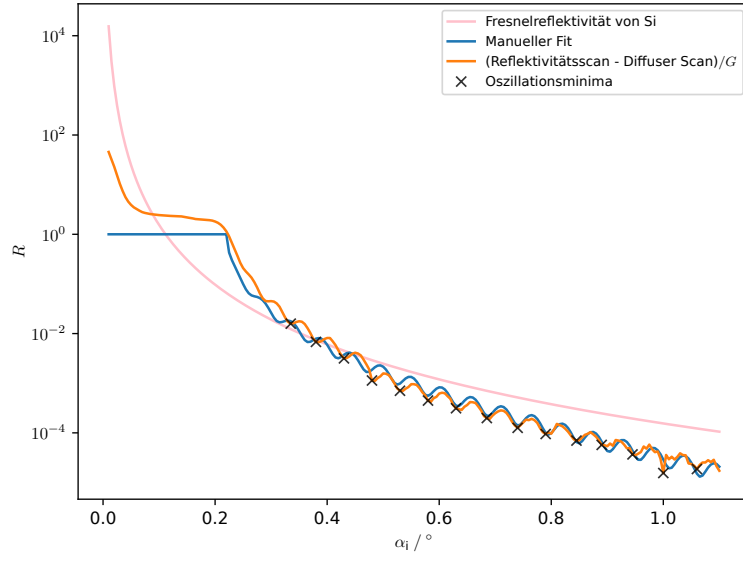


Abbildung 8: Ergebnisse der Bestimmung des Dispersionsprofils

$$\overline{\Delta\alpha_1} = (9,04 \pm 0,20) \cdot 10^{-4} \text{ }^\circ$$

$$d_{\text{PS}} = (8,52 \pm 0,26) \cdot 10^{-8} \text{ m}$$

5.5 Dispersionsprofil mit dem Parratt-Algorithmus bestimmen

In Abb. 8 ist der manuelle Fit mit dem Parrat-Algorithmus (Gl. (2.2)) abgebildet. Es wird die Polystyrol (PS) als Schicht 2 und Silizium (Si) als Substrat bzw. Schicht 3 angenommen. Die Fresnelkoeffizienten werden mit der RMS-Rauigkeit modifiziert. Fest angenommen werden die Parameter

$$\begin{aligned}\delta_{1,\text{Luft}} &= 0 \\ z_1 &= 0 \\ \lambda &= 1,54 \cdot 10^{-10} \text{ m.}\end{aligned}$$

Die Parameter werden so angepasst, dass die berechnete Reflektivität möglichst gut mit der gemessenen Reflektivität übereinstimmt. Für den manuellen Fit in Abbildung 8

werden die folgenden Parameter verwendet:

$$\begin{aligned}z_2 &= 8,10 \cdot 10^{-8} \text{ m} \\ \delta_{3,\text{Si}} &= 7,4 \cdot 10^{-6} \\ \delta_{2,\text{PS}} &= 1,0 \cdot 10^{-6} \\ \sigma_1 &= 6,55 \cdot 10^{-10} \text{ m} \\ \sigma_2 &= 8,15 \cdot 10^{-10} \text{ m} \\ \beta_2 &= 0,05 \cdot 10^{-7} \\ \beta_3 &= 0,6 \cdot 10^{-6}\end{aligned}$$

5.6 kritischen Winkel bestimmen

Über Gleichung (2) können nun mit den Korrekturen der Brechungsindizes auch die kritischen Winkel der beiden Materialien zu

$$\begin{aligned}\alpha_{\text{c,PS}} &= 0,081^\circ \\ \alpha_{\text{c,Si}} &= 0,220^\circ\end{aligned}$$

berechnet werden.

6 Diskussion

Bei der Betrachtung der Justage Messung fällt auf dass eine geringere Schrittweite von Vorteil gewesen wäre für genauere Bestimmung der Strahlbreite z.B. Auch die Bestimmung des Geometriewinkels aus dem Rocking Scan war aufgrund dieses Grundes nicht sehr genau möglich. Der Geometriewinkel weicht um ca. 40% dem Theorie Wert (über den Z-scan) ab.

Der manuelle Fit war schwierig passend einzustellen so dass immer eine Seite nicht richtig gepasst hat. Demnach passt der Fit aber im Bereich von ca. $0,5^\circ$ bis $0,9^\circ$ optisch gut. Aufgrund der manuellen Anpassung von 7 Parameter ist zu erwarten keine sehr gute Anpassung hinzubekommen. Ein weiterer Grund für Abweichungen von der Theorie Kurve sind Abnutzungen der Probe.

Für den kritischen Winkel lässt sich eine dementsprechend große Abweichungen von über 88% beobachten. $\alpha_{\text{c,PS,gemessen}} = 0,081^\circ$ zu dem Literaturwert $\alpha_{\text{c,PS,Literatur}} = 0,153^\circ$ [Dor]

Die Schichtdicke des Polyesterol-Films, welche über den Parratt-Algorithmus bestimmt wurde, weicht jedoch nur um 5,19% zu der Schichdickenbestimmung über die Mittelung der Oszillationsminima ab. Die Korrektur des Brechungsindizes von Silizium trifft annähernd den Literaturwert, $\delta_{\text{PS,Literatur}} = 7,6 \cdot 10^{-6}$ [Dor], und weicht um $\approx 2,7\%$ ab.

Literatur

- [Dor] TU Dortmund. *Versuchsanleitung zu Versuch 44*. URL: https://moodle.tu-dortmund.de/pluginfile.php/2104402/mod_resource/content/6/V44.pdf (besucht am 08.11.2022).
- [Pyn] R. Pynn. „Neutron Reflectometry“. In: (), S. 14. URL: <https://www.eng.uc.edu/~beaucag/Courses/Characterization/ReflectivityLab/RogerPynnReflectometry.pdf> (besucht am 08.11.2022).
- [Tol05] M. Tolan. „X-ray reflectivity and Grazing Incidence Small Angle X-Ray Scattering“. In: (2005), S. 17. URL: <https://magnetism.eu/esm/2005-constantia/slides/renaud-slides.pdf> (besucht am 08.11.2022).