

# Versuch 51 - Röntgenreflektometrie

Lorenz Baumgarten

Lorenz.Baumgarten@TU-Dortmund.de

Kristopher Rasek

Kristopher.Rasek@TU-Dortmund.de

Datum der Durchführung:

21.10.2015

Datum der Abgabe:

27.10.2015

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theorie</b>	<b>1</b>
2.1	Mehrschichtsystem . . . . .	2
2.2	Rauigkeit . . . . .	4
2.3	Geometriewinkel . . . . .	5
<b>3</b>	<b>Durchführung</b>	<b>6</b>
<b>4</b>	<b>Messwerte</b>	<b>7</b>
<b>5</b>	<b>Auswertung</b>	<b>8</b>
<b>6</b>	<b>Diskussion</b>	<b>10</b>

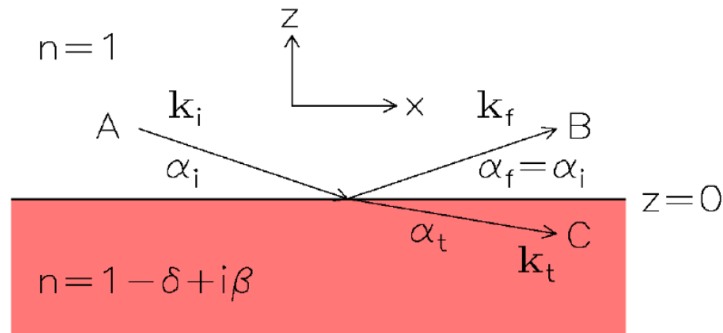
# 1 Einleitung

Mithilfe von Reflexionsmessungen mit Röntgenstrahlung können wenige Nanometer dicke Materialschichten auf ihre Elektronendichte, Schichtdicke und Rauigkeit hin untersucht werden.

Im Folgenden sollen diese Eigenschaften für einen Polymerfilm auf einem Silizium-Wafer bestimmt werden.

# 2 Theorie

Da die Schwingungsfrequenz von Röntgenstrahlung höher ist als die Resonanzfrequenz von Elektronen in einem Medium, ist der Realteil des Brechungsindex von Röntgenstrahlung geringfügig kleiner als Eins. Somit kann bei Eintritt eines Röntgenstrahls aus dem Vakuum in ein Medium unter genügend kleinem Winkel Totalreflexion auftreten.



**Abbildung 1:** Schematische Darstellung der Reflexion und Transmission eines aus dem Vakuum kommenden Röntgenstrahls an einer Grenzfläche [1]

Treffen Röntgenstrahlen auf eine Grenzfläche, werden sie teilweise reflektiert und teilweise gebrochen, wie in Abbildung 1 dargestellt. Für die Amplituden der einfallenden Welle  $A$ , der reflektierten Welle  $B$  und der transmittierten Welle  $C$  gelten die Fresnelformeln für s-polarisierte Strahlung

$$r_s = \frac{B}{A} = \frac{k_{i,z} - k_{t,z}}{k_{i,z} + k_{t,z}} \quad (1)$$

$$t_s = \frac{C}{A} = \frac{2k_{i,z}}{k_{i,z} + k_{t,z}} \quad (2)$$

und für p-polarisierte Strahlung

$$r_p = \frac{B}{A} = \frac{k_{i,z} - k_{t,z}}{nk_{i,z} + k_{t,z}/n} \quad (3)$$

$$t_p = \frac{C}{A} = \frac{2k_{i,z}}{nk_{i,z} + k_{t,z}/n} , \quad (4)$$

wobei  $k_{i,z} = k \sin \alpha_i$  die  $z$ -Koordinate des Wellenvektors der einfallenden Welle und  $k_{t,z} = nk \sin \alpha_t = k\sqrt{n^2 - \cos^2 \alpha_i}$  die  $z$ -Koordinate des Wellenvektors der transmittierten Welle ist. Hierbei ist  $k$  der Betrag des Wellenvektors der einfallenden Welle,  $\alpha_i$  der Einfallswinkel und  $n$  der Brechungsindex des bestrahlten Mediums ist.

Für Röntgenstrahlung sind die Unterschiede zwischen s- und p-polarisierter Strahlung wegen  $n \approx 1$  vernachlässigbar und die Fresnelformeln können zu

$$r = \frac{B}{A} = \frac{k_{i,z} - k_{t,z}}{k_{i,z} + k_{t,z}} \quad \text{und} \quad (5)$$

$$t = \frac{C}{A} = \frac{2k_{i,z}}{k_{i,z} + k_{t,z}} \quad (6)$$

zusammengefasst werden.

Bei  $\alpha_i > 3\alpha_c$  gilt für die Fresnelreflektivität  $R_F = |r|^2$

$$R_F = |r|^2 = \left( \frac{k_i - k_t}{k_i + k_t} \right)^2 = \left( \frac{\sin \alpha_i - \sqrt{\cos^2 \alpha_c - \cos^2 \alpha_i}}{\sin \alpha_i + \sqrt{\cos^2 \alpha_c - \cos^2 \alpha_i}} \right)^2 \quad (7)$$

$$= \left( \frac{\alpha_i - \sqrt{\alpha_i^2 - \alpha_c^2}}{\alpha_i + \sqrt{\alpha_i^2 - \alpha_c^2}} \right)^2 = \left( \frac{1 - \sqrt{1 - (\alpha_c/\alpha_i)^2}}{1 + \sqrt{1 - (\alpha_c/\alpha_i)^2}} \right)^2 \quad (8)$$

$$= \left( \frac{(\alpha_c/\alpha_i)^2/2}{2 - (\alpha_c/\alpha_i)^2/2} \right)^2 = \left( \frac{\alpha_c}{2\alpha_i} \right)^4. \quad (9)$$

Dabei ist  $\alpha_c$  der kritische Winkel, unterhalb dessen Totalreflexion auftritt. Dieser ist durch

$$\alpha_c \approx \sqrt{2\delta} = \lambda \sqrt{r_e \rho / \pi} \quad (10)$$

mit der Wellenlänge des einfallenden Lichts  $\lambda$ , dem klassischen Elektronenradius  $r_e$  und der Elektronendichte  $\rho$  gegeben.

## 2.1 Mehrschichtsystem

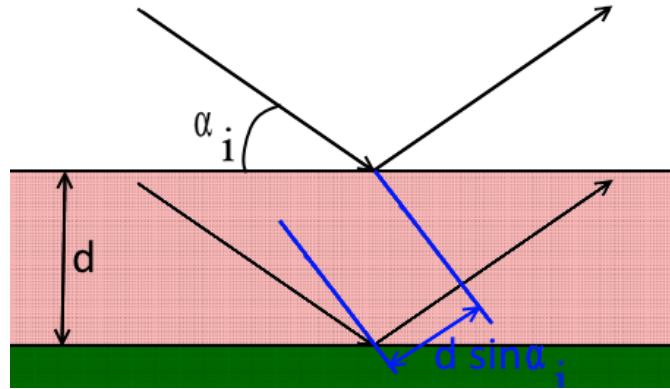
In einem Mehrschichtsystem entstehen durch Interferenz der an den unterschiedlichen Schichten reflektierten Strahlen Modulationen, sogenannte Kiessig-Ringe.

Ein Interferenzminimum entsteht, wenn der Gangunterschied ein Vielfaches der halben Wellenlänge ist. Für den Schichtabstand  $d$  gilt dann

$$2d \sin \alpha_i = n\lambda \quad (11)$$

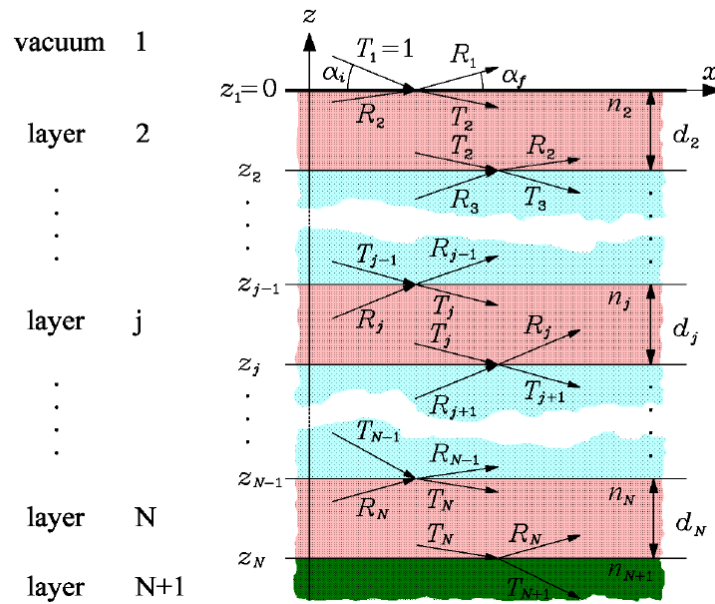
$$\Rightarrow d = \frac{2\pi}{\Delta q_z} \approx \frac{\lambda}{2\Delta \alpha_i}, \quad (12)$$

wobei  $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$  der Wellenvektorübertrag mit der  $z$ -Komponente  $q_z = 2k \sin \alpha_i$  ist. Hierbei ist  $\Delta q_z$  die Differenz der  $z$ -Komponente an den Minima und  $\Delta \alpha_i$  die entsprechende Einfallswinkeldifferenz. Dieser Zusammenhang lässt sich in Abbildung 2 erkennen.



**Abbildung 2:** Schematische Darstellung der destruktiven Interferenz an einem Mehrschichtsystem

Die Reflektivität eines Mehrschichtsystems, das aus  $N-1$  Schichten besteht und auf einem Substrat liegt, kann mithilfe des Parratt-Algorithmus berechnet werden. Hierzu werden das Vakuum als oberste Schicht und das Substrat als unterste Schicht betrachtet und als unendlich dick angenommen. Die einzelnen Schichten werden von 1 bis  $N+1$  durchnummeriert, wie in Abbildung 3 dargestellt.



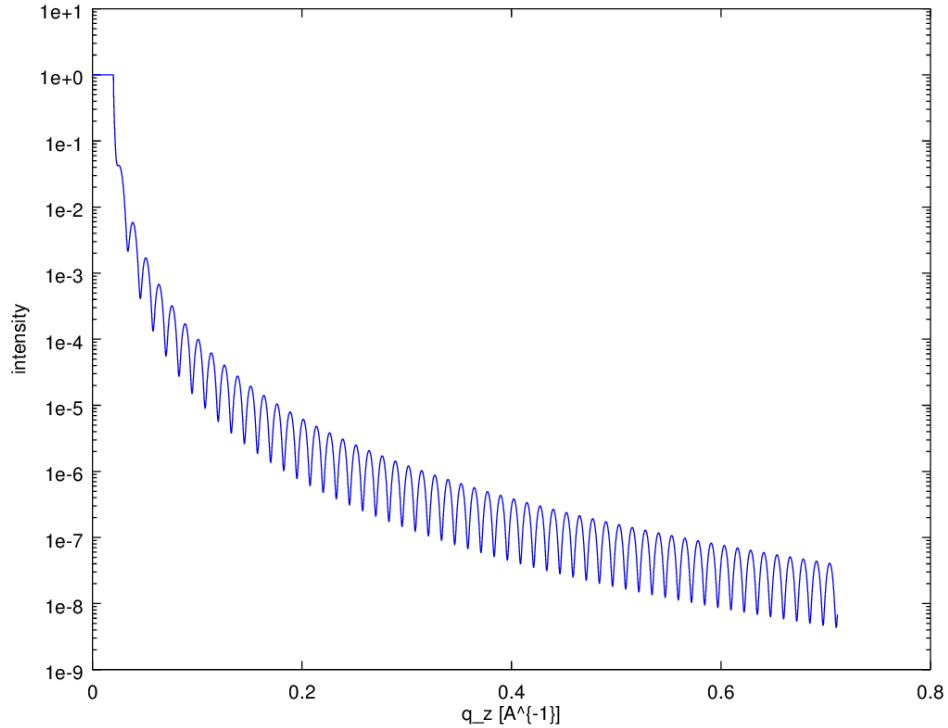
**Abbildung 3:** Schematische Darstellung der Reflexion und Transmission von Röntgenstrahlung aus dem Vakuum an einem Mehrschichtsystem [1]

Die durch die unterste Grenzfläche transmittierte Strahlung  $T_{N+1}$  wird an keiner Grenzfläche reflektiert und somit ist die reflektierte Strahlung  $R_{N+1}$  gleich Null. Dies wird

als Ausgangspunkt für eine rekursive Berechnung der Verhältnisse der reflektierten und transmittierten Wellen an der  $j$ -ten Grenzfläche nach der Formel

$$X_j = \frac{R_j}{T_j} = \exp(-2ik_{z,j}z_j) \frac{r_{j,j+1} + X_{j+1} \exp(2ik_{z,j+1}z_j)}{1 + r_{j,j+1}X_{j+1} \exp(2ik_{z,j+1}z_j)} \quad (13)$$

verwendet. Hierbei ist  $r_{j,j+1} = \frac{k_{z,j} - k_{z,j+1}}{k_{z,j} + k_{z,j+1}}$  die Fresnelreflektivität der  $j$ -ten Grenzfläche. In Abbildung 4 ist die nach diesem Algorithmus berechnete Reflektivität eines Systems mit einer Schicht mit Brechungsindex  $n = 1 - 10^{-6}$  auf einem Substrat mit Brechungsindex  $n = 1 - 3 \cdot 10^{-6}$  dargestellt.



**Abbildung 4:** Durch Parratt-Algorithmus berechnete Reflektivität eines Systems aus einer Schicht auf einem Substrat

## 2.2 Rauigkeit

Da reale Grenzflächen nicht perfekt glatt sind, wird im Folgenden die Rauigkeit einer solchen Fläche in die bisherigen Rechnungen miteinbezogen. Die Rauigkeit der  $j$ -ten Grenzfläche wird durch die root-mean-square-Rauigkeit

$$\sigma_j^2 = \int (z - z_j)^2 P_j(z) dz \quad (14)$$

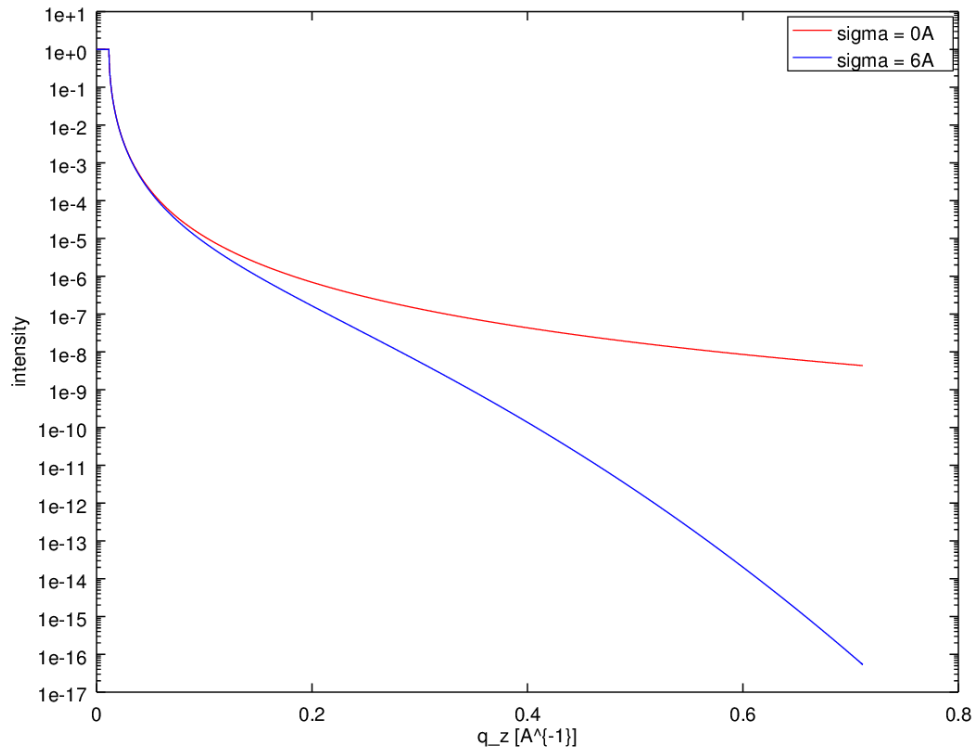
ausgedrückt, wobei  $P_j$  die Wahrscheinlichkeit angibt, dass die  $j$ -te Grenzfläche im Intervall  $[z_j + z, z_j + z + dz]$  liegt.

Hiermit ergeben sich die modifizierte Fresnelkoeffizienten

$$\tilde{r}_{j,j+1} = r_{j,j+1} \exp(-2k_{z,j}k_{z,j+1}\sigma_j^2) \quad (15)$$

$$\tilde{t}_{j,j+1} = t_{j,j+1} \exp((k_{z,j} - k_{z,j+1})^2\sigma_j^2/2) . \quad (16)$$

In Abbildung 5 sind die berechneten Reflektivitäten eines rauen Substrats mit einem Brechungsindex von  $n = 1 - 10^{-6}$  für die Rauigkeiten  $\sigma = 0 \text{ \AA}$  und  $\sigma = 6 \text{ \AA}$  dargestellt.



**Abbildung 5:** berechnete Reflektivitäten für ein Substrat mit Brechungsindex  $n = 1 - 10^{-6}$  und Rauigkeit  $\sigma = 0 \text{ \AA}$  und  $\sigma = 6 \text{ \AA}$

### 2.3 Geometriewinkel

Der Röntgenstrahl trifft bei kleinen Winkeln nicht vollständig auf die Probe. Der Winkel, ab dem der gesamte Strahl auf die Probe trifft wird als Geometriewinkel  $\alpha_g$  bezeichnet. Er lässt sich durch

$$\alpha_g = \arcsin(d_0/D) \quad (17)$$

berechnen, wobei  $d_0$  die Höhe des Strahls und  $D$  der Durchmesser der Probenoberfläche ist. Hiermit lässt sich der Geometriefaktor  $G$  konstruieren, der angibt, welcher Anteil des Strahls auf die Probenoberfläche trifft. Dieser ist durch

$$G = \begin{cases} \frac{D \sin \alpha_i}{d_0} & \text{für } \alpha_i < \alpha_g \\ 1 & \text{für } \alpha_i \geq \alpha_g \end{cases} \quad (18)$$

gegeben und muss reziprok mit der gemessenen Intensität multipliziert werden.

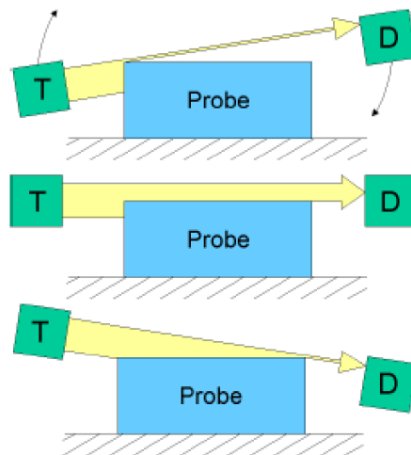
### 3 Durchführung

Für die Messung wird ein D8-Labordiffraktometer der Firma Bruker-AXS verwendet. In diesem Gerät wird Röntgenstrahlung mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$  von einer Kupferanodenröhre emittiert, mithilfe eines Göbelspiegels gebündelt und monochromatisiert. Der Strahl wird durch einen Autoabsorber und eine Blende geleitet und trifft auf die auszumessende Probe. Hiernach wird Streustrahlung durch einen Spalt ausgeblendet und der Strahl trifft nach Durchgang durch eine weitere Blende einen NaI(Tl) Detektor. Die Winkel der Röntgenröhre und des Detektors zur Probe sowie die Position der Probe können eingestellt werden.

Vor Beginn der Messung wird die Probe zwischen Röntgenröhre und Detektor positioniert. Anschließend muss das Gerät justiert werden. Zunächst wird ein Detektorscan durchgeführt. Hierzu wird die Probe aus dem Röntgenstrahl gefahren und es wird die einfallende Röntgenstrahlung in Abhängigkeit des Winkels zwischen Detektor und Röntgenröhre gemessen. Der Detektor wird anschließend auf das Maximum dieser Messung positioniert, da hier der Röntgenstrahl direkt auf den Detektor trifft.

Als Nächstes wird ein z-Scan durchgeführt. Hierzu wird die Probe in z-Richtung durch den Röntgenstrahl gefahren und es wird der Punkt ermittelt, an dem die Hälfte der maximalen Intensität beim Detektor gemessen wird. Die Probe wird zu dieser Höhe bewegt. Es folgt ein Rockingscan, bei dem Röntgenröhre und Detektor um denselben Winkel um die Probe gedreht werden, wie in Abbildung 6 dargestellt. Hierbei bleibt der Winkel  $2\Theta$  des Detektors zur Röntgenröhre bei  $0^\circ$ .





**Abbildung 6:** Schematische Darstellung eines Rockingscans bei  $2\Theta = 0^\circ$ [1]

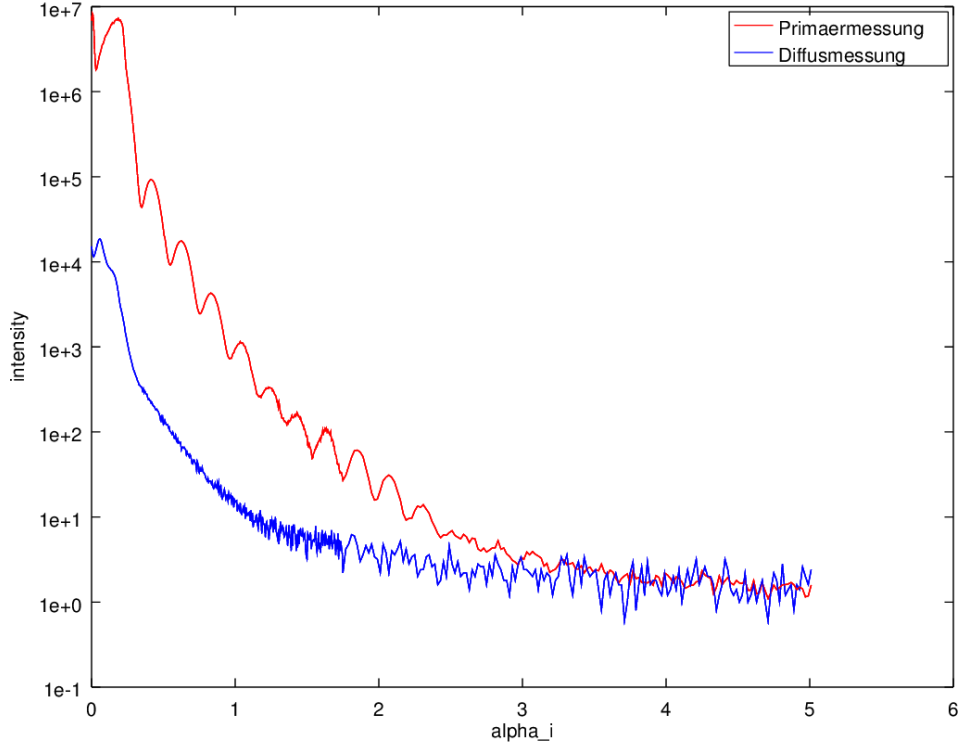
Hierbei ergibt sich für die Intensität am Detektor in Abhängigkeit des Winkels ein Dreiecksgraph. Ist das Dreieck asymmetrisch, befindet sich die Probe nicht in der Mitte zwischen Detektor und Röntgenröhre und wird entsprechend verschoben. Die Spitze des Dreiecks wird als neuer Punkt für das eingestellte  $\Theta$ , in diesem Fall  $\Theta = 0^\circ$ , verwendet. Es wird ein weiterer z-Scan, und ein Rockingscan bei  $2\Theta = 0,3^\circ$  durchgeführt. Anschließend wird ein z-Scan bei  $2\Theta = 0,3^\circ$  durchgeführt, wobei diesmal das Maximum der Intensität gesucht und als neue z-Position der Probe verwendet wird.

Zuletzt werden ein Rockingscan bei  $2\Theta = 1^\circ$ , ein weiterer Detektorscan und weitere Rockingscans mit verschiedenen  $\Theta$  durchgeführt, um die Justierung der Probe zu überprüfen.

Nach der Justierung wird die Primärmessung durchgeführt. Hierbei wird die reflektierte Röntgenstrahlung in Abhängigkeit des Winkels von Detektor und Röntgenröhre zur Probe in  $0,005^\circ$ -Schritten mit einer Messzeit von 5 s/Schritt für Winkel zwischen  $0^\circ$  und  $1,75^\circ$  gemessen. Aufgrund der niedrigen Intensitäten wird für den Winkelbereich von  $1,75^\circ$  bis  $5^\circ$  mit einer Messzeit von 40 s/Schritt und einer Schrittweite von  $0,02^\circ$  gemessen. Anschließend wird eine Diffusmessung durchgeführt, bei der mit denselben Schrittweiten und einer Messzeit von 5 s/Schritt die gleiche Messung durchgeführt wird, wobei der Detektor um  $0,15^\circ$  aus dem Einfallswinkel verschoben wird, um den Anteil der gestreuten Intensität an der Reflektivität bestimmt.

## 4 Messwerte

Die aufgenommenen Messwerte für die Primärmessung und die Diffusmessung sind in Abbildung 7 dargestellt.



**Abbildung 7:** Messwerte der Primär- und Diffusmessung

## 5 Auswertung

Zunächst werden die Intensitäten der Diffusmessung von den Intensitäten der Primär- messung abgezogen. Anschließend werden die niedrigen Intensitäten, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, korrigiert. Der Geometriewinkel ergibt sich aus der Ausdehnung der Probe  $D = 2 \text{ cm}$  und der Breite des Röntgenstrahls  $d_0 = 0,1 \text{ mm}$  zu

$$\alpha_G = 0,286^\circ \quad . \quad (19)$$

Die so korrigierten Ströme werden zum Fit der Theoriekurve verwendet und sind in Ab- bildung 8 neben dieser dargestellt. Aufgrund der sehr niedrigen Intensitäten für große Winkel sind nach Abzug der Diffusmessung einige Intensitäten negativ. Aufgrund der lo- garithmischen Skala werden daher nur die Messwerte bis zum ersten negativen Messwert dargestellt. Damit die Messkurve mit der theoretischen verglichen werden kann, wer- den die Messwerte normiert auf den höchsten Messwert nach dem anfänglichen Abfallen der Intensität für sehr kleine Winkel. Zunächst wird mit Formel (12) die Schichtdicke bestimmt. Hierzu werden die Minima der korrigierten Intensitäten gemessen und die Dif-

ferenz der entsprechenden Wellenvektorüberträgen  $\Delta q_z$  berechnet. Gemittelt über die Abstände der ersten zehn Minima ergibt sich eine Schichtdicke von

$$d = 21,5 \pm 1,5 \text{ nm} \quad . \quad (20)$$

Da die Messungenauigkeit hier mit 7 % recht groß ist, kann die Schichtdicke beim Fit der Kurve genauer bestimmt werden.

Hierzu wird der folgende Octave-Code aus [1] verwendet, welcher den Parratt-Algorithmus aus den Abschnitten 2.1 und 2.2 zur Berechnung der Theoriekurve verwendet.

```

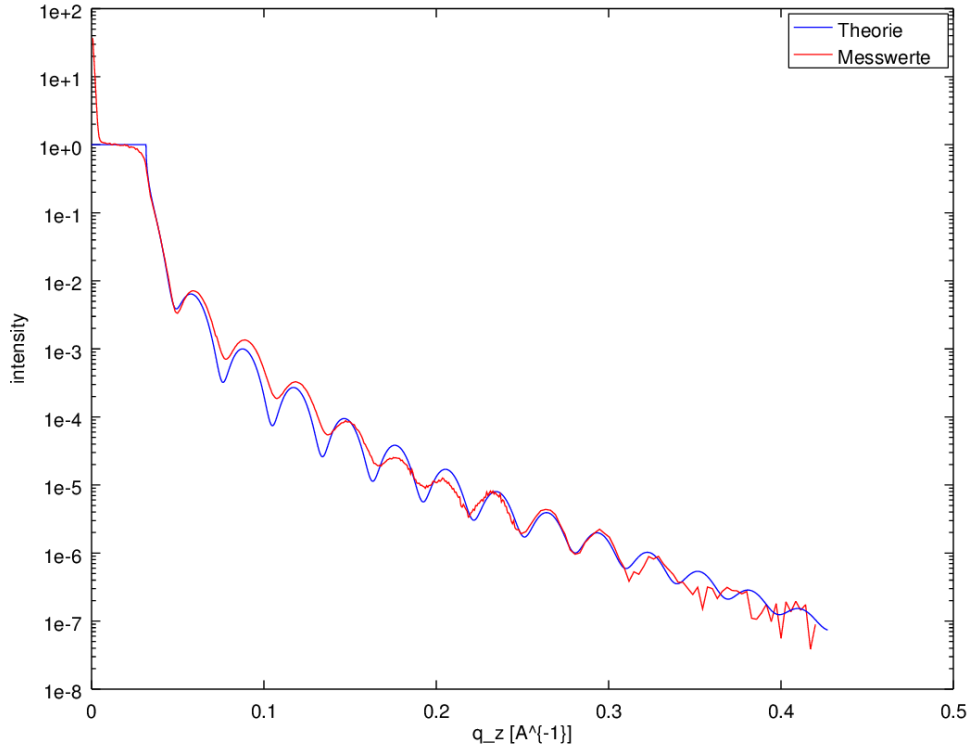
1 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
2 clear all
3 %Brechungsindex
4 n1=1; %Luft
5 n2=1-25e-7; %Schicht
6 n3=1-75e-7; %Substrat
7 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
8 %Rauigkeit
9 sigma1=55e-11; %Schicht
10 sigma2=35e-11; %Substrat
11 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
12 %Schichtdicke
13 z2=2135e-11;
14 %Einfallswinkel
15 ai=(0:0.0005:3)*pi/180;
16 %Wellenvektoruebertrag
17 qz=4*pi/1.54*sin(ai);
18 %Betrag des Wellenvektors
19 k=2*pi/1.54*1e10;
20 %z-Komponenten
21 kz1=k*sqrt(n1^2-cos(ai).^2);
22 kz2=k*sqrt(n2^2-cos(ai).^2);
23 kz3=k*sqrt(n3^2-cos(ai).^2);
24 %modifizierte Fresnelkoeffizienten
25 r12=(kz1-kz2)./(kz1+kz2).*exp(-2*kz1.*kz2*sigma1^2);
26 r23=(kz2-kz3)./(kz2+kz3).*exp(-2*kz2.*kz3*sigma2^2);
27 x2=exp(-2*i*kz2*z2).*r23;
28 x1=(r12+x2)./(1+r12.*x2);
29 semilogy(qz,abs(x1).^2,'Color','blue');
30 xlabel('q_z [A^{-1}]');
31 %xlabel('\alpha_i');
32 ylabel('intensity');
33 data1 = load('Daten.txt');
34 hold on;
35 semilogy(data1(:,1),data1(:,2),'Color','red');
36 %semilogy(data1(:,1),data1(:,4),'Color','blue');
37
38 legend('Theorie','Messwerte');
39 hold off;
40 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

```

Die Parameter, die die Kurve in Abbildung 8 ergeben, sind in Tabelle 5.1 aufgeführt.

**Tabelle 5.1:** Fitparameter

$n_{\text{Schicht}}$	$1 - 25 \cdot 10^{-7}$
$n_{\text{Substrat}}$	$1 - 75 \cdot 10^{-7}$
$\sigma_{\text{Schicht}}$	0,55 nm
$\sigma_{\text{Substrat}}$	0,35 nm
$d$	21,35 nm

**Abbildung 8:** Messwerte und gefittete Theoriekurve

Aus diesen Parametern berechnen sich die Elektronendichten nach Formel (10) zu

$$\rho_{\text{Schicht}} = 2,35 \cdot 10^{-29} \frac{1}{m^3} = 6,62 \cdot 10^{-14} \frac{1}{r_e} \frac{1}{m^2} \quad (21)$$

$$\rho_{\text{Substrat}} = 7,05 \cdot 10^{-29} \frac{1}{m^3} = 1,99 \cdot 10^{-15} \frac{1}{r_e} \frac{1}{m^2} \quad (22)$$

## 6 Diskussion

Das Messergebnis für die Streulängendichte des Substrats  $r_e \rho_{\text{Substrat}}$  und der Dispersion  $\delta$  entsprechen im Wesentlichen den Literaturwerten von  $2,00 \cdot 10^{-15} \frac{1}{m^2}$  und  $7,6 \cdot 10^{-6}$  [1].

Die Ergebnisse für das Substrat weichen um etwa 30 % von den Literaturwerten zu Polystrol ab. Dies kann zum einen daran liegen, dass die untersuchte Schicht aus etwas Anderem besteht, zum anderen kann die Theoriekurve, wie in Abbildung 8 zu erkennen, nicht genau mit den Messdaten überein gebracht werden. Hierdurch lassen sich Abweichungen in den Ergebnissen erklären.

Zu der Schichtdicke und Rauigkeit lassen sich keine qualitativen Aussagen machen, jedoch befinden sich die Werte in realistischen Größenordnungen.

## Literatur

- [1] Anleitung der TU-Dortmund für das physikalische Fortgeschrittenenpraktikum zum Versuch Röntgenreflektometrie:  
[http://www.e1.physik.tu-dortmund.de/cms/Medienpool/Downloads/Roentgenreflektometrie\\_Versuch.pdf](http://www.e1.physik.tu-dortmund.de/cms/Medienpool/Downloads/Roentgenreflektometrie_Versuch.pdf)