

V44

Röntgenreflektometrie

Ben Werner Grobecker
ben.grobecker@tu-dortmund.de

Sebastian Rüßmann
sebastian.ruessmann@tu-dortmund.de

Durchführung: 30. Mai 2022

Abgabe: 16. Juni 2022

TU Dortmund – Fakultät Physik

Inhaltsverzeichnis

1	Theorie	3
1.1	Röntgenröhre	3
1.2	Brechungsindex	4
1.3	Fresnelsche Formeln	4
1.4	Kiessig-Oszillationen	5
1.5	Parratt-Algorithmus	6
2	Durchführung	7
2.1	Justierung	7
2.2	Messung	8
3	Auswertung	8
3.1	Detektorscan	8
3.2	Z-Scan	8
3.3	Rockingscan	9
3.4	Reflektivitätsscan	9
3.5	Parratt-Algorithmus	10
4	Diskussion	12
5	Anhang	14
	Literatur	15

1 Theorie

1.1 Röntgenröhre

Der schematische Aufbau einer Röntgenröhre ist in Abbildung 1 veranschaulicht. Die emittierten Elektronen einer Heizkathode werden in einer evakuierten Röhre durch Anlegen einer Spannung U in Richtung der Anode beschleunigt. Der Potentialunterschied trägt hierbei samt der Elementarladung e zur kinetischen Energie der auftreffenden Elektronen bei ($E_{kin} = e \cdot U$). Neben dem Großteil der Menge, die in Wärme umgewandelt wird,

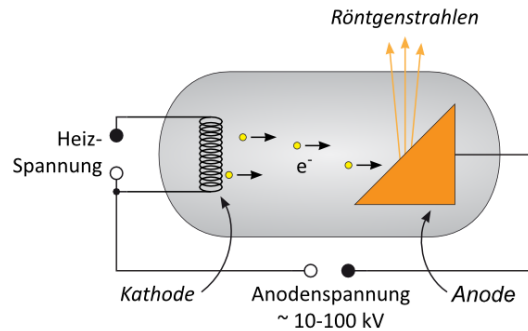


Abbildung 1: Aufbau einer Röntgenröhre [5]

tritt durch entgegengerichteter Beschleunigung der geladenen Teilchen kontinuierliche Bremsstrahlung auf. Ein weiterer nicht-kontinuierlicher Anteil des Spektrums einer Röntgenröhre (s. Abb. 2) ist die charakteristische Strahlung, die starke Abhängigkeit des Anodenmaterials aufweist. Die durch einfallende Elektronen ionisierten Atome schlagen dabei ein weiteres Elektron aus der Hülle aus. Das entstandene Loch schließt sich anschließend durch ein Elektron einer höheren Schale. Die Differenz der unterschiedlichen Energieniveaus wird dabei in Form eines Photons freigesetzt.

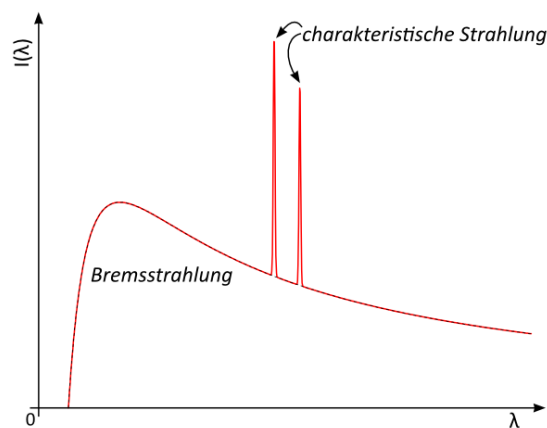


Abbildung 2: Spektrum einer Röntgenröhre [5]

1.2 Brechungsindex

Grundlagen

Aus dem Reflexionsgesetz, das besagt dass der Wellenvektor einer reflektierten Welle zum Lot der Grenzfläche den gleichen Winkel wie die einfallende Welle hat, folgt durch die Stetigkeit an einer Grenzfläche

$$k \sin \alpha_1 = k' \sin \alpha_2 \quad (1)$$

für eine gebrochene Welle. Durch Umstellen lässt sich das Snellius'sche Brechungsgesetz,

$$\frac{\sin \alpha_1}{\sin \alpha_2} = \frac{c_1}{c_2} = \frac{\sqrt{\epsilon_2 \mu_2}}{\sqrt{\epsilon_1 \mu_1}} = \frac{n_2}{n_1}, \quad (2)$$

aufstellen. Hierbei wird der Brechungsindex definiert durch

$$n := \sqrt{\epsilon \mu} = \frac{c_{\text{Vakuum}}}{c_{\text{Materie}}}. \quad (3)$$

Neben des realen Brechungsindex N , der proportional zur Phasengeschwindigkeit ist, wird ein Teil der elektromagnetischen Wellen durch die Materie, die sie durchwandert, absorbiert. Demnachzufolge definiert man einen komplexen Brechungsindex

$$N = n - i\kappa. \quad (4)$$

Hierbei stellt κ den Absorptionskoeffizienten dar.

Röntgenstrahlung

Im Röntgenspektrum von elektromagnetischen Wellen ist der Realteil des Brechungsindex wenig kleiner als 1 ($n = 1 - \delta$), weil die Oszillationsfrequenz der äußeren Elektronen der bestrahlten Atome, die durch das elektrische Feld der Röntgenstrahlung zu Schwingungen oberhalb ihrer Resonanzfrequenz gezwungen werden, geringer als die Schwingungsfrequenz des Röntgenbereiches ist. Somit werden Röntgenstrahlen bei senkrechtem Auftreffen auf eine Grenzfläche im Gegensatz zu gewöhnlichem Licht vom Lot weg gebrochen.

1.3 Fresnelsche Formeln

Für eine quantitative Aussage über das Verhalten der Amplituden bei Reflexion und Brechung ist ein Fallunterschied der Polarisierung der einfallenden Welle zur Einfallsebene zu berücksichtigen. Jegliche andere Fälle kann man als Linearkombination dieser sehen.[2]

Senkrechte Polarisation

Zwischen den Amplituden der reflektierten bzw. der gebrochenen und der einfallenden Welle besteht der Zusammenhang

$$\left(\frac{E_{0,R}}{E_0} \right)_\perp = \frac{\frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_1 - \frac{N_2}{\mu_2} \cos \alpha_2}{\frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_1 + \frac{N_2}{\mu_2} \cos \alpha_2} \quad (5)$$

und

$$\left(\frac{E_{0,T}}{E_0} \right)_{\perp} = \frac{2 \frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_1}{\frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_1 + \frac{N_2}{\mu_2} \cos \alpha_2}. \quad (6)$$

Parallele Polarisation

Zwischen den Amplituden der reflektierten bzw. der gebrochenen und der einfallenden Welle besteht der Zusammenhang

$$\left(\frac{E_{0,R}}{E_0} \right)_{\parallel} = - \frac{\frac{N_2}{\mu_2} \cos \alpha_1 - \frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_2}{\frac{N_2}{\mu_2} \cos \alpha_1 + \frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_2} \quad (7)$$

und

$$\left(\frac{E_{0,T}}{E_0} \right)_{\parallel} = - \frac{2 \frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_1}{\frac{N_2}{\mu_2} \cos \alpha_1 + \frac{N_1}{\mu_1} \cos \alpha_2}. \quad (8)$$

Röntgenstrahlung

Mit $n_1 = 1$ und $n_2 < 1$ bei der Grenzfläche Luft-Materie ist $n_2 < n_1$ und somit sind ab einem bestimmten Winkel die Amplitudenverhältnisse komplex.[7] Dadurch unterziehen sich Röntgenstrahlen, die unter einem kritischen Winkel zum Lot auf der Grenzfläche treffen, bei Materieeinfall einer externen Totalreflexion.[1] Dies ist gegeben, wenn $\alpha_2 = 90^\circ$ erreicht und somit $\sin \alpha_2 = 1$. Der kritische Winkel kann mit Gleichung 2 bestimmt werden durch

$$\alpha_{krit} = \arcsin n_2. \quad (9)$$

1.4 Kiessig-Oszillationen

Nach Überschreiten des Grenzwinkels α_{krit} der Totalreflexion sind Maxima und Minima der reflektierten Intensität zu beobachten. Diese Erscheinung ist ein Konstrukt der Interferenz der reflektierten Röntgenstrahlen an Oberfläche und Unterseite der Grenzflächenschicht (vgl. Abb. 3). Durch die Lage der Minima und Maxima lassen sich mit den Ordnungszahlen m und den Winkeln zweier Extremstellen sowohl die Dicke der Schichten als auch der Brechungsindex berechnen: [6]

$$d = \frac{\lambda}{2} \sqrt{\frac{m_2^2 - m_1^2}{\alpha_2^2 - \alpha_1^2}} \quad (10)$$

$$\delta = \frac{1}{2} \frac{\alpha_1^2 m_2^2 - \alpha_2^2 m_1^2}{m_2^2 - m_1^2} \quad (11)$$

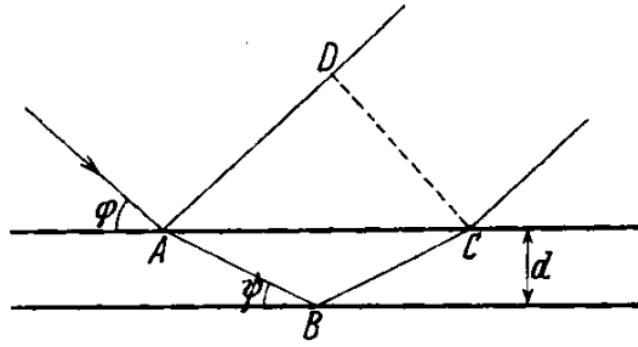


Abbildung 3: Darstellung des Strahlenganges bei den Röntgeninterferenzen an dünnen Schichten [6]

1.5 Parratt-Algorithmus

Der Parratt-Algorithmus beschäftigt sich mit der Form der Kurve von reflektierter Röntgenstrahlung gegenüber ihrem Glanzwinkel um die Materialbeschaffenheit der Spiegeloberfläche zu bestimmen. Das Hauptaugenmerk ist dabei auf den Vergleich einer aufgenommenen Intensität mit der berechneten idealen Kurve oder vor und nach Anpassung des Materials. Bei einem mehrschichtigen System (vgl. Abb. 4) wird durch den Parratt-Algorithmus rekursiv die Reflektivität berechnet. Dabei wird die Annahme getroffen, dass die Schicht N+1 eine unendliche Dicke besitzt und somit Transmission verhindert. Die Rekursionsformel des Verhältnisses von reflektierter und transmittierter

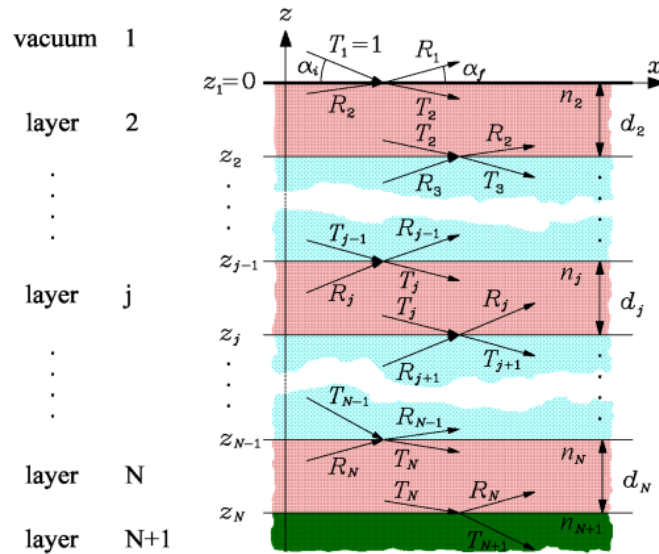


Abbildung 4: Mehrschichtsystem mit N+1 Schichten verschiedener Brechungsindizes und N Grenzflächen [8]

Welle an der i-ten Grenzfläche lautet

$$X_j = \frac{R_j}{T_j} = \exp(-2ik_{z,j}z_j) \cdot \frac{r_{j,j+1} + X_{j+1} \exp(2ik_{z,j+1}z_j)}{1 + r_{j,j+1}X_{j+1} \exp(2ik_{z,j+1}z_j)} \quad (12)$$

mit der Fresnelreflektivität $r_{i,i+1} = \frac{k_{z,i} - k_{z,i+1}}{k_{z,i} + k_{z,i+1}}$, die aus der Z-Komponente des Wellenvektors $k_{z,i} = k\sqrt{n_i^2 - \cos^2 \alpha_i}$ berechnet wird.

Diese muss jedoch bei einer realen Oberfläche mit mikroskopischen Unebenheiten modifiziert werden. Folglich wird in der Rekursionsformel durch $\tilde{r}_{i,i+1} = r_{i,i+1} \exp(-2k_{z,i}k_{z,i+1}\sigma_i^2)$ ersetzt um die geringere reflektierte Intensität der rauen Oberflächen zu berücksichtigen.

2 Durchführung

Der Versuch wurde an einem D8-Labordiffraktometer durchgeführt. Eine Röntgenröhre, die mit 40 kV und 35 mA in Betrieb ist, bestrahlt eine Probe. Ein Detektor erfasst dabei die reflektierte Strahlung. Die Probe, ein mit Polymerfilm beschichteter Siliziumwafer, muss durch eine Vielzahl von Scans zunächst justiert werden

2.1 Justierung

Detektorscan

Unabhängig von der Probe werden Röhre und Detektor auf eine Ebene gebracht. Nun fährt der Detektor einen kleinen Winkelbereich um den Strahl der Röhre ab. Das Maximum der aufgenommenen Intensität, die einer Gaußglocke ähnelt, ist fortan der neue Nullpunkt der Detektorausrichtung.

Z-Scan

Im ausgerichteten Strahl wird die Probe positioniert und anschließend leicht in der Höhe verschoben. Je mehr die Probe vom Strahl getroffen wird, desto weniger Intensität wird gemessen. Bei etwa der Hälfte dieses Abfalls soll die neue Z-Position liegen, um die Hälfte der Probe mit Röntgenstrahlen zu treffen.

Rockingscan

Dennoch besteht die Möglichkeit, dass die Probe nicht parallel zur Ausbreitungsrichtung des Röntgenstrahls steht. Demnach wird die Probe ungleichmäßig getroffen. Um auch diese Hürde zu bewältigen drehen sich beim Rockingscan Röhre und Detektor mit konstanter Winkelsumme um die Probe um diese im Drehpunkt des Diffraktometers zu zentrieren.

Feinjustierung

Nach den ersten drei Scans folgt ein weiterer Z-Scan um nach der Drehung wieder die Hälfte abzudecken. Anschließend wird noch einmal der Rockingscan mit einem abschließendem Z-Scan wiederholt um endgültig mit der Messung anzufangen.

2.2 Messung

Gemessen werden ein Reflektivitätsscan und ein diffuser Scan. Hierzu wird das eingerichtete Programm, XRD Commander, gemäß der Anleitung[3] genutzt.

Beim Reflektivitätsscan sind der Röhren- und Detektorwinkel gleich groß. Es wird in einem Bereich von 0° bis $2,5^\circ$ mit einer Schrittweite von $0,005^\circ$ und einer Messzeit von 5 s gemessen. Bei dem diffusen Scan ist der Detektorwinkel um $0,1^\circ$ gegenüber dem Röhrenwinkel verschoben. Jedoch bleibt der Vorgang der gleiche. Durch diesen Scan, kann später die wahre Reflektivität berechnet werden.

3 Auswertung

3.1 Detektorscan

Um aus dem Detektorscan die Halbwertsbreite und die maximale Intensität bestimmen zu können wird eine Gaußfunktion

$$I(\alpha) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(\alpha - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (13)$$

an die Messwerte genährt. Die gemessene Werte mit der dazugehörigen Gaußdistribution sind in Abbildung 5 dargestellt. Daraus ergibt sich mittels *SciPy* [4] eine Amplitude von

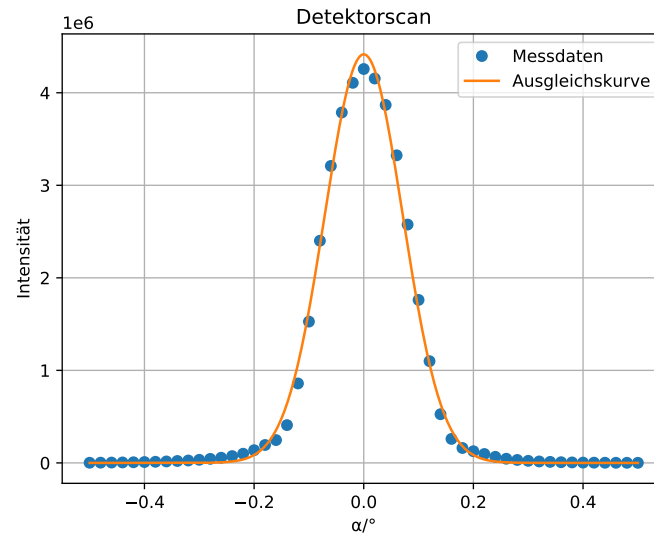


Abbildung 5: Detektorscan

$I_{max} = (11,1 \pm 0,3) \cdot 10^5$ und eine Halbwertsbreite von $(0,246 \pm 0,003)^\circ$.

3.2 Z-Scan

Der Z-Scan ist in Abbildung 6 dargestellt. Zu erkennen ist die abfallende Intensität,

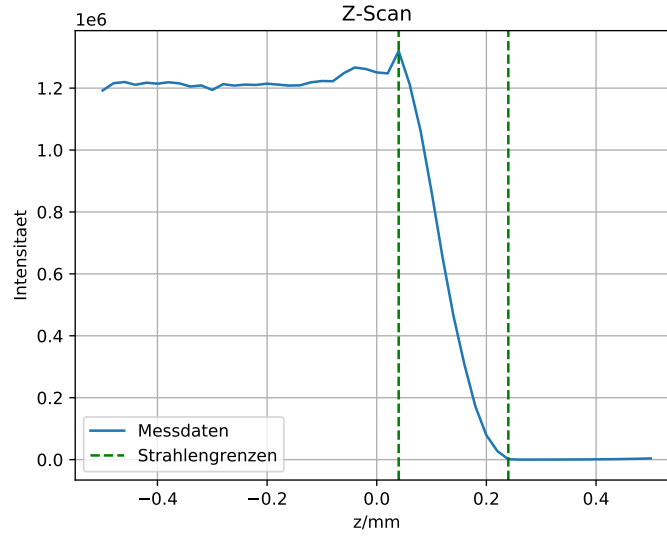


Abbildung 6: Z-Scan

wenn die Probe in den Strahl gefahren wird. Dies dient neben dem Justieren der Z-Achse ebenfalls zur Bestimmung der Strahlenbreite d_0 . Dies lässt sich als die Differenz zwischen Intensitätsmaximum und Intensitätsminimum ablesen. Wie in der Abbildung zu erkennen ergibt diese sich zu $d_0 \approx 1,9$ mm.

3.3 Rockingscan

Der durchgeführte Rockingscan ist in Abbildung 7 dargestellt.

Daraus lässt sich wie dargestellt der Geometriewinkel $\alpha_g = 0.4$ ablesen.

3.4 Reflektivitätsscan

Die Hauptuntersuchung der Probe findet per Reflektivitätsscan statt. Um Effekte durch Rückstreuung zu verhindern wird der diffuse Scan vom Reflektivitätsscan subtrahiert. Dies ist in Abbildung 8 dargestellt. Dabei ist zu beachten das neben dem Winkel die Reflektivität

$$R = \frac{I}{5 \cdot I_{max}}$$

aufgetragen wird. Zusätzlich ist auch die Korrektur durch den Geometriefaktor aufgetragen, der berücksichtigt, dass erst ab einem gewissen Winkel der komplette Strahl die Oberfläche trifft. Ebenso ist die Reflektivität einer glatten Silizium Oberfläche dargestellt, die mittels

$$R = \left(\frac{\alpha_c}{2\alpha_i} \right)^4 \quad (14)$$

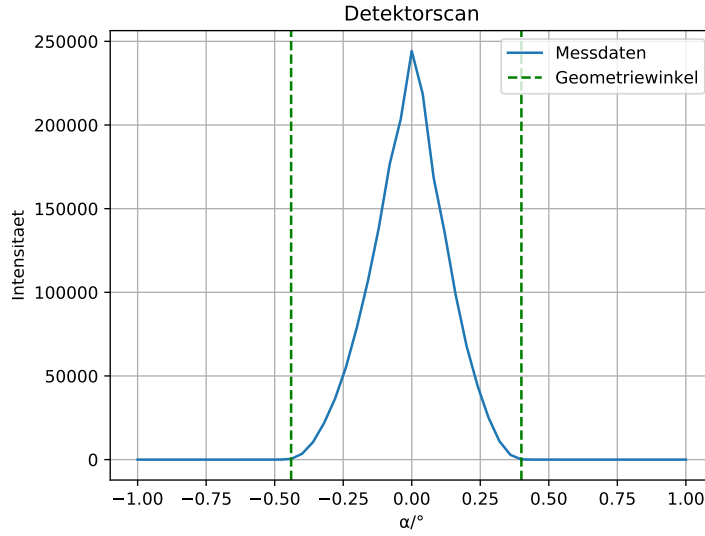


Abbildung 7: Rockingscan

berechnet wird. Der Literaturwert für den kritischen Winkel α_c liegt für Silizium bei $\alpha_{Si} = 0,223^\circ$ [9]

Die Schichtdicke lässt sich mithilfe der Kiesling-Oszillation aus der gemessenen Reflektivität bestimmen. Dazu werden die auftretenden Minima untersucht und der gemittelte Abstand zwischen ihnen bestimmt. Relevant sind hierbei nur die deutlichen ersten Minima. Der gemittelte Abstand dieser ergibt sich zu

$$\Delta\alpha = (4,5 \pm 0,3) \cdot 10^{-2}^\circ. \quad (15)$$

Mittels der Gleichung

$$d = \frac{\lambda}{2\Delta\alpha_i} \quad (16)$$

ergibt sich daraus eine Schichtdicke von

$$(1.71 \pm 0,2) \cdot 10^{-8}m. \quad (17)$$

3.5 Parratt-Algorithmus

Mit Hilfe des Parratt-Algorithmus lässt sich das Dispersionsprofil bestimmen, wie auch die kritischen Winkel von Silizium und Polystrol. Verwendet werden dazu die modifizierten Fresnelkoeffizienten. Das Modell funktioniert mit zwei Schichten, eine aus Polystrol und eine aus Silizium. Die Umgebungsluft wird als eine Schicht mit der Schichtdicke und der Dispersions von $d = \delta = 0$ angenommen. Die entsprechende Kurve ist in Abbildung 9 dargestellt. Mittels der Gleichung (9) lässt sich der kritische Winkel der beiden Schichten

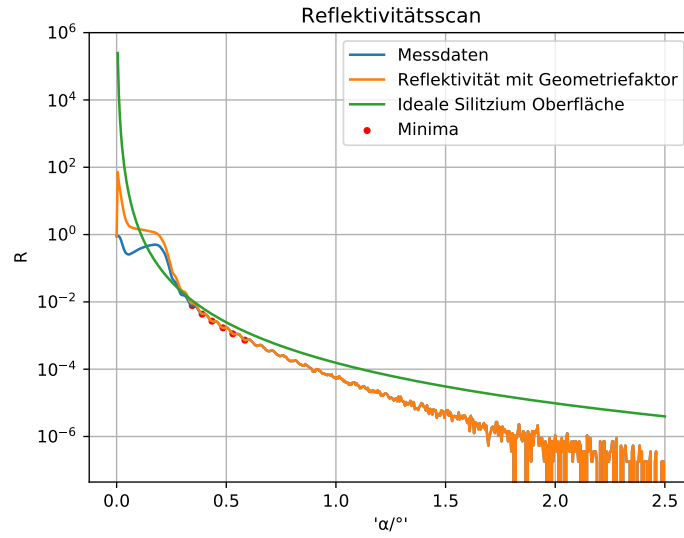


Abbildung 8: Reflektivitätsscan

jeweils bestimmen als:

$$\alpha_{Pol} = 0,068^\circ \quad (18)$$

$$\alpha_{Si} = 0,214^\circ \quad (19)$$

Die Parameter der Schichtdicke d_2 , der Dispersion δ und der Rauigkeit σ müssen per Hand so bestimmt werden, dass die Parrattkurve eine möglichst große Übereinstimmung zeigt. Demnachzufolge sind:

$$d_2 = 1.7 \cdot 10^{-6}$$

$$\delta_{Poly} = 7 \cdot 10^{-7}$$

$$\delta_{Si} = 7 \cdot 10^{-6}$$

$$\sigma_{Poly} = 5.5 \cdot 10^{-10}$$

$$\sigma_{Poly} = 6.45 \cdot 10^{-10}$$

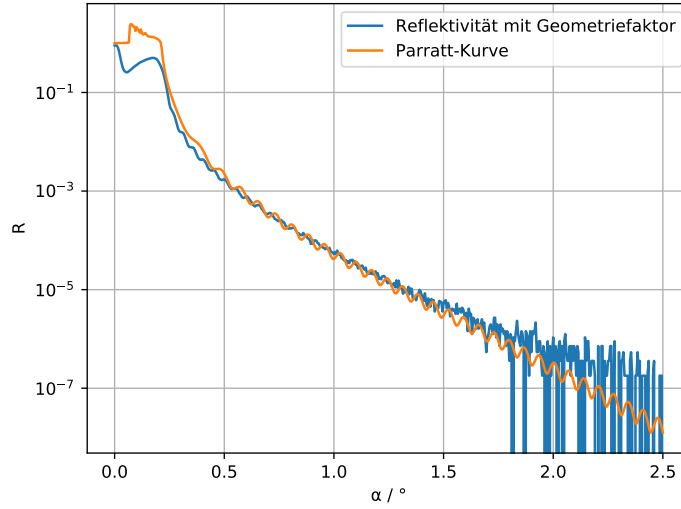


Abbildung 9: Die Parrat Kurve im Vergleich zur gemessenen Reflektivität

4 Diskussion

Der bei der Justierung des Strahls gemessene Geometriewinkel $\alpha = 0.4^\circ$ weicht leicht vom Literaturwert $\alpha_t = 0,687^\circ$ ab. Somit war die Justierung erfolgreich, wenn auch nicht optimal. Die über die Kiessig-Oszillation berechnete Schichtdicke weicht allerdings zwischen dem gemessenen und den durch Parrat berechneten Wert stark ab.

$$d_{Kiessig} = 1,71 \cdot 10^{-8} m$$

$$d_{Parrat} = 1,7 \cdot 10^{-6} m$$

Dies folgt wohl der Verbesserungsmöglichkeit der Justierung. Ebenso sind die Parameter des Parrat-Algorithmus' durch Hand eingestellt und somit relativ anfällig für große Fehler. Dies lässt sich auch an den Dispersionswerten erkennen.

$$\delta_{Poly} = 7 \cdot 10^{-7}$$

$$\delta_{Si} = 7 \cdot 10^{-6}$$

Die Literaturwerte [9] liegen bei:

$$\delta_{Poly} = 3.5 \cdot 10^{-6}$$

$$\delta_{Si} = 7.6 \cdot 10^{-6}$$

Während die Abweichung von Silizium bei 7 % liegt beträgt die von Polystrol fast 400 %, was auf einen systematischen Fehler hinweist. Diese hohe Unsicherheit bei der Dispersion

von Polystrol erkennt man auch im Vergleich der kritischen Winkel.

$$\begin{aligned}\alpha_{Poly} &= 0,068^\circ \\ \alpha_{Si} &= 0,214^\circ\end{aligned}$$

Die Literaturwerte [9] liegen bei:

$$\begin{aligned}\alpha_{Poly} &= 0,153^\circ \\ \alpha_{Si} &= 0,223^\circ\end{aligned}$$

Insgesamt liegt eine große Fehleranfälligkeit auf das per Handeinstellen der Parratt-Parameter. Die Parrat-Kurve beschreibt die gemessene Reflektivität aber genau genug, so dass dem Ergebniss eine Aussagekraft zugeschrieben werden kann.

5 Anhang

```
import numpy as np
import matplotlib.pyplot as plt

def parratt(a_i, delta_1, delta_2, sigma_1, sigma_2, d_2, b_1, b_2):
    n_2 = 1.0 - delta_1 + b_1
    n_3 = 1.0 - delta_2 + b_2
    a_i = np.deg2rad(a_i)
    k = 2 * np.pi / wl
    kd_1 = k * np.sqrt(n_1 ** 2 - np.cos(a_i) ** 2)
    kd_2 = k * np.sqrt(n_2 ** 2 - np.cos(a_i) ** 2)
    kd_3 = k * np.sqrt(n_3 ** 2 - np.cos(a_i) ** 2)

    r_12 = (kd_1 - kd_2) / (kd_1 + kd_2) * np.exp(-2 * kd_1 * kd_2 *
                                                    sigma_1 ** 2)
    r_23 = (kd_2 - kd_3) / (kd_2 + kd_3) * np.exp(-2 * kd_2 * kd_3 *
                                                    sigma_2 ** 2)

    x_2 = np.exp(-2j * kd_2 * d_2) * r_23
    x_1 = (r_12 + x_2) / (1 + r_12 * x_2)

    return np.abs(x_1) ** 2

#Import Messwerte
ref_x, ref_y = np.genfromtxt('Messwerte/omega_tet.txt', unpack=True)
diff_x, diff_y = np.genfromtxt('Messwerte/diffusor.txt', unpack=True)

#Reflektivität
I_0 = 1114508.0792544584
R_ref = ref_y / (5 * I_0)
R_diff = diff_y / (5 * I_0)
R = R_ref - R_diff

#Parratt Parameter
n_1 = 1.0                                #Brechungsindex Luft
d_1 = 0.0                                #Schichtdicke Luft
d_2 = 1.7 * 10 ** (-6)                   #Schichtdicke der Porbe
wl = 1.54e-10                             #Wellenlänge

delta_1 = 7 * 10 ** (-7)
delta_2 = 7 * 10 ** (-6)
sigma_1 = 5.5 * 10 ** (-10)
sigma_2 = 6.45 * 10 ** (-10)
b_1 = (delta_1 / 200) * 1j
b_2 = (delta_2 / 40) * 1j

print(delta_1, delta_2, sigma_1, sigma_2, d_2, b_1, b_2)
par = parratt(ref_x, delta_1, delta_2, sigma_1, sigma_2, d_2, b_1, b_2)

#Kritischer Winkel
```

```

a_Poly = np.rad2deg(np.sqrt(2 * delta_1))
a_Si = np.rad2deg(np.sqrt(2 * delta_2))
print('Kritischer Winkel Polys:', a_Poly)
print('Kritischer Winkel Silicium: ', a_Si)

#Plot
plt.plot(ref_x, R, '-', label = 'Reflektivität mit Geometriefaktor')
plt.plot(ref_x, par, '-', label = 'Parratt-Kurve')
plt.xlabel('\u03B1 / °')
plt.ylabel('R')
plt.yscale('log')
plt.grid()
plt.legend()
plt.savefig('Graphen/Parrat_Algorithmus.pdf')

```

Literatur

- [1] Arndtast. *Röntgenreflexion*. URL: <http://www.x-ray-optics.de/index.php/physik/reflexion> (besucht am 03.06.2022).
- [2] Matthias Bartelmann u. a. *Theoretische Physik*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2015. ISBN: 978-3-642-54617-4.
- [3] TU Dortmund. *V44 Röntgenreflektometrie*. 2022.
- [4] Eric Jones, Travis E. Oliphant, Pearu Peterson u. a. *SciPy: Open source scientific tools for Python*. Version 0.16.0. URL: <http://www.scipy.org/>.
- [5] Sebastian Kiehlmann. *Röntgenröhre*. 2010. URL: <https://lp.uni-goettingen.de/get/text/6639> (besucht am 02.06.2022).
- [6] Heinz Kiessig. „Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten“. In: *Annalen der Physik* 402.7 (1931).
- [7] Wolfgang Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 3: Elektrodynamik*. Springer-Verlag Berlin, 2002. ISBN: 3-540-20509-8.
- [8] Jochim Stettner. „Charakterisierung von rauhen MBE-CoSi₂–/Si-Schichtsystemen mittels Röntgenstreuung“. Diss. Universität Kiel, 1995.
- [9] Metin Tolan. „X-Ray Scattering from Soft-Matter Thin Films“. In: *Springer* (1999).