

V44 - Röntgenreflektometrie

Michael Gutnikov
michael.gutnikov@udo.edu

Lasse Sternemann
lasse.sternemann@udo.edu

Abgegeben am 20.01.2022

Inhaltsverzeichnis

1	Ziel	3
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Funktionsweise einer Röntgenröhre	3
2.2	Reflexion und Brechung von Licht	4
2.3	Kiessig-Oszillationen	4
2.3.1	Parratt-Algorithmus	5
2.3.2	Rauigkeitkorrektur	6
3	Durchführung	8
3.1	Versuchsaufbau	8
3.2	Kalibrierung des Reflektionsaufbaus	9
3.3	Reflektionsmessung	11
3.4	Scan-Parameter	12
4	Auswertung	13
4.1	Vermessung des Röntgenstrahls	13
4.2	Bestimmung des Geometriewinkels	14
4.3	Auswertung des Reflektivitätsscans	16
5	Diskussion	20
6	Parratt-Algorithmus	22

1 Ziel

Ziel dieses Versuches ist es die Schichtdicke, den Brechungsindex und die Rauigkeit eines Polymerfilmes auf einem Silizium-Wafer zu bestimmen und ein allgemeines Verständnis für die Röntgenreflektometrie zu entwickeln.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Funktionsweise einer Röntgenröhre

Den Aufbau einer Elektronenröhre zur Erzeugung von Röntgenstrahlung ist in Abbildung 1 dargestellt. Eine Kathode wird durch eine Heizspannung U_H erhitzt und emittiert daraufhin Elektronen. Diese werden in dem elektroschen Feld einer angelegten Beschleunigungsspannung U_B zur Anode hin beschleunigt. Beim Auftreffen der Elektronen wird elektromagnetische Strahlung im Röntgenbereich ausgesendet. Diese setzt sich prinzipiell aus zwei Komponenten zusammen. Einerseits tritt die sogenannte "charakteristische

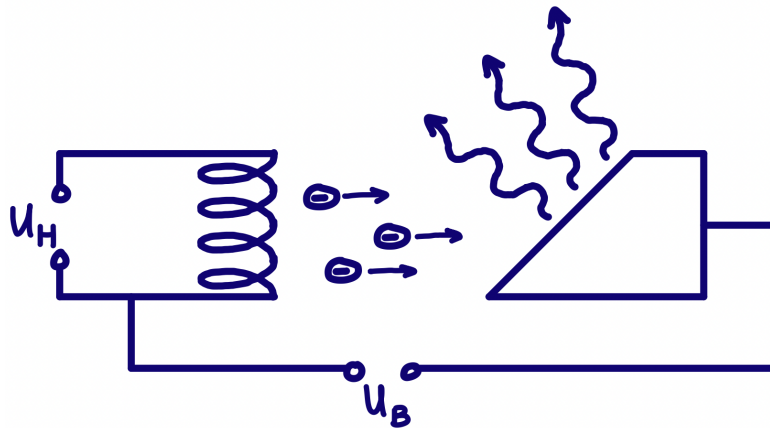


Abbildung 1: Schematischer Aufbau einer Röntgenröhre.

Röntgenstrahlung auf. Diese entsteht, wenn die beschleunigten Elektronen in der Anode Elektronen aus den innersten Schalen heraus schlagen. Die resultierenden leeren Plätze werden daraufhin von Elektronen aus höherenergetischen Schalen gefüllt und die Energiedifferenz der zwei am Übergang teilnehmenden Schalen wird in Form eines (Röntgen-)Photons ausgesendet. So treten diskrete Linien im Röntgenspektrum auf, die den Photonen aus diesen Übergängen entsprechen.

Andererseits taucht im Spektrum der Röntgenstrahlung ebenfalls ein energetisch kontinuierlicher Anteil auf. Dieser ist zurückzuführen auf das Abbremsen, was die Elektronen erfahren, wenn sie in das Anodenmaterial eindringen. Da jedes Elektron unterschiedlich stark abgebremst wird, bevor es das Anodenmaterial ionisiert, entsteht hierbei kein

diskretes, sondern ein kontinuierliches Spektrum, welches "Bremspektrum" genannt wird.

2.2 Reflexion und Brechung von Licht

Kommt eine elektromagnetische Welle aus dem Vakuum mit einem Brechungsindex $n_{\text{Vakuum}} = 0$ und trifft auf ein glattes homogenes Medium unter einem Winkel α_i , so wird ein Teil der Gesamtintensität der Strahlung unter einem Winkel $\alpha_r = \alpha_i$ reflektiert und der andere Teil transmittiert und gebrochen unter dem Winkel α_t in Abhängigkeit der Brechungsindizes n des Mediums, welcher gegeben ist als

$$n = 1 - \delta. \quad (1)$$

Röntgenlicht besitzt in Materie einen Brechungsindex $n < 1$, was jedes Medium für Röntgenstrahlung optisch dünner erscheinen lässt als Vakuum und ermöglicht Totalreflexion, wenn der Einfall möglichst flach unterhalb eines kritischen Winkels α_c auf die Ebene erfolgt.

Die jeweiligen Reflexions- bzw. Transmissionskoeffizienten beim Übergang von Vakuum zu einem Medium des Brechungsindex n sind gegeben durch die Fresnel'schen Gleichungen. Dabei wird unterschieden zwischen einer Polarisierung senkrecht zur Einfallsebene und eine Polarisierung parallel zur Einfallsebene. Die Unterscheidung wird allerdings aufgehoben, da für Röntgenstrahlen die Brechungsindizes n nahezu gleich sind und somit die Gleichungen reduziert werden auf die folgenden zwei:

$$t = \frac{2n_1 \sin \alpha_i}{n_1 \sin \alpha_i + n_2 \sin \alpha_t} \quad (2)$$

$$r = \frac{n_1 \sin \alpha_i - n_2 \sin \alpha_t}{n_1 \sin \alpha_i + n_2 \sin \alpha_t} \quad (3)$$

Im Rahmen der Röntgenreflektometrie wird das Intensitätsverhältnis zwischen Eingehendem und Reflektierten Strahl gemessen. Diese sogenannte Fresnel-Reflektivität ergibt sich durch

$$R_F = |r|^2 = \frac{(\alpha_i - p_+)^2 + p_-^2}{(\alpha_i + p_+)^2 + p_-^2} \quad (4)$$

mit

$$p_{\pm}^2 = \frac{1}{2} \left(\sqrt{(\alpha_i^2 - \alpha_c^2)^2 + 4\beta^2} \pm (\alpha_i^2 - \alpha_c^2) \right). \quad (5)$$

2.3 Kiessig-Oszillationen

Wird eine Schicht eines beliebigen Materials auf einem Substrat betrachtet und die Reflektivität gemessen, so fällt auf, dass diese nicht wie erwartet ab einem bestimmten kritischen Einfallswinkel α_c abnimmt, sondern dabei zusätzlich oszilliert. Das lässt sich darauf zurückführen, dass sich der Röntgenstrahl zunächst am Vakuum-Medium

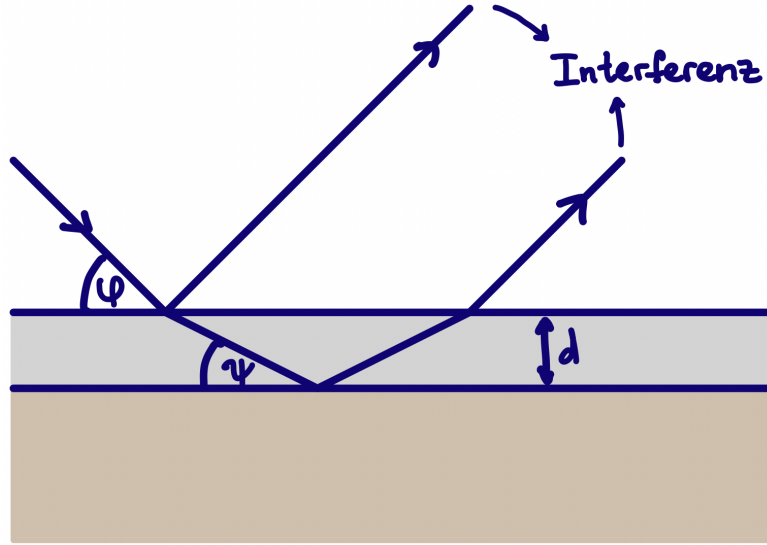


Abbildung 2: Skizze des Entstehungsprozesses der Kiessig-Oszillationen.

Übergang aufteilt in einen reflektierten und einen transmittiert-gebrochenen Anteil. Dieser Vorgang ist schematisch in Abbildung 2 schematisch dargestellt. Letzterer wird nach Durchqueren der Schicht an dem Substrat reflektiert und beim Übergang zurück ins Vakuum erneut gebrochen, sodass er wieder parallel zum direkt reflektierten Strahl ist. Diese beiden Röntgenwellen interferieren daraufhin entweder konstruktiv oder destruktiv untereinander in Abhängigkeit der Phasenverschiebung, welche sich zwischen den Strahlen ergibt. Beim Erhöhen des Einfallswinkels entstehen so sogenannte "Kiessig-Oszillation". In Abbildung 3 sind sowohl die theoretische Fresnel-Reflektivität als auch die Kiessig-Oszillationen beispielhaft für eine Polystyrolschicht auf einem Silizium-Substrat zu sehen. Da die Phasenverschiebung von der Schichtdicke d , als auch dem Brechungsindex n der Schicht abhängt, ist es möglich diese zu bestimmen

$$\delta = \frac{1}{2} \frac{\alpha_{i1}^2 m_2^2 - \alpha_{i2}^2 m_1^2}{m_2^2 - m_1^2} \quad (6)$$

$$d = \frac{\lambda}{2\Delta\alpha_i}, \quad (7)$$

wenn die Ordnungszahl m und der Einfallswinkel α_i zweier Minima bekannt ist.

2.3.1 Parratt-Algorithmus

Im Falle eines Mehrschichtsystems (siehe Abbildung 4) liegt zwischen je zwei benachbarten Schichten eine Reflexion-Transmission Beziehung vor wie in 2.3 beschrieben. Die entstehenden Kiessig-Oszillationen überlagern in diesem Fall und es wird sehr schwer Aussagen über die einzelnen Schichten zu treffen. Zur Beschreibung eines solchen Systems

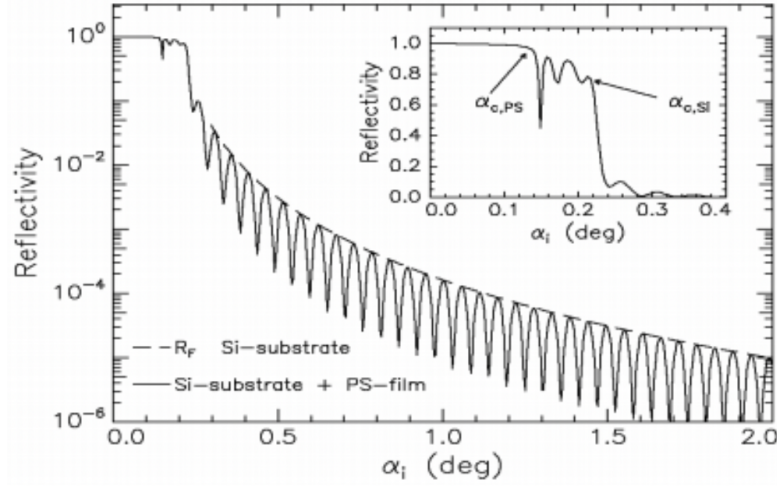


Abbildung 3: Fresnel-Reflektivität in Abhängigkeit vom Einfallswinkel einer Polystyrolschicht auf einem Siliziumwafer. Entnommen aus [1].

wurde der sogenannte "Parratt-Algorithmus eingeführt". Dazu wird an jeder Grenzschicht die Wechselwirkung zwischen Röntgenstrahlung und Medium mittels den Fresnel'schen Gleichungen beschrieben und ausgehend von der substrat-nächsten Schicht das Amplitudenverhältnis zwischen reflektierter und transmittierter Welle rekursiv berechnet. Dabei wird als Randbedingung angenommen, dass die aus dem Vakuum kommende Welle noch keine Grenzfläche passiert hat ($T_1 = 1$) und die Strahlung am Substrat vollständig reflektiert wird ($R_{N+1} = 1$). Es ergibt sich

$$X_j = \frac{R_N}{T_N} = \exp(-2ik_{z,j}z_j) \cdot \frac{r_{j,j+1} + X_j \exp(-2ik_{z,j+1}z_j)}{1 + r_{j,j+1}X_j \exp(-2ik_{z,j+1}z_j)}, \quad (8)$$

wobei

$$k_{z,j} = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \sqrt{n_j^2 - \cos^2 \alpha_i} \quad (9)$$

die z -te Komponente des j -ten Wellenvektors ist. Der Exponentialterm wird Phasenfaktor genannt und ist von der Schichttiefe z_j abhängig und die im Bruch der Formel vorkommenden Fresnel-Koeffizienten r von der Disperion δ und damit vom Brechungsindex n . Aus dem Amplitudenverhältnis kann letztendlich die Fresnel-Reflektivität

$$R_F = |X_1|^2 = \frac{|R_1|^2}{|T_1|^2} = |R_1|^2 \quad (10)$$

berechnet werden.

2.3.2 Rauigkeitskorrektur

Da komplett glatte Oberflächen in der Natur nicht vorkommen, wird eine Korrektur eingeführt, um die Rauigkeit dieser mit einzubeziehen. Ein Maß für die Rauigkeit der

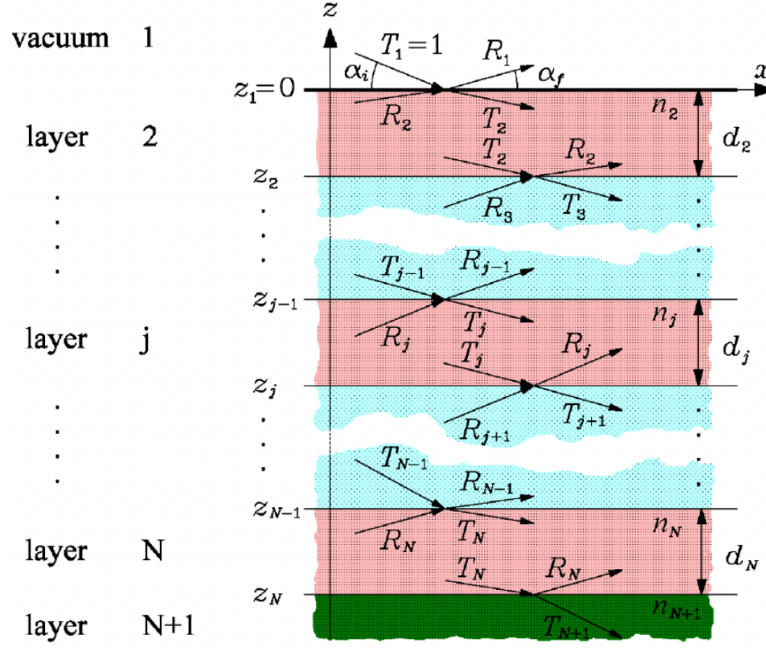


Abbildung 4: Mehrschichtsystem aus N Grenzflächen mit Schichten verschiedener Brechungsindizes n und Dicken d auf einem Substrat. Für jede Schicht sind die reflektierten und transmittierten Amplituden R_j und T_j eingetragen. Entnommen aus [2].

j -ten Grenzfläche ist gegeben durch

$$\sigma_j^2 = \int (z - z_j) \cdot P_j(z) dz, \quad (11)$$

wobei die $z(x, y)$ -Koordinaten durch eine Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $P_j(z)$ gewichtet werden. Damit werden die Fresnel-Koeffizienten unter der Bedingung, dass $\sigma \ll d$, also dass die Rauigkeit klein ist im Gegensatz zur Schichtdicke, modifiziert zu

$$\tilde{r}_{j,j+1} = r_{j,j+1} \cdot \exp(-2k_{z,j}k_{z,j+1}\sigma_j^2) \quad (12)$$

$$\tilde{t}_{j,j+1} = t_{j,j+1} \cdot \exp\left(\frac{1}{2}(k_{z,j} - k_{z,j+1})^2 \sigma_j^2\right) \quad (13)$$

und in den Parratt-Algorithmus eingebunden.

3 Durchführung

3.1 Versuchsaufbau

Der Aufbau zur Untersuchung von Oberflächen mit Hilfe von Röntgenreflektometrie setzt sich aus drei Hauptbestandteilen zusammen, die den in Abbildung 5 dargestellten kommerziellen Röntgenreflektometrie-Aufbau *D8* bilden. Die Quelle der Röntgenstrahlung stellt eine Röntgenröhre mit Kupferanoden dar und ist wie der Detektor um den Proben­tisch rotierbar. Die Röntgenröhre wird mit einer Beschleunigungsspannung von 40 keV betrieben und sendet zunächst einen divergierenden Strahl aus, der das gesamte Röntgenspektrum enthält. Da jedoch nur eine bestimmte Wellenlängenkomponente genutzt werden soll, wird der Strahl auf einen Göbel-Spiegel gerichtet. Dieser kollimiert den Strahl aufgrund seiner parabolischen Form und ist gleichzeitig dazu in der Lage den Strahl zu monochromatisieren. Dies wird über eine Schichtung von Spiegelebenen in definierten Abständen erreicht, sodass nur die gewünschte Wellenlänge die Bragg-Bedingung erfüllt und konstruktiv interferiert. Zur Positionierung der Probe wird ein in x-, y- und z-Richtung beweglicher Proben­tisch genutzt, auf dem die Probe aufliegt. Eine konzeptionelle Darstellung des Aufbaus ist in Abbildung 6 dargestellt. Alle Komponenten werden über das Programm *XRD Commander* angesteuert und auch die Zählraten des Detektor werden mit diesem Programm aufgenommen und anschließend ausgewertet.

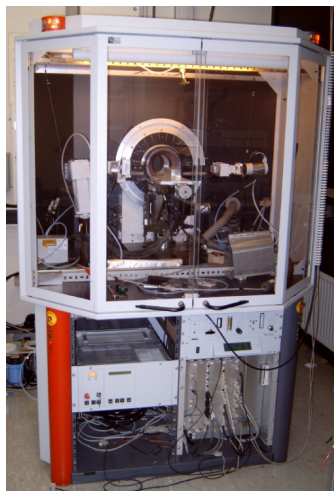


Abbildung 5: Foto des D8-Laborrefraktometers, das zur Röntgenreflektivitätsmessung genutzt wird. Entnommen aus [3]

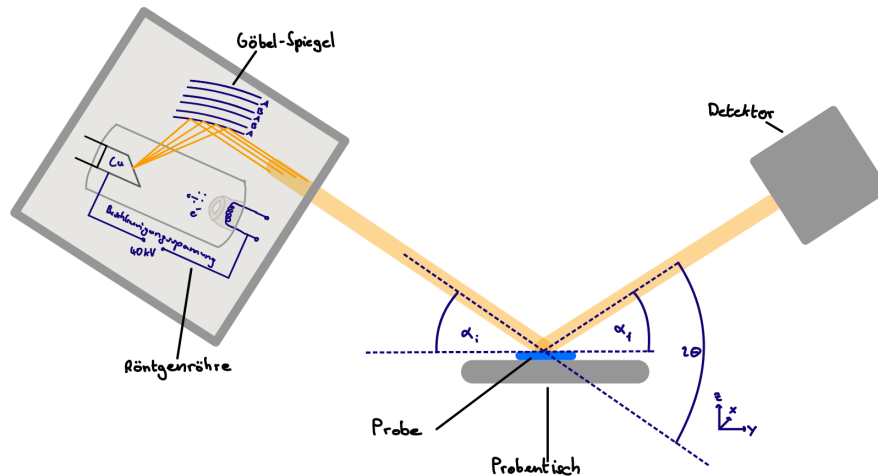


Abbildung 6: Der konzeptionelle Aufbau zur Untersuchung der Probe durch Röntgenreflektometrie. Die Röntgenquelle enthält eine Röntgenröhre und einen Göbelspiegel. Der Probentisch ist in x-, y- und z-Richtung verschiebbar. Zur Variation des 2θ -Winkels sind die Röntgenquelle und der Detektor um den Probentisch rotierbar.

3.2 Kalibrierung des Reflektionsaufbaus

Um eine optimale Reflexionsmessung durchführen zu können, muss die Probe, wie in Abbildung 7 dargestellt zunächst halb in den Strahlengang gefahren sein und exakt parallel zum Strahl liegen, der von der Röntgenquelle zum Detektor läuft, die ebenfalls entlang einer Linie ausgerichtet sein müssen. Um diese Messgeometrie zu garantieren müssen mehrere Scans durchgeführt werden. Diese werden konzeptionell erklärt und die exakten Scan-Parameter in Tabelle 1 aufgelistet.

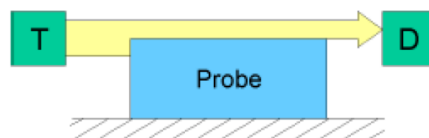


Abbildung 7: Die zur Justage gewünschte Messgeometrie, bei der die Probe parallel zum Strahl halb in diesem liegt und Röntgenquelle sowie Detektor auf einer Linie liegen. Entnommen aus [3]

Zu Beginn wird die Röntgenröhre auf einen Winkel von $\alpha_i = 0^\circ$ gestellt und die Probe aus dem Strahlengang gefahren. Dann fährt der Detektor in einem **Detektorscan** einen geringen Winkelbereich um 0° herum ab und misst dabei die Intensität. Dabei sollte sich ein Gauß-Profil ergeben, aus dem der Winkel bestimmt wird, bei dem Röntgenquelle und Detektor genau entlang einer Quelle liegen. Dieser Winkel wird als neue Referenz gesetzt.

Nachdem die Probe per Augenmaß in x- und y-Richtung im Strahlengang zentriert wurde, wird ein qualitativer **x-Scan** durchgeführt. Dabei wird die Probe samt Probentisch horizontal entlang der x-Richtung durch den Strahl gefahren. Dabei sollte es zu einem Einbrechen der Intensität kommen, sobald der Strahl nicht mehr neben der Probe über den Probentisch verläuft, sondern die Probe trifft. Die x-Koordinate wird so angepasst, dass sie im Zentrum des Plateaus der eingebrochenen Intensität liegt. So ist sichergestellt, dass die Probe und nicht der Probentisch vom Strahl getroffen wird.

Anschließend wird ein **z-Scan** durchgeführt. Bei diesem wird die Probe langsam in den Strahlengang gefahren und währenddessen wieder die Intensität gemessen. Aus der resultierenden Kurve, in der die Intensität gegen die z-Koordinate aufgetragen ist, wird die z-Koordinate gewählt, bei der die Intensität auf die halbe maximale Intensität abgesunken ist. Bei dieser Koordinate befindet sich die Probe halb im Strahlengang.

Um die Parallelität der Probe zum Strahl zu garantieren, folgt ein **Rockingscan**. Die Probe befindet sich in halber Abschattung und Detektor sowie Röntgenquelle erhöhen beziehungsweise verringern ihren Winkel zur Probe, sodass 2θ konstant bleibt. Dies entspricht einer Drehung der Probe im Strahl. Die dabei vermessende Intensität sollte ein Dreieck ergeben, dessen Maximum als $2\theta = 0^\circ$ gewählt wird. Wenn eine der Flanken des Dreiecks stärker fällt als die andere Flanke, muss die y-Position der Probe angepasst werden. Bei einem gleichschenkeligen Dreieck mit Maximum bei $2\theta = 0^\circ$ ist die parallel Ausrichtung der Probe zum Strahl erreicht.

Da die Winkeländerung des Strahlverlaufs die Abschattung des Strahls durch die Probe verändert haben kann, wird ein erneuter **z-Scan** analog zum Ersten durchgeführt.

Anschließend wird ein weiterer **Rockingscan** bei einem Winkel von $2\theta = 0,3^\circ$ durchgeführt, um anschließend anhand eines Intensitätspikes die Ein- und Ausfallswinkel von $0,15^\circ$ für Röntgenquelle und Detektor zu bestimmen.

Um bei der Reflexionsmessung die Probe möglichst komplett mit dem Strahl zu treffen, muss die z-Position auch für einen Winkel von $2\theta \neq 0^\circ$ justiert werden. Dazu wird ein Winkel von $2\theta = 0,3^\circ$ eingestellt und erneut ein **z-Scan** um die zuvor bestimmte z-Position halber Abschattung durchgeführt. Die Intensitätsmessung soll ein Maximum liefern dessen z-Position als neue Position für die letztendlichen Messungen gewählt wird und die mittlere Geometrie aus Abbildung 8 garantiert.

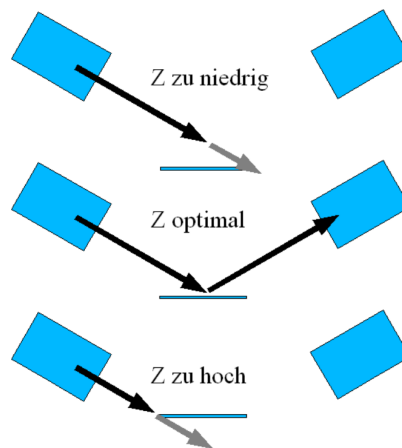


Abbildung 8: Die möglichen Geometrien für einen Winkel von $2\theta \neq 0^\circ$. Die Mittlere ist die gewünschte Geometrie, bei der die maximale Probenfläche getroffen wird. Entnommen aus [3]

3.3 Reflektionsmessung

Nach der vorangegangenen Justierung wird ein **Reflektivitätsscan** durchgeführt, bei dem der Ein- beziehungsweise Ausfallswinkel von Röntgenquelle und Detektor konstant sind, während 2θ variiert wird. So wird die reflektierte Intensität für verschiedene 2θ und damit verschiedene Impulsüberträge in z-Richtung vermessen. Da es neben der Reflexion auch zu diffuser Streuung kommt, muss diese als auftretender Hintergrund vermessen werden. Dazu wird der Ausfallswinkel des Detektors um $0,1^\circ$ vom Einfallswinkel der Röntgenröhre variiert $\alpha_f = \alpha_i + 0,1^\circ$ und ein Scan mit denselben Parametern des Reflektivitätsscans durchgeführt.

3.4 Scan-Parameter

Tabelle 1: Die für die verschiedenen Scans verwendeten Parameter. Die z-Position ist nur eine relative Größe zur Justierung und die Einheit daher beliebig. Bearbeitet aus [3]

Typ	Messbereich	Schrittweite	Messdauer/Messpunkt [s]
Detektorscan	-0,5° bis 0,5°	0,02°	1
z-Scan	-1 bis 1	0,04	1
Rockingscan $2\theta = 0^\circ$	-1° bis 1°	0,04°	1
z-Scan	-0,5 bis 0,5	0,02	1
Rockingscan $2\theta = 0,3^\circ$	0° bis 0,3°	0,005°	1
z-Scan $2\theta = 0,3^\circ$	-0,5 bis 0,5	0,02	1
Reflektivitätsscan	0° bis 2,5°	0,005°	5

4 Auswertung

4.1 Vermessung des Röntgenstrahls

Die Intensitäten aus dem Detektorscan werden zunächst gegen die zugehörigen Winkel aufgetragen. An diese, in Grafik 9 zu sehende, Verteilung wird eine Gauß-Kurve der Form

$$f(\alpha) = \frac{A}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(\alpha - \alpha_0)^2}{2\sigma^2}\right)$$

mit den Parametern

1. $\sigma = 0,0451^\circ$
2. $\alpha_0 = -0,0014^\circ$
3. $A = 102\,336,14^\circ$

angepasst.

Aus der Standardabweichung σ wird die volle Breite bei halbem Maximum

$$\text{FWHM} = 2\sigma\sqrt{2\ln(2)} = 0,1062^\circ$$

und aus der Standardabweichung sowie der Amplitude A die maximale Intensität des Röntgenstrahls

$$I_0 = 905520\,89 \frac{\text{Counts}}{\text{s}}$$

bestimmt.

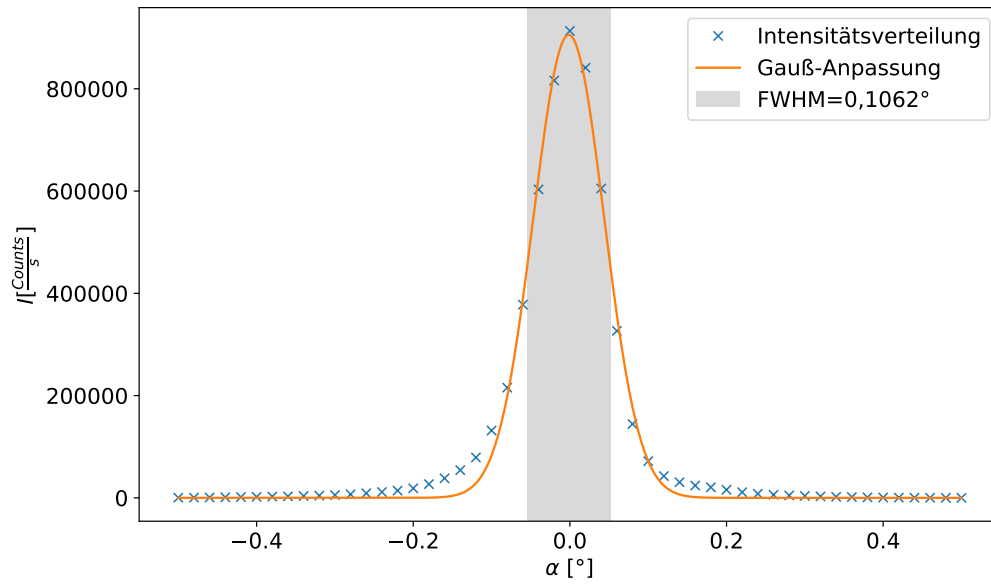


Abbildung 9: Die beim Detektorscan gemessene Intensität ist gegen den Messwinkel aufgetragen, sodass sich die Halbwertsbreite des Strahls sowie dessen maximale Intensität über eine Gauß-Anpassung ermitteln lassen.

4.2 Bestimmung des Geometriewinkels

Bei kleinen Einfallswinkeln trifft der Röntgenstrahl auch neben die Probe, sodass die maximal mögliche reflektierte Intensität abfällt. Dies soll für Winkel kleiner dem Geometriewinkel korrigiert werden. Dieser wird zunächst über den ersten Rockingscan bestimmt. Die dabei aufgenommene Intensität wird gegen den Einfallswinkel α aufgetragen. Der Geometriewinkel α_g kann zu Beginn der ansteigenden Intensitätsflanke und am Ende der absteigenden Intensitätsflanke abgelesen werden. Der Mittelwert aus den abgelesenen und in Grafik 10 eingezeichneten Winkeln ergibt sich zu

$$\overline{\alpha_{g, \text{grafisch}}} = 0,64^\circ.$$

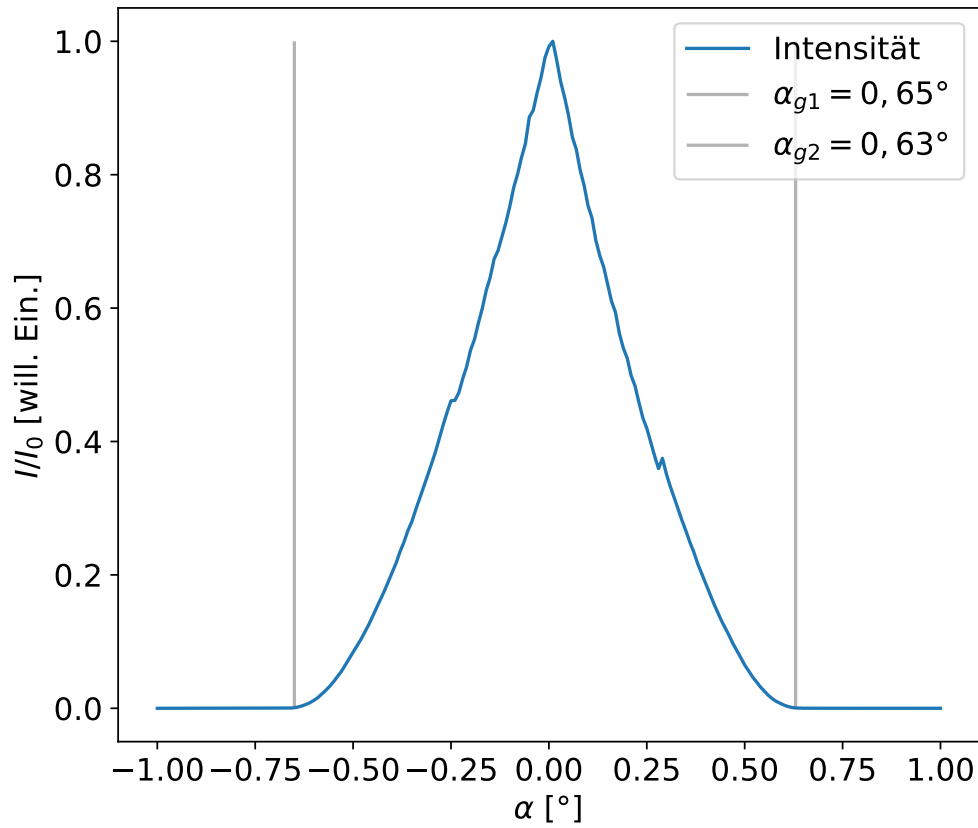


Abbildung 10: Die gemessene Intensität ist gegen den Winkel der Verdrehung der Probe relativ zum Strahl aufgetragen, sodass sich an dem Flankenanstieg bzw. Flankenende der Geometriewinkel ablesen lässt.

Parallel kann der Winkel auch aus der Länge der Probe in y-Richtung $D = 20 \text{ mm}$ und des Strahldurchmesser $d_0 = 22 \text{ mm}$ bestimmt werden. Dieser wird direkt aus dem ersten z-Scan abgelesen, dessen gemessene Intensitäten gegen die z-Position in Grafik 11 aufgetragen sind. Über diese Methode ergibt sich der Geometriewinkel zu

$$\alpha_{g, \text{ math}} = \arcsin \left(\frac{d_0}{D} \right) = 0,63^\circ.$$

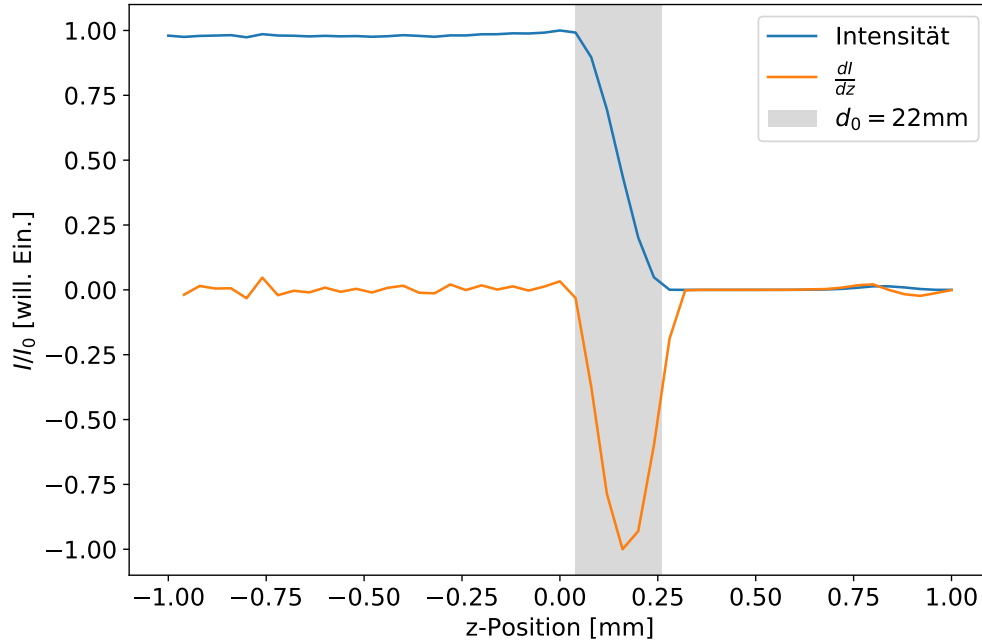


Abbildung 11: Die Intensität ist gegen die z-Position der Probe aufgetragen. Zusätzlich ist auch die Ableitung dieses Verlaufs eingezeichnet, um die eingezeichnete Strahlbreite besser bestimmen zu können.

4.3 Auswertungs des Reflektivitätsscans

Um die tatsächliche gemessene Reflektivität zu bestimmen, wird von der im Reflektivitätsscan gemessenen Intensität die Intensität, die durch diffuse Streuung entsteht, abgezogen und so eine tatsächliche Reflektivität

$$R_{\text{exp}} = \frac{I_{\text{R}} - I_{\text{diffus}}}{I_0 \cdot 5}$$

bestimmt. Diese wird durch Normierung auf die fünffache maximale Intensität I_0 berechnet, da in der Messung zur Bestimmung der maximalen Intensität für 1 s und im Reflektivitätsscan für 5 s gemessen wurde. Die gemessene Reflektivität R_{exp} und die über die Formeln 4 und 5 mit den Werten

1. $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$
2. $\alpha_c = 0,223^\circ$
3. $\mu = 14100 \text{ 1/m}$

berechnete Fresnel-Reflektivität $R_{F, Si, theo}$ von Silizium sind in Grafik 12 eingezeichnet. Die Fresnel-Reflektivität $R_{F, Si, theo}$ ist wie zu erwarten für Winkel kleiner dem kritischen Winkel gleich eins und fällt danach ab.

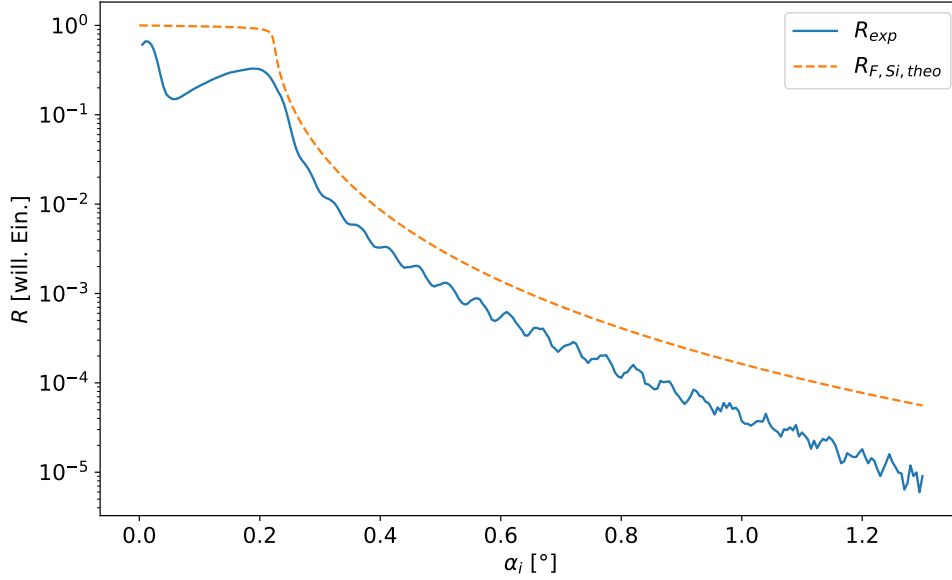


Abbildung 12: Darstellung der gemessenen Reflektivität R_{exp} sowie des theoretischen Verlaufs der Fresnel-Reflektivität für eine einzelne Siliziumoberfläche $R_{F, Si, theo}$.

Zur Bestimmung der Diffusion und der kritischen Winkel der beiden Materialien sowie der Schichtdicke des Polystyrols muss der Reflektivitätsscan detailliert ausgewertet werden. Dazu wird die gemessene Reflektivität R_{exp} durch den Geometriefaktor für Winkel kleiner dem Geometriewinkel korrigiert und so die korrigierte Reflektivität

$$R_{exp, cor} = \frac{R_{exp}}{G} \quad \text{mit} \quad G = 1 \quad \text{für} \quad \alpha_i \gtrsim \alpha_G \quad \text{und} \quad G = \frac{D \sin(\alpha_i)}{d_0} \quad \text{für} \quad \alpha_i < \alpha_G$$

berechnet. Die korrigierte Reflektivität $R_{exp, cor}$ ist in Abbildung 13 dargestellt.

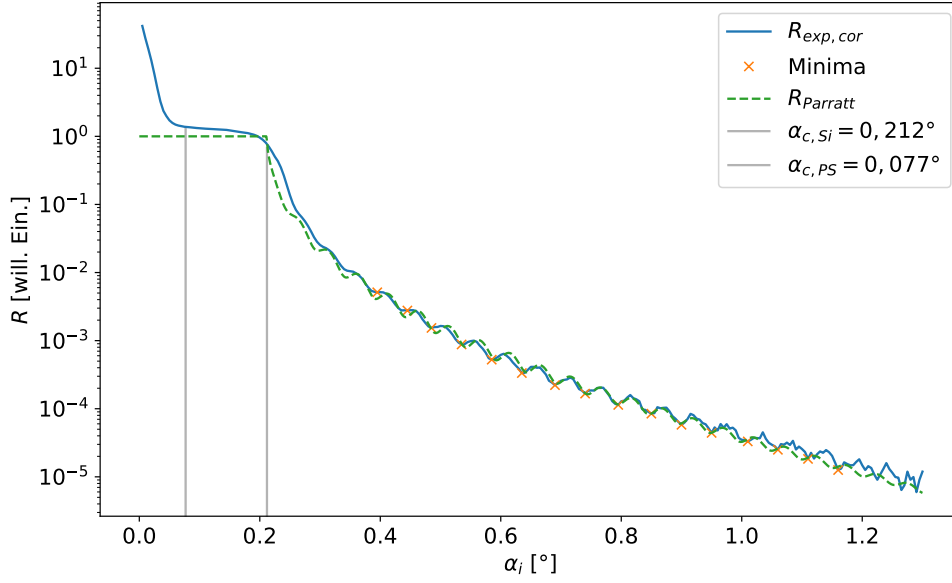


Abbildung 13: Darstellung des durch den Korrekturfaktor G angepassten Verlaufs $R_{\text{exp, cor}}$ der gemessenen Reflektivität, an den die rekursiv über den Parratt-Algorithmus berechnete Reflektivität R_{Parratt} angepasst wird. Aus dem Abstand der eingezeichneten Minima kann die Schichtdicke des Polystyrols bestimmt werden. Zusätzlich sind die kritischen Winkel für Silizium $\alpha_{\text{c, Si}}$ und Polystyrol $\alpha_{\text{c, PS}}$ eingezeichnet.

Zur ersten Abschätzung der Schichtdicke werden die eindeutigen Minima der Kiessig-Oszillationen in der Kurve der korrigierten Reflektivität über das Python-Paket *SciPy* ermittelt und der mittlere Abstand dieser untereinander bestimmt:

$$\overline{\Delta\alpha_i} = (0,503 \pm 0,011)^\circ$$

Über Formel 7 lässt sich die Schichtdicke z_{PS} des Polystyrols so zu

$$z_{\text{PS}} = (865 \pm 19) \text{ \AA} \quad (14)$$

bestimmen.

Anschließend wird die Reflektivität für ein System einer Polystyrol-Schicht auf einem Silizium-Substrat über den Parratt Algorithmus für raue Oberflächen simuliert.

Die notwendigen Parameter der Polystyrol-Schichtdicke z_2 , der Rauigkeit des Übergangs von Luft zu Polystyrol σ_1 und des Übergangs von Polystyrol zu Silizium σ_2 sowie

der Dispersion von Polystyrol δ_2 und Silizium δ_3 werden händisch variiert, bis die rekursiv über die Formeln 8, 9, 10 und 13 berechnete Reflektivität bestmöglich mit der gemessenen übereinstimmt. Dazu wird zunächst die Polystyrol-Schichtdicke auf den bereits berechneten Wert 14 gesetzt. Anschließend werden die Dispersionen angepasst, um die Kiessig-Oszillationen und die kritischen Winkel zu rekonstruieren. Abschließend werden die Rauigkeiten der Schichten angepasst, um den Verlauf der Einhüllenden für größere Winkel anzugleichen. Die in Abbildung 13 dargestellte Anpassung $R_{Parratt}$ wurde mit den folgenden Parametern berechnet:

1. $z_2 = 866,0 \text{ \AA}$
2. $\sigma_1 = 1,080 \cdot 10^{-9} \text{ 1/\AA}$
3. $\sigma_2 = 7,056 \cdot 10^{-10} \text{ 1/\AA}$
4. $\delta_2 = 9,000 \cdot 10^{-7}$
5. $\delta_3 = 6,840 \cdot 10^{-6}$

Aus den Dispersionen werden die kritischen Winkel für Polystyrol und Silizium über

$$\alpha_c = \sqrt{2\delta}$$

zu

1. $\alpha_{c, \text{PS}} = 0,0769^\circ$
2. $\alpha_{c, \text{Si}} = 0,2119^\circ$

bestimmt.

5 Diskussion

Bevor die Eigenschaften der Polystyrol- und Siliziumschicht untersucht werden konnten, mussten zunächst Eigenschaften des Röntgenstrahls sowie der Messgeometrie bestimmt werden. Die Bestimmung der Strahlbreite aus dem z-Scan konnte erfolgreich durchgeführt werden und kann aufgrund der bereits annähernd perfekten Winkelausrichtung der Probe zum Strahl bei diesem Scan auch als zuverlässig angesehen werden. Der zur Korrektur der Intensitäten wichtige Korrekturfaktor G wurde auf zwei Wegen bestimmt, die annähernd gleiche Ergebnisse lieferten:

1. $\overline{\alpha_{g, \text{grafisch}}} = 0,64^\circ$
2. $\alpha_{g, \text{math}} = \arcsin\left(\frac{d_0}{D}\right) = 0,63^\circ$

Die Korrektur in dem, durch diesen Winkel festgelegten, Bereich führt zu einer konstanten Reflektivität von eins unter dem kritischen Winkel, sodass die Bestimmung des Geometriewinkels und die anschließende Korrektur der Reflektivität als erfolgreich angesehen werden können.

Die Anpassung der Reflektivität des Systems durch den Parratt-Algorithmus reproduziert die gemessene Reflektivität im Winkelbereich von $0,45^\circ$ bis $0,90^\circ$ sehr gut. Für kleinere Winkel liegt die angepasste Reflektivität etwas zu hoch und für höhere Winkel etwas zu niedrig. Die aus dem Algorithmus bestimmte Polystyrol-Schichtdicke und die aus der Periode der Oszillation bestimmte

1. $z_{\text{PS}, \Delta\alpha} = (865 \pm 19) \text{ \AA}$
2. $z_{\text{PS}, \text{Parratt}} = 866 \text{ \AA}$

gleichen sich beinahe exakt und können als gut bestimmt bezeichnet werden. Es ist einerseits zu erwähnen, dass der Ausgangswert der Schichtdicke bei der Anpassung des Parratt-Algorithmus auf den zuvor berechneten Wert gesetzt worden ist, dieser aber auch gute Reflektivitätswerte liefert. Die Dispersionen

1. $\delta_{\text{PS}} = 9,000 \cdot 10^{-7}$ $\delta_{\text{PS}, \text{Lit}} = 3,5 \cdot 10^{-6}$ $A = 74,3 \%$
2. $\delta_{\text{Si}} = 6,840 \cdot 10^{-6}$ $\delta_{\text{Si}, \text{Lit}} = 7,6 \cdot 10^{-6}$ $A = 10,0 \%$

wurden ebenfalls über den Parratt-Algorithmus bestimmt und geben ein unterschiedliches Bild wieder. Die Dispersion des Siliziums hatte nur einen geringen Einfluss auf die Anpassung und Werte nahe dem Literaturwert ergaben eine gute Anpassung. Die Dispersion des Polystyrols hingegen musste deutlich kleiner als der Literaturwert gewählt werden, um die Amplitude der Kiessig-Oszillationen gut zu reproduzieren. Die aus den Dispersionen bestimmten kritischen Winkel

1. $\alpha_{c, \text{PS}} = 0,0769^\circ$ $\alpha_{c, \text{PS}} = 0,153^\circ$ $A = 49,7 \%$

$$2. \quad \alpha_{c, \text{Si}} = 0,2119^\circ \quad \alpha_{c, \text{Si}} = 0,223^\circ \quad A = 5,0 \%$$

spiegeln das Bild der Dispersionen wieder. Während der kritische Winkel des Siliziums nahe dem Literaturwert liegt und mit einem Intensitätsabfall zusammenfällt, tritt bei dem kritischen Winkel des Polystyrols eine deutlich größere Abweichung auf. Dass dieser Winkel nicht mit einem starken Intensitätsabfall zusammenfällt, stellt keinen Widerspruch dar, da Totalreflexion an der tieferliegenden Siliziumschicht die gesamte Reflektivität annähernd konstant hält. Die auch aus der Anpassung des Parratt-Algorithmus bestimmten Rauigkeiten

1. $\sigma_1 = 1,080 \cdot 10^{-9} \text{ 1/\AA}$
2. $\sigma_2 = 7,056 \cdot 10^{-10} \text{ 1/\AA}$

haben keine literarischen Vergleichswerte. Da die beiden Werte jedoch für die feine Anpassung des Parratt-Algorithmus relevant waren, lassen sich die beiden Werte anhand der Güte der Anpassung eher als ungefähre Schätzung auf die eigentlichen Werte der Rauigkeiten der vorliegenden Schichten bewerten. Alle hier genutzten Literaturwerte wurden aus [1] entnommen.

6 Parratt-Algorithmus

```

190 #####
191 #Implementierung und Anwendung des Parratt-Algorithmus für raue Oberflächen
192 #####
193
194 #Variablen und Konstanten
195 delta_2 = 0.9*10**(-6)
196 delta_3 = 0.9*7.6*10**(-6)
197
198 sigma_1 = 1.2*9e-10
199 sigma_2 = 0.96*7.35e-10
200
201 z_1 = 0
202 z_2 = 8.66*10**(-8)
203
204
205 k = 2*np.pi/lam
206
207 fit_params = ([delta_2, delta_3, sigma_1, sigma_2, z_2])
208
209 def parratt_alg(alpha, delta_2, delta_3, sigma_1, sigma_2, z_2):
210     n_1 = 1
211     n_2 = 1 - delta_2
212     n_3 = 1 - delta_3
213
214     #k_1 = k * np.sqrt(n_1**2 - np.cos(alpha)**2)
215     #k_2 = k * np.sqrt(n_2**2 - np.cos(alpha)**2)
216     #k_3 = k * np.sqrt(n_3**2 - np.cos(alpha)**2)
217
218     k_1 = k * np.sqrt(n_1**2 - np.cos(alpha)**2+0j)
219     k_2 = k * np.sqrt(n_2**2 - np.cos(alpha)**2+0j)
220     k_3 = k * np.sqrt(n_3**2 - np.cos(alpha)**2+0j)
221
222     r_12 = np.exp(-2*k_1*k_2*sigma_1**2) * (k_1-k_2)/(k_1+k_2)
223     r_23 = np.exp(-2*k_2*k_3*sigma_2**2) * (k_2-k_3)/(k_2+k_3)
224
225     X_2 = np.exp(-2j*k_2*z_2) * r_23
226     X_1 = np.exp(-2j*k_1*z_1) * (r_12 + X_2*np.exp(2j*k_2*z_1))/(1 + r_12*X_2*np.exp(2j*k_2*z_1))
227
228     R = np.abs(X_1)**2
229
230     return R
231
232 #guess_parratt = ([delta_2, delta_3, sigma_1, sigma_2, z_2])
233
234 #fit_params, fit_cov = curve_fit(parratt_alg, theta2[1:], reflectivity_cor, p0=guess_parratt)
235
236 alpha_c_ps = np.sqrt(2*delta_2) * 180/np.pi
237 alpha_c_si = np.sqrt(2*delta_3) * 180/np.pi
238
239 print(f"""delta_2 = {fit_params[0]}
240 delta_3 = {fit_params[1]}
241 sigma_1 = {fit_params[2]}
242 sigma_2 = {fit_params[3]}
243 z_2 = {fit_params[4]}
244 Kritschischer Winkel PS: {alpha_c_ps}
245 Kritschischer Winkel Si: {alpha_c_si}""")
246
247 fig, axs = plt.subplots(figsize=(10,6))
248 axs.plot(theta2[1:261], reflectivity[1:261], "-", label=r"$R_{exp}$")

```

Literatur

- [1] Metin Tolan. *X-ray scattering from soft-matter thin films: materials science and basic research*. Springer tracts in modern physics 148. Berlin ; New York: Springer, 1999. 197 S.
- [2] TU Dortmund E1. *Versuchsanleitung Lehrstuhlversuch V44 - Röntgenreflektometrie*.
- [3] TU Dortmund. *Versuchsanleitung V44 - Röntgenreflektometrie*. 2022.