

V44

Röntgenreflektometrie

Lukas Bertsch

lukas.bertsch@tu-dortmund.de

Tom Troska

tom.troska@tu-dortmund.de

Durchführung: 26.06.2022

TU Dortmund – Fakultät Physik

Inhaltsverzeichnis

1. Zielsetzung	3
2. Theorie	3
2.1. Erzeugung von Röntgenstrahlung	3
2.2. Röntgenstrahlung an einer Grenzfläche	3
2.3. Multischichtsysteme	5
2.4. Korrektur um einen Geometriefaktor	7
3. Durchführung	7
3.1. Justierung der Messapparatur	7
3.2. Vermessung der Probe	7
4. Auswertung	9
4.1. Bestimmung der Halbwertsbreite und der maximalen Intensität	9
4.2. Bestimmung der Strahlbreite	9
4.3. Ermittlung des Geometriewinkels	10
4.4. Bestimmung der Dispersion und Rauigkeit des Siliziumwafers	10
5. Diskussion	13
Literatur	13
A. Anhang	14
A.1. Originaldaten	14

1. Zielsetzung

Wird eine Oberfläche eines zu untersuchenden Material Röntgenstrahlung ausgesetzt, wird ein Teil der Strahlung reflektiert. Die Intensität der reflektierten Strahlung lässt sich messen. Sind auch der Einfalls- und Ausfallswinkel bekannt, kann so eine Aussage über verschiedene Eigenschaften des Materials getroffen werden. Ziel dieses Versuchs ist es, mithilfe der Röntgenreflektometrie die Dichte, Rauigkeit und Dicke eines Polyesterfilms auf einem Siliziumwafer zu bestimmen.

2. Theorie

Als Röntgenstrahlung wird elektromagnetische Strahlung bezeichnet, die in einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 10 \text{ nm}$ bis 10 pm liegt, was einer Energie von rund 100 eV bis 150 keV entspricht. Wie auch andere elektromagnetische Strahlung wird Röntgenstrahlung an einer Grenzfläche zu einem Teil reflektiert, während der andere Teil in das Material eindringt und dort unter Berücksichtigung der neuen Materialeigenschaften propagiert.

2.1. Erzeugung von Röntgenstrahlung

Röntgenstrahlen sind nach ihrem Entdecker Wilhelm Conrad Röntgen benannt, der diese im Jahr 1895 erstmals künstlich erzeugte und ihre Eigenschaften untersuchte.

Eine der Möglichkeiten, Röntgenstrahlung zu erzeugen ist das Abbremsen von Elektronen in einem Anodenmaterial. Dazu wird zunächst an eine Glühkathode eine Heizspannung angelegt, sodass aufgrund des glühelektrischen Effekts Elektronen aus dem Kathodenmaterial austreten. Mittels einer angelegten Beschleunigungsspannung werden die freien Elektronen zu einer Anode hin beschleunigt. In dem Anodenmaterial werden die Elektronen stark in dem Coulombfeld der Anodenatome abgebremst, wobei ein kontinuierliches Spektrum an Bremstrahlung abgestrahlt wird. Durch das Herauslösen von Elektronen der unteren Energieniveaus kommt es durch das Auffüllen dieser zur Emission von einer charakteristischen Strahlung, welche Materialabhängig und für die einzelnen Übergänge diskret ist. Der schematische Aufbau einer Röntgenröhre ist in Abbildung 1 gezeigt.

2.2. Röntgenstrahlung an einer Grenzfläche

Trifft Röntgenstrahlung auf eine ebene Grenzfläche wird ein Teil der Strahlung reflektiert während der andere Teil gebrochen wird. Dies ist in Abbildung 2 dargestellt. Für den komplexen Brechnungsindex n des Material gilt

$$n = 1 - \delta + iK.$$

Hierbei bezeichnet $\delta \sim 10^{-6}$ eine kleine Korrektur und K die Absorption des Mediums. Aufgrund des Snelliusschen Brechnungsgesetzes

$$n_1 \cos \alpha = n_2 \cos \alpha'$$

ist klar, dass der Einfallswinkel α genau dem Ausfallwinkel α' entsprechen muss.

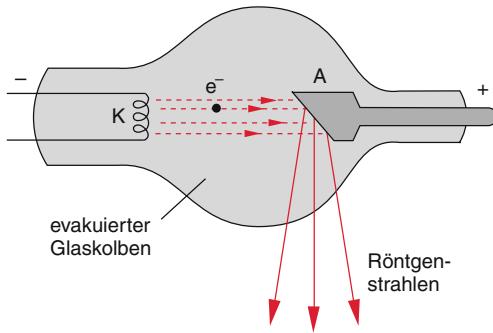


Abbildung 1: Exemplarischer Aufbau einer Röntgenröhre. Aufgrund der thermischen Elektronenemission treten Elektronen aus der Glühkathode aus. Diese werden im elektrischen Feld zwischen Kathode und Anode zur letzteren hin beschleunigt. In dem Anodenmaterial werden die Elektronen abgebremst und Röntgenstrahlung wird emittiert [2].

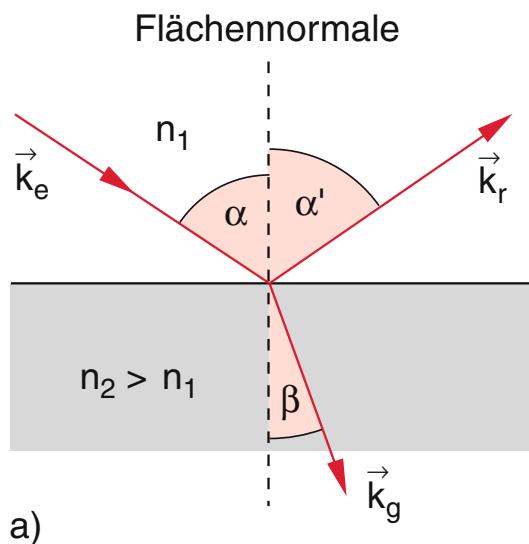


Abbildung 2: Skizze eines einzelnen Strahls, welcher auf eine Grenzfläche trifft. Der eintreffende Strahl wird mit \vec{k}_e bezeichnet, der gebrochene wird mit \vec{k}_g und der reflektierte mit \vec{k}_r beschrieben [2].

Eine Aussage über den Anteil des reflektierten und transmittierten Lichts kann mithilfe der Fresnelgleichungen getroffen werden. Diese beschreiben die Amplitudenverhältnisse der transmittierten und reflektierten Strahlung von jeweils senkrecht oder parallel polarisiertem Licht. Aufgrund der Tatsache, dass die verwendete Röntgenstrahlung nicht polarisiert ist, sind die Fresnelgleichungen näherungsweise identisch. Es gilt

$$t = \frac{2n_1 \sin \alpha}{n_1 \sin \alpha + n_2 \sin \beta} \quad r = \frac{n_1 \sin \alpha - n_2 \sin \beta}{n_1 \sin \alpha + n_2 \sin \beta}.$$

Für den Übergang von einem Vakuum ($n = 1$) in ein Material mit $n < 1$ kommt es unter einem Winkel α_{tot} zur Totalreflexion. Für Röntgenstrahlung ist jeder Brechnungsindex von Materie $n < 1$ und in diesem Experiment tritt die Röntgenstrahlung aus Luft ($n \approx 1$) auf das Material, sodass es hier eine Winkel α_{tot} gibt. Dieser entspricht

$$\alpha_{\text{tot}} \approx \sqrt{2\delta} = \lambda \sqrt{\frac{r_e \rho}{\pi}}. \quad (1)$$

Die Wellenlänge der verwendeten Röntgenstrahlung wird als λ bezeichnet, die Dichte des Materials als ρ und r_e ist der klassische Elektronenradius.

Eine weitere wichtige Größe ist die Reflektivität R , welche als

$$R = |r|^2 = \left(\frac{\alpha_{\text{tot}}}{2\alpha} \right) \quad (2)$$

definiert ist. Sie beschreibt also das Verhältnis der Intensitäten der reflektierten und einfallenden Strahlung für den Fall, dass $\alpha > 3\alpha_{\text{tot}}$. ??????????????????

2.3. Multischichtsysteme

Besteht ein Material aus mehreren Schichten, teilt sich der Strahl an jeder Grenzschicht in einen reflektierten und einen gebrochenen Teil auf. So nimmt mit jeder weiteren Schicht die Intensität ab. Die reflektierten Anteile der Strahlung interferieren mit der eintretenden, sowie der an anderen Schichten reflektierten Strahlung. Das Resultat sind schichtdicken und materialabhängige Oszillationen, die als Kiessig Oszillationen bezeichnet werden. In Abbildung 3 sind diese für ein beispielhaftes Multischichtsystems dargestellt.

Die Schichtdicke d des Multischichtsystems kann mithilfe der Kiessig Oszillationen bestimmt werden. Dafür wird der Zusammenhang

$$d = \frac{\lambda}{2\Delta\alpha} \quad (3)$$

zwischen der Wellenlänge λ der Röntgenstrahlung und dem Abstand $\Delta\alpha$ zweier Extrema mit gleichem Vorzeichen verwendet.

Verfügt ein Material über mehr als zwei Schichten, überlagern sich die Oszillationen. Mithilfe des so genannten Parrat-Algorithmus können erneut die Schichtdicken X_j berechnet werden. Dafür wird die Rekursionsformel

$$X_j = \frac{R_j}{T_j} = e^{-2ik_z z_j} \frac{r_{j,j+1} + X_{j+1} e^{2ik_{z,j+1} z_j}}{1 + r_{j,j+1} X_{j+1} e^{2ik_{z,j+1} z_j}} \quad ?????????? \quad (4)$$

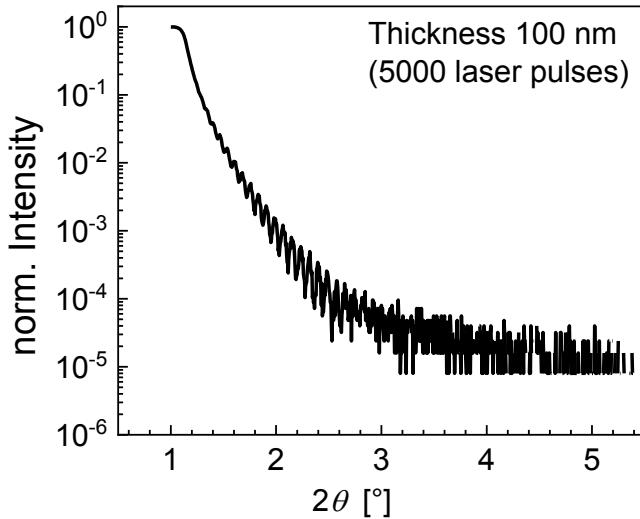


Abbildung 3: Kiessig Oszillationen an einem Multischichtsystem. Die Oszillationen sind das Resultat von Interferenzen der reflektierten und eintreffenden Strahlung [1].

verwendet. Hier bezeichnet $r_{j,j+1}$ die Fresnelreflektivität der j -ten Grenzschicht und $k_{z,j}$ die z-Komponente des Wellenvektors \vec{k} der j -ten Schicht. Dabei gilt

$$k_{z,j} = \sqrt{n_j^2 - \cos^2 \alpha}.$$

Die erste und letzte Schicht werden als unendlich angenommen und somit wird dort nicht weiter reflektiert, was den Startwert der Rekursion auf $R_{N+1} = X_{N+1} = 0$ setzt. Damit der Parrat-Algorithmus nicht nur für glatte, sondern auch für rauhe Oberflächen verwendet werden kann, wird eine *root-mean-square*-Rauigkeit

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

eingeführt. Dafür wird die Position in der j -ten Schicht z_j sowie die Wahrscheinlichkeit P_j , dass diese sich in einem Intervall $[z_j + z, z_j + z + dz]$ befindet, benötigt. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung wird als Gaußverteilung angenommen. Mithilfe der *root-mean-square*-Rauigkeit ergeben sich die modifizierte, rekursive Fresnelgleichungen

$$r'_{j,j+1} = r_j e^{-2k_{z,j} k_{z,j+1} \sigma_j^2} \quad t'_{j,j+1} = t_{j,j+1} e^{\frac{(k_{z,j} - k_{z,j+1})^2 \sigma_j^2}{2}}. \quad (5)$$

Diese können erneut in den Parrat-Algorithmus Gleichung 4 eingesetzt werden, sodass die korrigierten Schichtdicken bestimmt werden können.

2.4. Korrektur um einen Geometriefaktor

Wenn die Röntgenstrahlung in einem kleinen Winkel auf die Probe trifft, beleuchtet die Strahlung nicht die gesamte Probe. Eine Skizze zur Veranschaulichung dieses Sachverhalts ist in Abbildung 4 gegeben. Für Winkel unterhalb eines Grenzwinkels α_g muss daher ein Korrekturfaktor G eingeführt werden. Der Grenzwinkel α_g berechnet sich aus der Länge der Probe D und der Strahlbreite der Röntgenstrahlung d_0 zu

$$\alpha_g = \arcsin\left(\frac{d_0}{D}\right). \quad (6)$$

Für den Geometriefaktor G gilt

$$G = \begin{cases} \frac{D \sin \alpha}{d_0} & \text{für } \alpha < \alpha_g \\ 1 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (7)$$

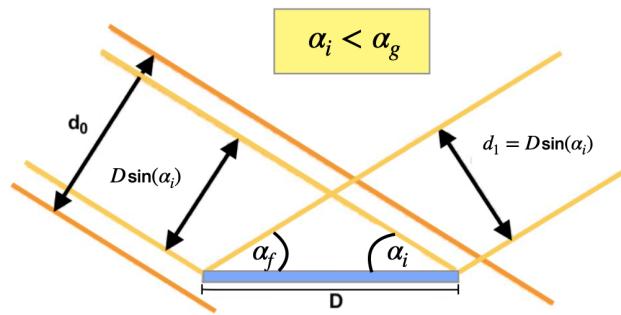


Abbildung 4: Veranschaulichung der verwendeten Größen zu der Einführung des Geometriefaktors G [3].

3. Durchführung

Damit Dichte, Rauigkeit und Dicke eines Polyesterfilms auf einem Siliziumwafer bestimmt werden können, muss in einem ersten Schritt die Messapparatur justiert und kalibriert werden. Der verwendete Versuchsaufbau ist in Abbildung 5 gezeigt, die Datennahme erfolgt über einen angeschlossenen Computer.

3.1. Justierung der Messapparatur

3.2. Vermessung der Probe

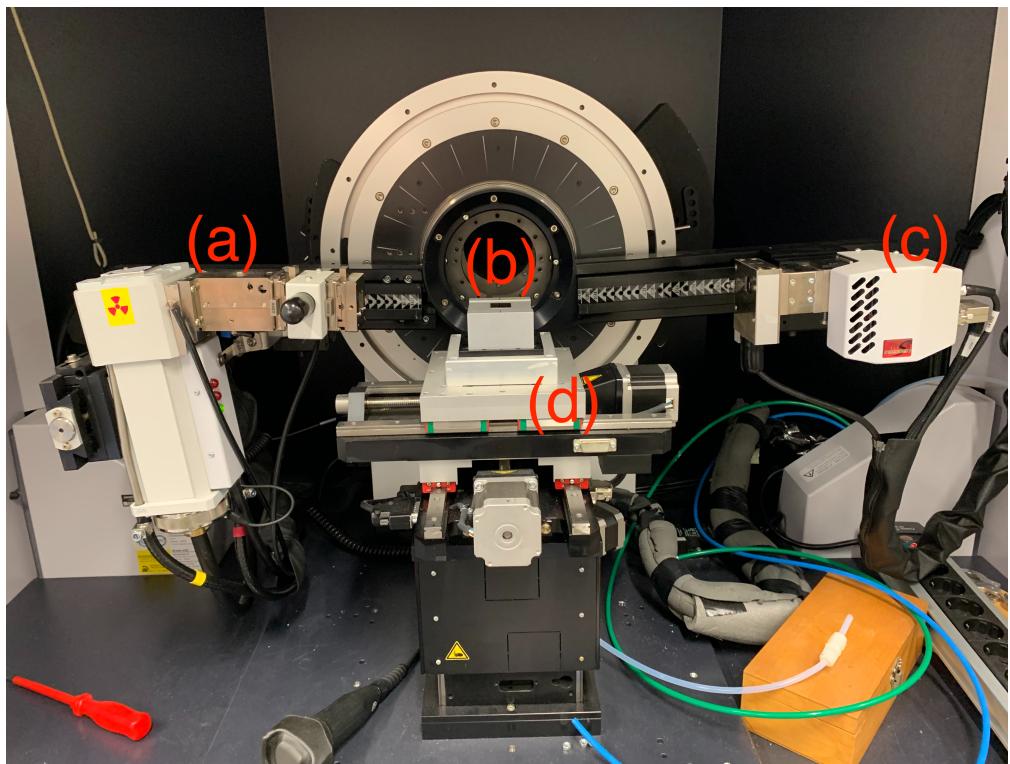


Abbildung 5: Bild des verwendeten Diffraktometers. Zu sehen sind (a) Röntgenröhre, (b) Probe, (c) Detektor, (d) xyz-Messtisch.

4. Auswertung

4.1. Bestimmung der Halbwertsbreite und der maximalen Intensität

Die Halbwertsbreite und die maximale Intensität des Strahls kann mithilfe der Messdaten des Detektorscans bestimmt werden. Dazu wird an die in Abbildung 6 abgebildeten Messdaten eine Gaußfunktion der Form

$$I(\alpha) = \frac{I_0}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \cdot \exp\left(-\frac{(\alpha - \alpha_0)^2}{2\sigma^2}\right) + B$$

angepasst. Der Fit wird mittels der python Bibliothek `scipy` [4] durchgeführt. Die freien

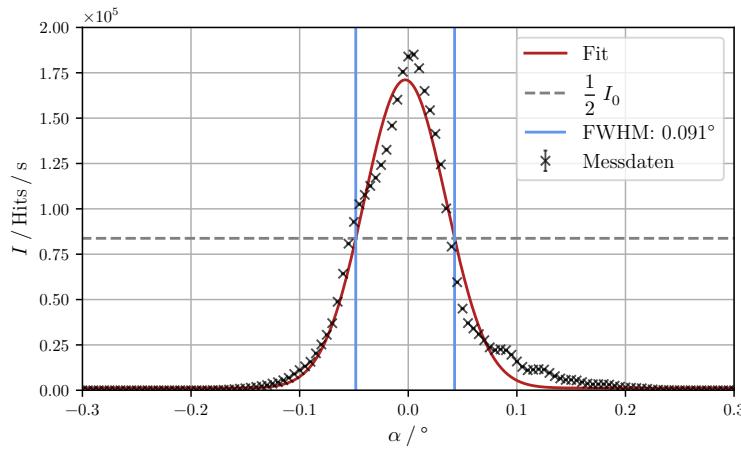


Abbildung 6: Messdaten des Detektorscans und mittels `scipy` [4] angepasste Gaußfunktion. Es sind Markierungen zur Bestimmung der Halbwertsbreite eingezeichnet.

Parameter ergeben sich zu

$$\begin{aligned} \alpha_0 &= (-2,83 \pm 0,47) \cdot 10^{-3^\circ} \\ \sigma &= (3,78 \pm 0,05) \cdot 10^{-2^\circ} \\ I_0 &= (1,61 \pm 0,02) \cdot 10^4 \\ B &= (1,20 \pm 0,43) \cdot 10^3. \end{aligned}$$

Die Halbwertsbreite (FWHM) lässt sich an der Höhe des Graphen ablesen, an welcher genau der halb Wert des Maximums erreicht wird. Es ergibt sich der Wert

$$\text{FWHM} = 0,091^\circ.$$

4.2. Bestimmung der Strahlbreite

Die Strahlbreite lässt sich aus den Messdaten des ersten durchgeführten Z-Scans ermitteln. Dazu werden die in Abbildung 7 Messdaten betrachtet. Die Strahlbreite entspricht der

Breite der steil abfallenden Flanke des Graphen zwischen den beiden Plateubereichen. Es ergibt sich eine Strahlbreite von $d_0 \approx 0,12$ mm.

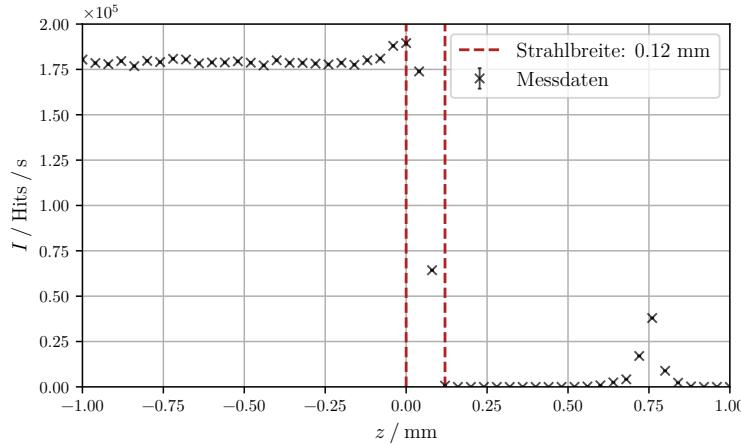


Abbildung 7: Messdaten des ersten Z-Scans. Die Breite des Bereiches zwischen den Plateubereichen entspricht der Strahlbreite.

4.3. Ermittlung des Geometriewinkels

Trifft der Röntgenstrahl in einem kleinen Winkel auf die Probe, überschreitet die effektive Breite des Strahls die Probenlänge und ein gewisser Anteil der Intensität kann nicht reflektiert werden. Um diesen systematischen Effekt zu korrigieren, wird der Geometriewinkel bestimmt, bis zu welchen dieser Effekt auftritt. Er lässt sich anhand der Breite der in einem Rocking-Curve-Scan aufgenommenen Messkurve ermitteln. Die entsprechenden Messdaten sind in Abbildung 8 abgebildet. Der Geometriewinkel ergibt sich zu $\alpha_G = 0,44^\circ$. Mit der zuvor bestimmten Strahlbreite d_0 und der Probenlänge $D = 20$ mm bestimmt sich der Theoriewert des Geometriewinkels nach Gleichung 6 zu $\alpha_{G, \text{Theorie}} = 0,34^\circ$.

4.4. Bestimmung der Dispersion und Rauigkeit des Siliziumwafers

Um die Oberflächen- und Schichtstruktur des mit Polyesterol beschichteten Siliziumwafers bestimmen zu können werden ein Reflektivitäts-Scan und ein Diffuser-Scan durchgeführt. Zweiterer wird benötigt, um die zuvor gemessenen Reflektivität um den Anteil der gestreuten Intensität korrigieren zu können. Die Messdaten beider Scans und die um die gestreute Intensität korrigierten Werte sind in Abbildung 9 abgebildet. Im Folgenden wird anstatt der gemessenen Intensität, die Reflektivität R betrachtet. Diese ergibt sich auf Grund der Messzeit von 5 s zu

$$R = \frac{I}{5I_0}.$$

Des Weiteren wird die gemessene Reflektivität nach Gleichung 7 um den Geometriefaktor korrigiert. Die Fresnelreflektivität einer ideal glatten Polyesteroberfläche kann durch

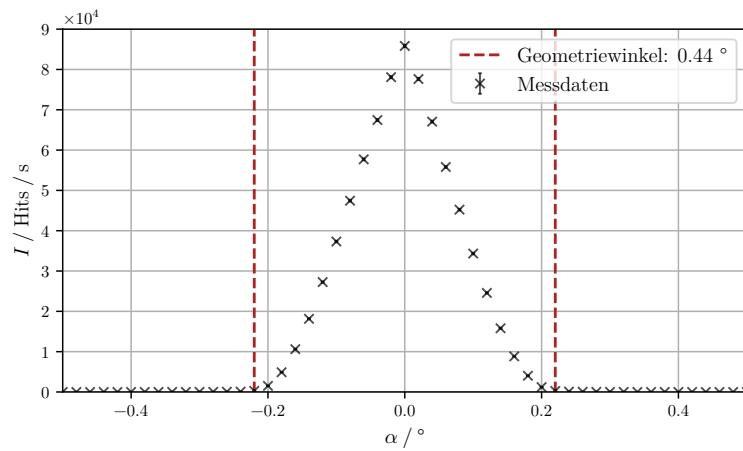


Abbildung 8: Rocking-Curve-Scan zur Bestimmung des Geometriewinkels.

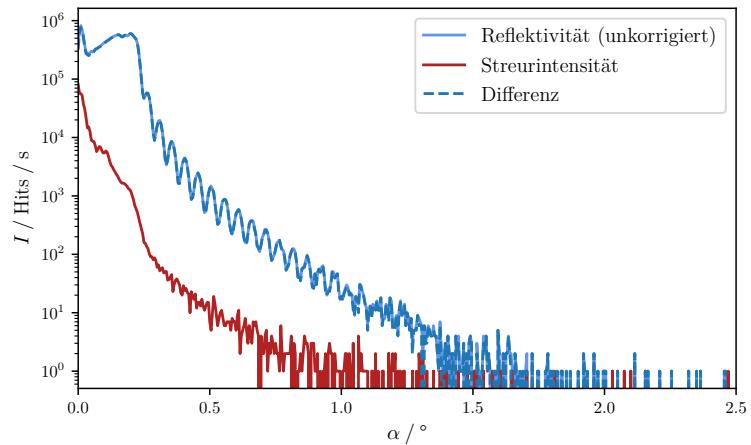


Abbildung 9: Es sind die Messdaten des Reflektivitäts-Scans und des diffusen Scans zu sehen, sowie die Differenz der beiden Messreihen.

Gleichung 2 genähert werden. Der kritische Winkel α_c errechnet sich mit Gleichung 1 und $r_e \rho = 20 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$ [3] zu $\alpha_c = 0,223^\circ$. Die Wellenlänge der Röntgenstrahlung ist die Wellenlänge der K_α -Linie von Kupfer: $\lambda = 1,54 \cdot 10^{-10} \text{ m}$. Die korrigierten Messwerte der Reflektivität sind in Abbildung 10 zusammen mit der Fresnelreflektivität aufgetragen. Darüber hinaus sind die periodischen Minima der Kiessigoszillation eingezeichnet, anhand

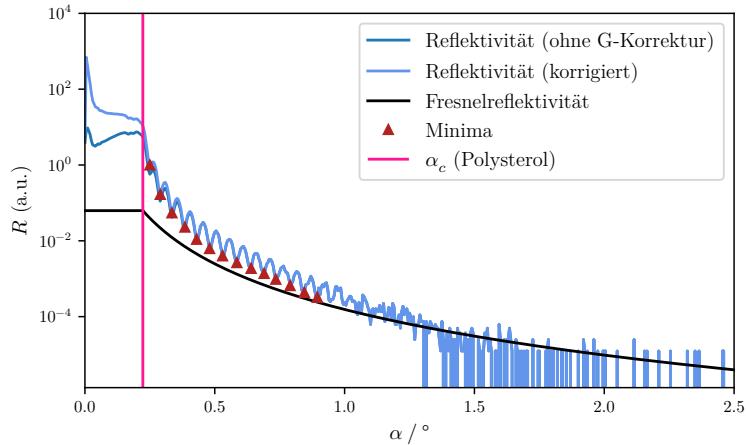


Abbildung 10: Plot.

welcher sich die Schichtdicke des Polyesterfilms ermitteln lässt. Dazu wird der Abstand zwischen den Minima benötigt. Hierzu wird der Mittelwert und die Standardabweichung der Abstände der markierten Messwerte gebildet. Es ergibt sich $\Delta\alpha = (4,96 \pm 0,46) \cdot 10^{-2}^\circ$. Mit Gleichung 3 folgt die Schichtdicke $d = (8,89 \pm 0,82) \cdot 10^{-8} \text{ m}$.

Da es sich bei der Probe um ein Mehrschichsystem aus Polyesterfilm und Siliziumwafer handelt, können über den Parrattalgorithmus ((4)) die Dispersionen δ , die Rauigkeiten der Grenzschichten σ und ebenfalls die Dicke der Polystyrolschicht bestimmt werden. Es werden Rauigkeits-korrigierte Fresnelkoeffizienten aus Gleichung 5 verwendet. Die so entstehende Fitfunktion ist dem Programmcode im Anhang A zu entnehmen. Es wird ein Fit an die korrigierten Messdaten mittels `scipy` [4] durchgeführt, wobei die Startwerte der freien Parameter auf zuvor berechnete und aus der Literatur bekannte Werte festgelegt werden. Ebenfalls wird der Wertebereich der Parameter um die zu erwartenden Größenordnungen eingeschränkt, um eine Konvergenz der Minimierung zu gewährleisten. Des Weiteren werden nur Messdaten zwischen $0,3^\circ$ bis $1,3^\circ$ berücksichtigt. Die ermittelte Ausgleichsfunktion und die Messdaten sind in Abbildung 11 dargestellt. Die freien Parameter der beiden Schichten ergeben sich zu

$$\begin{aligned}\delta_{\text{Poly}} &= (2,58 \pm 1,77) \cdot 10^{-6} & \delta_{\text{Si}} &= (1,17 \pm 0,09) \cdot 10^{-5} \\ \beta_{\text{Poly}} &= (2,80 \pm 1,34) \cdot 10^{-7} & \delta_{\text{Si}} &= (1,78 \pm 131,00) \cdot 10^{-7} \\ \sigma_{\text{Luft, Poly}} &= (9,14 \pm 661,00) \cdot 10^{-9} & \sigma_{\text{Poly, Si}} &= (2,06 \pm 8,22) \cdot 10^{-10} \\ d &= (9,31 \pm 4,88) \cdot 10^{-8} \text{ m.}\end{aligned}$$

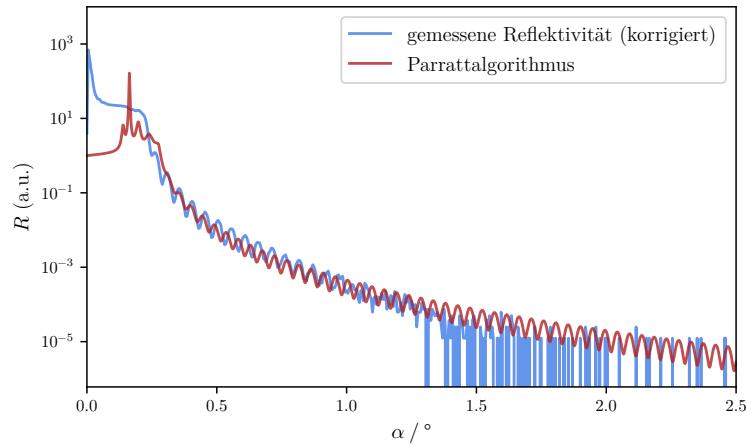


Abbildung 11: Korrigierte Messdaten der Reflektivitäten und die ermittelte Ausgleichsfunktion des Parrattalgorithmus unter Berücksichtigung der Rauigkeitskorrektur.

Mit Gleichung 1 können wieder die kritischen Winkel der beiden Materialien berechnet werden. Sie ergeben sich zu $\alpha_c, \text{Poly} = (0,28 \pm 0,01)^\circ$ und $\alpha_c, \text{Si} = (0,13 \pm 0,04)^\circ$.

5. Diskussion

Literatur

- [1] Nicole Bartek u. a. „Band Gap of Pb(Fe0.5Nb0.5)O₃ Thin Films Prepared by Pulsed Laser Deposition“. In: *Materials* 14 (Nov. 2021), S. 6841. DOI: 10.3390/ma14226841.
- [2] Wolfgang Demtröder. Berlin, Boston: Springer Spektrum Berlin Heidelberg, 2013. ISBN: 978-3-642-29943-8.
- [3] *V44 - Röntgenreflektometrie*. TU Dortmund.
- [4] Pauli Virtanen u. a. „SciPy 1.0: Fundamental Algorithms for Scientific Computing in Python“. In: *Nature Methods* 17 (2020), S. 261–272. DOI: 10.1038/s41592-019-0686-2.

A. Anhang

A.1. Originaldaten

