

V44 Röntgenreflektometrie

1 Einleitung

Die Untersuchung von Grenzflächen und deren Eigenschaften mit der Hilfe der Röntgenreflektivität stellt einen wichtigen Bereich der aktuellen Forschung in der Festkörperphysik dar. Die Röntgenreflektivität bietet die Möglichkeit Strukturinformationen über eine nur wenige Nanometer dicke Schicht an der Oberfläche einer Probe zu gewinnen. Aus dem Streubild lassen sich Aussagen über die Elektronendichte, die Dicke und die Rauigkeit einer dünnen Schicht gewinnen [5]. Dabei können Schichten auf festen als auch auf flüssigen Substraten untersucht werden.

In diesem Versuch sollen die Dichte, Rauigkeit und Schichtdicke eines Films auf einem Siliziumwafer bestimmt werden. Solche Schichten spielen heutzutage beispielsweise in der Mikroelektronik eine wesentliche Rolle.

2 Theorie

Um alle Aspekte dieses Versuches verstehen zu können empfiehlt es sich, folgende Fragestellungen zu bearbeiten:

1. Wie funktioniert eine Röntgenröhre?
2. Was ist ein Göbelspiegel und wie funktioniert er?
3. Warum ist der Realteil des Brechungsindex für Röntgenstrahlen kleiner als eins und welche Folgen hat das?
4. Wie lauten die fresnelschen Formeln und was beschreiben sie?
5. Welche Besonderheit haben die fresnelschen Formeln im Fall von Röntgenstrahlung?
6. Was sind Kiessig-Oszillationen und wie entstehen diese [1]?
7. Wie funktioniert der Parratt-Algorithmus (qualitativ) [2]?
8. Wie wird der Parratt-Algorithmus modifiziert um ihn bei rauen Oberflächen anwenden zu können [5]?

3 Versuchsdurchführung

Die Röntgenreflektivitätsmessungen werden mit dem D8-Labordiffraktometer der Firma Bruker-AXS (Abb. 1) durchgeführt. Dieses befindet sich im Raum CP-E1-152 des Lehrstuhls Experimentelle Physik I. Das D8-Labordiffraktometer ist ein für den Routinebetrieb konzipiertes sogenanntes $\theta - \theta$ -Diffraktometer, bei dem die Röntgenröhre und der Detektor um den Probentisch drehbar sind. Die Röntgenstrahlung wird von einer Kupferanodenröhre emittiert, die mit einem Strom von 35 mA und einer Spannung von 40 kV betrieben wird.



Abbildung 1: Röntgengenerator und D8-Labordiffraktometer von der Firma Bruker AXS, wie es am Lehrstuhl Experimentelle Physik 1 eingesetzt wird.

3.1 Justierung am D-8-Labordiffraktometer

Das Programm „XRD Commander“ ist das Hauptprogramm des Diffraktometers, mit dem die Probe einjustiert und vermessen wird. Bevor die Justierung begonnen wird muss als erstes der maximale Absorber (Abb. 2) eingeschaltet werden, damit der Detektor nicht beschädigt wird.

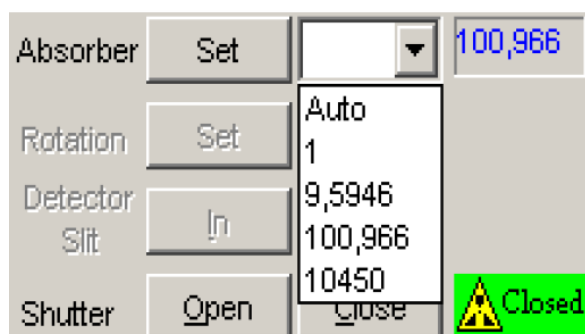


Abbildung 2: Einstellungsmaske des Absorbers mit den einzelnen Werten

Die Motoren werden Durch eintragen der gewünschten Position in das nebenstehende

„Kästchen“ und fixieren der Position mit einem „Häkchen“ daneben bewegt. Nur die Motoren, welche mit einem „Häkchen“ gekennzeichnet sind, werden bewegt. Mit dem Button „Move-Drives“ (Abb. 3) lassen sich die Motoren in die entsprechende Position zu fahren. Um zum Beispiel die Röntgenröhre und den Detektor auf die Position 0 zu fahren, wird zuerst in das jeweils nebenstehende „Kästchen“ die 0 eingetragen und dieses mit dem „Häkchen“ daneben markiert. Nach Betätigung des „Move-Drives“-Buttons fahren die Motoren auf die gewünschte Position.

Achtung: In der Symbolleiste befindet sich ein Button „Init-Drives“, der dem „Move-Drives“-Button sehr ähnlich ist. Diesen bitte **NIE** anklicken, da dieser Button die Motoren wieder an ihre Ursprungsposition zurückfährt und diese erneut von Beginn an justiert werden müssen.

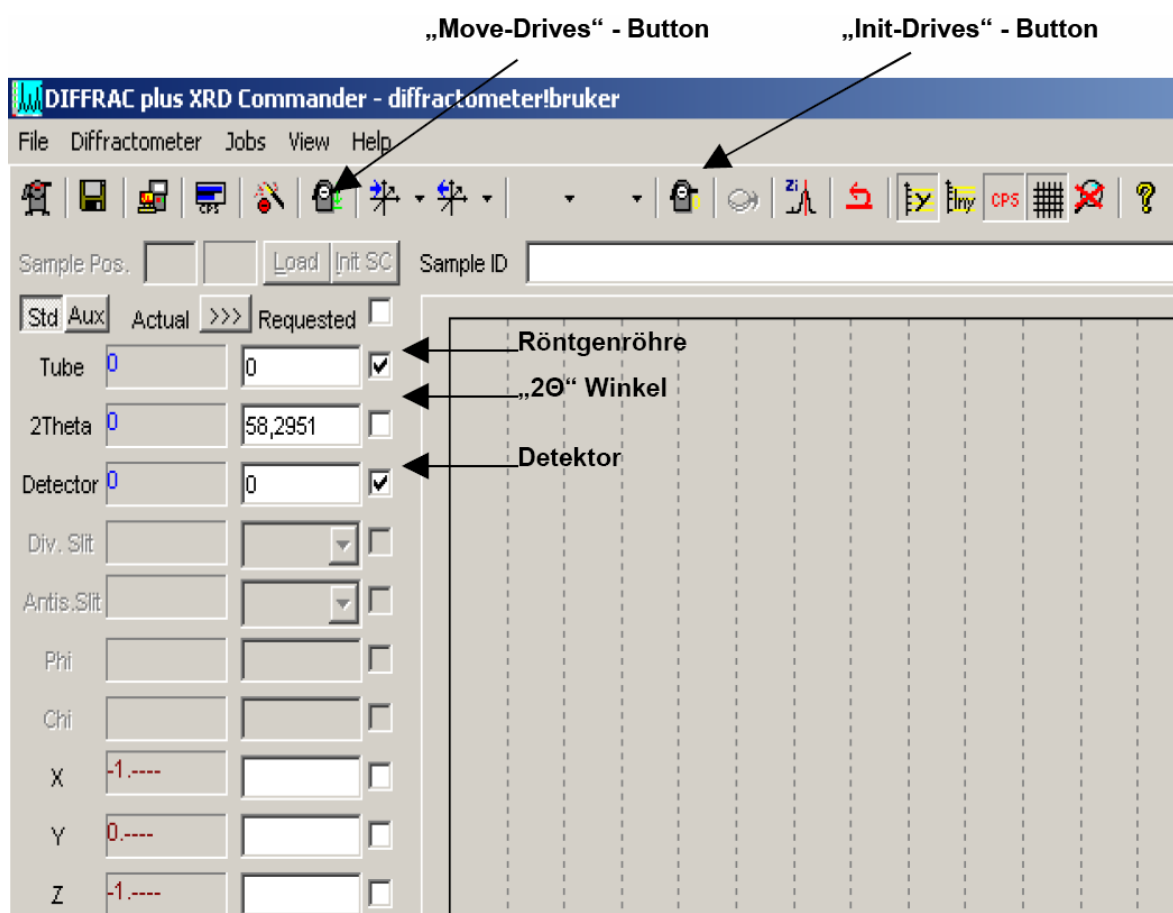
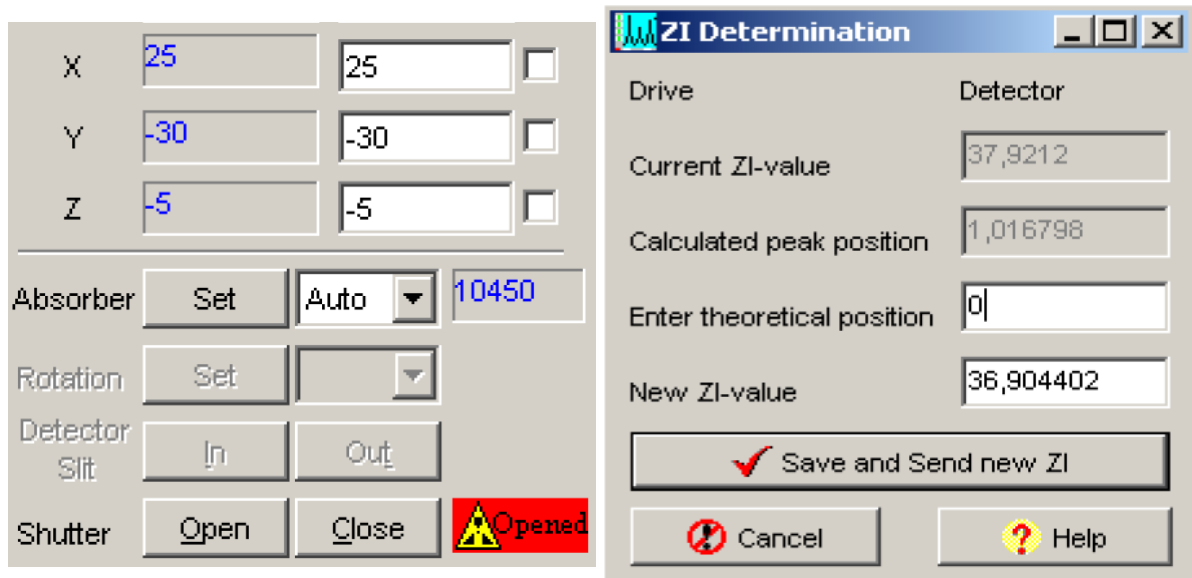


Abbildung 3: Eingabemaske des „XRD Commander“ Steuerprogramms, mit dem das Diffraktometer bedient wird.

Für die Positionierung der Probe stehen drei Messmethoden (**Detektorscan**, **Z-Scan**, **Rockingscan**) zu Verfügung. In Abbildung 6 sind Beispielmessungen der unterschiedlichen Methoden dargestellt, an denen sich bei der Justage orientiert werden kann. Um eine dieser Methoden auszuwählen wird der entsprechende Reiter unter „Scantype“ ausgewählt. Der

Detektorscan dient der Justage des Primärstrahls. Um diesen durchführen zu können sollte die Probe durch ändern der z-Koordinate aus dem Strahl gefahren werden. Um die 0°-Lage des Detektors bestimmen zu können wird die Röhre auf 0° bewegt. Darauffolgend startet der eigentliche **Detektorscan**, welcher den Detektor in einem kleinen Winkelbereich um die Position der Röhre bewegt. Der Scan sollte einer Gaußverteilung ähneln. Das Maximum dieser Verteilung soll die neue Nulllage des Detektors repräsentieren. Durch das Betätigen des „Zi“ – Knopfes (Abb. 3) in der Symbolleiste, wird der Schwerpunkt des gemessenen Peaks bestimmt. Gleichzeitig erscheint eine Eingabemaske „ZI Determination“ (Abb. 4), über die die theoretische Nullposition an das Diffraktometer gesendet wird. Hierfür wird die „0“ in das Feld „Enter theoretical position“ eingegeben und der Button „Save and Send new Zi“ betätigt.

Im Anschluss daran sollte die Probe durch den Probenstisch über die X-, Y- und Z-Koordinate mit Schrittmotoren (Abb. 4) grob nach Augenmaß positioniert werden. Hierzu wird die gewünschte Position für jede Koordinate eingegeben und mit dem „Move-Drives“ – Button gefahren.



(a) Eingabemaske der X-, Y- und Z-Koordinate.

(b) Eingabemaske „ZI Determination“

Abbildung 4: Wichtige Eingabemasken des „XRD Commander“.

Die Probe ist optimal justiert, wenn sie parallel zum Strahl steht und die halbe Intensität des Primärstrahls abschattet. Der **Z-Scan** (Abb. 5) verschiebt die Probe in der Höhe und dient zur ersten Bestimmung dieser halben Abschattung. Solange sich die Probe unterhalb des Strahls befindet, wird die volle Intensität I_{max} gemessen. Diese nimmt immer mehr ab, je weiter die Probe in den Strahl gefahren wird. Hierbei soll der z-Wert bestimmt werden, bei dem die Intensität $\frac{1}{2}I_{max}$ beträgt. Für eine grobe Bestimmung der halben Abschattung wird auf die halbe maximale Intensität im dargestellten Scan doppelt geklickt und „Z“ durch betätigen des „Move Drives“ – Buttons an diese Position gefahren. Durch das Doppelklicken übernimmt die

Z-Koordinate den entsprechenden Wert automatisch. Die Probe befindet sich jetzt ungefähr in der halben Abschattung, d.h. sie verdeckt gerade die Hälfte des Primärstrahls.

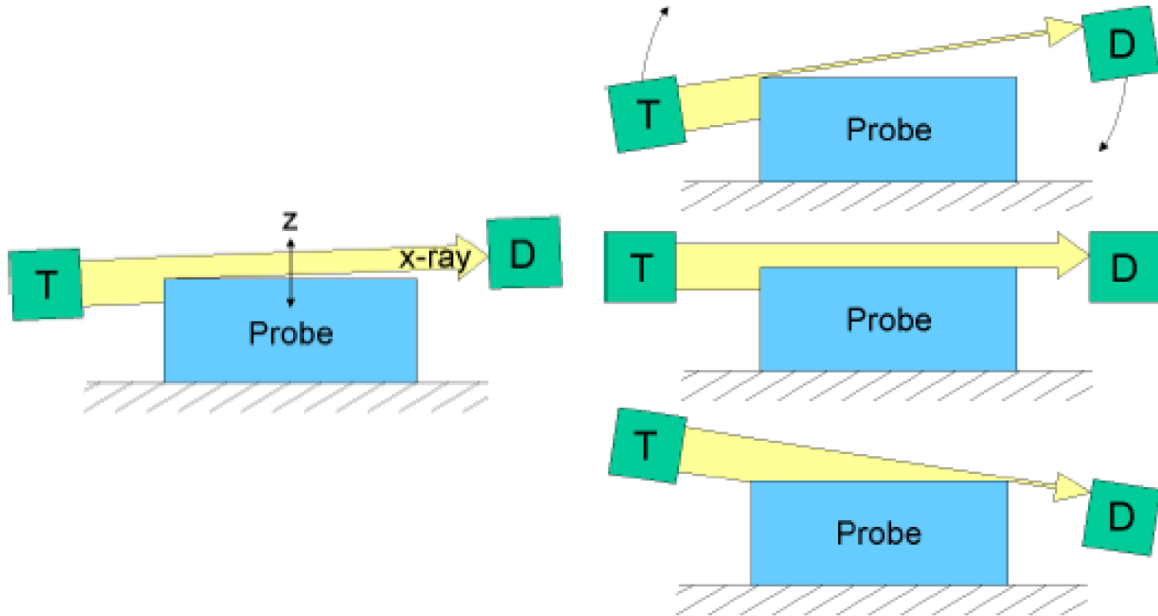


Abbildung 5: links: Die Probe befindet sich in der halben Abschattung, aber der Strahl verläuft möglicherweise noch nicht parallel zur Probenoberfläche. rechts: Rocking-Scan um $2\theta = 0^\circ$ um die möglich Fehlstellung zu korrigieren [4].

Ist die Probe so justiert, dass die Intensität $\frac{1}{2}I_{max}$ beträgt wird ein **Rocking-Scan** (Abb. 5) durchgeführt. Dieser lässt die Röntgenröhre und den Detektor um die Probe drehen, sodass die Winkelsumme $\alpha_i + \alpha_f = 2\theta$ konstant bleibt. Dieser Scan entspricht eine Drehung der Probe im Strahl. Er liefert einerseits Informationen über die Verkippung der Probe zum Strahl, andererseits kann er verwendet werden, um die Probe in x-Richtung (in Strahlrichtung) in den Drehpunkt des Diffraktometers zu bringen. Die Messung sollte ein symmetrisches Dreieck ergeben. In der Realität kann das Dreieck asymmetrisch sein und auch der Höchstwert der Intensität wird nicht bei 0° , sondern einem anderen Wert erreicht. In ersten Fall (Asymmetrie) trifft der Strahl die Probe nicht genau in der Mitte (d.h. die Probe liegt nicht im Drehpunkt des Diffraktometers). Falls das Dreieck asymmetrisch ist und z.B. der Anstieg auf der linken Seite flacher ist als auf der rechten Seite, muss die Y-Koordinate (Abb. 4) verkleinert werden (und umgekehrt). Im zweiten Fall stimmt die Winkleichung der Röhre im Bezug auf die Probenoberfläche noch nicht. Sobald das Dreieck symmetrisch ist, wird über einen Doppelklick auf das Maximum dessen Position bestimmt und an die Motoren übermittelt. Mit „Move Drives“ lassen sich die Motoren an die entsprechenden Positionen fahren.

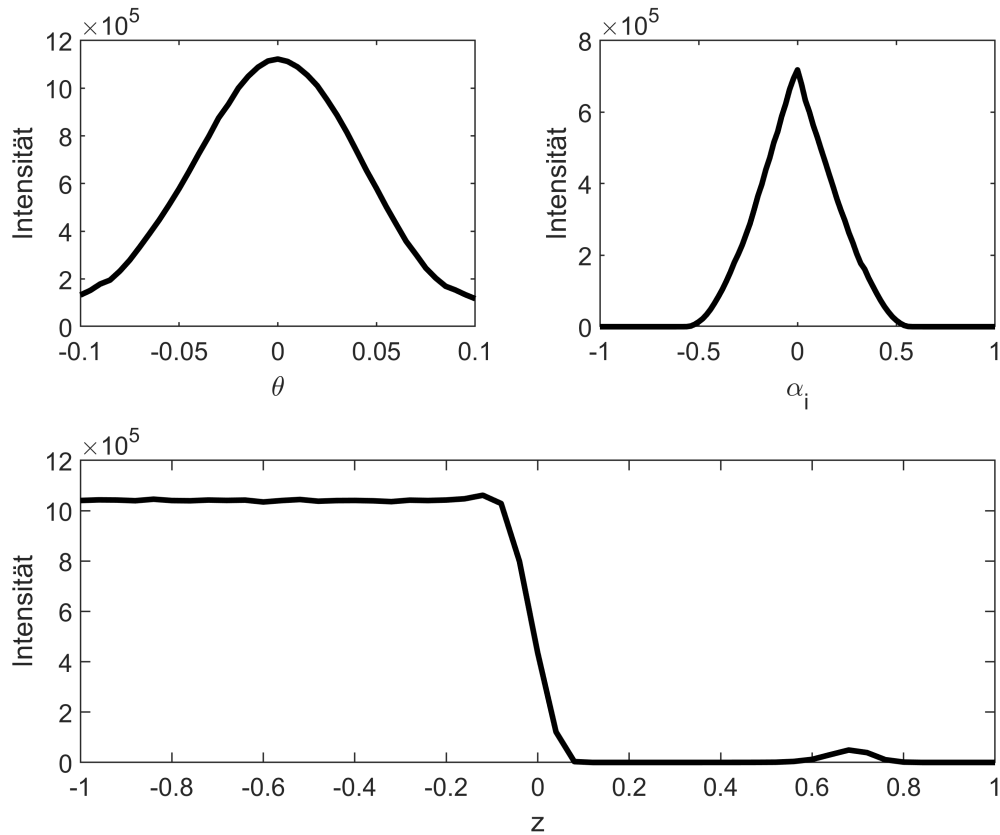


Abbildung 6: Beispielmessungen der unterschiedlichen Justagescans. Oben links: Detektorscan. Oben rechts: Rockingscan bei $2\theta = 0^\circ$. Unten: Z-Scan

Die Röntgenröhre und der Detektor befinden sich nun in der Position, an der der Rockingscan die maximale Intensität ermittelt hat. Diese ist normalerweise nicht exakt bei 0. Durch die parallele Ausrichtung des Röntgenstrahles liegt die Probe nicht mehr mittig im Strahl. Aus diesem Grund muss ein erneuter Z-Scan durchgeführt werden, um die Probe wieder auf die halbe Abschattung zu fahren.

Anschließend wird ein zweiter Rockingscan unter einem Winkel durchgeführt, um eine noch exaktere Justierung der Probe im Strahl zu gewährleisten. Der Scan wird, genau wie zuvor beschrieben, durchgeführt. Ist ein deutlicher Reflex zu erkennen kann durch das Drücken der „Zi“-Taste der Ein- und Ausfallswinkel auf $0,15^\circ$ gesetzt werden. Hierzu wird nach dem Anklicken der „Zi“-Taste im Feld „Enter theoretical Position“ $0,15$ eingetragen und gespeichert.

Abschließend kann aus einem dritten Z-Scan die halbe Abschattung genauer bestimmt werden, weil sie aus dem Maximum der Intensitätskurve abgelesen werden kann, d.h. die Intensität des Primärstrahls wird in einem bestimmten Höhenbereich Δz vollständig reflektiert. Deshalb soll jetzt ein Z-Scan unter einem Winkel gefahren werden. Der Scanbereich sollte im Bereich des Nullpunktes liegen. Das Maximum wird durch Doppelklicken auf den Schwerpunkt

der Kurve bestimmt und die entsprechende z-Position angefahren. Damit ist die Probe justiert. In Tabelle 1 sind die Justagemessungen mit allen wichtigen Werten zusammengefasst.

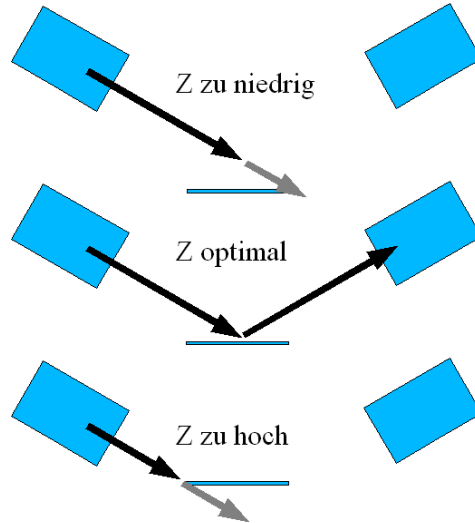


Abbildung 7: Z-Scan unter einem Winkel von $2\theta = 0,3^\circ$.

Typ	Messbereich	Schrittweite	Messdauer pro Messpunkt
Detektorscan	−0,5 bis 0,5	0,02	1
z-Scan	−1 bis 1	0,04	1
Rockingscan $2\theta = 0$	−1 bis 1	0,04	1
z-Scan	−0,5 bis 0,5	0,02	1
Rockingscan $2\theta = 0,3$	0 bis 0,3	0,005	1
z-Scan $2\theta = 0,3$	−0,5 bis 0,5	0,02	1

Tabelle 1: Orientierung für die Werte bei der Justierung. Für eine gute Justage empfiehlt es sich Messungen mit feinerer Abtastung und in einem kleineren Bereich zu wiederholen.

3.2 Messung am D8-Labordiffraktometer

Der Messvorgang des Polymerfilmes auf einem Silizium-Wafer kann nun beginnen. Bei dieser Messung wird ein sog. Reflektivitätsscan durchgeführt. Der Einfallswinkel α_i auf die Probe und der Winkel zwischen Probe und Detektor α_f sind bei einem solchen Scan gleich. Hierfür wird der „Scantype“ „Omega/2Theta“ gewählt. Für die Messung kann der Scanbereich von und 0° bis $2,5^\circ$ gewählt werden. Für diesen Messbereich müssen zusätzlich die Schrittweiten und die Zeit pro Schritt (Messpunkt) eingegeben werden. Für die Schrittweiten werden $0,005^\circ$ vorgeschlagen. Die Messzeit sollte mindesten 5 s pro Messpunkt betragen. Um die „wahre Reflektivität“ zu erhalten muss ein so genannter „Diffuser Scan“, der den Anteil der gestreuten Intensität an der Reflektivität bestimmt, durchgeführt werden. Aus diesem Grund wird eine

zweite Messung durchgeführt, bei der der Detektorwinkel um $0,1^\circ$ gegenüber dem Einfallswinkel verschoben wird. Der Messvorgang verläuft analog zu dem vorher Beschriebenen und die Datensicherung unterscheidet sich lediglich in dem Dateinamen. Es sollten dieselben Schrittweiten und Zählraten wie bei dem Reflektivitätsscan verwendet werden.

Jede Messung sollte im .raw-Format abgespeichert und über das Programm „File Exchange“ in .uxd umgewandelt werden. Damit ist der Messvorgang des Polymerfilmes auf einem Silizium-Wafer abgeschlossen und die Daten können ausgewertet werden.

4 Versuchsauswertung

4.1 Aufgaben

Ziel: Bestimmen Sie die Dispersion und Rauigkeit des Siliziumwafers sowie die Schichtdicke, Dispersion und Rauigkeit der Polyesterolschicht.

Gehen sie dabei wie folgt vor:

1. Passen Sie an den Detektorscan eine Gaußfunktion an und bestimmen Sie dadurch die Halbwertsbreite und die maximale Intensität im Detektorscan.
2. Ziehen Sie den diffusen Scan von dem Reflektivitätsscan ab. Stellen Sie die Reflektivität in einem Diagramm dar. Zeichnen Sie zusätzlich die Fresnelreflektivität einer ideal glatten Siliziumoberfläche in das Diagramm ein.
3. Berechnen Sie den Geometriewinkel α_g der untersuchten Probe aus den Daten, die Sie bei der Justierung aufgenommen haben! Leiten Sie daraus den Korrekturfaktor G ab und korrigieren Sie mit diesem die aufgenommenen Daten. Berechnen Sie aus der Strahlbreite und der Probenlänge den Geometriewinkel und vergleichen Sie ihn mit dem gemessenen.
4. Schätzen Sie die Schichtdicke über die aufgenommene Reflektionskurve ab.
5. Bestimmen Sie unter Verwendung der Wellenlänge und des Einfallswinkels die Schichtdicke. Wie groß ist der Fehler? Vergleichen Sie Ihren Wert mit der Abschätzung.
6. Bestimmen Sie das Dispersionsprofil der untersuchten Probe unter der Verwendung des Parratt-Algorithmus. Verwenden Sie dabei modifizierte Fresnelkoeffizienten, um die Rauigkeit mit einzubeziehen. Sie können hierfür ein Programm Ihrer Wahl verwenden (Programmcode als Anhang beifügen).
7. Berechnen Sie aus Literaturwerten die Dispersion von Silizium und Polyesterol und vergleichen sie diese mit Ihren Ergebnissen.
8. Berechnen Sie die Lage des Kritischen Winkels und vergleichen sie die mit Ihrer Messung.

4.2 Anmerkung zum Geometriefaktor und Geometriewinkel

Der Geometriefaktor G (Abb. 8) berücksichtigt, dass erst bei einem genügend großen Einfallswinkel, dem sog. Geometriewinkel α_g , der gesamte Strahl auf die Oberfläche trifft und reflektiert wird. Bei einem Durchmesser D der Probenoberfläche und der Höhe d_0 des Strahls gilt für den Geometriewinkel

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

wobei

$$G = 1 \quad \text{mit} \quad \alpha_i < \alpha_g$$

In unserem Fall sind die Einfallswinkel α_i anfangs sehr klein und somit ist die Fläche, die der Strahl überstreicht, größer als die Probenoberfläche, so dass nicht die gesamte eingestrahelte Intensität von der Probenoberfläche reflektiert wird und in den Detektor gelangen kann. Dies hat einen Abfall der Reflektivität im Bereich sehr kleiner Winkel $\alpha_i < \alpha_g$ zur Folge. Der Geometriefaktor G berücksichtigt diesen Effekt und wird als das Verhältnis der Strahlbreite $D \sin \alpha_i$, die die Probenoberfläche trifft, zur Gesamtstrahlbreite d_0 definiert [3].

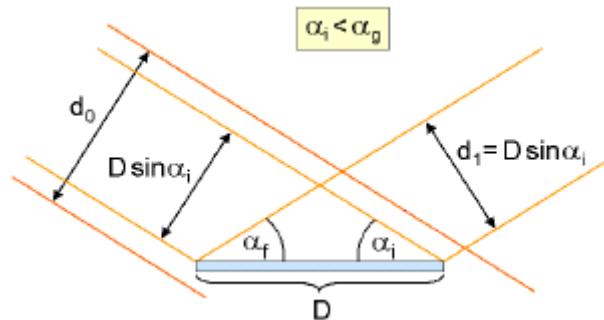


Abbildung 8: Strahlverlauf zur Veranschaulichung des Geometriewinkels [4]

Literaturverzeichnis

- [1] Heinz Kiessig, „Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten“, in: *Annalen der Physik* 402.7 (1931), S. 769–788.
- [2] L. G. Parratt, „Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays“, in: *Phys. Rev.* 95 (2 Juli 1954), S. 359–369, DOI: 10.1103/PhysRev.95.359, URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.95.359>.

- [3] J. Stettner, „Charakterisierung von rauhen MBE-CoSi₂-/Si-Schichtsystemen mittels Röntgenstreuung“, Diss., Universität Kiel, 1995.
- [4] S. Streit, „Die Grenzflächenstruktur von Wasser-Glyzerin-Mischungen“, Masterarb., Universität Dortmund, 2004.
- [5] Metin Tolan, *X-Ray Scattering from Soft-Matter Thin Films, Materials Science & Basic Research*, Springer-Verlag, 1999.