



W. Kriegseis

**Röntgen-Reflektometrie**  
**zur**  
**Dünnschichtanalyse**

2002



## Inhalt

	Seite
1. Einleitung	1
1.1. Klassische Verfahren zur Schichtdickenbestimmung	1
1.2. Dielektrizitätskonstante und Brechungsindex	3
1.3. Dielektrisches Verhalten von Festkörpern im Röntgenbereich	5
1.4. Messprinzip der Röntgen-Reflektometrie	6
1.5. Geschichte	7
2. Berechnung des Brechungsindex von Röntgenstrahlung	8
2.1. Oszillatormodell für Isolatoren	8
2.2. Oszillatormodell für Halbleiter und Metalle	11
2.3. Real- und Imaginärteil des Brechungsindex	13
2.3.1. Realteil $n$	13
2.3.2. Imaginärteil $\beta$	14
2.3.3. Brechungsindex von Verbindungen	15
3. Reflexion an homogenem Substrat	16
3.1. Kritischer Winkel der Totalreflexion	16
3.2. Intensität der reflektierten Strahlung	18
3.3. Eindringtiefe der Röntgenstrahlung	21
4. Berechnung der Reflexion an Dünnschichten nach der Rekursions-Methode von Parrat	24
5. Dickenbestimmung einer Einzelschicht aus dem Winkelabstand der Interferenzmaxima	26
6. Rauigkeit	28
7. Beispiele	29
8. Literatur	33
Anhang	
A1. Rechnungen zur Parrat-Rekursionsformel	34
A1.1. Herleitung der Basisgleichungen aus den Maxwell'schen Gleichungen	34
A1.2. Herleitung der Parrat-Rekursionsformel aus den Basisgleichungen	37
A1.3. Aufbereitung der Parrat-Rekursionsformel für Programmier-Anwendungen	38
A1.4. Programmablauf für den Parrat-Rekursionsalgorithmus	40
A2. Parameter-Tabelle der Elemente zur Berechnung des komplexen Brechungsindex	42



## 1. Einleitung

Mit der zunehmenden technischen Bedeutung von Dünnschichten und Multilayern wächst das Interesse an Methoden zur Schichtcharakterisierung. Die Röntgenreflektometrie (XRR = X-ray reflection) gestattet auf experimentell relativ einfache Weise ohne Materialeinschränkung an Einfach- und Mehrschichten von Festkörpern die Bestimmung von Dichte, Schichtdicke und Rauigkeit. Das Verfahren bietet gegenüber anderen optischen Methoden mit sichtbarem Licht den Vorteil, daß die optischen Eigenschaften im Röntgenbereich nicht mehr von den Bindungseigenschaften der Gitterbausteine des Festkörpers abhängen, sondern im Wesentlichen nur von der Elektronendichte. Es sind ausschließlich Elektronen von Einzelatomen zu berücksichtigen. Aus diesem Grund ist es problemlos möglich, den komplexen Brechungsindex für Substanzen beliebiger Stöchiometrie zu berechnen. Die hierfür benötigten Parameter lassen sich für sämtliche chemischen Elemente aus Tabellen entnehmen. Bei Verbindungen muss die Stöchiometrie lediglich zur Auswahl und Gewichtung der Einzelatome berücksichtigt werden. Röntgenstrahlung wird im Vergleich zu sichtbarem Licht nur wenig absorbiert. Es können daher auch mehrlagige Metallschichten problemlos analysiert werden.

### 1.1. Klassische Verfahren zur Schichtdicken-Bestimmung

Das Hauptanwendungsgebiet der Röntgenreflektometrie ist die Schichtdickenmessung. Die Methode steht damit in Konkurrenz zu einer Reihe von klassischen Verfahren, die in Tab. 1 zusammengestellt sind. Häufige Anwendung finden die optischen Methoden, die Schwingquarzmessung sowie die Stylus-Abtastung. Der Schwingquarz läßt sich allerdings nur während der Schichtherstellung einsetzen. Die Stylus-Abtastung – der Vorläufer des Rasterkraftverfahrens - galt lange Zeit als Standardverfahren der Schichtdickenmessung. Sie setzt die Erzeugung definierter Stufen voraus und ist ungenauer als die optischen Methoden, die in letzter Zeit zunehmend an Bedeutung gewonnen haben .

Die Schichtdickenbestimmung aus der **Reflexion von sichtbarem Licht** steht heute als Zusatz zu Lichtmikroskopen zur Verfügung. Gemessen werden im Allgemeinen die Interferenzen des an der Dünnschicht reflektierten Lichts bei senkrechtem Einfall. Die Übertragung des einfallenden und reflektierten Lichtstrahls erfolgt durch Glasfaserkabel. Computerauswertungen stellen das Messergebnis in Zeitspannen  $< 1$  s zur Verfügung. Das Verfahren setzt allerdings transparente Schichten und die Kenntnis des Dispersionsverhaltens der Schichten und Substrate voraus. Abb. 1 zeigt das als Reflektivität bezeichnete Intensitätsverhältnis von einfallendem zu reflektiertem Strahl für zwei Schichten von 450 und 500 nm Dicke auf Glas. Die jeweilige Schichtdicke ergibt sich aus dem Abstand der Maxima und Minima. Die Brechungsindizes von Schicht und Substrat sind in diesem Beispiel entgegen der Realität unabhängig von der Wellenlänge. In der Praxis werden zur Berücksichtigung der Dispersion materialabhängige Modelle zugrunde gelegt, deren Parameter anhand der Messergebnisse angepasst werden.

Bei der **Ellipsometrie** wird die dickenabhängige Änderung des Polarisationszustandes des an der Dünnschicht reflektierten Lichtes gemessen. Wenn schräg auffallendes linear polarisiertes Licht von einer absorbierenden Festkörperoberfläche reflektiert wird, ist es elliptisch polarisiert aufgrund der Phasendifferenz der Vektoren des elektrischen Feldes parallel und senkrecht zur Einfallrichtung. Abb. 2 zeigt die Messanordnung eines Ellipsometers. Im Strahlengang des einfallenden Lichtes befinden sich ein Polarisator und ein Phasenschieber, das reflektierte Licht passiert einen Analysator. Bei Polarisatorstellung auf  $45^\circ$  wird der Phasenschieber so eingestellt, dass das am Substrat der zu untersuchenden Probe reflektierte Licht linear

Tab. 1: Klassische Methoden zur Schichtdickenbestimmung

<b>Methode</b>	<b>Messbereich</b>	<b>Voraussetzungen, Prinzip</b>
Abtastung (Stylus, Rasterkraft)	2 nm – 10 µm	Stufe erforderlich
Elektronenmikroskop	30 nm - 100 µm	Querschnitts-Messung
<b>Wägung:</b>		
Mikrowaage	0.1 nm - 800 µm	große Flächen, sehr vibrationsempfindlich
Schwingquarz	0.1 nm - 100 µm	Änderung der Resonanz-Frequenz (≈ 6 MHz)
<b>elektrisch:</b>		
Widerstand	$3 \times 10^{-5}$ - 300 nm	Metalle, Nullmethode an Messbrücke
Leitfähigkeit	$3 \times 10^{-3}$ - 3000 nm	Metalle, konst. Spannung, Stromänderung
Kapazität	1 - 100 µm	Dielektrische Schicht
Wirbelstrom	4 nm - 5 µm	NE-Schicht auf Isolator oder umgekehrt
<b>optisch:</b>		
Spektrale Reflexion, Fotometer	10 - 1000 nm	Komplexer Brechungsindex, Reflektivität des Substrats
Ellipsometrie	< 0.1 - 1000 nm	Polarisation des reflektierten Lichts
<b>Radioaktivität:</b>		
Strahlungs-Schwächung	200 nm - 70 µm	Schwächung von $\gamma$ - und $\beta$ -Strahlung durch Metalle

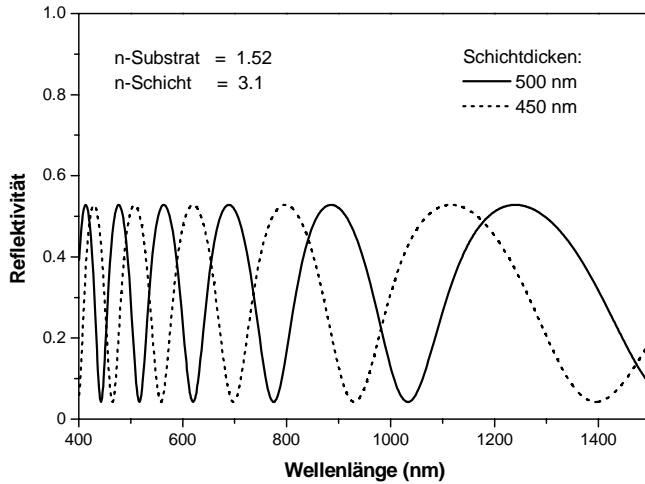


Abb. 1:  
Reflektivität zweier nicht absorbierender Schichten von 450 und 500 nm Dicke mit Brechungsindex  $n = 3.1$  auf Glas-Substrat ( $n = 1.52$ )

polarisiert ist. Es gibt dann eine Stellung des Analysators, in der kein Licht zum Detektor gelangt. Befindet sich zusätzlich eine Dünnschicht auf dem Substrat, ändert sich die Phasenlage. Um wieder zur Nullanzeige zu gelangen, müssen die Stellungen des Phasenschiebers und des Analysators verändert werden. Wenn einer der drei Parameter Schichtdicke, reeller Brechungsindex und Absorptionskoeffizient bekannt sind, lassen sich aus diesen Änderungen mit einer Messung die beiden fehlenden Parameter bestimmen.

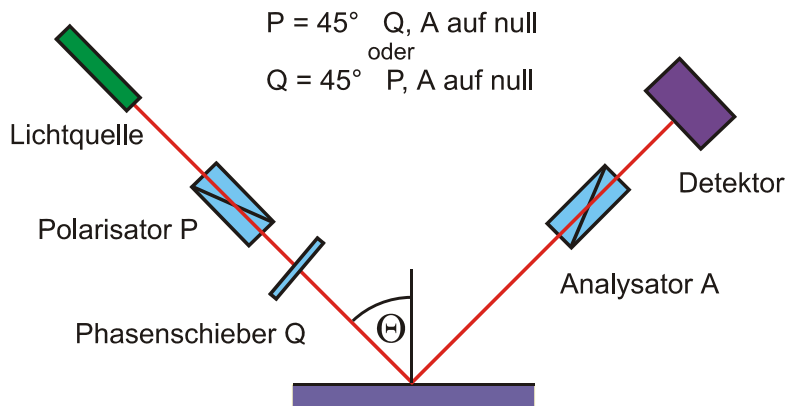


Abb. 2:  
Messanordnung eines Ellipsometers

## 1.2. Dielektrizitätskonstante und Brechungsindex

Für ein unmagnetisches Medium ( $\mu = 1$ ) ergibt sich aus den Maxwell'schen Gleichungen die Wellengleichung

$$\Delta \vec{E} - \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0$$

- wobei
- $\vec{E}$  = elektrisches Feld
  - $\varepsilon_0$  = Influenzkonstante
  - $\mu_0$  = magnetische Feldkonstante
  - $\varepsilon$  = Dielektrizitätskonstante

Setzt man weiterhin voraus, dass das Medium isotrop ist und beschränkt man sich auf die Betrachtung in Ausbreitungsrichtung  $\vec{r}$  der Welle, so kann man zu skalarer und eindimensionaler Schreibweise übergehen.

Mit Einführung der Lichtgeschwindigkeit  $c_0 = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$  erhält man

$$\frac{\partial^2 E}{\partial r^2} - \frac{\varepsilon}{c_0^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0. \quad (1.1)$$

Dies wird gelöst durch

$$E = E_0 e^{i(\omega t - kr)} \quad (1.2)$$

mit der Kreisfrequenz  $\omega$  und dem Wellenvektor  $k$  in  $r$ -Richtung, wobei  $\frac{\varepsilon}{c_0^2}$  in (1.1) ersetzt wurde durch

$$\frac{k^2}{\omega^2}.$$

Aus  $k^2 = \varepsilon \frac{\omega^2}{c_0^2} = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^2 = \varepsilon \left(\frac{2\pi}{\lambda_0}\right)^2 = \varepsilon k_0^2$  mit dem Vakuum-Wellenvektor  $k_0$  folgt

$$\varepsilon = \frac{k^2}{k_0^2}. \quad (1.3)$$

$\lambda_0$  ist die Wellenlänge im Vakuum.  $\varepsilon$  ist komplex und kann aufgespalten werden in Realteil  $\varepsilon'$  und Imaginärteil  $\varepsilon''$

$$\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon'' . \quad (1.4)$$

$k/k_0$  bezeichnet man als Brechungsindex  $\tilde{n}$ . Auch  $\tilde{n}$  ist komplex und kann geschrieben werden als

$$\tilde{n} = n - i\beta . \quad (1.5)$$

Aus der Definition von  $\tilde{n}$  sowie (1.3) und (1.4) folgt

$$\tilde{n} = \sqrt{\varepsilon} \quad \varepsilon' = n^2 - \beta^2 \quad \varepsilon'' = 2n\beta . \quad (1.6)$$

$n$  gibt das Verhältnis der Phasengeschwindigkeiten der Welle im Medium und in Vakuum an.

Einsetzen von  $k = \tilde{n}k_0 = (n - i\beta)k_0$  in (1.2) ergibt

$$E = E_0 e^{i(\omega t - nk_0 r)} e^{-k_0 \beta r} . \quad (1.7)$$

Der erste Exponentialterm in (1.7) beschreibt die Phasenänderung, der zweite die Dämpfung der Welle. Die Intensität  $I$  der Welle ist proportional zum Betragsquadrat von  $E$ . Aus (1.7) wird

$$I \propto EE^* = E_0^2 e^{-2k_0 \beta r} . \quad (1.8)$$

Die Größe  $2k_0 \beta$  bezeichnet man als Absorptionskoeffizient. Aus den Gleichungen (1.4) - (1.6) lassen sich Formeln für die Berechnung von  $n$  und  $\beta$  aus  $\varepsilon'$  und  $\varepsilon''$  ableiten.  $\tilde{n} = \sqrt{\varepsilon' - i\varepsilon''} = n - i\beta$  wird erfüllt durch



$$n = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} + \varepsilon'} \quad (1.9)$$

$$\beta = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} - \varepsilon'} . \quad (1.10)$$

**Anmerkung:**

Der Ansatz (1.2) und die Definitionsgleichungen (1.4) und (1.5) entsprechen der Schreibweise, die in der gesamten Literatur über das optische Verhalten von Röntgenstrahlung üblich ist. Anstelle von (1.2) kann man als Lösung der Wellengleichung (1.1) auch schreiben

$$E = E_0 e^{i(kr - \omega t)} .$$

Man kommt auch hiermit wie in (1.7) zu einem Dämpfungsglied mit negativem Vorzeichen im Exponenten, wenn man ansetzt

$$\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$$

und  $\tilde{n} = n + i\kappa .$

Diese Schreibweise ist heute Standard bei der Beschreibung des Verhaltens von sichtbarem Licht. Der Imaginärteil des Brechungsindex wird hier als  $\kappa$  bezeichnet anstelle von  $\beta$ . Auf die Vorzeichen in den Gleichungen (1.6), (1.9) und (1.10) wirken sich diese Unterschiede nicht aus.

### 1.3. Dielektrisches Verhalten von Festkörpern im Röntgenbereich

Die Dielektrizitätskonstante bzw. der Brechungsindex eines Festkörpers hängen ab von der Polarisations-Wechselwirkung des elektrischen Feldstärkevektors mit den Gitterbausteinen und Elektronen des Festkörpers. Abhängig von der Frequenz der eingestrahlten Welle gibt es drei charakteristische Polarisierbarkeitsbereiche, die schematisiert in Abb. 3 dargestellt sind. Bei sehr niedrigen Frequenzen im Mikrowellenbereich setzt sich die Polarisierbarkeit zusammen aus einem Orientierungsanteil, sowie einem ionischen und elektronischen Anteil. Die Orientierungspolarisation – auch dipolare Polarisation genannt – tritt auf, wenn der Festkörper permanente Dipole enthält, deren Ausrichtung sich am elektrischen Feld orientiert. Mit zunehmender Frequenz können die Dipole dem elektrischen Wechselfeld nicht mehr folgen. Der ionische Anteil resultiert aus der Schwingung und Deformation ionischer Bausteine. Er endet im allgemeinen wegen der Massenträgheit der Ionen im Infrarotbereich. Im Bereich des sichtbaren Lichts wird die Dielektrizitätskonstante durch die elektronische Polarisation bestimmt. Sowohl die ionische als auch die elektronische Polarisation lassen sich klassisch in guter Näherung durch das Lorentz-Oszillatormodell einer erzwungenen Schwingung beschreiben. Die hierbei auftretenden Resonanzen sind in Abb. 3 ebenfalls angedeutet.

Bei Röntgenstrahlung befindet man sich im Frequenzbereich oberhalb der Resonanzen der elektronischen Polarisation, in dem  $\varepsilon$  und  $n < 1$  sind. Hier ist die Phasengeschwindigkeit größer als die Lichtgeschwindigkeit. Es liegt allerdings auch hier normale Dispersion vor, wie im sichtbaren Spektralbereich, der im Allgemeinen auf der niederfrequenten Seite der elektronischen Resonanz liegt.

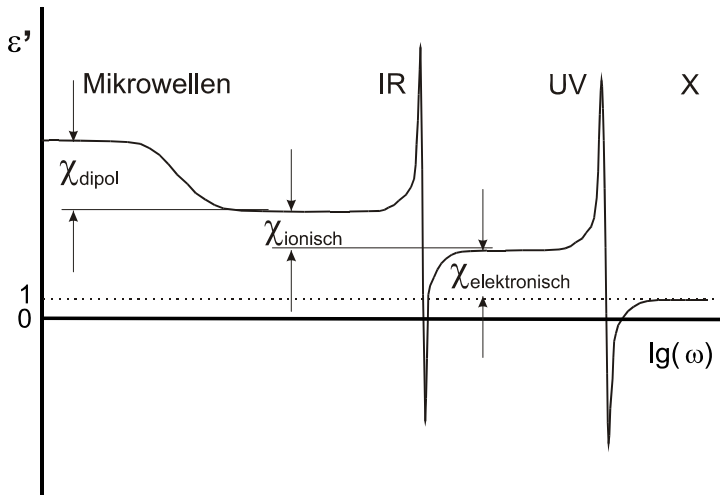


Abb. 3:  
Schematisierte Darstellung der Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon$  von der Frequenz der eingestrahlten Welle

Da für Röntgenstrahlung in Festkörpermaterien der Brechungsindex  $n < 1$  ist, bildet Luft mit  $n = 1$  das optisch dichtere Medium – gerade umgekehrt wie bei sichtbarem Licht. Wenn sichtbares Licht aus einem optisch dichteren Medium unter einem Winkel, der kleiner als der kritische Winkel ist, auf die Grenzfläche zu einem optisch dünneren Medium trifft, kommt es zur Totalreflexion. Hiervon macht man zum Beispiel in Umlenkprismen von optischen Geräten Gebrauch. Da bei Röntgenstrahlung Luft das optisch dichtere Medium darstellt, findet hier bei hinreichend kleinen Einfallswinkeln Totalreflexion an der Oberfläche von optisch dünneren Festkörpern statt. Für den kritischen Winkel  $\phi_c$  der Totalreflexion gilt dabei  $\phi_c < 1^\circ$ .

#### 1.4. Messprinzip der Röntgen-Reflektometrie

Monochromatische Röntgenstrahlung wird an Festkörperoberflächen reflektiert, durchläuft nach der Reflexion einen Monochromator und gelangt zu einem Detektor (Abb. 4). Über dem Auftreffpunkt der Strahlung auf der Probe befindet sich eine absorbierende Schneide, die zur eindeutigen Winkelvorgabe nahezu auf der Probe aufsitzt. Während einer Messung wird durch Kippen der Probe der Röntgen-Einfallswinkel  $\phi$  kontinuierlich hochgefahren. Gleichzeitig schwenken die Komponenten auf der Detektorseite so mit, dass stets Einfallswinkel gleich Ausfallswinkel ist.

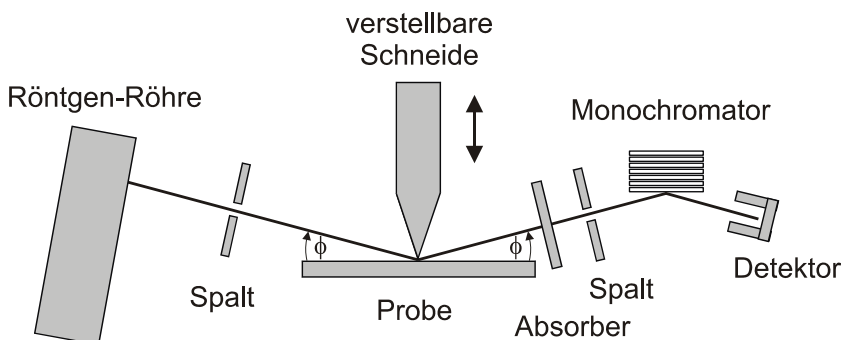


Abb. 4:  
Messanordnung der Röntgen-Reflektometrie

Abb. 5 zeigt das Messergebnis einer 56 nm dicken  $\text{TiO}_2$ -Schicht auf Quarzglas. Aus dem kritischen Winkel, der hier bei  $0.286^\circ$  liegt, kann die Dichte der Schicht bestimmt werden. Bei größeren Winkeln nimmt die Intensität der reflektierten Strahlung relativ stark ab. Sie wird daher in logarithmischem Maßstab aufgetragen. Die Interferenz der an der Ober- und Unterseite der Schicht reflektierten Strahlung erzeugt Intensitäts-Minima und Maxima, die zur Ermittlung der Schichtdicke dienen. Aus dem winkelabhängigen Abfall der

gesamten Kurve und der Tiefe der auftretenden Minima läßt sich auf die Oberflächenrauigkeit der Schicht und des Substrats schließen. Die Schichtdickenauswertung erfolgt allerdings nicht durch nachträgliches Ausmessen der Maxima- oder Minima-Abstände, sondern durch den Vergleich des Messergebnisses mit einer theoretisch berechneten Kurve, die optimal angepasst wird. Hierfür stellt ein Auswerteprogramm zahlreiche Hilfsmittel zur Verfügung.

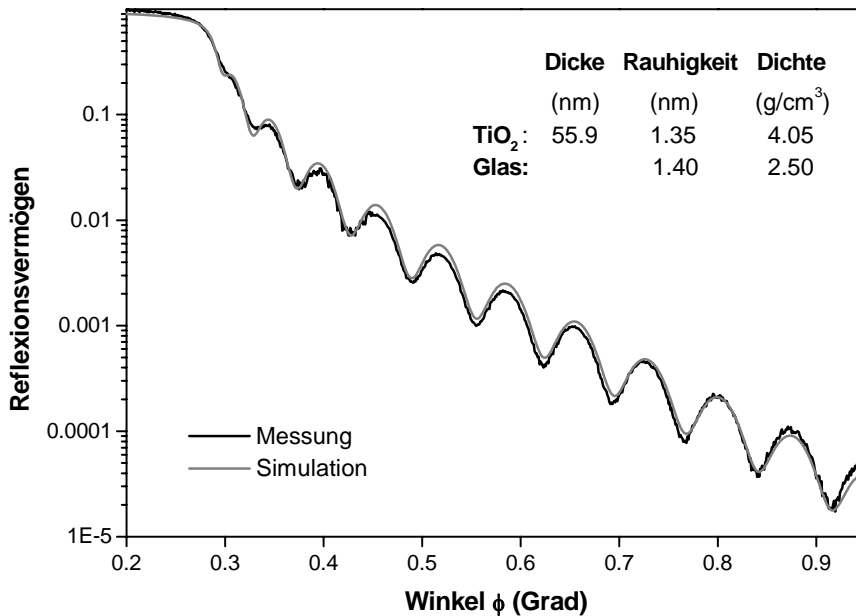


Abb. 5:  
Gemessene reflektierte Röntgen-Intensität an einer 56 nm dicken TiO<sub>2</sub>-Schicht auf Quarzglas

Wegen des starken Intensitätsabfalls bei größeren Einfallswinkeln wird die Messung mit möglichst hoher Leistung der Röntgenröhre durchgeführt. Dies würde bei niedrigen Winkeln eine Übersättigung des Röntgendetektors bewirken. Aus diesem Grund befindet sich in diesem Messbereich ein abschwächender Absorber im Strahlengang. Bei größeren Winkeln findet zur Erniedrigung des Rauschens rechnergesteuert in mehreren Stufen eine Verlängerung der Integrationszeit für die Messdatenerfassung pro Messposition statt.

Das I. Physikalische Institut der Justus-Liebig-Universität Gießen benutzt einen Röntgenreflektometrie-Zusatz von BRUKER-AXS zu einem Siemens-Röntgendiffraktometer D5000, der mit Cu-K $\alpha$ -Strahlung betrieben wird. Der Röntgennachweis erfolgt mit einem Szintillationszähler. Da die Messungen nur in einem relativ kleinen Winkelbereich ablaufen, muss mit möglichst hoher Winkelauflösung gearbeitet werden. Die Schrittweite bei der Variation des Einfallswinkels beträgt 0.001°. Das Messverfahren erfordert vor jeder Messung eine sehr präzise Justierung der Lage und Kippung der Probenoberfläche. Mit wachsender Schichtdicke verringern sich die Abstände der Interferenz-Maxima. Je nach Rauigkeit der Probenoberflächen wird daher oberhalb ca. 200 nm die Schichtdickenbestimmung schwierig, oberhalb ca. 300 nm unmöglich.

### 1.5. Geschichte

- 1923 A.H. Compton wendet als Erster die Röntgenreflektometrie auf glatte Festkörperoberflächen an und weist auf einen dichteabhängigen kritischen Winkel der Totalreflexion hin.
- 1931 H.Kiessig beschreibt eine Methode zur Bestimmung der Dicke von dünnen Schichten auf Substraten mit Hilfe der Röntgenreflektometrie. Er demonstriert das Auftreten von Minima, die in die Literatur

als “Kiessig-fringes“ eingehen und zeigt, dass das optische Verhalten von Röntgenstrahlung analog zu dem von sichtbarem Licht beschrieben werden kann, wobei Reflexion und Transmission durch die Fresnel-Gleichungen gegeben sind.

- 1954 L.G. Parrat entwickelt in den 50ern eine detaillierte Methode zur Analyse von Schichtsystemen. Auf dem von ihm vorgeschlagenen Rekursionsalgorithmus für die Berechnung der reflektierten Intensität von Mehrschichtsystemen beruht das im I. Physikalischen Institut benutzte Simulationsverfahren. Parrat erkennt, dass auch die Oberflächen-Rauigkeit erfasst werden kann.
- 1980 Névot und Croce erarbeiten eine quantitative Beschreibung der Oberflächenrauigkeit.
- 1993 Der erste kommerziell erhältliche Röntgenreflektometer wird von Siemens (heute BRUKER AXS) angeboten.

## 2. Berechnung des Brechungsindex von Röntgenstrahlung

Wie in Abschnitt 1.2 bereits erwähnt, wird der Brechungsindex von Röntgenstrahlung nur durch die elektronische Polarisation bestimmt, die sich in guter Näherung klassisch durch das Lorentz-Oszillatormodell beschreiben lässt. Bei der Berechnung der Dielektrizitätskonstanten  $\varepsilon$  muss zwischen Isolatoren und der Gruppe der Metalle und Halbleiter unterschieden werden.

### 2.1. Oszillatormodell für Isolatoren

Wir nehmen an, dass das aus der Röntgenstrahlung resultierende periodische elektrische Feld mit einem Elektron eines Gitteratoms wechselwirkt. Dieses wird um die Strecke  $x$  aus seiner Gleichgewichtslage ausgelenkt. Die rücktreibende Kraft ist proportional zur Auslenkung. Bei hinreichend hohen Frequenzen bleiben die schweren Kerne in Ruhe. Es kommt zu einer Dipolschwingung, die allerdings gedämpft ist, weil der Dipoloszillator Energie abstrahlt. Die Situation lässt sich wie in der Mechanik beschreiben durch die Differentialgleichung einer erzwungenen Schwingung, wobei die äußere Kraft gegeben ist durch  $eE_{\text{lokal}} e^{-i\omega t}$  mit der Kreisfrequenz  $\omega$  der Röntgenstrahlung.

$$m\ddot{x} + m\gamma \dot{x} + m\omega_0^2 x = eE_{\text{lokal}}^0 e^{-i\omega t} \quad (2.1)$$

$m$  = Elektronenmasse

$\gamma$  = Dämpfungskonstante

$\omega_0$  = Eigenfrequenz des ungedämpften Oszillators

$e$  = Elementarladung

$E_{\text{lokal}}^0$  = Amplitude des elektrischen Wechselfeldes am Ort des betrachteten Gitteratoms zur Zeit  $t = 0$ .

Die komplexe Lösung dieser Differentialgleichung für den stationären Zustand lautet

$$x = \frac{e}{m} E_{\text{lokal}}^0 \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \cdot e^{-i\omega t} . \quad (2.2)$$

Das Dipolmoment  $p$  des Gitteratoms ist  $-ex$ . Es gilt

$$\vec{p} = \varepsilon_0 \alpha_{el} \vec{E} \quad (2.3)$$

mit der Polarisierbarkeit  $\alpha_{el}$  und  $\vec{E} = \vec{E}_{\text{lokal}}^0 \cdot \exp(-i\omega t)$ . Damit erhält man für den Beitrag eines schwingenden Elektrons zur Polarisierbarkeit

$$\alpha_{el}(\omega) = \frac{e^2}{\varepsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} . \quad (2.4)$$

Hätte man nur ein äußeres elektrisches Feld  $\vec{E}_{\text{ext}}$  zu berücksichtigen, würde für die Gesamtpolarisation  $P$  bei  $n_V$  Elektronen pro Volumen gelten

$$\vec{P} = n_V \vec{p} = n_V \varepsilon_0 \alpha_{el} \vec{E}_{\text{ext}} . \quad (2.5)$$

Bei Gasen ist die Beschränkung auf ein äußeres elektrisches Feld korrekt. Hier übt die Polarisation eines Atoms keinen Einfluß auf ein Nachbaratom aus. Im Festkörper dagegen gibt es diesen Einfluss. Die hier zu betrachtende lokale Feldstärke  $E_{\text{lokal}}$  am Ort eines Atoms setzt sich zusammen aus dem äußeren elektrischen Feld  $E_{\text{ext}}$  und einer Feldkomponente, die aus der Polarisation der Festkörperatome resultiert. Für isotrope oder kubische Medien gilt

$$\vec{E}_{\text{lokal}} = \vec{E}_{\text{ext}} + \frac{1}{3\varepsilon_0} \vec{P} . \quad (2.6)$$

Gl. (2.5) ist bei Festkörpern zu ersetzen durch

$$\vec{P} = n_V \vec{p} = n_V \varepsilon_0 \alpha_{el} \vec{E}_{\text{lokal}} . \quad (2.7)$$

Einfügen von (2.6) in (2.7) liefert

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \frac{n_V \alpha}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha} \vec{E}_{\text{ext}} . \quad (2.8)$$

Zwischen  $\vec{P}$  und  $\vec{E}_{\text{ext}}$  besteht die Beziehung

$$\vec{P} = \varepsilon_0 (\varepsilon - 1) \vec{E}_{\text{ext}} = \varepsilon_0 \chi \vec{E}_{\text{ext}} \quad (2.9)$$

mit der Suszeptibilität  $\chi$ . Der Vergleich von (2.8) und (2.9) liefert

$$\varepsilon = 1 + \frac{n_V \alpha}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha} . \quad (2.10)$$

Dies ist eine andere Schreibweise der Gleichung von Clausius-Mosotti, die man in ihrer bekannten Form

erhält, wenn man (2.10) nach  $n_V \alpha$  auflöst.

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = \frac{1}{3} n_V \alpha$$

(2.4) in (2.10) liefert

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega - \frac{1}{3} \frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m}} = 1 + \frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m} \frac{1}{\omega_1^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \quad (2.11)$$

mit  $\omega_1^2 = \omega_0^2 - \frac{1}{3} \frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m}$ .

Bei exakterer quantenmechanischer Herleitung erhält man anstelle von (2.11)

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m} \sum_j \frac{f_{ij}}{\omega_{ij}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}, \quad (2.12)$$

wobei  $f_{ij}$  = Oszillatorstärke des Dipolübergangs zwischen den Atomzuständen  $i$  und  $j$   
 $\omega_{ij}$  = Übergangsfrequenz.

Wir rechnen mit (2.11) weiter und wollen den Realteil  $\varepsilon'$  und Imaginärteil  $\varepsilon''$  von  $\varepsilon$  bestimmen. Zur Abkürzung schreiben wir

$$\frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m} = \zeta. \quad (2.13)$$

Multiplikation von Zähler und Nenner des Bruchterms in (2.11) mit  $(\omega_1^2 - \omega^2) + i\gamma\omega$  ergibt

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{\zeta((\omega_1^2 - \omega^2) + i\gamma\omega)}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2} = 1 + \underbrace{\frac{\zeta(\omega_1^2 - \omega^2)}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2}}_{\varepsilon'} + i \underbrace{\frac{\zeta\gamma\omega}{(\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2}}_{\varepsilon''}. \quad (2.14)$$

Der Realteil  $\varepsilon'$  der komplexen Dielektrizitätskonstanten  $\varepsilon$  hat bei  $\omega = 0$  und  $\omega = \infty$  die Werte

$$\varepsilon'(0) = 1 + \frac{\zeta}{\omega_1^2} \quad \text{und} \quad \varepsilon'(\infty) = 1.$$

Es gilt  $\varepsilon' = 0$ , wenn

$$-\zeta(\omega_1^2 - \omega^2) = (\omega_1^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2\omega^2$$

oder  $\omega^4 + \omega^2(\gamma^2 - 2\omega_1^2 - \zeta) + \omega_1^4 + \zeta\omega_1^2 = 0$ .

Hieraus lassen sich die Nulldurchgänge von  $\varepsilon'$  berechnen. Bei  $\gamma = 0$  erhält man die beiden Lösungen

$$\omega = \sqrt{\zeta + \omega_1^2} \quad \text{und} \quad \omega = \omega_1.$$

Den Verlauf von  $\varepsilon'(\omega)$  und  $\varepsilon''(\omega)$  zeigt Abb. 6.  $\varepsilon''$  strebt außerhalb der Resonanzfrequenz  $\omega_1$  gegen null, gemäß Gl. (1.6) bis (1.8) somit auch der Absorptionskoeffizient.  $\omega_1$  liegt im ultravioletten Spektralbereich bei Frequenzen in der Größenordnung von  $10^{16}$  Hz. Die Kreisfrequenz von Cu-K $\alpha$ -Strahlung, mit der bei der Röntgenreflektometrie gearbeitet wird, beträgt  $1.22 \cdot 10^{19}$  Hz und es gilt  $\omega \gg \omega_1$ . Mit dieser Bedingung wird aus (2.14)

$$\varepsilon = 1 - \frac{\zeta}{\omega^2 + \gamma^2} + i \frac{\zeta \gamma}{\omega (\omega^2 + \gamma^2)}. \quad (2.15)$$

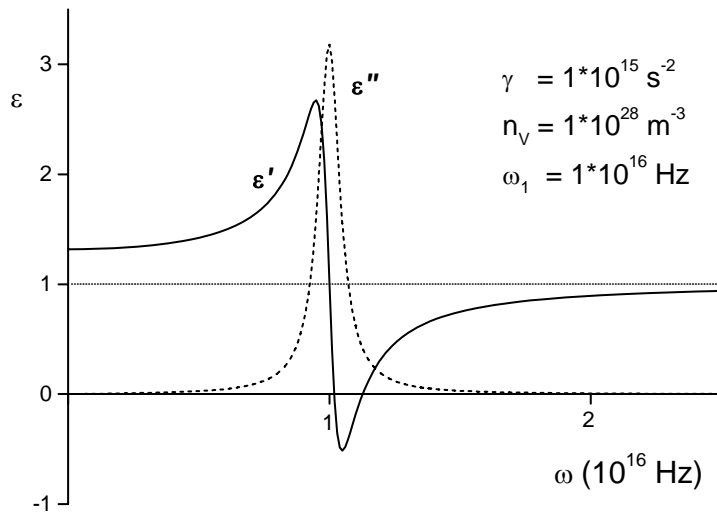


Abb. 6:  
 $\varepsilon'(\omega)$  und  $\varepsilon''(\omega)$  für Isolatoren

## 2.2. Oszillatormodell für Halbleiter und Metalle

Auch für die Leitungselektronen in Halbleitern und Metallen kann man zur Bestimmung von  $\varepsilon$  analog zu (2.1) die Differentialgleichung einer erzwungenen Schwingung aufstellen. Die Energie des elektrischen Wechselfeldes dient hier zur Elektronenbeschleunigung der Leitungselektronen. Es braucht nicht zwischen externem und lokalem Feld unterschieden zu werden. Wegen der quasifreien Elektronen entfällt der Term für die rücktreibende Kraft. Die durch das periodische Kristallpotential bedingten Kräfte werden dadurch berücksichtigt, dass die Masse der Leitungselektronen durch die effektive Masse  $m^*$  ersetzt wird. Schwingungsdämpfung entsteht hier nicht durch Dipolabstrahlung elektromagnetischer Wellen, sondern aufgrund von Elektron-Phonon-Streuung und Stößen mit Verunreinigungen und Gitterfehlern. Wir können annehmen, dass die Elektronen während einer mittleren Zeit  $\tau$  zwischen zwei Stößen beschleunigt werden. Hierdurch entsteht eine Impulsänderung pro Zeiteinheit von  $\frac{m^* \dot{x}}{\tau}$ , die sich als Reibungskraft in die Differentialgleichung einsetzen lässt. Anstelle von (2.1) erhält man

$$m^* \ddot{x} + \frac{1}{\tau} m^* \dot{x} = e E_0 e^{-i\omega t} \quad (2.16)$$

mit der stationären Lösung

$$x = \frac{e}{m^*} \frac{E_0}{\omega (\omega + i \frac{1}{\tau})} e^{-i\omega t}. \quad (2.17)$$

Mit der Volumenkonzentration  $n_L$  von Leitungselektronen ergibt sich als Beitrag der Leitungselektronen zur elektrischen Polarisation  $P$

$$P_L = -n_L e x = -\frac{n_L e^2}{m^*} \frac{E}{\omega (\omega + i\frac{1}{\tau})}, \quad \text{wobei } E = E_0 e^{-i\omega t}$$

und als Beitrag zur elektrischen Suszeptibilität  $\chi$

$$\chi_L = \frac{P_L}{\varepsilon_0 E} = -\frac{n_L e^2}{\varepsilon_0 m^*} \frac{1}{\omega (\omega + i\frac{1}{\tau})}. \quad (2.18)$$

Die resultierende Suszeptibilität von Halbleitern und Metallen errechnet sich aus Addition der Beiträge  $\chi_L$  der freien und  $\chi_g$  der gebundenen Elektronen.

$$\chi = \chi_g + \chi_L \quad \text{bzw.} \quad \varepsilon = 1 + \chi_g + \chi_L = \varepsilon_g + \chi_L. \quad (2.19)$$

Der Beitrag  $\varepsilon_g$  der gebundenen Elektronen zur dielektrischen Funktion ist durch (2.14) gegeben, bzw. für  $\omega$  im Röntgenstrahlungsbereich durch (2.15). Einsetzen von (2.18) in (2.19) ergibt

$$\varepsilon = \varepsilon_g \left( 1 - \frac{n_L e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_g m^*} \frac{1}{\omega (\omega + i\frac{1}{\tau})} \right). \quad (2.20)$$

$\tau$  beträgt bei Metallen etwa  $10^{-13}$  s. Der Wellenlänge von Cu-K $\alpha$ -Strahlung von 0.1542 nm entspricht eine Kreisfrequenz von  $1,22 \cdot 10^{19} \text{ s}^{-1}$ . Somit ist  $\omega \gg 1/\tau$  und das imaginäre Glied in (2.20) kann vernachlässigt werden. Die Leitungselektronen liefern demnach keinen Beitrag zum Absorptionskoeffizienten. Unter Vernachlässigung des Imaginärteils kann (2.20) umgeschrieben werden in

$$\varepsilon = \varepsilon_g \left( 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right) \quad (2.21)$$

mit der Plasmafrequenz

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_L e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_g m^*}}. \quad (2.22)$$

Zur Abschätzung von  $\omega_p$  setzen wir Zahlenwerte für Größen in (2.22) ein.

Mit

$$\begin{aligned} e &= 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ As} \\ \varepsilon_0 &= 8,8 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm} \\ \varepsilon_g &\approx 1 \\ m^* &\approx m_0 = 9,1 \cdot 10^{-31} \text{ kg} \\ n_L &\approx 10^{29} \text{ m}^{-3} \quad (\hat{=} 10^{23} \text{ cm}^{-3}) \end{aligned}$$



folgt  $\omega_p \approx 1,8 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ . Es gilt demnach  $\omega_p \ll \omega$  und  $\varepsilon \approx \varepsilon_g$ . Dies bedeutet, dass Leitungselektronen im Röntgenbereich auch keinen Beitrag zum Realteil von  $\varepsilon$  leisten und damit auch nicht zum Brechungsindex. Das Ergebnis von Gl. (2.15) und die Darstellung des Frequenzverlaufs von  $\varepsilon'$  und  $\varepsilon''$  in Abb. 6 sind somit für Festkörper universell anwendbar, unabhängig von deren Leitfähigkeit. Für  $\omega < \omega_p$  dagegen ergibt sich ein negativer Wert von  $\varepsilon$ , weshalb Metalle im Bereich von sichtbarem Licht total reflektieren.

## 2.3. Real- und Imaginärteil des Brechungsindex

Der komplexe Brechungsindex  $\tilde{n}$  wurde in (1.5) definiert. Wir berechnen nun den Real- und Imaginärteil nach den Formeln (1.9) und (1.10).

### 2.3.1. Realteil $n$

Bei der Bestimmung von  $n$  kann  $\varepsilon''$  vernachlässigt werden, da im Röntgenbereich  $\varepsilon' \gg \varepsilon''$  gemäß (2.15) wegen  $\varepsilon'' \sim \frac{1}{\omega}$ . Einsetzen von (2.15) in (1.9) liefert

$$n = \sqrt{\varepsilon'} = \sqrt{1 - \frac{\zeta}{\omega^2 + \gamma^2}} = \sqrt{1 - \frac{\zeta}{\frac{4\pi^2 c^2}{\lambda^2} + \gamma^2}}, \quad (2.23)$$

wobei  $\omega$  durch  $2\pi \frac{c}{\lambda}$  ersetzt wurde, da die  $\lambda$ -Abhängigkeit von  $n$  interessiert. Reihenentwicklung von (2.23) nach  $\lambda$  um  $\lambda = 0$  ergibt nur geradzahlige Potenzen von  $\lambda$ . Abbruch der Entwicklung nach dem quadratischen Glied und Einsetzen von  $\zeta$  gemäß der Definition in (2.13) ergibt

$$n = 1 - \frac{\zeta}{8\pi^2 c^2} \lambda^2 = 1 - \frac{n_V e^2}{\varepsilon_0 m \cdot 8\pi^2 c^2} \lambda^2. \quad (2.24)$$

Aufgrund des Abbruchs der Reihenentwicklung nach dem quadratischen Glied geht die Dämpfungskonstante  $\gamma$  nicht in die Lösung ein. Einige der Konstanten in (2.24) lassen sich zu dem klassischen Elektronenradius  $r_e$  zusammenfassen. Mit

$$r_e = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 m c^2} = 2.81794 \cdot 10^{-6} \text{ nm} \quad (2.25)$$

folgt für den Realteil  $n$  des komplexen Brechungsindex

$$n = 1 - \frac{n_V r_e}{2\pi} \lambda^2. \quad (2.26)$$

Die Elektronenkonzentration pro Volumen  $n_V$  läßt sich auf einfach zugängliche Größen zurückführen. Wir unterstellen zunächst, dass der Festkörper nur aus einem einzigen chemischen Element besteht. Ist  $N_A$  die Avogadrozahl,  $\rho$  die Dichte,  $A$  die relative Atommasse,  $m$  die Masse,  $V$  das Volumen und  $Z$  die Ordnungszahl, so gilt

$$n_V = \frac{\text{Anzahl Elektronen}}{\text{Volumen}} = Z \cdot \frac{\text{Anzahl Atome}}{\text{Volumen}} = Z \cdot N_A \cdot \frac{\text{Anzahl Mole}}{\text{Volumen}} = Z \cdot N_A \cdot \frac{\frac{m}{A}}{V} = Z \cdot N_A \cdot \frac{\rho}{A}.$$

$$\text{Somit ist } n = 1 - \frac{N_A r_e}{2\pi} \cdot \frac{\rho}{A} Z \lambda^2. \quad (2.27)$$

Obwohl nur Ergebnis einer klassischen Näherung, beschreibt Gl. (2.27) den Realteil des komplexen Brechungsindex, die Dispersion, relativ genau. Berücksichtigung der Oszillatorstärken in (2.12), die bei der klassischen Rechnung vernachlässigt werden, ergibt einen Korrekturterm  $f'$  zu  $Z$ . Dieser ist am höchsten in der Nähe von Absorptionskanten. Für Kupfer und Cu-K $\alpha$ -Strahlung gilt  $f' = -2.34$ , für Silizium  $f' = 0.25$ . Die Werte von  $f'$  stehen für sämtliche chemischen Elemente zur Verfügung (Anhang A2). Die endgültige Bestimmungsgleichung für den Realteil des Brechungsindex lautet somit

$$\boxed{\text{Re}(\tilde{n}) = n = 1 - \frac{N_A r_e}{2\pi} \cdot \frac{\rho}{A} (Z + f') \lambda^2}. \quad (2.28)$$

Abgekürzt schreibt man hierfür auch

$$n = 1 - \delta. \quad (2.28a)$$

Am Beispiel von Silizium setzen wir für die Größen in Gl. (2.27) und (2.28) Zahlenwerte ein. Mit

$$\begin{aligned} N_A &= 6.022142 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1} \\ r_e &= 2.81794 \cdot 10^{-15} \text{ m} \\ \rho_{\text{Si}} &= 2.33 \cdot 10^3 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3} \\ A_{\text{Si}} &= 0.0280855 \text{ kg} \cdot \text{mol}^{-1} \\ Z_{\text{Si}} &= 14 \\ f'_{\text{Si}} &= 0.2541 \\ \lambda_{\text{Cu-K}\alpha} &= 0.154052 \cdot 10^{-9} \text{ m} \end{aligned}$$

erhalten wir nach Gl. (2.27)  $\delta = 7.44 \cdot 10^{-6}$ , bzw.  $n = 0.99999256$  und mit Berücksichtigung von  $f'$  nach Gl. (2.28)  $\delta = 7.58 \cdot 10^{-6}$  bzw.  $n = 0.99999242$ . Wie man sieht, ist der Realteil des Brechungsindex für Röntgenstrahlung nahezu 1. Die  $f'$ -Korrektur zur Ordnungszahl  $Z$  liegt bei Silizium in der Größenordnung von 2 %.

### 2.3.2. Imaginärteil $\beta$

Einsetzen von (2.15) in (1.10) ergibt

$$\beta = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\left(1 - \frac{\zeta}{\omega^2 + \gamma^2}\right)^2 + \left(\frac{\zeta \gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)}\right)^2} - 1 + \frac{\zeta}{\omega^2 + \gamma^2}.$$

Es wird wieder  $\omega$  durch  $\omega = 2\pi \frac{c}{\lambda}$  ersetzt. Reihenentwicklung nach  $\lambda$  ergibt Glieder mit  $\lambda^3$ ,  $\lambda^5$ ,  $\lambda^7$ , usw. Der Abbruch der Entwicklung nach  $\lambda^3$  führt zu

$$\beta = \frac{\zeta \gamma}{(2\pi c)^3} \lambda^3 = \frac{n_V e^2 \gamma}{\epsilon_0 m 8\pi^3 c^3} \lambda^3 = \frac{n_V r_e}{2\pi} \frac{\lambda \gamma}{\pi c} \lambda^2 = \frac{N_A r_e \rho}{2\pi A} \lambda^2 Z \frac{\lambda \gamma}{\pi c}, \quad (2.29)$$

wobei wieder die gleichen Umformungen wie im vorigen Abschnitt vorgenommen wurden hinsichtlich  $\zeta$ ,  $r_e$  und  $n_V$ . Mit dem für die verschiedenen Elemente tabellierten Term

$$f'' = Z \frac{\lambda \gamma}{\pi c}$$

läßt sich für (2.28) schreiben

$$\boxed{\text{Im}(\tilde{n}) = \beta = \frac{N_A r_e}{2\pi} \cdot \frac{\rho}{A} \lambda^2 f''}. \quad (2.30)$$

Der Faktor  $f''$  wächst überproportional mit  $Z$ . Zu seiner exakten Bestimmung ist die Annahme einer festen Dämpfungskonstante  $\gamma$  nach dem klassischen Oszillatormodell zu stark vereinfachend. Hier muss quantenmechanisch gerechnet werden unter Berücksichtigung der beteiligten Elektronen-Energieniveaus.  $\beta$  kann auch über den linearen Absorptionskoeffizienten  $\mu(\lambda)$  angegeben werden oder mit  $\mu_m = \frac{\mu}{\rho}$  über den Massenabsorptionskoeffizienten  $\mu_m$

$$\beta = \frac{\mu(\lambda)}{4\pi} \lambda = \frac{\mu_m(\lambda) \rho}{4\pi} \lambda.$$

### 2.3.3. Brechungsindex für Verbindungen

Die Gleichungen (2.28) und (2.30) sind nur für chemische Elemente gültig. Zur Bestimmung des Brechungsindex für Verbindungen kommen wir noch einmal auf Gl. (2.26) zurück. Hier steht als Variable die Elektronendichte  $n_V$ . Für chemische Elemente ergibt sich bei der Weiterrechnung für (2.27)

$$n_V = \frac{Z}{A} \cdot N_A \cdot \rho.$$

Für eine chemische Verbindung der Strukturformel  $E_{1,k_1}E_{2,k_2}\dots E_{n,k_n}$ , die aus den Elementen  $E_1, E_2, \dots E_n$  mit den Ordnungszahlen  $Z_1, Z_2, \dots Z_n$  und den relativen Atommassen  $A_1, A_2, \dots A_n$  besteht, gilt analog

$$n_V = \frac{\sum_{i=1}^n k_i Z_i}{\sum_{i=1}^n k_i A_i} \cdot N_A \cdot \rho_{\text{Verbindung}},$$

bzw. unter Berücksichtigung der Korrekturglieder  $f'_i$  der einzelnen Elemente

$$n_V = \frac{\sum_{i=1}^n k_i (Z_i + f'_i)}{\sum_{i=1}^n k_i A_i} \cdot N_A \cdot \rho_{\text{Verbindung}}.$$

Somit ist

$$n = 1 - \frac{N_A r_e \rho_{\text{Verbindung}} \lambda^2}{2\pi} \cdot \frac{\sum_{i=1}^n k_i (Z_i + f_i)}{\sum_{i=1}^n k_i A_i} \quad (2.31)$$

In entsprechender Weise ergibt sich für  $\beta$

$$\beta = \frac{N_A r_e \rho_{\text{Verbindung}} \lambda^2}{2\pi} \cdot \frac{\sum_{i=1}^n k_i f_i''}{\sum_{i=1}^n k_i A_i} \quad (2.32)$$

Abgekürzt schreibt man für den komplexen Brechungsindex  $\tilde{n}$  von Röntgenstrahlung

$$\tilde{n} = 1 - \delta - i\beta. \quad (2.33)$$

### 3. Reflexion an homogenem Substrat

Vor der Betrachtung der Reflexion an Dünnschichten beschäftigen wir uns zunächst mit dem Fall, daß Röntgenstrahlung auf die ebene und glatte Oberfläche eines homogenen Mediums unendlicher Dicke trifft. Dieser Fall ist gegeben bei einem unbeschichteten Substrat.

Wie in Abb. 7 dargestellt, handelt es sich um die Reflexion und Brechung an einer ebenen Grenzfläche Luft – Festkörper. Die Strahlung trifft aus Luft (Brechungsindex  $n_1$ ) unter dem Winkel  $\phi$  auf die Grenzfläche, wird zum Teil reflektiert und zum Teil unter dem Winkel  $\phi$  im Festkörper (Brechungsindex  $n_2$ ) gebrochen. Da  $n_2 < 1$ , wie im vorigen Abschnitt hergeleitet, ist der Festkörper im Vergleich zu Luft das optisch dünnere Medium und die Brechung erfolgt weg vom Einfallslot. Für die Phasengeschwindigkeit  $v_2 = c_0/n_2$  der einfallenden Welle im Festkörper gilt  $v_2 > c_0$ .

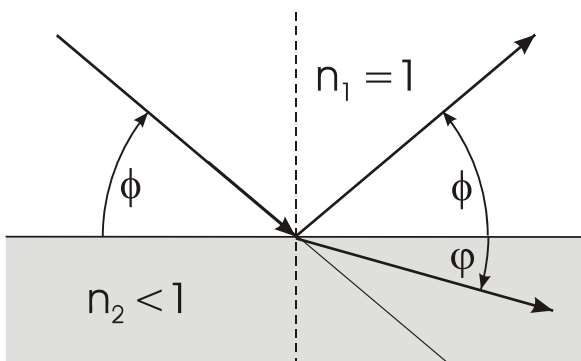


Abb. 7:  
Reflexion und Brechung an der Grenzfläche  
Luft - Festkörper

#### 3.1. Kritischer Winkel der Totalreflexion

Wie bei sichtbarem Licht gilt das Snellius'sche Brechungsgesetz

$$\frac{n_2}{n_1} = \frac{\cos \phi}{\cos \varphi} \quad (3.1)$$

Unter Vernachlässigung der Absorption lässt sich wegen  $n_1 = 1$  mit (2.29) hierfür schreiben

$$n_2 = \frac{\cos \phi}{\cos \varphi} \approx 1 - \delta \quad (3.2)$$

Totalreflexion findet statt bei  $\varphi = 0$  und dem kritischen Winkel  $\phi_c$ . Aus (3.2) wird

$$n_2 = \cos \phi_c = 1 - \delta \quad (3.3)$$

Reihenentwicklung von  $\cos \phi_c$  liefert

$$n_2 = \cos \phi_c = 1 - \frac{\phi_c^2}{2!} + \frac{\phi_c^4}{4!} \mp \dots = 1 - \delta \quad (3.4)$$

Wie sich gleich zeigen wird, gilt stets  $\phi_c < 1$ . Die  $\cos$ -Reihe kann daher nach dem quadratischen Glied abgebrochen werden. Einsetzen von (2.28) und (2.28a) ergibt

$$\phi_c = \sqrt{2\delta} = \lambda \cdot \sqrt{\frac{N_A r_e \rho (Z + f')}{\pi A}} \quad (3.4)$$

Mit den im vorigen Abschnitt angegebenen Werten für  $\lambda$ ,  $N_A$  und  $r_e$  erhält man

$$\phi_c = 3,5834 \cdot 10^{-3} \sqrt{\frac{\rho}{A} (Z + f')} \quad (3.5)$$

wobei  $\rho$  in  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ,  $A$  in  $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$ ,  $\phi_c$  im Bogenmaß. Für  $\phi_c$  in Grad gilt

$$\phi_c = 0,20531 \sqrt{\frac{\rho}{A} (Z + f')} \quad (3.6)$$

Mit den Daten von  $\rho$ ,  $A$ ,  $Z$  und  $f'$  für Silizium aus dem vorigen Abschnitt ergibt sich  $\phi_{c, Si} = 0.223^\circ$ . Als Beispiel für ein Element hoher Ordnungszahl nehmen wir Platin. Für  $\rho_{Pt} = 21.45 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ,  $A_{Pt} = 195.09 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ ,  $Z_{Pt} = 78$ ,  $f' = -4.5932$  liefert (3.6)  $\phi_{c, Pt} = 0.583^\circ$ . Schließlich betrachten wir als Beispiel besonders niedriger Ordnungszahl noch das Element Beryllium. Aus  $\rho_{Be} = 1.848 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ,  $A_{Be} = 9.01218 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$ ,  $Z_{Be} = 4$ ,  $f' = 0.0090$  folgt  $\phi_{c, Be} = 0.186^\circ$ . Die kritischen Winkel für alle in der Praxis auftretenden Materialien liegen somit in einem relativ engen Bereich von etwa  $0.2 - 0.6^\circ$ .

Für Verbindungen gilt anstelle von (3.5) und (3.6) analog zu den Herleitungen in Abschnitt 2.3.3

$$\phi_c = 3.5834 \cdot 10^{-3} \sqrt{\rho_{\text{Verbindung}} \frac{\sum_{i=1}^n k_i (Z_i + f'_i)}{\sum_{i=1}^n k_i A_i}} \quad \text{für } \phi_c \text{ im Bogenmaß} \quad (3.5a)$$

und

$$\phi_c = 0.20531 \sqrt{\rho_{\text{Verbindung}} \frac{\sum_{i=1}^n k_i (Z_i + f'_i)}{\sum_{i=1}^n k_i A_i}} \quad \text{für } \phi_c \text{ in Grad.} \quad (3.6a)$$

Der Quotient  $(Z + f')/A$  weicht für die chemischen Elemente im Z-Bereich 2 - 83 vom Mittelwert 0.438 nur um wenige Prozent ab (Anhang A2) und der kritische Winkel  $\phi_c$  ist somit näherungsweise proportional zu  $\sqrt{\rho}$ . Bei bekannten Werten von Z und A lässt sich aus  $\phi_c$  die Dichte exakt bestimmen. Für die Herstellung von Dünnschichten, die aus einer chemischen Verbindung bestehen sollen, ergibt sich hieraus eine einfache Möglichkeit um festzustellen, ob die gewünschte Stöchiometrie bei der Schichtdeposition tatsächlich erzielt wurde. Neben der Schichtdickenbestimmung ist dies eine wesentliche Anwendungsmöglichkeit der Röntgen-Reflektometrie.

### 3.2. Intensität der reflektierten Strahlung

Uns interessiert, mit welcher Intensität die auftreffenden Röntgenstrahlen von einer Festkörperoberfläche reflektiert werden. Aussagen hierzu erlauben die Fresnelschen Gleichungen, die für Röntgenstrahlen genauso gelten wie für sichtbares Licht. Sie beruhen auf der Voraussetzung, dass die Tangentialkomponenten des elektrischen und des magnetischen Feldvektors an der Grenzfläche stetig sind. Bei der Herleitung muss zwischen Feldkomponenten parallel und senkrecht zur Einfallsebene unterschieden werden, wobei senkrecht zur Einfallsebene gleichbedeutend ist mit tangential zur Grenzfläche. Anstelle der Stetigkeit der Tangentialkomponente des magnetischen Feldvektors kann man auch voraussetzen, dass aus Gründen der Energieerhaltung die pro Grenzfläche auftreffende Strahlungsleistung gleich der Summe der Strahlungsleistungen des reflektierten und des gebrochenen Strahls ist.

Die Fresnelschen Gleichungen bestimmen den Reflexionsgrad  $r$ , der definiert ist als das Verhältnis der elektrischen Feldstärken des einfallenden und des reflektierten Strahls. Dabei muss unterschieden werden zwischen Komponenten des Vektors der elektrischen Feldstärke senkrecht oder parallel zur Einfallsebene. Die Ausrichtung senkrecht zur Einfallsebene bedeutet Parallelität zur Festkörperoberfläche.

Reflexionsgrad  $r_s$  der Komponente senkrecht zur Einfallsebene:

$$r_s = \frac{E_{rs}}{E_0} = \frac{\tilde{n}_1 \sin \phi - \tilde{n}_2 \sin \varphi}{\tilde{n}_1 \sin \phi + \tilde{n}_2 \sin \varphi} \quad (3.7)$$

Reflexionsgrad  $r_p$  der Komponente parallel zur Einfallsebene:

$$r_p = \frac{E_{rp}}{E_0} = \frac{\tilde{n}_2 \sin \phi - \tilde{n}_1 \sin \varphi}{\tilde{n}_2 \sin \phi + \tilde{n}_1 \sin \varphi} \quad (3.8)$$

Wir eliminieren zunächst  $\sin \varphi$  in (3.7) und (3.8) mit Hilfe des Brechungsgesetzes  $\frac{\tilde{n}_2}{\tilde{n}_1} = \frac{\cos \phi}{\cos \varphi}$  unter Berücksichtigung von  $\tilde{n}_1 = 1$  für Luft und erhalten

$$r_s = \frac{\sin \phi - \tilde{n}_2 \sqrt{1 - \cos^2 \phi}}{\sin \phi + \tilde{n}_2 \sqrt{1 - \cos^2 \phi}} = \frac{\sin \phi - \sqrt{\tilde{n}_2^2 - \cos^2 \phi}}{\sin \phi + \sqrt{\tilde{n}_2^2 - \cos^2 \phi}} \quad (3.9)$$

$$r_p = \frac{\tilde{n}_2 \sin \phi - \sqrt{1 - \cos^2 \phi}}{\tilde{n}_2 \sin \phi + \sqrt{1 - \cos^2 \phi}} = \frac{\tilde{n}_2 \sin \phi - \sqrt{1 - \frac{\cos^2 \phi}{n_2^2}}}{\tilde{n}_2 \sin \phi + \sqrt{1 - \frac{\cos^2 \phi}{n_2^2}}} = \frac{\tilde{n}_2^2 \sin \phi - \sqrt{\tilde{n}_2^2 - \cos^2 \phi}}{\tilde{n}_2^2 \sin \phi + \sqrt{\tilde{n}_2^2 - \cos^2 \phi}}. \quad (3.10)$$

Diese Gleichungen gelten gleichermaßen im sichtbaren Spektralbereich und für Röntgenstrahlung.

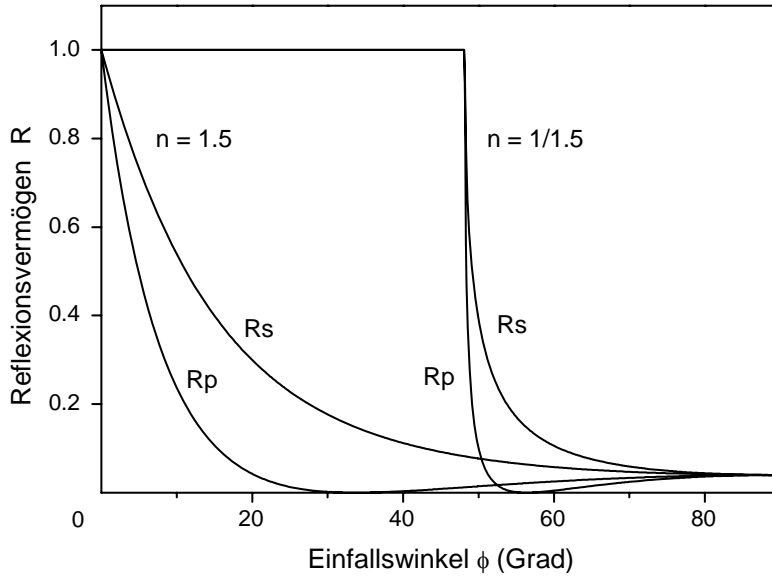


Abb. 8:  
Reflexionsvermögen  $R_s = r_s^2$  und  $R_p = r_p^2$  für die Feldstärkekomponenten parallel und senkrecht zur Einfallrichtung bei  $n = 1.5$  und  $n = 1/1.5$

Gemessen wird das Reflexionsvermögen  $R$ . Es ist definiert als das Verhältnis von reflektierter zu einfallender Strahlungsintensität und berechnet sich aus den Quadraten der Reflexionskoeffizienten. Abb. 8 zeigt das aus Gl. (3.9) und (3.10) ermittelte Reflexionsvermögen für sichtbares Licht, das von Luft auf ein nicht absorbierendes Medium mit Brechungsindex  $n = 1.5$  trifft (Kronglas). Dargestellt ist außerdem auch der Umkehrfall des Auftreffens von Kronglas auf Luft (Reflexion am optisch dünneren Medium). Er bedeutet im Brechungsgesetz eine Vertauschung von Zähler und Nenner und kann daher ebenfalls mit Gl. (3.9) und (3.10) behandelt werden, wenn man ansetzt  $n = 1/1.5$ . Abb. 8 zeigt auch, dass beim Brewster-Winkel  $\phi_B$  von  $33.7^\circ$  bzw.  $56.3^\circ$   $R_p = 0$  gilt entsprechend der Bedingung  $\cot \phi_B = n$ .

Für Röntgenstrahlung lassen sich die Gleichungen (3.9) und (3.10) weiter vereinfachen. Wegen  $\delta \ll 1$  und  $\beta \ll 1$  ergibt sich das Quadrat des Brechungsindex  $\tilde{n}_2 = 1 - \delta - i\beta$  zu  $\tilde{n}_2^2 \approx 1 - 2\delta - 2i\beta$  und für die Wurzelterme in (3.9) und (3.10) erhalten wir mit  $\cos^2 \phi = 1 - \sin^2 \phi$

$$\sqrt{\tilde{n}_2^2 - \cos^2 \phi} = \sqrt{\sin^2 \phi - 2\delta - 2i\beta}. \quad (3.11)$$

Da  $\delta$  und  $\beta \ll 1$ , ergibt sich somit aus (3.7) und (3.8)

$$r_s \approx r_p \approx \frac{\sin \phi - \sqrt{\sin^2 \phi - 2\delta - 2i\beta}}{\sin \phi + \sqrt{\sin^2 \phi - 2\delta - 2i\beta}}. \quad (3.12)$$

(3.12) zeigt, dass bei Röntgenstrahlung nicht mehr zwischen  $r_s$  und  $r_p$  unterschieden werden muss. Im Folgenden schreiben wir daher statt  $r_s$  und  $r_p$  nur  $r$ . Außerdem ersetzen wir gemäß Gleichung (3.4)  $2\delta$  durch das Quadrat  $\phi_c^2$  des kritischen Winkels.

Zur Trennung in Real- und Imaginärteil dient der gleichartige Ansatz wie bei den Gln (1.9) und (1.10)

$$\sqrt{\sin^2 \phi - \phi_c^2 - 2i\beta} = P - iQ \quad (3.13)$$

mit der Lösung

$$P = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\sin^2 \phi - \phi_c^2)^2 + 4\beta^2} + (\sin^2 \phi - \phi_c^2)} \quad (3.14)$$

$$Q = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\sin^2 \phi - \phi_c^2)^2 + 4\beta^2} - (\sin^2 \phi - \phi_c^2)}. \quad (3.15)$$

Damit schreibt sich (3.12)  $r = \frac{(\sin \phi - P) + iQ}{(\sin \phi + P) - iQ}$ . (3.16)

Gemessen wird das Verhältnis aus reflektierter zu auffallender Strahlungsintensität. Multiplikation von (3.16) mit dem Konjugiertkomplexen ergibt

$$\frac{I_r}{I_0} = |r^2| = \frac{[(\sin \phi - P) + iQ][(\sin \phi - P) - iQ]}{[(\sin \phi + P) - iQ][(\sin \phi + P) + iQ]} = \frac{(\sin \phi - P)^2 + Q^2}{(\sin \phi + P)^2 + Q^2}. \quad (3.17)$$

Dies liefert  $|r^2|$  als Funktion von  $\phi$ . Setzt man für kleine Winkel  $\sin \phi \approx \phi$ , so erhält man eine normierte Darstellung als Funktion von  $\phi / \phi_c$

$$|r^2| = \frac{h - \frac{\phi}{\phi_c} \sqrt{2(h-1)}}{h + \frac{\phi}{\phi_c} \sqrt{2(h-1)}} \quad (3.18)$$

mit

$$h = \left(\frac{\phi}{\phi_c}\right)^2 + \sqrt{\left[\left(\frac{\phi}{\phi_c}\right)^2 - 1\right]^2 + \left(\frac{\beta}{\delta}\right)^2}. \quad (3.19)$$

In Abb. 9 ist  $|r^2|$  für unterschiedliche  $\delta/\beta$ -Verhältnisse dargestellt. Man erkennt eine relativ rasche Abnahme der reflektierten Strahlungsintensität bei Einfallswinkeln  $\phi > \phi_c$ . Aus diesem Grund ist es in der Praxis üblich, Rechen- und Messergebnisse logarithmisch darzustellen. Abb. 9 zeigt ausserdem, dass die Intensitätskante beim kritischen Winkel am schärfsten bei  $\beta = 0$  ausgeprägt ist und sich mit zunehmendem Verhältnis  $\beta/\delta$  immer mehr abrundet. Wie im vorigen Abschnitt gezeigt, ergibt sich aus dem kritischen Winkel die Dichte des Festkörpers. Dies ist am genauesten möglich bei Elementen niedriger Ordnungszahl.  $\beta/\delta$  ist hier am kleinsten, weil  $\beta$  überproportional mit  $Z$  zunimmt, wie in Abschnitt 2.3.2. erwähnt,  $\delta$  gemäß Gl. (2.28) aber nur proportional zu  $Z$ .



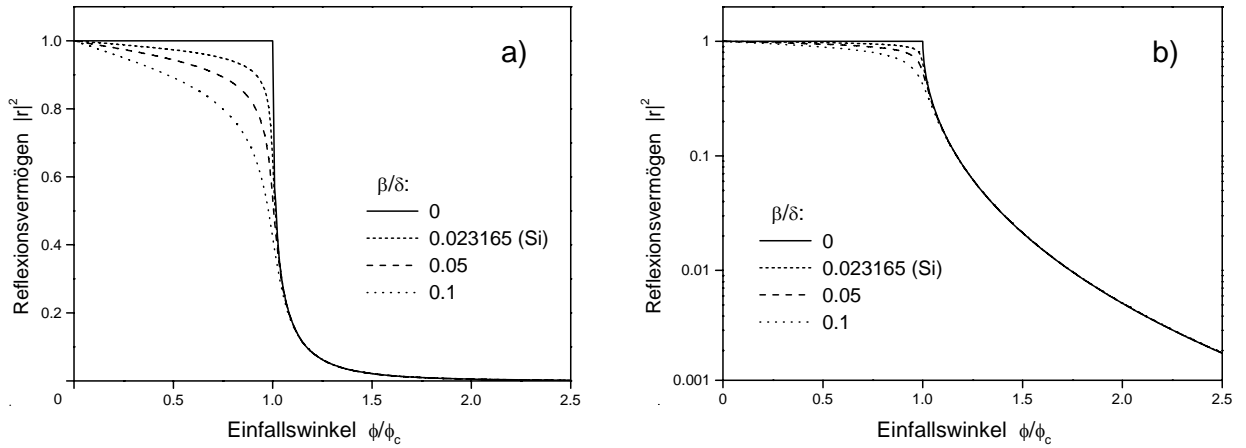


Abb. 9: Intensität  $|r^2|$  des reflektierten Strahls für unterschiedliche Verhältnisse  $\delta/\beta$   
 a) in linearer  
 b) in logarithmischer Skalierung als Funktion des Einfallswinkels  $\phi/\phi_c$

### 3.3. Eindringtiefe der Röntgenstrahlung

Unter der Annahme, dass reflektierter und gebrochener Strahl wie in Abb. 10 in der  $x,z$ -Ebene liegen, gilt für die Feldstärke der in das Medium 2 hinein gebrochenen Welle

$$E_2 = E_2(0) \exp\{i[\omega t - (k_{2,x}x + k_{2,z}z)]\} \quad (3.20)$$

und für die Komponente in  $z$ -Richtung

$$E_2(z) \sim E_2(0)e^{ik_{2,z}z} = E_2(0)e^{ik_2 \sin \varphi \cdot z} \quad (3.21)$$

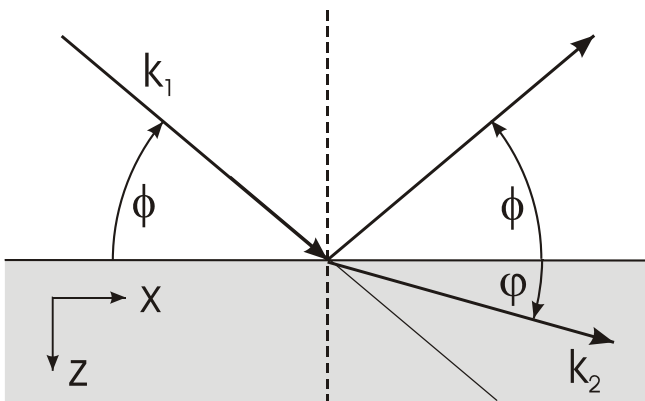


Abb. 10:  
 Skizze zur Reflexion und Brechung an einer  
 Festkörper-Grenzschicht

Aus dem Brechungsgesetz

$$k_2 = nk_1 \quad \text{und} \quad \sin \varphi = \sqrt{1 - \cos^2 \varphi} = \sqrt{1 - \frac{\cos^2 \varphi}{n^2}}$$

folgt  $k_2 \sin \varphi = k_1 \sqrt{n^2 - \cos^2 \varphi}$ , (3.22)

wobei  $k_1 = \frac{2\pi}{\lambda}$ .

Mit  $n^2 \approx 1 - 2\delta - 2i\beta$  ergibt sich analog zu der Rechnung in Abschnitt 3.2.

$$k_2 \sin \varphi = k_1 \sqrt{\sin^2 \phi - 2\delta - 2i\beta} = k_1(P - iQ) \quad (3.23)$$

mit 
$$P = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\sin^2 \phi - \phi_c^2)^2 + 4\beta^2} + (\sin^2 \phi - \phi_c^2)} \quad (3.24)$$

und 
$$Q = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\sin^2 \phi - \phi_c^2)^2 + 4\beta^2} - (\sin^2 \phi - \phi_c^2)}, \quad (3.25)$$

wie bereits in Gl. (3.14) und (3.15) definiert. Mit (3.23) wird aus (3.21)

$$E_2(z) \sim E_2(0) e^{-ik_1(P-iQ)z} = E_2(0) e^{-k_1(Q+iP)z}. \quad (3.26)$$

Für die Intensität  $I_2$  im Medium 2 folgt

$$I_2(z) = E_2 E_2^* \sim E_2(0)^2 e^{-k_1 z 2Q}. \quad (3.27)$$

An Stelle von (3.26) lässt sich auch schreiben

$$I_2(z) \sim E_2(0)^2 e^{-\frac{z}{\ell}}, \quad (3.28)$$

wobei

$$\ell = \frac{1}{k_1 2Q} = \frac{\lambda}{4\pi Q}. \quad (3.29)$$

$\ell$  wird als effektive Eindringtiefe bezeichnet. In der Tiefe  $\ell$  nimmt die Intensität des gebrochenen Strahls um  $1/e$  ab.

Begnügt man sich mit der Näherung  $\sin \phi = \phi$  für kleine Winkel, so kann durch Herausziehen von  $\phi_c$  aus (3.25) ein auf  $\phi_c$  normierter Winkel eingeführt werden

$$Q = \frac{\phi_c}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{\left[\left(\frac{\phi}{\phi_c}\right)^2 - 1\right]^2 + \left(\frac{\beta}{\delta}\right)^2} - \left[\left(\frac{\phi}{\phi_c}\right)^2 - 1\right]}. \quad (3.30)$$

Da  $\frac{\beta}{\delta} \ll 1$  kann bei  $\phi = 0$  der Term  $\left(\frac{\beta}{\delta}\right)^2$  vernachlässigt werden und es ergibt sich

$$Q = \phi_c \quad \text{und} \quad \ell = \frac{\lambda}{4\pi\phi_c}. \quad (3.31)$$

Bei  $\phi = \phi_c$  erhält man

$$Q = \frac{\phi_c}{\sqrt{2}} \sqrt{\frac{\beta}{\delta}} = \sqrt{\beta} \quad \text{und} \quad \ell = \frac{\lambda}{4\pi\sqrt{\beta}}. \quad (3.32)$$

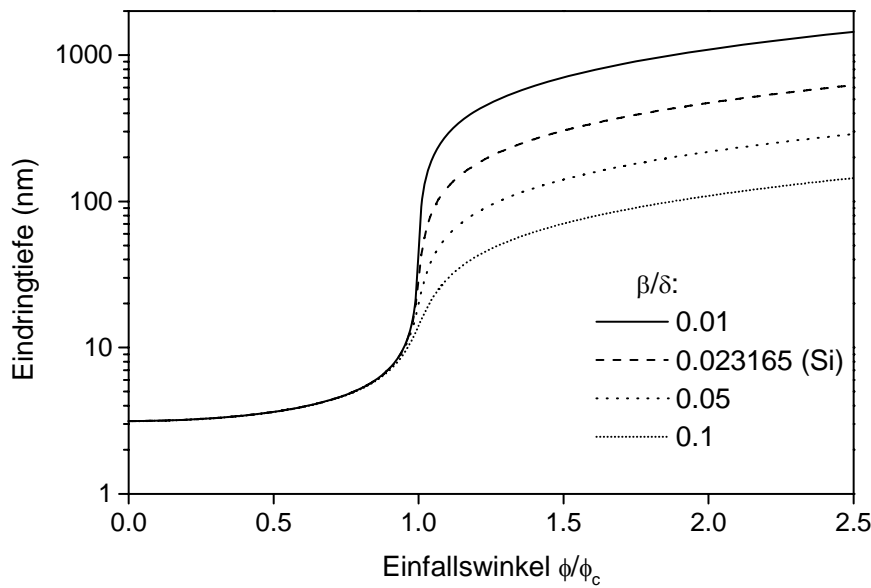


Abb. 11:  
Eindringtiefe gegen  $\phi/\phi_c$   
für  $\delta = 7.58 \cdot 10^{-6}$  (Si)

Abb. 11 zeigt, dass die Eindringtiefe  $\ell$  unterhalb des kritischen Winkels außerordentlich gering und unabhängig von  $\beta$  ist, dann aber mit wachsendem Einfallswinkel stark zunimmt. Sie wächst für vorgegebenen Wert von  $\delta$  mit sinkendem Verhältnis  $\beta/\delta$ . Bei der Anwendung der Röntgen-Reflektometrie kann man die Parameter  $\beta$  und  $\delta$  allerdings nicht beeinflussen, da sie durch das Probenmaterial vorgegeben sind. Abb. 12 stellt den Verlauf der Eindringtiefe vom normierten Einfallswinkel für 4 Metalle unterschiedlicher Ordnungszahl dar. Aufgrund unterschiedlicher Werte von  $\delta$  unterscheiden sich hier die Eindringtiefen auch unterhalb des kritischen Winkels.

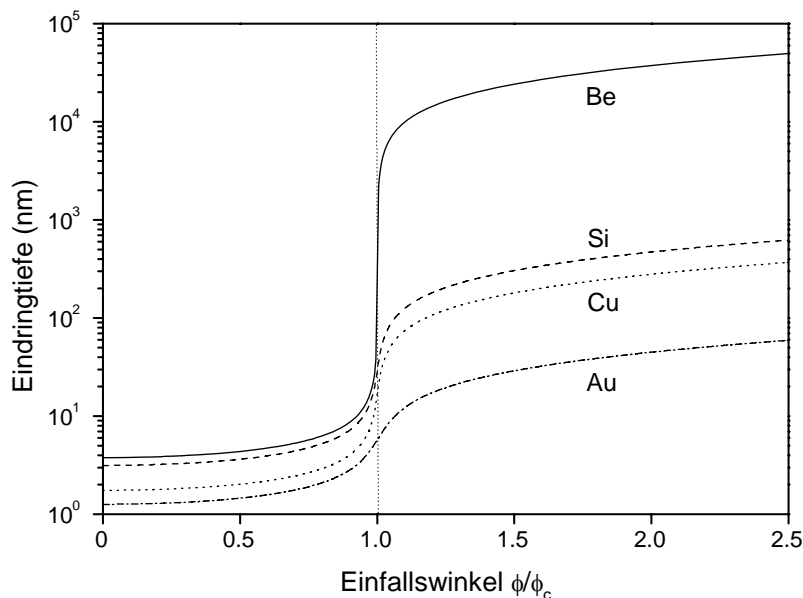


Abb. 12:  
Eindringtiefe gegen  $\phi/\phi_c$   
für  
Be ( $\delta = 5.26 \cdot 10^{-6}$   
 $\beta/\delta = 0.00035$ )  
Si ( $\delta = 7.58 \cdot 10^{-6}$   
 $\beta/\delta = 0.00232$ )  
Cu ( $\delta = 24.43 \cdot 10^{-6}$   
 $\beta/\delta = 0.00218$ )  
Au ( $\delta = 46.89 \cdot 10^{-6}$   
 $\beta/\delta = 0.00979$ )

Da, abgesehen von dem Korrekturterm  $f'$ ,  $\delta$  proportional,  $\beta$  aber überproportional zur Ordnungszahl  $Z$  ansteigt, nimmt  $\ell$  mit  $Z$  ab. Anders ausgedrückt: Mit zunehmender Ordnungszahl nimmt die Absorption der Röntgenstrahlung zu. Dies bedingt, dass die reflektierte Intensität bei Materialien höherer Ordnungszahl stärker abnimmt als bei niedriger Ordnungszahl. Bei Betrachtung von Abb. 12 könnte man vermuten, dass die Eindringtiefe für Gold so gering ist, dass bei Röntgenbeugungsmessungen an diesem Material Intensitätsprobleme auftreten. Dies trifft nicht zu, weil die Eindringtiefe mit zunehmendem Einfallswinkel hinreichend

stark ansteigt. Mit Gl. (3.25) und (3.29) errechnet sich für Gold ein Wert von 913 nm bei 20° und bereits von 1717 nm bei 40°. Ausserdem begünstigt bei der Röntgenbeugung der Formfaktor die Beugungsintensität von Materialien hoher Ordnungszahl.

Wird aus dem kritischen Winkel auf die Materialdicke geschlossen, so ist darauf zu achten, dass die Dicke der obersten Schicht mindestens in der Größenordnung der Eindringtiefe liegt. Andernfalls wird die Reflexion des darunter liegenden Materials zu stark miterfasst. Bei Beryllium ( $\beta/\delta = 0.0003497$ ) beträgt die Eindringtiefe 9897 nm für  $\phi/\phi_c = 1.1$  und 286 nm für  $\phi/\phi_c = 1.0$ . Für Platin ( $\beta/\delta = 0.09436$ ) ergeben sich 12.0 nm für  $\phi/\phi_c = 1.1$  und 5.5 nm für  $\phi/\phi_c = 1.0$ .

#### 4. Berechnung der Reflexion an Dünnschichten nach der Rekursions-Methode von Paratt

In Kapitel 3 wurden die Reflexionsbedingungen an der glatten Grenzschicht zwischen Luft und einem Festkörper behandelt. Wir übertragen nun diese Bedingungen auf die glatte Grenzschicht zwischen zwei beliebigen Medien. Wenn sich die Amplituden aller ein- und auslaufenden Wellen an dieser Grenzschicht bestimmen lassen, hat man die nötigen Eingangsdaten für die Berechnungen an der nächsten Grenzschicht eines Schichtpaketes. Man kann auf diese Weise eine komplette Schichtenfolge erfassen. Der hierfür benutzte Algorithmus wurde bereits (1954) von Parrat vorgeschlagen. Er beruht auf Ausgangsgleichungen, deren Voraussetzungen aus Abb. 13 zu ersehen sind.

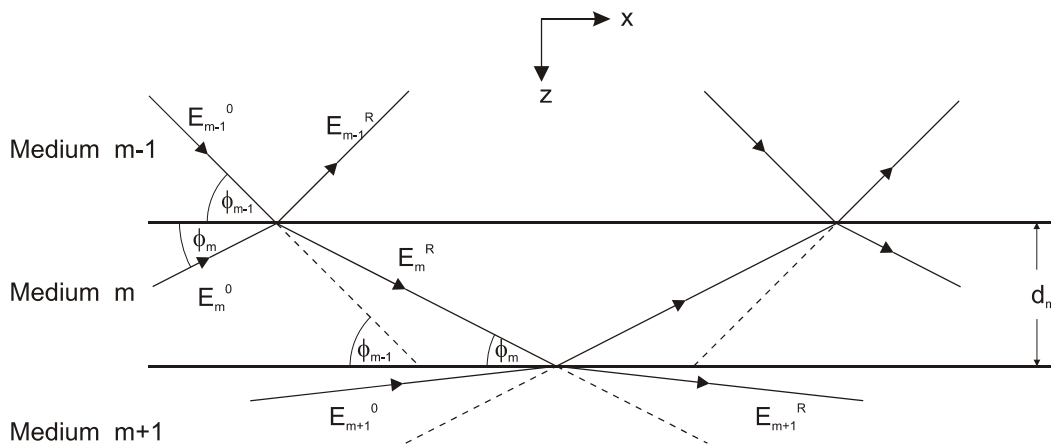


Abb. 13: Reflexion und Brechung in der  $m$ -ten Teilschicht eines Dünnschichtsystems

An die obere Grenzschicht zwischen den Medien  $m-1$  und  $m$  trifft die einfallende Welle  $E_{m-1}^0$  mit dem Amplitudenfaktor  $a_{m-1}$ . Sie wird teilweise reflektiert, teilweise in das Medium  $m$  hineingebrochen. Die gleichen Prozesse finden statt für die aus dem Medium  $m$  von unten auf die Grenzschicht mit dem Amplitudenfaktor  $a_m$  einlaufende Welle  $E_m^0$ . Der reflektierte Teilstrahl aus Medium  $m-1$  und der gebrochene Teilstrahl aus Medium  $m$  überlagern sich in Medium  $m-1$  zu  $E_{m-1}^R$ . Analog ergibt sich  $E_m^R$  in Medium  $m$ . Die Amplitudenfaktoren  $a$  wurden bereits in Abschnitt 3.3 hergeleitet. Mit Gl.(3.23) und Gl.(3.26) lässt sich schreiben

$$a_m = \exp(-k_1(Q_m + iP_m)z) = \exp(-ik_1\sqrt{\sin^2\phi - 2\delta_m - 2i\beta_m}z). \quad (4.1)$$

$P_m$  und  $Q_m$  werden durch die Gleichungen (3.24) und (3.25) definiert, wobei die Parameter  $\beta$  und  $2\delta = \phi_c^2$  des komplexen Brechungsindex auf das Medium  $m$  zu beziehen sind. Parrat hat die Tiefenabhängigkeit  $z$  vereinfachend durch den konstanten Wert der halben Dicke  $d_m/2$  der Schicht des Mediums  $m$  ersetzt. Schreibt man ausserdem zur Abkürzung

$$f_m = \sqrt{\sin^2\phi - 2\delta_m - 2i\beta_m}, \quad (4.2)$$

so erhält man

$$a_m = \exp(-ik_1f_m\frac{d_m}{2}) = \exp(-i\frac{\pi}{\lambda}f_md_m). \quad (4.3)$$

Wir beschränken uns im Folgenden auf den Fall, dass der elektrische Feldvektor  $E$  senkrecht auf der Einfallsebene steht. Wie bereits in Abschnitt 3.2 würden wir unter der Voraussetzung kleiner Einfallswinkel die gleichen Ergebnisse auch für die Bedingung erhalten, dass  $E$  parallel zur Einfallsebene gerichtet ist.

Die Tangentialkomponente von  $E$  ist an der Grenzfläche stetig. Dies liefert unter Beachtung der jeweiligen  $z$ -Richtung der beteiligten Teilstrahlen die erste der beiden Basisgleichungen

$$a_{m-1}E_{m-1}^0 + \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}} = \frac{E_m^0}{a_m} + a_mE_m^R. \quad (4.4)$$

Die zweite Basisgleichung folgt aus der Stetigkeit der Tangentialkomponente des magnetischen Feldvektors  $H$  an der Grenzfläche:

$$\left(a_{m-1}E_{m-1}^0 - \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}}\right)f_{m-1}k_1 = \left(\frac{E_m^0}{a_m} - a_mE_m^R\right)f_mk_1. \quad (4.5)$$

mit  $a_m$  und  $f_m$  gemäß (4.2) und (4.3). Die Gleichungen (4.4) und (4.5) werden im Anhang A1 hergeleitet. Ausgehend von Gl. (4.4) und (4.5) hat Parrat die folgende Rekursionsformel zur Berechnung des Reflexionsgrades  $E^R/E^0$  eines Schichtsystems entwickelt:

$$a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = a_{m-1}^4 \frac{\frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} + a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0}}{1 + a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m}} \quad (4.6)$$

Nähere Details zur Herleitung und Anwendung dieser Formel in Programmen finden sich in den Abschnitten A2 – A4 des Anhangs.

Eingangsdaten für den Parrat-Rekursionsalgorithmus sind die Anzahl der Schichten sowie deren Dicken, Dichten und die Ordnungszahlen und relativen Atommassen der in den Schichten auftretenden Elemente.

Außerdem werden für diese Elemente die Korrekturfaktoren  $f'$  und  $f''$  zur Berechnung der Größen  $\delta$  und  $\beta$  des komplexen Brechungsindex benötigt. Bei Schichten, die nicht aus Einzelementen bestehen, sind hierfür unter Berücksichtigung der jeweiligen Stöchiometrie die modifizierten Formeln von Abschnitt 2.3.3 anzuwenden. Das Substrat wird als Schicht unendlicher Dicke behandelt. Mit diesen Eingangsdaten und den daraus resultierenden Werten für  $\delta$  und  $\beta$  lassen sich für einen vorgegebenen Winkel zu jeder Schicht die durch Gl. (4.1) und (4.2) definierten Größen  $a$  und  $f$  berechnen.

Die Rekursion startet für den vorgegebenen Winkel mit dem Index  $m_{\max}$  beim Substrat und geht nach außen. Wegen der unendlichen Dicke des Substrats gilt hier für den Amplitudenfaktor gemäß (4.1)  $a_m = 0$  und dementsprechend auch

$$a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} = 0.$$

Setzt man dies in Gl. (4.6) ein, so erhält man

$$a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = a_{m-1}^4 \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m}.$$

Dieses Ergebnis wird wieder in Gl. (4.6) eingesetzt. Durch sukzessive Verringerung des Laufindex  $m$  von Schicht zu Schicht gelangt man schließlich zum Index  $m = 1$ , der dem Außenmedium Luft entspricht. Der Brechungsindex von Luft ist 1. Hier gilt  $\delta = \beta = 0$ . Da die Schichttiefe in Luft keine Rolle mehr spielt, ist  $d_l = 0$  in Gl. (4.3), sodass  $a_l = 1$ . Am Ende der Rekursion erhält man

$$\frac{E_1^R}{E_1^0} = \frac{\frac{f_1 - f_2}{f_1 + f_2} + a_2^2 \frac{E_2^R}{E_2^0}}{1 + a_2^2 \frac{E_2^R}{E_2^0} \frac{f_1 - f_2}{f_1 + f_2}}. \quad (4.7)$$

Das Intensitätsverhältnis  $I_R / I_0$  von reflektierter zu einfallender Strahlung in Luft an der Oberfläche des vorgegebenen Dünnschichtsystems ist

$$\boxed{\frac{I_R}{I_0} = \left| \frac{E_1^R}{E_1^0} \right|^2}. \quad (4.8)$$

Die beschriebenen Rekursionsschritte sind für alle Winkel des interessierenden Winkelbereichs zu wiederholen.

## 5. Dickenbestimmung einer Einfeldschicht aus dem Winkelabstand der Interferenzmaxima

Das Parrat-Verfahren wurde zwar für Mehrfeldschichten konzipiert, ist aber auch bei Einfeldschichten anwendbar. Für diesen Spezialfall ließe sich die Schichtdicke auf wesentlich einfachere Weise auch aus der Interferenz der reflektierten Wellen am Substrat und an der Dünnschichtoberfläche bestimmen. Wenn der Gangunterschied beider Wellen ein Vielfaches der Wellenlänge beträgt, erhält man Intensitätsmaxima. Es gilt

$$2d n_2 \sin \varphi = j\lambda \quad j = 1, 2, \dots \quad (5.1)$$

wobei  $d$  die Schichtdicke,  $n_2$  den Brechungsindex der Schicht,  $\varphi$  wie in Abb. 7 den Winkel zwischen Oberfläche und gebrochenem Strahl und  $\lambda$  die Wellenlänge darstellen. Gl. 5.1 entspricht der bekannten Bragg-Gleichung bei Röntgenbeugung. Mit

$$n_2 = 1 - \delta \quad \text{gemäß (2.28a) und dem Brechungsgesetz}$$

$$\frac{n_2}{n_1} = \frac{\cos \phi}{\cos \varphi} \quad \text{gemäß (3.1), wobei } \phi \text{ der Einfallswinkel und } n_1 = 1 \text{ für Luft, lässt sich}$$

$$n_2 \sin \varphi = \sqrt{n_2^2 - n_2^2 \cos^2 \varphi} \quad \text{umschreiben in}$$

$$n_2 \sin \varphi = \sqrt{(1 - \delta)^2 - \cos^2 \phi}.$$

Nach Reihenentwicklung von  $\cos \phi$  erhält man näherungsweise

$$n_2 \sin \varphi = \sqrt{\phi^2 - 2\delta},$$

wobei wegen  $\phi \ll 1^\circ$  und  $\delta \ll 1$  Potenzen höherer Ordnung vernachlässigt wurden. Ersetzen von  $\delta$  durch den kritischen Winkel  $\phi_c$  über die Beziehung (3.4)  $\phi_c = \sqrt{2\delta}$  ergibt schließlich

$$\boxed{2d \sqrt{\phi^2 - \phi_c^2} = j \cdot \lambda \quad j = 1, 2, \dots} \quad (5.2)$$

## 6. Rauigkeit

Die bisherigen Rechnungen sind nur gültig für ideal glatte Oberflächen. Reale Oberflächen weisen im Gegensatz zu dieser Idealbedingung zwei Arten von Oberflächenrauigkeit auf:

- a) Schwache Oberflächenwelligkeiten, die in Ausdehnungsbereichen von mehreren hundert Nanometern eine geringe Neigung der Oberfläche gegenüber der mittleren Orientierung bewirken.
- b) Mikroskopische Rauigkeit mit starken Abweichungen der Oberflächenneigung von der mittleren Orientierung im Ausdehnungsbereich zwischen Atommaßen und einigen Nanometern.

Schwache Oberflächenwelligkeiten verursachen eine Winkelverbreiterung des reflektierten Strahls. Man kann sich den reflektierten Strahl entstanden denken als die Überlagerung der Reflexionen an verschiedenen geneigten ideal glatten Teilerflächen. Sind die Unterschiede gering, wirkt sich dieser Effekt gegenüber einer Messung an einer ideal glatten Oberfläche aus wie eine Verschlechterung des Winkelauflösungsvermögens. Stärkere Welligkeiten können eine starke Deformation der Reflexionskurve bewirken.

Mikroskopische Rauigkeit führt zu starker Intensitätsabnahme des pro Winkelbereich reflektierten Strahls. Dieses Verhalten wird in der BRUKER-Auswerte-Software berücksichtigt auf der Basis der Modelle von Névo & Croce (1980) und Vidal-Vincent (1984).

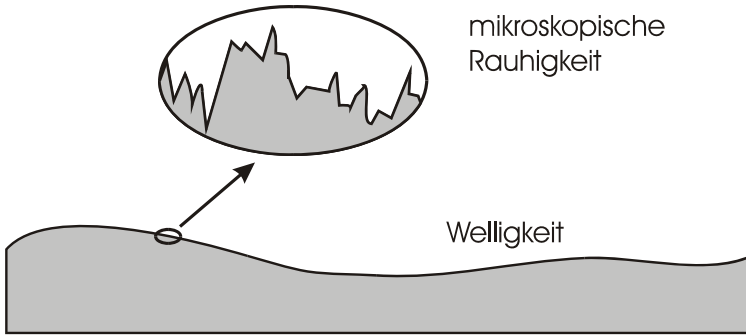


Abb. 14:  
Welligkeit und mikroskopische  
Rauigkeit

Das Névot-Croce-Modell beruht auf folgenden Annahmen: Die Grenzschicht zwischen zwei Medien bei  $z_0$  besteht aus einem Ensemble glatter Oberflächen, deren Tiefenposition um  $z_0$  herum entsprechend einer Gauss-Verteilung  $w(z)$  variiert.

$$w(z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(z - z_0)^2}{2\sigma^2}\right). \quad (6.1)$$

Die Standardabweichung  $\sigma$  stellt ein Rauigkeitsmaß dar und wird allgemein als rms-Rauigkeit bezeichnet (rms = root mean square)

$$\text{rms-Rauigkeit} = \sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (z_i - z_0)^2}. \quad (6.2)$$

Betrachtet man den Allgemeinfall von  $N$  Schichten, so liegen die Grenzflächen der  $j$ -ten Schicht nicht mehr bei  $\pm d_j/2$  wie von Parrat für glatte Oberflächen angenommen, sondern bei  $-d_j/2 + u_{j-1}$  und  $d_j/2 + u_j$ , wobei sich  $u_j$  aus der Gaussverteilung ergibt. Nach Névot und Croce muss der für glatte Oberflächen durch Gl. (3.12) definierte Reflexionsgrad  $r_{m-1,m}$  für die Reflexion an der Grenzfläche zwischen den Medien  $m-1$  und  $m$ , aus dem sich über  $|r|^2$  die Intensität des reflektierten Strahls ergibt, modifiziert werden gemäß

$$r_{m-1,m}^{\text{rauh}} = r_{m-1,m} \exp(-2\sigma_m^2 k_{z,m-1} k_{z,m})^2. \quad (6.3)$$

Der Exponentialterm, der die Rauigkeit beschreibt, ist nicht für alle Grenzflächen gleich. Jede Grenzfläche hat eine individuelle Rauigkeit und beeinflusst die reflektierte Intensität in unterschiedlicher Weise. Abb. 14 zeigt Rechenbeispiele für den Einfluss der Rauigkeit auf das Reflexionsvermögen einer 60 nm  $\text{TiO}_2$ -Schicht auf Floatglas-Substrat. Für das Substrat wurden rms-Rauigkeiten von 0 und von 1 nm angenommen.

Die Grenzflächenrauigkeit wirkt sich auf die Intensität des reflektierten Strahls genauso aus wie eine im Englischen als Grading bezeichnete allmähliche Dichteabnahme, ein Fall, mit dem aufgrund von Vermischungen an der Grenze zweier Dünnschichten zu rechnen ist. Sowohl Rauigkeit als auch Grading bewirken statt einer abrupten eine allmähliche Änderung des Brechungsindex mit der Tiefe. Bei diesen Betrachtungen ist allerdings keine diffuse Streuung berücksichtigt worden, die bei mikroskopisch rauen Oberflächen ebenfalls auftritt.



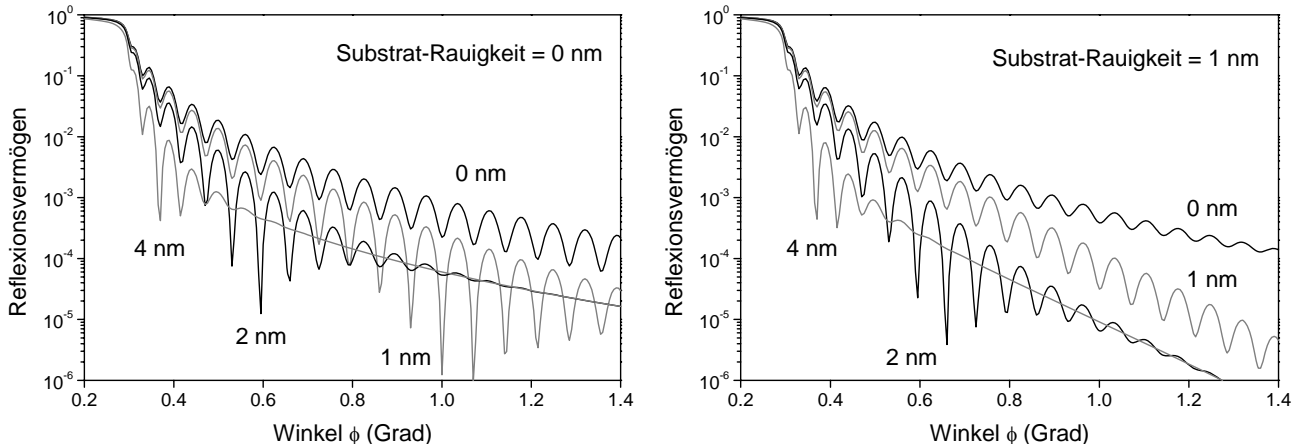


Abb. 14: Berechnetes Reflexionsvermögen von 60 nm TiO<sub>2</sub> auf Floatglas für Substrat-Rauigkeiten von 0 und 1 nm sowie Schichtrauigkeiten von 0, 1, 2 und 4 nm

### 7. Beispiele von Mehrschichten

In den folgenden Abbildungen wird am Beispiel verschiedener Simulationen gezeigt, wie empfindlich die Röntgen-Reflektometrie auf die Variation von Dicke oder Dichte der Einzelschichten eines Dünnschichtsystems reagiert. Allen Abbildungen liegt die Messung der Reflexionsintensität eines durch Sputtern erzeugten Mehrschichtsystems der Schichtenfolge ITO-Silber-ITO auf Glas zugrunde. ITO ist die Abkürzung für Indium-Zinn-Oxid, ein Material, das als transparente Elektrode für Displays Verwendung findet, weil es leitfähig ist und hohe Transmission für sichtbares Licht aufweist. Durch Einbettung einer dünnen Silberschicht kann die Leitfähigkeit noch weiter gesteigert werden. Die geringe Dicke der Silberschicht im Bereich

von ca. 10 nm verhindert, dass sich Lichtabsorption durch Silber bemerkbar macht.

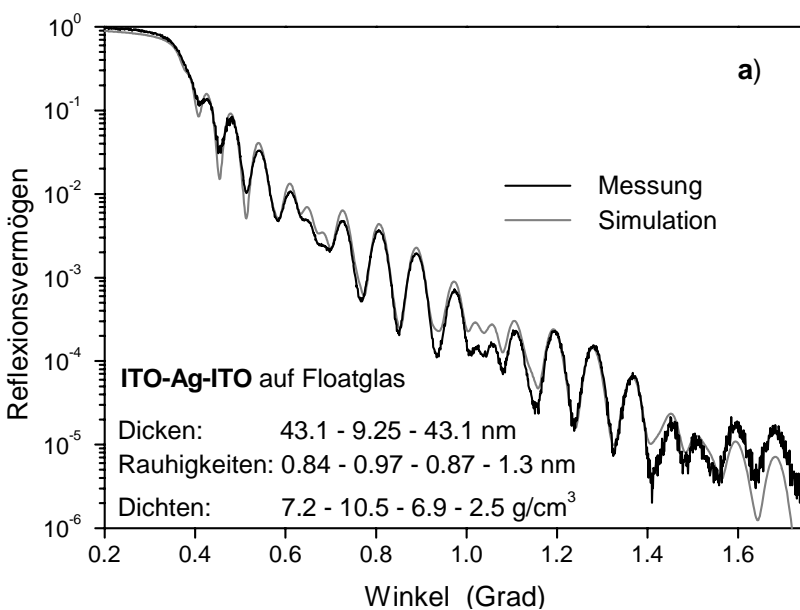


Abb. 15a: Vergleich von gemessenem und simuliertem Reflexionsvermögen eines ITO-Ag-ITO-Schichtsystems auf Floatglas. Die Simulationsparameter für die Dicken, Rauigkeiten und Dichten sind in der Schichtenfolge von außen nach innen angegeben. Am Ende stehen die Substratparameter.

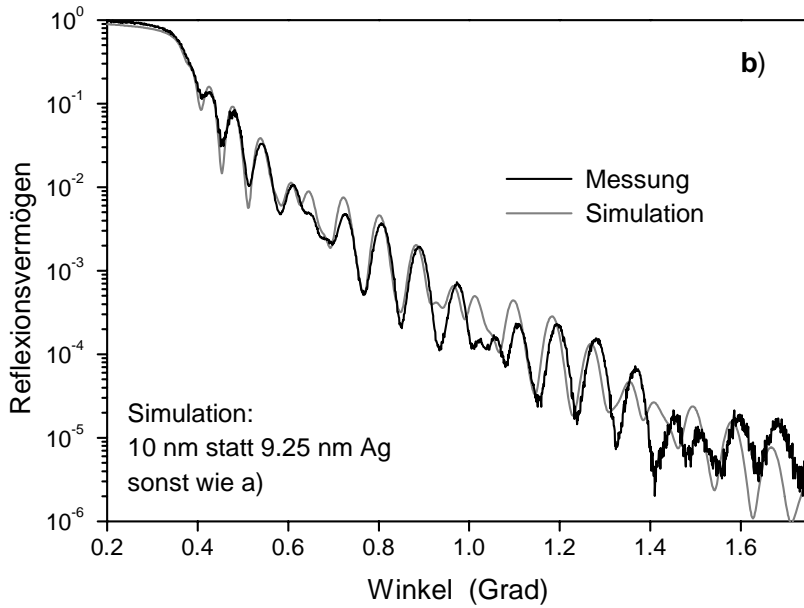


Abb. 15b:  
wie Abb. 15a, jedoch für die Simulation 10 nm statt 9.25 nm als Dicke der Silber-Schicht angenommen.

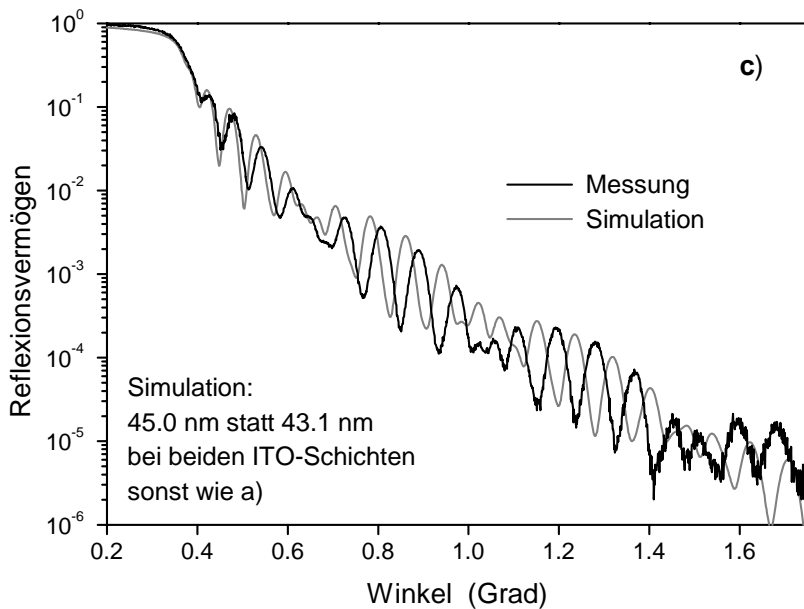


Abb. 15c:  
wie Abb. 15a, jedoch für die Simulation 45.0 nm statt 43.1 nm als Dicke beider ITO-Schichten angenommen.

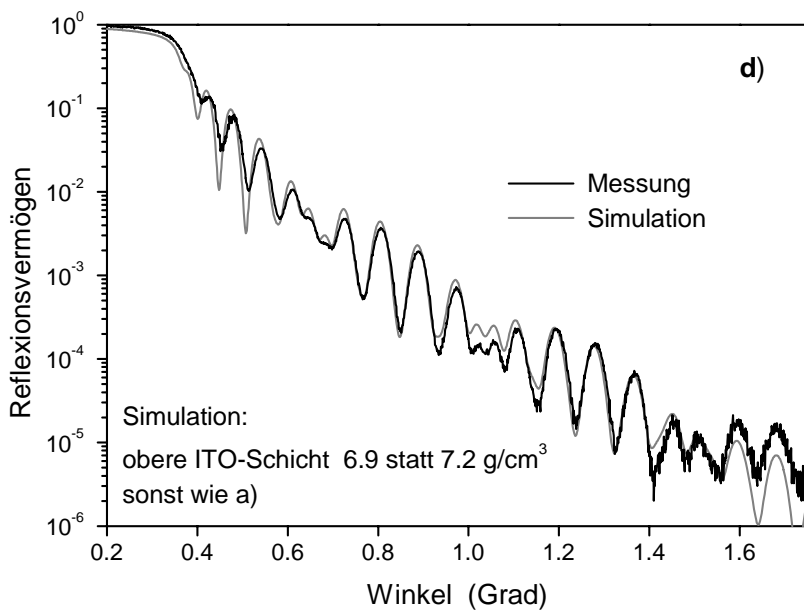


Abb. 15d:  
wie Abb. 15a, jedoch für die Simulation 6.9 g/cm<sup>3</sup> statt 7.2 g/cm<sup>3</sup> als Dichte der oberen ITO-Schicht angenommen.

In Abb. 15a ist das Messergebnis mit der bestmöglichen Simulation dargestellt. Diese ergab, in der Reihenfolge ITO - Silber - ITO - Glas von außen nach innen angegeben, für die Dichten Werte von 7.2, 10.5, 6.9 und 2.5 g/cm<sup>3</sup>, für die rms-Rauigkeiten 0.84, 0.97, 0.87 und 1.3 nm und für die Schichtdicken 43.1, 9.25 und 43.1 nm. Abb.15b zeigt dasselbe Messergebnis mit einer Simulation, bei der von den genannten Parametern lediglich die Schichtdicke von 9.25 nm auf 10 nm geändert wurde. Die Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung ist hier sichtbar schlechter als in Abb. 15a. Dies demonstriert, dass die Röntgen-Reflektometrie Schichtdickenunterschiede von weniger als 1 nm deutlich erkennt. In Abb. 15c wurde die korrekte Silber-Schichtdicke von 9.25 nm beibehalten, aber die Dicke der beiden ITO-Schichten von 43.1 nm auf 45 nm erhöht.

Die weiteren Bilder zeigen den Einfluss von Dichteänderungen. In Abb. 15a wurde für die äußere ITO-Schicht eine Dichte von 7.2 g/cm<sup>3</sup>, für die innere ITO-Schicht von 6.9 g/cm<sup>3</sup> ermittelt. Die Simulation in Abb. 15d unterstellt für beide ITO-Schichten die gleiche Dichte von 6.9 g/cm<sup>3</sup>. Man erkennt eine Verschiebung der Reflexionskurve im Bereich des kritischen Winkels zu kleineren Winkeln. Dagegen ergibt sich keine Änderung gegenüber Abb. 15a, wenn man für beide ITO-Schichten den Dichte-Wert von 7.2 g/cm<sup>3</sup> der äußeren ITO-Schicht wählt (Abb. 15e).

Zuweilen erfolgt bei einem Dünnschichtsystem der Übergang vom Substrat zur Schicht nicht abrupt, sondern ungewollt über eine Zwischenschicht. Derartige Gegebenheiten lassen sich mit der Röntgen-Reflektometrie erkennen. Abb. 16 zeigt wieder Ergebnisse eines ITO-Silber-ITO-Systems ähnlicher Beschaffenheit wie in Abb. 14. Die Simulationsparameter in Abb. 16a und Abb. 16b sind identisch für das Glassubstrat, die Silberschicht und die obere ITO-Schicht. Weil mit keiner Parameterwahl für ITO-Ag-ITO eine optimale Anpassung

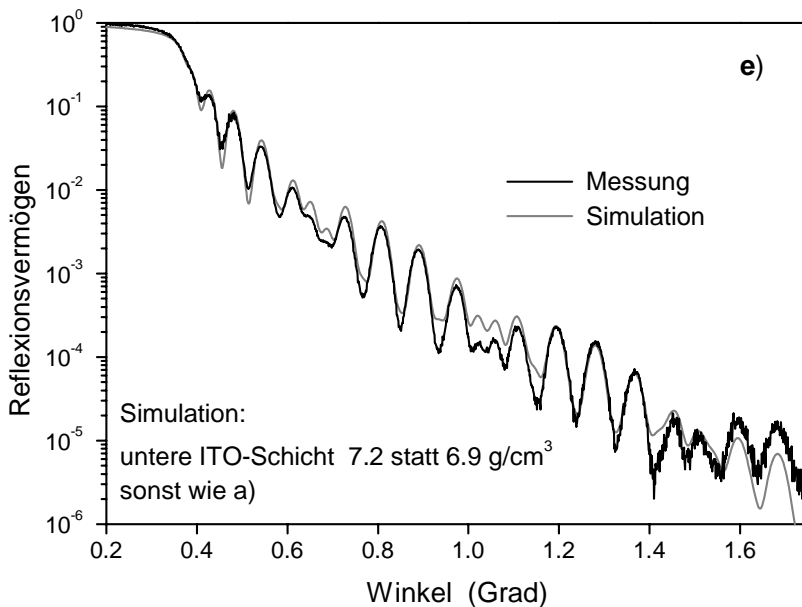


Abb. 15e:  
wie Abb. 15a, jedoch für die Simulation 7.2 g/cm<sup>3</sup> statt 6.9 g/cm<sup>3</sup> als Dichte der unteren ITO-Schicht angenommen.

an die Messkurve gelang, wurde bei konstanter Gesamtdicke eine dünne Zusatzschicht von 3.1 nm Dicke und einer Dichte von 4.6 g/cm<sup>3</sup> zwischen Substrat und unterer ITO-Schicht angenommen. Wie Abb. 16b im Vergleich zu Abb. 16a demonstriert, ließ sich hiermit die Übereinstimmung zwischen Messung und Simulation deutlich verbessern.

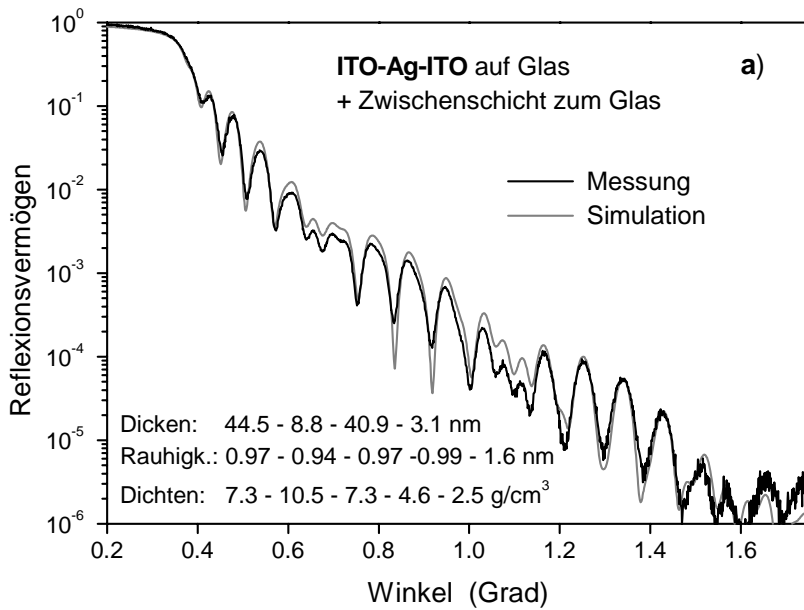


Abb. 16a:  
Vergleich von gemessenem und simuliertem Reflexionsvermögen eines ITO-Ag-ITO-Schichtsystems auf Floatglas mit zusätzlich angenommener Zwischenschicht von 3.1 nm Dicke zum Substrat. Die Simulationsparameter für die Dicken, Rauigkeiten und Dichten sind in der Schichtenfolge von außen nach innen angegeben.

Bei vielen Schichtsystemen erfordert die Optimierung der Übereinstimmung zwischen Simulation und Röntgen-Reflektometrie-Messung die Annahme einer dünnen zusätzlichen Oberflächenschicht, die durch Adsorptionseffekte und Oberflächenreaktionen der Dünnschichtprobe beim Kontakt mit Luft entstehen. Bei dickeren Oberflächenschichten dieser Art erfolgt eventuell ein allmählicher Übergang der Dichte von der Oberfläche zum Volumen.

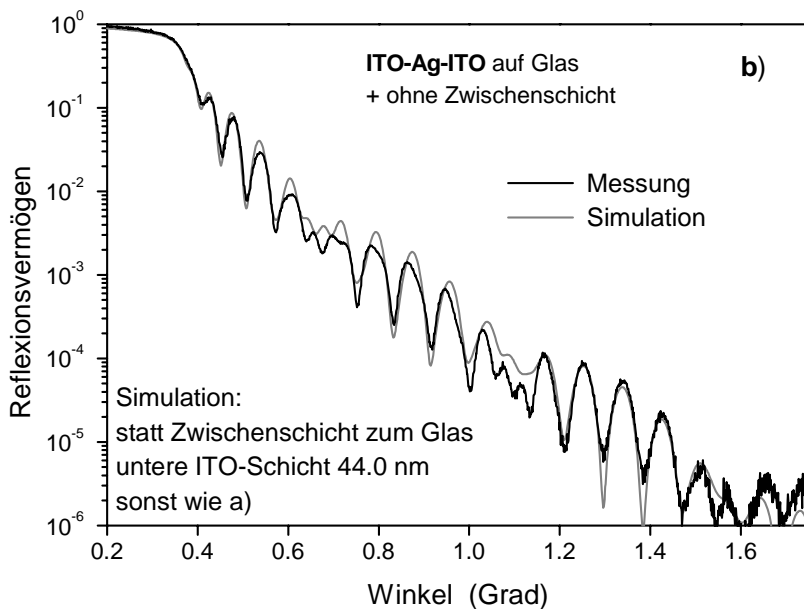


Abb. 16b:  
wie Abb. 16a, jedoch ohne Zwischenschicht zum Substrat. Für die Simulation wurde die Dicke der unteren ITO-Schicht mit 44.0 nm angenommen. Dies entspricht der Gesamtdicke von Zwischenschicht und unterer ITO-Schicht bei Abb. 16a.

## 8. Literatur

### **Zur Röntgenreflektometrie:**

- A.H. Compton, *Philos. Mag.* 45 (1923) 1121  
H. Kiessig, *Ann. Phys.* 10 (1931) 769  
L. Nénot, P. Croce, *Rev. Phys. Appl.* (1980) 761  
L.G. Parrat, *Phys. Rev.* 95 (1954) 359  
B. Vidal, P. Vincent, *Appl. Optics* 23 (1984) 1794  
H. Zabel, *Appl. Phys. A* 58 (1994) 159

### **Zu Röntgenstrahlung, dielektrischen und optischen Dünnschichteigenschaften:**

- Bergmann-Schäfer, *Lehrbuch der Experimentalphysik*, Bd. 3, *Optik*, Walter de Gruyter, Berlin (1993)  
M.A. Blochin, M.A., *Physik der Röntgenstrahlen*, VEB Verlag Technik, Berlin (1957)  
K. Kopitzki, *Einführung in die Festkörperphysik*, Teubner, Stuttgart (1986)  
P. Lorrain, D.R. Corson, F. Lorrain, *Elektromagnetische Felder und Wellen*, Walter de Gruyter, Berlin (1995)  
O. Stenzel, *Das Dünnschichtspektrum*, Akademie Verlag, Berlin (1996)

## Anhang

### A1. Rechnungen zur Parrat-Rekursionsformel

#### A1.1. Herleitung der Basisgleichungen aus den Maxwell'schen Gleichungen

In Kapitel 4 wurden mit (4.4) und (4.5) die beiden Basisgleichungen der Parrat-Rekursionsformel angegeben

$$a_{m-1}E_{m-1} + \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}} = \frac{E_m}{a_m} + a_m E_m^R \quad (\text{A1})$$

und 
$$\left( a_{m-1}E_{m-1} - \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}} \right) f_{m-1} = \left( \frac{E_m}{a_m} - a_m E_m^R \right) f_m \quad (\text{A2})$$

mit 
$$a_m = \exp\left(-i \frac{\pi}{\lambda} f_m d_m\right) \quad (\text{A3})$$

$$f_m = \sqrt{\sin^2 \phi - 2\delta_m - 2i\beta_m} = P_m - iQ_m \quad (\text{A4})$$

für den Einfallswinkel  $\phi$  und

$$P_m = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\sin^2 \phi - 2\delta_m)^2 + 4\beta_m^2} + (\sin^2 \phi - 2\delta_m)^2} \quad (\text{A5})$$

$$Q_m = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\sqrt{(\sin^2 \phi - 2\delta_m)^2 + 4\beta_m^2} - (\sin^2 \phi - 2\delta_m)^2} \quad (\text{A6})$$

$$\delta_m = \frac{N_A r_e}{2\pi} \lambda^2 \frac{\rho_n}{A_n} (Z_m + f_m') \quad (\text{A7})$$

$$\beta_m = \frac{N_A r_e}{2\pi} \lambda^2 \frac{\rho_m}{A_m} (f_m''). \quad (\text{A8})$$

Die Herleitung der Basisgleichungen (A1) und (A2) ist ähnlich wie die Herleitung der in Abschnitt 3.2 erwähnten Fresnelschen Gleichungen. Sie beruht auf den Maxwell'schen Gleichungen:

$$\text{rot } \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \quad (\text{A9})$$

$$\text{rot } \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{A10})$$

$$\text{div } \vec{D} = \rho \quad (\text{A11})$$

$$\text{div } \vec{B} = 0. \quad (\text{A12})$$

In der optischen Spektroskopie ist es üblich, die Stromdichte  $\vec{j}$  und die Ladungsträgerdichte  $\rho$  zu vernachlässigen. Dies schließt Materialien mit freien Ladungsträgern nicht aus. Diese können aber wie gebundene Ladungen behandelt werden, da sie wegen der hohen Frequenzen der elektromagnetischen Strahlung nur Schwingungen mit sehr kleiner Amplitude ausführen. Ströme freier Ladungsträger treten nicht auf. Diese Näherungen sind bereits für den sichtbaren Spektralbereich zulässig. Sie gelten daher erst recht auch im Röntgenbereich, wo die Frequenzen noch höher liegen. (A9) – (A12) sind somit zu ersetzen durch

$$\text{rot } \vec{H} = \vec{D} \quad (\text{A13})$$

$$\text{rot } \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{A14})$$

$$\text{div } \vec{D} = 0 \quad (\text{A15})$$

$$\text{div } \vec{B} = 0. \quad (\text{A16})$$

Wir betrachten eine linear polarisierte Welle, für die gilt

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \exp[i(\omega t - \vec{k}\vec{r})] \quad \text{und} \quad \vec{H} = \vec{H}_0 \exp[i(\omega t - \vec{k}\vec{r})] \quad (\text{A17})$$

mit dem Wellenvektor  $\vec{k}$  und dem Ortsvektor  $\vec{r}$ . Entsprechend Fig A1 möge der E-Vektor senkrecht zur Einfallsebene stehen. Der H-Vektor liegt dann in der Einfallsebene.

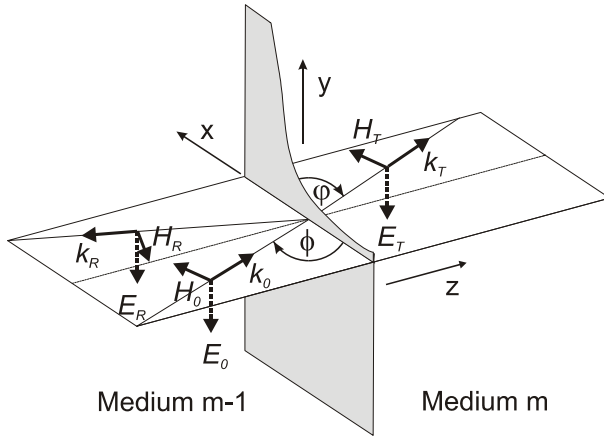


Abb. A1:  
Einfallender, reflektierter und gebrochener Strahl für eine einfallende Welle, bei der der E-Vektor senkrecht zur Einfallsebene steht. Der Poynting-Vektor weist überall in die Ausbreitungsrichtung.

Die Tangentialkomponenten des E- und H-Vektors sind an der Grenzfläche stetig. Für die Tangentialkomponente des E-Vektors lässt sich aus Abb. A1 unmittelbar ablesen

$$E_y^0 + E_y^R = E_y^T, \quad (\text{A18})$$

wobei 0 für den einfallenden, R für den reflektierten und T für den transmittierten Strahl steht. Aus der Stetigkeit der Tangentialkomponente des H-Vektors lässt sich eine weitere Gleichung für den E-Vektor gewinnen. Hierfür müssen wir etwas weiter ausholen. Es gilt

$$\text{rot } \vec{E} = \begin{vmatrix} \vec{e}_x & \vec{e}_y & \vec{e}_z \\ \frac{\partial}{\partial x} & \frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial z} \\ E_x & E_y & E_z \end{vmatrix}.$$

Mit der Definition von  $\vec{E}$  in (A17) ergibt sich

$$\text{rot } E = \begin{pmatrix} e_x i(-k_y E_z + k_z E_y) \\ -e_y i(-k_x E_z + k_z E_x) \\ e_z i(-k_x E_y + k_y E_x) \end{pmatrix} = -i \vec{k} \times \vec{E}.$$

Aus  $\text{rot } \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$  und  $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$  für unmagnetische Medien sowie der Definition von  $\vec{H}$  in (A17) erhält man

$$-\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\mu_0 i \omega \vec{H} = -i \vec{k} \times \vec{E}. \quad (\text{A19})$$

In Abschnitt 1.2 hatten wir bei der Herleitung von Gl. (1.3)

$$k = \varepsilon \frac{\omega}{c_0}.$$

Vektoriell und mit  $\tilde{n} = \sqrt{\varepsilon}$  für den komplexen Brechungsindex lässt sich hierfür schreiben

$$\vec{k} = \vec{e} \frac{\omega}{c_0} \tilde{n}. \quad (\text{A20})$$

Der Einheitsvektor  $\vec{e}$  zeigt in die Ausbreitungsrichtung der Welle. Damit liefert (A19)

$$\vec{H} = \frac{\tilde{n}}{\mu_0 c_0} \vec{e} \times \vec{E}. \quad (\text{A21})$$

$\vec{e}_0$ , der Einheitsvektor der einfallenden Welle liegt gemäss Abb. A1 in der Einfallsebene und hat keine y-Komponente. Es gilt  $\vec{e}_0 = (\cos \phi, 0, \sin \phi)$ . Mit (A21) folgt hieraus

$$\vec{H} = \frac{\tilde{n}}{\mu_0 c_0} \begin{pmatrix} -E_y \sin \phi \\ E_x \sin \phi - E_z \cos \phi \\ E_y \cos \phi \end{pmatrix}.$$

Aus Abb. A1 ist zu ersehen, dass die Tangentialkomponente von  $\vec{H}$  in x-Richtung weist. Dementsprechend gilt für die einfallende Welle im Medium m-1

$$\vec{H}_x^0 = \frac{-\tilde{n}_{m-1}}{\mu_0 c_0} E_y^0 \sin \phi. \quad (\text{A22})$$

In analoger Weise erhält für die reflektierte Welle mit dem Einheitsvektor  $\vec{e}_R = (\cos \phi, 0, -\sin \phi)$  als Tangentialkomponente von  $\vec{H}$

$$\vec{H}_x^R = \frac{-\tilde{n}_{m-1}}{\mu_0 c_0} E_y^R \sin \phi \quad (\text{A23})$$

und für die transmittierte Welle mit  $\vec{e}_T = (\cos \phi, 0, \sin \phi)$  im Medium m

$$\vec{H}_x^T = \frac{\tilde{n}_m}{\mu_0 c_0} E_y^T \sin \phi.$$

Die Zusammenfassung von (A21) – (A23) ergibt

$$\frac{\tilde{n}_{m-1}}{\mu_0 c_0} (E_y^0 - E_y^R) \sin \phi = \frac{\tilde{n}_m}{\mu_0 c_0} E_y^T \sin \phi. \quad (\text{A24})$$



Mit Gl. (3.22) und (3.23) sowie (A4) lässt sich ersetzen

$$n_m \sin \varphi = f_m = \sqrt{\sin^2 \phi - 2\delta_m - 2i\beta_m} \quad (\text{A25})$$

und entsprechend  $n_{m-1} \sin \phi = f_{m-1}$ , wobei  $f_1 = \sin \phi$ . (A25) wird dann zu

$$(E_y^0 - E_y^R) f_{m-1} = E_y^T f_m. \quad (\text{A26})$$

Aufgrund der Voraussetzungen in Abb. A1 zeigen alle E-Vektoren in y-Richtung. Der Index y kann daher weggelassen werden.

In einem Schichtsystem treffen auf eine Grenzfläche von beiden Seiten einfallende Wellen. Wie Abb. A2 demonstriert, entsteht der im Medium m von unten einlaufende Strahl durch Rückreflexion. Er hat den gleichen Einfallswinkel  $\varphi$  wie der transmittierte Strahl aus der von Medium m-1 einlaufenden Welle. Da die Stetigkeit der Tangentialkomponenten der E- und H-Vektoren auch unter diesen Bedingungen gilt, lassen sich die Gleichungen (A18) und (A26) verallgemeinern zu

$$E_{m-1}^0 + E_{m-1}^R = E_m^0 + E_m^R \quad (\text{A27})$$

und  $(E_{m-1}^0 - E_{m-1}^R) f_{m-1} = (E_m^0 - E_m^R) f_m. \quad (\text{A28})$

Berücksichtigt man ausserdem die in Kapitel 4 hergeleiteten und in Gl. (A3) bzw. (4.3) definierten Amplitudenfaktoren unter Berücksichtigung der jeweiligen z-Richtungen, so erhält man schließlich die Basisgleichungen (A1) und (A2) für den Rekursionsalgorithmus von Parrat

$$a_{m-1} E_{m-1}^0 + \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}} = \frac{E_m^0}{a_m} + a_m E_m^R \quad (\text{A1})$$

und  $\left( a_{m-1} E_{m-1}^0 - \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}} \right) f_{m-1} = \left( \frac{E_m^0}{a_m} - a_m E_m^R \right) f_m. \quad (\text{A2})$

## A1.2. Herleitung der Parrat-Rekursionsformel aus den Basisgleichungen

Die soeben aufgestellten Basisgleichungen (A1) und (A2) bilden den Ausgangspunkt für die Parrat-Rekursionsformel (4.6) zur Berechnung der reflektierten Intensität eines Schichtsystems.

Erweitern von (A1) und (A2) liefert

$$\frac{a_{m-1}^2 E_{m-1}^0 + E_{m-1}^R}{a_{m-1}} = \frac{E_m^0 + a_m^2 E_m^R}{a_m}$$

und  $\frac{(a_{m-1}^2 E_{m-1}^0 - E_{m-1}^R) f_{m-1}}{a_{m-1}} = \frac{(E_m^0 - a_m^2 E_m^R) f_m}{a_m},$

bzw.

$$a_{m-1}^2 E_{m-1}^0 + E_{m-1}^R = \frac{a_{m-1}}{a_m} (E_m^0 + a_m^2 E_m^R) \quad (\text{A29})$$

und  $a_{m-1}^2 E_{m-1}^0 - E_{m-1}^R = \frac{a_{m-1}}{a_m} \frac{f_m}{f_{m-1}} (E_m^0 - a_m^2 E_m^R). \quad (\text{A30})$

Subtraktion (A29) – (A30):

$$2E_{m-1}^R = \frac{a_{m-1}}{a_m} \left[ (E_m^0 + a_m^2 E_m^R) - \frac{f_m}{f_{m-1}} (E_m^0 - a_m^2 E_m^R) \right] \quad (\text{A31})$$

Addition (A29) + (A30):

$$2a_{m-1}^2 E_{m-1}^0 = \frac{a_{m-1}}{a_m} \left[ (E_m^0 + a_m^2 E_m^R) + \frac{f_m}{f_{m-1}} (E_m^0 - a_m^2 E_m^R) \right] \quad (\text{A32})$$

Division (A31)/(A32):

$$\frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}^2 E_{m-1}^0} = \frac{(E_m^0 + a_m^2 E_m^R) - \frac{f_m}{f_{m-1}} (E_m^0 - a_m^2 E_m^R)}{(E_m^0 + a_m^2 E_m^R) + \frac{f_m}{f_{m-1}} (E_m^0 - a_m^2 E_m^R)} \quad (\text{A33})$$

oder

$$\frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}^2 E_{m-1}^0} = \frac{1 + a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} - \frac{f_m}{f_{m-1}} \left( 1 - a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} \right)}{1 + a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} + \frac{f_m}{f_{m-1}} \left( 1 - a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} \right)}. \quad (\text{A34})$$

Es sei  $a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} = \gamma$ .

Dann gilt

$$\begin{aligned} \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}^2 E_{m-1}^0} &= \frac{(1 + \gamma) - \frac{f_m}{f_{m-1}} (1 - \gamma)}{(1 + \gamma) + \frac{f_m}{f_{m-1}} (1 - \gamma)} = \frac{f_{m-1}(1 + \gamma) - f_m(1 - \gamma)}{f_{m-1}(1 + \gamma) + f_m(1 - \gamma)} = \frac{f_{m-1} + f_{m-1}\gamma - f_m + f_m\gamma}{f_{m-1} + f_{m-1}\gamma + f_m - f_m\gamma}, \\ \frac{E_{m-1}^R}{a_{m-1}^2 E_{m-1}^0} &= \frac{(f_{m-1} - f_m) + \gamma(f_{m-1} + f_m)}{(f_{m-1} + f_m) + \gamma(f_{m-1} - f_m)} = \frac{\frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} + \gamma}{1 + \gamma \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m}} \end{aligned}$$

oder

$$\boxed{a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = a_{m-1}^4 \frac{\frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} + a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0}}{1 + a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m}}}. \quad (\text{A35})$$

Dies ist die in Gl. (4.6) von Abschnitt 4 angegebene Parrat-Rekursionsformel, für die die zusätzlichen Definitionen (A3) – (A8) gelten.

### A1.3. Aufbereitung der Parrat-Rekursionsformel für Programmier-Anwendungen

In der Parrat-Gleichung (A35) und den zusätzlichen Definitionsgleichungen (A3) und (A4) treten komplexe Terme auf. Für die Berechnung ist eine Separation in Real- und Imaginärteil erforderlich.

Zur Vereinfachung der Schreibweise setzen wir

$$\frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} = x_{m-1,m} + iy_{m-1,m}.$$

Mit (A4) folgt

$$\frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} = \frac{(P_{m-1} - iQ_{m-1}) - (P_m - iQ_m)}{(P_{m-1} - iQ_{m-1}) + (P_m - iQ_m)} = \frac{(P_{m-1} - P_m) - i(Q_{m-1} - Q_m)}{(P_{m-1} + P_m) - i(Q_{m-1} + Q_m)}.$$

Multiplikation von Zähler und Nenner mit dem Konjugiert-Komplexen des Nenners:

$$\begin{aligned} \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} &= \frac{(P_{m-1} - P_m)(P_{m-1} + P_m) + (Q_{m-1} - Q_m)(Q_{m-1} + Q_m)}{(P_{m-1} + P_m)^2 + (Q_{m-1} + Q_m)^2} \\ &\quad + i \frac{(P_{m-1} - P_m)(P_{m-1} + P_m) + (Q_{m-1} - Q_m)(Q_{m-1} + Q_m)}{(P_{m-1} + P_m)^2 + (Q_{m-1} + Q_m)^2} \end{aligned}$$

oder

$$\begin{aligned} \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m} &= \frac{(P_{m-1}^2 - P_m^2 + Q_{m-1}^2 - Q_m^2)}{(P_{m-1} + P_m)^2 + (Q_{m-1} + Q_m)^2} + i \cdot 2 \frac{P_{m-1}Q_m - P_mQ_{m-1}}{(P_{m-1} + P_m)^2 + (Q_{m-1} + Q_m)^2}. \quad (\text{A36}) \\ &= x_{m-1,m} + iy_{m-1,m} \end{aligned}$$

Aus (A3) folgt 
$$a_{m-1}^4 = \exp\left(-i \frac{4\pi}{\lambda} f_{m-1} d_{m-1}\right).$$

Wir setzen 
$$a_{m-1}^4 = v_{m-1} - i w_{m-1}$$

und erhalten durch weiteres Umformen unter Berücksichtigung von (A4)

$$\begin{aligned} v_{m-1} - i w_{m-1} &= \exp\left[-i \frac{4\pi}{\lambda} (P_{m-1} - iQ_{m-1}) d_{m-1}\right] = \exp\left[-\frac{4\pi}{\lambda} Q_{m-1} d_{m-1} - i \frac{4\pi}{\lambda} P_{m-1} d_{m-1}\right], \\ v_{m-1} - i w_{m-1} &= \exp\left(-\frac{4\pi}{\lambda} Q_{m-1} d_{m-1}\right) \cos\left(\frac{4\pi}{\lambda} P_{m-1} d_{m-1}\right) \\ &\quad - i \exp\left(-\frac{4\pi}{\lambda} Q_{m-1} d_{m-1}\right) \sin\left(\frac{4\pi}{\lambda} P_{m-1} d_{m-1}\right). \quad (\text{A37}) \end{aligned}$$

In der Ausgangsgleichung (A35) schreiben wir weiterhin um:

$$a_m^2 \frac{E_m^R}{E_{m-1}^0} = G_m + i H_m.$$

Aus (A35) - (A37) folgt

$$a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = (v_{m-1} - i w_{m-1}) \frac{(G_m + i H_m) + (x_{m-1,m} + iy_{m-1,m})}{(G_m + i H_m) \cdot (x_{m-1,m} + iy_{m-1,m}) + 1} \quad (\text{A38})$$

$$= (v_{m-1} - i w_{m-1}) \frac{(G_m + x_{m-1,m}) + i (H_m + y_{m-1,m})}{(G_m x_{m-1,m} - H_m y_{m-1,m} + 1) + i (G_m y_{m-1,m} + H_m x_{m-1,m})}$$

oder

$$G_{m-1} + i H_{m-1} = \frac{\overbrace{v_{m-1}(G_m + x_{m-1,m}) + w_{m-1}(H_m + y_{m-1,m})}^{p_{m-1}} + i \left[ \overbrace{v_{m-1}(H_m + y_{m-1,m}) - w_{m-1}(G_m + x_{m-1,m})}^{q_{m-1}} \right]}{\underbrace{(G_m x_{m-1,m} - H_m y_{m-1,m} + 1)}_{r_{m-1}} + i \underbrace{(G_m y_{m-1,m} + H_m x_{m-1,m})}_{s_{m-1}}}. \quad (\text{A39})$$

Die Umformungen werden mit den eingeführten Abkürzungen  $p$ ,  $q$ ,  $r$  und  $s$  fortgesetzt:

$$a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = \frac{p_{m-1} + i q_{m-1}}{r_{m-1} + i s_{m-1}} = \frac{(p_{m-1} + i q_{m-1})(r_{m-1} - i s_{m-1})}{(r_{m-1} + i s_{m-1})(r_{m-1} - i s_{m-1})}$$

oder

$$a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = G_{m-1} + i H_{m-1} = \frac{p_{m-1} r_{m-1} + q_{m-1} s_{m-1}}{r_{m-1}^2 + s_{m-1}^2} + i \frac{q_{m-1} r_{m-1} - p_{m-1} s_{m-1}}{r_{m-1}^2 + s_{m-1}^2}. \quad (\text{A40})$$

Man beachte, dass das Verschwinden von Grössen mit dem Index  $m$  auf der rechten Seite von (A40) nur durch die Nomenklatur bedingt ist, wie Gl. (A39) zeigt.

#### A1.4. Programmablauf für den Parrat-Rekursionsalgorithmus

Es sei weiterhin vorausgesetzt, dass alle Schichten und das Substrat ideal glatt sind.

Für die Anwendung des Parrat-Rekursionsalgorithmus muss der Benutzer Angaben machen über die Anzahl der Schichten sowie deren Dicken, Dichten und Ordnungszahlen. Anhand der Ordnungszahlen sucht das Ausführungsprogramm aus einer Tabelle die zugehörigen relativen Atommassen sowie die Korrekturfaktoren  $f'$  und  $f''$  für die Berechnung des komplexen Brechungsindex heraus. Bei Verbindungen ist ausserdem die Stöchiometrie vorzugeben. Das Substrat geht ein als Schicht unendlicher Dicke. Dann werden anhand der Formeln (A7) und (A8) oder deren Modifikationen für Verbindungen für alle Schichten die im Brechungsindex enthaltenen Grössen  $\delta$  und  $\beta$  berechnet.

Alle weiteren Grössen sind winkelabhängig. Für den jeweiligen Winkel erfolgt für alle Schichten zunächst die Bestimmung von  $P$  und  $Q$  gemäß (A5) und (A6), von  $v$  und  $w$  für die Amplitudenfaktoren gemäß (A37) und der Hilfsgrössen  $x$  und  $y$  nach (A36). Mit den bekannten Daten für  $P$ ,  $Q$ ,  $v$ ,  $w$ ,  $x$  und  $y$  werden dann die Hilfsgrössen  $p$ ,  $q$ ,  $r$  und  $s$  berechnet und mit Gl. (A39) und (A40) aus  $G_m$  und  $H_m$  die niedriger indizierten neuen Werte  $G_{m-1}$  und  $H_{m-1}$ .

Die Rekursion startet mit dem Index  $m_{\max}$  beim Substrat und geht nach außen. Wegen der unendlichen Dicke des Substrats gilt gemäß (A3)  $a_m = 0$  und dementsprechend weiterhin auch

$$a_m^2 \frac{E_m^R}{E_m^0} = 0 \quad \text{sowie nach (A40)} \quad G_m = H_m = 0.$$

Setzt man dies in (A38) und (A39) ein, so erhält man

$$G_{m-1} + i H_{m-1} = (v_{m-1} - i w_{m-1})(x_{m-1,m} + i y_{m-1,m}), \quad (\text{A41})$$

bzw. in der ursprünglichen Schreibweise

$$a_{m-1}^2 \frac{E_{m-1}^R}{E_{m-1}^0} = a_{m-1}^4 \frac{f_{m-1} - f_m}{f_{m-1} + f_m}.$$

Mit dem Ergebnis von (A41) erfolgt dann durch (A38) - (A40) die Berechnung von  $G_{m-2}$  und  $H_{m-2}$ . Hat der Laufindex den Wert 1 erreicht, ist die Rekursion beendet.  $G_1$  und  $H_1$  beschreiben die Reflexion in Luft. Der Brechungsindex von Luft ist 1 und somit gilt  $\delta = \beta = 0$ . Da in Luft außerdem die Schichtdicke keine Rolle mehr spielt, kann  $d_1 = 0$  gesetzt werden in Gl. (A3), sodass  $a_1 = 1$ . Die Strahlungsintensität ergibt sich aus dem Quadrat des elektrischen Feldvektors. Für das Intensitätsverhältnis  $I_R / I_0$  von reflektierter zu einfallender Strahlung erhalten wir schließlich als Endergebnis

$$\boxed{\frac{I_R}{I_0} = \left| \frac{E_1^R}{E_1^0} \right|^2 = (G_1 + i H_1)(G_1 - i H_1) = G_1^2 + H_1^2}. \quad (\text{A42})$$

**A2. Parameter-Tabelle der Elemente zur Berechnung des komplexen Brechungsindex**

	<b>Z</b>	<b>Relative Atom-Masse A</b>	<b>Dispersions- Korrektur f'</b>	<b>Absorptions- Korrektur f''</b>	$\frac{(Z + f')}{A}$ $\frac{(Z + f'')}{A}$
H	1	1.007970	-	-	-
He	2	4.002600	0	0	1.14
Li	3	6.941000	0.0008	0.0003	0.99
Be	4	9.012180	0.0038	0.0014	1.01
B	5	10.810000	0.0090	0.0039	1.06
C	6	12.011500	0.0181	0.0091	1.14
N	7	14.006700	0.0311	0.0180	1.15
O	8	15.994000	0.0492	0.0322	1.15
F	9	18.998400	0.0727	0.0534	1.09
Ne	10	20.179001	0.1019	0.0833	1.14
Na	11	22.989799	0.1353	0.1239	1.11
Mg	12	24.305000	0.1719	0.1771	1.14
Al	13	26.981501	0.2130	0.2455	1.12
Si	14	28.068001	0.2541	0.3302	1.16
P	15	30.973801	0.2955	0.4335	1.13
S	16	32.063999	0.3331	0.5567	1.16
Cl	17	35.425999	0.3639	0.7018	1.12
Ar	18	39.948002	0.3843	0.8717	1.05
K	19	39.102001	0.3868	1.0657	1.13
Ca	20	40.080002	0.3641	1.2855	1.16
Sc	21	44.955898	0.3119	1.5331	1.08
Ti	22	47.900002	0.2191	1.8069	1.06
V	23	50.941399	0.0687	2.1097	1.03
Cr	24	51.995998	-0.1653	2.4439	1.05
Mn	25	54.938000	-0.5299	2.8052	1.02
Fe	26	55.847000	-1.1336	3.1974	1.02
Co	27	58.933201	-2.3653	3.6143	0.95
Ni	28	58.709999	-3.0029	0.5091	0.97
Cu	29	63.546001	-1.9646	0.5888	0.97
Zn	30	65.370003	-1.5491	0.6778	0.99
Ga	31	69.720001	-1.2846	0.7763	0.97
Ge	32	72.589996	-1.0885	0.8855	0.97
As	33	74.921600	-0.9300	1.0051	0.98
Se	34	78.959999	-0.7943	1.1372	0.96
Br	35	79.903999	-0.6736	1.2805	0.98
Kr	36	83.800003	-0.5657	1.4385	0.97

	<b>Z</b>	<b>Relative Atom-Masse A</b>	<b>Dispersions- Korrektur f'</b>	<b>Absorptions- Korrektur f''</b>	$\frac{(Z + f')}{A}$ $\frac{(Z + f')}{A}$
Rb	37	85.467796	-0.4688	1.6079	0.98
Sr	38	87.620003	-0.3528	1.8200	0.98
Y	39	88.905899	-0.2670	2.0244	0.99
Zr	40	91.220001	-0.1862	2.2449	1.00
Nb	41	92.906403	-0.1121	2.4826	1.00
Mo	42	95.940002	-0.0483	2.7339	1.00
Tc	43	98.906197	0.0057	3.0049	0.99
Ru	44	101.070000	0.0552	3.2960	1.00
Rh	45	102.905502	0.0927	3.6045	1.00
Pd	46	106.400002	0.1215	3.9337	0.99
Ag	47	107.867996	0.1306	4.2820	1.00
Cd	48	112.400002	0.1185	4.6533	0.98
In	49	114.820000	0.0822	5.0449	0.98
Sn	50	118.690000	0.0259	5.4591	0.96
Sb	51	121.750000	-0.0562	5.8946	0.96
Te	52	127.599998	-0.1759	6.3531	0.93
J	53	126.904503	-0.3257	6.8362	0.95
Xe	54	131.300003	-0.5179	7.3500	0.93
Cs	55	132.905502	-0.7457	7.9052	0.93
Ba	56	137.339996	-1.0456	8.4617	0.91
Ta	73	180.947906	-5.7959	5.2718	0.85
W	74	183.850006	-5.4734	5.5774	0.85
Re	75	186.199997	-5.2083	5.8923	0.86
Os	76	190.199997	-4.9801	6.2216	0.85
Ir	77	192.220001	-4.7710	6.5667	0.86
Pt	78	195.089996	-4.5932	6.9264	0.86
Au	79	196.966507	-4.4197	7.2980	0.86
Hg	80	200.589996	-4.2923	7.6840	0.86
Tl	81	204.369995	-4.1627	8.0900	0.86
Pb	82	207.190002	-4.0753	8.5060	0.86
Bi	83	208.980606	-4.0111	8.9310	0.86