

**Entwicklung und Charakterisierung von
La/B₄C-Multischichtsystemen
als Röntgenspiegel
im Energiebereich 100 – 200 eV**

D i s s e r t a t i o n
zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik
der Universität Bielefeld

vorgelegt von
Stefan Hendel

Januar 2009

Gutachter:

Prof. Dr. U. Heinzmann

Prof. Dr. A. Hütten

Tag der Disputation:

03.04.2009

Teile dieser Arbeit sind zur Veröffentlichung eingereicht:

„Reflection of femtosecond pulses from soft X-ray Free-Electron Laser by periodical multilayers“

D. Ksenzov, S. Grigorian, S. Hendel, F. Bienert, M.D. Sacher, U. Heinzmann and U. Pietsch

Physica Status Solidi A

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Wechselwirkung von weicher Röntgenstrahlung mit Materie	5
2.1.1	Komplexer Brechungsindex und Photoabsorption	6
2.1.2	Reflexion an einer idealen Grenzfläche	7
2.2	Multischichten als Spiegel für XUV-Strahlung	9
2.2.1	Multischichtsysteme	9
2.2.2	Reflektivitätsmindernde Einflüsse	12
2.2.2.1	Einflüsse der Ober- und Grenzflächen	12
2.2.2.2	Schichtdickenfehler	14
2.2.3	Gammavarierte Multischichten	15
2.2.4	Bandbreiten- und Phasenoptimierte Multischichten	17
2.2.5	Ionenbeschuss der Oberflächen	19
2.3	Grundlagen der Ellipsometrie	20
2.3.1	Polarisation	20
2.3.2	Ellipsometrie	21
2.3.3	Optische Modelle	22
2.4	Genetischer Algorithmus zur Optimierung der Fit-Parameter	24
3	Experimenteller Aufbau	25
3.1	Physikalische Gasphasenabscheidung	25
3.1.1	Elektronenstrahlverdampfung	25
3.1.2	Das Material Borcarbid	26
3.1.3	Das Material Lanthan	27
3.2	In-situ-Kontrolle der Schichtabscheidung	29
3.2.1	Röntgenreflektometrie	29
3.2.2	In-Situ-Ellipsometrie	31
3.3	Ex-situ Charakteristik der Multischichten	33
3.3.1	Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall	33
3.3.2	Messungen am BESSY	34
3.3.3	Analytik mit Transmissionselektronmikroskopie	34
3.3.4	Sputter-Augerelektronenspektroskopie	35
3.4	Oberflächenoptimierung	36
3.4.1	Apparativer Umbau	36

3.4.2	Charakterisierung und Normierung	38
3.5	Software	41
4	Herstellung und Charakterisierung von periodischen La/B₄C-Multischichten	43
4.1	Stabilität und Reproduzierbarkeit der Beschichtung	43
4.2	Ober- und Grenzflächenrauigkeiten	46
4.3	Analyse der Schichtbeschaffenheit	50
5	Herstellung und Charakterisierung von aperiodischen La/B₄C-Multischichten	55
5.1	Simulationen aperiodischer Multischichtsysteme	55
5.2	Zugang zu einzelnen Schichtdicken	57
5.3	Evaluierung der optischen Konstanten	63
5.4	Modelle für die In-situ-Ellipsometrie	67
6	Reflektivitäten von periodischen und aperiodischen La/B₄C-XUV-Spiegeln	71
6.1	Periodische La/B ₄ C-Multischichten zwischen 100 und 200 eV	71
6.1.1	Röntgenspiegel bei einer energetischen Lage von 105 eV	71
6.1.2	Röntgenspiegel bei einer energetischen Lage von 140-170 eV	75
6.1.3	Röntgenspiegel bei einer energetischen Lage von 185 eV	77
6.2	Langzeitstabilität	78
6.3	Erhöhung der Reflektivitäten durch Ionenbeschuss	79
6.3.1	Einfluss beschleunigter Kryptonionen auf die Rauigkeit der B ₄ C-Schichten	79
6.3.2	Einfluss beschleunigter Kryptonionen auf die Rauigkeit der La-Schichten	84
6.4	Reflektivitäten aperiodischer Schichtsysteme	89
7	Zusammenfassung und Ausblick	97
	Anhang	99
	Danksagung	113

Abbildungsverzeichnis

1.1	Elektromagnetisches Spektrum	1
1.2	Reflektivitäten von La/B ₄ C und Mo/Si	2
2.1	Reflexion an einer idealen Grenzfläche	7
2.2	Komplexer Brechungsindex von Lanthan und Borcarbid	9
2.3	Reflexion an einer Multischicht	10
2.4	Grenzflächenübergänge	12
2.5	Grenzflächenprofilfunktion	12
2.6	Schichtdickenfehler in einer Multischicht	14
2.7	Röntgenreflektometrie-Messungen mit gestörten Kiessig-Oszillationen	15
2.8	Verschiedene Γ -Werte für La/B ₄ C-Multischichten bei 110 eV	16
2.9	Verschiedene Γ -Werte für La/B ₄ C-Multischichten bei 180 eV	17
2.10	Elliptisch polarisiertes Licht	21
2.11	Ablaufplan des genetischen Algorithmus	24
3.1	Schematischer Aufbau der Aufdampfapparatur	26
3.2	Kristallstruktur von Borcarbid	27
3.3	Signalhöhenverteilung am Proportionalzähler	29
3.4	Röntgenreflektometrie bei idealem Wachstum	30
3.5	Schematische Zeichnung der Anschlüsse des Ellipsometers	31
3.6	Aufbau der Röntgenreflektometrie	33
3.7	Apparativer Aufbau zur Ionenpolitur	36
3.8	GIXRR-Messungen zweier gleichzeitig hergestellter Multischichten	37
3.9	Korrelation von Braggpeak und Lage der Reflektivitätsmaxima	38
3.10	Korrelation von Höhe der Braggpeaks und Höhe der Reflektivitätsmaxima	39
3.11	Statistische Schwankungen bei Messungen mit GIXRR	39
3.12	Abhängigkeit der Reflektivität von der energetischen Lage	40
4.1	In-Situ Kurven der Röntgenreflektometrie mit und ohne PID-Regelung	44
4.2	GIXRR-Messkurven von Multischichten ohne und mit PID-Regelung und Fit	45
4.3	GIXRR-Messung eines Silizium-Wafers	46
4.4	Simulierte und gemessene GIXRR-Kurven zur Bestimmung der Rauigkeit	47
4.5	TEM-Aufnahme einer periodischen La/B ₄ C-Multischicht	49
4.6	EDX-Spektrum einer La/B ₄ C Multischicht	50
4.7	Augerelektronenspektren einer La/B ₄ C Multischicht	51
4.8	Relative Anteile aus Sputter-AES in einer La/B ₄ C Multischicht	52

4.9	Eindringtiefe von Xenon-Ionen in eine Doppelschicht	53
5.1	Vergleich von periodischen und aperiodischen Multischichten	55
5.2	TEM-Aufnahme und Intensitätsverlauf	58
5.3	Doppelschichtdicken aus TEM und GIXRR-Fit	59
5.4	Reflektivitätskurve bei streifendem Einfall und angepasster Fit (periodische Multischicht)	60
5.5	Reflektivitätsvergleich zwischen gefittetem Modell und Messung (periodische Multischicht)	61
5.6	Reflektivitätskurve bei streifendem Einfall und angepasster Fit (aperiodische Multischicht)	62
5.7	Reflektivitätsvergleich zwischen gefittetem Modell und Messung (aperiodische Multischicht)	62
5.8	Verlauf von Ψ und Δ bei Einzelschichten	63
5.9	Brechungsindex von Lanthan	64
5.10	Brechungsindex von Borcarbid	65
5.11	Theoretischer und experimenteller Verlauf der ellipsometrischen Parameter	67
5.12	Modell für das Wachstum einer Doppelschicht	68
5.13	Experiment und Modell der Bildung einer Zwischenschicht	68
6.1	Reflektivitäten einer 40-periodigen Multischicht	72
6.2	Gemessene und simulierte Reflektivität einer Multischicht mit 40 Perioden	72
6.3	Reflektivitäten einer 60-periodigen Multischicht	73
6.4	Gemessene und simulierte Reflektivität einer Multischicht mit 60 Perioden	74
6.5	Gemessene Reflektivitäten der Multischichten zwischen 140 und 170 eV	75
6.6	Gemessene Reflektivitäten zweier Multischichten bei 140 eV	76
6.7	Gemessene und simulierte Reflektivität einer Multischicht mit 110 Perioden	77
6.8	Langezeitstabilität der Reflektivität	78
6.9	Simulationen mit SRIM zum Ionenbeschuss von Borcarbid	79
6.10	GIXRR-Messungen an B_4C -polierten Multischichten	80
6.11	Änderung der Periodendicke beim Polieren von B_4C	81
6.12	Änderung der Reflektivität beim Polieren der B_4C -Schichten	83
6.13	Simulationen mit SRIM zum Ionenbeschuss von Lanthan	84
6.14	GIXRR-Messungen an La-polierten Multischichten	85
6.15	Änderung der Periodendicke beim Polieren von La	86
6.16	Änderung der Reflektivität beim Polieren der La-Schichten	87
6.17	Reflektivität einer polierten Multischicht	88
6.18	GIXRR-Messdaten und Fit eines aperiodischen Systems	89
6.19	Schichtdicken der aperiodischen Multischicht	90
6.20	XUV-Reflektivität und Modell einer aperiodischen Multischicht	92
6.21	XUV-Reflektivität einer aperiodischen Multischicht	93
6.22	GIXRR-Messdaten und Fit eines zweiten aperiodischen Systems	94
6.23	Schichtdicken einer weiteren aperiodischen Multischicht	95

6.24 XUV-Reflektivität einer weiteren aperiodischen Multischicht	96
A.1 Benutzeroberfläche der Verdampfersteuerung	100
A.2 Programmablaufplan der verwendeten Software	102

1 Einleitung

Reflektive Optiken für die Extreme Ultraviolette Strahlung (Extreme Ultraviolet - XUV), welche den Bereich zwischen dem Vakuum-Ultraviolett (Vakuum Ultraviolet - VUV) und der weichen Röntgenstrahlung (Soft X-Ray - SXR) kennzeichnet, siehe Abbildung 1.1, sind im Gegensatz zu Optiken im sichtbaren Spektralbereich weitaus komplexer aufgebaut. Da die optischen Konstanten aller Materialien in diesem Energiebereich nahe 1 liegen [1], sind herkömmliche Schichten als Reflektor ungeeignet. Während für die Beugung von Röntgenstrahlung Kristalle mit passenden Abständen der Netzebenen genutzt werden können [2], müssen für den Bereich der Extremen Ultravioletten Strahlung ($\lambda = 5-30$ nm) Schichtsysteme aus alternierenden Materialien aufgebaut werden. Analog zu den Kristallen müssen diese Schichtsysteme bestimmte Randbedingungen erfüllen [3], um durch konstruktive Interferenz ausreichend hohe Reflektivitäten zu gewährleisten.

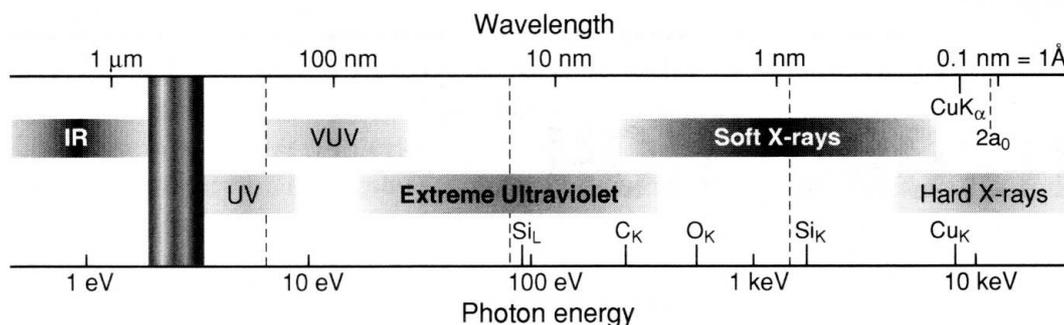


Abbildung 1.1: Das elektromagnetische Spektrum mit Lage der Extremen Ultravioletten Strahlung (XUV) zwischen Vakuum-Ultraviolett (VUV) und weicher Röntgenstrahlung (soft X-Rays) (aus [4, Seite 2])

Die Anwendungsgebiete für Optiken im EUV (Wellenlängenbereich um $\lambda = 13,5$ nm) sind weit gestreut, zu der wichtigsten Anwendung gehört die EUV-Lithographie (EUVL) [5, 6]. Diese soll dazu dienen, künftig weiterhin die Strukturen in der Halbleiterindustrie zu verkleinern. Da auch die Lithographiemaske wegen fehlender transmittierender Optiken aus einem Multischichtsystem besteht, kommen besondere Anforderungen auch auf diese Maske zu [7]. Weitere Anwendungen finden Multischichtsysteme in Monochromatoren [8–10], Polarisatoren bzw. Polarimetern [11, 12], Phasenschiebern [13], Röntgenobjektiven [14, 15] wie auch Röntgenmikroskopen [16], Teleskopen [17–19] oder in der XUV-Holographie [20]. Aber auch grundlagenorientierte Forschungsarbeiten aus dem Bereich der Ultrakurzzeit-Spektroskopie kommen nicht ohne Multischichtsysteme aus. In

aktuellen Veröffentlichungen [21–23] kommen Molybdän-Silizium Multischichtsysteme bei einer Energie von $E = 90$ eV zum Einsatz, für nächste Experimente werden neue reflektive Optiken bis zu 180 eV benötigt. Insbesondere bei diesen Experimenten spielt die maximal erreichbare Reflektivität nur eine untergeordnete Rolle. Durch die Verknüpfung von Zeit und Energie ist das elektromagnetische Spektrum eines gaußförmigen Laserimpulses mit einer zeitlichen Ausdehnung von beispielsweise 100 Attosekunden ca. 18 eV (FWHM) breit. Dementsprechend müssen auch die reflektierenden Optiken auf solche Bandbreiten ausgelegt sein. Da die Reflektivität eines Multischichtsystems ebenfalls eine Phase enthält, liegt ein weiterer Schwerpunkt auf einem möglichst linearen Verlauf dieser Phase in Abhängigkeit von der Energie. Gewährleistet werden solche Systeme durch aperiodische Schichtsysteme, d.h. direkt auf Bandbreite und Phasenverhalten optimierte Schichtstapel [24–26], oder durch Überlagerungen periodischer Schichtstapel [20].

Die Entwicklung und Optimierung von Molybdän-Silizium Multischichten kann als weitestgehend abgeschlossen angesehen werden. Mit Elektronenstrahlverdampfung hergestellte Multischichten [27–30] für eine Wellenlänge von 13,4 nm bei senkrechtem Einfall erreichen Reflektivitäten von bis zu 68,4% [31]. Andere Herstellungsverfahren wie Chemische Gasphasenabscheidung (Chemical Vapour Deposition - CVD) [32, 33], gepulste Laserdeposition (Pulsed Laser Deposition - PLD) [34–36] oder Sputtern [37, 38] sind ebenfalls vielversprechend, mit Magnetron-Sputtern wurden z.B. 67,4% realisiert [39]. Diese Werte liegen nahe am theoretischen Maximum von 76,4%.

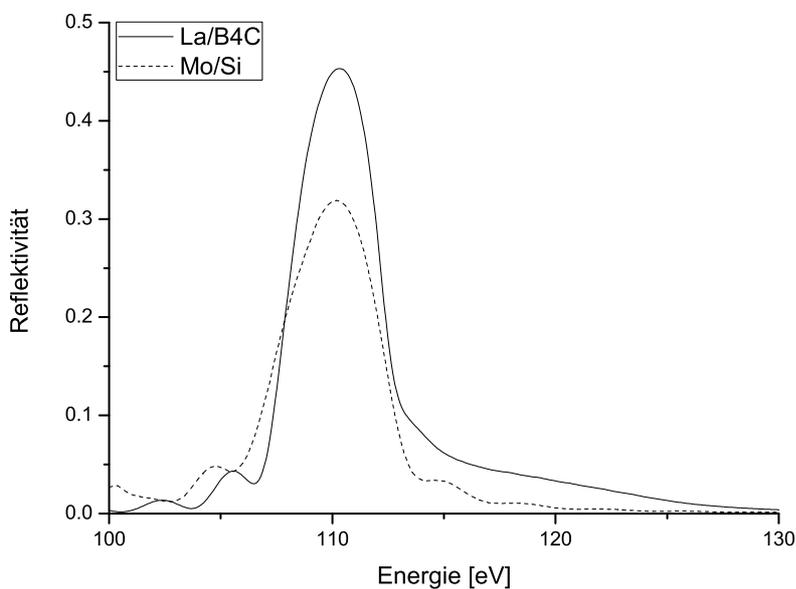


Abbildung 1.2: Simulierter Reflektivitätsverlauf eines Mo/Si- und eines La/B₄C-Multischichtstapels mit jeweils 30 Perioden

Für den Wellenlängenbereich unter 13,4 nm (> 90 eV) sind Molybdän-Silizium Multi-

schichten nur noch bedingt geeignet, da Silizium über dem $2p$ -Niveau ($E_{2p} \approx 99$ eV [40]) stärker absorbiert. Neben Multischichtsystemen aus Molybdän und Borcarbid [41–45] bieten sich hier Materialkombinationen aus Lanthan und Bor (Absorptionskante $E_{1s} = 188$ eV [40, Seite 1-2]) durch günstigere optische Konstanten an. In Abbildung 1.2 sind zur Anschauung jeweils eine Reflektivitätskurve für eine Mo/Si- und eine La/B₄C-Multischicht mit gleichen Parametern dargestellt (30 Perioden; $\Gamma = 0,5$; $\sigma = 0$ nm). Die simulierte Reflektivität weist eine Steigerung von 13,5% von La/B₄C zu Mo/Si auf.

Im Mittelpunkt dieser Arbeit stehen die Entwicklung und Charakterisierung von La/B₄C-Multischichtsystemen. Dazu wurden diese Materialien für die verwendete Elektronenstrahlverdampfung evaluiert und charakterisiert. Für die Überwachung des Aufdampfprozesses standen zwei separate In-situ Schichtdickenkontrollen zur Verfügung. Für periodische Multischichtsysteme wurde die für Mo/Si-Multischichten genutzte Röntgenreflektometrie übernommen. Aufgrund des Wechsels von Mo/Si auf La/B₄C musste materialbedingt die Steuerung des Verdampfungsprozesses weiterentwickelt und optimiert werden. Für die Herstellung aperiodischer La/B₄C-Multischichtsysteme wurde zusätzlich ein In-situ Ellipsometer in Betrieb genommen. Des Weiteren soll eine Senkung der Grenzflächenrauigkeiten und damit einhergehende Erhöhung der Reflektivitäten von La/B₄C-Multischichten durch das Polieren mit beschleunigten Ionen der einzelnen Schichten während der Herstellung untersucht werden. Die hergestellten Multischichten werden hinsichtlich Rauigkeiten, Reflektivitäten und spektraler Bandbreite charakterisiert und ausgewertet.

2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die notwendigen theoretischen Grundlagen zum Verständnis der Wechselwirkung von Strahlung mit Materie vorgestellt. Neben den atomaren Streufaktoren, der Absorption von Röntgenstrahlung und dem komplexen Brechungsindex wird das grundlegende Prinzip einer Multischicht erläutert. Durch die Erweiterung der In-Situ-Schichtdickenkontrolle mit einem Ellipsometer werden zusätzlich die Grundlagen ellipsometrischer Messungen dargestellt. Anschließend wird auf die Funktionsweise des für diese Arbeit benutzten genetischen Algorithmus eingegangen. Dieser ist für den Zugang zu einzelnen Schichtdicken aus röntgenreflektometrischen Messungen und für die Simulation von aperiodischen Multischichten obligatorisch.

2.1 Wechselwirkung von weicher Röntgenstrahlung mit Materie

Folgende Prozesse sind bei der Wechselwirkung von Materie mit weicher Röntgenstrahlung zu betrachten, wobei jeder die Strahlung abschwächt [46, Seite 1]:

- elastische Streuung
- inelastische Streuung
- Absorption durch den photoelektrischen Effekt.

Die elastische Wechselwirkung wird durch die Thomson- und die Rayleigh-Streuung beschrieben. Die Thomson-Streuung bezeichnet die Streuung an einzelnen Elektronen eines Atoms, welche als (quasi) freie Elektronen betrachtet werden können. Die Rayleigh-Streuung ist ein kohärenter Effekt, welcher durch die Wechselwirkung mit gebundenen Elektronen entsteht. Dadurch haben sowohl ein- als auch ausfallender Strahl eine feste Phasenbeziehung und Interferenzerscheinungen (Bragg-Beugung) können auftreten. Durch inelastische Streuung (Compton-Effekt) wird ein Teil der Energie des einfallenden Photons auf ein schwach gebundenes Elektron übertragen. Bei diesem inkohärenten Prozess wird das Atom durch die Anregung des Elektrons in einen höheren Quantenzustand gehoben. Die durch den photoelektrischen Effekt auftretende Absorption bewirkt einen Übertrag der gesamten Energie des einfallenden Photons auf ein Elektron, welches sich dadurch vom Atom entfernt und das Atom wird ionisiert. Dies ist der dominierende Prozess, da die inelastische Streuung vernachlässigbar ist und die elastische Streuung nur minimal zur Dämpfung der Strahlung beiträgt [46, Seite 2].

2.1.1 Komplexer Brechungsindex und Photoabsorption

Der komplexe Brechungsindex \tilde{n} setzt sich aus dem realen Anteil (Brechzahl) n , welcher die Dispersion beschreibt, und dem imaginären Anteil k , dem Absorptionskoeffizienten zusammen:

$$\tilde{n} = n + ik = 1 - \delta + i\beta \quad (2.1)$$

Die Größen δ und β werden bevorzugt in der Röntgenoptik benutzt, da hier der reale Anteil des Brechungsindex nahe 1 liegt. Durch Einführung des atomaren Streufaktors $f = f_1 - if_2$, einer die Streuung beschreibender komplexen Größe, kann der Brechungsindex auch als

$$\tilde{n} = 1 - \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} (f_1 - if_2) \quad (2.2)$$

mit der Vakuumwellenlänge λ , der Dichte n_a (Atome bzw. Elektronen pro Volumen) und dem klassischen Elektronenradius r_e geschrieben werden [47]. Daraus folgen unmittelbar die Beziehungen

$$\delta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1 \quad (2.3)$$

und

$$\beta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2 \quad (2.4)$$

Somit lässt sich der komplexe Brechungsindex über die atomaren Streufaktoren, welche aus der relativistischen Quanten-Dispersions-Theorie über Kramers-Kronig-Beziehungen berechnet werden können [4, Seite 90] oder durch Messungen ermittelt worden [47, 48], bestimmen.

Der Absorptionskoeffizient β ist mit dem linearen Absorptionskoeffizienten α verbunden, da bei weicher Röntgenstrahlung die Abschwächung hauptsächlich durch die Absorption verursacht wird:

$$\alpha = \frac{4\pi\beta}{\lambda} \quad (2.5)$$

wodurch sich das Lambertsche Gesetz für die exponentielle Abschwächung der Intensität der einfallenden Strahlung über den Weg x zu

$$I = I_0 e^{-\alpha x} \quad (2.6)$$

ergibt. Oft wird der Absorptionskoeffizient α auch in Abhängigkeit von der Dichte ρ und dem Massenabsorptionskoeffizienten μ eines Materials angegeben:

$$\alpha = \mu\rho \quad (2.7)$$

Für Verbindungen verschiedener Materialien lässt sich dieser Massenabsorptionskoeffizient durch

$$\mu_{\text{Verbindung}} = \sum_j \omega_j \mu_j \quad (2.8)$$

mit Hilfe der gewichteten Faktoren ω bestimmen [46, Seite 3]. Im Bereich der weichen Röntgenstrahlung ist die Energie der Photonen weitaus höher als die Bindungsenergie der äußeren Elektronen eines Atoms. Die absorbierenden Atome werden somit ionisiert und die Energie des Photons wird auf das emittierte Elektron übertragen. Durch die diskreten Energieniveaus treten so genannte Absorptionskanten im Spektrum des Absorptionskoeffizienten auf, welche durch die endliche Energiebreite eines Zustands und durch Einflüsse der umgebenden Atome keine absolut scharfen Kanten darstellen [46, Seite 4].

2.1.2 Reflexion an einer idealen Grenzfläche

Eine ideale Grenzfläche beschreibt einen abrupten Übergang ohne Rauigkeiten zwischen zwei Medien mit den komplexen Brechungsindizes \tilde{n}_1 und \tilde{n}_2 . An einer solchen Grenzfläche, wie in Abbildung 2.1 dargestellt, wird ein Teil einer einfallenden ebenen elektromagnetischen Welle unter dem Winkel α_2 transmittiert und ein Teil unter dem Einfallswinkel α_1 reflektiert.

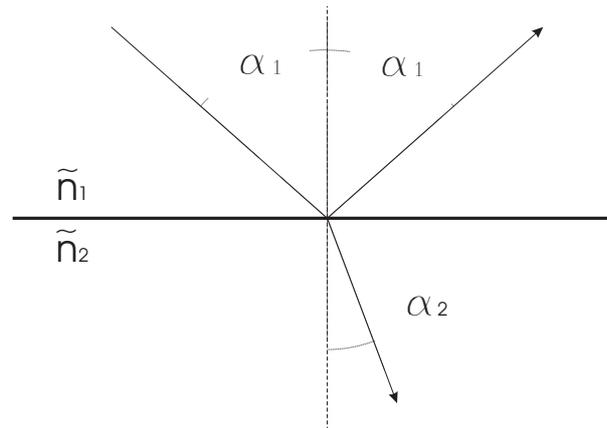


Abbildung 2.1: Reflexion und Transmission an einer idealen Grenzfläche zwischen zwei Medien mit den Brechungsindizes \tilde{n}_1 und \tilde{n}_2

Der Zusammenhang zwischen Einfallswinkel und dem Winkel der gebrochenen Welle wird durch folgende Beziehung beschrieben, dem Snelliusschen Brechungsgesetz [49, Seite 233]:

$$\frac{\sin \alpha_1}{\sin \alpha_2} = \frac{n_2}{n_1} \quad (2.9)$$

Die Reflexions- (r) bzw. Transmissionskoeffizienten (t) ergeben sich für die jeweilige Polarisation (s - senkrecht, p - parallel zur Einfallsebene) aus dem Amplitudenverhältnis von reflektiertem bzw. transmittiertem Anteil zur einfallenden Welle. Die Fresnel-Formeln beschreiben den Zusammenhang zwischen diesen Koeffizienten, dem Ein- bzw. Ausfallswinkel und den optischen Konstanten beider Medien \tilde{n}_1 und \tilde{n}_2 [50, Seite 740]:

$$r_{12}^s = \frac{\tilde{n}_1 \cos \alpha_1 - \tilde{n}_2 \cos \alpha_2}{\tilde{n}_1 \cos \alpha_1 + \tilde{n}_2 \cos \alpha_2} \quad (2.10)$$

$$t_{12}^s = \frac{2\tilde{n}_1 \cos \alpha_1}{\tilde{n}_1 \cos \alpha_1 + \tilde{n}_2 \cos \alpha_2} \quad (2.11)$$

$$r_{12}^p = \frac{\tilde{n}_1 \cos \alpha_2 - \tilde{n}_2 \cos \alpha_1}{\tilde{n}_1 \cos \alpha_2 + \tilde{n}_2 \cos \alpha_1} \quad (2.12)$$

$$t_{12}^p = \frac{2\tilde{n}_1 \cos \alpha_1}{\tilde{n}_1 \cos \alpha_2 + \tilde{n}_2 \cos \alpha_1} \quad (2.13)$$

Das Reflexionsvermögen R dieser Grenzfläche erhält man über das Verhältnis der reflektierten Intensität I_r zur einfallenden Intensität I_e [49, Seite 235]:

$$R = \frac{I_r}{I_e} \quad (2.14)$$

Mit dieser Gleichung und dem Zusammenhang zwischen Intensität und Amplitude ($I = A^2$) lässt sich das Reflexionsvermögen einer idealen Grenzfläche für senkrechte Polarisationsrichtung auch als komplexes Produkt

$$R^s = r_{12}^{s*} \cdot r_{12}^s \quad (2.15)$$

schreiben. Für die parallele Polarisationsrichtung gilt ein analoger Zusammenhang.

2.2 Multischichten als Spiegel für XUV-Strahlung

2.2.1 Multischichtsysteme

Multischichtsysteme bestehen im Allgemeinen aus einem Stapel zweier alternierender Materialien. Ausnahmen bilden hier eingefügte Pufferschichten (z.B. Kohlenstoff oder SiO_2) [30, 31], welche zur Glättung der Oberflächen dienen. Diese alternierenden Materialien müssen sich folgend aus Gleichung 2.10-2.13 für den gewünschten Reflektivitätsbereich möglichst stark in ihrem komplexen Brechungsindex unterscheiden. In der Regel wird dies durch einen hohen Kontrast im Absorptionskoeffizienten β gewährleistet. Aus diesem Grund werden die Schichten als Absorber (größeres β) und Spacer (kleineres β) deklariert. Aus Abbildung 2.2 geht hervor, dass bei den für diese Arbeit verwendeten Materialien Lanthan den Absorber und Borcarbid den Spacer stellt.

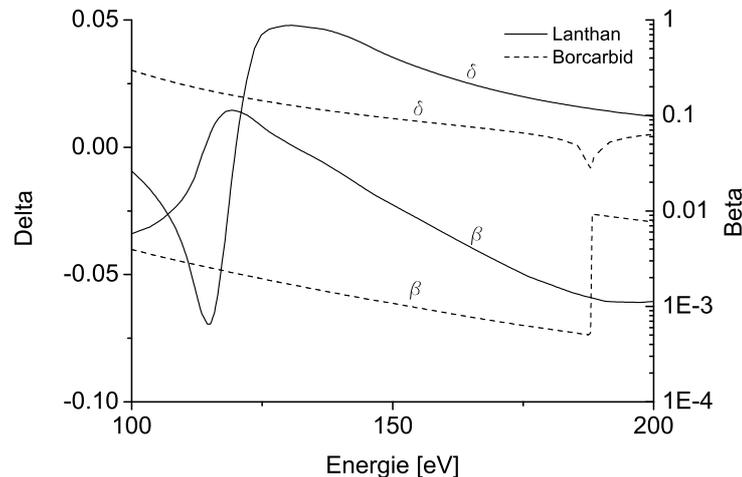


Abbildung 2.2: Komplexer Brechungsindex ($\tilde{n} = (1 - \delta) - i\beta$) von Lanthan und Borcarbid in dem für diese Arbeit verwendeten Energiebereich [48, 51]

Durch den im Bereich der weichen Röntgenstrahlung aber kleinen Kontrast dieser Brechungsindizes führt eine einzige Grenzfläche nur zu sehr geringen Reflektivitäten, beispielsweise nur zu 10^{-6} bis 10^{-3} [52]. Werden allerdings viele Grenzflächen aufeinander gestapelt, kann die gesamte reflektierte Intensität stark erhöht werden, wenn sich die reflektierten Wellen konstruktiv überlagern. Analog zur Röntgenbeugung an Kristallen lässt sich diese Bedingung zur konstruktiven Interferenz mit dem Glanzwinkel Θ , der Beugungsordnung m und der Periodendicke d als

$$m\lambda = 2d \sin \Theta \sqrt{1 - \frac{2\tilde{\delta} - \tilde{\delta}^2}{\sin^2 \Theta}} \quad (2.16)$$

schreiben [53].

Der gewichtete mittlere Brechungsindex

$$\tilde{\delta} = \frac{d_1\delta_1 + d_2\delta_2}{d_1 + d_2} \quad (2.17)$$

und die einzelnen Schichtdicken bestimmen die sogenannte Brechungskorrektur [54]. Diese ist allerdings aufgrund der Winkelabhängigkeit und den nahe beieinanderliegenden Brechungsindizes nur für sehr kleine Winkel Θ entscheidend. In der Regel wird er für Berechnungen zu Multischichtsystemen vernachlässigt.

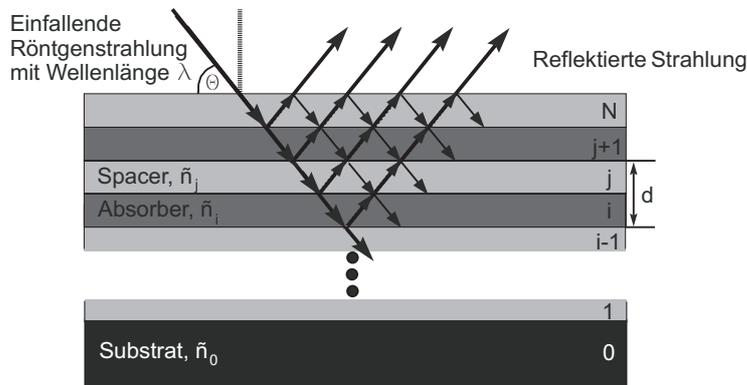


Abbildung 2.3: Reflexion an einer Multischicht (aus [55])

Da sich die Gesamtrefektivität aus Mehrfachreflexionen und -transmissionen zusammensetzt (vgl. Abbildung 2.3), lässt sie sich z.B. durch eine Airy-Summation [56, Seite 46-48] bestimmen. Die reflektierten und transmittierten Amplituden lassen sich dann durch die Transmissions- und Reflexionskoeffizienten mit den Indizes t (top, an der oberen Grenzfläche), b (bottom, an der unteren Grenzfläche), $+$ (einfallend) und $-$ (ausfallend) folgendermaßen bestimmen [57, Seite 16]:

$$r = r_t + \frac{r_b t_t^+ t_t^- e^{2i\phi}}{1 + r_t r_b e^{2i\phi}} \quad (2.18)$$

und

$$t = \frac{t_t t_b e^{i\phi}}{1 + r_t r_b 2e^{2i\phi}} \quad (2.19)$$

Die Phasendifferenz ϕ lässt sich dabei durch

$$\phi = \frac{2\pi n d \cos \alpha}{\lambda} \quad (2.20)$$

ausdrücken und beschreibt den Versatz der Welle beim Durchlaufen der Grenzflächen. Ohne Streuverluste (idealisiert) lässt sich die Reflektivität als

$$R = |r^2| = \left| \left(\frac{r_t + r_b e^{2i\phi}}{1 + r_t r_b e^{2i\phi}} \right)^2 \right| \quad (2.21)$$

schreiben. Die Gesamtreflektivität einer Multischicht kann durch Rekursion berechnet werden, in dem bei der untersten Lage begonnen wird.

2.2.2 Reflektivitätsmindernde Einflüsse

2.2.2.1 Einflüsse der Ober- und Grenzflächen

Eine ideale Grenzfläche, mit den in Kapitel 2.1.2 gezeigten Gleichungen, zeichnet sich durch einen abrupten Übergang aus, welcher allerdings in realen Multischichten nicht vorkommen kann. In Abbildung 2.4 sind schematische Beispiele für reale Grenzflächen gezeigt. Vor allem Rauigkeiten der Ober- und Grenzflächen und Interdiffusion sind die ausschlaggebenden reflektivitätsmindernden Einflüsse bei Multischichtsystemen und lassen sich nicht unterbinden.

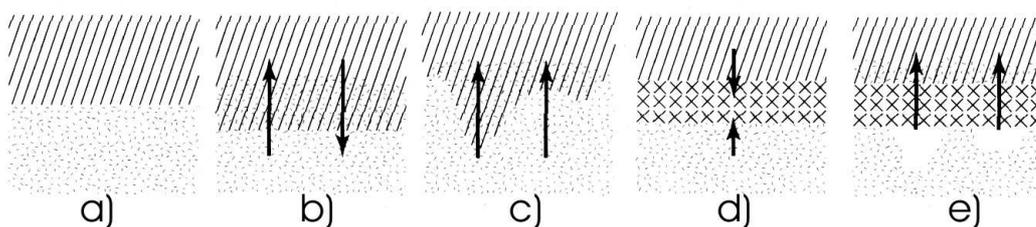


Abbildung 2.4: Verschiedene Übergänge zwischen zwei Materialien: (a) ideale Grenzfläche, (b) diffuser, (c) körniger, (d) chemisch reagierender und (e) entleerter Übergang (aus [58, Seite 180])

Die mathematische Beschreibung solcher nicht-idealer Grenzflächen erfolgt über eine Grenzflächenprofilfunktion $p(z)$ entlang der Achse z senkrecht zur Grenzfläche [59]:

$$p(z) = \frac{\int \int \varepsilon(z) dx dy}{(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) \int \int dx dy} \quad (2.22)$$

Diese besteht offensichtlich aus der über die Fläche $\int \int dx dy$ gemittelten dielektrischen Funktion ε mit den Werten ε_1 und ε_2 für $z \rightarrow \infty$ bzw. $z \rightarrow -\infty$ (vgl. Abbildung 2.5).

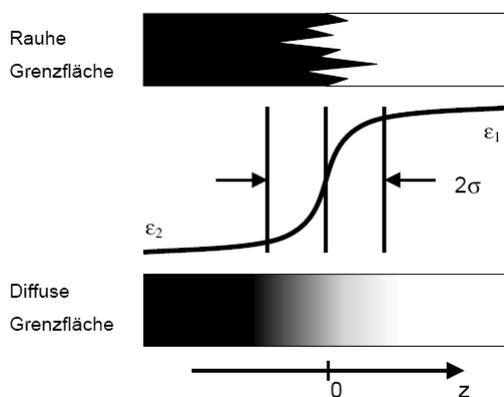


Abbildung 2.5: Grenzflächenprofilfunktion mit dem Verlauf der dielektrischen Funktion $\varepsilon(z)$ für einen rauhen und einen diffusen Übergang (aus [60])

Durch eine Multiplikation der Fresnel-Reflexionskoeffizienten mit der Fouriertransformierten $\tilde{\omega}(q)$ von $\omega(z) = dp/dz$ lassen sich aus rauen oder diffusen Grenzflächen resultierende Verluste annähern:

$$r'_{12} = r_{12}\tilde{\omega}(q_i) \quad (2.23)$$

wobei $q_i = 4\pi \cos \alpha_i / \lambda$ ist. Die Art der Änderung der dielektrischen Funktion und damit des Brechungsindex ($n = \sqrt{\varepsilon}$) mit der Tiefe z bestimmt somit die Abweichung realer Multischichten von idealen Modellen. Üblicherweise wird für die Grenzflächenprofilfunktion eine Fehlerfunktion wie folgt angenommen:

$$p(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^z e^{-\tau^2} d\tau \quad (2.24)$$

mit der Ersatzvariablen $\tau = t/2\sigma$. Die Fouriertransformierte $\tilde{\omega}(q)$ lässt sich dann als

$$\tilde{\omega}(q) = e^{-q^2\sigma^2/2} \quad (2.25)$$

schreiben. Bei Gleichung 2.25 handelt es sich um eine Gaußkurve mit einer von σ abhängigen Breite der Verteilung. Diesen Wert bezeichnet man auch als Debye-Waller-Faktor, da er ein Verhalten ähnlich der Röntgenbeugung an Kristallen beschreibt [61, 62]. Im Allgemeinen wird σ als Abschätzung für die Rauigkeit und Interdiffusion an Grenzflächen genutzt. Bezieht man diese Einflüsse nun auf die Reflektivität R_0 einer idealen Grenzfläche, so lässt sich die Reflektivität folgendermaßen beschreiben:

$$R = R_0 e^{-q^2\sigma^2} = R_0 e^{-\left(\frac{4\pi m \sigma \cos \alpha}{\lambda}\right)^2} \quad (2.26)$$

Da üblicherweise nur die Reflektivität in der ersten Bragg-Ordnung ($m = 1$) von Interesse ist, vereinfacht sich die Gleichung zu:

$$R = R_0 e^{-(2\pi \frac{\sigma}{d})^2} \quad (2.27)$$

Aus dieser Gleichung wird ersichtlich, dass die Abnahme der Reflektivität nicht nur von der Rauigkeit σ abhängig ist, sondern auch von der Periodendicke d , insbesondere von dem Verhältnis σ/d . Typische Rauigkeiten für Mo/Si-Multischichten liegen im Bereich um $\sigma = 0,3$ nm bei Periodendicken um $d = 7$ nm, also einem Verhältnis von $\sigma/d \approx 0,04$ [31]. Dieser Wert sollte für Multischichten erfahrungsgemäß unter 0,1 liegen, um den Einfluss der Rauigkeit zu minimieren [60]. Andernfalls führt die Grenzflächenrauigkeit zu einem signifikanten Einbruch der Reflektivität [63]. Da die für diese Arbeit hergestellten Multischichten Perioden zwischen 6 und 3 nm aufweisen, wird die Rauigkeit, welche einen bestimmten Wert nie unterschreiten kann, einen größeren Einfluss auf die Reflektivität

nehmen. Der atomare Radius von Lanthan liegt beispielsweise bei $r_{La} = 0,195$ nm [64], so dass intrinsische Effekte der verwendeten Materialien nicht zu vernachlässigen sind.

2.2.2.2 Schichtdickenfehler

Neben den reflektivitätsmindernden Einflüssen durch die Beschaffenheit der Ober- bzw. Grenzflächen wirken sich auch Fehler im Schichtaufbau während der Herstellung negativ auf die Reflektivität aus. Während in einer exakt periodischen Multischicht die reflektierten Teilwellen mit einer Phasendifferenz von $2\pi n$ konstruktiv interferieren ($n = 1; 2; \dots$), kann es durch Schichtdickenfehler zu Phasenfehlern kommen (vgl. Abbildung 2.6). In Bereichen destruktiver Interferenz ($n = 1, 5; 2, 5; \dots$) bewirken Phasenfehler eine Erhöhung der Reflektivität [57].

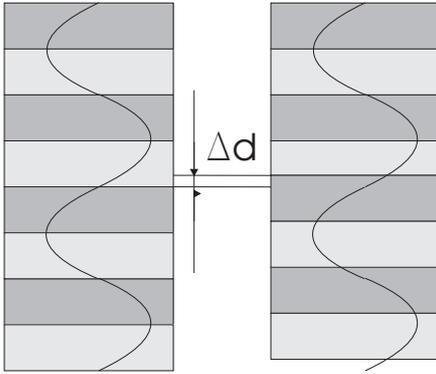


Abbildung 2.6: Schichtdickenfehler in einer Multischicht und daraus entstehender Phasenversatz der stehenden Welle

Zur Beschreibung der Auswirkung von Schichtdickenfehlern wird ein Vektormodell verwendet, mit welchem sich die Reflektivität einschließlich Schichtdickenfehlern aus der Reflektivität einer Einzelschicht zu

$$R = NR_{12}(1 - e^{-4(\Delta\phi^2)}) + \sin^2\gamma N^2 R_{12} e^{-4(\Delta\phi^2)} \quad (2.28)$$

berechnen lässt [57]. Dabei bezeichnet $\gamma = \pi \frac{d_1}{d}$ den Phasenunterschied in einer einzelnen Schicht d_1 zu der Periode d . Die Varianz $\Delta\phi^2$ folgt aus der Standardabweichung $\Delta\phi$ der Phase ϕ und lässt sich über die Standardabweichung der Schichtdicke Δd beschreiben [53]:

$$\Delta\phi = \frac{\pi n}{d} \Delta d \quad (2.29)$$

Durch die verwendete Röntgenreflektometrie als In-Situ Schichtdickenkontrolle können Schichtdickenfehler nicht völlig ausgeschlossen werden, da eine exakte Bestimmung der Umschaltunkte von mehreren Einflüssen abhängig ist (vgl. Kapitel 3.2.1). Ex-Situ lassen sich Schichtdickenfehler durch Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall erkennen. Die Interferenzen an den Zwischenschichten (Kiessig-Oszillationen) in den Spektren werden durch abweichende Schichtdicken gestört. Des Weiteren wird verständlicherweise

die Höhe der Bragg-Peaks abnehmen und diese werden verbreitert. In der folgenden Abbildung sind Spektren aus Messungen mit Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall zweier La/B₄C-Multischichten dargestellt.

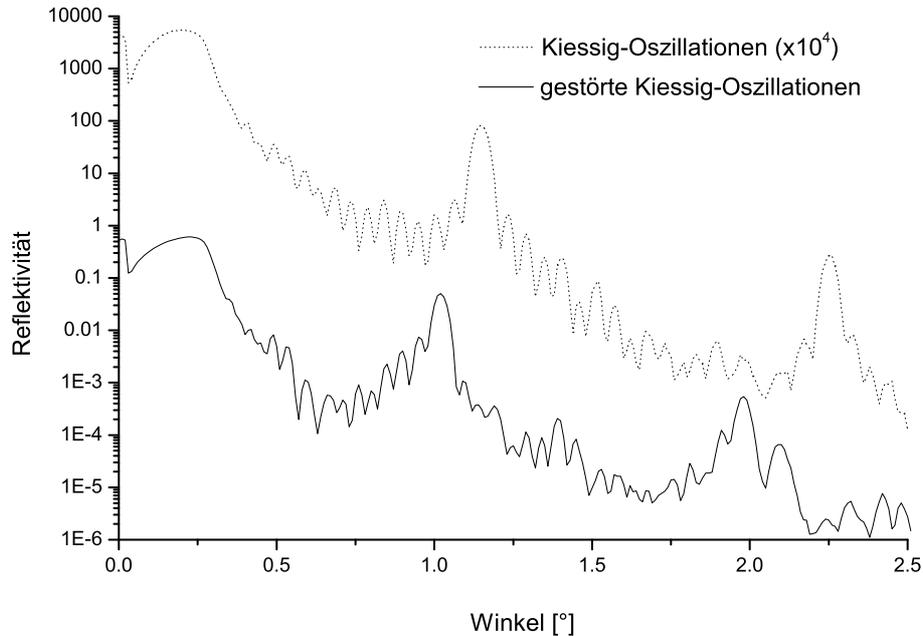


Abbildung 2.7: Eigene Röntgenreflektometrie-Messungen bei streifendem Einfall zweier La/B₄C-Multischichten. Unten: Gestörte Kiessig-Oszillationen durch Schichtdickenfehler in einer Multischicht. Oben: Kiessig-Oszillationen einer periodischen Multischicht (Kurve zur Anschauung verschoben)

Die Auswirkungen von Schichtdickenfehlern sind deutlich in der oberen Kurve an den gestörten Oszillationen zwischen den Bragg-Reflexen zu erkennen. Zum Vergleich ist eine Multischicht mit minimalen Schichtdickenfehlern dargestellt.

2.2.3 Gammavarierte Multischichten

Das Verhältnis der Schichtdicke des Absorbers zur Schichtdicke der gesamten Periode (Absorber + Spacer) wird als Gamma bzw. Γ bezeichnet [65]:

$$\Gamma = \frac{d(\text{Absorber})}{d(\text{Absorber} + \text{Spacer})} \quad (2.30)$$

Eine Abweichung von einem idealen $\lambda/4$ -Stapel ($\Gamma = 0,5$) ist je nach verwendeten Materialien von Vorteil, wenn die Verluste eines nicht idealen $\lambda/4$ -Stapels durch dünnere Absorptionsschichten und damit einer höheren Transmission für das Licht ausgeglichen

oder übertroffen werden. Somit nimmt die reflektierte Amplitude bei gleichbleibender Periodenzahl ab, allerdings erhöht sich die Transmission und es können mehr Perioden zu einer konstruktiven Interferenz hinzutragen. Während sich bei einem $\lambda/4$ -Stapel die Knoten der stehenden Welle jeder zweiten Grenzfläche befinden, rückt bei gammavariierten Spiegeln der Knoten in den Bereich des Absorbers. Durch eine nun mögliche Erhöhung der beitragenden Perioden ist eine Steigerung der gesamten Reflektivität möglich. Während bei der Materialkombination Molybdän und Silizium ein Verhältnis von $\Gamma = 0,4$ eine maximale Reflektivität ergibt [65], sind in Abbildung 2.8 und 2.9 verschiedene Γ -Werte für simulierte Multischichten aus Lanthan und Borcarbid ($N = 30$) dargestellt.

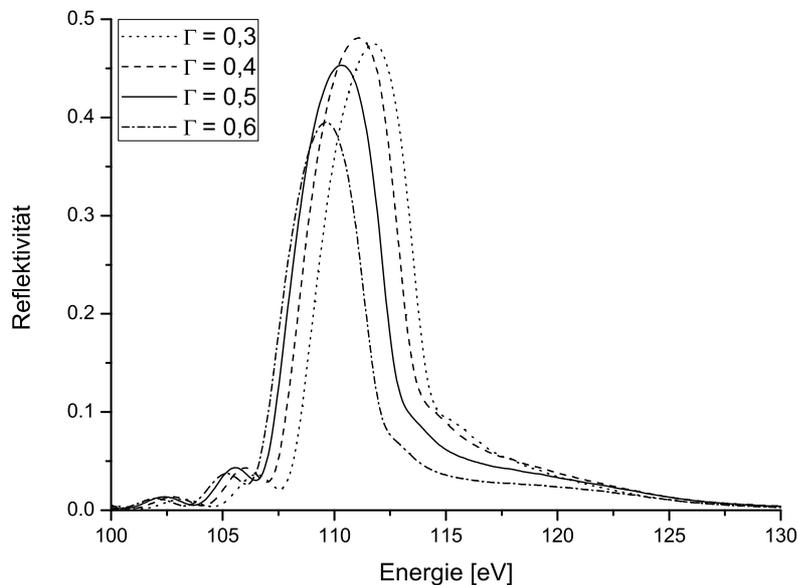


Abbildung 2.8: Einfluss des Γ -Wertes bei idealen, simulierten La/B_4C -Multischichten unter senkrechtem Einfall auf die Reflektivität ($d = 5,6 \text{ nm}$, $N = 30$)

Es ist zu erkennen, dass für Energien um 110 eV (Abbildung 2.8) ein Verhältnis von $\Gamma < 0,5$ höhere Reflektivitäten erzielt, während bei Energien unterhalb der Borkante (Abbildung 2.9) ein Verhältnis von $\Gamma = 0,5$ als Optimum angesehen werden kann. Dies liegt in der höheren Absorption von Lanthan in dem Bereich um 110 eV.

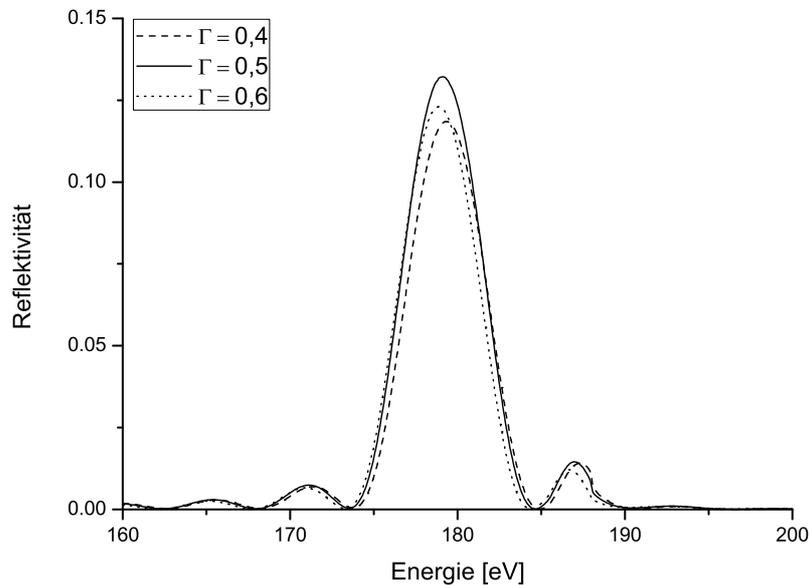


Abbildung 2.9: Einfluss des Γ -Wertes bei idealen, simulierten La/B_4C -Multischichten unter senkrechtem Einfall auf die Reflektivität ($d = 3,5 \text{ nm}$, $N = 30$)

2.2.4 Bandbreiten- und Phasenoptimierte Multischichten

Periodische Multischichtsysteme gewährleisten relativ hohe Reflektivitäten, sind aber in ihrer spektralen Bandbreite $\Delta\lambda$ über die beitragenden Perioden N beschränkt [4, Seite 99]:

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda}{N} \quad (2.31)$$

Schmalbandige periodische Systeme können durch eine Γ -Variation realisiert werden und dienen beispielsweise als Filter für die höheren Harmonischen einer Ti:Sa-Femtosekundenlaser gestützten kohärenten EUV-Quelle [66, 67]. Für ein Reflektivitätsprofil mit einer hohen spektralen Bandbreite, wie es für ultrakurze Laserpulse notwendig ist, bilden aperiodische Multischichtsysteme eine Alternative [24, 55, 68]. Hierbei werden verschiedene Energien, respektive Wellenlängen, konstruktiv überlagert. Dies wird z.B. mit einem Gradienten in der Periodendicke einer Multischicht [37, 69, 70] oder mit mehreren periodischen Multischichten übereinander [71] erreicht. Durch die Anpassung jeder einzelnen Schicht in einem Multischichtsystem an bestimmte vorgegebene Kriterien lassen sich Schichtstapel berechnen, welche besondere Anforderungen erfüllen. Zur Berechnung dieser aperiodischen Multischichten dient ein komplexer genetischer Algorithmus, welcher in Kapitel 2.4 beschrieben wird.

Aus Gleichung 2.18 wird deutlich, dass der Reflexionskoeffizient einer Multischicht eine komplexe Größe ist und sich als

$$\tilde{r}(\omega) = |r(\omega)|e^{-i\varphi(\omega)} \quad (2.32)$$

schreiben lässt, wobei $|r(\omega)|$ die Amplitude und φ die Phasenverschiebung darstellt. Die mathematische Beschreibung eines ultrakurzen Laserpulses geschieht über die Superposition von ebenen Wellen unterschiedlicher Frequenzen und definierter Phasenbeziehung [72]:

$$\tilde{E}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega)e^{-i\omega t} d\omega \quad (2.33)$$

Die von einer Multischicht reflektierte spektrale Verteilung eines Laserpulses erhält man nach einer Faltung mit dem komplexen Reflektivitätskoeffizienten:

$$\tilde{E}'(\omega) = \tilde{E}(\omega)\tilde{r}(\omega) \quad (2.34)$$

Und dementsprechend ergibt sich die zeitliche Struktur nach der Reflektion zu:

$$\tilde{E}'(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}'(\omega)e^{-i\omega t} d\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega)\tilde{r}(\omega)e^{-i\omega t} d\omega \quad (2.35)$$

Durch diesen Einfluss des komplexen Reflektivitätskoeffizienten der Multischicht auf die zeitliche Struktur des reflektierten Pulses ergeben sich besondere Anforderungen an die Phase einer Multischicht. Die frequenzabhängige Phasenverschiebung lässt sich als Taylor-Reihenentwicklung mit der Trägerfrequenz ω_0 beschreiben [73]:

$$\begin{aligned} \varphi(\omega) = & \quad \varphi(\omega_0) & (2.36) \\ & + \varphi'(\omega_0) \cdot (\omega - \omega_0) \\ & + \frac{1}{2}\varphi''(\omega_0) \cdot (\omega - \omega_0)^2 \\ & + \frac{1}{6}\varphi'''(\omega_0) \cdot (\omega - \omega_0)^3 \dots \end{aligned}$$

Durch den wellenlängenabhängigen Brechungsindex bewegen sich die verschiedenen Frequenzen eines Laserpulses mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten durch die Multischicht (Dispersion). Dieses sorgt für eine Verschiebung der Phase des reflektierten Pulses. Ist nur der erste Term ($\varphi(\omega_0)$) aus Gleichung 2.36 ungleich null, so bleibt der Puls in seiner zeitlichen Struktur komplett erhalten. Der zweite (lineare) Term ($\varphi'(\omega_0)$) sorgt für eine zeitlich Verschiebung des Pulses, die Struktur bleibt allerdings erhalten (group delay dispersion - GDD). Der Einfluss der weiteren Terme sollte in der Regel minimiert werden - eine quadratische Phase ($\varphi''(\omega_0)$) verursacht eine Pulsverbreiterung (group velocity dispersion -

GVD), durch eine Phase dritter Ordnung ($\varphi'''(\omega_0)$) treten neben der Pulsverbreiterung noch Nebenmaxima auf (third order dispersion - TOD).

2.2.5 Ionenbeschuss der Oberflächen

Die in Kapitel 2.2.2 beschriebenen reflektivitätsmindernden Einflüsse lassen sich durch verschiedene Prozeduren minimieren. Beispielsweise kann die Mobilität der aufgebrachten Atome während des Aufdampfens durch Tempern erhöht werden [74]. Allerdings führt dies auch zu einer erhöhten Durchmischung der Materialien an den Grenzflächen. Durch den Ionenbeschuss einer Oberfläche werden gezielt Atome durch Stöße angeregt, die sich je nach Energie der einfallenden Ionen auf der Oberfläche oder bis in zu einer bestimmten Tiefe befinden. Dieses Ion gibt seine Energie zum Teil an Atome ab, wird gestreut und kann weitere Atome anregen. Auch angeregte Atome können durch Stoßkaskaden einen Energieübertrag verursachen. Ionen und Atome mit ausreichend Energie können durch die Oberfläche hindurch zurückgestreut werden. Allerdings kommt ein Großteil der abgetragenen Atome aus der Nähe der Oberfläche. Die mathematische Beschreibung der Energieverteilung einer Stoßkaskade erfolgt über eine Gaussverteilung [75]. Entscheidende Parameter sind hier neben der Energie des einfallenden Ions und der Eindringtiefe die laterale Energieverteilung. Dadurch kann es dazu kommen, dass bereits raue Oberflächen weiter aufgeraut werden und der gegenteilige Effekt statt einer Reflektivitätssteigerung eintritt. Hier wird eine tiefer liegende Struktur (Tal) stärker abgetragen, als höher liegende Strukturen (Berge) [76]. Dies wird durch die Form der Stoßkaskade verursacht. Während die auf Täler treffenden Ionen in tiefer liegende Schichten gestreut werden und dort sukzessive Energie abgeben, besteht für die auf Berge treffende Ionen die Wahrscheinlichkeit, auch in der Region eines Tals noch genug Energie zu besitzen, um Atome auszulösen. Durch die statistische Verteilung der Ionen auf der Oberfläche können auch glatte Oberflächen durch Ionenbeschuss aufgeraut werden. Da auch Flächen, auf denen bereits Atome durch Ionen entfernt wurden, weiterhin den Ionen ausgesetzt sind, können diese verstärkt durch den oben beschriebenen Effekt abgetragen werden [77, 78].

Eine Anregung der Atome auf einer Oberfläche kann auch dazu führen, dass sich die Atome lateral auf der Oberfläche entlang bewegen. Diese kann zu einer Glättung der Oberfläche führen, da sich die Atome energetisch günstig platzieren. Diese Oberflächendiffusion entsteht dann, wenn die angeregten Atome nicht genug Energie erhalten, um die Oberfläche zu verlassen. Dieser Effekt wurde an Silizium gezeigt [79]. Abhängig von den verwendeten Materialien und deren Schichtdicken, von den zum Polieren benutzten Ionen, deren Einfallswinkel und deren kinetischer Energie können somit sowohl Effekte auftreten, die die Rauigkeit senken oder auch andernfalls erhöhen.

2.3 Grundlagen der Ellipsometrie

Das Prinzip der Ellipsometrie geht bereits auf P. Drude [80] zurück und bedient sich der Tatsache, dass Strahlung nach einer Reflexion sowohl in der Phase als auch der Amplitude moduliert ist. Ellipsometrie kann somit sowohl zur Prozessbeobachtung als auch zur direkten Steuerung von Prozessen genutzt werden, welche auf die Herstellung von ultradünnen Schichten abzielen. Weiterhin ist es möglich, grundlegende physikalische, chemische und materielle Eigenschaften von Schichten und Oberflächen zu messen [81, Seite 57]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Ellipsometer¹ zur In-situ-Schichtdickenkontrolle in Betrieb genommen. Zum Verständnis der Ellipsometrie werden im Folgenden sowohl Grundlagen der Polarisation von Licht als auch die Methodik der Ellipsometrie beschrieben.

2.3.1 Polarisation

Bei der Ellipsometrie wird die Änderung der Polarisation einer Lichtquelle nach Reflektion an der zu vermessenden Probe untersucht. Betrachtet man Licht im Wellenbild mit den zugehörigen transversalen elektrischen und magnetischen Feldern, so lässt sich eine ebene elektromagnetische Welle schreiben als

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \vec{E}_0 \cdot e^{i(\vec{k}\vec{x} - \omega t)} \quad (2.37)$$

und

$$\vec{B}(\vec{x}, t) = \vec{B}_0 \cdot e^{i(\vec{k}\vec{x} - \omega t)}. \quad (2.38)$$

Die Polarisation ist dabei ausschließlich durch die Richtung der elektrischen Komponente festgelegt, da der magnetische Anteil im sichtbaren Spektralbereich einen wesentlich kleineren Einfluss bei der Wirkung von Licht auf Materie hat [49]. Betrachtet man nun die beiden orthogonalen Komponenten E_x und E_y entlang einer Achse z , so kann man diese als

$$\vec{E}_x(z, t) = E_{0x} \cdot \sin(kz - \omega t) \vec{e}_x \quad (2.39)$$

und

$$\vec{E}_y(z, t) = E_{0y} \cdot \sin(kz - \omega t + \delta) \vec{e}_y \quad (2.40)$$

mit der Phasendifferenz δ schreiben. Diese beiden Felder lassen sich superponieren, so dass sich die resultierende optische Welle zu

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_x(z, t) + \vec{E}_y(z, t) \quad (2.41)$$

ergibt. Ist die Phase $\delta = 0, \pm n2\pi, \dots$, so sind die Wellen phasengleich, bei $\varphi = \pm n\pi$ um 180° außer Phase. In beiden Fällen ist die resultierende Welle linear polarisiert. Ein weiterer Spezialfall ist zirkular polarisiertes Licht, hier ist $\delta = \pi/2 \pm n2\pi$ und die Amplituden sind gleich groß ($E_{0x} = E_{0y}$). Neben diesen beiden Spezialfällen lässt sich allgemein polarisiertes

¹SE400 advanced, Fa. Sentech Instruments GmbH

Licht als elliptisches Licht verstehen, hier ergibt sich das resultierende Feld zu [82, Seite 290]

$$\tan 2\alpha = \frac{2E_{0x}E_{0y} \cos \delta}{E_{0x}^2 - E_{0y}^2} \quad (2.42)$$

mit α als Winkel zwischen der Hauptachse der Ellipse und \vec{e}_x (siehe Abbildung 2.10). Jede Welle lässt sich somit mit einem bestimmten Polarisationszustand beschreiben.

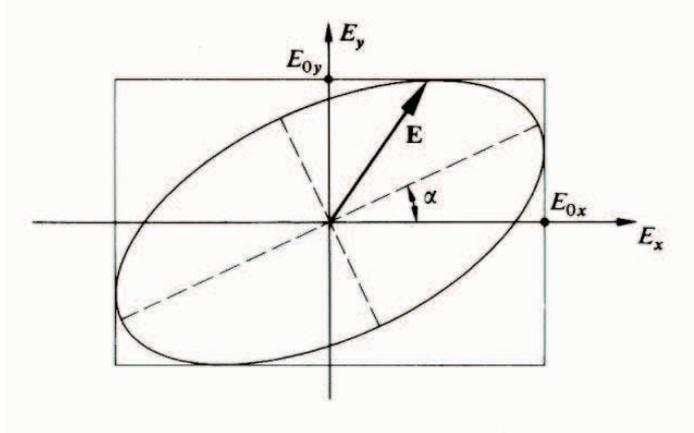


Abbildung 2.10: Elliptisch polarisiertes bzw. elliptisches Licht (aus [82, Seite 289])

2.3.2 Ellipsometrie

Bei der Betrachtung der elektrischen Komponenten \vec{E}_x und \vec{E}_y in Zusammenhang mit Reflexionen an Oberflächen ist es anschaulicher, die Komponenten nach ihrer Lage zur aufgespannten Einfallsebene zu bezeichnen. Dementsprechend spricht man bei ellipsometrischen Messungen von parallel (\vec{E}_p) und senkrecht (\vec{E}_s) polarisiertem Licht [83]. Des Weiteren wird die einfallende Welle mit dem Index i (incident), die ausfallende mit r (reflected) bezeichnet. In der Regel wird für die Beschreibung der Änderung des einfallenden Lichts der sogenannte Jones-Formalismus respektive die Jones-Matrix verwendet [84, Seite 67]:

$$\begin{pmatrix} E_{rp} \\ E_{rs} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{pp} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{ss} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{ip} \\ E_{is} \end{pmatrix} \quad (2.43)$$

Für isotrope Medien sind die Komponenten r_{sp} und r_{ps} gleich null, so dass sich für das Verhältnis der Amplituden die Fresnel-Reflexionskoeffizienten auch als

$$r_{pp} = \frac{E_{rp}}{E_{ip}} \quad (2.44)$$

und

$$r_{ss} = \frac{E_{rs}}{E_{is}} \quad (2.45)$$

schreiben lassen. Ellipsometrie misst die Zustände der Polarisation der einfallenden und reflektierten Welle, so dass sich ein Verhältnis ρ der Fresnel-Reflexionskoeffizienten zu

$$\rho = \frac{r_{pp}}{r_{ss}} \quad (2.46)$$

ergibt. Dieser Reflexions-Koeffizient ist in der Regel eine komplexe Größe, da das elektrische Feld und somit auch die Fresnel-Reflexionskoeffizienten komplex sind. Somit lässt sich Gleichung 2.46 auch als

$$\rho = \frac{r_{pp}}{r_{ss}} = \left| \frac{r_{pp}}{r_{ss}} \right| e^{i(\delta_p - \delta_s)} = \tan(\Psi) e^{i\Delta} \quad (2.47)$$

schreiben, wobei ρ bei der Ellipsometrie gemessen wird [84, Seite 174]. Die Winkel Ψ und Δ sind die bezeichnenden Größen der Ellipsometrie. Ψ , als der Betrag von ρ , beschreibt die Änderung des Amplitudenverhältnisses zwischen r_p und r_s . Die Phasendifferenz Δ ist sehr empfindlich auf ultradünne Schichten und beschreibt den Versatz zwischen der parallel und senkrecht polarisierten Teilwelle. Da keine absoluten Größen gemessen werden, sondern Verhältnisse, ist die Präzision der Ellipsometrie sehr hoch und relativ unempfindlich auf Intensitätsschwankungen, des Weiteren muss keine Referenzmessung durchgeführt werden.

2.3.3 Optische Modelle

Die theoretische Beschreibung der einzelnen Schichten bzw. Schichtsysteme geschieht über verschiedene Modelle, die jeweils vor der Beschichtung erstellt werden müssen. Hierzu sind die Kenntnis der optischen Konstanten bei der Wellenlänge des verwendeten Lichts notwendig. Um eine In-Situ Kontrolle mittels Ellipsometrie zu gewährleisten, müssen diese Modelle außerdem Mischschichten und Rauigkeiten beinhalten. Im Folgenden wird kurz die verwendete Theorie eines effektiven Mediums dargestellt („Effective Medium Approximation“, EMA). Die einfachste Form ist eine lineare Überlagerung des komplexen Brechungsindex \tilde{n}_1 und \tilde{n}_2 :

$$\tilde{n} = f_1 \tilde{n}_1 + f_2 \tilde{n}_2 \quad (2.48)$$

mit den Volumenanteilen f_1 und f_2 der beteiligten Schichten. In der Regel werden jedoch Ansätze folgender Form genutzt [85]:

$$\frac{\tilde{n}_e^2 - \tilde{n}_h^2}{\tilde{n}_e^2 + 2\tilde{n}_h^2} = \sum_{i=1}^N f_i \frac{\tilde{n}_i^2 - \tilde{n}_h^2}{\tilde{n}_i^2 + 2\tilde{n}_h^2} \quad (2.49)$$

Hier sind \tilde{n}_e der komplexe Brechungsindex des effektiven Mischmediums, \tilde{n}_h des Wirts und \tilde{n}_i der eingeschlossenen N Materialien.

Je nach Anwendung unterscheiden sich nun folgende Approximationen, welche kugelförmige Einschlüsse und Dipolwechselwirkungen annehmen [85]:

- Maxwell-Garnett
- Lorentz-Lorenz
- Bruggeman

Für Rauigkeiten, die bei einem Inselwachstum dünner Schichten entstehen und über polarisierbare Objekte im Vakuum beschrieben werden können, wird der komplexe Brechungsindex auf $\tilde{n}_h = 1$ gesetzt. Die entstehende Approximation ist das *Lorentz-Lorenz-Modell*:

$$\frac{\tilde{n}_e^2 - 1}{\tilde{n}_e^2 + 2} = \sum_{i=1}^N f_i \frac{\tilde{n}_i^2 - 1}{\tilde{n}_i^2 + 2} \quad (2.50)$$

Ist der Wirt kein Vakuum, sondern ein anderes Material und der Einschluss auf ein Medium begrenzt, so ergibt sich das *Maxwell-Garnett-Modell*:

$$\frac{\tilde{n}_e^2 - \tilde{n}_h^2}{\tilde{n}_e^2 + 2\tilde{n}_h^2} = f_1 \frac{\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_h^2}{\tilde{n}_1^2 + 2\tilde{n}_h^2} \quad (2.51)$$

Diese Näherung wird verwendet, wenn der Anteil des eingeschlossenen Mediums relativ gering im Bezug zum Wirt ist. Dieses Modell lässt sich nicht für Rauigkeiten benutzen. Beim *Bruggeman-Modell* werden alle Materialien in das effektive Medium eingebettet, so dass keines bevorzugt wird und damit $\tilde{n}_h = \tilde{n}_e$ gesetzt wird:

$$0 = \sum_{i=1}^N f_i \frac{\tilde{n}_i^2 - \tilde{n}_e^2}{\tilde{n}_i^2 + 2\tilde{n}_e^2} \quad (2.52)$$

Bei chemischen Vermischungen kann ein weiteres Modell angewandt werden [85]:

$$\tilde{n}_e^2 = \frac{\sum_{i=1}^N f_i \tilde{n}_i^2}{\sum_{i=1}^N f_i} \quad (2.53)$$

2.4 Genetischer Algorithmus zur Optimierung der Fit-Parameter

Der Simulation und der Auswertung von Multischichtsystemen kommt in dieser Arbeit ein besonderer Aspekt zu. Neben der Berechnung von periodischen Schichtsystemen, welche in der Regel durch verschiedene Programme gut realisiert wird (z.B. [86, 87]), wird ein spezieller genetischer Algorithmus für folgende Anwendungen in dieser Arbeit eingesetzt:

- Anpassen der Reflektivitätskurve, bei streifendem Einfall harter Röntgenstrahlung, eines Schichtmodells an die experimentelle Reflektivitätskurve und dadurch Ermittlung der einzelnen Schichtparameter
- Simulation von Schichtsystemen, welche hinsichtlich bestimmter Parameter (spektrale Bandbreite, Phase, Reflektivitätsprofil) optimiert sind

Genetische Algorithmen sind Optimierungsmodelle, welche ihre Abläufe evolutionär strukturieren [88, Seite 1-2]. Dazu wird eine Anfangspopulation aus bestimmten Individuen (beispielsweise Schichtdicken oder Rauigkeiten) generiert und über Fitness-Funktionen nach bestimmten vorgegebenen Kriterien bewertet. Ein sogenanntes Evolutionsmodell, bestehend aus Selektion, Mutation und Reproduktion, wird durchlaufen und selektiert anhand einer Optimierungsfunktion bestimmte Individuen. Über einen iterativen Prozess (Generationen) wird die Wahrscheinlichkeit, sogenannte lokale Minima einer Fehlerfunktion zu erreichen, minimiert und die Wahrscheinlichkeit, das globale Minimum zu finden, erhöht [89].

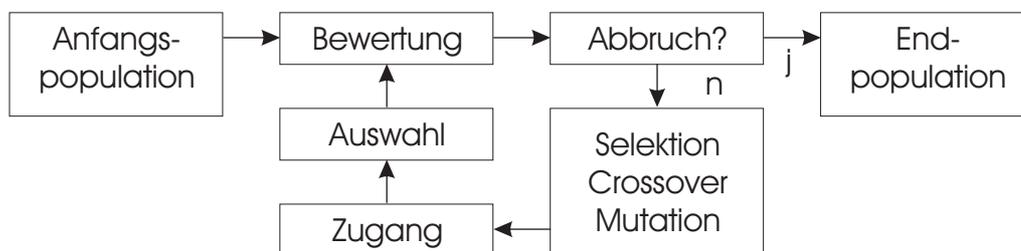


Abbildung 2.11: Ablaufplan des genetischen Algorithmus

Der genetische Algorithmus, wie er für diese Arbeit verwendet wurde, ist in [55] beschrieben. Eine weitere Optimierung und Umstrukturierung wurde in [90] vorgenommen. Mit Hilfe statistischer Untersuchungen des genetischen Algorithmus an Multischichten mit einer Anzahl von Schichten zwischen 4 und 164 wurde festgestellt, dass die mittlere Abweichung der Ergebnisse nur maximal 2% beträgt [55]. Das bedeutet, dass die mit dem genetischen Algorithmus extrahierten Schichtdicken aus einer GIXRR-Messung reproduzierbar sind.

3 Experimenteller Aufbau

3.1 Physikalische Gasphasenabscheidung

Die in dieser Arbeit vorgestellten Multischichten wurden nach dem Prinzip der physikalischen Gasphasenabscheidung (PVD) hergestellt. Im Gegensatz zur chemischen Gasphasenabscheidung (CVD), bei welcher durch eine chemische Reaktion eine feste Schicht auf einem Substrat abgeschieden wird, kondensieren bei der physikalischen Gasphasenabscheidung Atome bzw. Moleküle auf einem Substrat. Für die hier verwendete Elektronenstrahlverdampfung stand eine Ultrahochvakuumapparatur mit einem zylindrischen Rezipienten zur Verfügung. Diese Apparatur zur Herstellung der Multischichten wurde im Rahmen verschiedener Diplom- und Doktorarbeiten auf- und ausgebaut [10, 13, 15, 28–31, 91], weitere Modifikationen wurden während dieser Arbeit vorgenommen. Im Folgenden wird der Aufbau vorgestellt, wie er zum Ende dieser Arbeit Bestand hatte.

3.1.1 Elektronenstrahlverdampfung

In dem zylindrischen Rezipienten der Vakuumapparatur mit einer Höhe von 1800 mm und einem Durchmesser von 300 mm wird durch Turbomolekularpumpen ein Druck von $p < 2 \cdot 10^{-7}$ Pa erreicht. Eine doppelwandige Kammer ermöglicht eine Wasserkühlung zur Abfuhr der bei der Verdampfung entstehenden Wärme. Zwei Elektronenstrahlverdampfer [92, 93] mit der entsprechenden Steuerung sowie Strom- bzw. Spannungsversorgung [94–96] und einem bzw. drei Tiegeln gewährleisten ein abwechselndes Verdampfen zweier Materialien. Der Elektronenstrahl wird mit Hilfe von Elektromagneten rasternd über die Oberfläche der Materialien geführt, so dass lokal unterschiedliche Temperaturen im Tiegel minimiert werden können. Neben diesem Parameter lässt sich der Elektronenstrahl über die Beschleunigung mittels einer variablen Hochspannung und dem Elektronenstrom einstellen. Pneumatisch betriebene Shutter über den beiden Verdampfern ermöglichen einen Materialwechsel ohne den Elektronenstrom abschalten zu müssen. Mit einem zusätzlichen Shutter über einem Schichtdickenmessgerät (Schwingquarz), welcher über die Änderung der Eigenfrequenz durch die Massenzunahme eine Aufdampfrate bestimmt, kann der Elektronenstrom vor einer Beschichtung so geregelt werden, dass Aufdampfraten im Bereich um ca. 1 nm/min erreicht werden. Über eine Schleuse werden zu beschichtende Substrate in die Anlage eingebracht. Der Probenhalter für diese Substrate besteht aus einem starren und einem rotierbaren Halter. Der starre Probenhalter nimmt ein Substrat der Größe

24 · 24 mm² auf und dient als Messobjekt für die In-Situ Schichtdickenkontrolle. Ein rotierendes Substrat würde sowohl die In-Situ-Reflektometrie als auch -Ellipsometrie stören, da dadurch bedingte kleine Änderungen des Ein- bzw. Ausfallswinkels eine Änderung der zu messenden Größe verursachen.

Der rotierbare Halter fasst Substrate bis 100 mm Durchmesser oder mehrere kleine Substrate. Diese Rotation ermöglicht eine hohe laterale Homogenität der Multischichten hinsichtlich ihres Reflexionsverhaltens. Über einen höhenverstellbaren Membranbalg mit einer 3-Punkt Auflage lassen sich die Substrate exakt auf die jeweilige In-Situ Schichtdickenkontrolle justieren. Der schematische Aufbau der gesamten Vakuumanlage ist in Abbildung 3.1 dargestellt.

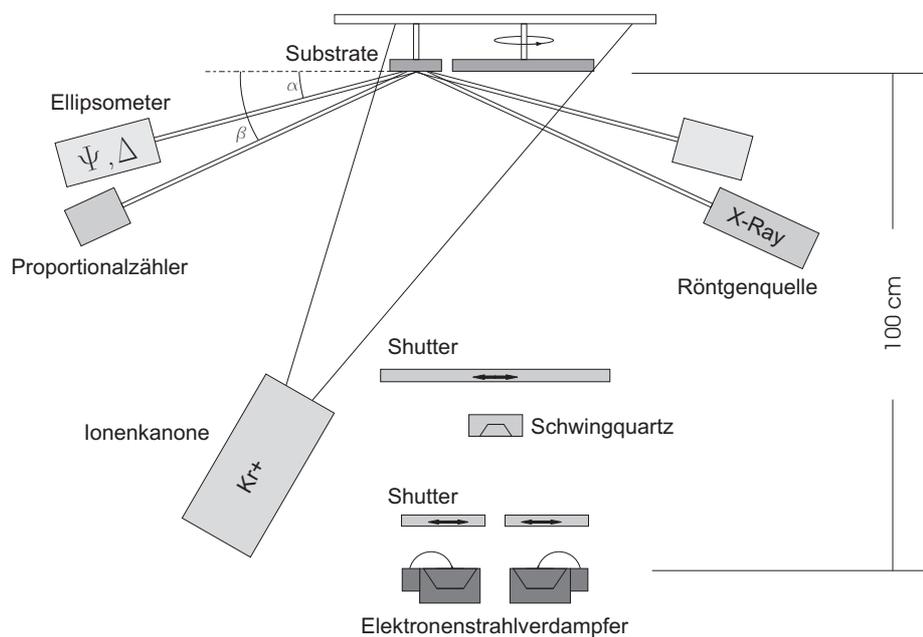


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Aufdampfapparatur zur Herstellung von Multischichten

Die für diese Arbeit verwendeten Multischichtsysteme wurden ausschließlich auf einseitig polierten, planaren Silizium-Wafern mit der Orientierung $(100) \pm 0,5^\circ$ [97] abgeschieden.

3.1.2 Das Material Borcarbid

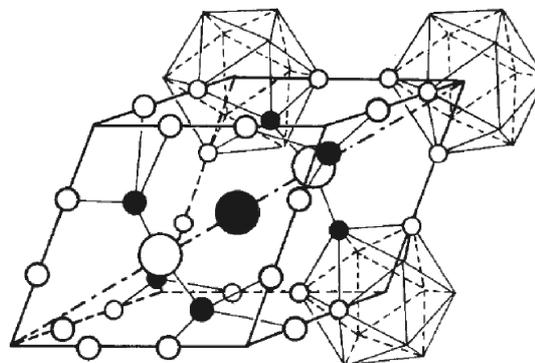
Borcarbid (B_4C) zeichnet sich durch seine hohe chemische und thermische Beständigkeit aus und ist nach Diamant und kubischem Bornitrid der dritthärteste Werkstoff [98, Seite 243]. Als Carbide werden Verbindungen deklariert, bei welchen der Kohlenstoff die elektronegativere Komponente darstellt. Kovalente Carbide, so auch Borcarbid, besitzen eine geringe Elektronegativitätsdifferenz und einen hohen kovalenten Bindungsanteil [99][100,

Seite 1055]. Die Dichte von Borcarbid beträgt $2,52 \text{ g/cm}^3$ [101, Seite 213], die Schmelztemperatur wird mit $T_S = 2350^\circ\text{C}$ angegeben [102, Seite 163]. In Messungen zum Dampfdruck wurde gezeigt, dass aus Borcarbid schon unterhalb der Schmelztemperatur hauptsächlich Bor gemäß folgender Reaktion verdampft [103]:



Die bekannteste und hier verwendete Struktur der Borcarbide ist B_4C ($=\text{B}_{12}\text{C}_3$), bei welcher 12 Boratome einen Ikosaeder formen und die 3 Kohlenstoffatome als Kette entlang der dreifachen Achse der rhomboedrischen Elementarzelle angeordnet sind [102]. Diese Struktur ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Die Gitterkonstanten dieser rhomboedrischen Elementarzelle sind $a = 5,19\text{\AA}$ und $\alpha = 66^\circ 18'$, die dementsprechenden hexagonalen Gitterkonstanten sind $a = 5,601 \pm 0,001$ und $c = 12,072 \pm 0,002\text{\AA}$ [103].

Abbildung 3.2: Kristallstruktur von Borcarbid mit der rhomboedrischen Zelle und der ikosaedrischen Struktur. Die zwei großen hellen Kreise bezeichnen den Kohlenstoff, der schwarze große Kreis das Bor einer C-B-C-Kette [104].



Bei allen hergestellten Multischichten wird als oberste Schicht Borcarbid verwendet, da es im Gegensatz zum reaktiven Lanthan (siehe Kapitel 3.1.3) die Multischicht passiviert:



Borcarbid nimmt innerhalb der Multischichten zwischen 100 und 190 eV aufgrund der Bandkante von Bor bei $E_{1s} = 188 \text{ eV}$ den Teil der niedrig-absorbierenden Schicht ein.

3.1.3 Das Material Lanthan

Lanthan ($Z=57$) gehört zu den Lanthanoiden, ist sehr reaktiv und ein Metall der seltenen Erden. Bei tiefen Temperaturen liegt ein hexagonales Gitter vor, während sie beim Erhitzen in kubische Modifikationen übergehen (kubisch flächenzentriert oder raumzentriert) [105, Seite 57]. Die Gitterkonstanten der hexagonalen Struktur sind $a = 3,77$ und $c = 12,159\text{\AA}$, welche allerdings mit steigender Temperatur zunehmen [105]. Der Schmelzpunkt von Lanthan wird mit $T_S = 918 - 920^\circ\text{C}$ angegeben [106–108], die Dichte beträgt $6,146 \text{ g/cm}^3$. An Luft oxidiert Lanthan sehr schnell zu Lanthanoxid:



Aus diesem Grund werden alle Multischichten von einer B_4C abgeschlossen. Lanthan ist aufgrund der höheren Absorption der beiden verwendeten Materialien zwischen 100 und 190 eV der Absorber im Multischichtstapel.

3.2 In-situ-Kontrolle der Schichtabscheidung

Zur kontrollierten Abscheidung von Schichten standen zwei Messapparaturen zur Verfügung. Neben dem bereits vorhandenen Röntgenreflektometer wurde zur genaueren Bestimmung der Schichtdicken ein Ellipsometer installiert und in Betrieb genommen, welches in Hinblick auf aperiodische La/B₄C-Multischichten präzise Messungen erlaubt. Eine gleichzeitige Nutzung beider Messmethoden ist aufgrund der unterschiedlichen Strahlengänge nicht möglich, für jede Methode ist eine eigene Justage des verwendeten Substrates notwendig. Die Arbeitsweise beider Varianten wird im Folgenden vorgestellt.

3.2.1 Röntgenreflektometrie

Nach dem von E. Spiller vorgestelltem Verfahren [27] erfolgt eine In-situ-Messung der Schichtdicken mit Hilfe weicher Röntgenstrahlung. Die charakteristische Strahlung einer Röntgenquelle wird über einen fest voreingestellten Winkel (variierbar zwischen $15^\circ < \alpha < 25^\circ$) auf das zu beschichtende Substrat gelenkt und von dort reflektiert. Über eingebrachte Lochblenden mit einem Durchmesser von $d = 3,0$ mm und einem Abstand von 700 mm ergibt sich eine Winkelauflösung von $\arctan(\frac{d}{s}) = 0,25^\circ$ [31]. Die reflektierte Strahlung wird mit Hilfe eines Proportionalzählers (Detektorgas: Argon-Methan-Mischung 50:50, Druck $p = 27000$ Pa), Hochspannung $U = 1,41$ kV ausgewertet. Die Trennung des Analyse-gases des Proportionalzählers von der Kammer unter Ultrahochvakuum erfolgt mittels einer $0,19$ μm dicken VYNS-Folie ($\text{H}_{31,37}\text{C}_{20,9}\text{O}_{1,45}\text{C}_{19}$, Dichte $\rho = 1,39$ g/cm³), aufgebracht auf einem Nickelgitter (400 Linien/Zoll, 60% Transmission) zur Unterstützung der Festigkeit [109].

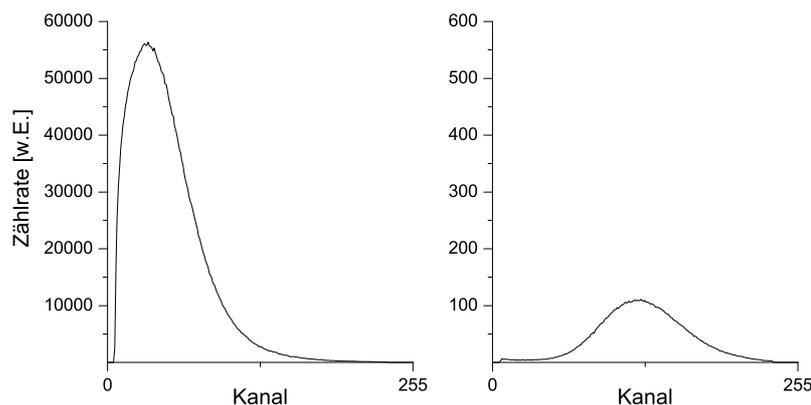


Abbildung 3.3: Typische Signalhöhenverteilung des Proportionalzählers ohne Titan-Filter (links) und mit Titan-Filter (rechts)

Über einen Multikanal-Analysator werden die verschiedenen Pulshöhen auf 255 Kanäle aufgeteilt und selektiert, so dass die vom Elektronenstrahlverdampfer erzeugte störende

Bremsstrahlung eliminiert werden kann. Es wurde festgestellt, dass eine verwendete Titan-Anode ($E_{Ti-L\alpha} = 452 \text{ eV}$) während des Betriebs nitriert, so dass zusätzlich die Stickstofflinie ($E_{N-K\alpha} = 392 \text{ eV}$) im reflektierten Signal detektiert wird. Aus diesem Grund wurde eine weitere Anode mit einer Aluminiumoxid-Beschichtung (Al_2O_3 , $E_{O-K\alpha} = 525 \text{ eV}$) eingesetzt und benutzt, welche in [110] charakterisiert wurde. Da ein Proportionalzähler nur eine unzureichende energetische Auflösung bietet und somit nicht direkt eine charakteristische Röntgenlinie selektiert werden kann, wird ein zusätzlicher Titan- (Dicke $1 \mu\text{m}$) bzw. Aluminiumfilter (Dicke $0,8 \mu\text{m}$) in den Strahlengang gebracht. In Abbildung 3.3 sind zwei Pulshöhenverteilungen dargestellt, eine Verteilung ohne und eine mit eingesetztem Titan-Filter. Durch dieses zusätzlich notwendige absorbierende Medium im Strahlengang liegen typische Zählraten bei Beginn einer Beschichtung unter 50 s^{-1} und statistische Schwankungen beeinträchtigen eine präzise Umschaltung der Materialien während der Verdampfung.

Nach der in Kapitel 2.2.1 vorgestellten Bragg-Gleichung lassen sich mit diesem Aufbau Multischichtsysteme mit Schichtdicken s von

$$1,4 \text{ nm} < s < 3,2 \text{ nm} \quad (3.4)$$

realisieren.

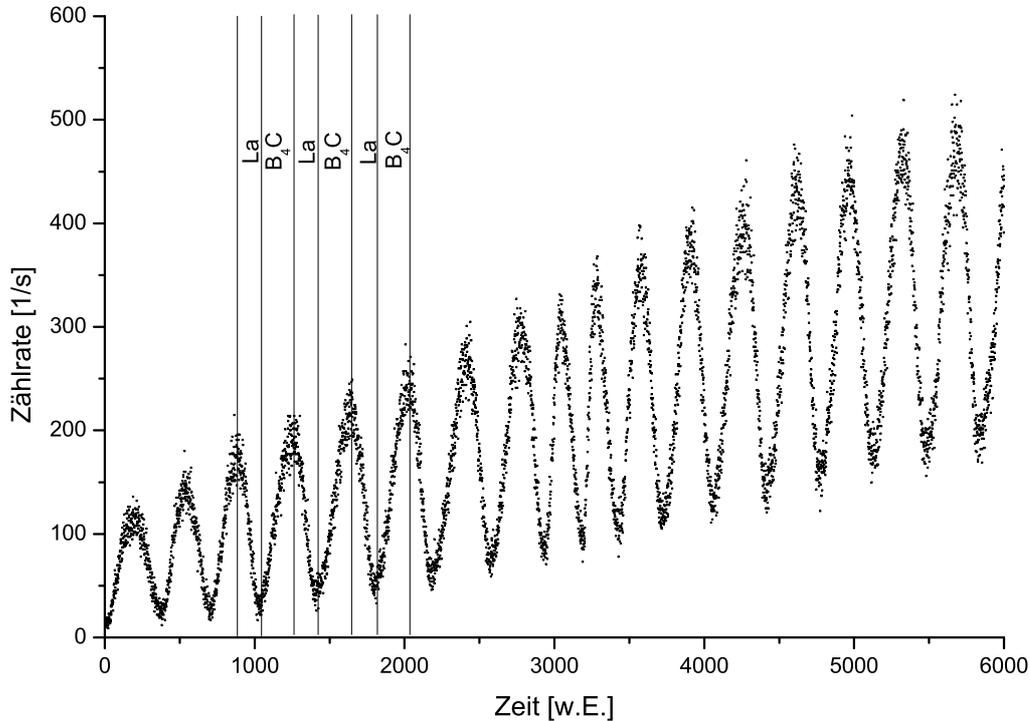


Abbildung 3.4: Verlauf der gemessenen Röntgenreflektivität beim Wachstum einer $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischicht mit den Umschaltpunkten in den Minima bzw. Maxima

In Abbildung 3.4 ist ein gemessener Intensitätsverlauf für das Wachstum einer periodischen $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischicht dargestellt. Die Umschaltunkte liegen für Lanthan zu Borcarbid in den Minima, für Borcarbid zu Lanthan in den Maxima. Der Vorteil dieser Messmethode liegt in der Kompensation von Schichtdickenfehlern durch nachfolgende Schichten. Die Anzahl der Schichten, welche kohärent zur reflektierten Strahlung beitragen, ist praktisch nicht begrenzt durch Fehler in einzelnen Schichten [27]. Der Γ -Faktor für die mit dieser In-situ-Kontrolle mit einer Umschaltung der Materialien in den jeweiligen Maxima hergestellten Multischichten ergibt sich zu:

$$\Gamma = \frac{d(\text{Lanthan})}{d(\text{Lanthan} + \text{Borcarbid})} = 0,48 \quad (3.5)$$

Nachteilig ist die Voraussetzung konstanter Aufdampfraten der Materialien, da die Umschaltung der Schichten über Extremwerte eines sinusförmigen Reflektivitätsverlaufes realisiert wird. Hier bietet die im Folgenden beschriebene In-Situ-Ellipsometrie entscheidende Vorteile.

3.2.2 In-Situ-Ellipsometrie

Wie bereits in Kapitel 2.3 beschrieben, wurde für diese Arbeit ein Ellipsometer zur In-Situ-Kontrolle der Schichtdicken an die UHV-Apparatur angebracht. In der Nähe des Brewsterwinkels, um eine möglichst große Änderung der ellipsometrischen Parameter bei Reflexion an der Multischicht zu erreichen, wurden zusätzliche Flansche unter einem Winkel von 20° zur Horizontalen angebracht.

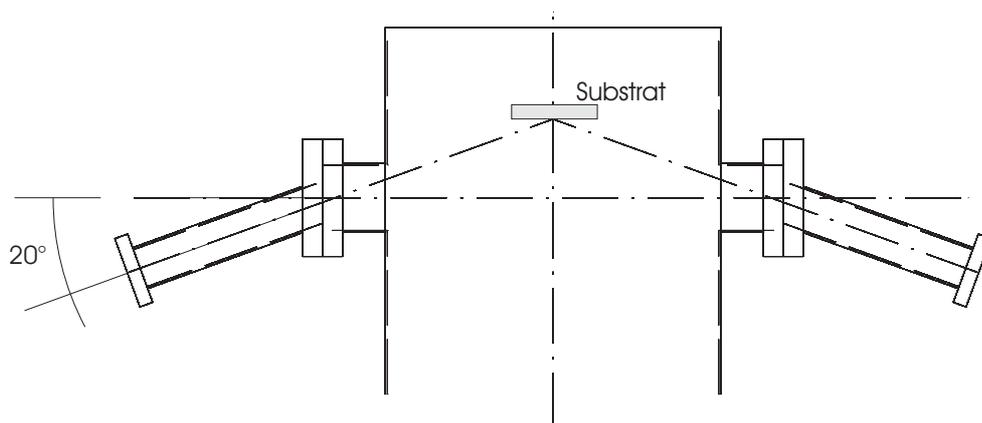


Abbildung 3.5: Schema der Anschlüsse und des Strahlengangs des Ellipsometers an der Vakuumkammer unter einem Winkel von 20° zur Horizontalen

Über annähernd spannungsfreie Fenster [111] wird gewährleistet, dass die Polarisation des Laserstrahls (Helium-Neon-Laser, $\lambda = 632,8 \text{ nm}$) nur durch die zu untersuchende Probe beeinflusst wird. Nach dem Einschleusen eines Silizium-Wafers wird dieser justiert. Eine zusätzliche Linse fokussiert den Laser in den Detektor, so dass Schwingungen der Anlage

und damit Schwankungen in Ψ und Δ minimiert werden. Diese statistischen Schwankungen in Ψ und Δ bleiben so unter $0,02^\circ$ (Ex-situ Betrieb $\sigma(\Psi) = \sigma(\Delta) = 0,002^\circ$ [112]), dies entspricht beispielsweise einer theoretischen Genauigkeit in der Bestimmung der Schichtdicke von Siliziumdioxid $\ll 0,1$ nm.

3.3 Ex-situ Charakteristik der Multischichten

3.3.1 Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall

Die Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall (Grazing Incidence X-Ray Reflectometry - GIXRR) bietet die Möglichkeit, Schichtsysteme zu analysieren, ohne dass passende Strahlungsquellen für die entsprechenden Energien der Multischichten zu Verfügung stehen müssen. Durch die ständige Verfügbarkeit und kurze Messzeiten eignet sich GIXRR in Verbindung mit passenden Auswertemechanismen zur Charakterisierung von Multischichtsystemen. Die durchschnittliche Messzeit einer Multischicht über einen Winkelbereich von $0^\circ < \theta < 3^\circ$ liegt unter 2 Stunden. Die anschließende Auswertung ist stark abhängig von der Anzahl der freien Parameter (Anzahl der Perioden). Hier kommt der in Kapitel 2.4 beschriebene genetische Algorithmus zum Einsatz. Im Folgenden wird der Aufbau des GIXRR beschrieben, wie er zum Ende dieser Arbeit Bestand hatte.

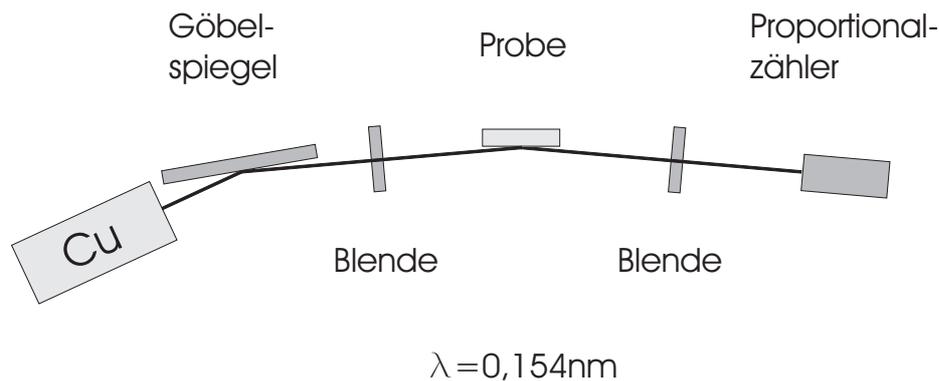


Abbildung 3.6: Schema des verwendeten Röntgenreflektometrieaufbaus

Verwendet wird die sogenannte $\theta - 2\theta$ -Geometrie, d.h. der Detektorwinkel 2θ wird immer um den doppelten Probenwinkel θ mitgeführt. Typische Schrittweiten sind $0,01^\circ$. Mit der charakteristischen Röntgenstrahlung einer Kupfer-Anode ($\lambda = 0,154 \text{ nm}$ [40]) wird so typischerweise ein Winkelbereich von ($0 < \theta < 5^\circ$) für die Auswertung von Multischichten vermessen [113]. Als Monochromator dient ein Göbelspiegel [114], welcher die Cu- K_α -Linie selektiert und außerdem die von der Quelle emittierte Strahlung parallelisiert. Dabei handelt es sich um einen Multischichtstapel mit einer elliptisch geformten Oberfläche. Das reflektierte Signal wird mittels eines Proportionalzählers gemessen. Die Substrate mit den zu vermessenden Schichtsystemen werden über einen Vakuum-Halter arretiert. Auf der Probe hat der Röntgenstrahl ungefähr die Maße $10 \cdot 0,1 \text{ mm}^2$ (Höhe · Breite), wobei die Breite sehr stark vom Winkel θ abhängig ist. Über die Erstellung von theoretischen Modellen und Anpassung dieser an den experimentellen Verlauf, lassen sich die Strukturen einer Multischicht (Schichtdicken, Rauigkeiten) extrahieren. Aufgrund einer korrigierten Intensität bedingt durch die Totzeit des Proportionalzählers weisen angepasste Modelle

an die GIXRR-Messkurve weitaus präzisere Übereinstimmungen mit Messungen im XUV-Bereich als in vorherigen Arbeiten auf (vgl. Kapitel 5.2).

3.3.2 Messungen am BESSY

Eine Charakterisierung der hergestellten Multischichtsysteme mit Strahlung zwischen 100 und 200 eV wurde an der Forschungseinrichtung „Berliner Elektronenspeicherring-Gesellschaft für Synchrotronstrahlung m. b. H.“ (BESSY) vorgenommen. Als Strahlquelle diente die Synchrotronstrahlung des Elektronenspeicherrings BESSY II. Die Messungen wurden zum einen von der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) durchgeführt, als auch in eigenen Messzeiten am Reflektometer der „optics beamline“. Der von der PTB angegebene absolute Fehler bei der Messung der Reflektivität beträgt $\Delta R = 0,14\%$ [115]. Die Transmission höherer Ordnungen durch den Monochromator verursacht den größten Fehler bei Messungen am Reflektometer, dieser wird mit $\Delta R/R < 2\%$ angegeben [116]. Die „optics beamline“ des BESSY wird mit horizontal polarisiertem Licht versorgt. Der Durchmesser des Strahls beträgt $300 \cdot 90 \mu\text{m}$, die Divergenz $3 \cdot 1,5 \text{ mrad}$ bei 170 eV. Der Gittermonochromator (PGM - plane grate monochromator) kann mit drei unterschiedlichen Gittern für verschiedene Energiebereiche betrieben werden. Die Energie kann zwischen 20 und 1300 eV variiert werden. Über einen einstellbaren Spalt wird sowohl die spektrale Bandbreite als auch transmittierte Intensität eingestellt. Das Reflektometer besteht aus einer Vakuumkammer mit einem Basisdruck von $< 10^{-5} \text{ Pa}$, in welche bis zu drei Multischichten auf einem Substrathalter eingebracht werden können. Der Winkel des Substrathalters kann zwischen 0 (parallel zum Strahl) und 90° (senkrecht zum Strahl) eingestellt werden, der Detektor dementsprechend zwischen 0 und 180° [117]. Aufgrund der Detektorform ist eine Reflektivitätsmessung bei nahezu senkrechtem Einfall (89°) möglich. Hierzu wird das gemessene Signal I_{refl} am Detektor (GaAsP-Diode) auf die Intensität I_0 des direkten Strahls normiert. Zusätzlich wird der jeweilige Ringstrom I_{ring} als weitere Normierung mit berücksichtigt, da die Messung von I_0 und I_{refl} zu unterschiedlichen Zeitpunkten stattfindet. Die Reflektivität $R(E)$ ergibt sich dann zu

$$R(E) = \frac{I_{refl}/I_{ringrefl}}{I_0/I_{ring0}} \quad (3.6)$$

3.3.3 Analytik mit Transmissionselektronenmikroskopie

Die in dieser Arbeit verwendeten Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)-Aufnahmen von Querschnitten der Multischichten wurden mit einem „Philips CM200 SuperTWIN- α “ aufgenommen [118]. Für die TEM-Aufnahmen muss die zu untersuchende Probe zerstört werden, so dass es sich nur bedingt zur Charakterisierung eignet. Allerdings liefert TEM sehr lokale Informationen ($1 \mu\text{m}$) über eine Multischicht und kann so Aussagen über die Struktur treffen. Während die Einzelschichtdicken einer Multischicht auf Grund der unterschiedlichen Streuung der Elektronen an verschiedenen Materialien nicht extrahiert

werden können, so lassen sich Doppelschichtdicken ausreichend genau auslesen. Des Weiteren können Informationen zu Kristallinität, Rauigkeiten und Zwischenschichtbildung gewonnen werden. Die Auflösung der TEM-Aufnahmen beträgt bis zu 0,24 nm, bei einer Vergrößerung von bis zu 1,1-Millionenfach [118]. Des Weiteren kann die Elementzusammensetzung einer Probe mit Hilfe der Energiedispersiven Röntgenspektroskopie (EDX) untersucht werden. Dazu werden die Atome der Probe mit den Elektronen des Transmissionselektronenmikroskop angeregt, so dass Elektronen aus einer der inneren Schalen herausgeschlagen werden. Durch das Auffüllen dieser Lücke mit einem höherenergetischen Elektron wird Differenzenergie als spezifische Röntgenstrahlung emittiert. Durch eine energiedispersive Detektion lassen sich so Rückschlüsse auf das Material gewinnen.

3.3.4 Sputter-Augerelektronenspektroskopie

Zur Analyse der Schichtbeschaffenheit und der chemischen Zusammensetzung der La/B₄C-Multischichten wurden Augerelektronenspektroskopiemessungen (AES) in Verbindung mit einem Schichtabtrag durch Sputtern eingesetzt [119]. Augerelektronenspektroskopie ist ein oberflächensensitives Verfahren, mit welchem fast alle Elemente in einer bestimmten Probe nachgewiesen werden können. Dies basiert auf der spezifischen Elektronenkonfiguration jedes Elements, durch welche die sogenannten Augerlinien einem Element zugeordnet werden können. Chemische Bindungen können diese Augerlinien verformen und hinsichtlich ihrer Lage verschieben [120]. Durch die Ionisierung einer inneren Schale eines Atoms durch beschleunigte Elektronen wird das entstehende Loch durch ein Elektron einer höheren Schale wieder besetzt. Die freiwerdende Energie wird beim Auger-Prozess nicht in Form von Strahlung abgegeben, sondern an ein weiteres Elektron einer anderen Schale übertragen. Dieses kann das Atom mit einer von dem Atom abhängigen bestimmten kinetischen Energie verlassen. Spektroskopisch werden dann die Anzahl der Elektronen $N(E)$ pro Zeiteinheit und Energiebereich ΔE aufgenommen, zu $dN(E)/dE$ differenziert und ausgewertet [121]. Durch die Differenzierung wird der Untergrund der Messung entfernt und die Augerelektronen erscheinen als Peaksignal. Durch eine Peakhöhenbewertung können mit Hilfe tabellierter Daten [121] atomare Konzentrationen bestimmt werden. Über Sensitivitätsfaktoren und Hintergrundrauschen kann für jede ermittelte Konzentration ein Fehler angegeben werden.

In Verbindung mit einer Sputterquelle lassen sich Tiefeninformationen bzw. ein Tiefenprofil der Multischicht gewinnen. Hierzu werden abwechselnd für einen bestimmten Zeitraum beschleunigte Ionen (Xenon) unter einem flachen Winkel auf die Probe geschossen und die Schichten sukzessive abgetragen und danach eine Augerelektronen-Messung vorgenommen [122].

3.4 Oberflächenoptimierung

Zur Optimierung der Einzelschichten bezüglich ihrer Rauigkeit (Polieren) bzw. zum Abtragen von Teilschichten ist an die Vakuumapparatur eine Ionenquelle installiert (vgl. Abbildung 3.1). Der Einfallswinkel der Ionen beträgt $\theta = 30^\circ$ zur Normalen der Substratoberfläche, da sich dieser Winkel als Optimum herausgestellt hat [31]. Der Durchmesser der Austrittsöffnung der HF-Ionenkanone beträgt $d = 30$ mm, das Plasma wird durch Hochfrequenz-Wellen erzeugt [123]. Mit Hilfe eines Massendurchflussreglers wird der Gasfluss eingestellt, über eine Hochspannung kann die kinetische Energie der verwendeten Ionen eingestellt werden. In dieser Arbeit wurde ausschließlich Krypton verwendet, der Gasmengenstrom betrug 12 sccm und die Ionenenergie ließ sich auf bis zu 450 eV einstellen. Der maximale Ionenstrom wurde zu $I_{max} = 1 \cdot 10^{16} \frac{\text{Ionen}}{\text{cm}^2\text{s}}$ abgeschätzt [31]. Der Einfluss von beschleunigten Kryptonionen auf die einzelnen Schichten einer La/B₄C-Multischicht nach der jeweiligen Beschichtung wurde bereits in ersten Experimenten untersucht [124], führte allerdings auf Grund fehlender Referenzproben nicht zu eindeutigen Ergebnissen. Deshalb wurde ein apparativer Umbau vorgenommen, um zu jeder polierten Probe eine unpolierte Referenzprobe mit exakt den gleichen Herstellungsbedingungen zu erhalten.

3.4.1 Apparativer Umbau

Der apparative Aufbau für die Untersuchung des Einflusses von beschleunigten Kryptonionen auf Multischichten musste modifiziert werden, um möglichst präzise Aussagen treffen zu können. Dazu wurde ein zusätzlicher pneumatischer Shutter an die Anlage angebracht, welcher ein Referenzsubstrat während des Polierens mit Kryptonionen abdeckt. Somit wurde sichergestellt, dass die beiden eingebrachten Substrate exakt identische Aufdampfparameter erfahren, während nur ein Substrat beim Polieren den Krypton-Ionen ausgesetzt wird. In Abbildung 3.7 ist dieser modifizierte Aufbau dargestellt.

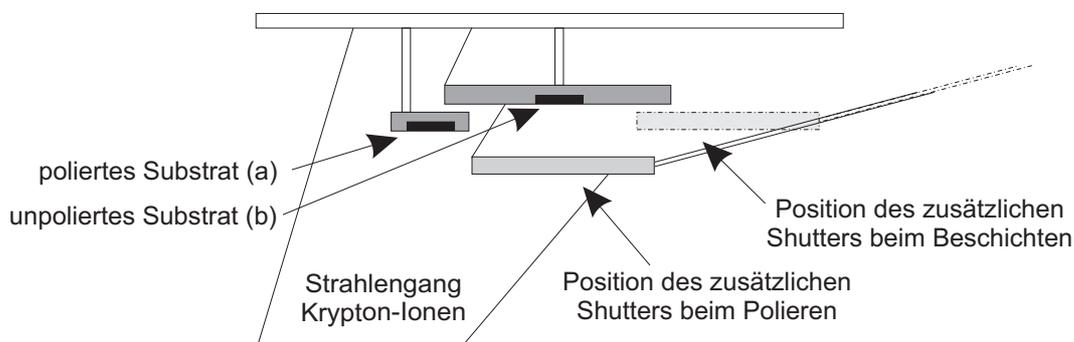


Abbildung 3.7: Apparativer Aufbau zur Untersuchung des Einflusses von beschleunigten Kryptonionen auf Multischichten mit dem Substrat im Strahlengang (a) und dem verdeckten Substrat (b)

Durch die unterschiedliche laterale Position und den geringen Höhenunterschied der beiden Substrate ergeben sich geringe Differenzen in den einzelnen Schichtdicken beider Proben [29]. Diese Diskrepanz muss bei allen Auswertungen berücksichtigt werden. In Abbildung 3.8 sind die Röntgenreflektometrie-Messungen bei streifendem Einfall für zwei bei gleichen Parametern hergestellten Proben dargestellt.

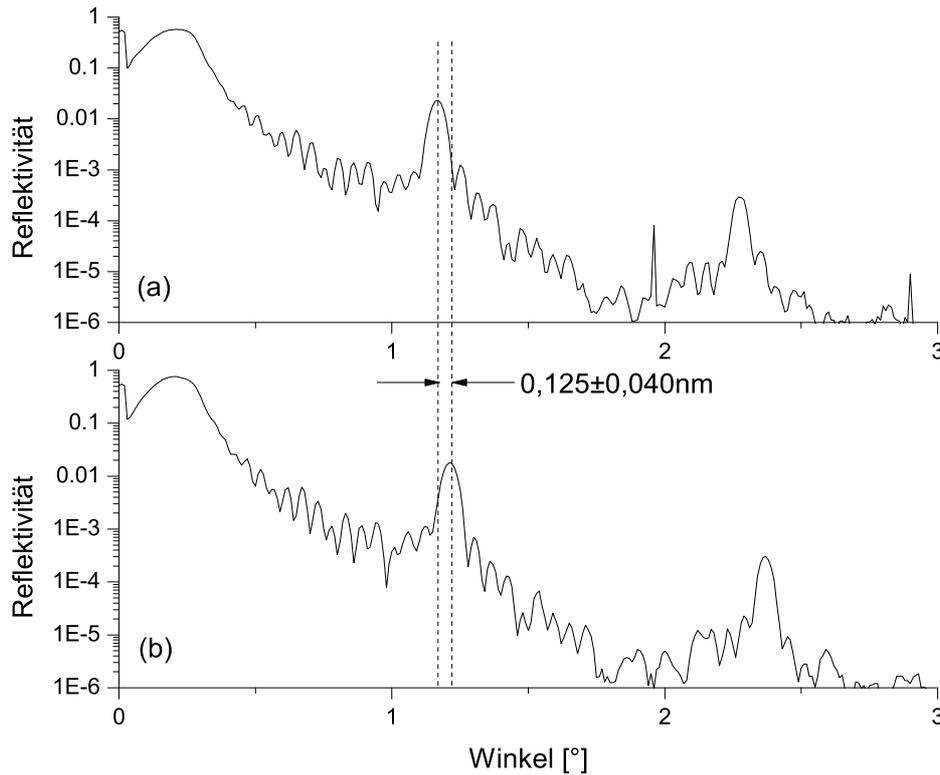


Abbildung 3.8: GIXRR-Messungen der beiden in einem Durchgang hergestellten Multischichten mit unterschiedlicher lateraler Position und Höhe in der Vakuumkammer

Aus der Lage der Bragg-Reflexe, welche sich um $0,04^\circ$ unterscheiden, und Gleichung 2.16 lässt sich direkt eine mittlere Periodendicke für beide Multischichten und damit eine Periodendickendifferenz berechnen. Mit der Vereinfachung für kleine Winkel $\sin x \approx x$ und einer Unsicherheit von $0,01^\circ$ ergibt sich die Differenz zu:

$$\Delta d = d_a - d_b = 0,125 \pm 0,040 \text{ nm} \quad (3.7)$$

In allen nachfolgenden Auswertungen wird dieser Zusammenhang berücksichtigt. Des Weiteren ist darauf zu achten, dass eine mögliche Schichtdickenänderung während des Polierens mit der In-Situ-Schichtdickenkontrolle durch das nachfolgende Material wieder ausgeglichen wird (Umschaltung in den Minima bzw. Maxima). Durch diesen Effekt ist das

während des Polierens abgedeckte Substrat nicht als absolute Referenz zu sehen, sondern immer in die Auswertung mit einzubeziehen.

3.4.2 Charakterisierung und Normierung

Der Einfluss des Beschusses von einzelnen Oberflächen einer Multischicht mit Ionen wurde bereits in vorherigen Arbeiten als erfolgreiche Prozedur zur Erhöhung der maximalen Reflektivität bei Mo/Si-Multischichten bestätigt (siehe z.B. [31] und Kapitel 2.2.5).

Die Charakterisierung der hergestellten Multischichten wurde mit Hilfe der Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall vorgenommen. Wie bereits in einer vorherigen Arbeit beschrieben [124], lassen sich aus diesen Daten direkte Rückschlüsse auf die Lage und Höhe der Reflektivitätskurven bei senkrechten Einfall von XUV-Strahlung gewinnen.

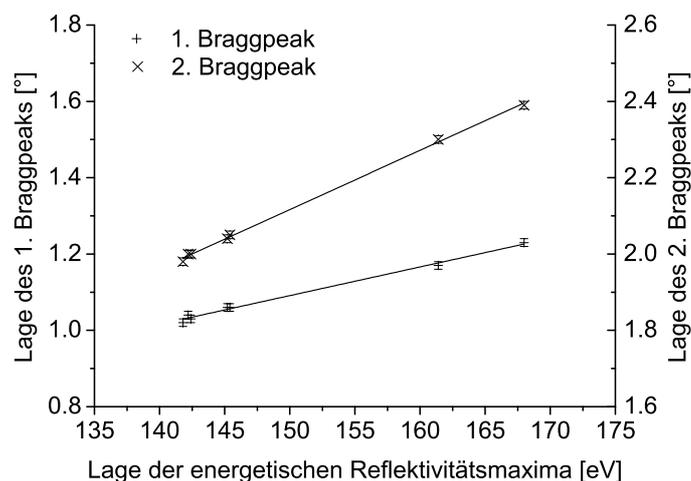


Abbildung 3.9: Lage des 1. und 2. Braggpeaks in Abhängigkeit von der energetischen Lage der Reflektivitätsmaxima gemessen am BESSY

In Abbildung 3.9 ist der Zusammenhang zwischen den Bragg-Reflexen bei harter Röntgenstrahlung unter streifendem Einfall und bei weicher Röntgenstrahlung unter nahezu senkrechtem Einfall (89° zur Oberfläche) dargestellt. Der in Abbildung 3.10 gezeigte lineare Zusammenhang zwischen der Höhe des 1. Braggpeaks bei Röntgenreflektometrie unter streifendem Einfall und absoluter Reflektivität von weicher Röntgenstrahlung unter wiederum nahezu senkrechtem Einfall ist nur so lange gültig, als dass alle Perioden einer Multischicht bei beiden Messmethoden zur Reflektivität beitragen. Dies ist mit den für dieses Experiment genutzten Multischichtsystemen ($N = 20$) der Fall, so dass der lineare Zusammenhang für die Charakterisierung genutzt werden kann.

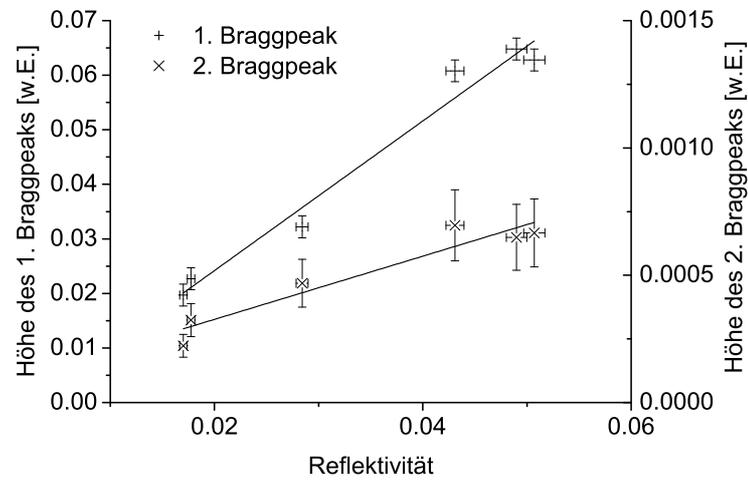


Abbildung 3.10: Höhe des 1. und 2. Braggpeaks in Abhängigkeit von der maximalen Reflektivität gemessen am BESSY

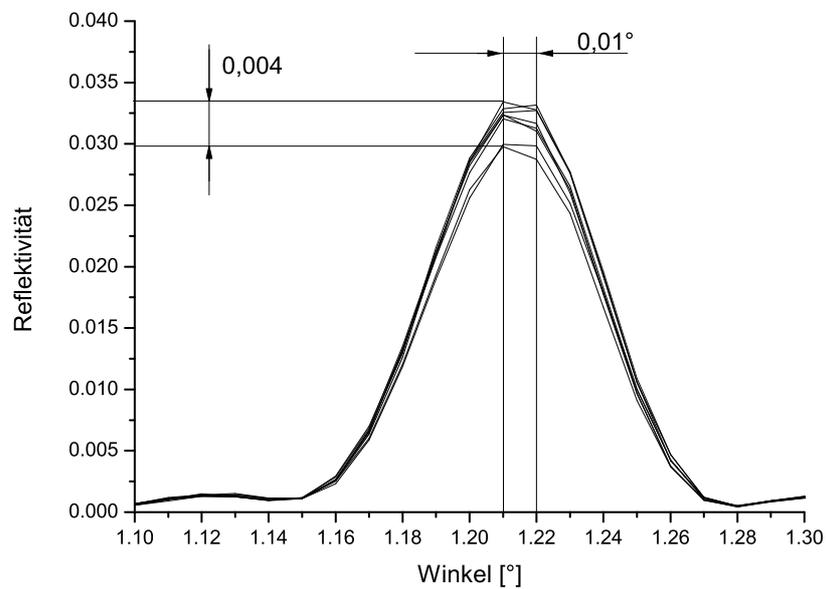


Abbildung 3.11: Statistische Schwankungen der Röntgenreflektometriemessungen unter streifendem Einfall und resultierende Abweichungen

Der relative Fehler in der Reflektivität bei Messungen mit Synchrotronstrahlung wird zu $< 2\%$ angegeben [116] und ist begründet durch die zusätzliche Reflexion höherer Ordnungen am Monochromator (siehe Kapitel 3.3.2). Der Fehler der Röntgenreflektometriemessungen bei streifendem Einfall wurde statistisch bestimmt. In Abbildung 3.11 sind 8 Messungen an einer Multischicht aufgetragen. Die Winkelauflösung beträgt $0,01^\circ$ (entspricht einem Fehler in der Bestimmung der Periodendicke von $\Delta d \approx \pm 0,04$ nm) und die Standardabweichung in der Reflektivität beträgt $\Delta h \approx \pm 0,002$ bei einem Mittelwert von $h = 0,032$. Die hier bestimmte Winkelauflösung ließe sich mit einem Fit einer Gaußfunktion an die Messdaten verbessern, allerdings nutzen alle verwendeten Algorithmen (Levenberg-Marquardt-Algorithmus und genetischer Algorithmus) die diskreten Messwerte, so dass ein zusätzlicher Fit die Auflösung nicht erhöht. Des Weiteren ist der durch diese Unsicherheit bestimmte Fehler in der Periodendicke von $\Delta d \approx \pm 0,04$ nm für einen realen Multischichtstapel vernachlässigbar.

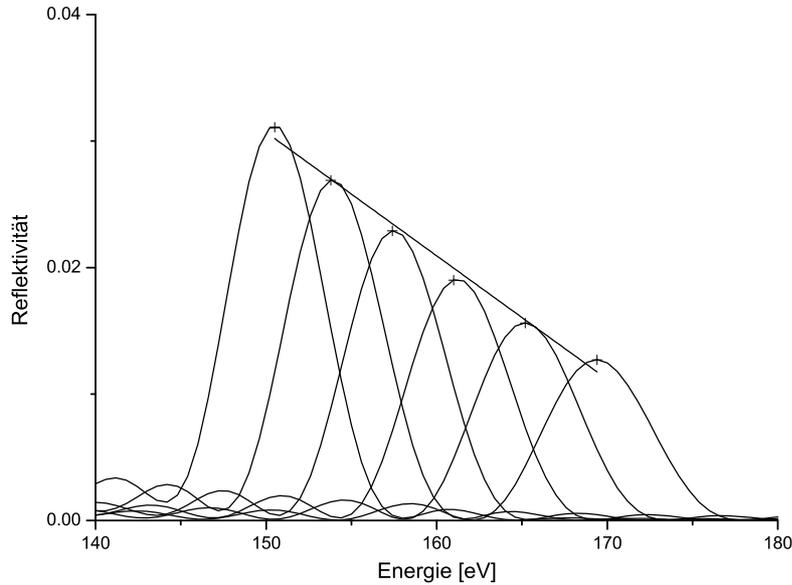


Abbildung 3.12: Abhängigkeit der maximalen Reflektivität (simuliert) von der energetischen Lage einer La/B_4C -Multischicht mit unterschiedlicher Periodendicke (v.l.n.r.: 4,2 nm bis 3,7 nm in 0,1 nm Schritten) bei ansonsten gleichen Parametern ($N = 20$, $\sigma = 0,8$ nm)

Der in Abbildung 3.10 gezeigte Zusammenhang lässt sich durch einen linearen Zusammenhang beschreiben. Mit folgender Gleichung lassen sich somit ausreichend genaue Abschätzungen über die Reflektivität R aus den Peakhöhen h der Röntgenreflektometriemessungen treffen:

$$R = \frac{h}{1,37} \quad (3.8)$$

und

$$\Delta R \approx 0,002 \quad (3.9)$$

Dieser Faktor zur Umrechnung der beiden Reflektivitäten wird hauptsächlich durch die unterschiedlichen optischen Konstanten der Materialien bei den unterschiedlichen Messwellenlängen bestimmt.

Da die maximale Reflektivität einer Multischicht neben Parametern wie Anzahl der Perioden oder Rauigkeiten auch von der energetischen Lage der Reflektivitätskurve abhängt, muss für qualitative Aussagen über reflektivitätssteigernde oder -mindernde Einflüsse die erreichte Reflektivität immer mit der energetischen Lage korreliert werden. In Abbildung 3.12 ist dieser Zusammenhang dargestellt. Dieser Zusammenhang zwischen der Höhe der Maxima der Reflektivität und der energetischen Lage lässt sich in dem gezeigten Energiebereich durch einen linearen Zusammenhang annähern, bei welchem der Anstieg $m = -1 \cdot 10^{-3} \frac{1}{\text{eV}}$ für die ausgewählten Parameter beträgt ($N = 20$, $\sigma = 0,8 \text{ nm}$, $\Gamma = 0,5$). Mit Hilfe dieses Faktors m lassen sich somit auch die Reflektivitäten von Multischichten mit unterschiedlichen Periodendicken ($3,7 \text{ nm} < d < 4,2 \text{ nm}$) relativ zueinander vergleichen. Hierzu werden die Reflektivitäten mit

$$R_{\text{korrigiert}} = m \cdot \Delta E + R_{\text{gemessen}} \quad (3.10)$$

umgerechnet, mit dem Anstieg der linearen Funktion $m = -1 \cdot 10^{-3} \frac{1}{\text{eV}}$ und dem Versatz der energetischen Lage beider Multischichten ΔE .

3.5 Software

Die Software zur Bedienung der Apparatur, einschließlich Messdatenerfassung, Auswertung und Automatisierung wurde vollständig von einer in vorherigen Arbeiten erstellten Linux-basierten Version [30, 31] auf ein Windows-Betriebssystem umgestellt. Dabei wurden neue Funktionen und Erweiterungen implementiert, welche im Anhang vollständig beschrieben sind.

4 Herstellung und Charakterisierung von periodischen La/B₄C-Multischichten

4.1 Stabilität und Reproduzierbarkeit der Beschichtung

Die in Kapitel 2.6 beschriebenen Schichtdickenfehler beeinflussen signifikant die für eine Multischicht ausschlaggebende Reflektivität durch die Verhinderung einer konstruktiven Interferenz durch alle Teilschichten. Abweichungen einzelner Periodendicken von der idealen Doppelschichtdicke bzw. Schwankungen aller Periodendicken um einen bestimmten Wert führen somit zu einer Senkung der maximalen Reflektivität. Durch die eingesetzte In-Situ Röntgenreflektometrie sollen die Schichtsysteme möglichst periodisch und ohne signifikante Schichtdickenfehler hergestellt werden. Insbesondere die folgenden Punkte sind entscheidend für eine möglichst optimale Umsetzung der In-Situ Kontrolle und der damit verbundenen optimalen Umschaltung der Materialien:

- Signal-Rausch-Verhältnis
- Absolute Differenz zwischen Maxima und Minima
- Konstanz der Aufdampftrate

Durch die geringen Intensitäten (Zählraten) der verwendeten Röntgenstrahlung bei Beginn einer Beschichtung, bedingt durch notwendige Filter (vgl. Kapitel 3.2.1 im Gegensatz zur Nutzung der Kohlenstoff-K-Linie bei der Herstellung von Molybdän/Silizium-Multischichten, ist eine Erkennung der ersten Minima und Maxima erschwert. Die Zählraten n auf einem Silizium-Wafer liegen typischerweise zwischen 5 und $20 \frac{1}{s}$. Das Verhältnis der statistischen Schwankungen Δn zur Zählrate beträgt hier $\Delta n/n \approx 0,5$. Des Weiteren sind die Amplituden der In-Situ-Kurve der ersten Perioden um einen Faktor ≈ 10 geringer als bei der In-Situ-Kontrolle der Mo/Si-Schichtsysteme. Dies beruht zum einen auf höheren Rauigkeiten σ , als auch auf kleineren Schichtdicken d und damit einem ungünstigeren Verhältnis σ/d . Diese Faktoren behindern einen möglichst optimalen Materialwechsel während der Beschichtung. Aus diesem Grund wurde ein weiteres Anodenmaterial der Röntgenquelle getestet und damit Zählraten und Reproduzierbarkeit erhöht [110]. Neben diesen Fehlerquellen, welche in der In-Situ-Kontrolle begründet sind, beeinflusst die Inkonzanz der Aufdampftrate von Borcarbid entscheidend die Stabilität und Reproduzierbarkeit einer Beschichtung. Während Lanthan beim Erhitzen eine Schmelze bildet und aus dieser konstant verdampft, sublimiert Borcarbid unterhalb des eigentlichen

Schmelzpunktes. Durch diese Sublimation schwanken die Aufdampfraten höherfrequent (Größenordnung Sekunden) mit der Rasterung des Elektronenstrahls, als auch niederfrequent (Größenordnung Minuten) mit der Beschaffenheit bzw. variierenden Oberfläche des Materials im Tiegel. Während erstere Schwankung vernachlässigt werden kann, da die Wachstumsrate für eine typische Borcarbid-Schicht (z.B. 2 nm) ca. 2 min beträgt, beeinflusst Zweitere den theoretisch sinusförmigen Verlauf der In-Situ-Reflexionskurve (vgl. Abbildung 4.1).

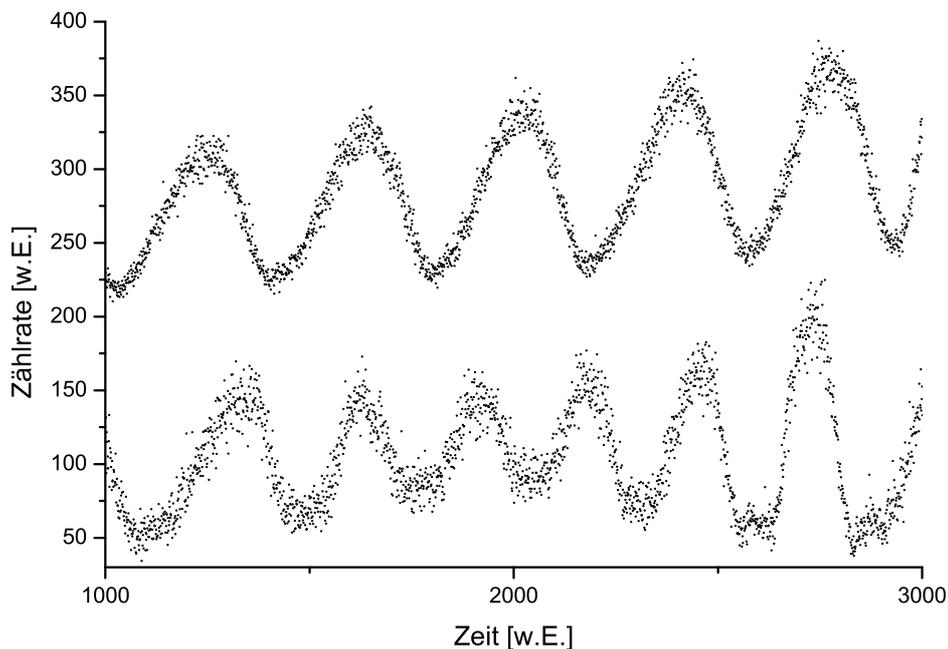


Abbildung 4.1: Vergleich von In-Situ Kurven zweier Multischichten: Unten eine Kurve ohne PID-Regelung und ohne Levenberg-Marquardt-Fit, oben mit PID-Regelung und mit Levenberg-Marquardt-Fit bei vollautomatischer Herstellungsprozedur

Ein Sinken der Rate während des Verdampfens führt zu einer Dämpfung des Sinus, bis hin zu einer konstanten Zählrate innerhalb der angesprochenen statistischen Schwankung. Aus diesem Grund wurde in die erstellte Steuersoftware eine PID-Regelung implementiert (siehe Anhang). Diese liest fortwährend eine Rate am vorhandenen Schwingquarz aus (Ist-Wert). Über einen einstellbaren Soll-Wert wird der Verdampferstrom so geregelt, dass der durchschnittliche Ist-Wert möglichst nahe am Soll-Wert liegt. Mit Hilfe dieser Regelung ist es möglich, die Sublimation des Borcarbid über einen langen Zeitraum gezielt zu kontrollieren. Nur mit dieser Voraussetzung und einem Fit an die Zählraten war eine vollautomatische Umschaltpunkterkennung und damit Herstellung einer Multischicht umsetzbar. In Abbildung 4.1 ist ein typischer Verlauf der In-Situ Kurve vor und nach der Optimierung der Röntgenreflektometrie dargestellt. Einen weiteren Ein-

fluss auf die Reproduzierbarkeit der Schichtherstellung, neben den diskutierten Punkten, nimmt die Verwendung der anfänglichen nitrierten Titan-Anode ein (vgl. Kapitel 3.2.1). Aufgrund der beiden nahe beieinander liegenden und durch den Proportionalzähler nicht zu trennenden charakteristischen Röntgenlinien (Ti-L und N-K), wiesen mit gleichen Parametern hergestellte Multischichten eine weite Streuung in der Periodendicke auf [110, 124]. Erst durch die Verwendung einer Al_2O_3 -Anode [110] in Verbindung mit der PID-Regelung und einem Levenberg-Marquardt-Algorithmus zum Fitten des sinusförmigen Reflektivitätsverlaufs konnte eine stabile und reproduzierbare Herstellung von periodischen $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischichten gewährleistet werden. In Abbildung 4.2 ist dies anhand mehrerer GIXRR-Messkurven dargestellt.

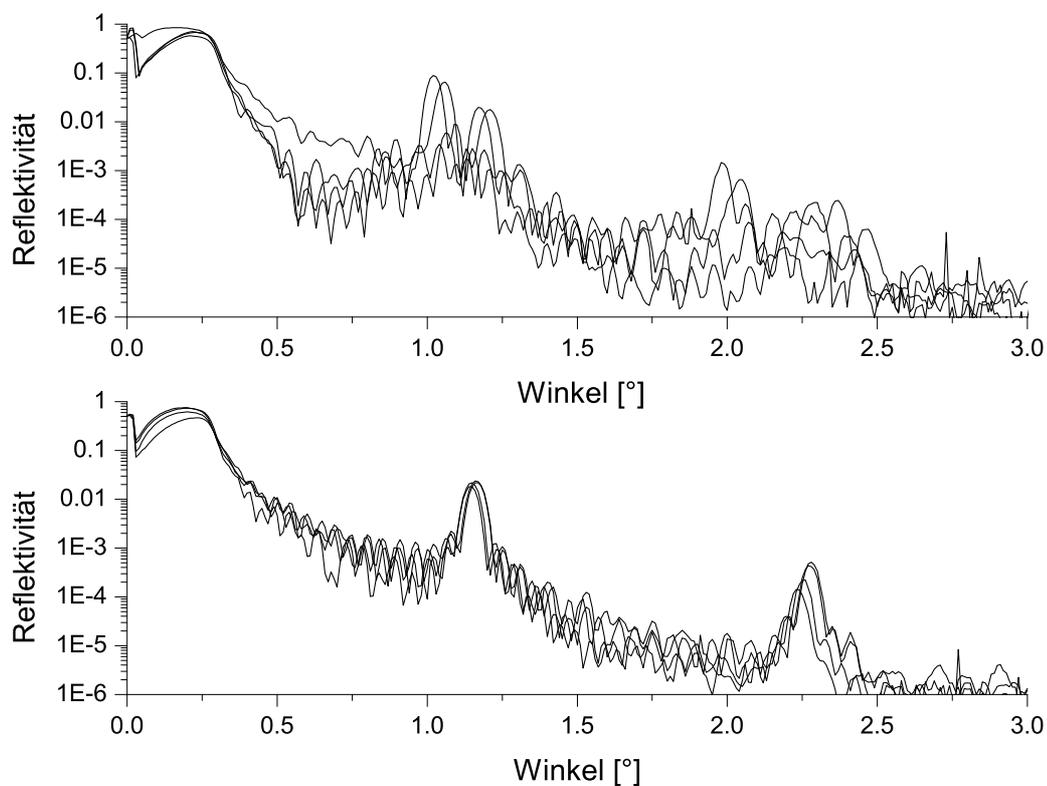


Abbildung 4.2: GIXRR-Messkurven von jeweils 4 Multischichten ($N = 20$) mit gleicher Herstellungsprozedur. Oben: Ohne PID-Regelung, ohne Levenberg-Marquardt-Fit und mit Titan-Anode hergestellt. Unten: Mit PID-Regelung, mit Levenberg-Marquardt-Fit und mit Aluminium-Anode hergestellt

Alle Multischichten wurden mit gleichen Parametern hergestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass bei Verwendung der Titan-Anode zwei Periodendicken auftreten und diese ebenfalls zusätzlich streuen (vgl. Abbildung 4.2 oben). Alle mit der Sauerstofflinie der Aluminium-Anode hergestellten Multischichten weisen nahezu die gleichen Periodendicken auf.

4.2 Ober- und Grenzflächenrauigkeiten

Die Oberflächenrauigkeit der verwendeten Substrate hat einen entscheidenden Einfluss auf die spätere Qualität (Reflektivität) der hergestellten Multischichten. Die Substratoberflächenrauigkeit wirkt sich direkt auf spätere Grenzflächen aus, da sich Rauigkeiten nur durch aufgebrauchte zusätzliche Pufferschichten geringfügig minimieren lassen [31]. Über simulierte und an eine Röntgenreflektometrie-Messung unter streifendem Einfall mit CuK_α -Strahlung angepasste Modelle wurde die Oberflächenrauigkeit bestimmt.

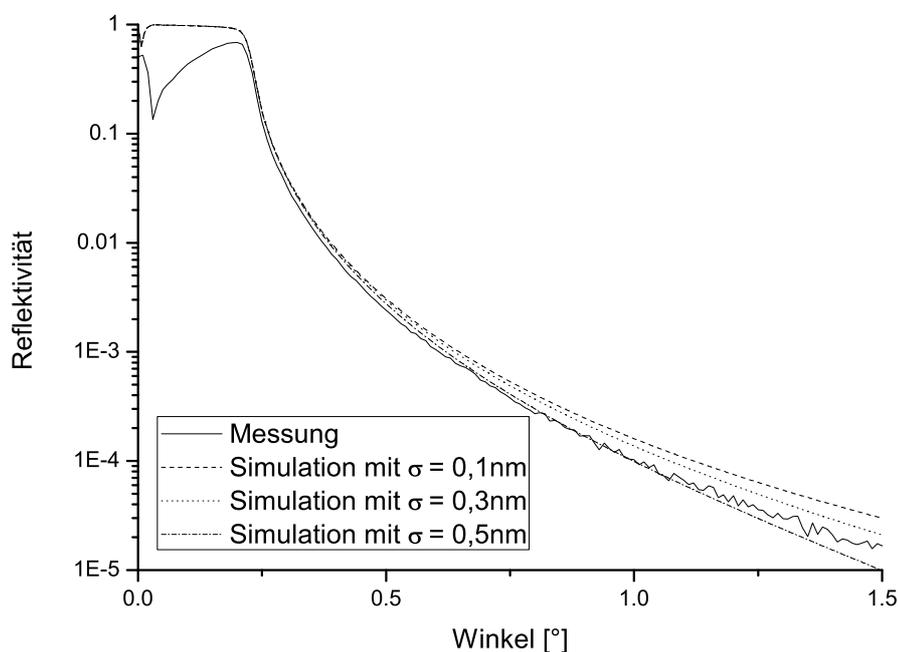


Abbildung 4.3: Röntgenreflektometrie-Messung unter streifendem Einfall an einem der verwendeten Silizium-Wafer und simulierte Modelle zur Beschreibung der Oberflächenrauigkeiten ($\sigma = 0, 1; 0, 3; 0, 5$ nm)

Der Einfluss der natürlichen Oxidschicht (1 – 2 nm) auf der Oberfläche lässt sich durch den geringen optischen Kontrast zwischen Silizium-Wafer und Siliziumoxid nicht berücksichtigen [113]. Für die Reflektivität im Bereich kleiner Winkel ($< 0,23^\circ$, Totalreflexion) ist maßgeblich die makroskopische Beschaffenheit der Probe verantwortlich, da hier noch Anteile des reflektierten Strahls auf dem Weg zum Detektor abgeblockt werden. Daher lassen sich erst Aussagen über die Oberflächenbeschaffenheit aus größeren Winkeln gewinnen. In Abbildung 4.3 sind zusätzlich zu der gemessenen Kurve drei Modelle mit unterschiedlichen Debye-Waller-Faktoren gezeigt. Die präziseste Übereinstimmung ergibt sich für eine Rauigkeit von $\sigma = 0,5$ nm.

Neben der Rauigkeit der Substratoberfläche nehmen die Rauigkeiten an den Grenzflächen

der einzelnen Schichten eine entscheidende Rolle bei den reflektivitätsmindernden Einflüssen ein. Diese Grenzflächenrauigkeiten sind u.a. intrinsisch bedingt aber auch von dem verwendeten Material, Aufdampfparametern, Temperaturen [125, 126] oder Nachbehandlung mit beschleunigten Ionen [29, 31, 74, 127, 128] abhängig (siehe Kapitel 6). Während für Mo/Si-Multischichten an allen Grenzflächen die gleichen Rauigkeiten gemessen wurden ($\sigma \approx 0,25$ nm) [31], wird in der folgenden Abbildung anhand von Simulationen gezeigt, dass dies für La/B₄C-Multischichten nicht zutreffen kann.

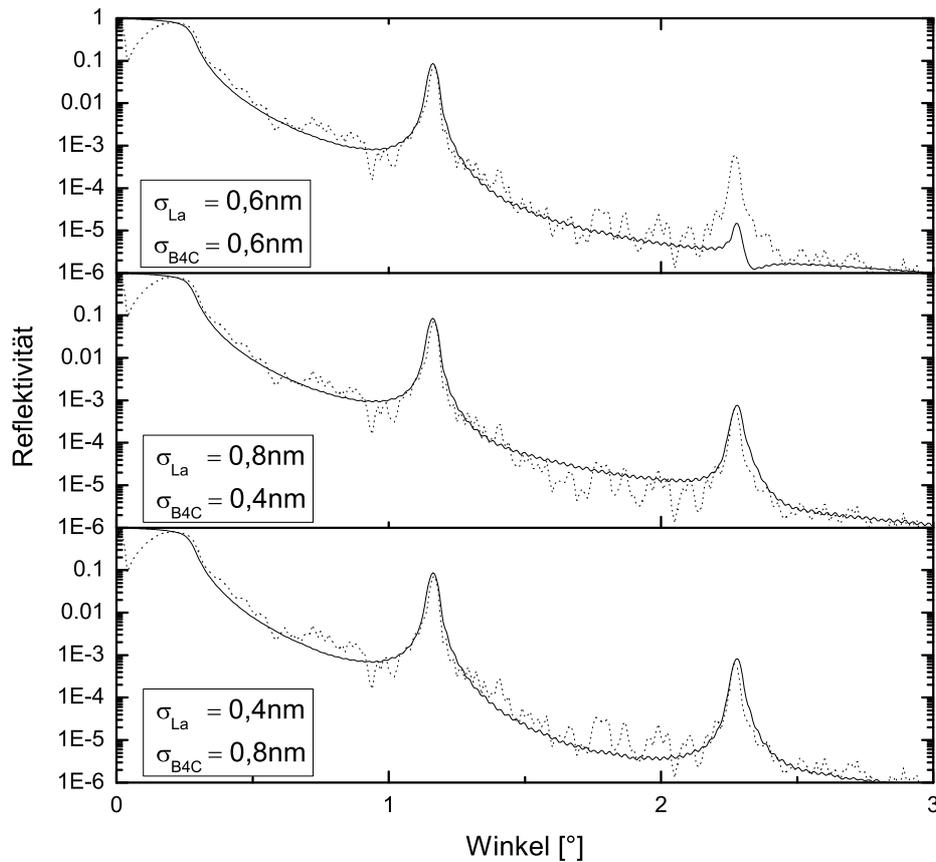


Abbildung 4.4: Simulierte Reflektivitätskurven bei streifendem Einfall für verschiedene Rauigkeiten der Schichten (durchgezogene Linien) und gemessene Kurve (gestrichelte Linien) einer Multischicht mit 40 Perioden ($d = 3,9$ nm; $\Gamma = 0,48$)

Wird für jede Grenzfläche die gleiche Rauigkeit angenommen ($\sigma_{La} = \sigma_{B_4C}$), so wird in der Reflektivitätskurve bei streifendem Einfall immer der zweite Bragg-Peak unterdrückt (vgl. Abbildung 4.4, oben). Da dies experimentell nicht der Fall ist, müssen die einzelnen Schichten mit unterschiedlichen Rauigkeiten aufwachsen, so wie es in Abbildung 4.4, Mitte und Unten, dargestellt ist. Beide simulierten Modelle mit unterschiedlichen Rauigkeiten geben den experimentellen Verlauf gut wieder, so dass eine Aussage über einen Unterschied der Grenzfläche La/B₄C zu B₄C/La nicht möglich ist. Da die simulierten Rauigkeitswerte aus Abbildung 4.4 über alle 40 Perioden gemittelt sind, ist vielmehr davon

auszugehen, dass die Einzelschichten andere Rauigkeiten aufweisen. Dies wird auch aus Abbildung 4.5 deutlich. Die dargestellte Multischicht weist weder an einer bestimmten Grenzfläche (La/B_4C oder B_4C/La) eine erhöhte Rauigkeit, noch eine konstante durch alle Schichten durchgehende gleichmässige Rauigkeit auf. Anhand dieser TEM-Aufnahme (vgl. Abbildung 4.5) wird weiterhin ersichtlich, dass die Rauigkeiten sich nicht nur aus Vermischungen der Schichten ergeben, sondern auch aus nicht planparallelem Aufwachsen der Schichten. Die Lanthan-Schichten erscheinen in diesen Aufnahmen dunkel, da sie aufgrund der hohen Ordnungszahl die Elektronen stärker streuen als das Borcarbid.

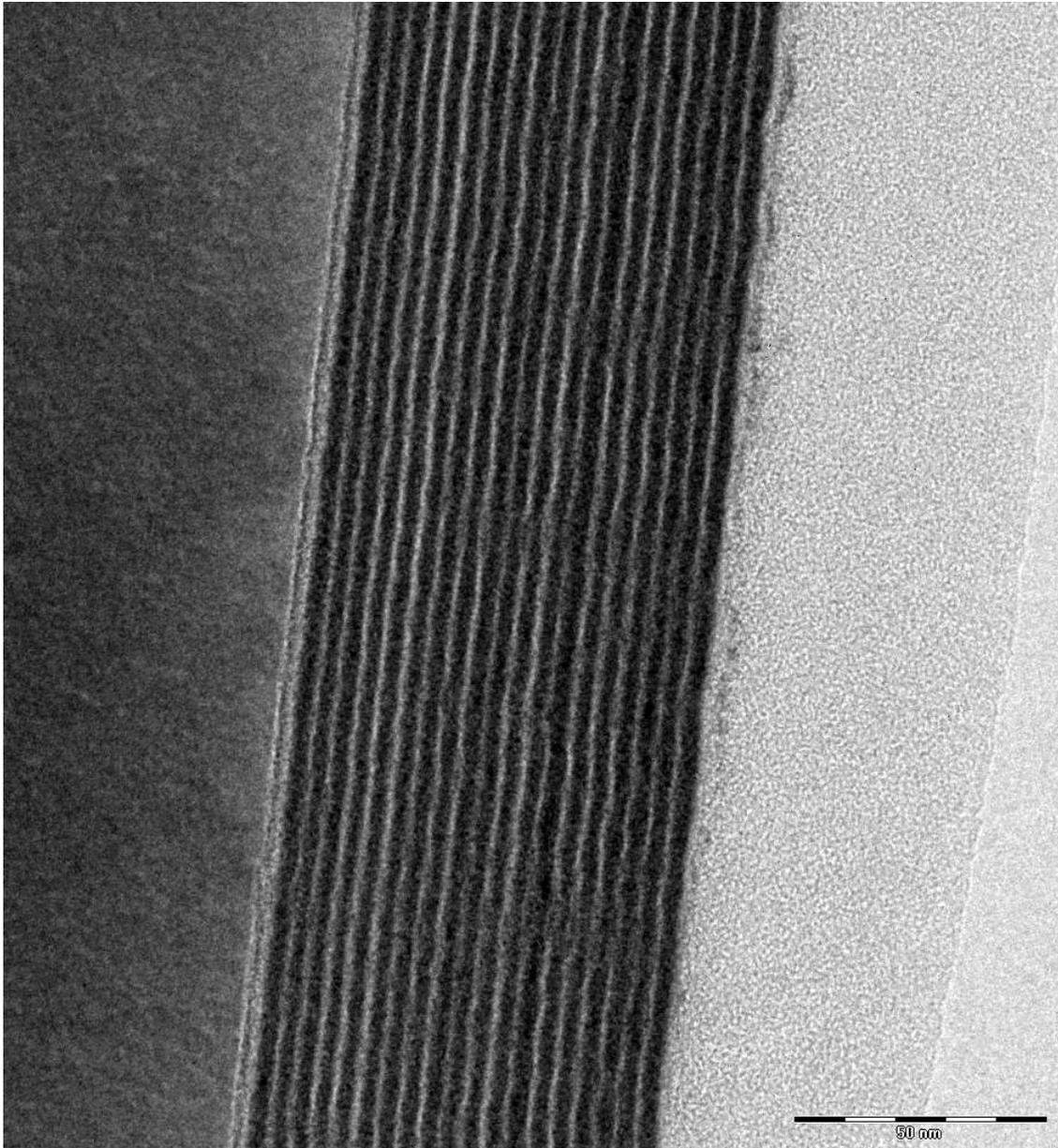


Abbildung 4.5: TEM-Aufnahme einer periodischen La/B_4C -Multischicht ($N = 20$). Links ist der Si-Wafer mit der nativen Oxidschicht zuerkennen, auf dem sich die erste Lanthanschicht (dunkel) befindet. Am Borcarbid werden die Elektronen weniger gestreut, so dass es heller erscheint. Neben der kurzwelligen Rauigkeit (als Unschärfe zu erkennen) erscheint eine langwellige Rauigkeit, die sich durch die Multischicht hindurchzieht [129]

4.3 Analyse der Schichtbeschaffenheit

Wie in Kapitel 3.1.2 beschrieben, sublimiert Borcarbid beim Erhitzen mit dem Elektronenstrahl unterhalb der eigentlichen Schmelztemperatur. In [103] wurde gezeigt, dass dann hauptsächlich Bor verdampft. Aus diesem Grund wurde zur Analyse der Stöchiometrie der Multischichten eine energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX)-Messung an einer für die Transmissionselektronenmikroskopie präparierten Probe vorgenommen [130]. In der folgenden Abbildung ist das EDX-Spektrum einer $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischicht dargestellt.

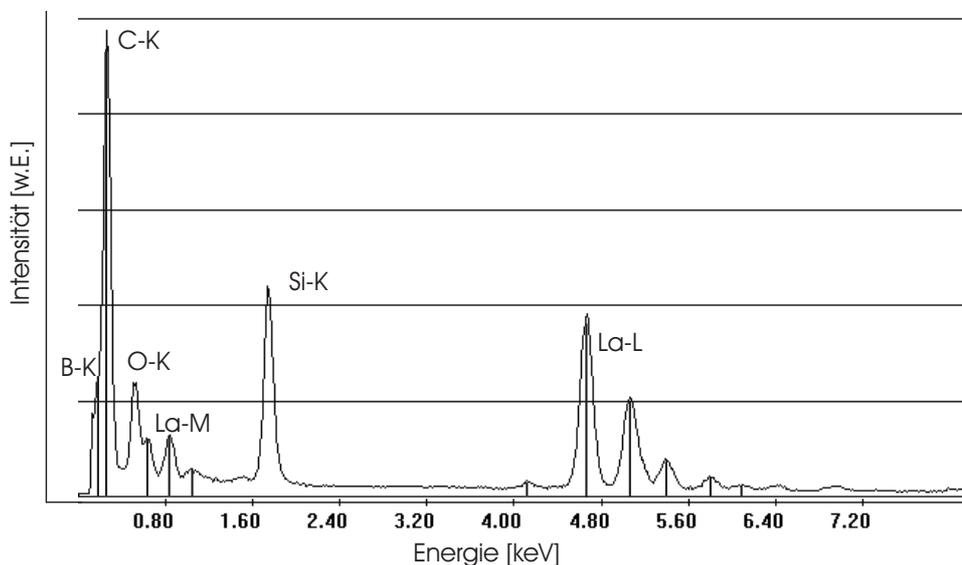


Abbildung 4.6: EDX-Spektrum einer $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ Multischicht. Eingezeichnet ist zusätzlich die Lage der Linien von Bor, Kohlenstoff und Lanthan

Neben den zu erwartenden charakteristischen Linien von Lanthan, Bor und Kohlenstoff treten Linien von Silizium und Sauerstoff auf. Die Silizium-Linie stammt von dem verwendeten Silizium-Wafer. Die Sauerstoff-Linie ist zu intensiv um die ca. 2 nm dicke native SiO_2 -Schicht auf dem Wafer zu repräsentieren. Nach Kapitel 3.1.3 oxidiert Lanthan sehr schnell, so dass davon auszugehen ist, dass der Sauerstoff während der Präparation der Multischichten für die Transmissionselektronenmikroskopie angelagert hat. Eine Berechnung der prozentualen atomaren Anteile aus dem EDX-Spektrum ergibt für Bor $79 \pm 1\%$ und Kohlenstoff $21 \pm 1\%$ [130], so dass ein Verhältnis Bor : Kohlenstoff von 4 : 1 und damit die B_4C -Stöchiometrie gegeben ist.

Zur Untersuchung der Multischichten bezüglich der Verteilung der Elemente im gesamten Stapel wurden Daten mit Hilfe der Sputter-Augerelektronenspektroskopie aufgenommen.

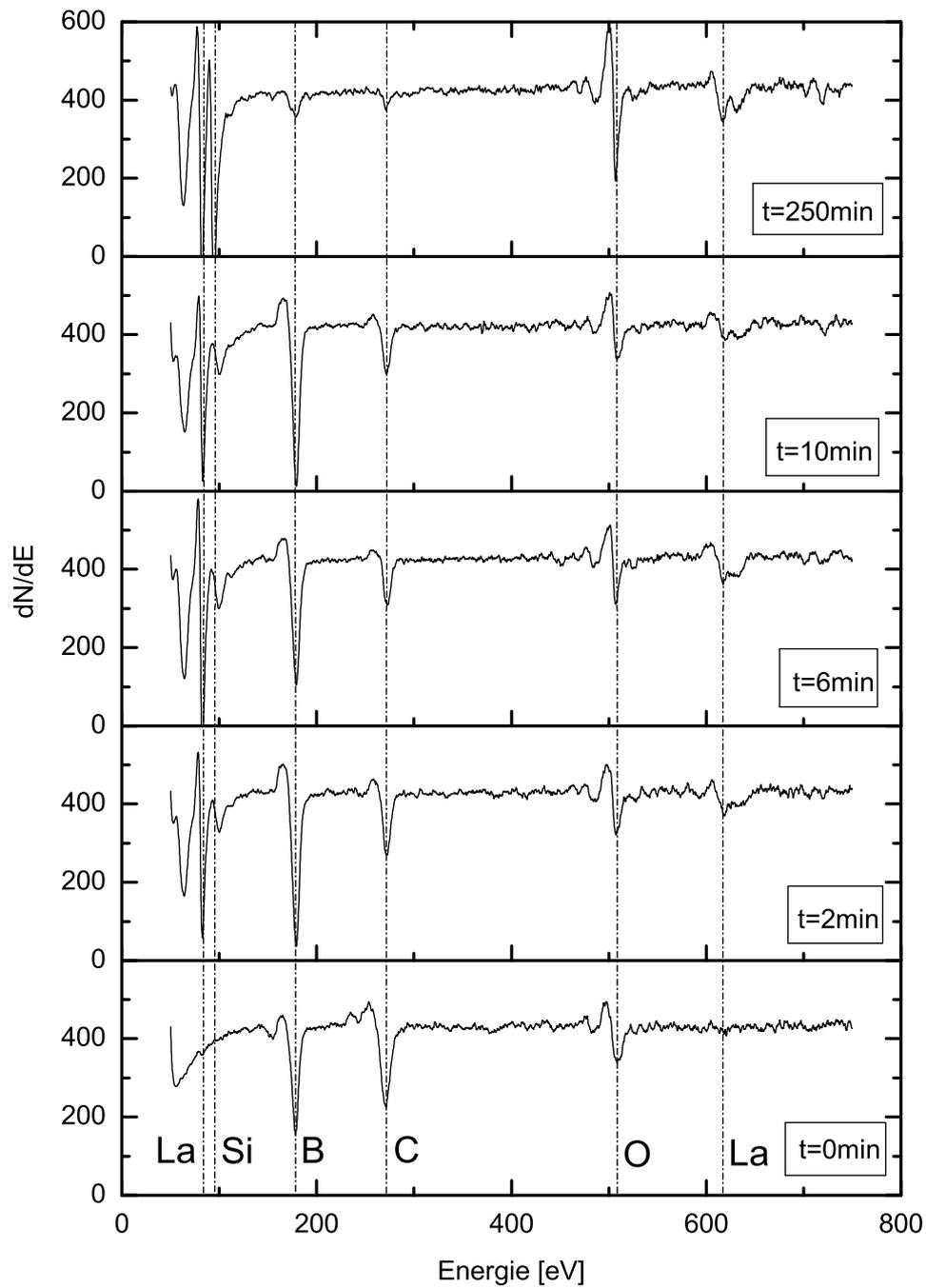


Abbildung 4.7: Augerlektronenspektren einer La/B₄C Multischicht nach verschiedenen Sputterzeiten. Eingezeichnet sind Linien von Bor, Kohlenstoff, Lanthan, Silizium und Sauerstoff

Hierzu wurde abwechselnd ein Augerelektronenspektrum aufgenommen und danach die Oberfläche der Multischicht ($N = 10$) mit Xenon-Ionen gesputtert. Als Sputterzeit wurden $t_s = 120$ s festgelegt, die Energie der Ionen betrug 2 keV und der Einfallswinkel zur Oberfläche betrug 12° . In der Abbildung 4.7 sind ausgewählte Augerelektronenspektren zu den Zeiten $t = 0, 2, 6, 10, 250$ min dargestellt und die Auger-Linien der Elemente sind hervorgehoben. Der Verlauf dieser relativen Anteile der Elemente über den Sputterzeitraum ist in der folgenden Abbildung dargestellt.

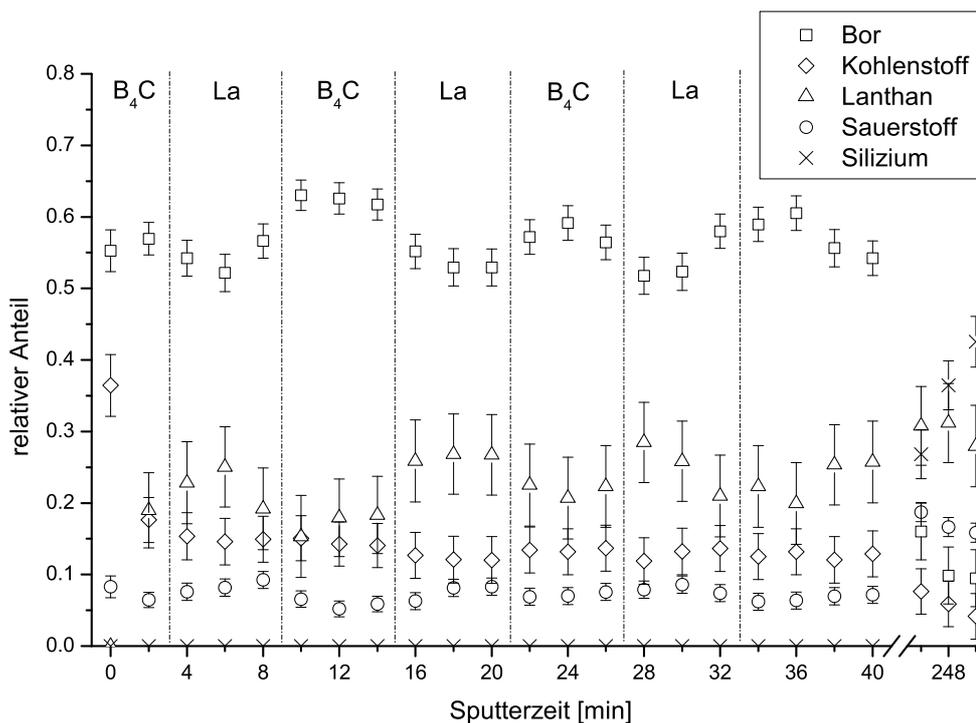


Abbildung 4.8: Relative Anteile der Elemente Bor, Kohlenstoff, Lanthan, Silizium und Sauerstoff in einer La/B_4C Multischicht nach verschiedenen Sputterzeiten

Die relativen Anteile im Augerspektrum vor dem ersten Sputtern zeigen die erwarteten Werte. Auf der Oberfläche der Multischicht hat sich Kohlenstoff und Sauerstoff abgesetzt, Lanthan ist nicht vorhanden. Bereits nach dem ersten Sputter-Zyklus vermischen Absorber und Spacer der Multischicht („Schneepflugeffekt“). Dies ist sowohl durch den Sputtervorgang zu begründen, als auch durch die Sensitivität der Auger-Elektronen-Spektroskopie. Diese erfasst typischerweise die ersten zehn Atomlagen einer Oberfläche, so dass bei den hier verwendeten Multischichtsystemen mit Schichtdicken unterhalb von 2 nm keine reinen Signale einzelner Elemente erwartet werden können. In Abbildung 4.9 ist die Eindringtiefe der Xenon-Ionen (12° , 2 keV) in eine B_4C/La -Multischicht ($d = 3,8$ nm) dargestellt. Es wird deutlich, dass die beschleunigten Ionen bis in die Grenzfläche der beiden Materialien vordringen und dort zu einer Vermischung führen können.

Weiterhin zeigt sich in Abbildung 4.8 ein durchschnittlicher relativer Sauerstoffanteil in

den Borcarbid-Schichten von 5%, in den Lanthan-Schichten von ca. 10%. Ein relativer Anteil von $5 \pm 2\%$ Sauerstoff in Borcarbid-Einzelschichten wurde bereits in [42] gezeigt und auf eingelagerten Sauerstoff während der Präparation des Verdampfermaterials zurückgeführt. Somit steht der Sauerstoff schon während der Verdampfung als Reaktionspartner zur Verfügung. Es ist wahrscheinlich, dass sich in den Schichten geringe Anteile von Bortrioxid (B_2O_3) befinden.

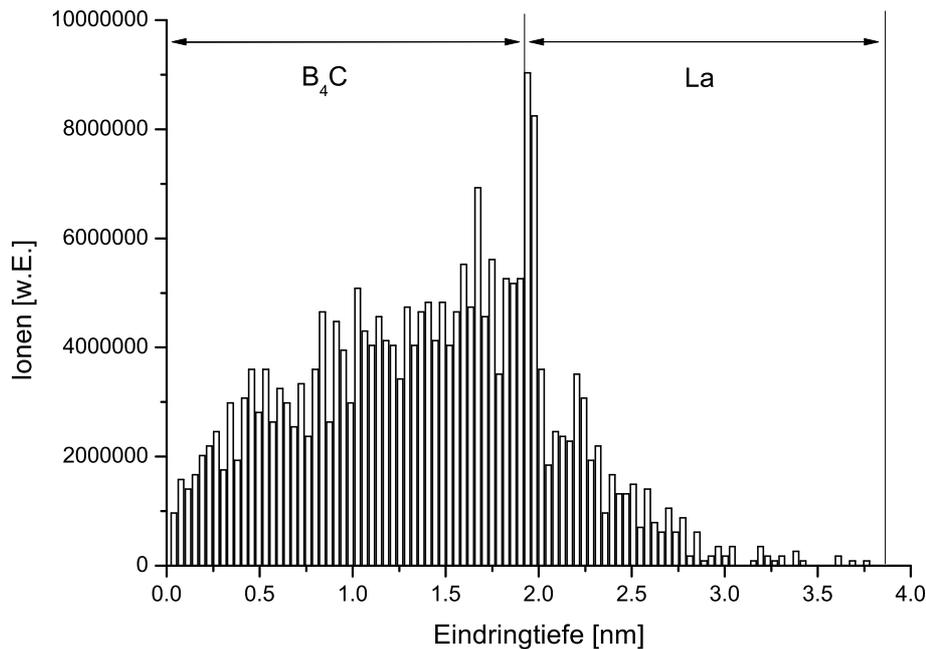


Abbildung 4.9: Statistische Verteilung der Eindringtiefe der beschleunigten Xenon-Ionen auf eine B_4C/La -Doppelschicht simuliert mit [131]

Der erhöhte Sauerstoffgehalt in den Lanthanschichten begründet sich durch die starke Affinität von Lanthan zu Sauerstoff. Auch hier ist davon auszugehen, dass der Sauerstoff bereits während des Verdampfens als Reaktionspartner zur Verfügung stand. Bei Temperaturen über $440^\circ C$ verbrennt Lanthan im Beisein von Sauerstoff zu Lanthanoxid (La_2O_3). Aus dem Verhältnis von Lanthan zu Sauerstoff (ca. 1 : 0,3) wird allerdings ersichtlich, dass sich kein reines Lanthanoxid als Schicht abscheidet. Durch die Anwesenheit von Sauerstoff in beiden Schichten wird der optische Kontrast zwischen diesen minimal vermindert, so dass es zu einer Reflektivitätsminderung des Multischichtstapels kommen kann. Nach einer Sputterzeit von ca. 250 min ist die gesamte Multischicht abgetragen und die Linien des Substrates (Si, SiO_2) treten auf.

5 Herstellung und Charakterisierung von aperiodischen $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischichten

5.1 Simulationen aperiodischer Multischichtsysteme

Wie bereits in Kapitel 2.2.4 beschrieben, bieten aperiodische Multischichtsysteme bei Anwendungen ohne alleinigen Schwerpunkt auf eine maximale Peak-Reflektivität eine gute Möglichkeit, Spiegel auch in Hinblick auf das Phasenverhalten oder die reflektierte spektrale Bandbreite zu optimieren. Mit Hilfe des in Kapitel 2.4 vorgestellten genetischen Algorithmus lassen sich verschiedenste Schichtstapel mit dementsprechend angepassten Reflektivitätsprofilen simulieren. In Abbildung 5.1 ist ein Schichtstapel dargestellt, welcher auf eine erhöhte Bandbreite und einen linearen Phasenverlauf optimiert wurde.

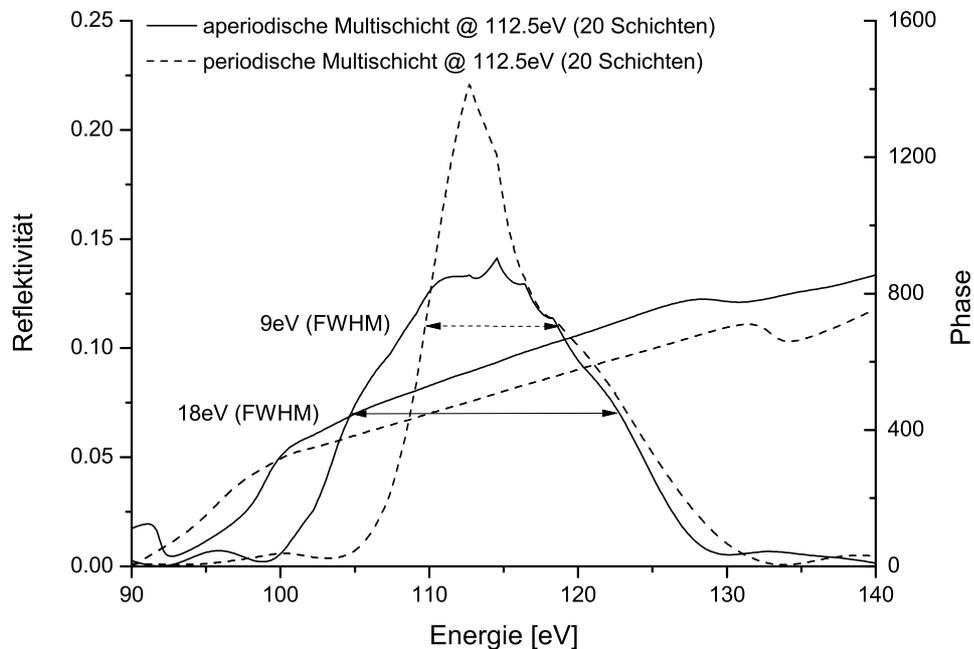


Abbildung 5.1: Simulation einer periodischen und einer aperiodischen, auf Bandbreite und lineare Phase optimierter Multischicht

Bei gleicher Schichtanzahl lässt sich so die Bandbreite um den Faktor 2 erhöhen. Anhand dieses Modells soll im Folgenden gezeigt werden, dass eine Umsetzung von aperiodischen La/B_4C -Multischichten möglich ist. In Tabelle 5.1 sind die berechneten einzelnen Schichtdicken jeder Doppelschicht aufgeführt.

Tabelle 5.1: Berechnete Schichtdicken in nm für die ideale aperiodische Multischicht aus Abbildung 5.1

Periode	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
La	1.92	2.64	2.42	2.60	2.66	2.59	2.46	2.28	2.03	1.62
B_4C	17.99	3.09	16.55	3.12	2.98	3.02	3.13	3.30	3.58	4.67

Der Einfluss von Schichtdickenfehlern auf die Eigenschaften einer aperiodischen Multischicht, also Reflektivität, Bandbreite und Phasenverlauf, ist größer als bei periodischen Systemen. Während bei diesen durch die verwendete In-Situ Kontrolle kleinere Schichtdickenfehler durch die nächsten Schichten kompensiert werden, trägt bei aperiodischen Multischichten jeder Schichtdickenfehler zu einer Verformung oder Minderung des Reflektivitätsprofils zu. Dies wird noch weiter verstärkt durch die geringe Schichtanzahl von aperiodischen Systemen. Diese erreichen in der Regel die besten Resultate bei 10 bis 40 Schichten [55].

Der genetische Algorithmus erlaubt alle möglichen Variationen der theoretischen Schichtdicken, welche aus experimentellen Gründen aber eingrenzt werden. Hier bietet sich als Untergrenze 1 nm an, um nicht in die Größenordnung der Rauigkeit zu kommen.

5.2 Zugang zu einzelnen Schichtdicken

Den einzigen Zugang zu einzelnen Schichtdicken einer Multischicht bietet die Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall (Kapitel 3.3.1) in Verbindung mit dem genetischen Algorithmus (Kapitel 2.4) zur Bestimmung der Schichtparameter (Schichtdicken und Rauigkeiten). Eine möglichst exakte Bestimmung der einzelnen Schichtdicken ist für die Entwicklung und Charakterisierung von aperiodischen Multischichten obligatorisch. Da sich einzelne Fehler während der Herstellung signifikant auf die resultierende Reflektivität auswirken, können diese durch eine Ex-Situ Charakterisierung bestimmt und in folgenden Beschichtungsverfahren minimiert werden. Während aus TEM-Abbildungen nur die Parameter von Doppelschichten ausreichend genau extrahiert werden können, siehe Kapitel 3.3.3, liefert der Fit von Messungen mit Röntgenreflektometrie ausreichend genaue Werte für jede Einzelschicht eines Multischichtsystems. Dies wird im Folgenden anhand zweier Multischichten gezeigt. Bei diesen werden die Einzelschichtdicken über den genetischen Algorithmus aus den GIXRR-Daten extrahiert und aus diesen Einzelschichten wird dann ein Reflektivitätsprofil berechnet. Diese Reflektivitätskurve wird mit Messungen am BESSY verglichen.

Korrelation zwischen Daten aus GIXRR und Querschnitten von TEM

Wie bereits beschrieben, lassen sich aus Querschnittsaufnahmen einer Multischicht nur die Schichtdicken einer Doppelschicht (Periode) ausreichend genau bestimmen. Im Folgenden wurde eine aperiodische Multischicht ($N = 12$) mit Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall vermessen und die aus dem Fit gewonnenen Periodendicken mit TEM-Aufnahmen verglichen. In Abbildung 5.2 sind sowohl die TEM-Aufnahme dargestellt, als auch die aus dieser Aufnahme extrahierten Doppelschichtdicken. Dazu wurde der horizontale Intensitätsverlauf über alle vertikalen Pixel gemittelt. Durch die vorhandenen Rauigkeiten zwischen den einzelnen Schichten zeigen sich keine unendlich steilen Anstiege in den Grenzflächen. Dieser Anstieg ist in gewisser Weise ein Maß für die Grenzflächenrauigkeit, kann allerdings aufgrund der Präparation der Multischichten für die Transmissionselektronenmikroskopie nicht als absoluter Wert ausgelesen werden. Bei der Präparation kommen sowohl Borcarbid als auch Lanthan mit Sauerstoff und Wasser in Verbindung, so dass eine Beeinflussung über diese Elemente wahrscheinlich ist. Aus diesem Grund wurden die Doppelschichtdicken jeweils an der Hälfte der Amplitude (siehe Abbildung 5.2) abgelesen. Diese Daten sind in Tabelle 6.2 zusammengefasst.

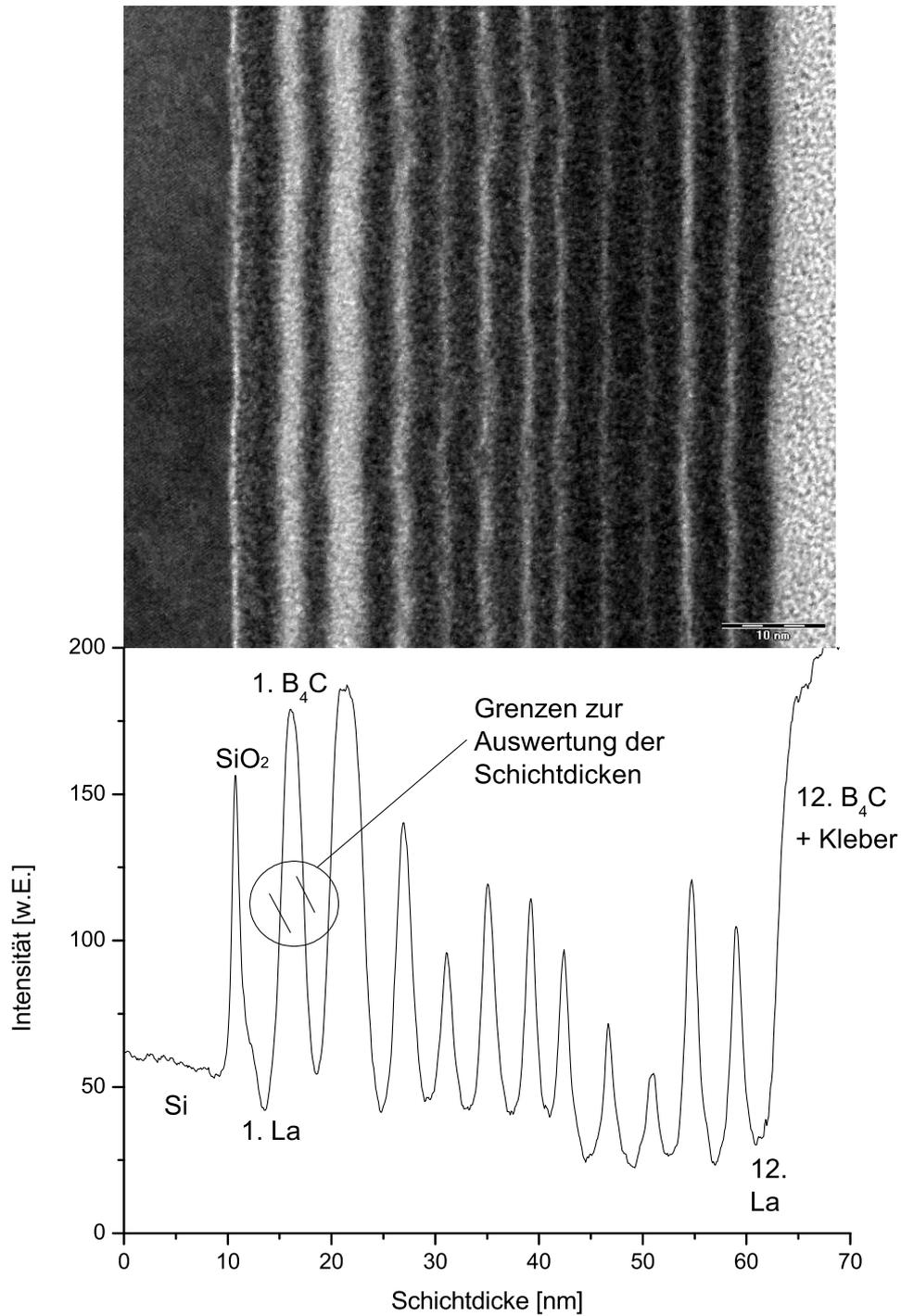


Abbildung 5.2: Oben: TEM-Aufnahme einer aperiodischen La/B_4C -Multischicht mit 24 Schichten. Unten: Aus der TEM-Aufnahme extrahierte und über alle Zeilen gemittelte Pixel-Intensität der oberen Abbildung aufgetragen über die Schichtdicke

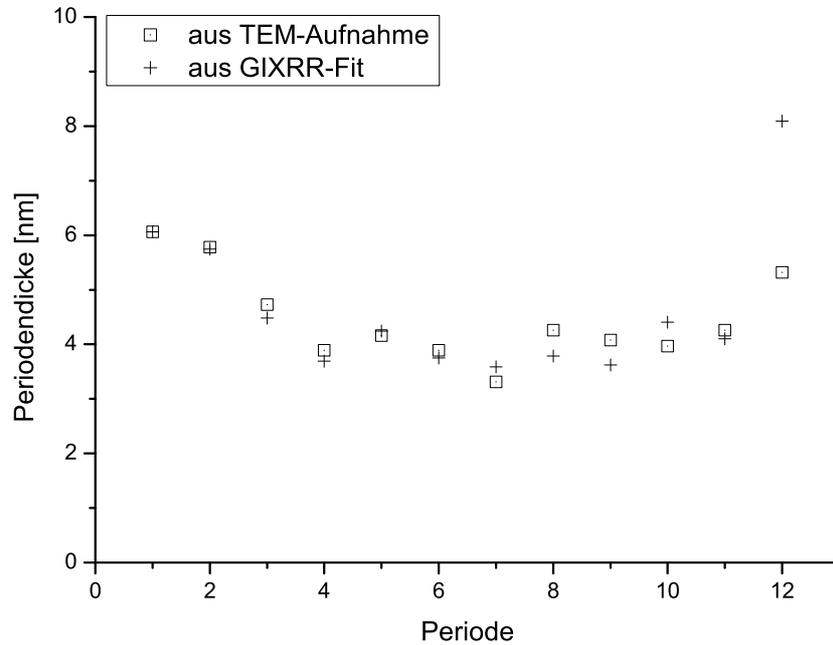


Abbildung 5.3: Doppelschichtdicken aus TEM-Aufnahme und GIXRR-Fit aufgetragen über die Periode. Die mittlere Abweichung der Fits von 2% liegt in der Größenordnung des quadratischen Symbols

Tabelle 5.2: Doppelschichtdicken bestimmt aus der TEM-Aufnahme und aus dem Fit der GIXRR-Kurve

Periode	d_1 [nm] aus TEM	d_2 [nm] aus Fit	$\Delta d = d_2 - d_1 $ [nm]	$\Delta d/d_2$
1	6,06	6,06	0,00	0,000
2	5,78	5,75	0,03	0,005
3	4,73	4,48	0,25	0,056
4	3,89	3,70	0,19	0,051
5	4,16	4,24	0,08	0,002
6	3,89	3,75	0,14	0,037
7	3,31	3,59	0,28	0,078
8	4,26	3,78	0,48	0,127
9	4,08	3,62	0,46	0,127
10	3,97	4,41	0,44	0,100
11	4,26	4,10	0,16	0,039
12	5,32	8,09	(2,77)	(0,342)
			$\varnothing 0,23$	$\varnothing 0,057$

Durch die Präparation der Multischicht für die Transmissionselektronenmikroskopie lässt sich die letzte Borcarbid-Schicht nicht mehr in der Aufnahme von dem verwendeten Kleber unterscheiden. Aus diesem Grund wird die letzte Doppelschicht nicht in die Auswertung hineinbezogen. Die mittlere absolute Abweichung der berechneten Doppelschichtdicke d_2 von der bestimmten Doppelschichtdicke d_1 beträgt 0,23 nm, dies entspricht einer relativen Abweichung von durchschnittlich 5,7%.

Korrelation zwischen Daten aus GIXRR und Messungen am BESSY

Eine weitere Überprüfung für die Genauigkeit der gefitteten Daten aus GIXRR liefern Vergleiche der berechneten Reflektivitäten aus gefitteten Schichtparametern und Messungen der Reflektivität an einer Strahlquelle im XUV-Bereich. Dies wird im Folgenden sowohl für eine periodische als auch für eine aperiodische Multischicht gezeigt. In Abbildung 5.4 ist eine GIXRR-Kurve einer periodischen Multischicht und der simulierte Verlauf der gefitteten Schichtparameter dargestellt. Die vermessene Reflektivität der Multischicht beträgt $R_{Bessy} = 3,04\%$. Die durch den genetischen Algorithmus extrahierten Schichtdicken und Rauigkeiten aus GIXRR ergeben eine Reflektivität von $R_{Fit} = 2,88\%$. Dies ergibt eine absolute Differenz von $\Delta R = 0,16\%$, bezogen auf R_{Bessy} bedeutet dies eine relative Abweichung von $\Delta R/R_{Bessy} = 5,3\%$.

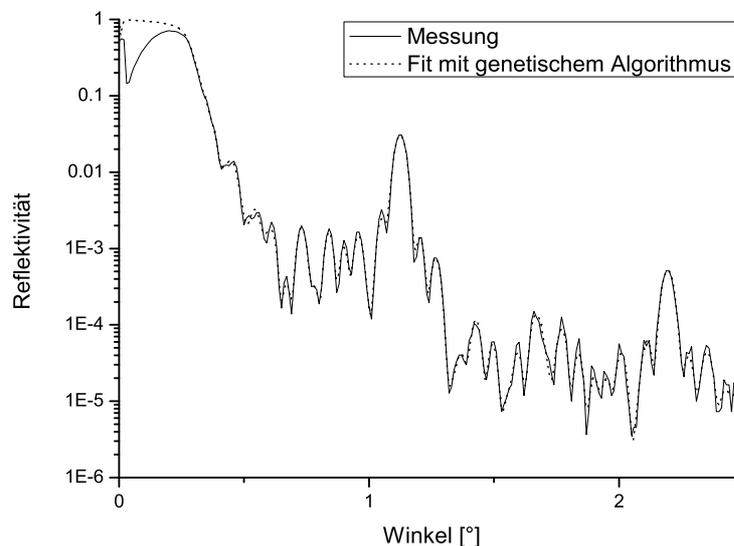


Abbildung 5.4: Reflektivitätskurve bei streifendem Einfall mit harter Röntgenstrahlung sowie mit dem genetischen Algorithmus angefittete Kurve einer periodischen Multischicht

In Abbildung 5.5 sind die beiden Reflektivitätskurven dargestellt. Die absolute Differenz von $\Delta R = 0,16\%$ ist durch mehrere Messfehler bedingt. Zum einen werden Messungen im

XUV-Bereich am BESSY mit einem relativen Fehler von 2% angegeben [116], zum anderen ist auch die Bestimmung der einzelnen Schichtdicken durch den genetischen Algorithmus einer mittleren Abweichung von 2% versehen [55]. Diese wird zusätzlich durch statistische Schwankungen und somit einem Fehler in der Messung der GIXRR-Kurve beeinflusst (vgl. Kapitel 3.4.2). Durch Summation dieser Fehlerquellen lässt sich diese Abweichung beider Reflektivitäten von $\Delta R = 0,16\%$ erklären.

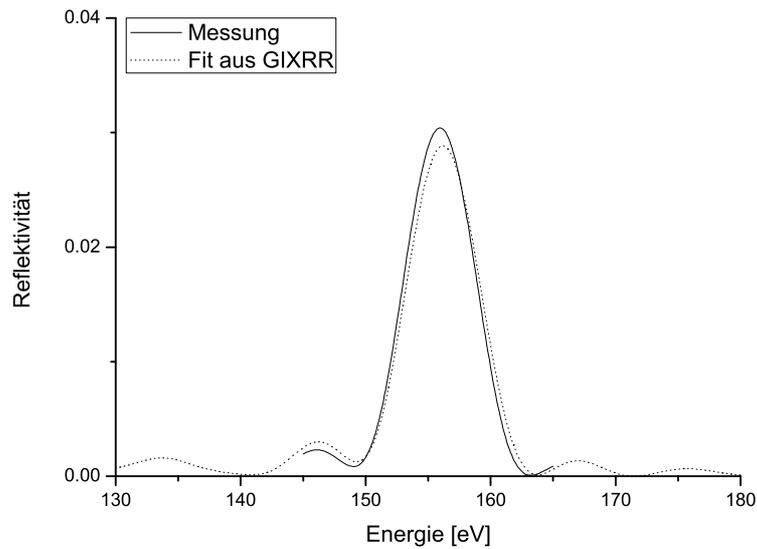


Abbildung 5.5: Reflektivitäten einer periodischen Multischicht mit $N = 20$: Reflektivität berechnet aus den bestimmten Schichtdicken durch den genetischen Algorithmus und GIXRR-Daten und Reflektivität gemessen am BESSY

Das diese Korrelation auch für aperiodische Systeme hergestellt werden kann, zeigen Abbildung 5.6 und 5.7. In Abbildung 5.6 ist die GIXRR-Kurve einer aperiodischen Multischicht und der dazugehörige Fit dargestellt. Der typische Intensitätsverlauf in Abhängigkeit vom Glanzwinkel mit einem verbreiterten ersten und unterdrücktem zweiten Bragg-Maximum wird vom Fit sehr gut angepasst. Die aus den berechneten Schichtdicken simulierte Reflektivität stimmt ebenfalls in den bereits angegebenen Fehlergrenzen gut für Energien > 120 eV mit den Messungen am BESSY überein. Die gemessene Reflektivität beträgt $R_{Bessy} = 0,82\%$, die aus dem Fit bestimmte Reflektivität $R_{Fit} = 0,85\%$. Die Diskrepanzen für den Energiebereich < 120 eV werden in Kapitel 6.4 genauer betrachtet.

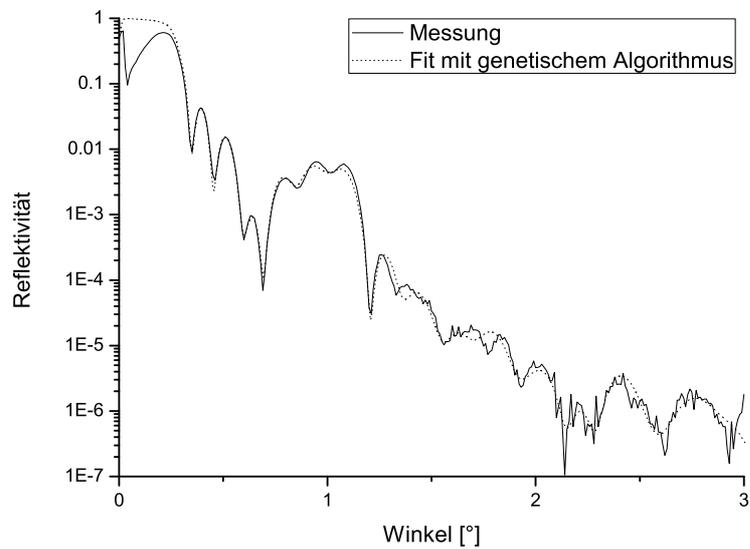


Abbildung 5.6: Reflektivitätskurve bei streifendem Einfall mit harter Röntgenstrahlung sowie mit dem genetischen Algorithmus angefittete Kurve einer aperiodischen Multischicht

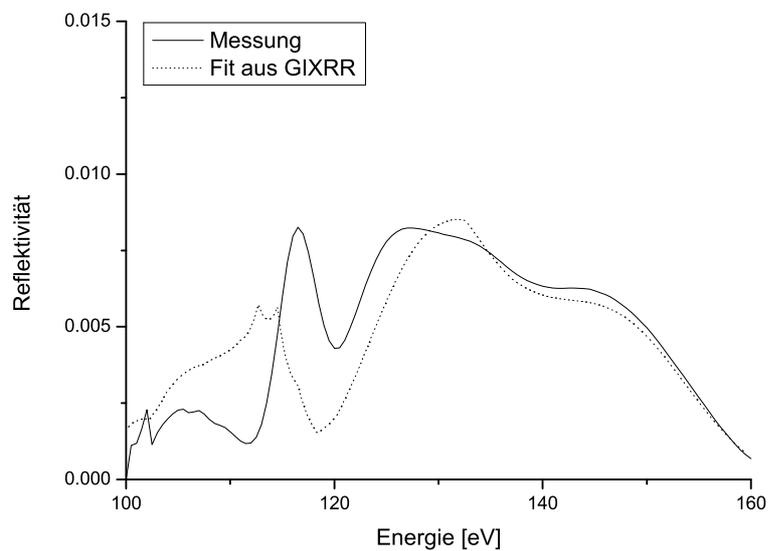


Abbildung 5.7: Reflektivitäten einer aperiodischen Multischicht mit $N = 6$: Reflektivität berechnet aus den bestimmten Schichtdicken durch den genetischen Algorithmus und GIXRR-Daten und Reflektivität gemessen am BESSY

5.3 Evaluierung der optischen Konstanten

Die Kenntnis des komplexen Brechungsindex $\tilde{n} = n + ik$ der verwendeten Materialien ist essentiell, um mit Hilfe der In-situ-Ellipsometrie eine Schichtdickenkontrolle zu gewährleisten. Neben der bekannten Dispersion, die hier aufgrund nur einer verwendeten Wellenlänge nicht weiter betrachtet werden soll, ist der komplexe Brechungsindex während des Wachstums dünner Schichten auch von Parametern wie Temperatur, Wachstumsrate oder Art des Wachstums abhängig. Hier treten signifikante Unterschiede zu den Werten von dicken Schichten („bulk-Schichten“) auf [132, 133].

Um die Brechungsindizes der beiden verwendeten Materialien zu bestimmen, wurde jeweils einzelne Schichten von Lanthan und Borcarbid mit dem Schwerpunkt auf einer möglichst konstanten Aufdampfprate von $ds/dt \approx 4$ nm/min hergestellt. In Abbildung 5.8 sind die Verläufe von Ψ und Δ der beiden Einzelschichten über die Zeit dargestellt.

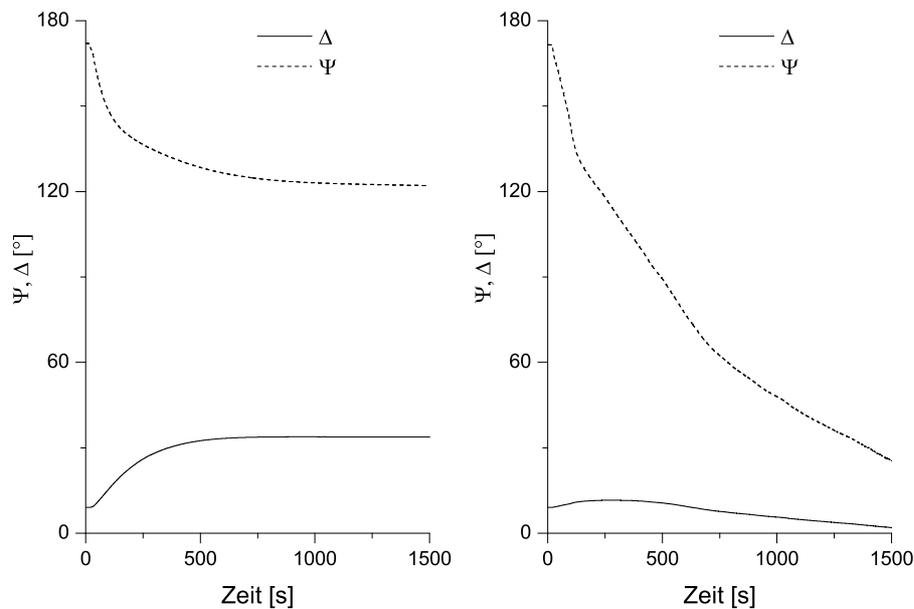


Abbildung 5.8: Zeitlicher Verlauf von Ψ und Δ während des Aufbringens einer Lanthan- (links) und einer Borcarbid-Einzelschicht (rechts) auf Silizium

Um die freien Parameter auf n und k (beide Medien sind nicht transparent bei $\lambda = 632,8$ nm) zu beschränken, wurden nach der Beschichtung die Einzelschichten mit einem Profilometer vermessen und somit die Schichtdicke respektive die Aufdampfprate bestimmt, welche in einer zeitabhängigen Ψ, Δ -Messung ebenfalls zu den freien Parametern gehört (die absolute Schichtdicke von Lanthan kann nur unter Vorbehalt verwendet werden, da Lanthan zügig an Luft oxidiert). Somit können aus den ellipsometrischen Konstanten Ψ und Δ die beiden unbekannt Parameter n und k bestimmt werden. Es ist nicht möglich, den vollständigen Verlauf in Abbildung 5.8 mit einem konstantem Brechungs-

index \tilde{n} zu modellieren. Daher wurde der dargestellte zeitliche Verlauf in Segmente mit unterschiedlichen Brechungsindizes aufgeteilt und ein entsprechendes Modell mit Hilfe des Levenberg-Marquardt-Algorithmus angepasst. Es ergeben sich die in Abbildung 5.9 und 5.10 dargestellten Abhängigkeiten $\tilde{n} = f(d)$ mit der Schichtdicke d .

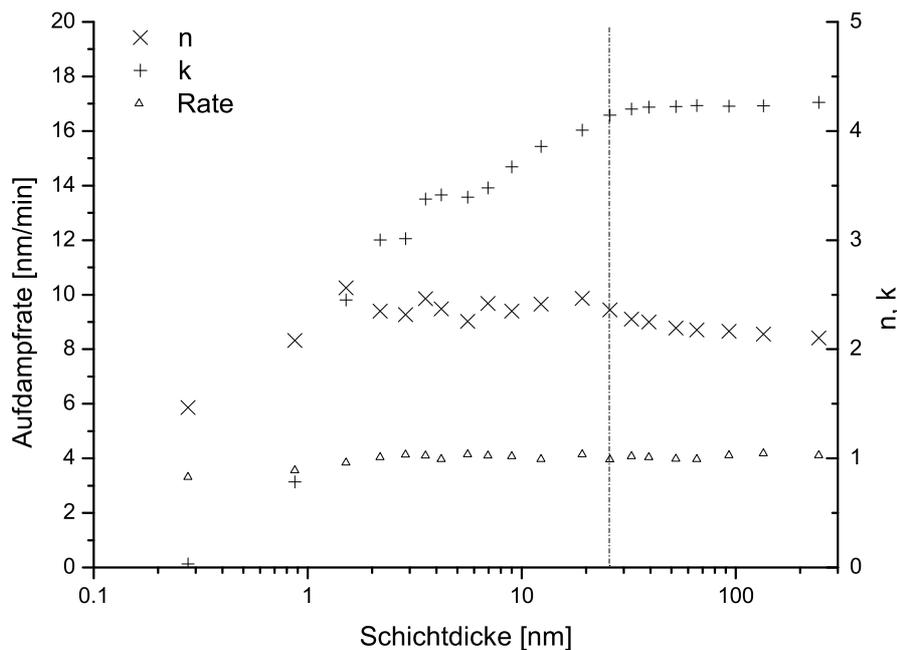


Abbildung 5.9: Abhängigkeit des komplexen Brechungsindex von Lanthan von der Schichtdicke und Wachstumsrate

Ein konstanter Brechungsindex stellt sich erst bei einer Schichtdicke von ca. 20 bis 30 nm ein. Diese Korrelation wurde ebenfalls an dünnen Schichten aus Titanoxid (TiO₂) [133] gezeigt. Ab dieser Schichtdicke kann man von optischen Konstanten des Bulk-Materials sprechen. Der komplexe Brechungsindex von Lanthan für ausreichend dicke Schichten bei einer Wellenlänge von $\lambda = 632,8$ nm lässt sich dann über einen linearen, konstanten Fit ab einer Schichtdicke von 30 nm folgendermaßen beschreiben:

$$\tilde{n}_{La} = 2,24(\pm 0,04) + 4,19(\pm 0,03)i \quad (5.1)$$

Aus der Literatur sind für polykristallines Lanthan folgende Werte bekannt [105, Seite 338]:

λ in nm	800	700	600	500
n	1,42	1,31	1,20	1,09
k	2,96	2,70	2,44	2,23.

Ein exakter Wert für $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ ist nicht gegeben, allerdings zeigt diese Tendenz, dass sich die Werte von dem hier aufgetragenen Lanthan deutlich von polykristallinem Lanthan unterscheiden. Dementsprechend ist ein polykristallines Wachstum während der Beschichtung auszuschließen. Für dünne Schichten aufgebracht unter Vakuumbedingungen sind folgende Werte ermittelt worden [105, Seite 338]:

λ in nm	578,0	546,1	435,8	404,6
n	1,74	1,79	1,35	1,34
k	3,47	3,43	2,49	2,33.

Wird diese Tendenz zu $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ fortgesetzt, so bestätigt sich der Wert für die ermittelte Absorption k aus Gleichung 5.1. Für den realen Teil des Brechungsindex kann keine Tendenz extrahiert werden.

In der folgenden Abbildung ist der Zusammenhang $\tilde{n} = f(d)$ für Borcarbid dargestellt. Die inkonstanten Aufdampfraten während des Beschichtens zeigen sich in der Variation der gefitteten Raten.

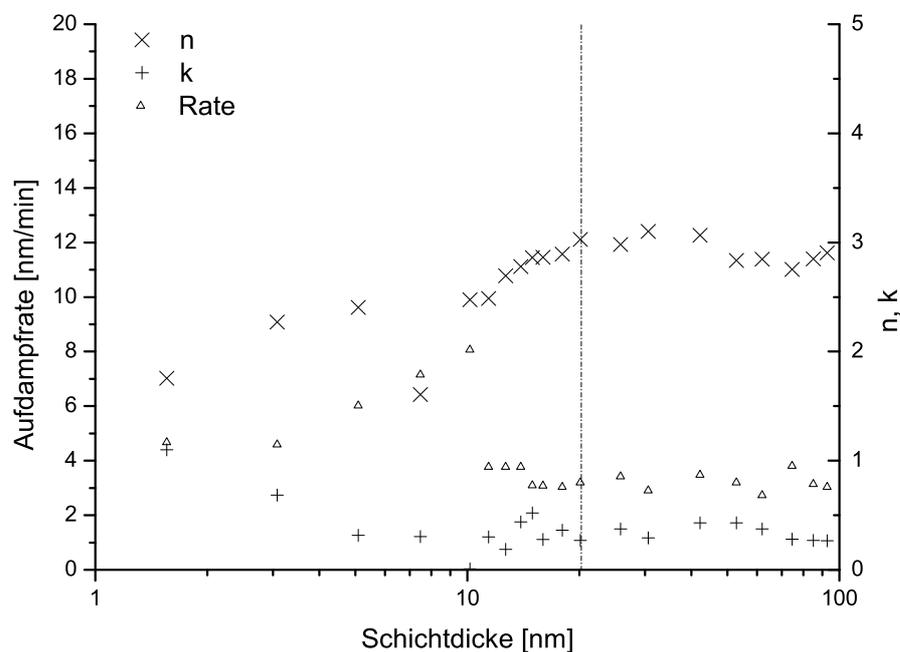


Abbildung 5.10: Abhängigkeit des komplexen Brechungsindex von Borcarbid von der Schichtdicke und Wachstumsrate

Der komplexe Brechungsindex von Borcarbid lässt sich somit für Schichten über $\approx 20 \text{ nm}$ zu

$$\tilde{n}_{B_4C} = 2,84(\pm 0,04) + 0,33(\pm 0,02)i \quad (5.2)$$

bestimmen. Diese Werte stimmen gut mit anderen Ex-Situ Messungen überein, in denen der Brechungsindex zu $\tilde{n}_{B_4C} = 2,8 + 0,3i$ berechnet wurde [134].

Diese Verläufe der komplexen Brechungsindizes müssen für die Erstellung von Modellen für die In-Situ Ellipsometrie berücksichtigt werden. So wird der Brechungsindex je nach herzustellender Schichtdicke der Multischicht angepasst.

Durch diese Messungen wurde gezeigt, dass sich das Wachstum einer Einzelschicht nicht als Monolage für Monolage auf dem Substrat beschreiben lässt. In diesem Fall würden sich die optischen Konstanten in einem entsprechenden Modell bereits bei geringen Schichtdicken wie bulk-Material verhalten. Durch den annähernd linearen Anstieg der Schichtdicke (konstante Aufdampftrate), aber einem starken Anstieg im Brechungsindex während der ersten 10 nm, lässt sich eine Verdichtung der Schicht während des Wachstums vermuten, da ein hoher Brechungsindex n in der Regel mit der Dichte des Materials korreliert. Analog dem Wachstum von dünnen TiO_2 -Schichten entsteht scheinbar aus einem Insel-Wachstum auf dem Silizium-Substrat somit ein dicht gepackter Film während der Beschichtung [133]. Dieser Zusammenhang beeinflusst ebenfalls die Oberflächenstrukturen der entstehenden Schichten einer Multischicht. Es ist davon auszugehen, dass die hergestellten Schichten, welche im Bereich von ca. 1,7 – 3 nm liegen, durch dieses Insel-Wachstum noch keine Eigenschaften von vollständig dicht gepackten bulk-Schichten erreichen. Daher werden im Folgenden Modelle beschrieben, um dieses Verhalten des komplexen Brechungsindexes auch für dünne Schichten und sich bildende Rauigkeiten und Mischschichten zu simulieren.

5.4 Modelle für die In-situ-Ellipsometrie

Wie bereits in Kapitel 5.3 beschrieben, ist Ellipsometrie nicht nur sensitiv auf Schichtdicken und optische Konstanten, auch Rauigkeiten und Mischschichten haben großen Einfluss auf die korrekte Auswertung der Messwerte. In Abbildung 5.11 ist ein idealisiertes Modell einer Lanthan-Borcarbid-Multischicht dem realen Verlauf während einer Beschichtung gegenübergestellt.

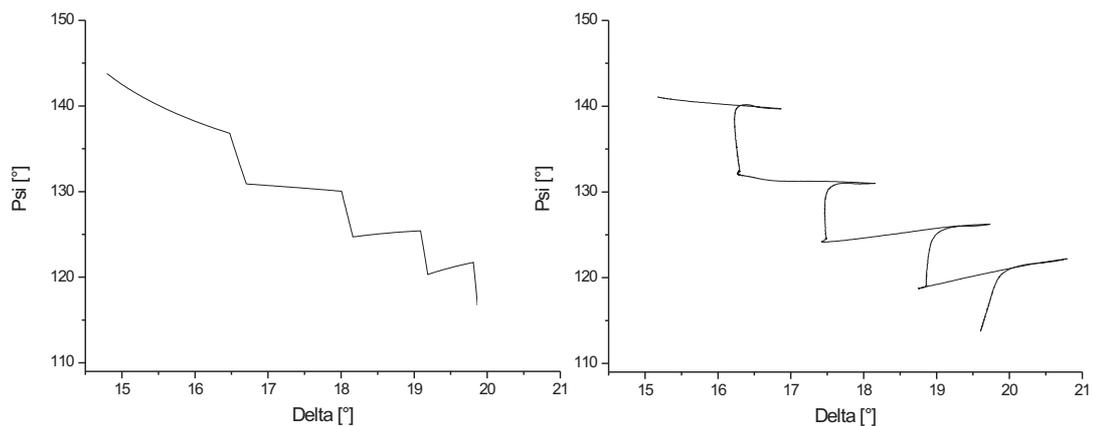


Abbildung 5.11: Verlauf der ellipsometrischen Parameter Ψ und Δ im theoretischen Modell (links) und im Experiment (rechts)

Mit Hilfe solcher einfachen Modelle lassen sich Multischichten mit geringer Periodenzahl reproduzierbar herstellen. Für eine hohe Anzahl von Perioden oder aperiodische Multischichten (siehe Kapitel 5.1) müssen die Modelle allerdings angepasst werden. Insbesondere die Auswirkungen von Oberflächenrauigkeiten und die dadurch entstehenden Bereiche der Zwischen- bzw. Mischschichten wirken sich auf den Verlauf von Ψ und Δ aus. Mit Hilfe der in Kapitel 2.3.3 vorgestellten Approximationen lassen sich sogenannte effektive Medien simulieren, welche diese Rauigkeiten und Mischschichten ausreichend genau reproduzieren. Abbildung 5.12 zeigt ein Modell für das Wachstum von La/B₄C-Multischichten mit einbezogenen Rauigkeiten und Mischschichten. Insbesondere das *Bruggeman-Model* mit simuliertem Aufwachsen einer Lanthan-Luft-Schicht (50:50) während der Lanthan-Beschichtung, ersetzen dieser durch eine Lanthan-Borcarbid-Schicht (50:50) bei Beginn der Borcarbid-Beschichtung und anschließendem Aufwachsen einer Borcarbid-Luft-Schicht (50:50) beschreibt den experimentellen Verlauf ausreichend genau. In Abbildung 5.13 ist dies für einen Wechsel des Materials dargestellt. Da hier nur konstante komplexe Brechungsindizes in das Modell eingehen, sind die simulierten Verläufe von Ψ und Δ linear. In Experimenten zeigt sich, dass analog zu dem Wachstum dünner Schichten auf einem Substrat auch bei der Bildung von Zwischenschichten sich der Brechungsindex nicht abrupt einstellt. Dadurch entstehen die in Abbildung 5.13 (Links) dargestellten nichtlinearen Verläufe.

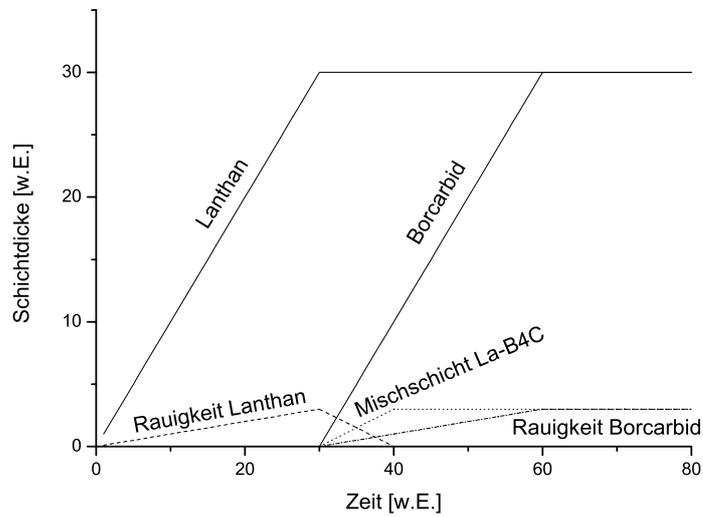


Abbildung 5.12: Modell für das Wachstum einer Doppelschicht La/B_4C mit Simulation von Rauigkeiten und Mischschichten

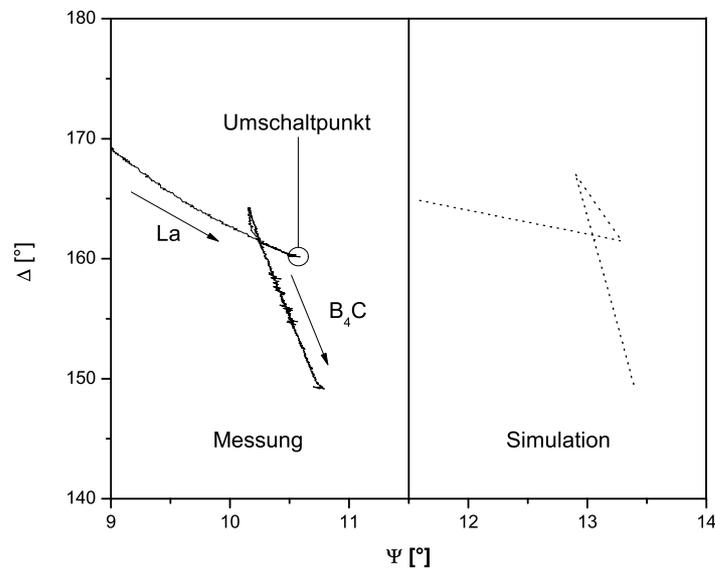


Abbildung 5.13: Experimentelle Daten und Modell (zur Anschaulichkeit verschoben) für das Wachstum einer La/B_4C -Zwischenschicht

Die mathematische Beschreibung des Aufwachsens einer Einzelschicht geschieht über folgende Gleichung [85]:

$$d(d_0, g, t, t_s, t_e) = \begin{cases} d_0 & \text{für } t < t_s \\ d_0 + g \frac{(t-t_s)^2}{(t_e-t_s)} & \text{für } t \in [t_s, t_e] \\ d_0 + g(t-t_s) & \text{für } t > t_e \end{cases} \quad (5.3)$$

Dabei ist die Schichtdicke d abhängig von einer Anfangsschichtdicke d_0 , der Wachstumsrate g und der Start- (t_s) bzw. Endzeit (t_e). Über die zugehörigen komplexen Brechungsindizes, auch von EMA-Werten (vgl. Kapitel 2.3.3), werden Ψ und Δ kalkuliert. Durch die hohe Reproduzierbarkeit (vernachlässigbare Abhängigkeit von schwankenden Aufdampfzeiten) in Kombination mit einer Ex-Situ Auswertung einzelner Schichtdicken (vgl. Kapitel 5.2) lassen sich geringe Abweichungen in den Schichtdicken der hergestellten Multischicht iterativ minimieren. Somit kann sichergestellt werden, dass die Umsetzung von simulierten aperiodischen Multischichten mit Hilfe des evaluierten komplexen Brechungsindex und erstellter Modelle mit Hilfe der In-Situ Ellipsometrie möglich ist.

6 Reflektivitäten von periodischen und aperiodischen La/B₄C-XUV-Spiegeln

6.1 Periodische La/B₄C-Multischichten zwischen 100 und 200 eV

Im Rahmen dieser Arbeit wurden periodische La/B₄C-Multischichten mit Reflektivitäten bei senkrechtem Einfall zwischen 100 und 200 eV unterschiedlichster Periodenzahl hergestellt und charakterisiert. Die folgende Auswertung wird sich auf drei Energiebereiche konzentrieren: Röntgenspiegel mit einer maximalen Reflektivität bei senkrechtem Einfall bei ca. 105 eV, 140-170 eV und 185 eV.

6.1.1 Röntgenspiegel bei einer energetischen Lage von 105 eV

Für die Charakterisierung der hergestellten Röntgenspiegel in diesem Energiebereich wurden zwei Modelle umgesetzt und untersucht. Eine Multischicht wurde mit einer Periodendicke von $d = 5,8$ nm und einer Periodenzahl von $N = 40$ präpariert. Die am BESSY gemessenen Reflektivitäten sind in Abbildung 6.1 dargestellt. Bei nahezu senkrechtem Einfall ($\theta = 89^\circ$) liegt das Maximum der Reflektivität bei 105,4 eV und die Reflektivität beträgt 24%. Die maximale Reflektivität (35,8%, $E_{max} = 186,9$ eV) wird bei einem Glanzwinkel von 36° erreicht, da hier der optische Kontrast nahe der Bor-K-Kante zwischen beiden Materialien am höchsten ist. In der folgenden Tabelle sind die bestimmten Parameter der 40-periodigen Multischicht zusammengefasst, einschließlich der von der Reflektivitätskurve eingeschlossenen Fläche.

Tabelle 6.1: Bestimmte Parameter in Abhängigkeit des Glanzwinkels der 40-periodigen Multischicht

Winkel [°]	Peaklage [eV]	Reflektivität [%]	Bandbreite [eV]	Fläche [eV]
89	105,4	24,0	3,0	0,85
39	176,3	25,2	4,7	1,37
38	180,0	28,3	4,7	1,48
37	183,7	30,7	4,8	1,59
36	186,9	35,8	3,9	1,62

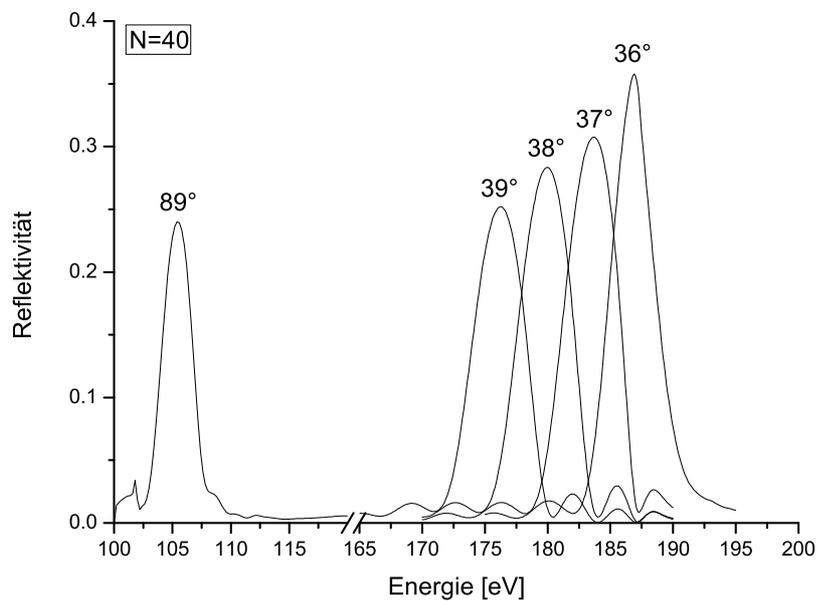


Abbildung 6.1: Reflektivitäten einer Multischicht mit $d = 5,8 \text{ nm}$ und $N = 40$ bei verschiedenen Glanzwinkeln gemessen am BESSY

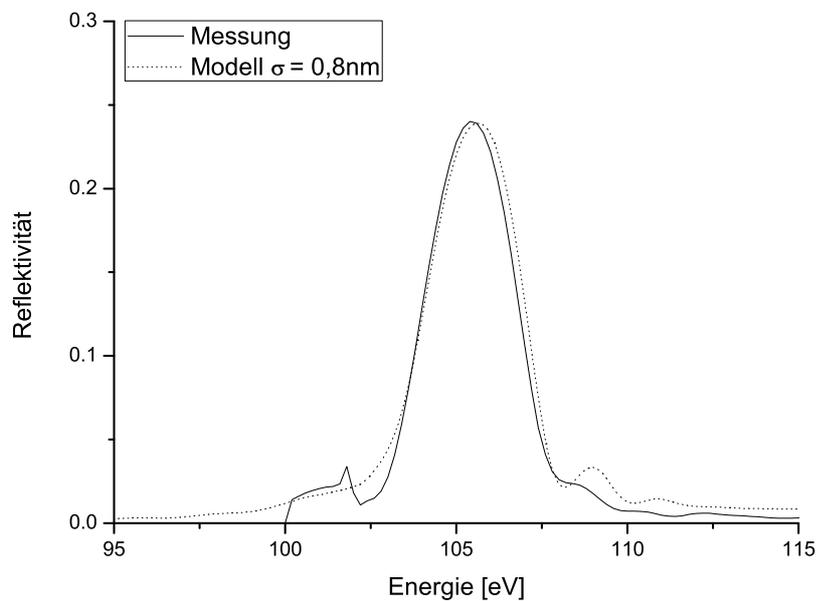


Abbildung 6.2: Am BESSY gemessene Reflektivitätskurve und simulierte Reflektivität einer 40-periodigen Multischicht bei nahezu senkrechtem Einfall ($\theta = 89^\circ$)

Über optische Modelle lässt sich die Rauigkeit bestimmen (vgl. Abbildung 6.2). Dazu wurde ein Schichtmodell erstellt und die Rauigkeit dieses Modells soweit angepasst, dass eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation besteht. Die mittlere Rauigkeit für diesen Schichtstapel lässt sich so zu $\sigma = 0,8$ nm bestimmen. Aussagen über die einzelnen Rauigkeiten der beiden Materialien sind nicht möglich, da diese sowohl mit Messungen am BESSY als auch mit GIXRR nicht extrahierbar sind (vgl. Kapitel 4.2). Die Abweichungen der spektralen Bandbreite bei den Einfallswinkeln 89° und 36° werden durch die Absorptionskanten der verwendeten Materialien verursacht. So beeinflusst das Lanthan- $4d_{5/2}$ - ($102,5$ eV) und $-4d_{3/2}$ -Niveau ($105,3$ eV) als auch das Bor- $1s$ -Niveau (188 eV) die Reflektivitätskurve (siehe hierzu auch Kapitel 6.4). Der Anstieg der Fläche unter der Reflektivitätskurve mit abnehmendem Glanzwinkel ist ebenfalls auf die erhöhte Eindringtiefe der Strahlung bei den höheren Energien zurückzuführen.

Zum Vergleich wurde ein Multischicht-Röntgenspiegel mit gleichen Parametern aber erhöhter Periodenzahl ($N = 60$) hergestellt und charakterisiert (siehe Abbildung 6.3). Bei nahezu senkrechtem Einfall wird eine Reflektivität von $27,2\%$ erreicht, dies entspricht einer gemittelten Rauigkeit von $\sigma = 0,8$ nm (vgl. Abbildung 6.4).

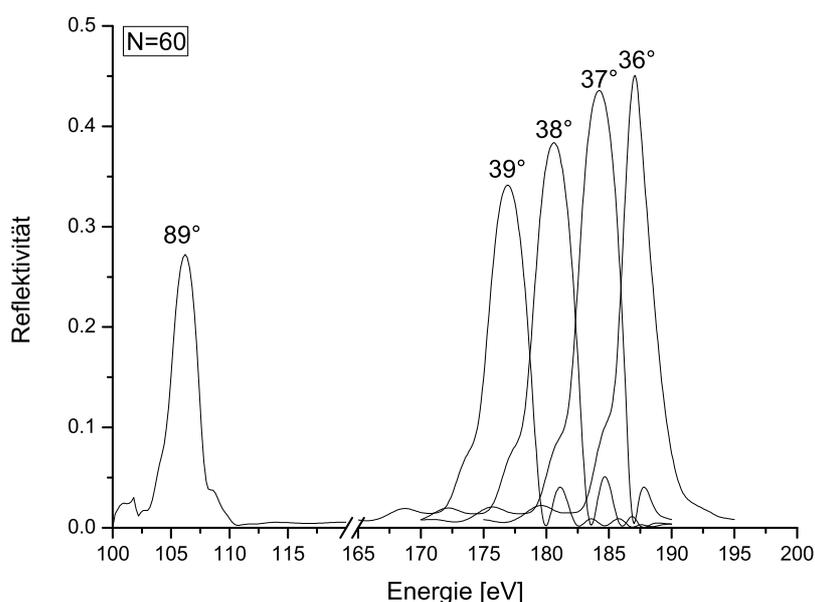


Abbildung 6.3: Reflektivitäten der Multischicht mit $d = 5,8$ nm und $N = 60$ bei verschiedenen Glanzwinkeln gemessen am BESSY

Durch die Annäherung an die Bor-K-Kante kann die Reflektivität auf bis zu $45,1\%$ gesteigert werden. Auch bei dieser Multischicht nimmt die spektrale Bandbreite in der Nähe der Absorptionskanten ab. Durch die unterschiedlichen Eindringtiefen der Strahlung bei 105 und 187 eV erbeben sich signifikante Unterschiede beider Multischichten in Bezug auf die Reflektivitätssteigerung bei diesen Energien. Durch höhere Absorption des Lanthan

bei 105 eV zeigt sich bei einer Erhöhung der Periodenzahl von 40 auf 60 eine Reflektivitätssteigerung um $\Delta R = 3,2\%$ ($\Delta R/R = 13,3\%$), während die Steigerung bei 187 eV $\Delta R = 9,3\%$ ($\Delta R/R = 26,0\%$) beträgt.

Tabelle 6.2: Bestimmte Parameter in Abhängigkeit des Glanzwinkels der 60-periodigen Multischicht

Winkel [°]	Peaklage [eV]	Reflektivität [%]	Bandbreite [eV]	Fläche [eV]
89	106,2	27,2	2,6	0,89
39	176,9	34,1	3,5	1,54
38	180,6	38,4	3,6	1,67
37	184,2	43,6	3,6	1,87
36	187,1	45,1	2,7	1,65

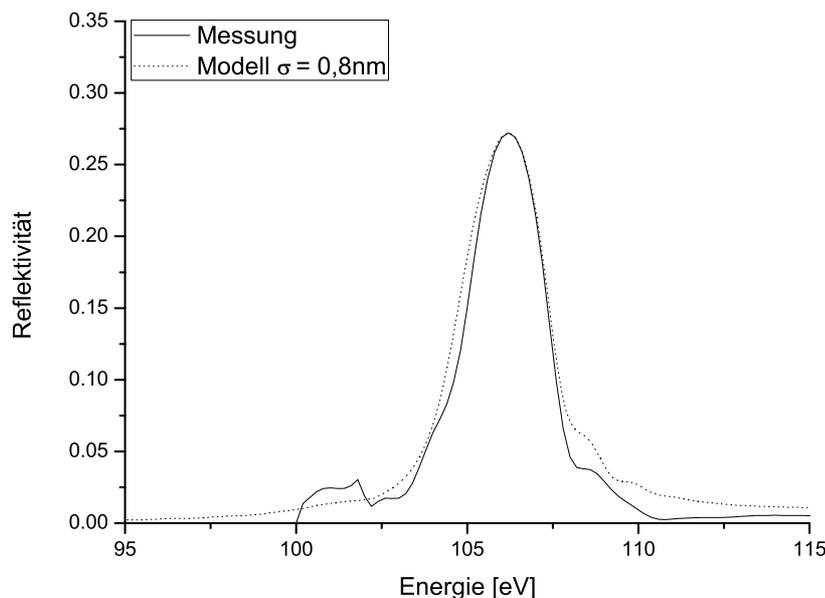


Abbildung 6.4: Am BESSY gemessene Reflektivitätskurve und simulierte Reflektivität einer 60-periodigen Multischicht bei nahezu senkrechtem Einfall ($\theta = 89^\circ$)

Eine Vergleich der Flächen unterhalb der Reflektivitätskurven zeigt, dass diese mit zunehmender Periodenzahl ebenfalls minimal ansteigen. Dies zeigt sich ebenfalls in einer nicht so stark abnehmenden spektralen Bandbreite, wie sie Gleichung 2.31 vorhersagt. Ursache dafür ist die in der Gleichung nicht berücksichtigte Absorption.

6.1.2 Röntgenspiegel bei einer energetischen Lage von 140-170 eV

Innerhalb des Energiebereichs von 100 – 200 eV sind La/B₄C-Multischicht-Röntgenspiegel nur bei hohem optischen Kontrast der Materialien (ca. 105 eV) oder großer Eindringtiefe der Strahlung durch geringe Absorption (ca. 185 eV) besonders effektiv. Allerdings lassen sich auch im Energiebereich zwischen diesen Werten Röntgenspiegel bei beliebiger energetischer Lage realisieren. Im Folgenden werden die hergestellten Röntgenspiegel zwischen 140 und 170 eV, welche Perioden von $N = 20$ bis $N = 40$ aufweisen, vorgestellt. In Abbildung 6.5 sind die Messungen von vier präparierten Multischichten ($N = 20$) für diesen Energiebereich dargestellt.

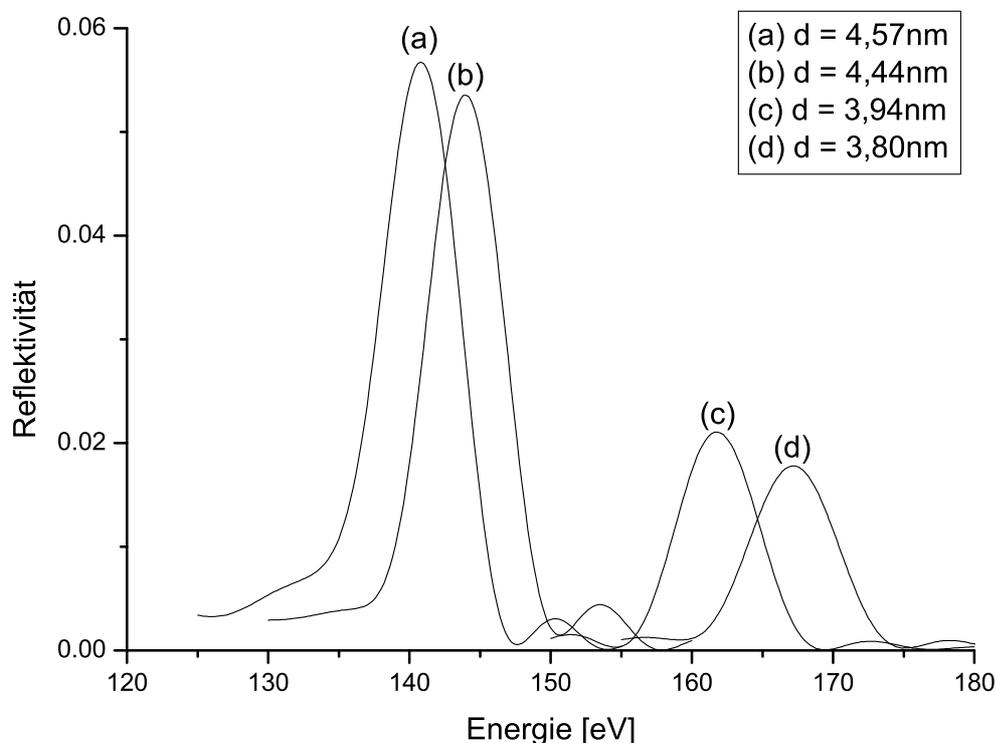


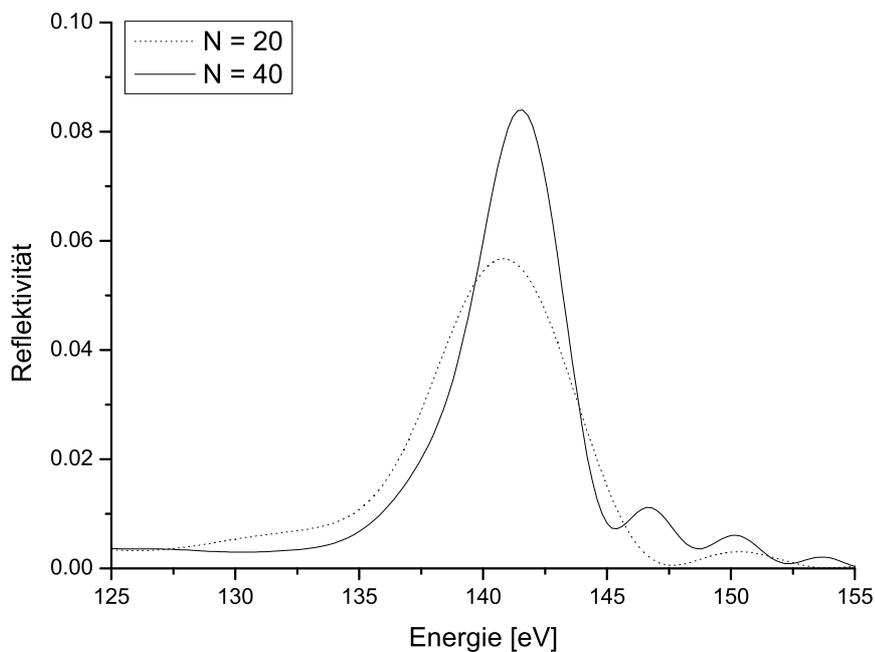
Abbildung 6.5: Am BESSY gemessene Reflektivitäten von vier Multischichten mit $N = 20$ und unterschiedlichen Schichtdicken und damit einer energetischen Lage zwischen 140 und 170 eV bei einem Glanzwinkel von $\theta = 89^\circ$

Durch den hohen optischen Kontrast weisen die Multischichten bei 140 eV eine um den Faktor 3 erhöhte Reflektivität zu den Multischichten bei 160 – 175 eV auf (vgl. Abbildung 3.12). Die mit 20 Perioden maximal erreichte Reflektivität beträgt 5,67% (140,8 eV), diese fällt auf bis zu 1,78% bei 167,2 eV ab. Die spektralen Bandbreiten liegen zwischen 6,2 und 7,0 eV. Die vollständigen Parameter sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst.

Tabelle 6.3: Bestimmte Parameter und gemessene Reflektivitäten der hergestellten Multischichten mit $N = 20$

energetische Lage [eV]	Periodendicke d [nm]	Reflektivität [%]	Bandbreite [eV]
140,8	4,57	5,67	6,6
144,0	4,44	5,36	6,2
161,8	3,94	2,11	6,6
167,2	3,80	1,78	7,0

Die beiden in Abbildung 6.6 gezeigten Messungen der Reflektivität zweier Multischichten liegen bei der gleichen energetischen Lage, unterscheiden sich nur durch die Anzahl der Perioden. Während die Multischicht mit $N = 20$ eine Reflektivität von $R = 5,67\%$ aufweist, erhöht sich diese bei einer Multischicht mit $N = 40$ zu $R = 8,40\%$.

**Abbildung 6.6:** Am BESSY gemessene Reflektivitäten zweier Multischichten mit $N = 20$ und $N = 40$ bei 140 eV und einem Glanzwinkel von $\theta = 89^\circ$

Über Simulationen lässt sich zeigen, dass die mittleren Rauigkeiten $\sigma = 0,71\text{nm}$ ($N = 20$) und $\sigma = 0,73\text{ nm}$ ($N = 40$) betragen. Eine Erhöhung der Rauigkeit mit steigender Periodenzahl ist aus diesem geringen Anstieg noch nicht zu extrahieren, allerdings wurde in [135] gezeigt, dass eine Rauigkeit mit Erhöhung der Periodenzahl zunehmen kann.

6.1.3 Röntgenspiegel bei einer energetischen Lage von 185 eV

Durch die geringe Absorption beider verwendeter Materialien unter der Bor-K-Kante tragen in diesem Energiebereich mehr Schichten zu einer Reflektivität bei, als bei niedrigeren Energien. Aus diesem Grund wurde eine periodische Multischicht mit 110 Perioden und einer Periodendicke $d = 3,36$ nm hergestellt und charakterisiert. Das durch die Minima-Maxima-Umschaltung der verwendeten In-Situ Kontrolle bedingte Schichtdickenverhältnis von $\Gamma = 0,48$ bewirkt somit Einzelschichtdicken von $d_{Lanthan} = 1,63$ nm und $d_{Borcarbid} = 1,73$ nm.

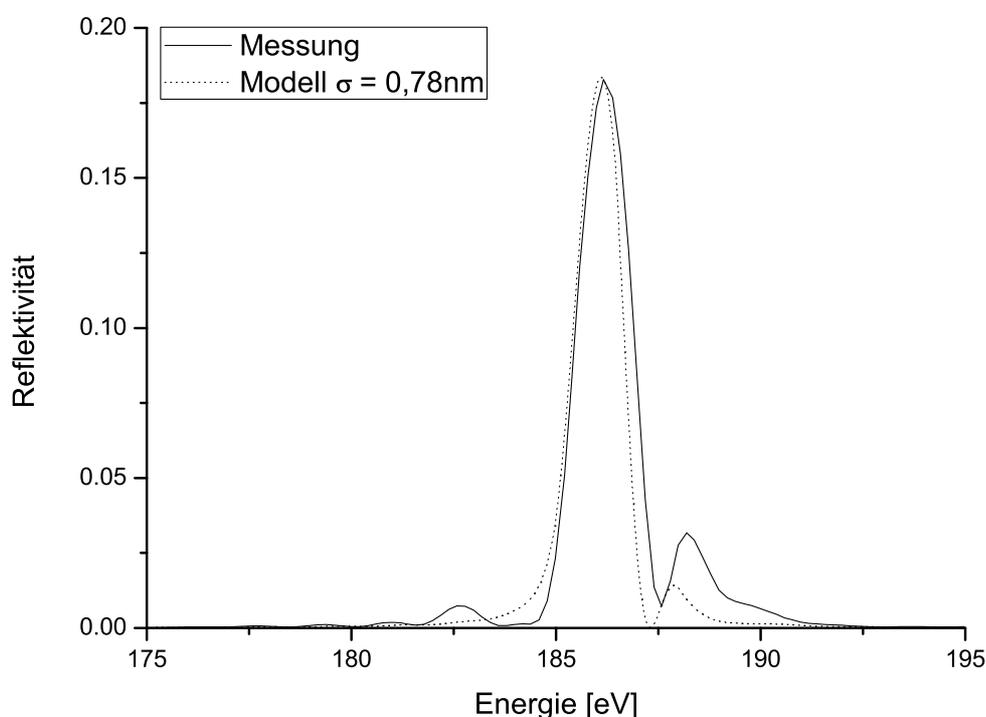


Abbildung 6.7: Am BESSY gemessene Reflektivitätskurve und simulierte Reflektivität einer 110-periodigen Multischicht bei nahezu senkrechtem Einfall ($\theta = 89^\circ$)

Der hergestellte Multischicht-Röntgenspiegel weist eine Peak-Reflektivität von 18,3% bei nahezu senkrechtem Einfall ($\theta = 89^\circ$). Die Bandbreite beträgt $\Delta E = 1,52$ eV. Der Vergleich mit dem simulierten Reflektivitätsverlauf zeigt, dass der Multischichtstapel eine durchschnittliche Rauigkeit von $\sigma = 0,78$ nm aufweist. Allerdings ist die Bandbreite der simulierten Multischicht kleiner ($\Delta E = 1,3$ eV) als der gemessene Wert. Diese Diskrepanz wird durch geringe Abweichungen der Schichtdicke in der Multischicht verursacht und führt zu einer spektralen Verbreiterung der Reflektivitätskurve.

6.2 Langzeitstabilität

Wie in Kapitel 3.1.1 beschrieben, handelt es sich bei Lanthan um ein sehr reaktives Material. An Sauerstoff reagiert es schnell zu Lanthanoxid, in Verbindung mit Wasser bildet sich Lanthanhydroxid. Daher wird jeder $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischichtstapel mit einer abschliessenden Borcarbid-Schicht versehen. Diese besteht allerdings aus nur wenigen Atomlagen, so dass eine Diffusion von Sauerstoff nicht ausgeschlossen werden kann. Inwieweit die hergestellten $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischichten über einen längeren Zeitraum stabil sind, wurde mit zwei Reflektivitätsmessungen gezeigt. Eine 20-periodige Multischicht wurde dazu von der PTB und 2 Jahre später erneut am Reflektometer des BESSY vermessen. In der Zwischenzeit wurde diese in einer nicht-inerten Umgebung gelagert.

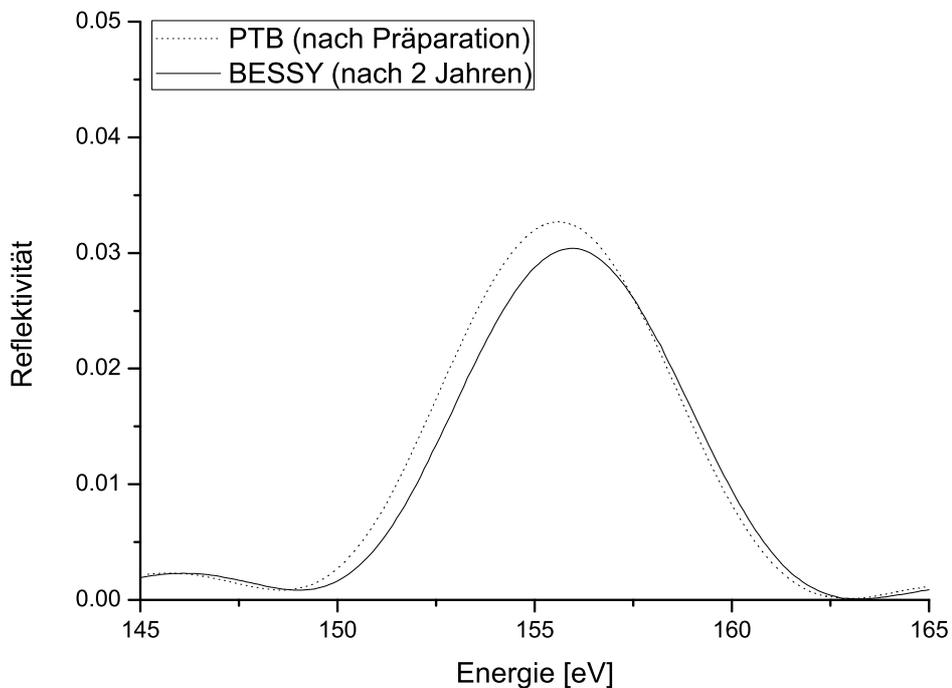


Abbildung 6.8: Gemessene Reflektivität der PTB und 2 Jahre später aufgenommene Reflektivitätskurve am BESSY der gleichen Multischicht

Die von der PTB gemessene Reflektivität beträgt 3,27% bei einer Energie von 155,6 eV, die erneut vermessene Reflektivitätskurve hat ihr Maximum bei 3,04% und 155,9 eV. Es ist somit keine signifikante Änderung der Reflektivität zu beobachten. Durch Fehler in den Messungen ($\text{BESSY } \Delta R/R \approx 2\%$ und $\text{PTB } \Delta R/R \approx 3\%$) und durch auf der Probe abgeschiedene, sichtbare Verunreinigungen lässt sich diese Minderung von $\Delta R = 0,23\%$ erklären. Die hergestellten $\text{La}/\text{B}_4\text{C}$ -Multischichten sind somit auch über einen längeren Zeitraum als stabil zu betrachten.

6.3 Erhöhung der Reflektivitäten durch Ionenbeschuss

6.3.1 Einfluss beschleunigter Kryptonionen auf die Rauigkeit der B_4C -Schichten

Die in Kapitel 4.2 beschriebene Rauigkeit der Borcarbid-Schichten von $\sigma \approx 0,8$ nm trägt entscheidend zu einem Reflektivitätsverlust der Multschichten bei. Daher wird im Folgenden der Einfluss von beschleunigten Kryptonionen auf die einzelnen Borcarbid-Schichten nach der jeweiligen Abscheidung der Schicht untersucht und festgestellt, welche Auswirkungen eine solche Oberflächenbehandlung hat. In Abbildung 6.9 sind Simulationen mit der Software SRIM [131] dargestellt, welche die Eindringtiefe von Kryptonionen in eine B_4C /La-Doppelschicht und die rückgestoßenen Bor- bzw. Kohlenstoffatome darstellen.

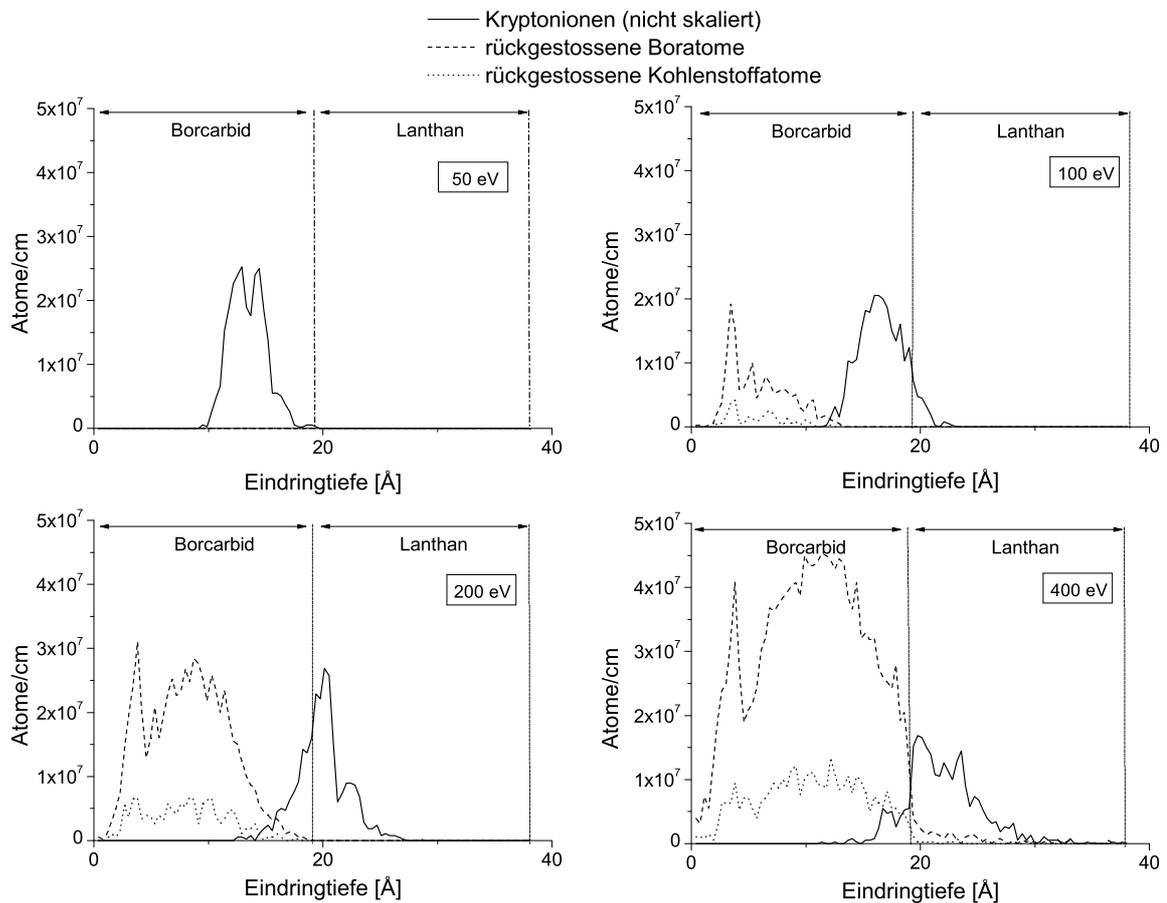


Abbildung 6.9: Simulationen mit SRIM [131]: Verteilung der Eindringtiefe der Krypton-Ionen (unskaliert) bei unterschiedlichen Energien in eine Doppelschicht aus Borcarbid und Lanthan ($d = 3,8$ nm) und Verteilung der rückgestoßenen Bor- und Kohlenstoffatome

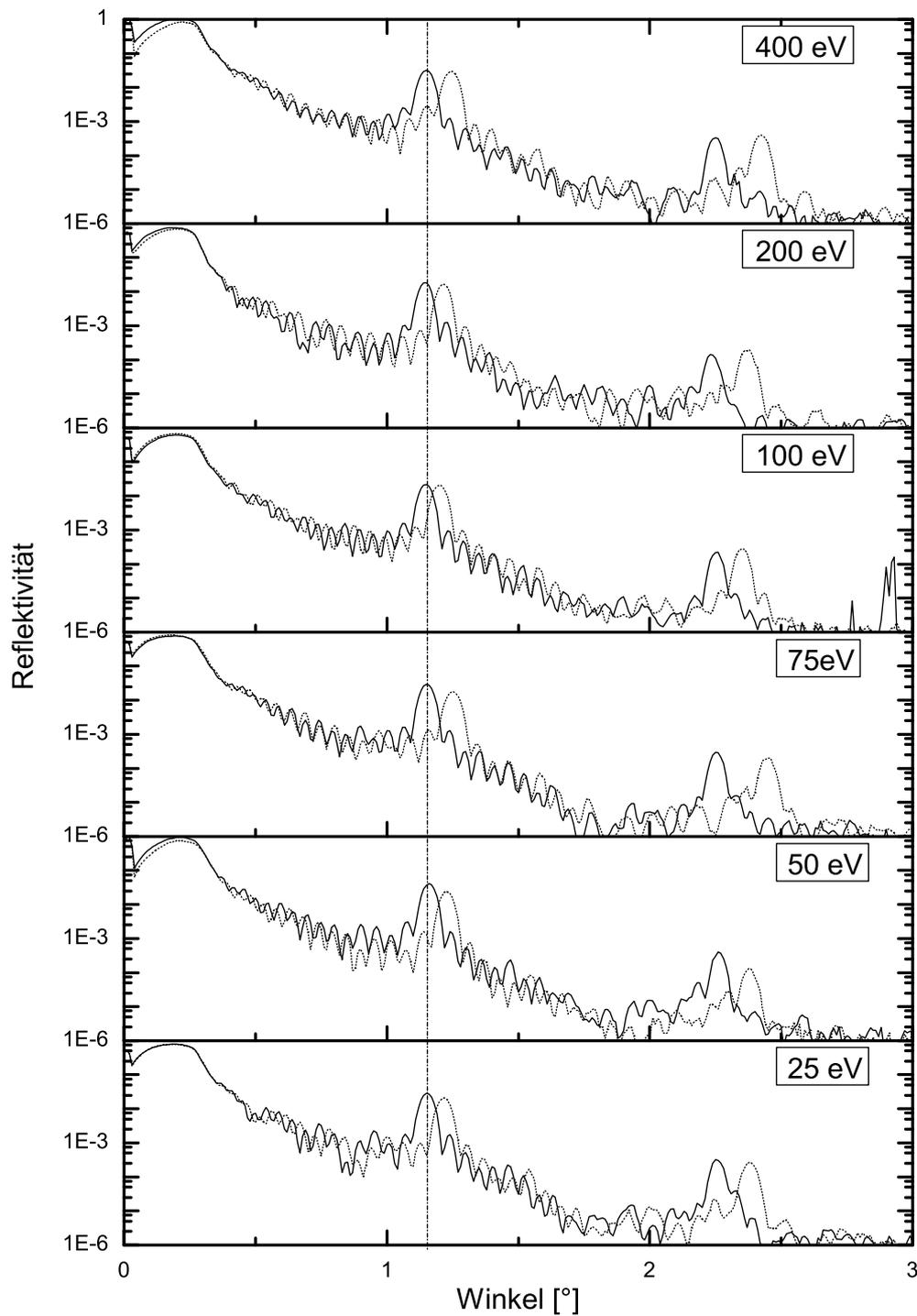


Abbildung 6.10: Röntgenreflektometrie-Messungen an Multischichten von mit unterschiedlichen Energien polierten Borcarbid-Schichten (durchgezogene Linien) und der jeweiligen Referenzprobe (gestrichelte Linien) ($N = 20$)

Es ist zu erkennen, dass bereits ab einer kinetischen Energie von 100 eV die Kryptonionen bis in die Zwischenschicht von Borcarbid und Lanthan vordringen, dort allerdings nicht mehr ausreichend Energie besitzen um die Bor- bzw. Kohlenstoffatome merklich anzuregen. Dies geschieht erst ab einer kinetischen Energie von 400 eV, bei welcher allerdings auch bereits Lanthan-Atome angeregt werden.

Die berechnete Sputterausbeute [131] für die dargestellten Energien beträgt (in Atome/Ion):

kinetische Energie	50 eV	100 eV	200 eV	400 eV
Sputterausbeute	0,00	0,01	0,05	0,18

Diese Sputterausbeute ist verglichen mit dem Beschuss von Siliziumoberflächen sehr gering [31]. Es ist nicht zu erwarten, dass die Periodendicke der Multischichten beim Beschuss der Borcarbid-Schichten deutlich abnimmt. Zur experimentellen Untersuchung des Einflusses wurden 20-periodige Multischichten hergestellt, welche mit Krypton-Ionen unterschiedlicher Energie (25, 50, 75, 100, 200 und 400 eV) behandelt wurden. Die ausgewerteten Reflektivitätskurven bei streifendem Einfall sind in Abbildung 6.10 dargestellt. Es wird deutlich, dass sich der relative Abstand der Bragg-Peaks zwischen der polierten Probe und der jeweiligen Referenzprobe zueinander mit der Energie der Ionen ändert.

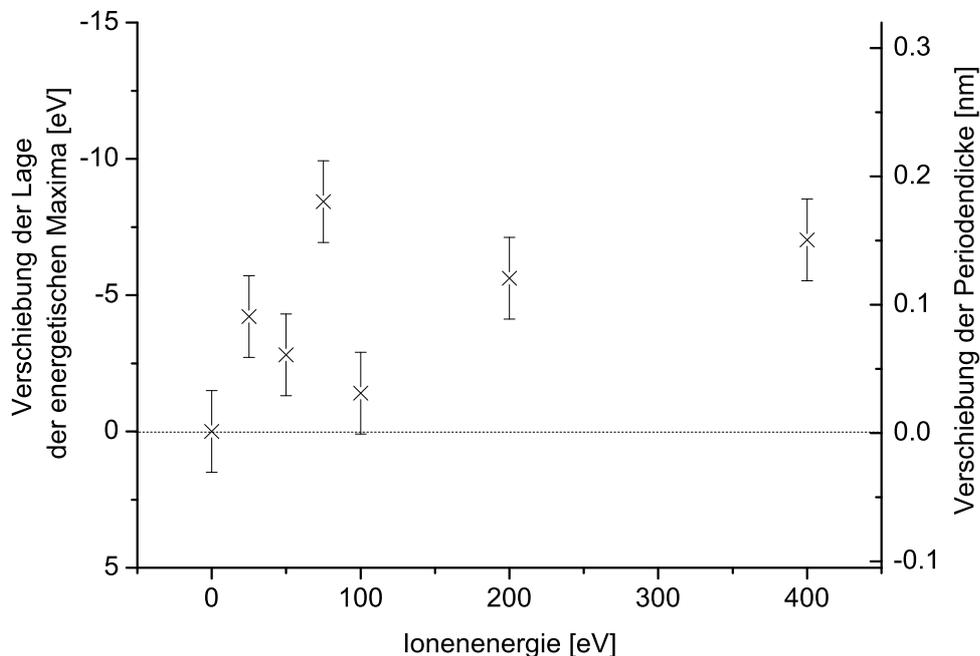


Abbildung 6.11: Relative Änderung der Periodendicke von der polierten Multischicht zu der jeweiligen Referenzprobe und dementsprechende energetische Verschiebung des Reflektivitätsmaximums der Multischicht beim Polieren von B_4C

In Abbildung 6.12 ist die relative Änderung in der Periodendicke und damit die Energieverschiebung (der Reflektivität bei senkrechtem Einfall) der polierten Multischichten in Bezug zu der jeweiligen Referenzprobe dargestellt. Bei diesen Daten wurde bereits die in Gleichung 3.7 dargestellte Normierung berücksichtigt. Wird dieser Zusammenhang mit Abbildung 6.10 verglichen, aus welchem hervorgeht, dass die Schichtdicke der unpolierten Referenzproben scheinbar abnimmt (Bragg-Peak wandert zu größeren Winkeln) und alle Bragg-Peaks der polierten Schichten bei dem gleichen Winkel liegen, so lässt sich folgendes schlussfolgern: Der optische Weg $n \cdot d$ durch die B₄C-Schichten nimmt durch das Polieren mit Kryptonionen zu und die Schichtdicke wird scheinbar erhöht. Dies ist während der Beschichtung allerdings aufgrund des geringen Effekts und der Schwankungen in der Zählrate aus den Daten der In-situ Kontrolle nicht zu extrahieren. Durch die Minima-Maxima-Umschaltung bei der In-Situ Kontrolle während der Schichtabscheidung werden allerdings diese erhöhten B₄C-Schichtdicken durch kleinere La-Schichtdicken kompensiert, so dass sich das Γ -Verhältnis der Multischicht ändert. Durch diesen Effekt scheinen die nichtpolierten Referenzproben mit zunehmender Ionenenergie dünner zu werden. Eine Erhöhung des optischen Weges $n \cdot d$ kann durch zwei Effekte erklärt werden, welche allerdings nicht durch Analytik von einander getrennt werden können. Zum einen können Kryptonionen in die Schicht implantiert werden, durch AES ist Krypton allerdings nicht nachzuweisen. Auf der anderen Seite kann die Rauigkeit der Borcarbid-Schicht zunehmen (vgl. Kapitel 2.2.5). Wenn der Brechungsindex nicht gleichzeitig antiproportional sinkt, wird so ebenfalls der optische Weg erhöht. Ein Vergleich der Reflektivitäten ist in Abbildung 6.12 dargestellt. Innerhalb des angegebenen Fehlers resultierend durch die Messmethoden (GIXRR) und der Umrechnung der Reflektivität (vgl. Gleichung 3.8) zeigt Abbildung 6.12, dass die Reflektivitäten sich mit zunehmender Ionenenergie verringern. Dieser Verlauf weist auf das beschriebene Aufrauen der Borcarbid-Schichten hin. Werden die absoluten Änderungen ($\Delta R = R_{poliert} - R_{Referenz}$) auf die jeweilige Referenzprobe bezogen ($\Delta R/R_{Referenz}$), so zeigen sich Reflektivitätsminderungen $> 20\%$. Dies ist allein durch die Γ -Änderung von 0,48 auf 0,45 (entspricht der Verringerung der Schichtdicke von La um 0,1 nm) nicht zu erklären und muss durch eine Erhöhung der Rauigkeit resultieren.

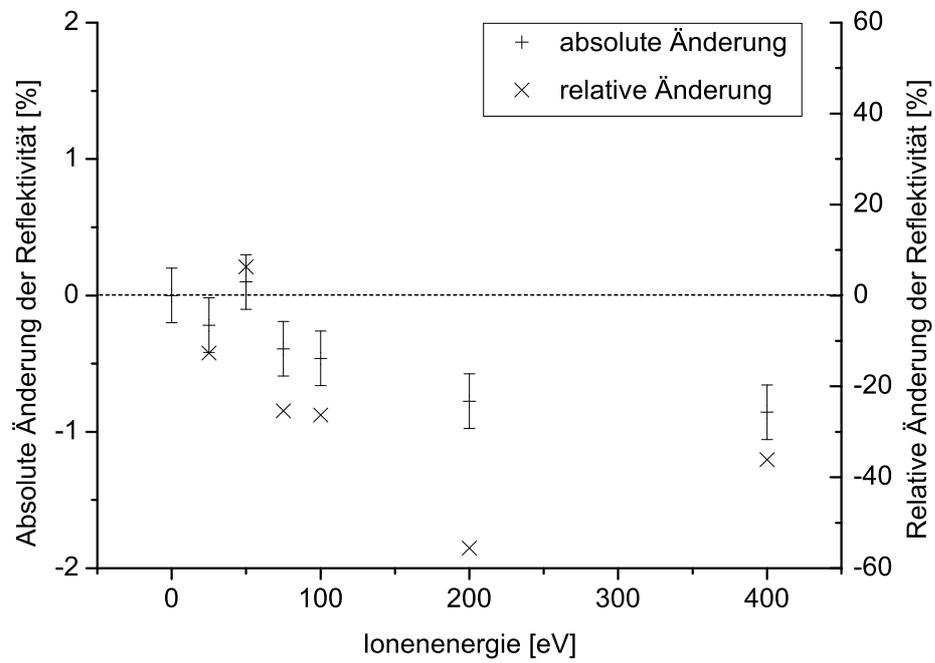


Abbildung 6.12: Änderung der absoluten Reflektivität der Multischichten beim Polieren der B_4C -Schichten und dementsprechende relative Änderung in Bezug auf die Reflektivität des Referenzprobe

6.3.2 Einfluss beschleunigter Kryptonionen auf die Rauigkeit der La-Schichten

Zur Untersuchung des Einflusses der beschleunigten Kryptonionen auf die Lanthanschichten einer Multischicht wurden Messreihen analog Kapitel 6.3.1 erstellt. Während der Herstellung wurde nach jeder Lanthanschicht die Multischicht mit Kryptonionen behandelt. In der folgenden Abbildung ist der Einfluss der Kryptonionen auf eine Lanthan-Borcarbid Doppelschicht simuliert.

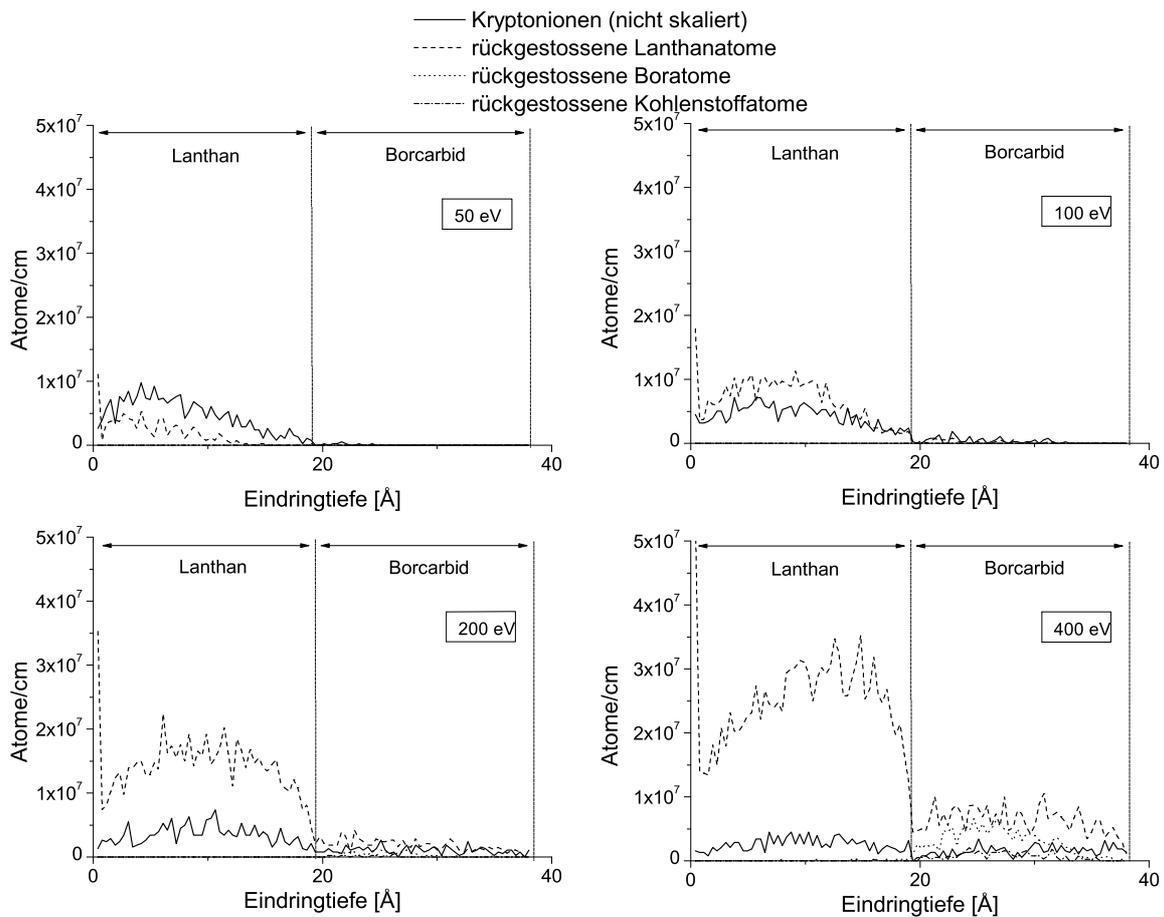


Abbildung 6.13: Simulationen mit SRIM [131]: Verteilung der Eindringtiefe der Krypton-Ionen (unskaliert) bei unterschiedlichen Energien in eine Doppelschicht aus Lanthan und Borcarbid ($d = 3,8$ nm) und Verteilung der rückgestoßenen Lanthan-, Bor- und Kohlenstoffatome

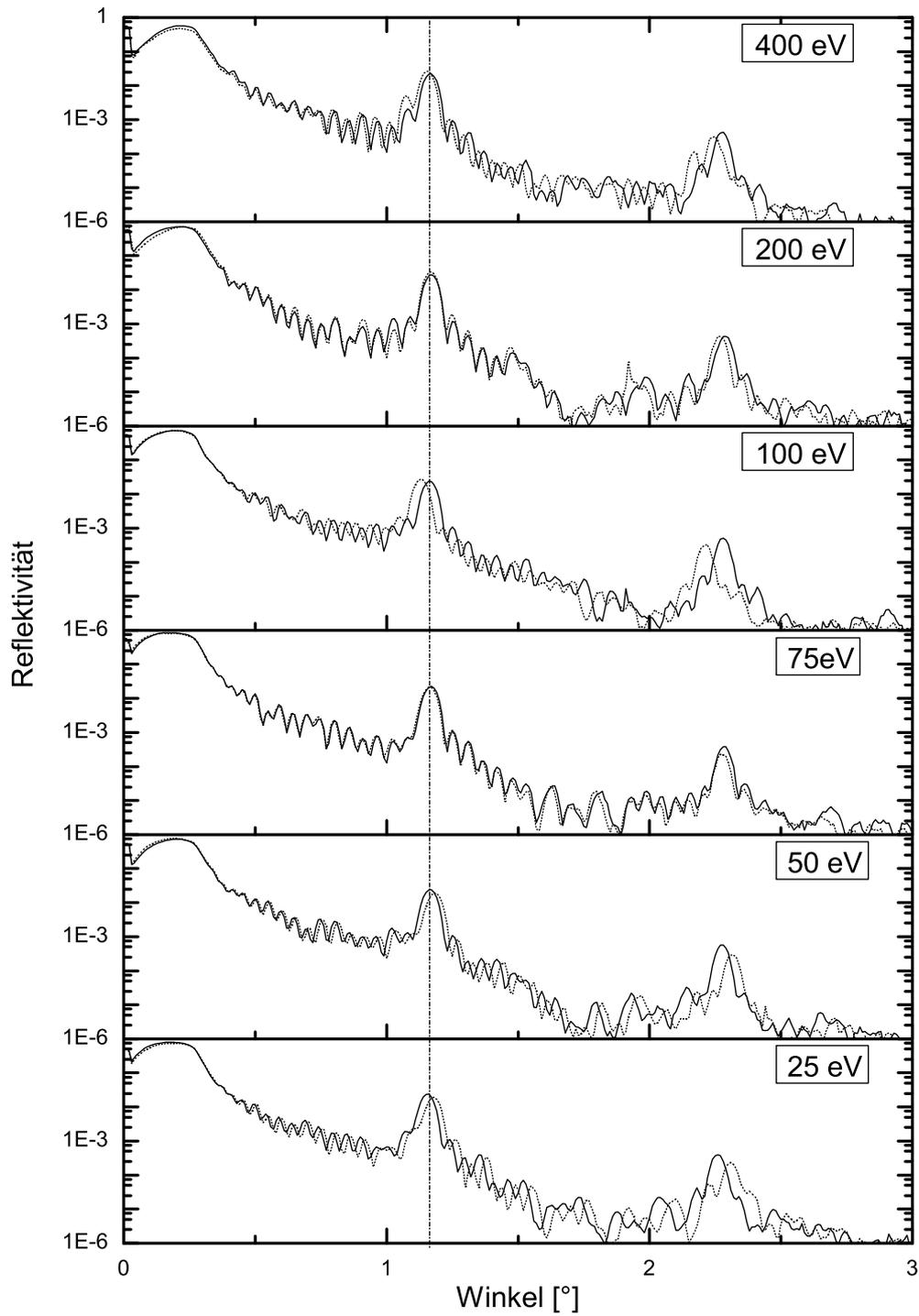


Abbildung 6.14: Röntgenreflektometrie-Messungen an Multischichten von mit unterschiedlichen Energien polierten Lanthan-Schichten (durchgezogene Linien) und der jeweiligen Referenzprobe (gestrichelte Linien) ($N = 20$)

Die berechnete Sputterausbeute [131] für die dargestellten Energien beträgt (in Atome/Ion):

kinetische Energie	50 eV	100 eV	200 eV	400 eV
Sputterausbeute	0,13	0,29	0,56	0,92

Diese Raten sind deutlich höher als bei Borcarbid. Durch diese Simulationen und dem in Kapitel 4.3 untersuchten Zusammenhang ist schon bei geringeren Ionenenergien mit einem Abtrag der Schichten zu rechnen. In Abbildung 6.14 sind die verschiedenen Reflektivitätskurven bei streifendem Einfall der Multischichten dargestellt. Im Gegensatz zur Behandlung der B_4C -Schichten mit beschleunigten Ionen tritt hier eine Verringerung der Schichtdicken mit steigender Ionenenergie auf. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 6.15 zusammengefasst.

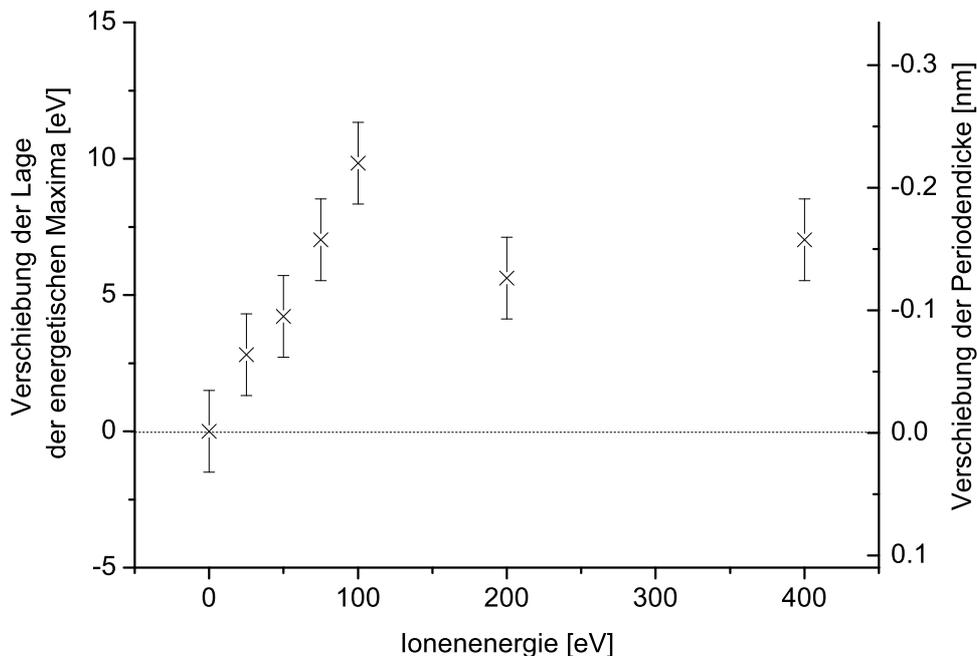


Abbildung 6.15: Relative Änderung der Periodendicke zwischen der polierten Multischicht zu der jeweiligen Referenzprobe und dementsprechende energetische Verschiebung des Reflektivitätsmaximums der Multischicht beim Polieren von La

Die Periodendicke nimmt bis zu einer Ionenenergie von $E_{kin} = 100$ eV stetig ab, dementsprechend wird die Lanthanschicht um bis zu 0,2 nm abgetragen. Bei höheren Energien ist die Eindringtiefe der Ionen wiederum so hoch (vgl. Abbildung 6.13), dass der Effekt des Abtragens durch das Eindringen der Ionen in die B_4C -Schicht und damit den in Kapitel 6.3.1 beschriebenen Effekt teilweise kompensiert wird. Die berechneten und korrigierten Reflektivitäten der Multischichten normiert auf die jeweilige Referenzprobe sind in Abbil-

dung 6.16 dargestellt.

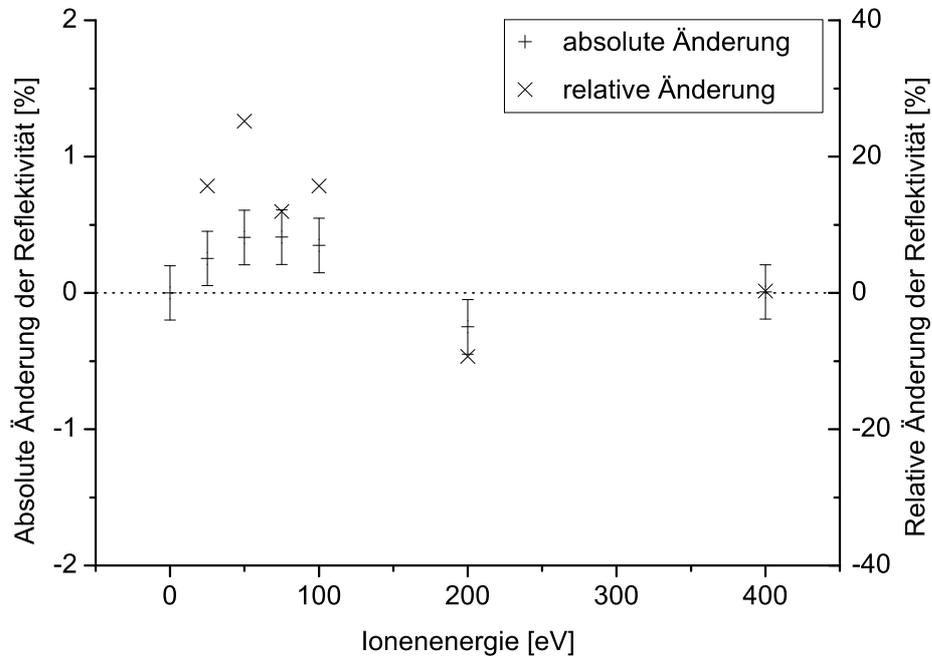


Abbildung 6.16: Änderung der absoluten Reflektivität der Multischichten beim Polieren der La-Schichten und dementsprechende relative Änderung in Bezug auf die Reflektivität des Referenzprobe

Die Reflektivitäten lassen sich bis zu einer Ionenenergie von $E_{kin} = 100$ eV um bis zu 0,4% steigern. Dies entspricht einem relativen Anstieg bezogen auf die absolute Reflektivität um bis zu 25%. Bei höheren Energien nimmt dieser Effekt wieder ab, auch hier wird durch die Eindringtiefe der Kryptonionen bis in die B_4C -Schicht den in Kapitel 6.3.1 beschriebenen Effekt der Erhöhung der Rauigkeit verursachen. Damit wird die Reflektivitätssteigerung wieder kompensiert.

Um die Messergebnisse zu verifizieren, wurden zwei Multischichten ($N = 50$) mit den gleichen Präparationsparametern wie die zuvor beschriebene Serie hergestellt. Die Periodenzahl wurde erhöht, um den Effekt der Steigerung der Reflektivität signifikanter zu erfassen. Eine Multischicht wurde während des Polierens wiederum abgedeckt und diente als Referenz, bei der anderen wurden die Lanthanschichten nach dem Auftragen mit Kryptonionen ($E_{kin} = 50$ eV) poliert. Nach Abbildung 6.16 ist ein relativer Anstieg der Reflektivität um ca. 25% bei $N = 20$ zu erwarten, bei erhöhter Periodenzahl sollte der Anstieg ebenfalls in dieser Größenordnung liegen. Beide Proben wurden am Reflektometer der „optics beamline“ des BESSY vermessen. In der folgenden Abbildung sind beide Messkurven und jeweils ein erstelltes Modell dargestellt.

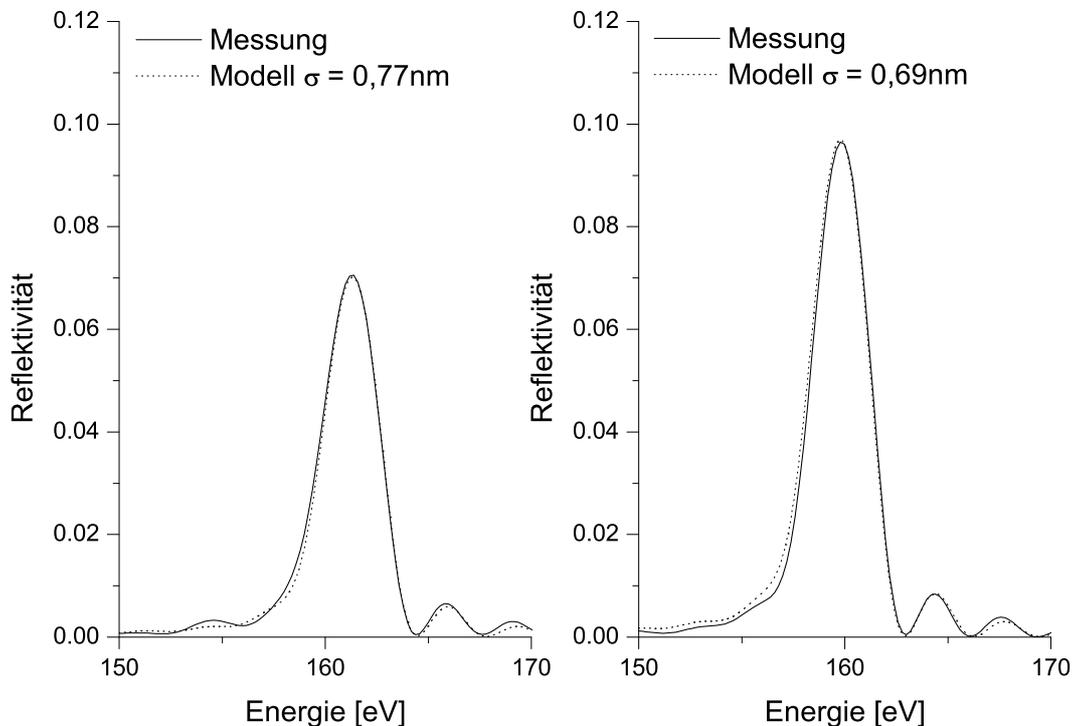


Abbildung 6.17: Vergleich der gemessenen Reflektivitäten zweier in einem Durchgang hergestellter Multischichten ($N = 50$), links unpolierte Referenzprobe und rechts mit 50 eV Krypton-Ionen polierte Probe

Die Reflektivität der unpolierten Multischicht beträgt $7,05 \pm 0,14\%$ bei einer Bandbreite (FWHM) von $\Delta E = 3,2$ eV. Durch ein erstelltes Modell dieser periodischen Multischicht lässt sich eine über den Schichtstapel gemittelte Debye-Waller-Rauigkeit von $\sigma = 0,77$ nm angeben. Die polierte Multischicht weist eine Reflektivität $9,65 \pm 0,19\%$ und ebenfalls eine Bandbreite von $\Delta E = 3,2$ eV auf. Diese Reflektivität entspricht einer relativen Steigerung von 36,9%. Über ein angepasstes Modell lässt sich wiederum die Debye-Waller-Rauigkeit zu $\sigma = 0,69$ nm bestimmen. Demzufolge bewirkt die Oberflächenbehandlung mit beschleunigten Kryptonionen ($E_{kin} = 50$ eV) eine Verringerung der Rauigkeit um $\sigma = 0,08$ nm bzw. 10,4%. Dies ist ausschließlich auf eine Kompaktierung (vgl. Abbildung 6.15) und gleichzeitiger Glättung der Lanthan-Einzelschichten zurückzuführen.

6.4 Reflektivitäten aperiodischer Schichtsysteme

Mit den in Kapitel 5 beschriebenen Voraussetzungen zur Umsetzung aperiodischer La/B₄C-Multischichtsysteme wurden im Rahmen dieser Arbeit mehrere aperiodische Röntgenspiegel hergestellt. Im folgenden werden die Ergebnisse der Umsetzung des in Abbildung 5.1 gezeigten Systems gezeigt. In Abbildung 6.18 sind die Daten aus der Röntgenreflektometrie bei streifendem Einfall für das aperiodische Multischichtsystem und das entsprechend angepasste Modell dargestellt.

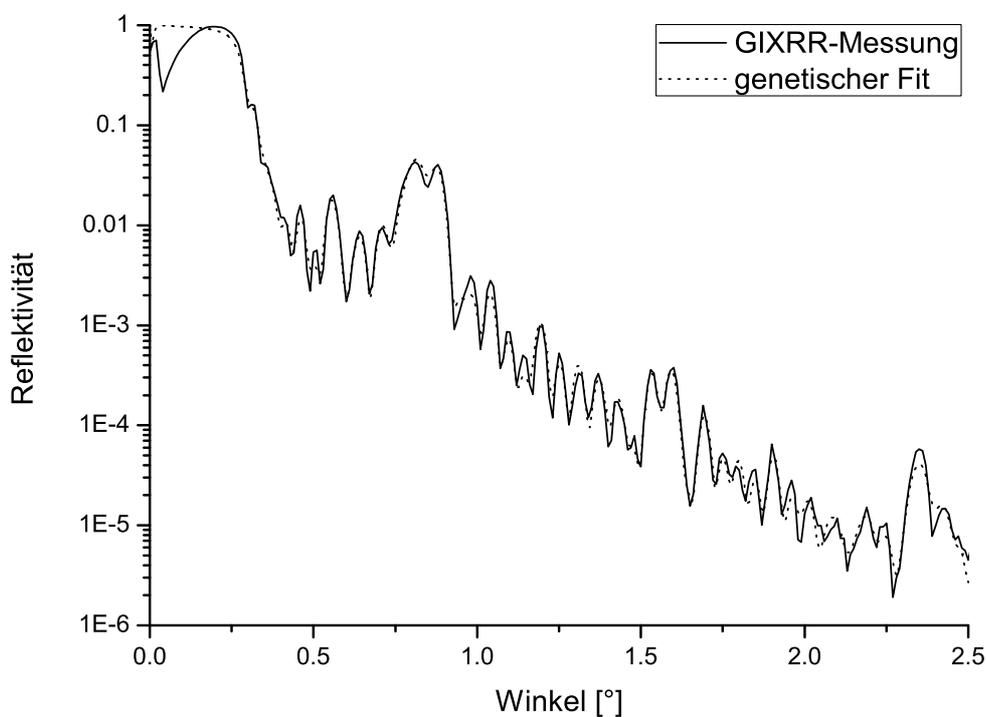


Abbildung 6.18: GIXRR-Messdaten einer aperiodischen Multischicht und Fit eines Modells an diese Daten mit Hilfe des genetischen Algorithmus

Zur Evaluierung der einzelnen Schichtdicken wurde mit Hilfe des genetischen Algorithmus ein Modell an die GIXRR-Daten angepasst. In Abbildung 6.19 sind sowohl die Schichtdicken des simulierten theoretischen Modells als auch die Schichtdicken aus dem GIXRR-Fit dargestellt.

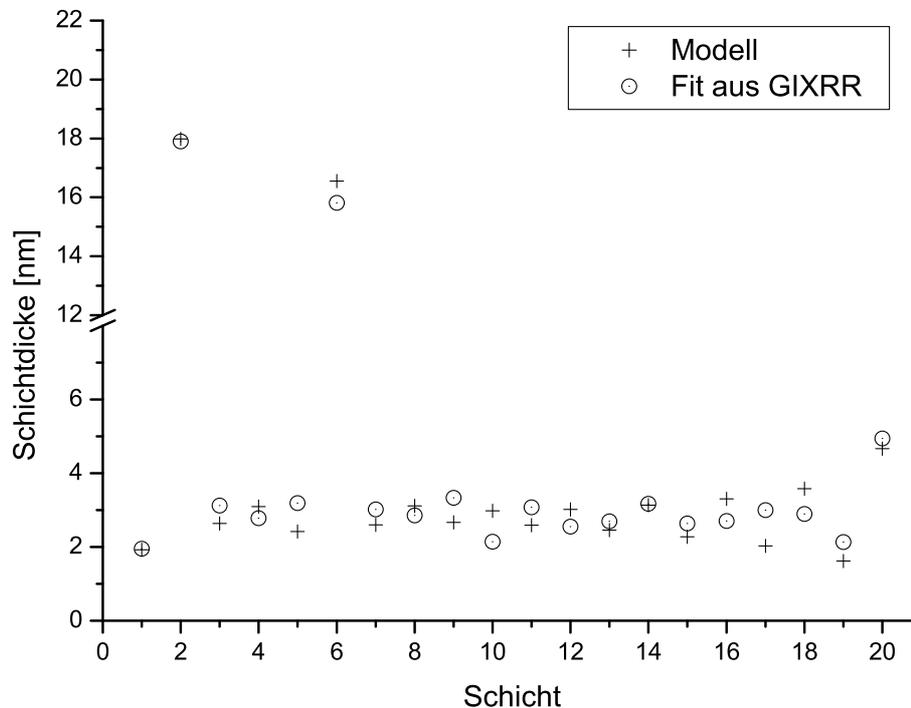


Abbildung 6.19: Berechnete Schichtdicken des aperiodischen Multischichtstapels („Soll-Wert“) und gefittete Schichtdicken aus GIXRR. Der Fehler des Fits (2%) liegt innerhalb der Ausmaße der verwendeten Symbole

Anhand Tabelle 6.4 ist zu erkennen, dass die Schichten im Mittel eine Abweichung vom Soll-Wert des theoretischen Modells von 0,46 nm aufweisen. Dies entspricht einer mittleren relativen Abweichung von 16,5%. Eine mittlere absolute Abweichung von 0,46 nm liegt bereits unterhalb der bestimmten typischen Rauigkeiten von $\sigma \approx 0,7$ nm der La/B₄C-Multischichten. Da vorhandene Rauigkeiten diskrete Grenzflächen verhindern und eine Vermischung beider Schichten verursachen, ist es auch theoretisch nicht möglich, eine höhere Genauigkeit zu erzielen. Mit Hilfe der verwendeten In-Situ Kontrolle, der Prozessstabilisierung und erstellten theoretischen Modellen sind dementsprechend aperiodische La/B₄C-Schichtsysteme mit einer Präzision unterhalb eines Nanometers umsetzbar.

Tabelle 6.4: Schichtdicken bestimmt aus dem Fit einer GIXRR-Kurve und Soll-Werte aus dem berechneten Modell

Schicht	d_{Modell} [nm]	d_{Fit} [nm]	$\Delta d = d_{Modell} - d_{Fit} $ [nm]	$\Delta d/d_{Modell}$
1 (La)	1,92	1,95	0,03	0,016
2 (B ₄ C)	17,99	17,90	0,09	0,005
3 (La)	2,64	3,12	0,49	0,184
4 (B ₄ C)	3,09	2,78	0,31	0,101
5 (La)	2,42	3,19	0,77	0,320
6 (B ₄ C)	16,55	15,81	0,74	0,045
7 (La)	2,60	3,02	0,42	0,163
8 (B ₄ C)	3,12	2,86	0,26	0,084
9 (La)	2,66	3,33	0,67	0,252
10 (B ₄ C)	2,98	2,15	0,84	0,281
11 (La)	2,59	3,08	0,49	0,188
12 (B ₄ C)	3,02	2,56	0,47	0,155
13 (La)	2,46	2,70	0,24	0,097
14 (B ₄ C)	3,13	3,17	0,04	0,013
15 (La)	2,28	2,64	0,36	0,159
16 (B ₄ C)	3,30	2,71	0,60	0,181
17 (La)	2,03	3,00	0,97	0,478
18 (B ₄ C)	3,58	2,89	0,69	0,192
19 (La)	1,62	2,14	0,52	0,318
20 (B ₄ C)	4,67	4,94	0,27	0,058
			Ø0,46	Ø0,165

In Abbildung 6.20 ist die gemessene XUV-Reflektivität an der „optics beamline“ des BESSY der simulierten Reflektivität des Modells und der berechneten Reflektivität aus GIXRR gegenübergestellt.

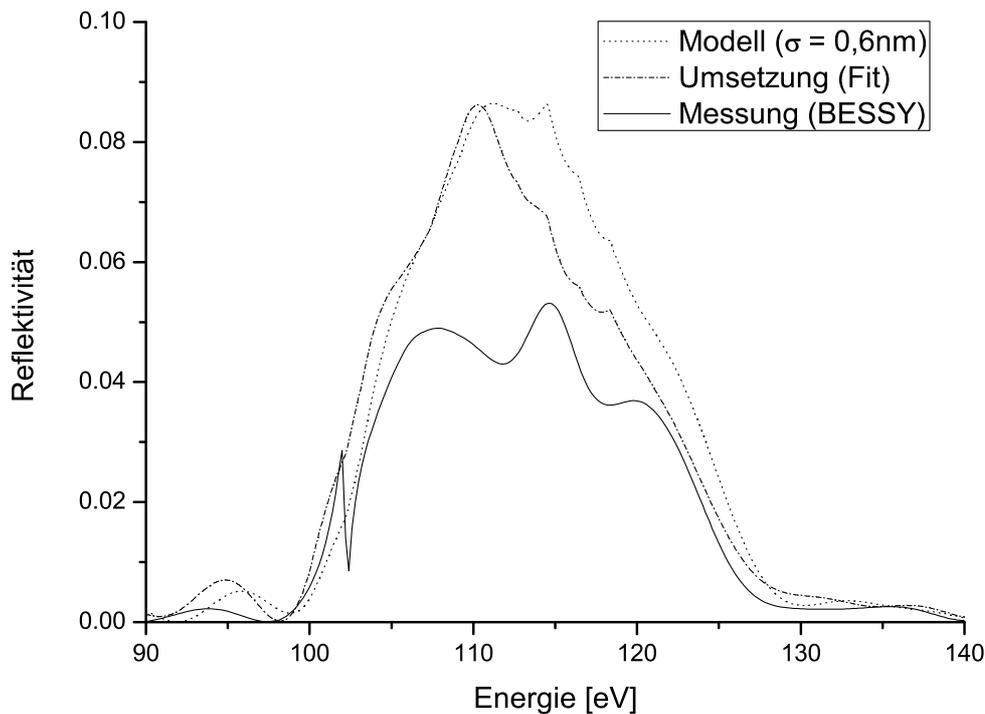


Abbildung 6.20: Vergleich der Reflektivität des theoretischen Modells, der berechneten Reflektivität aus GIXRR und XUV-Reflektivität gemessen am BESSY bei senkrechtem Einfall der aperiodischen Multischicht

Diese Diskrepanz zwischen berechnetem und gemessenem Reflektivitätsprofil kann nicht durch Schichtdickenfehler während der Herstellung, Messfehler der Reflektivität im XUV oder Fehler in den gefitteten Daten aus GIXRR begründet werden. Die Messdaten aus GIXRR (vgl. Abbildung 6.18) zeigen keine scharfe Absorptionskante, wie sie bei der Messung im XUV bei 102,5 eV auftritt und somit ist der Reflektivitätseinbruch an die Energie gekoppelt. Da sowohl bei der Modellerstellung, als auch bei den berechneten Reflektivitäten aus GIXRR keine starke Absorption beobachtet werden konnte, ist davon auszugehen, dass die verwendeten optischen Konstanten in diesem Energiebereich von den experimentellen Beobachtungen signifikant abweichen. Sowohl die optischen Konstanten von *Henke et al.* [48], als auch aktualisierte Daten von *Seely et al.* [51] berücksichtigen nicht ausreichend die Bindungsenergie des Niveaus $4d_{5/2}$ von Lanthan, welche bei 102,5 eV liegt [40]. Die Absorption und damit die Senkung der Reflektivität $> 102,5$ eV ist deutlich stärker, als theoretische Betrachtungen vorhersagen. Statt der

erwarteten Reflektivität von 8,6% zeigt die Messung im XUV-Bereich eine Reflektivität von $5,3 \pm 0,1\%$. Die aus GIXXR-Daten erwartete spektrale Bandbreite (FWHM) von $\Delta E = 16,7$ eV wurde durch die Senkung der absoluten Reflektivität allerdings auf $\Delta E = 19,7$ eV erhöht (vgl. Abbildung 6.21). Die Fläche unter der Reflektivitätskurve beträgt 0,99 eV.

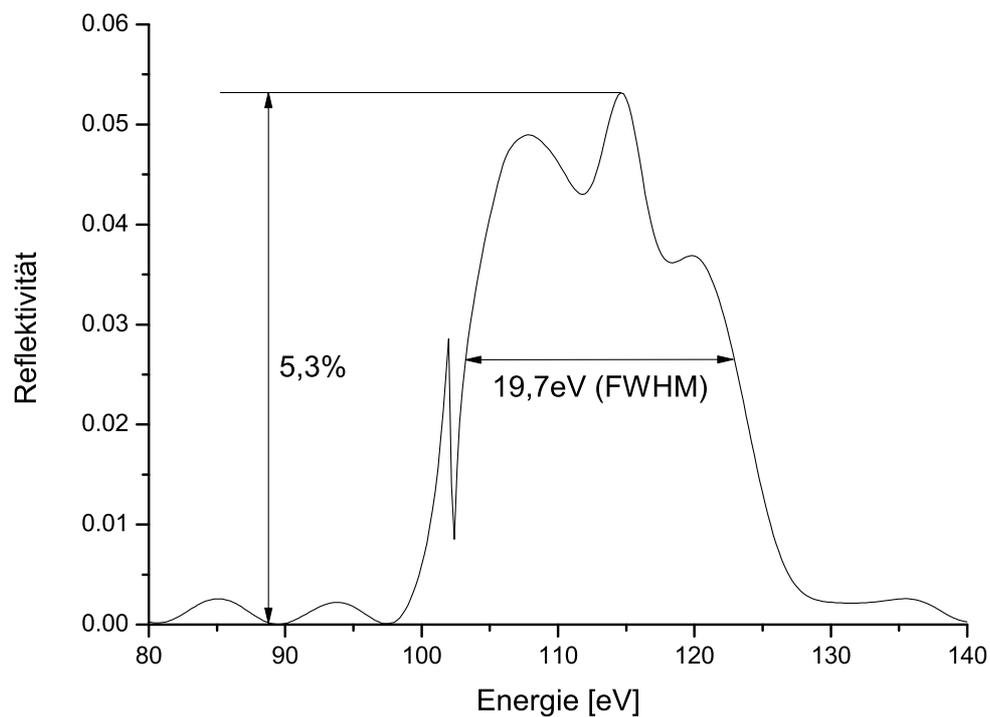


Abbildung 6.21: XUV-Reflektivität gemessen am BESSY der aperiodischen Multischicht ($N = 10$) bei 115 eV bei senkrechtem Einfall

Um den Einfluss der Absorptionskante bei $E_{4d_{5/2}} = 102,5$ eV zu umgehen, wurde ein weiteres Modell, optimiert auf eine hohe spektrale Bandbreite, umgesetzt. Für dieses Multischichtsystem ($N = 10$) wurden die Schichtdicken verringert, um die energetische Lage der Reflektivität zu höheren Energien zu verschieben. Die einzelnen Schichtdicken sind in der folgenden Tabelle dargestellt.

Tabelle 6.5: Berechnete Schichtdicken in nm für eine weitere ideale aperiodische Multischicht

Periode	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
La	2,16	2,30	1,98	2,05	1,99	2,15	2,15	2,12	2,04	0,83
B ₄ C	15,02	2,45	16,06	2,59	2,68	2,76	2,80	2,94	3,15	3,01

Über den Fit mit dem genetischen Algorithmus an die Messdaten aus GIXRR (vgl. Abbildung 6.22) lassen sich die einzelnen Schichtdicken der hergestellten Multischicht extrahieren. Diese sind zusammen mit dem theoretischen Modell in Abbildung 6.23 dargestellt.

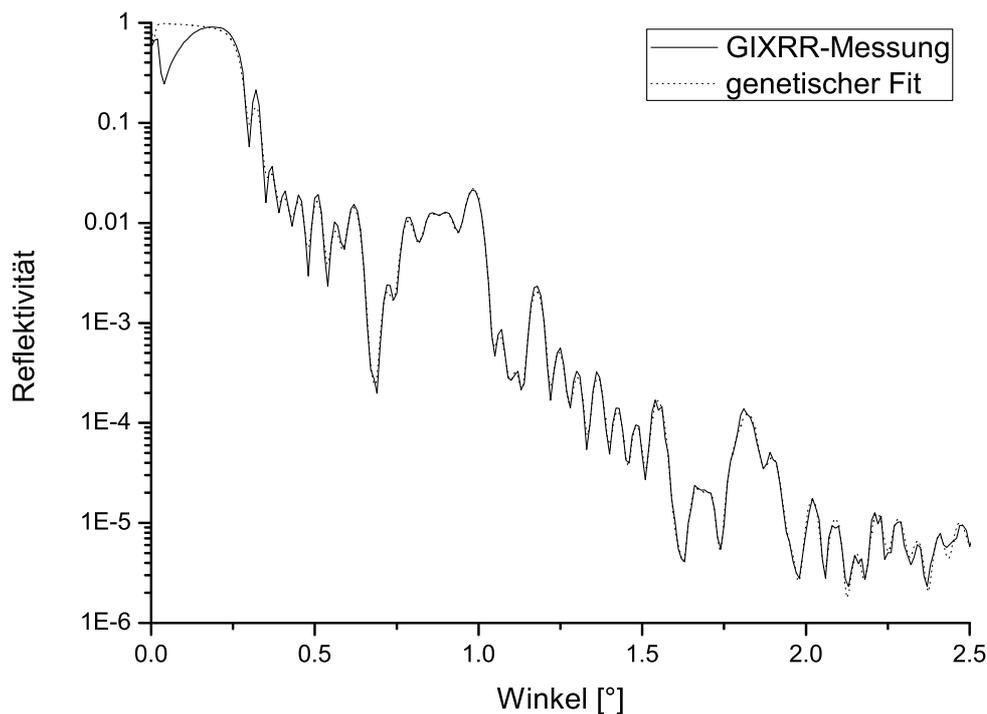


Abbildung 6.22: GIXRR-Messdaten der aperiodischen Multischicht aus Tabelle 6.5 und Fit eines Modells an diese Daten mit Hilfe des genetischen Algorithmus

Die Abweichung der einzelnen Schichten in Bezug auf das simulierte Modell ist wiederum unterhalb von 0,5 nm.

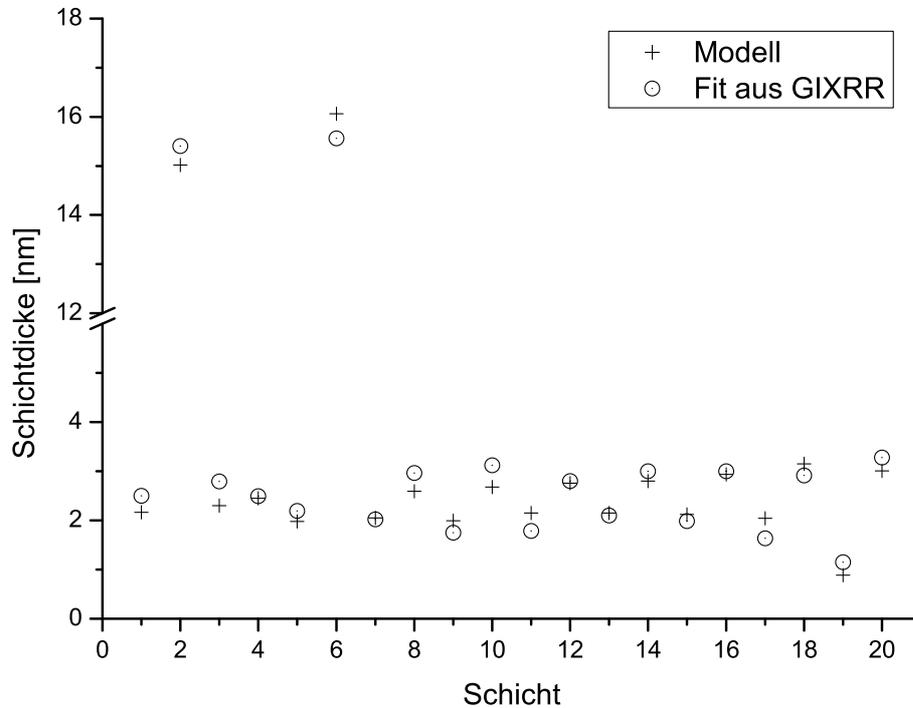


Abbildung 6.23: Berechnete Schichtdicken eines weiteren aperiodischen Multischichtstapels („Soll-Wert“) und gefittete Schichtdicken aus GIXRR. Der Fehler des Fits (2%) liegt innerhalb der Ausmaße der verwendeten Symbole

In Abbildung 6.24 die aus dem GIXRR-Fit bestimmte Reflektivitätsprofil, die am BESSY gemessene XUV-Reflektivität bei nahezu senkrechtem Einfall und die ursprünglich simulierte Reflektivität des Modells dieses Röntgenspiegels dargestellt. Dieses Multischichtsystem weist eine Peak-Reflektivität von $3,14 \pm 0,06\%$ auf. Die spektrale Bandbreite beträgt $\Delta E = 26,5$ eV. Die geringen Abweichungen zwischen der Reflektivitätskurve aus dem Fit der GIXRR-Daten und der Messung der Reflektivität am BESSY ist ebenfalls auf die Diskrepanzen der optischen Konstanten zurückzuführen. Durch diese Abweichungen ist eine Aussage zu mittleren Rauigkeiten nicht exakt möglich. Die angenommenen Rauigkeiten für den Fit aus den GIXRR-Daten liegen bei $0,7$ nm. Die Fläche unter der Reflektivitätskurve beträgt $0,62$ eV.

Der Verlauf der Phase kann über Messungen am BESSY nicht extrahiert werden, eine Bestimmung aus dem Fit der GIXRR-Daten ist prinzipiell möglich, aber auf Grund der Abweichungen in der Reflektivität für diesen Energiebereich nicht sinnvoll. Mit diesen Messungen wurde gezeigt, dass die Umsetzung von aperiodischen La/B₄C-Multschichten möglich ist. Insbesondere Schichtsysteme mit einer Optimierung hinsichtlich einer extrem hohen spektralen Bandbreite wurden gezeigt.

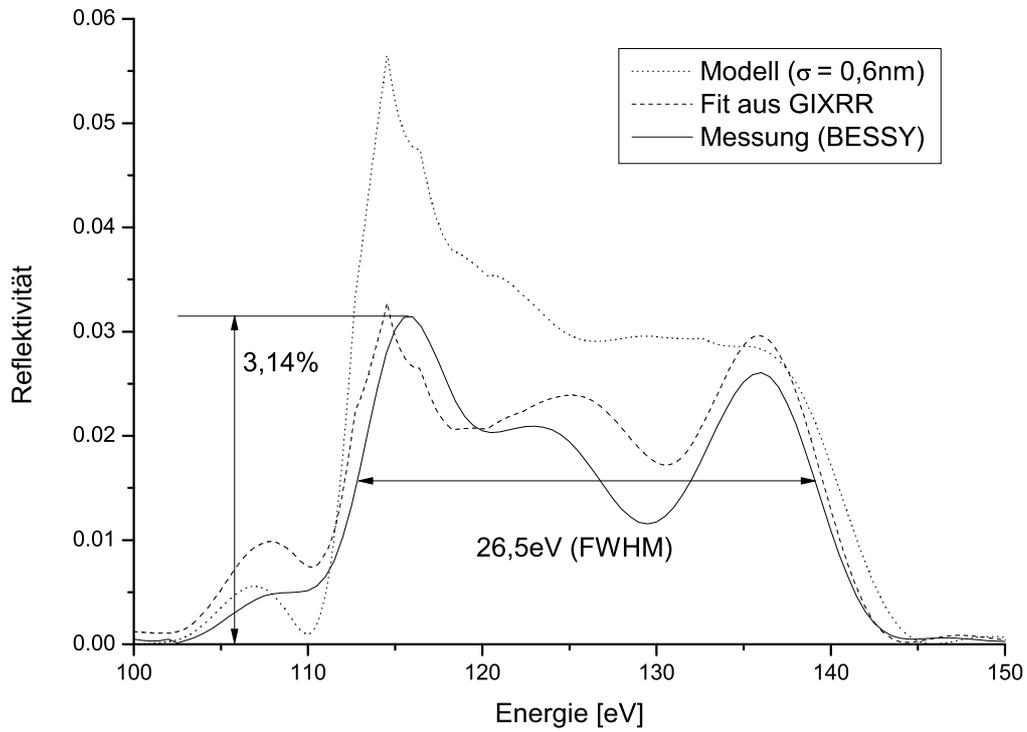


Abbildung 6.24: XUV-Reflektivität bei senkrechtem Einfall einer aperiodischen Multischicht ($N = 10$) optimiert auf hohe spektrale Bandbreite gemessen am BESSY

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Schichtsysteme aus Lanthan und Borcarbid hergestellt und analysiert. Hierzu musste die vorhandene In-Situ Schichtdickenkontrolle optimiert und zusätzlich eine weitere Kontrollmöglichkeit (Ellipsometrie) eingeführt werden. Mit Hilfe einer eingesetzten PID-Regelung und eines Fits an die Messwerte der In-Situ-Röntgenreflektometrie war eine vollständige Automatisierung der Schichtherstellung möglich. Es wurden periodische Lanthan-Borcarbid Systeme mit einer energetischen Lage des Reflektivitätsmaximums bei senkrechtem Einfall zwischen 100 und 200 eV und Perioden von $N = 10$ bis $N = 110$ hergestellt und mittels verschiedener Methoden auf Schichtbeschaffenheit, chemische Zusammensetzung, Rauigkeiten und Reflektivitäten untersucht. Dabei wurde festgestellt, dass sich sowohl in den Borcarbid-Schichten, als auch in den Lanthan-Schichten Sauerstoff einlagert. Dies führt neben bekannten Einflüssen zu einer weiteren geringen Reflektivitätsminderung. Es wurden Reflektivitäten bei nahezu senkrechtem Einfall ($\theta = 89^\circ$) von 18,3% (bei 186 eV) bis zu 27,2% (bei 105 eV) erreicht. Durch eine Variation des Einfallswinkels konnte die gemessene Reflektivität auf bis zu 45,1% gesteigert werden. Weiterhin wurde der Einfluss von beschleunigten Kryptonionen auf die Einzelschichten einer Multischicht während der Herstellungsprozedur untersucht. Dieses Polieren der jeweiligen Einzelschichten führte zu unterschiedlichen Ergebnissen. Während sich die Rauigkeit von Borcarbid-Schichten durch diesen Vorgang erhöht und die Schichten aufgeweitet werden, lassen sich die Rauigkeiten der Lanthan-Schichten bei Wahl einer geeigneten kinetischen Energie ($E_{kin} = 50$ eV) minimieren. Es wurde so gezeigt, dass die durchschnittliche Rauigkeit einer Lanthan-Borcarbid-Multischicht mit Hilfe beschleunigter Kryptonionen von 0,77 nm auf 0,69 nm gesenkt werden kann. Dieses führt bei dem gezeigten Beispiel zu einer absoluten Reflektivitätssteigerung von 7,05% auf 9,65%, welches einem relativem Anstieg bezogen auf die Reflektivität der nicht polierten Multischicht von 36,9% entspricht.

Mit Hilfe der In-situ-Ellipsometrie wurde gezeigt, dass dünne Schichten aus den Materialien Lanthan und Borcarbid, hergestellt mit Elektronenstrahlverdampfung, nicht Monolage für Monolage aufwachsen, sondern kompakte Schichten erst aus einem Inselwachstum entstehen. Die optischen Konstanten bei einer Wellenlänge von $\lambda = 632,8$ nm und ausreichender Schichtdicke wurden hierzu für beide Materialien zu $\tilde{n}_{La} = 2,24(\pm 0,04) + 4,19(\pm 0,03)i$ und $\tilde{n}_{B_4C} = 2,84(\pm 0,04) + 0,33(\pm 0,02)i$ bestimmt. Diese Brechungsindizes weichen im Bereich dünner Schichten von den Werten für dicke Schichten stark ab, erst ab ca. 30 nm stellen sich die genannten Werte als konstant ein. Daher wurden Modelle erstellt, um sowohl diesen Zusammenhang als auch die Entstehung von Mischschichten und Rauigkeiten zu simulieren. Mit Hilfe dieser Vorarbeit konnten aperiodische Multischichtsysteme

mit einer mittleren Genauigkeit von $< 0,5$ nm hergestellt werden. Die gezeigten Reflektivitäten dieser aperiodischen Multischichtsysteme weisen eine spektrale Bandbreite von $\Delta E = 19,7$ eV ($R = 5,3\%$) beziehungsweise $\Delta E = 26,5$ eV ($R = 3,14\%$) auf. Durch Vergleiche dieser Messungen mit simulierten Reflektivitätsverläufen konnte gezeigt werden, dass die üblichen Streufaktoren aus Datenbanken von Lanthan im Bereich des 4d-Niveaus nicht ausreichend präzise genug sind. Durch Transmissionsmessungen an Lanthan-Einzelschichten könnten diese allerdings korrigiert werden.

Aufbauend auf diese Arbeit können nun sowohl periodische als auch aperiodische La/B₄C-Multischichtsysteme mit Hilfe einer In-situ Schichtdickenkontrolle reproduzierbar hergestellt werden. In Abhängigkeit von der energetischen Lage sollten mit den hier gezeigten Rauigkeiten, welche durch Ionenpolieren der Lanthan-Oberflächen auf $0,69$ nm gesenkt wurden, Reflektivitäten periodischer La/B₄C-Schichtsysteme bei senkrechtem Einfall bis über 30% sowohl bei 110 eV ($N = 50$, $d = 5,6$ nm) als auch bei 186 eV ($N = 150$, $d = 3,36$ nm) erreicht werden. Es ist zu erwarten, dass die gezeigten Reflektivitäten der aperiodischen Schichtsysteme durch die Glättung der Lanthan-Einzelschichten durch Ionenbeschuss analog zu den periodischen Multischichten ebenfalls um den Faktor $\approx 1,3$ zu steigern sind.

Anhang

Im Zuge der Erweiterung der Vakuumanlage um eine zusätzliche In-situ-Schichtdickenkontrolle, des Ellipsometers, wurde die Steuerungssoftware aller Komponenten von einer auf Linux basierten C bzw. C++ Programmierung auf Labview¹ unter Windows XP umgestellt. Zu der Umstellung bzw. Erweiterung zählen folgende Komponenten:

- Ansteuerung des Verdampfers über eine serielle Schnittstelle (RS232)
- Steuerung der Shutter und Auslesen des Proportionalzählers über eine Multifunktionskarte
- Auslesen des Schwingquarzes über GPIB (IEC-625-Bus)
- Implementierung einer PID-Regelung für die Aufdampfrate
- Implementierung eines Levenberg-Marquardt-Algorithmus zum Fit der In-Situ Daten
- Verknüpfung der Steuerungssoftware mit der Software für das Ellipsometer mittels ActiveX

Die Kommunikation des Steuerrechners mit der Verdampferhardware wurde über eine serielle Schnittstelle realisiert. Eingebunden in die Benutzeroberfläche lässt sich so direkt der Emissionsstrom der beiden Elektronenstrahlverdampfer einstellen und regeln. Die einzelnen pneumatischen Shutter der Aufdampfapparatur werden über die digitalen Ausgänge einer Multifunktionskarte angesteuert. Der Timer dieser Multifunktionskarte liest fortwährend die Zählrate des Proportionalzählers aus. Das sich in der Vakuumkammer befindende Schichtdickenmessgerät (Schwingquarz) zur Bestimmung einer Aufdampfrate wurde über einen „General Purpose Interface Bus“ (GPIB) angesteuert und ausgelesen. Die Kommunikation mit der Software des Ellipsometers wurde eine ActiveX-Schnittstelle umgesetzt. Die grafische Benutzeroberfläche der Verdampfer-Software ist in Abbildung A.1 dargestellt.

¹Labview 8.5 - Fa. National Instruments

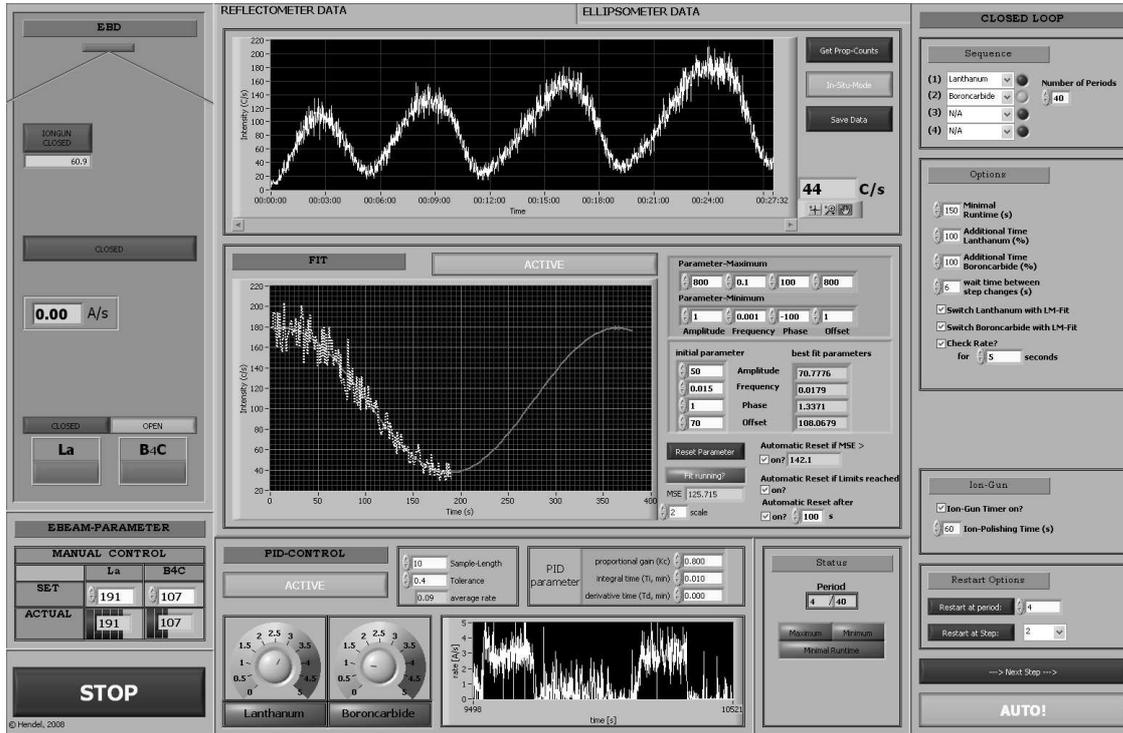


Abbildung A.1: Benutzeroberfläche der Verdampfersteuerung mit Einstellungen zum Emissionsstrom (links unten), Shutteransteuerung (links), Zählraten des Proportionalzählers (oben mitte), Levenberg-Marquardt-Algorithmus zum Fitten (mitte), PID-Regelung der Aufdampfrate (unten mitte) und Einstellungen zur vollautomatischen Multischichtherstellung und Ionenpolitur (rechts)

Eine entscheidende Rolle bei der Erhöhung der Reproduzierbarkeit und Qualität der Multischichten kam der automatischen Regelung der Verdampferate zu. Daher wurde eine Proportional-Integral-Differential-Regelung (PID) eingesetzt. Dazu wird die Stellgröße u (Verdampferstrom) folgendermaßen berechnet [136, Seite 1]:

$$u(t) = K_P e(t) + K_I \int_0^t e(\tau) d\tau + K_D \frac{de(t)}{dt} \quad (\text{A.1})$$

mit

$$K_I = \frac{K_P}{T_N} \quad (\text{A.2})$$

und

$$K_D = K_P \cdot T_V \quad (\text{A.3})$$

Hier sind $e(t)$ der Regelfehler, K_P, K_I, K_D die Verstärkungsfaktoren, T_N die Nachstell- und T_V die Vorhaltezeit. Diese automatische Regelung liest regelmäßig die Aufdampfrate an einem Schwingquarz aus (Ist-Wert) und regelt den Emissionsstrom des Elektronenstrahlverdampfers auf einen vorgegebenen Soll-Wert. Durch diese Rückkopplung können

insbesondere bei der Verdampfung von Borcarbid die für die In-Situ Röntgenreflektometrie notwendigen konstanten Aufdampfzeiten realisiert werden.

Analog zu [31] wurde ein Levenberg-Marquardt-Algorithmus eingesetzt, um die Umschaltpunkte für die beiden Materialien bei Kontrolle der Schichtdicke mittels Röntgenreflektometrie optimal zu treffen. Hierzu wurde die Funktion

$$N(t) = A \cdot \sin(B \cdot t + C) + D \tag{A.4}$$

an den aktuellen Zählratenverlauf $N(t)$ der Einzelschicht gefittet. Die freien Parameter Amplitude A , Frequenz B , Phase C und Achsenabschnitt D werden dabei ständig neu berechnet. Aus den berechneten Extrema dieser Funktion lassen sich die Umschaltpunkte für die beiden Materialien bestimmen. Da die Güte des Levenberg-Marquardt-Algorithmus stark von den Anfangsparametern abhängig ist und lokale Minima einen präzisen Fit behindern, können zusätzlich Grenzen für alle freien Parameter vorgegeben werden. Sollte der Fit diese Grenzen erreichen, startet er automatisch bei den Anfangsparametern neu. Durch die Vorgabe einer Mindestlaufzeit und dem Neustart bei Überschreiten einer bestimmten mittleren quadratischen Abweichung lassen sich so ausreichend präzise Fitfunktionen und damit Umschaltpunkte finden. Des Weiteren wurde ein geschlossener Kreislauf („closed loop“) für die Herstellung der Multischichten integriert. Mit diesem lassen sich vollautomatisch Multischichten beliebiger Periodenzahl und Ionenpolierparameter umsetzen. Der Programmablaufplan (PAP) für diese Prozedur ist in Abbildung A.2 dargestellt.

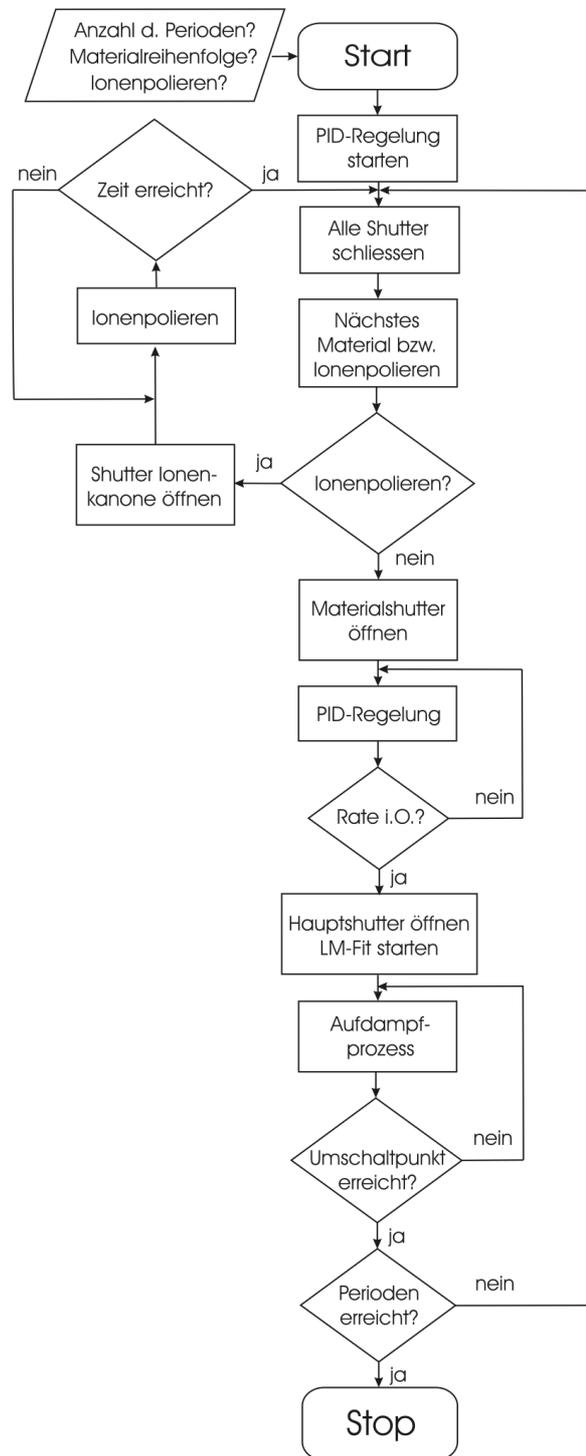


Abbildung A.2: Programmablaufplan der verwendeten Software zur vollautomatischen Herstellung von Multischichten

Literaturverzeichnis

- [1] B.L. Henke, E.M. Gullikson und J.C. Davis. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 54(2):181–342, 1993.
- [2] W.H. Bragg und W.L. Bragg. The Reflection of X-Rays by Crystals. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 88(605):428–438, 1913.
- [3] E. Spiller. Low-loss reflection coatings using absorbing materials. *Applied Physics Letters*, 20:365–367, 1972.
- [4] D. Attwood. *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation*. Cambridge University Press, 2000.
- [5] T. Miura, K. Murakami, K. Suzuki, Y. Kohama, K. Morita, K. Hada, Y. Ohkubo und H. Kawai. Nikon EUVL development progress update - art. no. 69210M. *Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers*, 6921:M9210–M9210, 2008.
- [6] S. Uzawa, H. Kubo, Y. Miwa, T. Tsuji, H. Morishima, K. Kajiyama und T. Hasegawa. Canon's development status of EUVL technologies - art. no. 69210N. *Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers*, 6921:N9210–N9210, 2008.
- [7] J. Lin, N. Weber, J. Maul, S. Hendel, K. Rott, M. Merkel, G. Schoenhense und U. Kleineberg. At-wavelength inspection of sub-40 nm defects in extreme ultraviolet lithography mask blank by photoemission electron microscopy. *Optics Letters*, 32(13):1875–1877, 2007.
- [8] J.F. Seely, M.P. Kowalski, R.G. Cruddace, K.F. Heidemann, U. Heinzmann, U. Kleineberg, K. Osterried, D. Menke, J.C. Rife und W.R. Hunter. Multilayer coated laminar grating with 16% normal incidence efficiency in the 150Åwavelength region. *Applied Optics*, 36(31):8206–8213, 1997.
- [9] P. Siffalovic, M. Drescher, M. Spieweck, T. Wiesenthal, Y.C. Lim, R. Weidner, A. Elizarov und U. Heinzmann. Laser-based apparatus for extended ultraviolet femto-second time-resolved photoemission spectroscopy. *Review of Scientific Instruments*, 72(1):30–35, 2001.
- [10] Y.C. Lim. *Herstellung und Charakterisierung von schmalbandigen EUV-Multischichtenspiegeln für Anwendungen mit fs-HHG-Strahlung*. Dissertation, Universität Bielefeld, 2001.

- [11] M. Drescher, G. Snell, U. Kleineberg, H.-J. Stock, N. Müller, U. Heinzmann und N.B. Brookes. Characterization of the helical undulator HELIOS I in the 520 to 930 eV range using a multilayer polarimeter. *Review of Scientific Instruments*, 68:1939–1944, 1997.
- [12] P. Dehz. Polarizers and polarimeters in the X-UV range. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 261(1-2), 1987.
- [13] D. Menke. *Mo/Si Transmissionsmultilayer als Phasenschieber für XUV-Strahlung einer Energie von 94eV*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1990.
- [14] E. Spiller, J. Wilczynski, D.G. Stearns, L. Golub und G. Nystrom. Imaging performance of multilayer x-ray mirrors. *Applied Physics Letters*, 61(13):1481–1483, 1992.
- [15] O. Wehmeyer. *Asphärische Multilayer-Spiegel mit lateraler Periodendickenvariation als Kondensoreflexionsoptiken für laserinduzierte Plasmalichtquellen: Anwendung im Labor-EUV-Photoemissions-Elektronenmikroskop*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1999.
- [16] R.B. Hoover, D.L. Shealy, B.R. Brinkley, P.C. Baker, T.W. Barbee Jr. und A.B.C. Walker Jr. Development of the water window imaging x-ray microscope utilizing normal incidence multilayer optics. *Optical Engineering*, 30(8):1086–1093, 1991.
- [17] A.B.C. Walker Jr., T.W. Barbee Jr., D.C. Keith, R.B. Hoover und J.F. Lindholm. Soft X-Ray Image of the solar Corona with normal incidence Cassegrain Multilayer Telescope. *Science*, 241(4874):1781–1787, 1988.
- [18] T. Yamazaki, Y. Takizawa, H. Kunieda, K. Yamashita, K. Ikeda, K. Misaki, M. Nakamura, I. Yoshikawa und Y. Yamaguchi. Normal incidence multilayer telescope for galactic EUV observation. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 80:299–302, 1996.
- [19] T. Okajima, K. Tamura, Y. Ogasaka, K. Haga, S. Takahashi, S. Ichimaru, H. Kito, S. Fukuda, A. Goto, K. Nomoto, H. Satake, S. Kato, Y. Kamata, A. Furuzawa, F. Akimoto, T. Yoshioka, K. Kondo, Y. Haba, T. Tanaka, K. Wada, N. Hamada, M. Hudaverdi, Y. Tawara, K. Yamashita, P.J. Serlemitsos, Y. Soong, K.-W. Chan, S.M. Owens, F.B. Berendse, J. Tueller, K. Misaki, R. Shibata, H. Mori, K. Itoh, H. Kunieda und Y. Namba. Characterization of the Supermirror Hard-X-Ray Telescope for the InFOC μ S Balloon Experiment. *Applied Optics*, 41(25):5417–5426, 2002.
- [20] J. Gautier, A.S. Morlens, P. Zeitoun, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, J.P. Goddet, S. Sebban, F. Delmotte, M.F. Ravet und F. Bridou. Normal incidence multilayer telescope for galactic EUV observation. *Proceedings of SPIE*, 6705:67050C, 2007.
- [21] M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, A.J. Verhoef, V. Yakovlev, M.F. Kling, J. Rauschenberger, N.M. Kabachnik, H. Schroder, M. Lezius, K.L. Kompa, H.G.

- Muller, M.J.J. Vrakking, S. Hendel, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher und F. Krausz. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature*, 446(7136):627–632, 2007.
- [22] A.L. Cavalieri, N. Mueller, T. Uphues, V.S. Yakovlev, A. Baltuska, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blumel, R. Holzwarth, S. Hendel, M. Drescher, U. Kleineberg, P.M. Echenique, R. Kienberger, F. Krausz und U. Heinzmann. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, 449(7165):1029–1032, 2007.
- [23] T. Uphues, M. Schultze, M.F. Kling, M. Uiberacker, S. Hendel, U. Heinzmann, N.M. Kabachnik und M. Drescher. Ion-charge-state chronoscopy of cascaded atomic Auger decay. *New Journal of Physics*, 10(025009), 2008.
- [24] A. Wonisch, U. Neuhäusler, N.M. Kabachnik, T. Uphues, M. Uiberacker, V. Yakovlev, F. Krausz, M. Drescher, U. Kleineberg und U. Heinzmann. Design, fabrication, and analysis of chirped multilayer mirrors for reflection of extreme-ultraviolet attosecond pulses. *Applied Optics*, 45(17):4147–4156, 2006.
- [25] A.-S. Morlens, P. Balcou, P. Zeitoun, C. Valentin, V. Laude und S. Kazamias. Compression of attosecond harmonic pulses by extreme-ultraviolet chirped mirrors. *Optical Letters*, 30(12):1554–1556, 2005.
- [26] A.-S. Morlens, R. López-Martens, O. Boyko, P. Zeitoun, P. Balcou, K. Varjú, E. Gustafsson, T. Remetter, A. L’Huillier, S. Kazamias, J. Gautier, F. Delmotte und M.-F. Ravet. Design and characterization of extreme-ultraviolet broadband mirrors for attosecond science. *Optical Letters*, 31(10):1558–1560, 2006.
- [27] E. Spiller, A. Segemüller, J. Rife und R.-P. Haelbich. Controlled fabrication of multilayer soft-x-ray mirrors. *Applied Physics Letters*, 37(11):1048–1050, 1980.
- [28] H. Müller. *Herstellung ausgewählter Metall-Silizium Röntgenspiegel und Berechnung ihrer Reflektivität*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1990.
- [29] A. Kloidt. *Herstellung von Multischichtsystemen durch Elektronenstrahlverdampfung für die Anwendung als Röntgenspiegel*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1993.
- [30] H.-J. Stock. *Herstellung von Multischicht-Röntgenspiegeln für verschiedene Wellenlängenbereiche von 2 bis 30 nm*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1998.
- [31] T.E. Westerwalbesloh. *Optimierung der Schichtstrukturen, Grenzflächen und Pufferschichten von Mo/Si-Multischichten in Hinsicht auf die EUV Reflektivität*. Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [32] F. Hamelmann. *Herstellung von Metall-Silizium-Multischichten mit dem MOCVD-Verfahren*. Dissertation, Universität Bielefeld, 2000.
- [33] F. Hamelmann, G. Haindl, J. Schmalhorst, A. Aschentrup, E. Majkova, U. Kleineberg, U. Heinzmann, A. Klipp, P. Jutzi, A. Anopchenko, M. Jergel und S. Luby.

- Metal oxide/silicon oxide multilayer with smooth interfaces produced by in-situ controlled plasma-enhanced MOCVD. *Thin Solid Films*, 358(1-2):90–93, 2000.
- [34] S.V. Gapanov, F.V. Garin, S.A. Gusev, A.V. Kochemasov, Y.Y. Platonov, N.N. Salashchenko und E.S. Gluskin. Multilayer mirrors for soft x-ray and VUV radiation. *Nucl. Instr. Meth.*, 208:227–231, 1983.
- [35] A.D. Akhsakhalyan, S.V. Gapanov, S.A. Gusev, Y.Y. Platonov, N.N. Salashchenko und N.I. Polushkin. Multilayer x-ray mirrors for the wavelength range 25 - 44 Å. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 261(1-2):75–77, 1987.
- [36] R. Dietsch, H. Mai, W. Pompe und S. Völlmar. A modified plasma source for controlled layer thickness synthesis in laser pulse vapour deposition (LPVD). *Advanced Materials for Optics and Electronics*, 2(1-2):19–29, 1993.
- [37] S.P. Vernon, D.G. Stearns und R.S. Rosen. Ion-assisted sputter deposition of molybdenum-silicon multilayers. *Applied Optics*, 32(34):6969–6974, 1993.
- [38] C. Montcalm, B.T. Sullivan, H. Pepin, J.A. Dobrowolski und M. Sutton. Extreme-ultraviolet Mo/Si multilayer mirrors deposited by radio-frequency-magnetron sputtering. *Applied Optics*, 33(10):2057–2068, 1994.
- [39] P.B. Mirkarimi. Stress, reflectance and temporal stability of sputter-deposited Mo/Si an Mo/Be multilayer films for extreme ultraviolet lithography. *Optical Engineering*, 38(7):1246–1259, 1999.
- [40] A.C. Thompson, D.T. Attwood, E.M. Gullikson, M.R. Howells, J.B. Kortright, A.L. Robinson, J.H. Underwood, K.-J. Kim, J. Kirz, I. Lindau, P. Pianetta, H. Winick, G.P. Williams und J.H. Scofield. *X-Ray Data Booklet*. Lawrence Berkeley National Laboratory, 2001.
- [41] A.P. Zwicker, S.P. Regan, M. Finkenthal, H.W. Moos, E.B. Saloman, R. Watts und J.R. Roberts. Peak reflectivity measurements of W/C, Mo/Si, and Mo/B₄C multilayer mirrors in the 8-190-Å range using both K α line and synchrotron radiation. *Applied Optics*, 29(25):3694–3698, 1990.
- [42] T. Westerwalbesloh. *Aufbau eines rasterbaren Elektronenstrahlverdampfers zur Herstellung von Mo/B₄C und Si/B₄C Multischicht-Röntgenspiegeln*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1999.
- [43] A. Patelli, J. Ravagnan, V. Rigato, G. Salmaso, D. Silvestrini, E. Bontempi, L.E. Depero. Structure and interface properties of Mo/B₄C/Si multilayers deposited by rf-magnetron sputtering. *Applied Surface Science*, 238(1-4):262–268, 2004.
- [44] H. Maury, P. Jonnard, J.-M. Andre, J. Gautier, M. Roulliay, F. Bridou, F. Delmotte, M.-F. Ravet, A. Jerome und P. Holliger. Non-destructive X-ray study of the

- interphases in Mo/Si and Mo/B₄C/Si/B₄C multilayers. *Thin Solid Films*, 514(1-2):278–286, 2006.
- [45] D. Haeussler, E. Spiecker, W. Jaeger, M. Stoermer, R. Bormann, C. Michaelsen, J. Wiesmann, G. Zwicker, R. Benbalagh, J.-M. Andre und P. Jonnard. Quantitative TEM characterizations of La/B₄C and Mo/B₄C ultrathin multilayer gratings by the geometric phase method. *Microelectronic Engineering*, 84(3):454–459, 2007.
- [46] A.G. Michette. *Optical Systems for Soft X Rays*. Plenum Press, New York, 1986.
- [47] B.L. Henke, E.M. Gullikson und J.C. Davis. X-Ray Interactions - Photoabsorption, Scattering, Transmission and Reflection at $E = 50\text{-}30,000$ eV, $Z = 1\text{-}92$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 55(2):349–349, 1993.
- [48] B.L. Henke, E.M. Gullikson und J.C. Davis. X-Ray Interactions - Photoabsorption, Scattering, Transmission and Reflection at $E = 50\text{-}30,000$ eV, $Z = 1\text{-}92$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 54(2):181–342, 1993.
- [49] W. Demtröder. *Experimentalphysik 2 - Elektrizität und Optik*. Springer Verlag, 2006.
- [50] Max Born, Emil Wolf. *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Pergamon Press Oxford, 1986.
- [51] J.F. Seely, Y.A. Uspenskii, B. Kjornrattanawanich und D.L. Windt. Coated photodiode technique for the determination of the optical constants of reactive elements: La and Tb. *Proc. SPIE*, 6317:T3170–T3170, 2006.
- [52] S. Rahn. *Konzeption, Aufbau und Inbetriebnahme eines Reflektometers zur ortsauflösenden Charakterisierung von EUV-Optikkomponenten mit lateral variablen Eigenschaften*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1998.
- [53] E. Spiller und A.E. Rosenbluth. Determination of thickness errors and boundary roughness from the measured performance of a multilayer coating. *Proceedings SPIE*, 563:221–235, 1985.
- [54] A.E. Rosenbluth und P. Lee. Bragg condition in absorbing x-ray multilayers. *Applied Physics Letters*, 40:466–468, 1982.
- [55] A. Wonisch. *Entwicklung gechirpter Multischicht-Spiegel für Attosekunden-Röntgenpulse*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2004.
- [56] Z. Knittl. *Optics of thin films*. J. Wiley & Sons, 1976.
- [57] E. Spiller. Coatings for the extreme UV and x-ray region. *IBM Research Report*, 1990.
- [58] D.L. Smith. *Thin Film Deposition*. McGraw-Hill, Inc., 1995.

- [59] D.G. Stearns. The scattering of x-rays from non-ideal multilayer structures. *J. Appl. Phys.*, 65:491–506, 1989.
- [60] A. Aschentrup. *Zusammenhang von strukturellen, chemischen und röntgenoptischen Eigenschaften mittels MOCVD und Elektronenstrahlverdampfung hergestellter Mo/Si und W/Si Multischichten*. Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [61] P. Debye. Über die Intensitätsverteilung in den mit Röntgenstrahlung erzeugten Interferenzbildern. *Verh. d. Deutsch. Phys. Ges.*, 15:738, 1913.
- [62] I. Waller. Zur Frage der Einwirkung der Wärmebewegung auf die Interferenz von Röntgenstrahlen. *Z. Physik*, 17:398, 1923.
- [63] H. Takenaka, S. Ichimaru, K. Nagai, T. Ohchi, H. Ito und E.M. Gullikson. Multilayer mirrors for μ -XPS using a Schwarzschild objective. *Surf. Interface Anal.*, 37(2):181–184, 2005.
- [64] J.C. Slater. Atomic Radii in Crystals. *J. Chem. Phys.*, 39:3199–3204, 1964.
- [65] R. Stuik, E. Loius, A.E. Yakshin, P.C. Görts, E.L.G. Maas, F. Bijkerk, D. Schmitz, F. Scholze, G. Ulm und M. Haidl. Peak and integrated reflectivity, wavelength and gamma optimization of Mo/Si, and Mo/Be multilayer, multielement optics for extreme ultraviolet lithography. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 17(6):2998–3002, 1999.
- [66] P. Siffalovic, M. Drescher, M. Spieweck, T. Wiesenthal, Y.C. Lim, R. Weidner, A. Elizarov und U. Heinzmann. Laser-based apparatus for extended ultraviolet femto-second time-resolved photoemission spectroscopy. *Rev. Sci. Instr.*, 72:30, 2001.
- [67] P. Siffalovic, M. Drescher und U. Heinzmann. Femtosecond time-resolved core-level photoelectron spectroscopy tracking surface photovoltage transients on p-GaAs. *Europhys. Lett.*, 60:924, 2002.
- [68] I.L. Beigman, A.S. Pirozhkov und E.N. Ragozin. Reflection of few-cycle x-ray pulses by aperiodic multilayer structures. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 4:433–439, 2002.
- [69] J. Schelten und K. Mika. Calculated reflectivities of super-mirrors. *Nucl. Instr. Meth.*, 160(2):287–294, 1979.
- [70] K. Yamashita, P.J. Serlemitsos, J. Tueller, S.D. Barthelmy, L.M. Bartlett, K.W. Chan, A. Furuzawa, N. Gehrels, K. Haga, H. Kunieda, P. Kurczynski, G. Lodha, N. Nakajo, N. Nakamura, Y. Namba, Y. Ogasaka, T. Okajima, D. Palmer, A. Parsons, Y. Soong, C.M. Stahl, H. Takata, K. Tamura, Y. Tawara und B.J. Teegarden. Supermirror hard-X-ray telescope. *Appl. Opt.*, 37:8067–8073, 1998.
- [71] T. Kuhlmann, S.A. Yulin, T. Feigl, N. Kaiser, H. Bernitzki und H. Lauth. Design and fabrication of broadband EUV multilayer mirrors. *Proc. SPIE*, 4688:509–515, 2002.

-
- [72] T. Uphues. *Assembly and application of an instrument for attosecond time-resolved ionization chronoscopy*. Dissertation, Universität Bielefeld, 2006.
- [73] P.W.M. French. The Generation of Ultrashort Laser-Pulses. *Rep. Prog. Phys.*, 58:169–262, 1995.
- [74] A. Klöidt, H.-J. Stock, U. Kleineberg, T. Döhring, M. Pröpper, B. Schmiedeskamp und U. Heinzmann. Smoothing of Interfaces in Ultrathin Mo/Si Multilayers by Ion Bombardment. *Thin Solid Films*, 228:154–157, 1993.
- [75] P. Sigmund. Theory of Sputtering - Sputtering Yield of Amorphous and Polycrystalline Targets. *Phys. Rev.*, 184:383–416, 1969.
- [76] R.M. Bradley und J.M.E. Harper. Theory of ripple topography induced by ion bombardment. *J. Vac. Sci. Techn. A.*, 6:2390–2395, 1988.
- [77] G. Carter. The physics and applications of ion beam erosion. *J. Phys. D*, 34:1–22, 2001.
- [78] M.A. Makeev und A.L. Barabasi. Effect of surface roughness on the secondary ion yield in ion-sputtering. *App. Phys. Letters*, 73:2209–2211, 1998.
- [79] G. Carter und V. Vishnyakov. Roughening and ripple instabilities on ion-bombarded Si. *Phys. Rev. B*, 54:17647–17653, 1996.
- [80] P. Drude. *Beiträge in den “Annalen der Physik“*, 1887, 1888, 1893.
- [81] O. Auciello und A.R. Krauss (editors). *In Situ Real-Time Characterization of Thin Films*. John Wiley & Sons, Inc., 2001.
- [82] E. Hecht. *Optik*. Addison-Wesley, 1989.
- [83] *Guide to Using WVASE32[®]*. J.A. Woollam Co., Inc.
- [84] R.M.A. Azzam, N.M. Bashara. *Ellipsometry and Polarized Light*. North-Holland, 1989.
- [85] Sentech Instruments GmbH. *SpectraRay Help*. 2001.
- [86] F. Schäfers, M. Krumrey. REFLEC - A program to calculate VUV and soft x-ray optical elements and synchrotron radiation beamlines. *Technischer Bericht, BESSY TB 201*, pages 1–17, 1996.
- [87] Center for X-Ray Optics. <http://www-cxro.lbl.gov/>.
- [88] D.E. Goldberg. *Genetic Algorithms in Search, Optimization, and Machine Learning*. Addison-Wesley Longman, Bonn, 1989.
- [89] D. Whitley. *A Genetic Algorithm Tutorial*. Computer Science Department, Colorado State University, 1993.

- [90] R. Geile. *Konzeption und Programmierung neuer Komponenten für einen genetischen Algorithmus zur Berechnung von Röntgenspiegeln*. Bachelorarbeit, Universität Bielefeld, 2008.
- [91] H.-J. Stock. *Multischichten-Röntgenspiegel verschiedener Materialzusammensetzung und Größe und ihre thermische Stabilität*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1992.
- [92] AP&T. *Model EV 1-8 Electron Beam Source*. Nürtingen.
- [93] Telemark Inc. *Model 568 UHV Multi-Pocket Electron Beam Source*. Fremont USA.
- [94] AP&T. *Filamentstromversorgung FPS*. Nürtingen.
- [95] AP&T. *Hochspannungsversorgung Carrera 5*. Nürtingen.
- [96] AP&T. *Steuerelektronik Genius Pro*. Nürtingen.
- [97] Silchem Handelsgesellschaft mbH. *Datenblatt*. 2008.
- [98] H. Briehl. *Chemie der Werkstoffe*. Teubner Verlag, 2008.
- [99] D. Wandner. *Synthese, strukturelle und physikalische Charakterisierung von Seltenerdcarbiden*. Dissertation, Universität zu Köln, 2007.
- [100] A.F. Hollemann und E. Wiberg. *Lehrbuch der anorganischen Chemie*. de Gruyter Berlin, 1995.
- [101] R.J. Meyer et al. *Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie: Bor - Ergänzungsband*. Verlag Chemie GmbH, 1954.
- [102] E. Amberger et al. *Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry: Boron - Supplement Volume 2*. Springer-Verlag, 1981.
- [103] H.E. Robson und P.W. Gilles. The High Temperature Vaporization Properties of Boron Carbide and the Heat of Sublimation of Boron. *Journal of Physical Chemistry*, 68(5):983–989, 1964.
- [104] T.V. Hynes und M.N. Alexander. Nuclear Magnetic Resonance Study of beta-Rhombohedral Boron and Boron Carbide. *Journal of Chemical Physics*, 54:5296–5310, 1971.
- [105] G. Kirschstein et al. *Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, Seltenerd-elemente Teil B3: Sc, Y, La und Lanthanide*. Springer-Verlag, 1974.
- [106] F.H. Spedding und A.H. Daane. *Met. Rev.*, 5, 1960.
- [107] K.H.J. Buschow. *Philips Res. Rept.*, 20, 1965.
- [108] D.T. Peterson, J.A. Straatman. Lanthanum Hydride Phase System. *J. Phys. Chem.*, 70(9):2980 – 2984, 1966.

- [109] Austin Instruments, Inc. *persönliche Mitteilung*. 2008.
- [110] F. Bienert. *Optimierung der In-Situ Röntgenreflektometrie zur Verbesserung der Reproduzierbarkeit und der Reflexionseigenschaften von La/B₄C Röntgenspiegeln*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2008.
- [111] Bomco, Inc. *Bomco UHV Window*. Gloucester USA.
- [112] Sentech Instruments GmbH. *SE400advanced - Produktbeschreibung*.
- [113] U. Kleineberg. *Röntgenoptische Charakterisierung von Multilayer-Röntgenspiegeln und Multilayer-Röntgenreflexionsgittern*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1990.
- [114] Fa. Xenocs. *Datenblatt*. 2008.
- [115] F. Scholze, J. Tümmler, E. Gullikson und A. Aquila. Comparison of Extreme Ultraviolet Reflectance Measurements at CXRO and PTB. *Journal of Microlithography and Microfabrication and Microsystems*, 2:233, 2003.
- [116] F. Schäfers. *Persönliche Mitteilung während der Messzeit am BESSY*. 2008.
- [117] F. Schäfers. Multilayers for the EUV/Soft X-ray Range. *Physica B*, 283:119–124, 2000.
- [118] Philips Electron Optics. *Transmission Electron Microscope CM200*.
- [119] K. Hilgers. *Untersuchungen an Multischicht-Röntgenspiegeln durch AES-Tiefenprofilanalyse und Raster-AES*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1995.
- [120] H.H. Madden. Chemical information from Auger electron spectroscopy. *J. Vac. Sci.*, 18:677, 1981.
- [121] L.E. Davis, N.C. MacDonald, P.W. Palmberg, G.E. Riach, R.E. Weber. *Handbook of Auger Electron Spectroscopy*. Physical Electronics Division, Perkin-Elmer Corporation, 1978.
- [122] A. Gryzia. *Die Sputter-AES Messungen wurden freundlicherweise von A. Gryzia durchgeführt*. 2006-2008.
- [123] Oxford Instruments GmbH. *3cm RF Ion Source*. 1996.
- [124] M. Laß. *Ionenpolieren von La/B₄C-Röntgenspiegeln*. Bachelorarbeit, Universität Bielefeld, 2008.
- [125] A. Kloidt, K. Nolting, U. Kleineberg, B. Schmiedeskamp, U. Heinzmann, P. Müller und M. Kühne. Enhancement of the Reflectivity of Mo/Si Multilayer X-Ray Mirrors by Thermal Treatment. *Applied Physics Letters*, 58(23):2601–2603, 1991.
- [126] H.-J. Voorma, E. Louis, N.B. Koster und F. Bijkerk. Temperature Induced Diffusion in Mo/Si Multilayer Mirrors. *Journal of Applied Physics*, 83(9):4700–4705, 1998.

- [127] E. Louis, H.-J. Voorma, N.B. Koster, L. Shmaenok, F. Bijkerk, R. Schlatmann, J. Verhoeven, Y.Y. Platanov, G.E. van Dorssen und H.A. Padmore. Enhancement of Reflectivity of Multilayer Mirrors for Soft X-Ray Projection Lithography by Temperature Optimization and Ion Bombardment. *Microelectronic Engineering*, 23:215–218, 1994.
- [128] I. Kolina. *Das Ionenpolieren von Mo/Si-Röntgenspiegeln zur Verbesserung der Reflektivität*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1999.
- [129] W. Hachmann. *Die TEM-Aufnahmen wurden freundlicherweise von W. Hachmann erstellt*. 2006-2008.
- [130] W. Hachmann. *Die Messungen der EDX-Spektren wurden freundlicherweise von W. Hachmann durchgeführt*. 2006-2008.
- [131] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler und J.P. Biersack. *SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter*. <http://www.srim.org>, 2008.
- [132] C. Liu, J. Erdmann und A. Macrander. In situ Spectroscopic Ellipsometry as a Surface Sensitive Tool to Probe Thin Film Growth. *Thin Solid Films*, 355-356:41–48, 1999.
- [133] S. Lee, B.H. Park und S. Oh. In-situ Ellipsometric Investigation of TiO_2 Thin-Film Initial Growth. *Journal of the Korean Physical Society*, 31(2):352–356, 1997.
- [134] Sentech Instruments GmbH. *Messreport*. 2006.
- [135] J.-M. André, P. Jonnard, C. Michaelsen, J. Wiesmann, F. Bridou, M.-F. Ravet, A. Jérôme, F. Delmotte und E.O. Filatova. La/B_4C small period multilayer interferential mirror for the analysis of boron. *X-Ray Spectrom.*, 34:203–206, 2005.
- [136] H.P. Geering und E. Shafai. *Regelungstechnik II*. IMRT Press, 2004.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Lehrstuhl für Molekül- und Oberflächenphysik der Universität Bielefeld angefertigt. Für die Bereitstellung einer interessanten, neuen und vor allem anwendungsorientierten Aufgabenstellung und für die Betreuung danke ich Prof. Dr. U. Heinzmann. Herrn Prof. Dr. A. Hütten danke ich für die Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit.

Für die Projektfinanzierung gilt mein Dank der Volkswagen-Stiftung (I/79227).

Die Betreuung während dieser 3 Jahre erfolgte anfangs durch Herrn Dr. U. Neuhäusler, später durch Herrn Dr. M. Sacher. Meinen Dank an dieser Stelle für diese Hilfe. Für die nette Zusammenarbeit im Labor danke ich Frau M. Laß und Herrn F. Bienert.

Von den vielen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe danke ich vor allem Herrn Dr. A. Brechling und Herrn Ch. Meier, welche mir durch konstruktive Gespräche bei vielen Schwierigkeiten weiterhelfen konnten. Insbesondere die Informatik betreffende Herausforderungen waren durch die Hilfe von Ch. Meier um einiges leichter zu bewältigen. Herrn V. Schimmang danke ich für die stete Hilfe bei allen technischen Schwierigkeiten und natürlich danke ich allen anderen, an dieser Stelle nicht genannten, Mitarbeitern der Arbeitsgruppe „Molekül- und Oberflächenphysik“. Für die jedesmal aufwendige Präparation der Multischichten für die TEM-Aufnahmen danke ich Frau Dr. W. Hachmann. Für die Hilfestellung und Betreuung der zahlreichen Messzeiten am BESSY danke ich Herrn Dr. F. Schäfers und Herrn Dr. F. Senf.

Der mechanischen und der elektronischen Werkstatt gilt mein Dank für die schnelle und perfekte Ausführung von Aufträgen und Reparaturen.

Für die fachlichen und vor allem auch die nicht-physikalischen Diskussionen und netten Abende danke ich Herrn Dr. S. Cunovic und Herrn J. Slied.

Hier an letzter Stelle, sonst immer an erster Stelle, gilt mein Dank meinen Eltern, meiner Familie und meiner Frau für die von allen wichtigste Unterstützung in den letzten Jahren.

Selbständigkeitserklärung

Ich versichere hiermit an Eides statt, die vorliegende Arbeit bis auf die dem Aufgabensteller bekannten Hilfen selbständig angefertigt und die benutzten Hilfsmittel unter Angabe der Literaturstellen kenntlich gemacht zu haben.

Bielefeld, den 21.01.2009

Lebenslauf

Name Stefan Hendel
Geburtsdatum 21.02.1979
Geburtsort Strausberg

Schulbildung

Sept. 1985 - Juli 1991 POS Robert Biehl Königs Wusterhausen
Aug. 1991 - Juni 1998 Friedrich Schiller Gymnasium Königs Wusterhausen
Juni 1998: Allgemeine Hochschulreife

Wehrdienst

Juli 1998 - April 1999 Panzerartilleriebataillon 415, Eggesin

Studium

Sept. 1999 - Sept. 2003 Technische Fachhochschule Wildau
Studium der Physikalischen Technik, Abschluss mit einer Diplomarbeit am Forschungszentrum Jülich, Inst. f. Kernphysik zum Diplomingenieur (FH)
Okt. 2003 - Sept. 2005 Technische Universität Clausthal
Physik-Ergänzungsstudium, Abschluss mit einer Diplomarbeit zum Diplom Physiker
Okt. 2005 - Jan. 2009 Universität Bielefeld
Wissenschaftlicher Angestellter an der Fakultät für Physik mit dem Ziel der Promotion