

7. Streuung unter streifendem Einfall

Thomas Brückel, E. Kentzinger, IFF, FZ-Jülich

7.1 Einleitung

In den Kapiteln 3 bis 6 wurde die elementare Streutheorie dargestellt. Es wurde betont, daß aufgrund der geringen Wechselwirkung von Neutronen mit Materie im allgemeinen von der sogenannten kinematischen Streutheorie ausgegangen werden kann, bei der sowohl die Schwächung des Primärstrahls durch die Streuung, als auch Mehrfachstreuungsprozesse vernachlässigt werden. Diese Annahmen sind nicht mehr gültig bei der Streuung von Neutronen an Oberflächen oder inneren Grenzflächen unter streifendem Einfall. Bei dieser Technik trifft die einfallende Welle unter sehr kleinem Glanzwinkel θ ($0 < \theta < \text{wenige Grad}$) auf die Probe. Wird die Intensität der unter gleichem Winkel θ "spekulär" reflektierten Welle gemessen, so spricht man von Reflektometrie. Werden Neutronen unter einem Ausfallswinkel $\theta' \neq \theta$ nachgewiesen, so spricht man von diffuser Streuung (siehe Abb. 7.1).

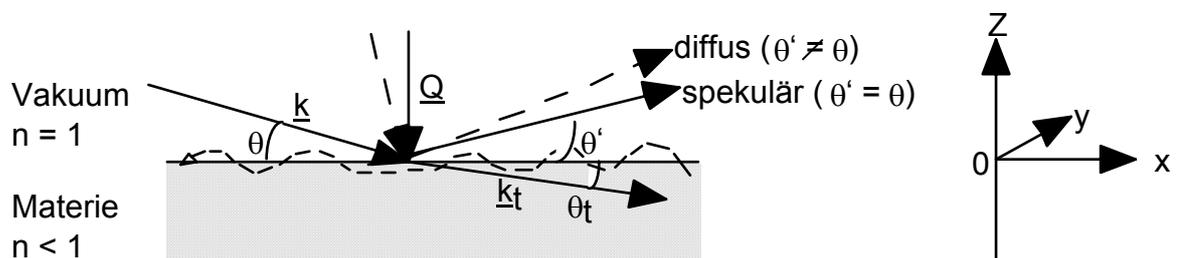


Abb. 7.1: Streuung von Neutronen an einer Oberfläche unter streifendem Einfall. Einfallswinkel (θ), Ausfallswinkel (θ') und Transmissionswinkel (θ_t) sind zur Veranschaulichung übertrieben groß gezeichnet. Von einer ideal glatten Grenzfläche bekommt man nur spekuläre Streuung mit $\theta' = \theta$ (durchgezogene Linie), von einer rauhen Oberfläche zusätzlich diffuse Streuung bei $\theta' \neq \theta$ (gestrichelte Linien).

Für den spekulären Strahl steht der Streuvektor \underline{Q} senkrecht auf der Oberfläche und es gilt im Grenzfall kleiner Glanzwinkel:

$$|\underline{Q}| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta \ll |a^*| \quad (7.1)$$

Der Streuvektor ist also sehr viel kleiner als ein reziproker Gittervektor, weshalb die atomare Struktur der Materie im Rahmen von Reflektometriemessungen vernachlässigt werden kann.

Für den Spezialfall der Streuung unter streifendem Einfall werden wir deshalb im Folgenden eine Kontinuumsbeschreibung entwickeln. Diese Kontinuumsbeschreibung verläuft ganz analog wie im Fall der Optik [1]. Wie wir jedoch im nächsten Abschnitt zeigen werden, ist für Neutronenstrahlen die Materie im Allgemeinen optisch dünner als das Vakuum, weshalb im Gegensatz zu Lichtstrahlen an der Grenzfläche von Materie und Vakuum externe Totalreflektion auftritt. Da hierbei der gesamte Energiefluß in den gestreuten Strahl geht, ist offensichtlich, daß eine Beschreibung im Rahmen der kinematischen Theorie versagt.

Die Streuung unter streifendem Einfall hat sich ein großes Anwendungsfeld erobert bei der Untersuchung von Oberflächen und Dünnschichtsystemen. So kann an Dünnschichtsystemen die Grenzflächenmorphologie bestimmt werden, d. h. das Dichteprofil, Grenzflächenrauigkeiten und laterale Korrelationen. Während es viele alternative Möglichkeiten gibt, die Morphologie von Oberflächen zu untersuchen (etwa Elektronenstreuung oder Rastertunnelmikroskopie), erlaubt nur die Neutronen- und Röntgenstreuung unter streifendem Einfall die quantitative Bestimmung von statistischen Parametern, welche die Morphologie vergrabener Grenzflächen beschreiben. Insbesondere findet diese Methode Anwendung etwa bei metallischen magnetischen Dünnschichtsystemen für die Magnetoelektronik oder bei biologischen Schichtsystemen wie Membranen. In beiden Fällen hat die Neutronenstreuung Vorteile gegenüber der Röntgenstreuung, etwa bei Übergangsmetallschichtsystemen durch den höheren Kontrast benachbarter Elemente oder im Fall von weicher Materie durch die Möglichkeit der gezielten Kontrastvariation durch Deuterierung, d. h. der Ersetzung von H durch D in bestimmten chemischen Gruppen. Im Bereich des Magnetismus schließlich lassen sich mit Hilfe der Reflektometrie polarisierter Neutronen Richtung und Größe der Magnetisierung ferromagnetischer Lagen in Schichtsystemen bestimmen, wobei die Empfindlichkeit ausreicht, um magnetische Monolagen zu untersuchen [2].

Neben diesen prinzipiellen Anwendungen findet die Streuung unter streifendem Einfall eine praktische Verwendung bei neutronenoptischen Elementen. So basieren die Neutronenleiter, die ja eine ungeheure Bedeutung für die effiziente Nutzung speziell von kalten Neutronen besitzen, auf dem Prinzip der externen Totalreflektion. Neutronenspiegel werden heutzutage als fokussierende Elemente, etwa in Kleinwinkelanlagen, eingesetzt. Vielschichtsysteme dienen dazu, in sogenannten Superspiegeln den Grenzwinkel der Totalreflektion zu vergrößern bzw. im Sinne künstlicher Übergitter ein spezielles Wellenlängenband zu selektieren. Übergitter aus ausgewählten magnetischen Materialien eignen sich zur Herstellung von Neutronenpolarisatoren. Diese neutronenoptischen Elemente

werden im Detail in späteren Kapiteln im Zusammenhang mit speziellen Instrumenten diskutiert.

In den folgenden Abschnitten werden wir die Wellengleichung für Neutronen ableiten und den Brechungsindex einführen, die Lösung der Wellengleichung andeuten, dann aber insbesondere an Beispielen den Einfluß von Schichtdicke, Schichtmaterial, Grenzflächenrauigkeit und lateralen Korrelationen vorstellen. Schließlich werden wir in das Prinzip der polarisierten Neutronenreflektometrie einführen. Selbstverständlich können wir in diesem Rahmen die Streuung unter streifendem Einfall nicht umfassend diskutieren. Für Detailfragen sei auf die weiterführende Literatur verwiesen [3-5].

7.2 Die Wellengleichung im homogenen Medium

Im Rahmen der Quantentheorie werden Neutronenstrahlen als Materiewellen durch die Schrödingergleichung für die Wahrscheinlichkeitsamplitude Ψ beschrieben:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_n} \Delta + (V(\underline{r}) - E) \right] \Psi(\underline{r}) = 0 \quad (7.2)$$

Wie in der Einleitung 7.1 ausgeführt, läßt sich im Falle streifenden Einfalls, aufgrund des kleinen Betrags des Streuvektors, die Materie als Kontinuum beschreiben. Das Wechselwirkungspotential $V(\underline{r})$ ergibt sich dann durch Volumenmittelung des Fermi-Pseudopotentials:

$$V(\underline{r}) = \frac{1}{V} \int V_{Fermi}(\underline{r}) d^3r = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \sum_j b_j \rho_j \quad (7.3)$$

wo ρ_j die Anzahl-dichte der Atomsorte j bezeichnet. Mit der Energie $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n}$ der einlaufenden ebenen Welle ergibt sich aus (7.2) und (7.3) die Wellengleichung:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_n} \Delta + \left(\frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \sum_j b_j \cdot \rho_j - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n} \right) \right] \Psi(\underline{r}) = 0 \quad (7.4)$$

Schließlich erhält man eine formal sehr einfache Wellengleichung, wenn man den in Materie ortsabhängigen Wellenvektor $\underline{k}_n(\underline{r})$ einführt:

$$\left[\Delta + k_n^2(\underline{r}) \right] \Psi(\underline{r}) = 0 \quad (7.5)$$

Der Brechungsindex ist definiert über das Verhältnis von k_n zum Betrag des Wellenvektors in Vakuum k und aus (7.4) und (7.5) ergibt sich:

$$n = k_n / k = \sqrt{1 - \frac{\lambda^2}{\pi} \sum b_j \rho_j} \approx 1 - \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_j b_j \rho_j \quad (7.6)$$

Dabei ist der letzte Schritt dadurch gerechtfertigt, daß sich der Brechungsindex für Neutronen nur wenig von 1 unterscheidet. So gilt z. B. für metallisches Nickel (kubisch flächenzentriert) bei einer Wellenlänge von 0.1 nm:

$$n_{Ni} = 1 - \frac{(0.1nm)^2}{2\pi} \cdot 10.3 fm \cdot \frac{4}{(0.352nm)^3} = 1 - 1.504 \cdot 10^{-6} \quad (7.7)$$

7.3 Die Fresnel'schen Gleichungen: Lösung der Wellengleichung für eine scharfe Grenzfläche

Als erstes wollen wir den einfachsten Fall einer ideal glatten Grenzfläche zwischen Vakuum und Materie betrachten. Im Folgenden bezeichnen wir die Koordinate senkrecht zur Grenzfläche mit z , die Grenzfläche liege bei $z = 0$. An dieser Stelle macht der Brechungsindex einen Sprung vom Wert 1 im Vakuum zu einem konstanten Wert n in Materie. Wie man die Wellengleichung (7.5) für diesen Fall löst, ist in Optik- oder Elektrodynamikbüchern [1,6] sowie in den Übersichtsartikeln [3-5] im Detail dargestellt. Definiert man die Reflektivität als das Verhältnis des Neutronenflusses im spekulär reflektierten Strahl zum einfallenden Neutronenfluß und entsprechend die Transmissivität als das Verhältnis des Neutronenflusses im transmittierten Strahl in Materie zum Neutronenfluß im einfallenden Strahl, so erhält man für die Fall der ideal glatten Grenzfläche die Fresnel'schen Formeln:

$$\text{Reflektivität} \quad R = \left| \frac{\theta - n\theta_t}{\theta + n\theta_t} \right|^2 \quad (7.8)$$

$$\text{Transmissivität} \quad T = \left| \frac{2\theta}{\theta + n\theta_t} \right|^2 \quad (7.9)$$

7.4 Brechungsgesetz und Totalreflektion

In den Fresnel'schen Formeln (7.8) und (7.9) tritt neben dem Einfallswinkel θ der Winkel θ_t auf. Dieser wird vom Wellenvektor \underline{k}_t der transmittierten Welle mit der Grenzfläche eingeschlossen. Den Zusammenhang zwischen θ und θ_t kann man leicht aus der Stetigkeitsbedingung für die Tangentialkomponenten des Wellenvektors $k_x = k_{tx}$ zusammen mit der Formel für den Brechungsindex $k_t = k \cdot n$ ableiten. Aus einfachen trigonometrischen

Überlegungen ergibt sich dann das Snellius'sche Brechungsgesetz:

$$\frac{\cos\theta}{\cos\theta_t} = \frac{k_t}{k} = n \quad (7.10)$$

Wie aus (7.6) hervorgeht, ist der Brechungsindex für Neutronen in einem Material mit positiver Streulänge kleiner als 1. Daher wird beim Übergang von Vakuum in Materie die Welle zur Grenzfläche hin gebrochen, wie in Abb. 7.1 dargestellt ist. Brechung von Licht zeigt gerade das entgegengesetzte Verhalten. Wird der Einfallswinkel θ mehr und mehr verkleinert, so ergibt sich nach (7.10) irgendwann der Fall, daß θ_t zu 0 wird. Für diesen Fall tritt kein Energiefluß in das Medium mehr auf. Vielmehr breitet sich eine exponentiell quergedämpfte Welle (sogenannte evaneszente Welle) entlang der Oberfläche aus. Da kein Energiefluß in das Medium mehr stattfindet, wird die Welle totalreflektiert. Man spricht dann von externer Totalreflektion an der Grenzschicht zwischen Vakuum und Materie. Den Winkel, für den θ_t verschwindet, bezeichnet man als den Grenzwinkel für externe Totalreflektion θ_c . θ_c ergibt sich aus der Bedingung:

$$n < 1 \Rightarrow \text{externe Totalreflektion für } \cos\theta_c = n \quad (7.11)$$

Mit Hilfe des Snellius'schen Brechungsgesetzes (7.10) lassen sich die Fresnel'schen Formeln (7.8) und (7.9) darstellen als Funktion des Einfallswinkels θ alleine bzw. als Funktion des Betrags des Streuvektors Q . Als Beispiel ist in der Abb. 7.2 die Reflektivität und Transmissivität von Neutronen an einer Nickeloberfläche gezeigt. Die Absorption von thermischen Neutronen in Nickel ist praktisch vernachlässigbar. Es ergibt sich dann der Verlauf, der durch die durchgezogene Linie gegeben wird. Ganz klar ist der Bereich der Totalreflektion zu erkennen, für den die Reflektivität den Wert 1 annimmt. Die Transmissivität steigt in diesem Bereich stetig an, bis sie am Grenzwinkel der Totalreflektion den Wert 4 erreicht. Dieses Ergebnis ist auf den ersten Blick sehr überraschend. Berechnet man jedoch den Energiefluß, so kann man zeigen, daß der Energiesatz natürlich nicht verletzt wird. Der Wert 4 für die Transmissivität ergibt sich dadurch, daß sich einfallende und reflektierte Welle zu einem stehenden Wellenfeld vor der Oberfläche überlagern. Die Amplitude dieses Wellenfeldes ist doppelt so groß wie die Amplitude der einfallenden Welle. Für die Intensität ergibt sich daher der Faktor 4. Um den Einfluß der Absorption auf die Reflektivität und Transmissivitätskurven zu zeigen, sind die Fresnel'schen Formeln in Abb. 7.2 auch dargestellt für ein imaginäres Material, für welches der Realteil des Brechungsindex δ mit dem von Nickel übereinstimmt, welches jedoch noch einen Imaginärteil β enthält, der die Absorption von Neutronen in Materie beschreibt. Daß der Imaginärteil des Brechungsindex mit der Absorption zusammen-

hängt, ist leicht aus folgender Überlegung zu sehen:

$$e^{ik_r z} = e^{inkz} = e^{ik(1+\delta+i\beta)z} = e^{ik(1+\delta)z} \cdot e^{(k\beta)(-z)} \quad (7.12)$$

Demnach wird die transmittierte Welle mit zunehmender Eindringtiefe $-z$ in das Medium aufgrund des Koeffizienten β exponentiell geschwächt. Wie in Abb. 7.2 zu sehen, bewirkt die Absorption in der Reflektivität ein Verschwinden des Plateaus für Totalreflektion und in der Transmissivität ein Abrunden der Spitze am kritischen Winkel.

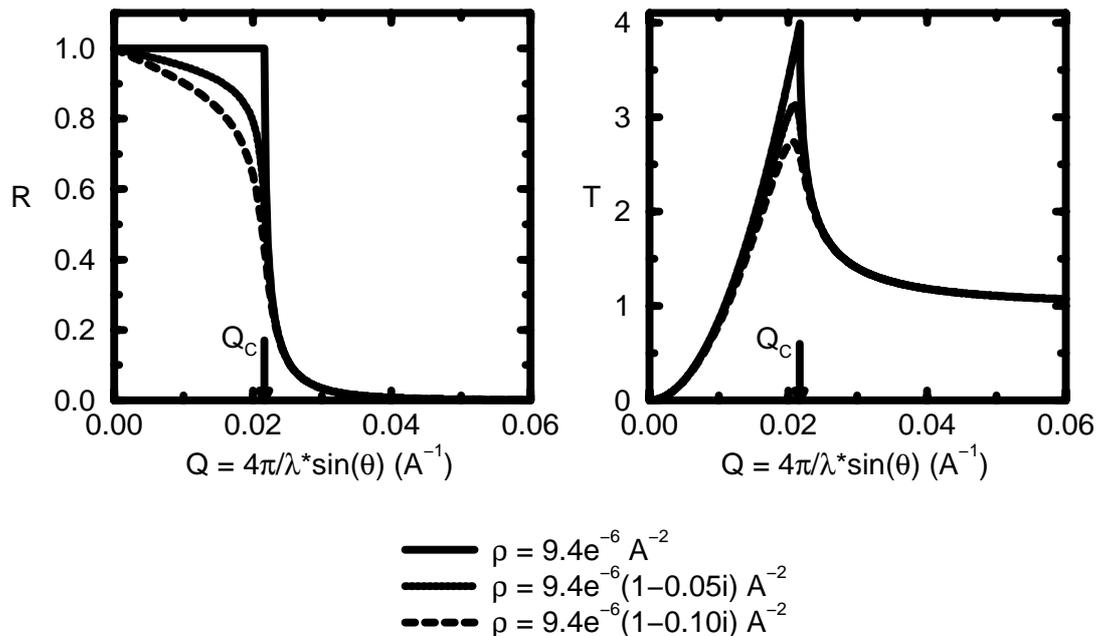


Abb. 7.2: Reflektivität und Transmissivität von Neutronen an einer Ni-Oberfläche.

7.5 Reflektivität eines Vielschichtsystems

Bisher wurde die Reflektivität von Neutronenstrahlung an nur einer idealen Grenzfläche zwischen Vakuum und Materie behandelt. Der Formalismus läßt sich leicht erweitern für die Reflektivität eines Vielschichtsystems, indem die Fresnel'schen Gleichungen an den verschiedenen Grenzflächen rekursiv angewendet werden [3,4] bzw. mit Hilfe eines Matrizenformalismus für die Randbedingungen [5]. Als einfachstes Beispiel soll hier nur der Fall einer Einzelschicht der Dicke d und der Brechzahl n_1 auf einem unendlich dicken Substrat der Brechzahl n_2 untersucht werden. Wie der Verlauf der in Abb. 7.3 gezeigten Strahlen erwarten läßt, ergibt sich ein Interferenzmuster als Funktion des Einfallswinkels θ aufgrund des Phasenunterschieds zwischen der an der Grenzfläche zwischen n_0 und n_1 gestreuten Welle und der an der Grenzfläche zwischen n_1 und n_2 reflektierten Welle. Der Gangunterschied beträgt:

$$\text{Gangunterschied: } \Delta = (\overline{AB} + \overline{BC}) \cdot n_1 - \overline{AD} = 2 dn_1 \sin\theta_t \quad (7.13)$$

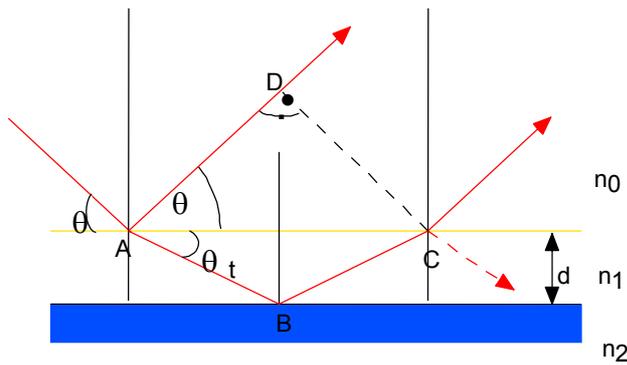


Abb. 7.3: Geometrische Verhältnisse bei der Reflexion an einer Einzelschicht auf einem Substratmaterial.

Vernachlässigt man die Brechung an der obersten Grenzfläche, so ergibt sich für den Abstand der Interferenzmaxima die Bedingung:

$$\lambda \approx 2d \cdot (\Delta\theta) \Rightarrow \Delta Q \approx \frac{2\pi}{d} \quad (7.14)$$

Als Beispiel ist in Abb. 7.4 die Reflektivität von Neutronen an einer Nickelschicht auf einem Glassubstrat dargestellt. Solche Nickelschichten werden in Neutronenleitern verwendet, in denen die Neutronen durch Totalreflektion über große Entfernungen verlustfrei geführt werden. Die Abbildung zeigt eine Messung der Reflektivität an dem Reflektometer HADAS des Forschungsreaktors DIDO zusammen mit einer Anpassung. Man beachte, daß die Reflektivität oberhalb des Grenzwinkels für Totalreflektion sehr rasch abfällt, weshalb die Ordinate in einem logarithmischen Maßstab dargestellt wurde. Sehr eindrucksvoll sind die Oszillationen der Reflektivität aufgrund des oben beschriebenen Interferenzeffektes sichtbar. Bei kleinen Winkeln liegen die Interferenzmaxima aufgrund des Effektes der Brechung etwas dichter beisammen, bei großen Werten für den Betrag des Streuvektors kann die Formel (7.14) angewandt werden, um aus dem Abstand der Interferenzmaxima die Schichtdicke zu bestimmen. Aus der Verfeinerung ergibt sich die Schichtdicke zu etwa 84 nm. Um zu einer optimalen Anpassung zu gelangen, müssen jedoch auch Schichttrauhigkeiten und die endliche experimentelle Auflösung berücksichtigt werden. Diese Effekte werden in späteren Kapiteln behandelt.

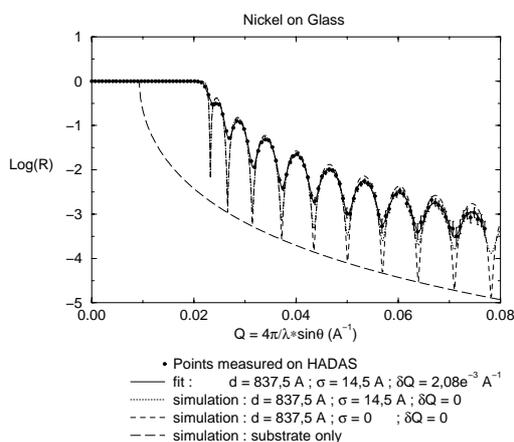


Abb. 7.4: Reflektivität von Neutronen an einer Ni-Schicht auf Glassubstrat (Neutronenleiter).

Vernachlässigt man diese Effekte, so kann man in Simulationen den Einfluß der beiden Parameter, Schichtdicken und Streukraftdichten, studieren. So zeigt Abb. 7.5 wieder für die Neutronenreflektion an einer Nickelschicht auf Glassubstrat den Einfluß der Schichtdicke. Die dünnere Schicht entspricht einem Interferenzmuster mit einer größeren Periode. In jedem Fall kommen die Minima der Interferenzmuster auf der Reflektivitätskurve für das Glassubstrat zu liegen. Interessant ist der Bereich unterhalb $Q = 0.02 \text{ \AA}^{-1}$. Für die dickere Schicht erkennt man klar, daß der Grenzwinkel für Totalreflektion von Nickel wesentlich höher als der Grenzwinkel für Glas liegt. Bei der dünnen Schicht wird dieses Verhalten etwas aufgeweicht: die evaneszente Welle ist zwar in Richtung der Schichtnormalen exponentiell gedämpft, erreicht aber noch eine merkliche Amplitude an der Grenzschicht Nickel-Glas. Dies führt zu einer Abrundung des Totalreflektionsplateaus. In Abb. 7.6 ist der Einfluß des Schichtmaterials dargestellt und zwar für den Fall von Nickel-, Silber- und Manganschichten auf Kupfer. Bemerkenswert ist das Verhalten der Silberschicht, deren Streukraftdichte zwischen der des Kupfersubstrats und 0 liegt. Hier kommen die Maxima des Interferenzmusters auf der Reflektivitätskurve des Substrats zu liegen, sonst gilt dies für die Minima.

Abb. 7.7 zeigt eine Simulation der Neutronenreflektivität an einer Vielfachschicht auf einem Silbersubstrat. Die Vielfachschicht besteht aus 10 Doppellagen von 100 \AA Eisen und 40 \AA Mangan. Deutlich sind die ausgeprägten Maxima ("Bragg-Reflexe") aufgrund der Periodizität der Eisen-Mangan-Doppelschicht der Dicke $d = 140 \text{ \AA}$ zu erkennen. Dazwischen gibt es sehr viele schwächere Oszillationen (beachte den logarithmischen Maßstab) mit einer Periode, welche der Gesamtdicke des Schichtsystems D entspricht. Bemerkenswert ist das Auslöchen des erwarteten starken Maximums bei etwa 0.32 \AA^{-1} .

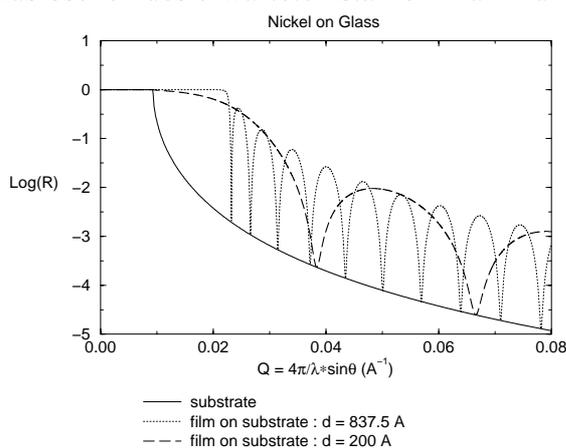


Abb. 7.5: Neutronen-Reflektivität, Einfluß der Schichtdicke.

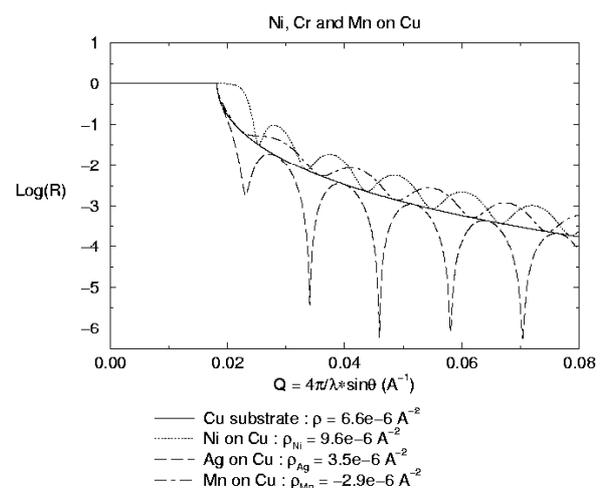


Abb. 7.6: Neutronen-Reflektivität, Einfluß des Schichtmaterials.

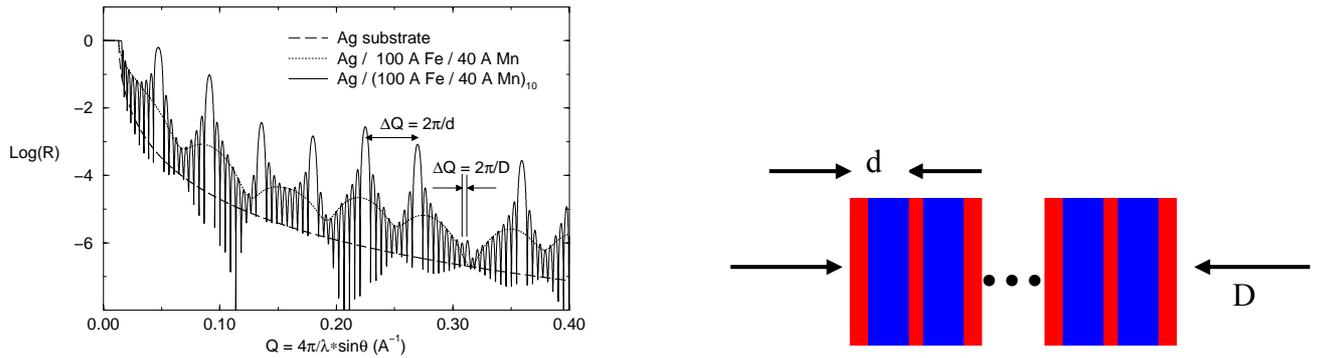


Abb. 7.7: Neutronen-Reflektivität an einer Vielfachschicht.

7.6 Einfluß der Grenzflächenrauhigkeit auf die Reflektivität

Bisher sind wir von ideal glatten Grenzflächen ausgegangen. Eine reale Grenzfläche wird immer eine gewisse Rauigkeit auf atomarem Niveau aufweisen, wie dies in Abb. 7.8 angedeutet ist. Der Verlauf der Grenzfläche wird dann durch die Parametrisierung $z(x, y)$ vollständig beschrieben. Die Detailinformation über eine individuelle Grenzfläche ist von keinerlei Bedeutung. Interessant sind vielmehr einfache statistische Parameter, wie etwa die mittlere quadratische Abweichung von ideal glatten Grenzflächen oder laterale Korrelationslängen (siehe das Kapitel 7.7 über diffuse Streuung). Genau diese statistischen Parameter sind mit Hilfe von Streumethoden zugänglich.

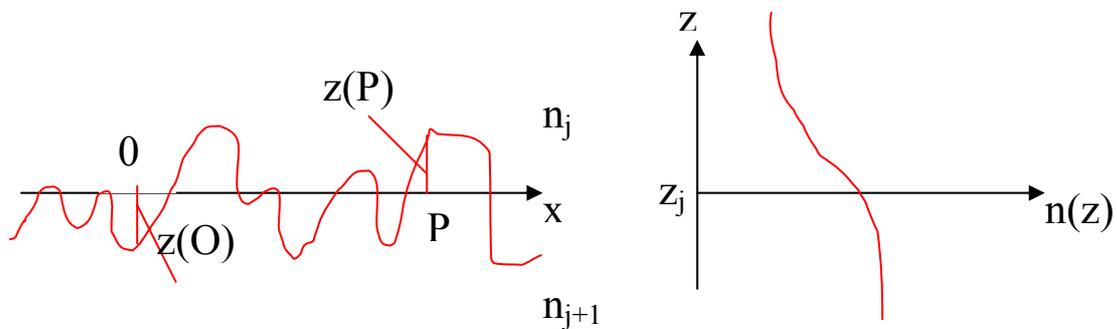


Abb. 7.8: Rauigkeit einer realen Grenzfläche, beschrieben durch die Parametrisierung $z(x, y)$ und Verlauf des Brechungsindexes.

Im einfachsten Modell nimmt man an, daß die Höhenkoordinate z über der Grenzfläche einer Zufallsverteilung um die nominelle Lage z_j der glatten Grenzfläche folgt. Ist diese Zufallsverteilung durch eine Gauss-Funktion beschrieben

$$P(\Delta z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma} \exp\left(-\frac{\Delta z^2}{2\sigma^2}\right) \quad (7.15)$$

so nimmt das Brechungsindexprofil die Form an:

$$n(z) = \frac{n_j + n_{j+1}}{2} - \frac{n_j - n_{j+1}}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{z - z_j}{\sqrt{2} \sigma_j}\right) \quad (7.16)$$

mit der "Error"-Funktion:

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-t^2} dt \quad (7.17)$$

Den Zusammenhang zwischen $P(\Delta z)$ und $n(z)$ kann man sehr leicht beweisen, indem man das Brechungsindexprofil $n(z)$ nach z differenziert und die Grenzwerte für $z \rightarrow \pm \infty$ ($= n_{j+1}$ bzw. n_j) bestimmt. Die Reflektivität einer solchen rauhen Grenzfläche erhält man durch eine Mittelung über die Reflektivitäten einer Schar von Grenzflächen, welche das Brechungsindexprofil beschreiben. Die entsprechende Mittelung ist in Nevot und Croce im Detail abgeleitet [7]. Als Ergebnis erhält man, daß man die Fresnel-Koeffizienten der ideal glatten Grenzflächen durch modifizierte Fresnel-Reflektivitäten ersetzen muß:

$$R_{\text{rauh}} = R_{\text{glatt}} \cdot \exp\left(-4\sigma_j^2 k_{zj} k_{zj+1}\right) \quad (7.18)$$

In dieser Gleichung beschreibt σ_j die mittlere quadratische Abweichung von der nominalen Lage der glatten Grenzfläche, k_{zj} die z -Komponente des Wellenvektors in der j -ten Schicht. Der exponentielle Dämpfungsfaktor, der vom Quadrat der mittleren quadratischen Abweichung σ_j abhängt, ähnelt sehr stark dem Debye-Waller-Faktor der Beugung. Dies ist nicht verwunderlich, wenn man bedenkt, daß der Debye-Waller-Faktor ebenfalls eine Verschmierung des Streuzentrums (hier des Atoms) beschreibt. Sowohl in der Reflektivität als auch in der Beugung folgt aus dieser Verschmierung eine exponentielle Dämpfung der Interferenzmuster für größere Impulsüberträge.

Der Effekt der Grenzflächenrauigkeit wurde in Abb. 7.9 und 7.10 für die Neutronenreflektivität an einem Silbersubstrat bzw. an einer 500 Å dicken Eisenschicht auf einem Silbersubstrat simuliert. Abb. 7.9 zeigt klar, daß die Reflektivität bei größeren Impulsüberträgen aufgrund der Rauigkeit sehr stark abnimmt. Der Einfluß der Rauigkeit wird sichtbar, wenn der Betrag des Streuvektors die Größe $1/\sigma$ übersteigt. Will man also sehr kleine Rauigkeiten bestimmen, so muß man bis zu sehr großen Reflektionswinkeln messen, d. h. einen sehr großen dynamischen Bereich der Reflektivität überstreichen.

Abb. 7.10 zeigt den Einfluß der Rauigkeit einer Einzelschicht auf Substrat. Die Simulation wurde durchgeführt für ideal glatte Grenzflächen, für eine raue Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht, für eine raue Grenzfläche zwischen Schicht und Vakuum und für den Fall, daß beide Grenzflächen rauh sind. Man erkennt aus Abb. 7.10, daß zwischen den vier Fällen eindeutig unterschieden werden kann. Wenn nur eine der beiden Grenzflächen rauh ist, so werden bei höherem Beugungswinkel, wo die Höhenfluktuationen der einen Schicht spürbar werden, die Interferenzmuster aufgrund der Reflektion an oberer und unterer Grenzfläche unterdrückt. Sind beide Schichten rauh, so erfolgt ein schnellerer Abfall der mittleren Reflektivität.

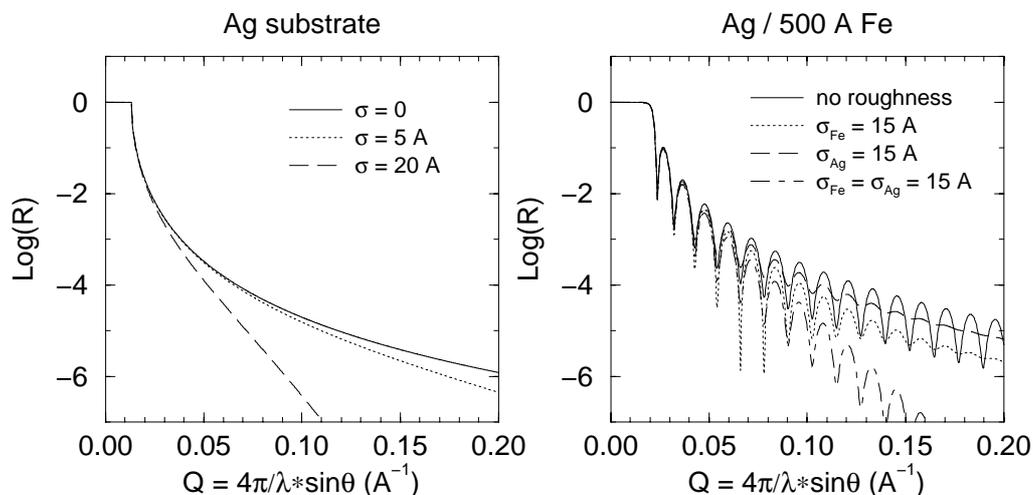


Abb. 7.9: Neutronen-Reflektivität beim Übergang von Vakuum nach Silber. Einfluß der Oberflächenrauigkeit.

Abb. 7.10: Neutronen-Reflektivität an einer Eisenschicht auf Silbersubstrat. Einfluß der Grenzflächenrauigkeit.

Schließlich sei nochmals darauf hingewiesen, daß Reflektivitätsmessungen nur etwas aussagen können über das Streukraftdichteprofil in Richtung der Schichtnormalen. Dies bedeutet aber, daß Reflektivitätsmessungen nicht unterscheiden können etwa zwischen Grenzflächenrauigkeit und Interdiffusion. Dies ist nur mit Hilfe der Messung der diffusen Streuung möglich, die im nächsten Kapitel behandelt wird.

7.7 Diffuse Streuung unter streifendem Einfall

Das spekulär reflektierte Signal erhält man für den Fall, daß Einfallswinkel gleich Ausfallswinkel ist und der Streuvektor senkrecht zur Schicht liegt. Die Intensität, die außerhalb des Bereichs des spekulären Strahls beobachtet wird, bezeichnet man als diffuse Streuung. Die diffuse Streuung erhält Information über die laterale Struktur der Grenzfläche. Dies ist in Abb. 7.1 veranschaulicht, wo eine recht regelmäßige quasiperiodische Grenzflächenrauigkeit angenommen wurde. Ein solcher Fall ist nicht ganz unrealistisch, er kann z. B. beim Insel-

wachstum auftreten. Neben dem spekulär gestreuten Strahl erhält man dann ganz analog zu einem (schlechten) Reflektionsgitter in der Optik diffuse Streuung mit Maxima in recht wohldefinierten Richtungen.

Für die Reflektivitätsmessungen haben wir die Grenzflächenrauigkeit nur durch einen Parameter beschrieben, die mittlere quadratische Abweichung von der ideal glatten Grenzfläche. Für die stochastische Beschreibung der Grenzflächen für die diffuse Streuung führen wir nun Korrelationsfunktionen ein und zwar:

1. die Höhen-Höhen-Autokorrelationsfunktion:

$$C_j(\underline{R}) = C_{jj}(\underline{R}) = \langle \Delta z_j(\underline{r}) \cdot \Delta z_j(\underline{r} + \underline{R}) \rangle \quad (7.19)$$

2. und die Kreuzkorrelationsfunktion:

$$C_{jk}(\underline{R}) = \langle \Delta z_j(\underline{r}) \cdot \Delta z_k(\underline{r} + \underline{R}) \rangle \quad (7.20)$$

Die spitzen Klammern bezeichnen die Mittelwertbildung über das Schichtsystem. Die Höhen-Höhen-Autokorrelationsfunktion gibt uns die Wahrscheinlichkeit an, daß in der Grenzschicht j zwei Höhenabweichungen Δz_j im Abstand \underline{R} miteinander korreliert auftreten. Durch Fouriertransformation von $C_j(\underline{R})$ kann man Periodizitäten der Grenzflächenrauigkeit an mehr oder minder scharfen Maxima erkennen. Im Unterschied zu der Autokorrelationsfunktion einer Grenzfläche definiert die Kreuzkorrelationsfunktion (7.20) die Korrelation zwischen zwei Grenzflächen j und k. Verschwindet die Kreuzkorrelationsfunktion, so handelt es sich um unkorrelierte Grenzflächen. Ein nichtverschwindendes $C_{jk}(\underline{R})$ ist ein Indikator dafür, daß Grenzflächenrauigkeiten durch das Schichtsystem hindurch korreliert sind (vergleiche Abb. 7.11).

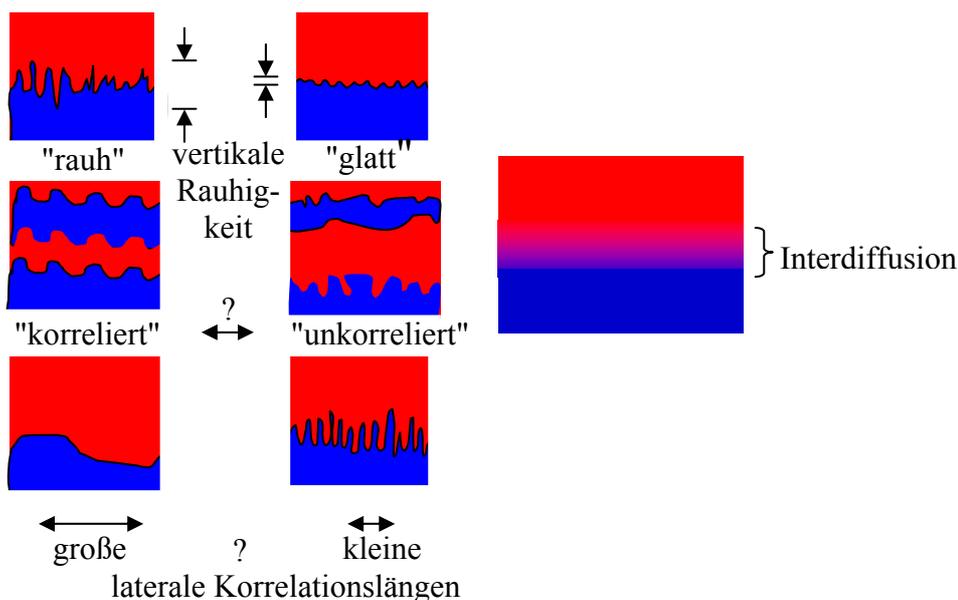


Abb. 7.11: Reale Grenzflächen: verschiedene Arten von Rauigkeiten und Interdiffusion.

Die Berechnung der diffusen Streuung ist kein einfaches Unterfangen und ist immer noch Gegenstand der aktuellen Forschung [8-10]. Die Lösung dieses Problems kann im Rahmen der sogenannten "Distorted Wave Born Approximation (DWBA)" angegangen werden [11]. Wir können die DWBA hier nicht ausführen und zitieren nur das Ergebnis für eine Grenzfläche:

$$I_{diffus} \sim T(\underline{k}) \cdot T(\underline{k}') \cdot S(\underline{Q}) \quad (7.21)$$

Die Intensität der diffusen Streuung ist also proportional zu einem Strukturfaktor $S(\underline{Q})$, der nur von der Differenz der Wellenvektoren $\underline{k}' - \underline{k}$ abhängt, und dem Produkt zweier Transmissivitäten für den einfallenden bzw. ausfallenden Wellenvektor. Die Intensität ist moduliert durch die Transmissivität, wie sie in Abb. 7.2 dargestellt ist. Da diese Transmissivität ein scharfes Maximum am Grenzwinkel für Totalreflektion aufweist, zeigt auch die diffuse Streuung derartige Maxima, die man als sogenannte Yoneda-Peaks bezeichnet. Anschaulich kann man argumentieren, daß, wenn die Probe unter dem Grenzwinkel der Totalreflektion entweder zum einfallenden oder zum ausfallenden Strahl steht, besonders viel Intensität in bzw. aus der Probe herausleckt. An diesen Stellen hat das stehende Wellenfeld vor der Grenzfläche eine besonders hohe Amplitude, was, beim Vorhandensein von Grenzflächenrauigkeiten, zu einer besonders hohen diffusen Streuung führt.

Der Strukturfaktor selbst hängt von den Korrelationsfunktionen (7.19) und (7.20) ab. Im allgemeinen Fall ist dieser Zusammenhang recht kompliziert. Wir verweisen auf die einschlägige Literatur [8-10]. Eine recht einfache Form erhält man für die diffuse Streuung an einer einzelnen Grenzfläche, solange die Bedingung $Q_z \ll \frac{1}{\sigma}$ gilt, d. h. die mittlere quadratische Rauigkeit noch vernachlässigbar ist. Dann ergibt sich der Strukturfaktor $S(\underline{Q})$ zu:

$$S(\underline{Q}) \underset{\uparrow}{\approx} \iint dX dY C(X, Y) e^{i(Q_x X + Q_y Y)} \quad (7.22)$$

$$Q_z \cdot \sigma \ll 1$$

(7.22) zeigt, daß man in der diffusen Streuung die Fouriertransformierte der Höhen-Höhen-Autokorrelationsfunktion mißt.

7.8 Polarisierete Neutronenreflektometrie

In dem vorliegenden Kapitel möchten wir uns der Frage zuwenden, welche Information man über den Magnetismus von Schichtsystemen mit Hilfe der Methode der Neutronen-Reflektometrie erhalten kann. Nun haben wir in den vorhergehenden Kapiteln bereits gelernt, daß in Reflektometriemessungen aufgrund des kleinen Betrags des Streuvektors das Medium

als Kontinuum beschrieben werden kann. Antiferromagnetische Schichten mit verschwindender Gesamtmagnetisierung sind daher der Untersuchung durch Reflektometriemessungen nicht zugänglich. Dagegen lassen sich Magnetisierungsdichten ferromagnetischer Schichten mit Hilfe der Neutronenreflektometrie auf absoluter Skala bestimmen.

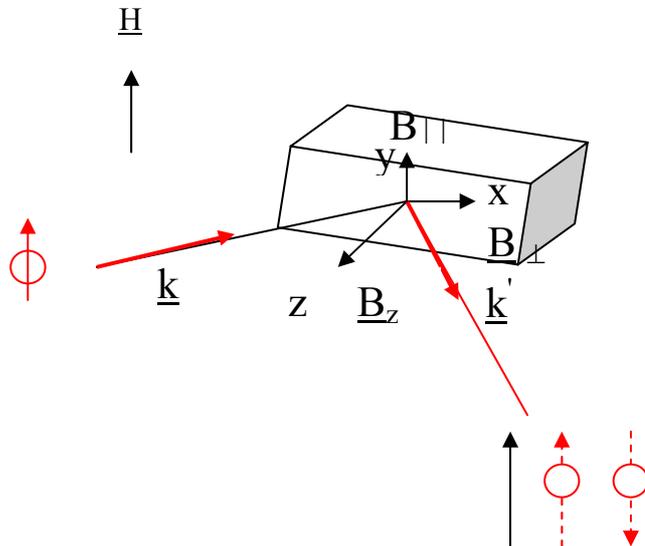


Abb. 7.12: Geometrie bei der Reflektometrie polarisierter Neutronen.

Da es sich bei der Magnetisierung um eine Vektoreigenschaft handelt, nutzt man die zusätzliche Information, die in der Neutronenkernspinrichtung steckt. Abb. 7.12 zeigt das Meßprinzip: der einfallende Neutronenstrahl wird als vollständig polarisiert angenommen, d. h. die Richtung der magnetischen Momente der Neutronen sind alle ausgerichtet bezüglich einer durch ein externes Magnetfeld \underline{H} vorgegebenen Quantisierungsachse. Beim Streuprozeß können nun zwei Fälle eintreten: entweder die Spinrichtung relativ zu \underline{H} bleibt dieselbe oder die Spinrichtung kehrt sich um. Man spricht dann von sogenannten „Non-Spin-Flip“ (NSF)- oder „Spin-Flip“ (SF)-Prozessen. Insgesamt können daher vier verschiedene Reflektivitäten gemessen werden, nämlich R_{++} , R_{+-} , R_{-+} , R_{--} , wobei das Vorzeichen jeweils die Spinrichtung relativ zum Führungsfeld \underline{H} angibt, einmal vor und einmal nach dem Streuprozeß.

Ausgangspunkt unserer Betrachtungen ist das magnetische Wechselwirkungspotential (Zeeman-Energie):

$$V_M = -\underline{\mu}_n \cdot \underline{B} \quad (7.23)$$

Völlig analog zur Herleitung der Fresnel'schen Formeln gehen wir bei der Beschreibung der polarisierten Neutronenreflektometrie aus von der eindimensionalen Schrödingergleichung:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_n} \Delta + \left(V - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n} \right) \right] \Psi = 0 \quad (7.24)$$

,wobei dem zusätzlichen Spinfreiheitsgrad Rechnung getragen wird, indem die Wellenfunktion die Form eines Spinors annimmt:

$$\Psi \rightarrow \begin{pmatrix} \Psi_+(r) \\ \Psi_-(r) \end{pmatrix} \quad \begin{matrix} \underline{s}_n \uparrow \uparrow \underline{H} \\ \underline{s}_n \uparrow \downarrow \underline{H} \end{matrix} \quad (7.25)$$

Das Wechselwirkungspotential setzt sich zusammen aus einem Anteil aufgrund von Kernstreuung und aus einem Anteil aufgrund von magnetischer Streuung:

$$V = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} b\rho - \gamma_n \mu_N \underline{\sigma} \cdot \underline{B} \quad (7.26)$$

,wobei die magnetische Induktion \underline{B} in Materie durch die Summe aus externem Magnetfeld \underline{H} und Probenmagnetisierung \underline{M} gegeben ist: $\underline{B} = \underline{H} + 4\pi\underline{M}$. Das Symbol $\underline{\sigma}$ in (7.26) steht für die drei Pauli-Spin-Matrizen:

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}; \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}; \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (7.27)$$

Durch Einsetzen der Ausdrücke (7.25) bis (7.27) in die eindimensionale Schrödingergleichung (7.24) erhält man schließlich ein System von gekoppelten linearen Differentialgleichungen der folgenden Form:

$$\begin{aligned} \Psi_+''(z) + \left[k_z^2 - 4\pi b\rho + \frac{2m_n\gamma_n\mu_N}{\hbar^2} B_{\parallel} \right] \Psi_+(z) + \frac{2m_n\gamma_n\mu_N}{\hbar^2} B_{\perp} \Psi_-(z) &= 0 \\ \Psi_-''(z) + \left[k_z^2 - 4\pi b\rho + \frac{2m_n\gamma_n\mu_N}{\hbar^2} B_{\parallel} \right] \Psi_-(z) + \frac{2m_n\gamma_n\mu_N}{\hbar^2} B_{\perp} \Psi_+(z) &= 0 \end{aligned} \quad (7.28)$$

Die Lösung dieser Differentialgleichungen erfolgt völlig analog zur Herleitung der Fresnel'schen Formeln: man macht einen Lösungsansatz $\psi_{\pm}(z) = A_{\pm} \cdot e^{-ik_z z}$ und bestimmt die Amplituden A_{\pm} aus den Nullstellen der Determinante. Die Randbedingungen an den Grenzflächen führen zu einem System von Matrixgleichungen. Wir wollen hier nicht weiter auf die etwas längliche Algebra eingehen und verweisen auf die einschlägige Literatur [3]. Dagegen lassen sich aus (7.28) einfache Regeln für folgende Fälle ableiten:

1. Die magnetische Induktion steht senkrecht zur Schicht, d. h. $B_z = B$, $B_{\perp} = B_{\parallel} = 0$. In diesem Fall verschwinden sämtliche magnetischen Terme in (7.28), d. h. man kann keinen magnetischen Effekt in der Reflektivität erwarten. Der Grund hierfür ist, daß die Komponente B_z sich aufgrund $\nabla \cdot \underline{B} = 0$ an der Oberfläche nicht ändern kann und daher kein Sprung in der magnetischen Induktion auftritt, der zu einer magnetischen Reflektion der Neutronen führen könnte.

2. Die magnetische Induktion steht parallel zur Quantisierungsachse \underline{H} , d. h. $B_{\parallel} = B, B_z = B_{\perp} = 0$. In diesem Fall verschwinden in (7.28) die Terme, welche die beiden Komponenten des Spinors mischen. Es tritt daher nur "Non-Spin-Flip"-Streuung R_{++} und R_{--} auf. Dagegen erhält der Brechungsindex einen magnetischen Beitrag, welcher von der Richtung des Dipolmoments des Neutrons relativ zur magnetischen Induktion abhängt: je nach Spinrichtung wird ein magnetischer Beitrag entweder addiert oder subtrahiert.
3. Die magnetische Induktion steht senkrecht zur Quantisierungsachse \underline{H} , d. h. $B_{\perp} = B, B_{\parallel} = B_z = 0$. In diesem Fall verbleiben in (7.28) die Kreuzterme, welche die Komponenten des Spinors mischen: zusätzlich zur "Non-Spin-Flip"-Streuung tritt „Spin-Flip“-Streuung R_{+-} und R_{-+} auf. Diese „Spin-Flip“-Streuung gibt also einen Hinweis darauf, daß die Magnetisierung der Schicht dem äußeren Feld nicht vollständig folgt, wie es z. B. bei gekanteten Strukturen der Fall ist.

Die Abb. 7.13 und 7.14 zeigen als Beispiel Messungen der polarisierten Neutronenreflektometrie an Eisen-Mangan-Eisen-Dreifachlagen. Abb. 7.13 zeigt den Fall eines Schichtsystems, bei dem die beiden ferromagnetischen Eisenschichten kollinear sind, erzwungen durch ein starkes äußeres Feld. Der Effekt der magnetischen Reflektivität ist deutlich an dem Unterschied zwischen dem ++ und dem -- Signal zu erkennen. Abb. 7.14 zeigt den Fall von biquadratisch gekoppelten ferromagnetischen Eisenschichten. In diesem Fall ist die Magnetisierung in den beiden Schichten nicht kollinear, sondern gekantet. Dies führt dazu, daß ein zusätzliches Signal im Spin-Flip-Kanal auftritt. Durch Auswertung derartiger Messungen kann der Winkel zwischen den Magnetisierungen der beiden Schichten bestimmt werden.

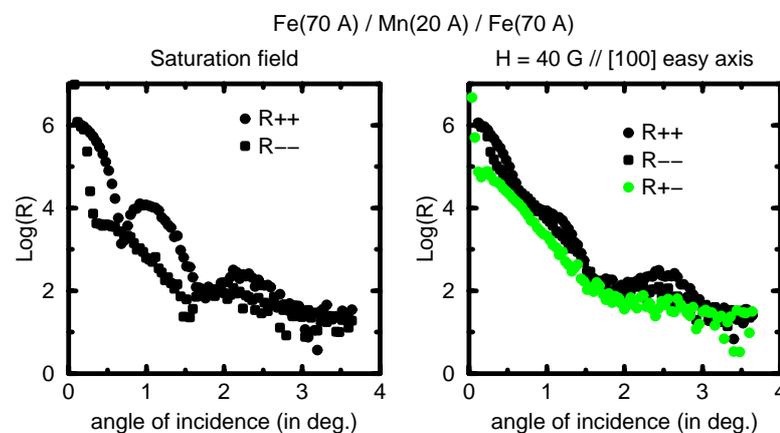


Abb. 7.13: Polarisierte Neutronenreflektometrie an Fe/Mn/Fe-Schichten, ferromagnetische Kopplung.

Abb. 7.14: Polarisierte Neutronenreflektometrie an Fe/Mn/Fe-Schichten, nicht-kollineare Kopplung.

Literatur

- [1] Bergmann-Schäfer, Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 3: "Optik", De Gruyter Berlin 1978
- [2] J. A. Bland (Hrsg.) "Ultrathin magnetic structures", Springer Berlin 1994
- [3] C. F. Majkrzak, J. F. Ankner, N. F. Berk & D. Gibbs „Neutron and X-ray Diffraction Studies of Magnetic Multilayers“ in: L. H. Bennett & R. E. Watson (Eds) „Magnetic Multilayers“ World Scientific, Singapore 1994
- [4] X. L. Zhou & S. H. Chen, Physics Reports 257 (1995), 223
- [5] T. Brückel & E. Kentzinger, "Streumethoden zur Untersuchung von Dünnschichtsystemen", Vorlesungsmanuskripte des 30. IFF-Ferienkurses "Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung" (1999), Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Materie und Material/Matter and Materials, Band 2, B3.1 - B3.48
- [6] H. Stumpf & W. Schuler „Elektrodynamik“, Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig 1981
- [7] L. Névot & P. Croce, Rev. de Phys. appl. 15 (1980), 761
- [8] S. K. Shina, E. B. Sirota, S. Garoffe & H. B. Stanley, Phys. Rev. B 38 (1988), 2297
- [9] V. Holy, J. Kubena, I. Ohlídal, K. Lischka & W. Plötz, Phys. Rev. B 47 (1993), 15896
- [10] V. Holy & T. Baumbach, Phys. Rev. B 49 (1994), 10668
- [11] A. Messiah „Quantenmechanik“ Band 2, Walter de Gruyter, Berlin 1979