

รายงานเชิงเทคนิค
(TECHNICAL REPORT)

หมายเลขเอกสาร (For OD) KM Document No.	SLRI-TR-2022-042
ชื่อเรื่อง Title	X-ray reflectometry (XRR)
ชื่อฝ่าย Department	ฝ่ายสถานีวิจัย
วันที่เขียนรายงาน Date of Report	9 กันยายน 2564
ระดับการเปิดเผยข้อมูล Level of Disclosure	<input type="checkbox"/> ข้อมูลในรายงานเป็นความลับ (Undisclosed)
	<input type="checkbox"/> เปิดเผยข้อมูลเฉพาะภายในฝ่ายหรือส่วนงาน (Information can be disclosed within department/section)
	<input type="checkbox"/> เปิดเผยข้อมูลได้สำหรับพนักงานของสถาบันฯ และอนุญาตให้บันทึกข้อมูลเข้าเป็นส่วนหนึ่งของระบบ Knowledge Management ภายในสถาบันฯ (Information can be disclosed for SLRI staffs and can be part of SLRI's Knowledge Management System)
	<input checked="" type="checkbox"/> เปิดเผยข้อมูลได้เพื่อเป็นองค์ความรู้สาธารณะ เช่นเว็บไซต์ของสถาบันฯ (Information is available for public)
คำสำคัญ Keyword	XRR, Thin film, Thickness, Roughness, Density, BL1.1W

รายชื่อผู้ดำเนินโครงการและจัดทำรายงาน Name	ส่วนร่วมในการปฏิบัติงานในโครงการ Responsible tasks in the project
ดร. ชাত্রี ไสยสมบัติ	ออกแบบโปรแกรม ร่วมวางแผนทางการทดสอบ ทดสอบ เรียบเรียงรายงาน
ดร. แพรว จิรวัดน์กุล	ออกแบบโปรแกรม ร่วมวางแผนทางการทดสอบ ทดสอบ
ดร. สุทธิพงษ์ วรณไพบุลย์	ร่วมวางแผนทางการทดสอบ ทดสอบ
ดร. กรองทอง กมลสรวงเกษม	ร่วมวางแผนทางการทดสอบ ทดสอบ
นายณฤพนธ์ ว่องประชาณุกุล	เขียนโปรแกรมและทดสอบ

บทคัดย่อ

ทางระบบลำแสงที่ 1.1W (BL1.1W) ได้พัฒนาเทคนิค X-ray reflectivity (XRR) ซึ่งยังไม่เคยให้บริการในสถาบันมาก่อน เทคนิคนี้ให้ข้อมูลสำคัญทางด้านฟิล์ม ได้แก่ ความหนา ความหนาแน่นของแต่ละชั้นฟิล์ม ความขรุขระของผิวหรือรอยต่อระหว่างชั้นฟิล์ม เทคนิคการวัดนี้ใช้อุปกรณ์เพิ่มเติมขึ้นเดียวคือ Knife edge นอกนั้นใช้อุปกรณ์และหัววัดที่มีอยู่แล้วใน BL1.1W โปรแกรมในการเก็บข้อมูลที่พัฒนาขึ้นออกแบบให้มีความยืดหยุ่นและง่ายต่อการใช้งาน สามารถทำการวัดได้หลายตัวอย่างต่อเนื่องกันในโหมด Macro การวัดตัวอย่างด้วยพารามิเตอร์ที่แนะนำจะใช้เวลาเพียง 19 นาที ผลการทดสอบด้วยตัวอย่างจริงทางระบบ XRR ที่สร้างขึ้นมาสามารถวิเคราะห์ฟิล์มบางหลายชั้นที่บางชั้นมีความหนา 1 nm ได้ผลดี เทคนิคนี้จะสามารถดึงดูดนักวิจัยที่ทำงานทางด้านฟิล์มบางเพื่อเข้ามาใช้งานและเปิดกว้างสำหรับการพัฒนาการวัดแบบ *in-situ* ที่ทำได้ยากในเครื่องวัด XRR ทั่วไป

บทนำ

ระบบลำแสงที่ 1.1W (BL1.1W) ได้เริ่มให้บริการเทคนิค X-ray absorption spectroscopy (XAS) และ (X-ray fluorescence spectroscopy (XRF) ในช่วงเริ่มต้น ต่อมาเริ่มให้บริการเทคนิค Powder x-ray diffraction (PXRD) ซึ่งมีทั้งหัววัดแบบ 1D (Mythen detector) และ 2D (MAR345 detector) และขยายขอบเขตจากอุปกรณ์ที่มีให้ได้ประโยชน์สูงสุดจึงพัฒนาเทคนิค Grazing incidence x-ray diffraction (GIXRD) และ Anomalous x-ray diffraction (AXRD) และเนื่องจากยังไม่มีระบบลำแสงใดในสถาบันฯ ที่ใช้แสงซินโครตรอนให้บริการเทคนิคที่สามารถบอกคุณสมบัติทางด้านความหนาของตัวอย่างฟิล์มบางมาก่อน จึงได้มีการพัฒนาเทคนิคการวัด XRR ที่เติมเต็มในส่วนการวิเคราะห์ความหนา ความขรุขระ ความหนาแน่นของตัวอย่างในลักษณะฟิล์มบาง (thin film) ทาง BL1.1W ได้เริ่มทดสอบความเป็นไปได้ในการวัด XRR ด้วยหัววัด Mythen ในเดือนกรกฎาคม 2563 โดยทำการทดสอบและชั่งระบบแบบ manual พบว่าสามารถใช้เครื่องมือที่มีอยู่ในการวัดได้ จึงเริ่มวางแผนการเพื่อพัฒนาระบบวัด XRR ในปีงบประมาณ 2564 ระบบวัดนี้มีค่าใช้จ่ายทางด้านอุปกรณ์เพิ่มเติมเพียงแค่ knife edge เนื่องจากใช้อุปกรณ์เกือบทั้งหมดเป็นอุปกรณ์เดิมที่ติดตั้งอยู่แล้วในสถานีทดลองที่ 1.1W สำหรับการพัฒนาโปรแกรมการวัดได้ทำการทดสอบและแก้ไขต่อเนื่อง โดยโปรแกรมนี้อาจเป็นโปรแกรมที่แก้ไขใหญ่ครั้งที่ 2 และในการทดสอบระบบครั้งนี้ได้ใช้ตัวอย่างจริงที่ผลิตจาก ESRF ที่บางชั้นมีความหนา 1 nm

วัตถุประสงค์

1. เพื่อเพิ่มขีดความสามารถของระบบลำแสงที่ 1.1W ให้สามารถให้บริการเทคนิค XRR ได้
2. ทดสอบระบบด้วยตัวอย่างจริงที่มีความหนาระดับ 1 nm

แนวคิด/ทฤษฎี/หลักการ

X-ray reflectivity (XRR) เป็นวิธีการวิเคราะห์แบบไม่ทำลายตัวอย่าง ใช้สำหรับศึกษาคุณสมบัติของฟิล์มบางชั้นเดียวหรือหลายชั้น สามารถใช้หาความหนา ความหนาแน่น และความขรุขระของผิวหรือรอยต่อระหว่างผิว เทคนิคนี้ใช้หลักการวัดค่าสะท้อนสูงสุด (Maximum reflectivity intensity, Max intensity) จากการสะท้อนรังสีเอกซ์ที่เปลี่ยนไปตามมุมตกกระทบ ดังนั้นต้องการที่จับตัวอย่าง (sample stage) ที่สามารถปรับมุมได้ เทคนิคนี้สามารถวิเคราะห์วัสดุได้หลากหลายชนิดทั้งที่เป็นแบบผลึกเดี่ยว (Single-crystalline) ผลึกรวม (Polycrystalline) และอสัณฐาน (Amorphous)

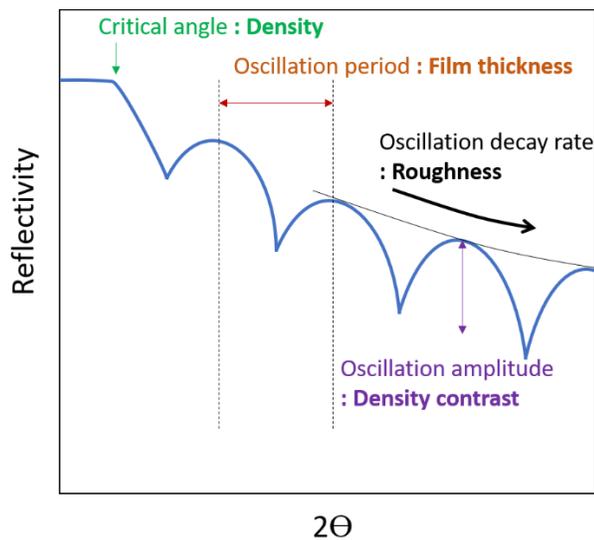
โปรไฟล์ของการสะท้อนรังสีเอกซ์ (XRR profile) มีลักษณะเป็นคาบการสั่นเกิดจากการแทรกสอดของการสะท้อนที่เกิดจากผิวข้างบนและรอยต่อระหว่างชั้นหรือรอยต่อระหว่างวัสดุฐานรอง (substrate) ซึ่งการแทรกสอดนี้ เป็นที่รู้จักกันในชื่อ Kiessing fringes (Kiessig, 1931) สำหรับสรุปข้อมูลที่สามารถวิเคราะห์ได้จาก XRR profile ตามที่แสดงในรูปที่ 1 คาบของการสั่นนั้นขึ้นอยู่กับความหนาของชั้นฟิล์ม ยิ่งชั้นฟิล์มมีความหนามาก คาบการสั่น

ยิ่งลดลง (รูปที่ 2 (A)) เมื่อรังสีเอกซ์ตกกระทบบนผิวจะเกิดการสะท้อนกลับหมดเมื่อมุมตกกระทบท่ำกว่าหรือเท่ากับมุมวิกฤต (critical angle, θ_c) ความหนาแน่นที่แตกต่างกันของชั้นฟิล์มและ substrate ส่งผลถึงความสูงของการสั่น (amplitude) และ θ_c ยิ่งความแตกต่างของความหนาแน่นยิ่งมากจะทำให้ amplitude และ θ_c มีค่ามากตามไปด้วยดังแสดงในรูปที่ 2 (B) สำหรับ θ_c สามารถคำนวณได้จากสมการ

$$\theta_c = \sqrt{2\delta} \quad (1)$$

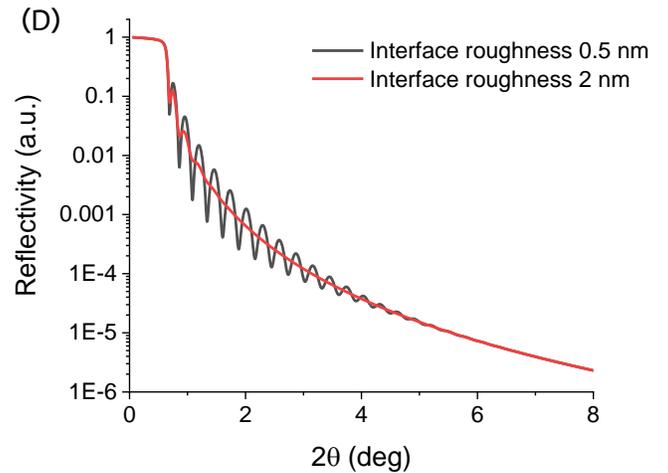
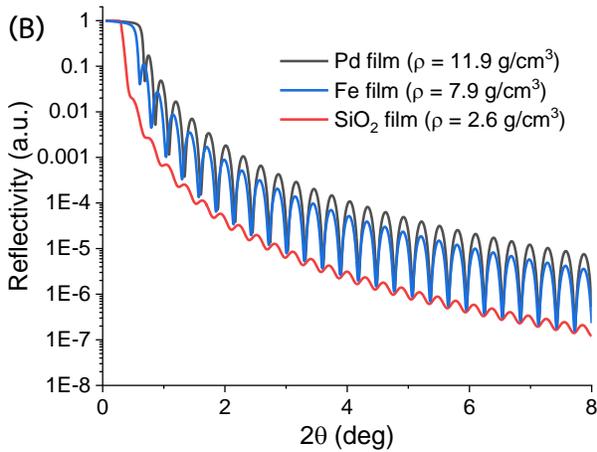
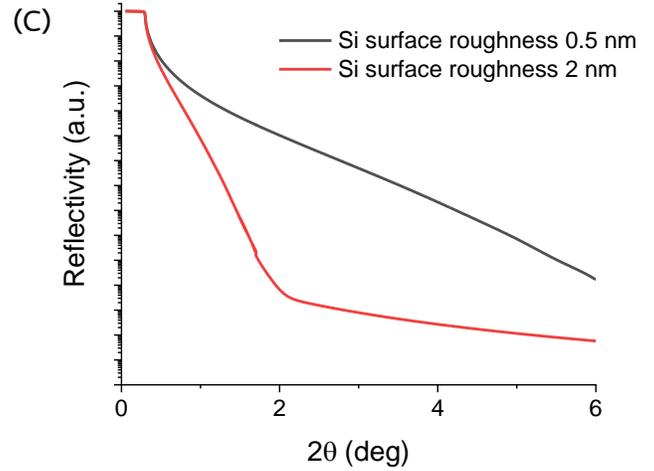
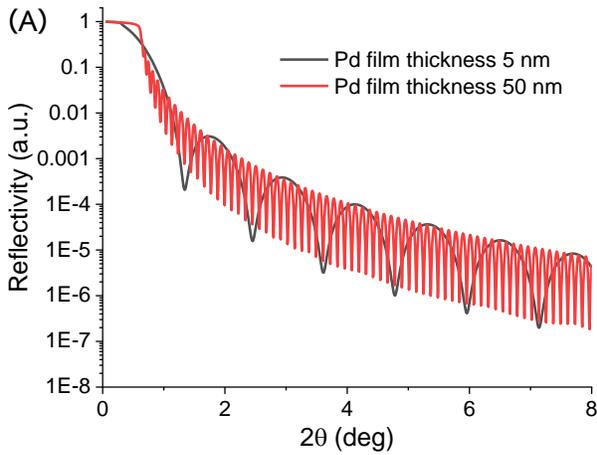
โดย δ คือส่วนจริงของค่าดัชนีหักเหของแสง (real part of the refractive index) ซึ่งค่านี้แปรผันตรงกับความยาวคลื่น (λ) และความหนาแน่น (ρ) ตามความสัมพันธ์

$$\delta \propto \lambda^2 \rho \quad (2)$$



รูปที่ 1 ข้อมูลคุณสมบัติของฟิล์มบางที่ได้จาก XRR profile อันได้แก่ ความหนา ความหนาแน่น ความขรุขระของผิวหรือรอยต่อระหว่างผิว

ความเร็วในการลดลงของ XRR profile ขึ้นอยู่กับความขรุขระของผิว ยิ่งผิวมีความขรุขระมาก ยิ่งทำให้ความเร็วในการลดลงของค่าการสะท้อนมากขึ้นตามไปด้วยดังรูปที่ 2 (C) เมื่อพิจารณาให้ถี่กลงไปแล้ว รอยต่อของผิวนั้นประกอบไปด้วย ส่วนแรกคือผิวที่มีความขรุขระจากรูปร่างของผิว และส่วนที่สองคือความหนาแน่นที่ค่อย ๆ เปลี่ยนไป ทั้งสองส่วนนี้ถือเป็นแหล่งกำเนิดของความขรุขระที่มองโดยรวมแล้วคือความหนาแน่นของอิเล็กตรอนที่เปลี่ยนแปลงไป ยิ่งความขรุขระนี้มาก ยิ่งทำให้ amplitude ของคาบการสั่นลดลงดังแสดงในรูปที่ 2 (D)

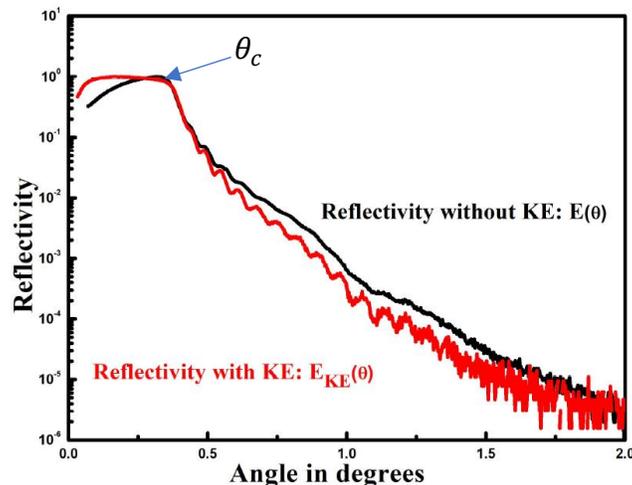


รูปที่ 2 กราฟ XRR ที่เกิดจากการ simulation ซึ่งเปรียบเทียบความแตกต่างของคุณสมบัติของฟิล์มบาง (A) ฟิล์ม Pd ที่มีความหนาต่างกันบน Si substrate (B) ฟิล์ม Pd, Fe, SiO_2 ที่มีความหนา 20 nm บน Si substrate (C) ผิว Si ที่ความขรุขระ 0.5 nm และ 2 nm (D) ความขรุขระของรอยต่อสองค่าระหว่าง Si substrate และฟิล์ม Pd ที่หนา 20 nm

สำหรับการวิเคราะห์ข้อมูล XRR นั้น ต้องทราบข้อมูลเบื้องต้นเพื่อกำหนดเป็นพารามิเตอร์ตั้งต้นสำหรับการทำ refinement โดยต้องการข้อมูลด้านความหนา ความหนาแน่น ความขรุขระในแต่ละชั้นของฟิล์มบาง คำตอบจากการประมาณค่าพารามิเตอร์โดยใช้วิธีกำลังสองน้อยที่สุดแบบไม่เป็นเส้นตรง (non-linear least-

squares method) เทียบระหว่างผลจากการวัดและโมเดลที่สร้างขึ้นมาจากทฤษฎีของ Parratt (Parratt, 1954) ร่วมกับทฤษฎีของ Nevot และ Croce ซึ่งรวมความขรุขระเข้าไปด้วย (Nevot & Croce, 1980).

อุปกรณ์สำหรับการวัดที่มุมต่ำที่ขาดไม่ได้คือคือ Knife edge ซึ่งจะสามารถช่วยให้เห็น oscillation ดีขึ้น และส่งผลถึงข้อมูลที่ต่ำกว่า θ_c มี max intensity เท่ากันตามทฤษฎีเนื่องจากการสะท้อนกลับหมด ก่อนที่จะลดลง เมื่อมุมตกกระทบมากกว่า θ_c นอกจากนี้ยังสามารถเห็น oscillation ของ XRR ได้ดีขึ้นดังแสดงในรูปที่ 3



รูปที่ 3 กราฟ XRR ที่ใช้และไม่ใช้ Knife edge ในระหว่างการวัด (Das, Singh, Choudhari, Rai, & Ganguli, 2018)

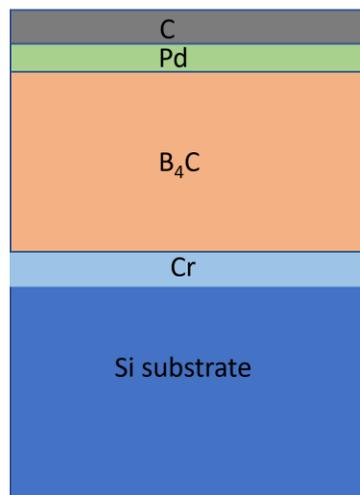
ขั้นตอนการดำเนินงาน

ขั้นตอนในการวิเคราะห์ตัวอย่างด้วยเทคนิค XRR แบ่งเป็น 3 ขั้นตอนคือ (1) เตรียมระบบการวัดที่สถานีทดลองพร้อมติดตั้ง sample holder (2) ติดตั้งและทำ sample alignment และ (3) การเก็บข้อมูลและวิเคราะห์

อุปกรณ์สำคัญที่ใช้มีดังนี้

1. GIXRD sample holder ซึ่งมีทั้งแบบที่ติดตั้งบน 7-axis sample stage (GI stage) และบน goniometer ที่อยู่บน spinner
2. Knife edge
3. Mythen detector (1D detector)
4. Ionization chamber (สำหรับการทำ alignment)

สำหรับตัวอย่างสำหรับทดสอบได้รับความอนุเคราะห์จาก ดร.กัคนันท์ ภัควินิตย์เป็นตัวอย่างที่มี 4 ชั้นบน Si substrate ชั้นแรก Cr ที่เป็นชั้นที่ทำให้เกิดการสะท้อนได้ดีหนา 2 nm ต่อมาคือชั้น B₄C หนา 19 nm และสองชั้นบนสุด (Pd และ C) ที่ทำให้มีความหนา 1 nm ดังแสดงรูปที่ 4 ตัวอย่างนี้บางชั้นมีความหนาของ 1 nm ซึ่งจะเป็นอีกหนึ่งการทดสอบว่าระบบการวัดที่ BL1.1W สามารถวัดที่ความบางขนาดนี้ได้ไหม ตัวอย่างนี้มีความหนาที่เหมาะสมในการทดสอบ และเครื่องมือที่ใช้ในการผลิตที่ European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) ค่อนข้างมีความแม่นยำสูง ทำให้ค่าการวิเคราะห์ถ้าถูกต้องไม่ควรจะแตกต่างจากค่าความหนาที่กำหนดไว้ในการผลิต นอกจากนี้ยังมีผลการทดสอบจากเครื่องวัด XRR (Morawe, Peffen, & Pakawanit, 2018) ที่ ESRF เพื่อใช้ในการเปรียบเทียบ



รูปที่ 4 แสดงตัวอย่างที่ใช้ทำการทดสอบที่มีการเคลือบ 4 ชั้น Cr/B₄C/Pd/C บน Si substrate

Sample and system set up

โดยส่วนใหญ่ XRR จะเริ่มวัดจากมุมเล็กมาก ซึ่งส่งผลให้มีขนาดของแสงที่หน้าตัวอย่าง (beam footprint) มีขนาดยาว ยกตัวอย่างเช่น ใช้ขนาดแสงในแนวตั้ง (vertical beam size) ทั้งหมดโดยไม่ตัด 3 mm ที่มุมตกกระทบ 0.1 degree จะมี beam footprint ยาวถึง 1720 mm ดังนั้นจึงใช้หลักการตัดแสงในแนวตั้งให้มีขนาดเล็กที่สุดที่ยังมี flux พอให้สามารถวัดในเวลาประมาณครึ่งชั่วโมง จากการทดสอบพบว่าขนาดของแสงในแนวตั้งที่เหมาะสมคือ 0.1 mm ซึ่งจะมี beam footprint 57.3 mm ที่มุมแสงตกกระทบตัวอย่าง 0.1 degree

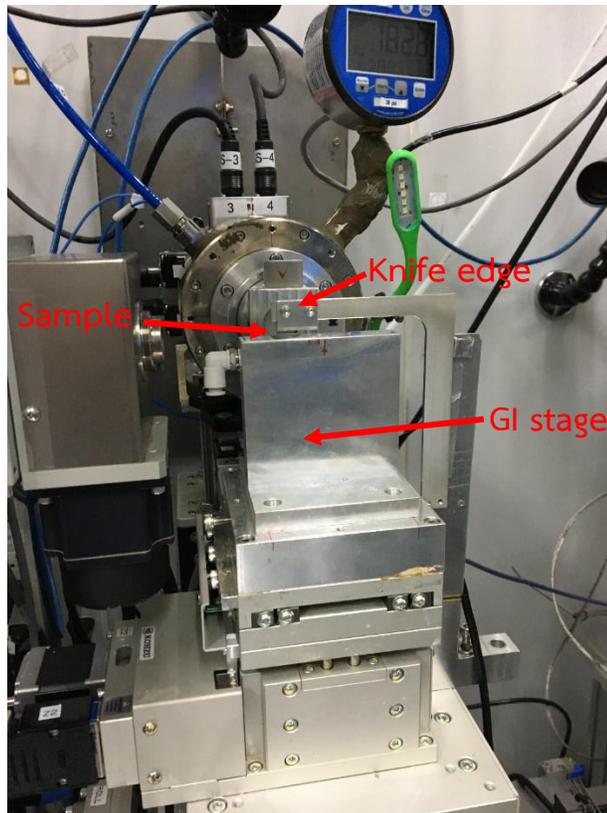
หลังจากการเตรียมขนาดแสงที่มีความเหมาะสมและทำการติดตั้ง sample holder จากนั้นทำการ alignment โดยใช้วิธี Half cut แบบเดียวกับการ alignment สำหรับการวิเคราะห์ GIXRD ซึ่งสามารถแบ่งเป็น 3 ขั้นตอนหลักคือ

1. Height adjustment เป็นการปรับ GI stage ขึ้น-ลง เพื่อให้ stage หรือ sample อยู่กึ่งกลางแสงในแนว vertical มากที่สุด

2. Theta adjustment เป็นการปรับมุมให้ผิวหน้าของ GI stage ขนานกับแสงในแนว Horizontal มากที่สุด

3. Height re-adjustment เป็นการทำซ้ำขั้นตอนที่ 1 เพื่อให้ลำแสงขนานกับผิวฟิล์มจากขั้นตอนที่ 2 ให้อยู่กึ่งกลางตัวอย่าง

สำหรับขั้นตอน Sample alignment และการใช้โปรแกรมอย่างละเอียดสามารถศึกษาเพิ่มเติมได้จาก <https://www.slri.or.th/BL1-1W/Grazing%20incident.html> จากนั้นทำการติดตั้งตัวอย่างและทำการ Half cut อีกครั้งหนึ่งเพื่อความแม่นยำจากนั้นทำการติดตั้ง knife edge บนกึ่งกลาง beam footprint



รูปที่ 5 ภาพแสดงการติดตั้งตัวอย่างบน GI stage และติดตั้ง Knife edge บนกึ่งกลางบริเวณแสงโดนตัวอย่าง

ภายหลังจาก alignment เสร็จ นำ Mythen detector เข้าสู่ตำแหน่งการวัดและให้หน้าตัวอย่างขนานกับแสง (pitch = 0 degree) ซึ่งเป็นขั้นตอนสุดท้ายในการ alignment จากนั้นทำการปรับ Main theta ให้น้อยที่สุดเท่าที่ direct beam ไม่กระทบหัววัดโดยตรง ซึ่งส่วนใหญ่จะอยู่ประมาณมุม 0.05 degree โดยระหว่างการทดสอบหาตำแหน่ง Main theta จะต้องใช้เวลาในการวัดให้น้อยที่สุด เช่น 1 วินาทีเพื่อลดความเสียหายที่อาจจะเกิดกับหัววัด เนื่องจาก Mythen detector มี Dynamic range 24 bits ซึ่งสามารถอ่านค่าได้มากที่สุด 16,777,215 cps จากการทดลองจริงหากใช้ขนาดแสง 0.1 mm ถึงแม้จะโดน direct beam ก็ยังไม่เกิน Dynamic range ของหัววัด นอกจากนี้ Mythen detector เป็นหัววัดแบบแถบ (1D detector) ทำให้ไม่ต้องทำการขยับหัววัดระหว่างการวัด

หลังจากได้ตำแหน่ง Main theta ของ Mythen detector แล้ว จะต้องหาค่า Channel threshold ที่เป็นค่ากำหนด channel ที่มากที่สุดในการเริ่มทำการสแกนหาค่า Max intensity โดยทำการวัดในมุมที่ต่ำที่สุดที่ต้องการจะวัดเป็นทั้งค่า ค่ามุมเริ่มต้น (Pitch start) และค่ามุมสุดท้าย (Pitch end) ใช้เวลาในการวัด (Exposure time) 1 sec หลังจากทำการวัดเสร็จให้ zoom หน้าต่างด้านบนที่เป็นข้อมูลดิบระหว่าง Intensity และ Channel (หน้าต่างแสดงกราฟด้านบนในรูปที่ 6) เพื่อหา Channel ที่มีค่าสูงที่สุด จากนั้นให้กรอกค่า Channel threshold ที่มีค่ามากกว่า Channel ที่มีค่า Intensity สูงที่สุดนั้นไปประมาณ 10 Channel เพื่อใช้เป็นค่าเริ่มต้นในการเก็บข้อมูลจริง

XRR Measurement

ทำการกรอกค่าพารามิเตอร์ที่ใช้ในการวัด คือ Pitch start ซึ่งส่วนใหญ่จะไม่เกิน 0.5 ค่ามุม Pitch end มุมตกกระทบที่ตัวอย่างที่เปลี่ยนไปในการวัดแต่ละครั้ง (Pitch step) และ Pitch zero ซึ่งเป็นค่าอ้างอิงของโปรแกรมที่ระบุว่า pitch = 0 degree โดยใช้ค่า pulse สุดท้ายของมอเตอร์ที่ควบคุม Theta adjustment ให้แสงขนานกับตัวอย่าง

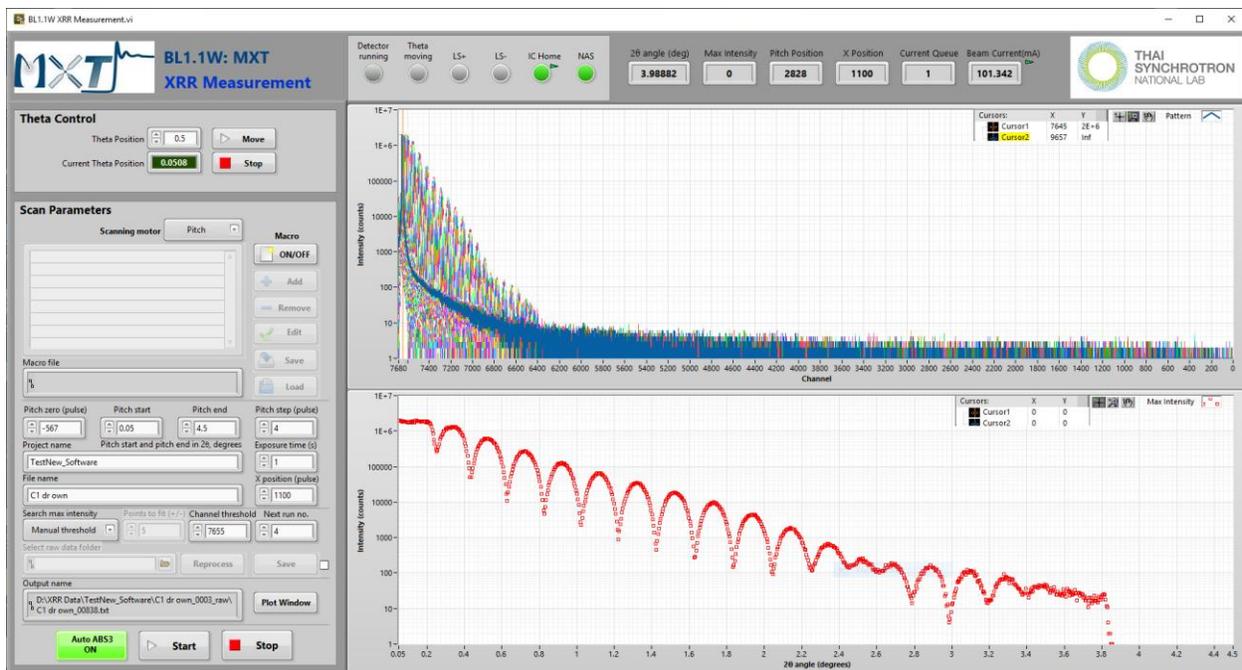
โปรแกรม XRR measurement ออกแบบให้มีความยืดหยุ่น สามารถใช้กำหนดรูปแบบการวัดแบบต่อเนื่องโดยใช้โหมด Macro โดยในโหมดนี้สามารถวัดตัวอย่างเดียวกันด้วยคนละพารามิเตอร์หรือพารามิเตอร์เดียวกันแต่หลายซ้ำ หรือจะวัดหลายตัวอย่างที่ alignment ไว้แล้วต่อเนื่องกันไป ซึ่งสามารถกำหนดค่าพารามิเตอร์ที่ใช้วัดในแต่ละตัวอย่าง ร่วมกับตำแหน่ง X position ที่เป็นการระบุตำแหน่งตัวอย่าง

การสร้าง XRR profile จากค่า Max intensity ในแต่ละมุมตกกระทบนั้นสามารถทำได้ 2 วิธี คือ แบบ Manual threshold และ Automatic search และทั้งสองวิธีใช้ Channel threshold เป็นค่าเริ่มต้น เพื่อกำหนดค่า channel ที่มากที่สุดที่นำข้อมูลมาหาค่า Max intensity

สำหรับวิธี Manual threshold จะ search หาค่า Max intensity จากมุมที่วัดครั้งแรกและใช้ค่านี้เป็นจุดเริ่มต้น สำหรับ XRR profile ที่เกิดจากจุดที่สองเป็นต้นไปทางโปรแกรมได้ออกแบบให้ search ค่า Max intensity จาก channel ที่น้อยกว่าหรือเท่ากับ Max intensity ที่วัดจากมุมตกกระทบบ่อนหน้านี้

สำหรับวิธี Automatic search จะนำค่า channel (แกน X) และ intensity (แกน Y) จากการ search ใน Manual threshold มาทำ Peak fitting ด้วยฟังก์ชัน Lorentz โดยสามารถกำหนดช่วง channel ได้จาก Point to fit (+/-) ซึ่งค่าเริ่มต้นที่แนะนำคือ 5 แต่สามารถปรับเปลี่ยนได้ตามที่เหมาะสมในแต่ละตัวอย่างและนำค่า Max intensity จาก Peak fitting มาสร้าง XRR profile

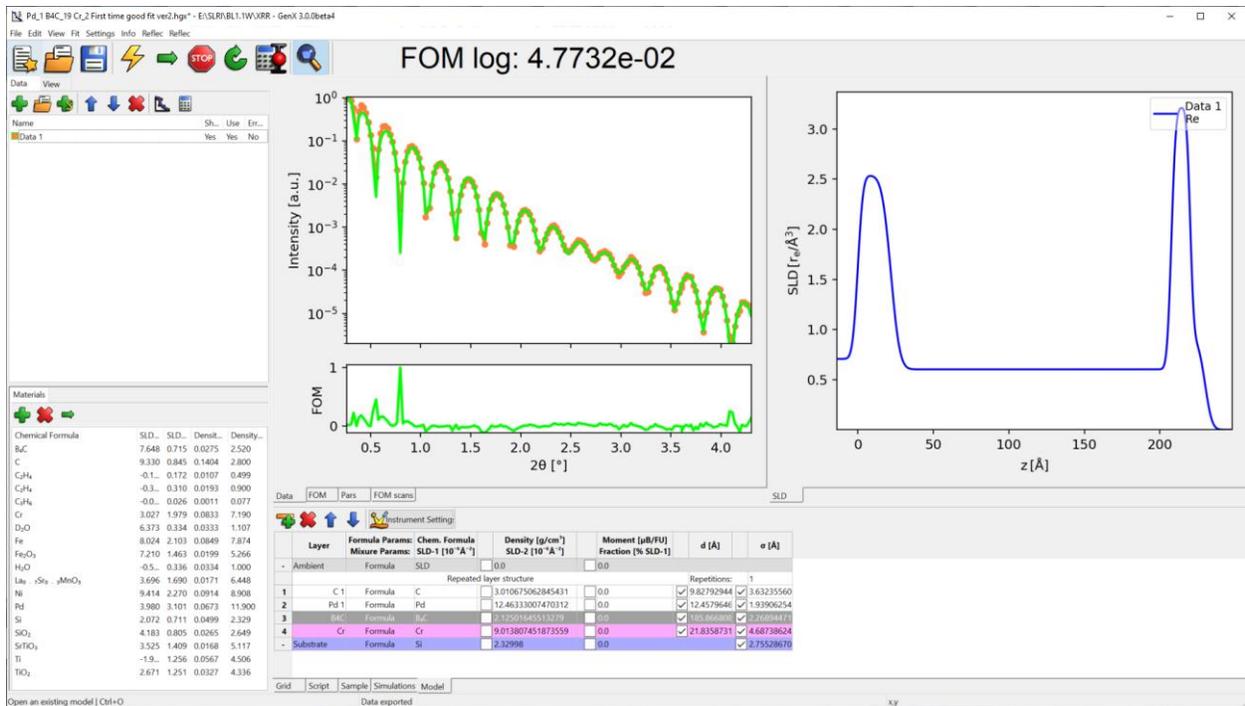
เนื่องจากมุมตกกระทบบที่สูงขึ้นจะมี intensity น้อย จนต่ำกว่า 100 counts และถ้าอยู่ในหลักสิบอาจจะอยู่ในระดับ noise ดังรูปที่ 6 ตั้งแต่มุม 2θ ประมาณ 3.8 degree จะเห็นค่า max intensity ลดลงอย่างรวดเร็วทำให้ไม่สามารถสร้าง XRR profile ต่อไปได้ การเพิ่มเวลาในการวัดสำหรับทุกมุมตกกระทบบเป็นวิธีการหนึ่งในการแก้ปัญหานี้ แต่จะใช้เวลาในการวัดเพิ่มขึ้นเป็นเท่าตัว เช่น ในการวัดช่วง 0.05 – 4.5 degree โดยขยับมุมตกกระทบบทีละ 2 pulse (ละเอียดที่สุดที่แนะนำให้ใช้ได้) หากใช้เวลาวัดมุมละ 1 sec จะใช้เวลาทั้งหมด 45 นาที ถ้าเพิ่มเวลาในการวัดเป็น 2 sec/step ก็จะใช้เวลา 90 นาที ซึ่งใช้เวลาในการวัดมากเกินไป อีกวิธีการหนึ่งคือเพิ่มเวลาวัดแต่ละจุดเฉพาะช่วงมุมตกกระทบบสูงจะช่วยให้ประหยัดเวลาในการวัดได้ แต่ในการทำเช่นนี้จะต้องนำค่ากระแสของวงกักเก็บอิเล็กตรอนมาทำ normalization เพื่อจะสามารถได้ข้อมูลที่ถูกต้อง



รูปที่ 6 แสดงโปรแกรม XRR Measurement ที่แสดงกราฟ XRR ระหว่างการวัด รูปข้างบนแสดงข้อมูลดิบแสดง Intensity (แกน Y) ที่เกิดขึ้นจากหัววัดแบบแถบซึ่งจะมีทั้งหมด 7680 channel (แกน X) ยังมีค่ามากจะเป็นด้านที่ใกล้กับแนวแสง รูปด้านล่างแสดงกราฟ XRR profile จากค่า Max intensity ที่ประมวลผลมาจากข้อมูลดิบแบบ real time

Data analysis

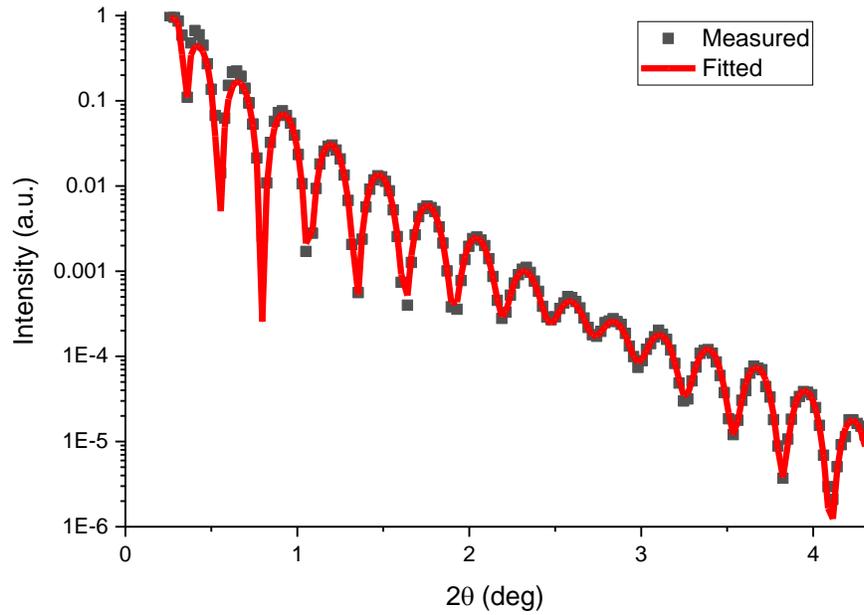
ในการวิเคราะห์ข้อมูลในครั้งนี้ใช้โปรแกรม GenX version 3.0 (Choi et al., 2012) โดยกำหนดคุณสมบัติแต่ละชั้น เช่น lattice parameters ความหนาแน่น จากนั้นสร้างโมเดลชั้นฟิล์มในแต่ละชั้นตามวัสดุที่ใช้ และกำหนดค่าความหนา ความหนาแน่น และความขรุขระเริ่มต้นที่คาดว่าจะ เป็น จากนั้นทำ refinement พารามิเตอร์ โดยให้เป็นค่าที่อยู่ในช่วงที่เป็นไปได้ ค่า Figure of merit (FOM) ควรน้อยกว่า 0.1 สำหรับการ ใช้โปรแกรมสามารถศึกษาเพิ่มเติมได้จาก <https://aglavic.github.io/genx/doc/tutorials.html#reflectivity>



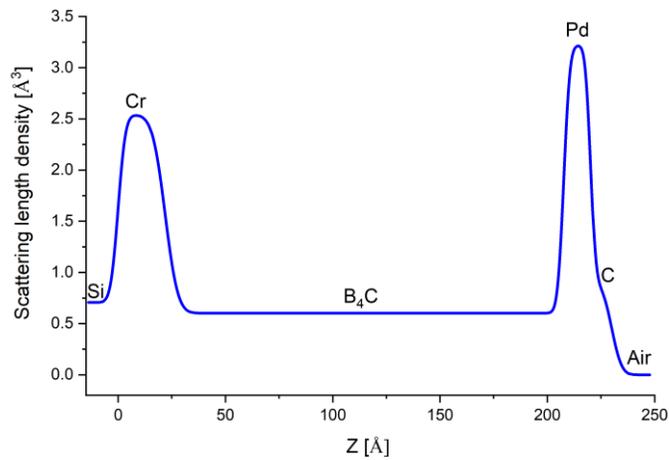
รูปที่ 7 แสดงโปรแกรม GenX ที่ใช้ในการวิเคราะห์ข้อมูล

ผลลัพธ์และอภิปรายผล

จากการทดสอบระบบการวัดพารามิเตอร์ที่แนะนำให้ใช้งานสำหรับตัวอย่างทั่วไปคือขยับมุมตกกระทบ (Pitch step) ครั้งละ 4 pulse (0.004706 degree) และใช้เวลาในการวัด (Exposure time) 1 sec/step จะใช้เวลา 4.25 min ต่อช่วงการวัด 1 degree หากทำการวัดช่วง 0.05 – 4.5 degree จะใช้เวลาประมาณ 19 min ซึ่งถือว่าใกล้เคียงกับเวลาในการวัดจากเครื่องวัด stand alone ทั่วไป ผลการทดลองและการวิเคราะห์ด้วยโปรแกรม GenX แสดงใน รูปที่ 8 แสดงให้เห็นถึง XRR profile ที่ได้จากการทดลองและการทำ refinement ที่มีค่า FOM 0.048 ซึ่งน้อยกว่า 0.1 ที่ถือว่าเป็นค่าขั้นต่ำที่ยอมรับได้ และสามารถนำมาสร้างกราฟของ Scattering length density ที่ความหนาต่างๆ ได้ดังรูปที่ 9 ค่าความหนาที่ได้แสดงในตารางที่ 1 ซึ่งใกล้เคียงกับค่าความหนาที่คาดจะสร้างขึ้นในแต่ละชั้น โดยมีค่าแตกต่างกันไม่เกิน 25%



รูปที่ 8 กราฟ XRR ที่เกิดจากการวัด (จุดสีดำ) และจากการ Fitting ด้วยโปรแกรม GenX (เส้นสีแดง)



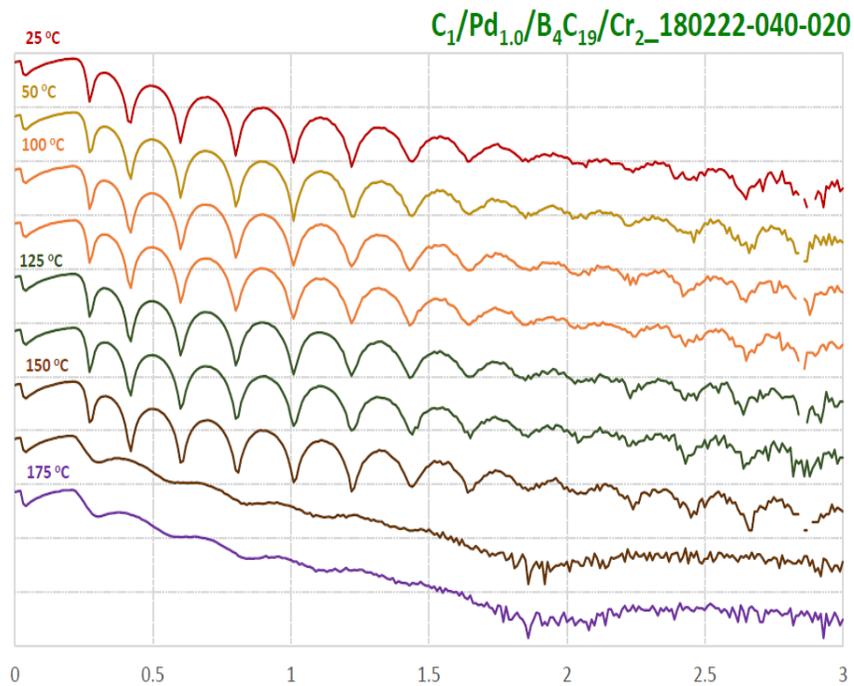
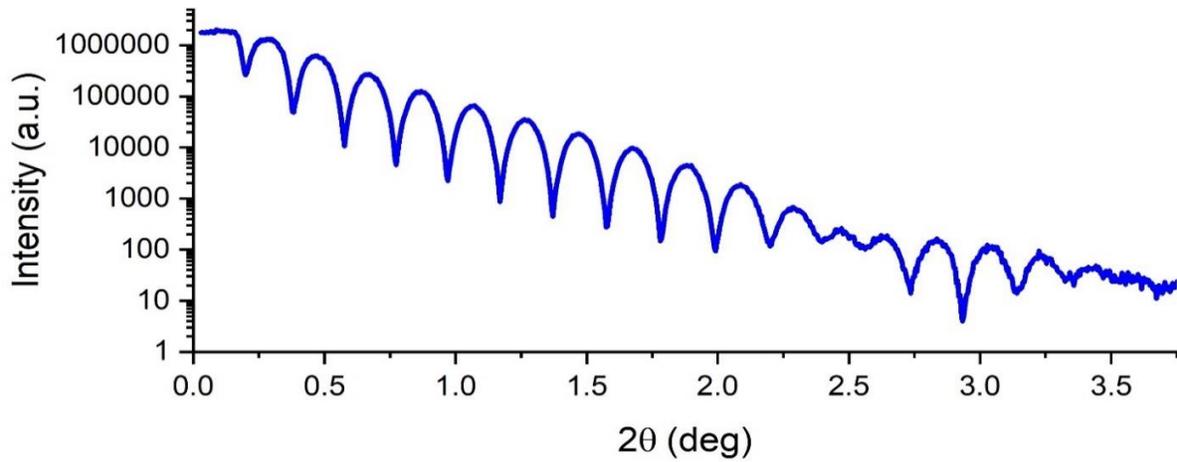
รูปที่ 9 Scattering length density ตามระยะจากผิว substrate แสดงให้เห็นว่ามีค่าเยอะในชั้นที่มี electron density สูง เช่นที่ชั้น Cr และ Pd

ตารางที่ 1 แสดงผลความหนา ความขรุขระและความหนาแน่นจากการทำ refinement ด้วยโปรแกรม GenX

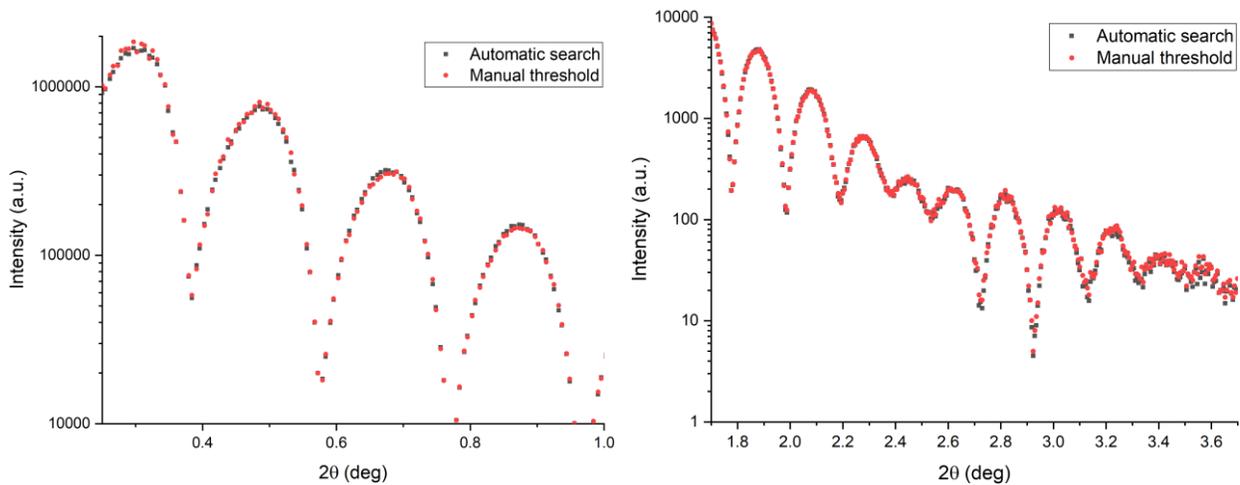
Layer	Expected Thickness (nm)	Thickness (nm)	Roughness (nm)	Film density (g/cm ³)
C	1	0.98	0.36	3.01
Pd	1	1.23	0.14	12.46
B4C	19	18.6	0.23	2.12
Cr	2	2.18	0.47	9.01
Substrate (Si)			2.76	2.33

เมื่อเทียบกับผลการวัดจากเครื่องมือในห้องปฏิบัติการที่สร้างขึ้นเองที่ ESRF (Morawe et al., 2018) ดังแสดงในรูปที่ 10 (ล่าง) จะเห็นว่าข้อมูลจาก BL1.1W มี Oscillation period คล้ายกันแต่ให้ข้อมูลที่มุมตกกระทบสูงตึกว่ามากทำให้ได้ช่วงข้อมูลมากกว่า ส่งผลถึงการหาค่าความขรุขระมีความถูกต้องแม่นยำมากกว่า และช่วงข้อมูลที่มากกว่าทำให้การ refinement โดยรวมมีความน่าเชื่อถือและมีค่าแม่นยำกว่า ทั้งนี้เครื่องมือที่ใช้วิเคราะห์จาก ESRF ออกแบบให้สามารถรองรับตัวอย่างขนาดใหญ่ 1 m ซึ่งแตกต่างจากเครื่องวัดที่มีขายอยู่ทั่วไป ดังนั้นควรจะต้องทำการทดสอบกับเครื่องวัดที่เป็นของบริษัททั่วไปเพื่อทำการเปรียบเทียบ นอกจากนี้ยังพบว่าเกิดการเปลี่ยนแปลงของ XRR เมื่อเก็บตัวอย่างในบรรยากาศปกติ 1 ปี ดังรูปที่ 10 (ล่าง) เมื่อเทียบกับผลการวัดหลังจากตัวอย่างสัมผัสกับอากาศไม่กี่ชั่วโมง (รูปที่ 8) แสดงให้เห็นว่าระบบ XRR ที่พัฒนาขึ้นมาสามารถติดตามการเปลี่ยนแปลงของฟิล์มบางที่มีผลจากระยะเวลาในการสัมผัสอากาศได้

การทดลองการสร้าง XRR profile จากวิธี Manual threshold และ Automatic search โดยใช้ Point to fit คือ ± 5 point จากตำแหน่งสูงสุดที่ได้จากขั้นตอน Manual threshold ได้ผลการทดลองดังรูปที่ 11 พบว่าไม่แตกต่างกันมากนักและค่า intensity ที่ได้จาก Automatic search ซึ่งเป็นผลจากการ Peak fitting นั้นอาจจะมากกว่าหรือน้อยกว่าแล้วแต่มุมตกกระทบ แต่การใช้วิธี Automatic search จำเป็นต้องทดลองหาค่า Point to fit ที่เหมาะสมดังนั้นแนะนำให้ใช้ Manual threshold เพื่อความง่ายในการวิเคราะห์



รูปที่ 10 กราฟ XRR (บน) ผลจากการวัดซ้ำหลังจากเปิดให้ตัวอย่างสัมผัสอากาศ 12 เดือนที่ BL1.1W (ล่าง) ผลการวัดจากเครื่องมือในห้องปฏิบัติการที่ ESRF (ขอขอบคุณผลการวัดจากดร.ภักคนันท์ ภักควินิตย์) พบว่าการวัดจาก BL1.1W ให้ผลดีกว่ามากโดยเฉพาะที่มุมตกกระทบสูง



รูปที่ 11 เปรียบเทียบกราฟ XRR โดยวิธี Automatic search และ Manual threshold (ซ้าย) ที่มุมตกกระทบต่ำ (ขวา) ที่มุมตกกระทบสูง

สรุปผล

รายงานฉบับนี้แสดงผลทดสอบการวัดเทคนิค XRR แสดงให้เห็นว่าระบบลำแสงที่ 1.1W มีความพร้อมในการให้บริการเทคนิค XRR ถือเป็นเทคนิคใหม่ที่เกิดขึ้นในสถาบันฯ โดยมีการสร้างอุปกรณ์ Knife edge เพิ่มเพียงชิ้นเดียว ถือเป็น การเพิ่มขีดความสามารถของสถาบันฯ ด้วยทรัพยากรที่มีอยู่อย่างคุ้มค่า ส่งผลให้ผู้เข้ามาใช้บริการสามารถเข้าถึงคุณสมบัติของฟิล์มทั้งในแง่ของความหนา ความขรุขระและความหนาแน่นเพิ่มเติมจากเทคนิค XAS XRF PXRD GIXRD AXRD ที่ให้บริการอยู่แล้ว สามารถสรุปผลเป็นข้อได้ดังนี้

1. สามารถหาพารามิเตอร์ที่แนะนำในการวัดซึ่งทำให้เวลาในการวัดต่อหนึ่งตัวอย่างด้วยช่วงปกติ (0.1 – 4.5 degree) ใช้เวลาประมาณ 19 นาที
2. การสร้าง XRR profile โดยใช้วิธี Manual threshold และ Automatic search ไม่แตกต่างกันมากนัก ดังนั้นแนะนำให้ใช้วิธี Manual threshold เพื่อลดขั้นตอนการทำงาน
3. โปรแกรมสามารถตั้งให้วัดแบบต่อเนื่องใน Macro mode ที่สามารถเลื่อนวัดตัวอย่างถัดไปได้ และสามารถกำหนดพารามิเตอร์ในการวัดได้ เช่น ช่วงการวัดและเวลาในการวัดในแต่ละตัวอย่าง
4. สามารถวิเคราะห์ตัวอย่างที่มีความหนาในระดับ 1 nm ได้ และมีผลการวัดที่ดีกว่าเครื่องวัด XRR ที่ ESRF สร้างเองเพื่อวัดตัวอย่างที่มีขนาดใหญ่
5. ตัวอย่างเดียวกันเมื่อทำการวัดซ้ำ พบว่าภายหลังจากการสัมผัสอากาศ 1 ปีผลที่ได้มีการเปลี่ยนแปลง

ทาง BL1.1W คาดหวังว่า จะมีนักวิจัยที่ทำงานทางด้านฟิล์มบางเข้ามาใช้งานเทคนิค XRR นี้และยังเปิดกว้างสำหรับโอกาสในการพัฒนาการทดลองแบบ *in-situ* ที่สามารถทำได้ยากในเครื่องมือวัด XRR ทั่วไป เช่น การใช้งานร่วมกับ dome hot stage สำหรับการทดลองให้ความร้อนไปด้วย

เอกสารอ้างอิง

- Choi, M., Posadas, A., Dargis, R., Shih, C.-K., Demkov, A. A., Triyoso, D. H., . . . Jordan-Sweet, J. (2012). Strain relaxation in single crystal SrTiO₃ grown on Si (001) by molecular beam epitaxy. *Journal of applied physics*, *111*(6), 064112.
- Das, A., Singh, S. D., Choudhari, R., Rai, S., & Ganguli, T. (2018). Data-reduction procedure for correction of geometric factors in the analysis of specular X-ray reflectivity of small samples. *Journal of Applied Crystallography*, *51*(5), 1295-1303.
- Kiessig, H. (1931). Interferenz von Röntgenstrahlen an dünnen Schichten. *Annalen der Physik*, *402*(7), 769-788. doi:10.1002/andp.19314020702
- Morawe, C., Peffen, J.-C., & Pakawanit, P. (2018). *The new ESRF thin-film x-ray reflectometer*. Paper presented at the Advances in X-Ray/EUV Optics and Components XIII.
- Nevot, L., & Croce, P. (1980). Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons X. Application à l'étude du polissage de quelques verres silicates. *Revue de Physique appliquée*, *15*(3), 761-779.
- Parratt, L. G. (1954). Surface studies of solids by total reflection of X-rays. *Physical review*, *95*(2), 359.